

<학술논문>

DOI <http://dx.doi.org/10.3795/KSME-A.2014.38.12.1421>ISSN 1226-4873(Print)
2288-5226(Online)

고온 S-CO₂ 사이클 열교환기용 스테인리스강 및 Fe-Cr-Ni 합금 확산 접합부의 고온 인장 특성평가[§]

홍성훈* · 사인진* · 장창희*[†]

* 한국과학기술원 원자력 및 양자공학과

Evaluation of High-Temperature Tensile Property of Diffusion Bond of Austenitic Alloys for S-CO₂ Cycle Heat Exchangers

Sunghoon Hong*, Injin Sah* and Changheui Jang*[†]

*Dept. of Nuclear and Quantum Engineering, Korea Advanced Institute of Science and Technology

(Received March 17, 2014 ; Revised May 19, 2014 ; Accepted May 28, 2014)

Key Words: Diffusion Bonding(확산 접합), PCHE(Printed Circuit Heat Exchanger), Austenitic Alloys(오스테나이트계 합금), Tensile Ductility(연신율)

초록: 소듐냉각고속로(Sodium-cooled Fast Reactor, SFR)의 안전성 향상을 위해 고온 증기 Rankine 사이클 대신 초임계 이산화탄소(Supercritical CO₂, S-CO₂) Brayton 사이클을 전력변환 시스템에 사용하는 방안이 제시되고 있다. 이 경우, 중간 열교환기로는 확산 접합(Diffusion Bonding)에 의해 제작되는 미소채널형 열교환기인 PCHE(Printed Circuit Heat Exchanger)가 고려되고 있다. 따라서 본 연구에서는 PCHE 형 열교환기 후보재료인 다양한 오스테나이트계 합금의 확산접합 특성을 평가하였다. 후보재료별로 다양한 조건에서 확산접합부를 제작하고 상온에서 650 °C까지의 인장 특성을 평가하였다. 평가 결과 SS 316H와 SS 347H는 550 °C까지 모재와 유사한 특성을 보였지만 Fe-Ni-Cr 합금인 Incoloy 800HT는 모든 온도에서 인장특성이 감소하였다. 연신율 저하의 원인을 이해하기 위해 접합부 부근의 미세조직을 분석하였다.

Abstract: To improve the inherent safety of the sodium-cooled fast reactor (SFR), the supercritical CO₂ (S-CO₂) Brayton cycle is being considered as an alternative power conversion system to steam the Rankine cycle. In the S-CO₂ system, a PCHE (printed circuit heat exchanger) is being considered. In this type of heat exchangers, diffusion bonding is used for joining the thin plates. In this study, the diffusion bonding characteristics of various austenitic alloys were evaluated. The tensile properties were measured at temperatures starting from the room temperature up to 650 °C. For the 316H and 347H types of stainless steel, the tensile ductility was well maintained up to 550 °C. However, the Incoloy 800HT showed lower strength and ductility at all temperatures. The microstructure near the bond line was examined to understand the reason for the loss of ductility at high temperatures.

1. 서 론

최근 사용후핵연료 문제를 해결하기 위한 방안의 하나로 제 4 세대 원전인 소듐냉각고속로(Sodium-cooled Fast Reactor, SFR)가 제시되고 있다.⁽¹⁾ 하지만

전력변환 시스템에 증기 Rankine 사이클을 사용하여 일차냉각재인 액체나트륨과 물의 높은 반응성에 대한 우려가 있다. 이에 따라 상대적으로 반응성이 낮은 초임계 이산화탄소(Supercritical-CO₂, S-CO₂)를 이용한 Brayton 사이클이 대안으로 고려되고 있다. S-CO₂ 사이클에 대한 연구는 미국에서 1960 년대에 시작되었고, 그 후 S-CO₂ 사이클의 여러 장점들이 부각되기 시작하면서 여러 나라에서 50 년 넘게 연구가 진행되어왔다. 산업계 응용 측면에서도 실제 미국에서 유희수(oil-recovery) 과정에 S-CO₂가 사용

§ 이 논문은 2014년도 대한기계학회 재료 및 파괴부문 춘계 학술대회(2014. 4. 3.-4., 서귀포 KAL 호텔) 발표논문임

† Corresponding Author, chjang@kaist.ac.kr

© 2014 The Korean Society of Mechanical Engineers

되었다.⁽²⁾ 원자력분야의 경우 영국에서 다수의 Advanced Gas-cooled reactors(AGR)의 일차냉각재로 최대 650 °C/4.2 MPa 의 CO₂ 를 장기간 사용한 경험⁽³⁾이 있다.

