

## 진공 브레이징을 이용한 고온가스냉각로 중간 열교환기 후보재료의 접합성능에 관한 예비시험

### Preliminary Investigation on Joining Performance of Intermediate Heat Exchanger Candidate Materials of Very High Temperature Reactor(VHTR) by Vacuum Brazing

김경호\*, 김광호\*, 이민구\*, 김홍희\*, 김성욱\*\*, 김숙환\*\*

\* 한국원자력연구소 원자력재료기술개발부

\*\* 포항산업과학연구소 용접연구센터

**ABSTRACT** An intermediate heat exchanger(IHX) is a key component in a next-generation VHTR with process heat applications such as hydrogen production and also for an indirect gas turbine system. Therefore, high temperature brazing with nickel-based filler metal(MBF-15) was carried out to study the joining characteristic(microstructure, joining strength) of nickel-based superalloy(Haynes 230) by vacuum brazing. The experimental brazing was carried out at the brazing process, an applied pressure of about 0.74Mpa and the three kinds of brazing temperatures were 1100, 1150, and 1190 °C with holding time 5 minute. It's joining phenomena were analyzed by optical microscopy and scanning electron microscopy with EPMA. The results of microstructure in the centre-line region of a joint brazed with MBF-15 show a typical ternary eutectic of  $\gamma$ -nickel, nickel boride and chromium boride.

## 1. 서 론

헬륨가스를 냉각재로 사용하는 고온가스 냉각로의 기기 중 특히, 중간열교환기는 일차 냉각시스템에서 이차 냉각시스템으로의 고온의 열을 전달하기 때문에 약 1,000°C의 고온에 견디는 헬륨가스의 누설방지와 초기에 원자력에서 생성되는 트리튬의 침투방지가 무엇보다도 중요하기 때문에 고온냉각계통의 재료의 건전성 확보와 접합기술개발이 핵심과제이다. 접합 기술의 핵심기술은 접합과정에서 생기는 금속간 화합물들의 균열민감도, 연성, 강도, 부식 허용성 등과 미세조직, 그리고 인접 부품들간의 열팽창계수들이 종합적이고 체계적으로 고려되어야한다. 하지만 고온(1,000°C)을 요구하는 미래형원자로에 대한 접합기술은 세계적으로 아주 초보적인 실험실적 규모로 연구가 수행 중에 있고, 그나마 국내에서는 연구기반이 아주 미미한 상태이다. 따라서 본 연구에서는 고온가스로의 핵심부품인 중간열교환기 후보재료로 주목받고 있는 니켈기 초내열합금인 Haynes 230재료를 가지고 접합부와 접합계면에서의 접합특성을 알아보기 위해서 Ni기 삼입금속을 사용하여 일차적으로 진공브레이징 법으로 브레이징 온도를 3 종류로 변화시켜 접합실험을 실시하였다. 또한 광학현미경과 SEM을 이용하여

미세조직을 관찰과 EPMA 분석을 통한 성분분석을, 그리고 모재와 접합부 계면, 그리고 접합부 내의 경도를 측정하였다.

## 2. 실험방법

본 연구에 사용된 재료는 니켈기 초내열 합금인 Haynes 230이며, 삼입금속으로는 주요성분이 모재와 유사한 상업용 MBF-15 foil를 사용하였다. 각각의 성분은 Table 1에 나타내었다. 모재는 ASTM-B-572 규격으로 제조된 Haynes rod와 plate에서 직경 15mm, 두께 3mm의 디스크 형태로 가공하였다. 디스크 시편의 접합면은 에머리 페이퍼로 #1200까지 연마하였으며, 각 연마면을 서로 마주보게 하여 접합을 실시하였다. 접합 시에 진공유도도를 이용하였으며, 이때 진공도는  $2 \times 10^{-5}$  torr를 유지함으로써 고온에서의 산화를 방지하였다. 이 때 디스크 형태의 두 모재 사이에 두께 38 $\mu$ m 인 foil 형태의 삼입금속을 두 겹으로 하여 약 78 $\mu$ m로 간격을 유지하였다. 삼입금속 후 접합부를 밀착시키기 위해 약 0.74 MPa의 압력을 가하여 실시하였다. 승온속도는 10°C/s 로 하였으며, 냉각은 노냉 처리하였다. 접합온도는 삼입금속의 용융 범위와 모재에 큰 영향을 주지