증기 사이클에 비해 S-CO₂ 사이클이 SFR 에 적용되었을 때 얻는 장점으로는, 첫째, 냉각재 누출시 액체나트륨과의 폭발적인 반응의 가능성이 낮고, 둘째, S-CO₂ 의 특성을 이용한 간소화된 시스템 레이아웃 및 높은 효율을 구현할 수 있다는 점들이다.^(4,5) S-CO₂ 사이클이 SFR 에 적용되는 경우 중간 열 교환기는 구조재료의 단위 부피당 열전달 효율을 높이기 위해 PCHE(Printed Circuit Heat Exchanger) 혹은 PFHE(Plate Fin Heat Exchanger) 등의 방식이 적용될 것으로 예상된다. PCHE 제작공정은 먼저 판상형태의 금속의 한쪽 면을 광화학에칭(photo chemical etching)시켜 반원 형태의 미소 채널(micro-channel) 을 만든 다음 여러 층의 판상을 확산접합(diffusion bonding) 방법을 이용하여 붙여 원하는 크기의 블록을 형성하게 된다. 따라서 확산 접합부의 성능이 PCHE 타입 열교환기의 건전성 확보에 매우 중요하다. 따라서, 본 연구의 목적은 S-CO₂ 사이클의 중간 열 교환기 후보재료인 오스테나이트계 스테인리스강 및 Fe-Ni-Cr 합금의 확산 접합 특성을 평가하는 것이다. 이를 위해 다

양한 조건에서 확산접합부를 제작하고, 확산접합부의 미세조직 분석, 상온 및 고온 인장 특성을 평가하였다. 마지막으로 미세조직과 인장특성과의 연관성을 분석하였다.

2. 실험 방법

2.1 실험재료

실험에 사용된 재료들은 고온에서 우수한 부식 저항성을 가지는 것으로 알려진 오스테나이트계 스테인리스강(SS 316H, SS 347H), 그리고 고온 환경에 널리 사용되는 Fe-Ni-Cr 합금인 Incoloy 800HT 이다. 각 후보재료의 화학조성은 Table 1 에 나타나 있다.

2.2 확산접합부 제작

확산접합에 사용되는 변수는 온도, 압력, 시간 및 표면상태 등이 있으며,^(6,7) Table 2 는 실험에 사용된 확산접합 조건들이다. 표에서 볼 수 있듯이, 본 연구에서는 접합 온도를 주된 변수로 두었다. 특히, 온도는 용체화 처리 온도(solution annealing) 부근에서 이루어졌고 압력은 항복강도 이하로 설정하여 접합 전후 변형이 일어나지 않게 하였다. 접합 시간은 과도한 결정립 성장을 막기 위하여 70 분으로 제한하였다.

Table 1 Chemical composition of the test materials (in wt%)

Alloy	Fe	Cr	Ni	C	Ti	Mo	Mn	Al	P	S	Si	Cu	Others
316H	Bal.	17.34	10.73	.05	-	2.15	.64	-	.02	.005	.60	.25	.16Co
347H	Bal.	18.3	8.6	.07	-	-	1.28	-	.02	.009	.66	-	.43Nb
800HT	42.3	21.0	33.6	.06	.55	.20	.93	.48	.003	.001	.48	.10	.003B .05Co

Table 2 Diffusion bonding condition

Alloy	Temp. (°C)	Pressure	Duration time	Surface condition		
SS 316H	1010	8 MPa	Hold (10 min) + Pressure (60min)	SiC #1200		
	1050					
SS 347H	1050	8 MPa		Hold (10 min) + Pressure (60min)	SiC #4000	
	1090					
Incoloy 800HT	1120	10 MPa			Hold (10 min) + Pressure (60min)	SiC #1200
	1150					
	1180					

2.3 인장시험

As-received 상태의 모재 및 확산접합된 시편에 대한 인장시험을 실시하였다. 인장시험에는 ASTM E8/E8M-13a 규격을 따른 미소인장 시편을 이용하였다. 인장시험시의 Cross head speed 는 0.1 mm/min(reduced section 내에서의 변형속도는 3.33×10^{-4} /s) 였으며, 시험온도는 상온, 500, 550, 그리고 650 °C 였다. 각 조건 별로 2 개의 시험편이 사용되었다.