않는 온도를 고려하여 1100, 1150, 1190°C의 조건에서 실시하였다. 접합 후 시편은 중심부를 따라 절단하여 단면을 연마 및 정마한 후, Kalling's reagent를 이용하여 에칭한 후 광학현미경 및 SEM을 이용하여 단면의 미세조직을 관찰하였다. 미세조직 내의 상 분석 및 원소의 확산 관찰을 위해 EPMA 분석 방법을 이용하였다. 또한 온도에 따른 접합부의 경도변화를 관찰하기 위해 micro-Vickers hardness tester(HMV 2000, Shimadzu)를 이용하여 100gf의 하중에서 경도를 측정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 접합온도가 1100, 1150, 1190°C로 증가함에 따라 접합부 및 BAZ 영역의 미세조직 변화를 나타낸 것이다. 접합부 내의 미세조직은 기지조직을 형성하고 있는  $\gamma$ -상과 덩어리형태의 삽입금속 공정상이 혼합된 조직을 보이고 있다. 이러한  $\gamma$ -상은 모재의 접합면이 용융된 후 수지상의 계면을 따라 고상이 에피택셜 성장(epitaxial growth)하면서 생성된 것으로, 접합온도가 증가함에 따라 생성비율이 증가하여 1190°C에서는 접합부의 전 영역이  $\gamma$ -상인 것을 볼 수 있다. 반대로 삽입금속 공정상은 접합온도가 증가할수록 생성비율이 점차 감소하여 1190°C의 접합조건에서는 생성되지 않는 것을 볼 수 있다. 이는 삽입금속의 용점을 저하시키던 B와 Si(특히, 확산계수가 큰 B가 먼저)가 모재 쪽으로 확산됨에 따라 접합부 내에서 계면으로부터 등온응고가 발생하는 것과 관련이 있는데, 접합온도가 증가함에 따라 B와 Si의 확산이 더욱 진행되게 되고 따라서 액상의 양은 점차 감소하게 되어 액상으로부터 생성되는 공정상의 면적도 감소하게 된다. 이러한 B와 Si의 모재로의 확산에 의해 B.A.Z. 부분에서는 복잡한 상 구조를 갖게 된다.

Fig. 1.에 표시된 A 영역은 두 개의 석출상이 불규칙적이며 submicron 크기로 혼합되어 석출되어 있으며 접합온도에 관계없이 공통적으로 접합부 계면에 생성되었다. 이 석출상들은 Cr-붕화물과 Ni-규화물로서 삽입금속의 용접저하 원소인 B와 Si성분이 모재로 이동하면서 모재의 Cr, Ni과 결합하여 생성된 것이다. 이러한 석출물들의 생성 구간은 접합온도가 1100°C에서 1190°C

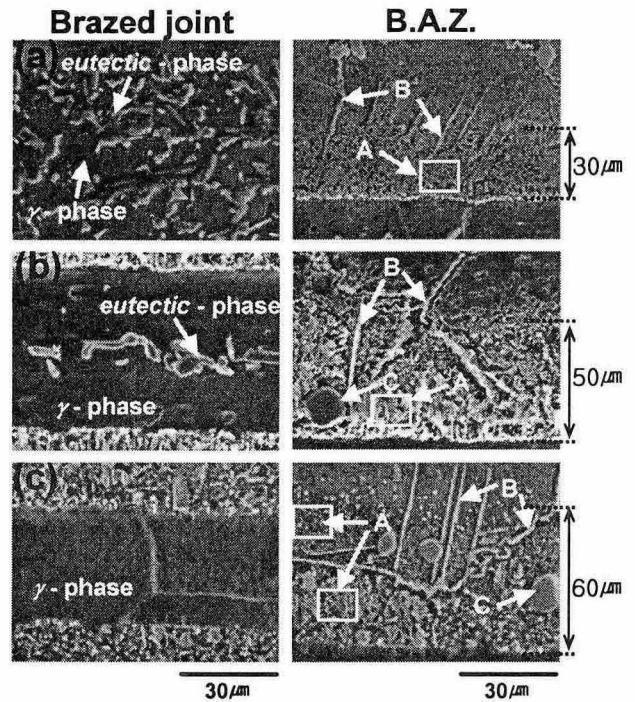


Fig. 1. Microstructures of brazed joint and brazing affected zone(B.A.Z.) at brazing temperatures : (a) 1100°C, (b) 1150°C, and (c) 1190°C.

로 높아질수록 30 $\mu$ m에서 60 $\mu$ m로 증가하였는데, 이는 B에 비해 상대적으로 확산속도가 느린 Si 성분이 접합온도 증가에 따라 모재 쪽으로 더욱 확산되어 들어갔기 때문이다. 또한 모재의 결정립계를 따라 이동하던 B 원소는 모재의 Cr 성분과 반응하여 그림에 B로 표시된 것과 같이 결정립계를 따라 Cr-붕화물을 생성한다. 또한 일부의 Cr-붕화물은 그림에서 보듯이 침상형태로 길게 석출되기도 한다. 그림에서 C로 표시된 석출물은 모재의 석출강화기구인 NiCrFe-탄화물이다. 이러한 A, B, C 형태의 석출물 주변의 기지조직은  $\gamma$ -Ni 상이었다. Fig. 2는 각각의 접합온도에서 용고 반응 완료 후 모재와 접합부의 성분 원소 분포를 알아보기 위해 EPMA line scanning 분석 결과를 나타낸 것이다. 접합부 내의  $\gamma$ -Ni 기지는 모재에 비해 Ni와 Fe 성분이 많이 함유된 것으로 나타났다. 이에 비해 접합부 내의 공정상에는 Cr의 함량이 상대적으로 높게 나타났는데, 이것으로 보아 접합부 내의 공정상은  $\gamma$ -Ni와 Cr-붕화물의 2원계 공정상으로 판단된다. 접합부 내의 Cr의 분포는 접합온도가 증가할수록 점차 모재의 함량과 같이 균일해지는 것을 볼 수 있

다. Si 성분은 BAZ 영역에서 높은 함량을 보이고 있는데, 이는 Fig.1에서 설명하였듯이 삽입금속에서 모재 쪽으로 확산된 Si 성분이 BAZ 영역에서 Ni-규화물을 형성하였기 때문이다. 이러한 Si 성분 또한 접합온도가 증가할수록 모재료의 확산이 진행되어 점차 분포가 점차 균일해지는 것을 볼 수 있다. Si 성분에 비해 확산속도가 매우 빠른 B 성분은 낮은 접합온도에서도 모두 확산되어 모재와 접합부에서 균일한 분포를 보였다. Fig.3은 접합부의 미세조직 변화에 따른 경도 특성을 나타낸 것이다. 접합부 내의 공정상은 경하면서 취성이 강하기 때문에 이러한 공정상이 가장 많이 생성된 접합온도 조건(1100°C)에서 가장 높은 경도를 나타내었고 접합온도가 증가함에 따라 공정상이 감소하면서 경도 또한 감소하였다. 접합온도가 1190°C 조건에서는 모재와 원소 함량이 비슷하지만 접합부의 경도가 210HV로 모재(230HV)에 비해 감소한 것을 볼 수 있는데, 이는 모재부분의  $\gamma$ -Ni 기지가 탄화물에 의해 석출경화 된 데 비해 접합부는 전체적으로  $\gamma$ -Ni만 생성되었기 때문이다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 Haynes 230과 삽입금속 MBF-15를 각각 모재와 삽입금속으로 이용하여 접합하였을 때, 접합온도(1100°C ~ 1190°C)에 따른 접합부 및 brazing affected zone(BAZ)의 미세조직 및 경도 특성을 관찰하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 접합부 내의 미세조직은  $\gamma$ -Ni 기지에 덩어리형태의  $\gamma$ -Ni와 Cr-붕화물의 2원계 공정상이 석출된 형태를 보였다. 접합부 내의 공정상은 접합온도가 증가함에 따라 점차 감소하여 1190°C 조건에서는 관찰되지 않았다.
- 2) 이에 비해 BAZ 영역에서는 삽입금속의 용접저하 원소인 B와 Si성분이 모재 쪽으로 이동하면서 모재의 Cr, Ni과 결합하여 submicron 크기의 Cr-붕화물과 Ni-규화물이 생성되었다. 또한 모재의 결정립계를 따라 이동하던 B 원소는 모재의 Cr 성분과 반응하여 결정립계를 따라 Cr-붕화물을 하였고, 일부의 Cr-붕화물은 침상형태로 길게 석출되었다. 이러한 석출물 주변의 기지조직은  $\gamma$ -Ni 상이었다.

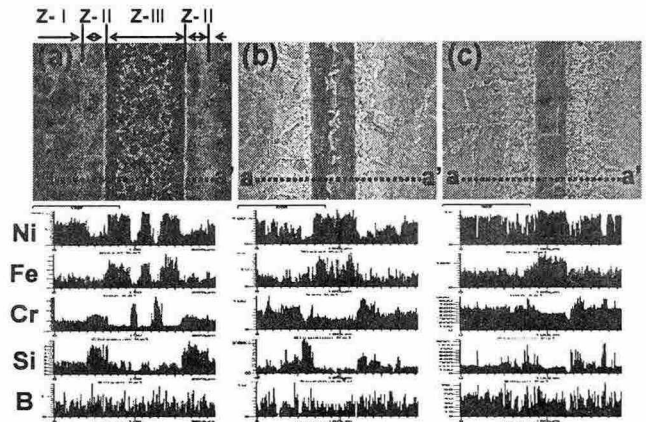


Fig. 2. Element distribution line scan across the brazed joint at brazing temperature (a) 1100°C, (b) 1150°C, and (c) 1190°C.

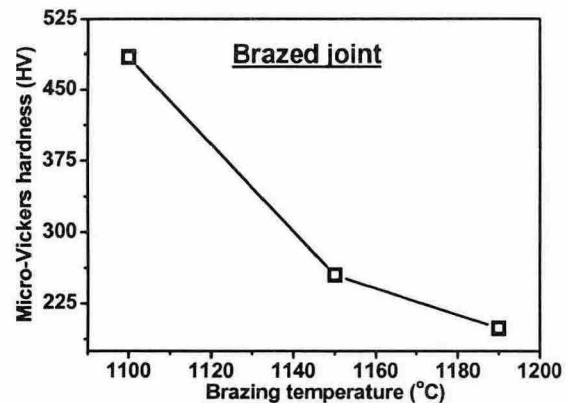


Fig. 3. Micro-Vickers hardness of brazed joint as a function of brazing temperature.

- 3) 접합부의 경도는 접합온도가 1100°C인 조건에서 가장 높았고 접합온도가 증가함에 따라 경도는 감소하였는데, 이는 낮은 온도에서 접합부 내에 석출된 공정상이 경하면서 취성이 강하기 때문이다.

#### 후 기

본 연구는 한국원자력연구소 자체연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

#### 참고문헌

1. T. Takeda, K. Kunitomi, T. Horie, K. Iwata : Nuclear Engineering and Design **168**(1997), 11
2. S. K. Tung, L. C. Lim, M. O. Lai : Scripta Mater., **34**, 5 (1996), 763
3. X. Wu, R. S. Chandel, S. H. Phew, H. Li : J. Mater. Sci. Eng. **A288** (2000), 84