2.4 미세조직 관찰

주사전자현미경(SEM, Scanning Electron Microscope), 전자후방산란회절(EBSD, Electron Back-scattered Diffraction), 투과전자현미경(TEM, Transmission Electron Microscope) 등을 이용하여 확산접합부 부근의 결정립계 이동, 재결정화, 석출물 상 분석을 수행하였다. 석출물 관찰은 에너지 분산형 분석기(EDS, Energy Dispersive Spectroscopy)와 전자 에너지 손실 분광법(EELS, Electron Energy Loss Spectroscopy) 을 이용하여 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 확산접합된 스테인리스강의 인장특성

Fig. 1 에는 확산접합된 SS 316H 의 인장 특성을 as-received 상태의 모재와 비교하여 나타내었다. 확산접합부의 인장강도는 상온에서 650 °C 까지 as-received 조건과 비슷한 거동을 보였다. 하지만, 연신율의 경우 550 °C 까지는 비슷한 거동을 보이거나 650 °C 에서는 모재의 절반 수준으로 크게 감소하였다. 이는 모재의 경우 고온에서의 연화로 인해 연신율이 크게 증가하나 확산접합부의 경우 파단이 접합부에서 발생하여 연신율이 낮아진 때문으로 판단된다.

Table 3 은 as-received 상태 모재의 연신율과 비교한 접합 효율과 파단 위치를 나타낸다. 온도에 따라 파단의 위치가 달랐는데 650 °C 의 경우 확산접합부에서 파단이 되었다. 접합온도의 경우, 상대적으로 높은 온도인 1050 °C 에서 접합을 수행한 결과가 1010 °C 에 비하여 550 °C 까지 약간 더 우수한 연신율을 보였다. 이는 접합 시 높은 온도에 노출된 경우 접합면을 통한 원자간의 확산이 촉진되어 접합효율을 증대시킨 것으로 보인다. 하지만, 접합 온도에 상관 없이 650 °C 에서는 확산접합부에서 파단이 일어나고, 결과적으로 연신율이 모재에 비해 큰 폭으로 감소하였다.

Fig. 2 는 확산접합된 SS 347H 의 인장시험 결과

이다. 확산접합된 시험편의 인장특성은 상온에서 650 °C 까지 as-received 상태의 모재와 비슷한 거동을 보였고 파단위치는 모두 모재부였다. 따라서 SS 316H 와는 달리 650 °C 까지도 모재와 동등한 인장특성을 보였다. 접합 온도에 따른 특별한 인장특성의 변화는 보이지 않았다.

연구에서 수행한 스테인리스강 두 종은 모두 접합온도가 올라갈수록 고온 연신율이 증가하였다. 확산접합에 사용되는 변수인 온도는 다른 변수들(압력, 시간)에 비하여 접합효율을 증가시키는데 상대적으로 큰 영향을 미친다고 다른 연구에서도 보고된바 있으며,^(8,9) 이는 온도가 높을수록 원자들의 확산도(diffusivity)가 크기 때문으로 판단된다.

3.2 확산접합된 Incoloy 800HT 의 인장특성

Fig. 3 은 확산접합된 Incoloy 800HT 의 인장시험 결과이다. 확산접합부의 인장특성은 as-received 상태의 모재에 비해 현저하게 감소하였다. 또한, 1180 °C 에서 접합을 수행한 경우, 1120 °C 에서 접합을 수행한 것에 비해 약 40 % 이상의 높은 연신율을 가졌다. 하지만 Table 3 에서 보듯이 상온 및 고온(500-650 °C)까지 모든 시편이 접합부에서 파단이 발생하였다. 하지만 이를 개선하기 위해 접합온도나 압력을 증가시키는 것은 재료의 변형을 야기할 수 있기 때문에 접합 조건이 아닌 다른 방법을 통한 개선이 필요한 것으로 판단된다.

3.3 확산접합부 근처의 미세조직

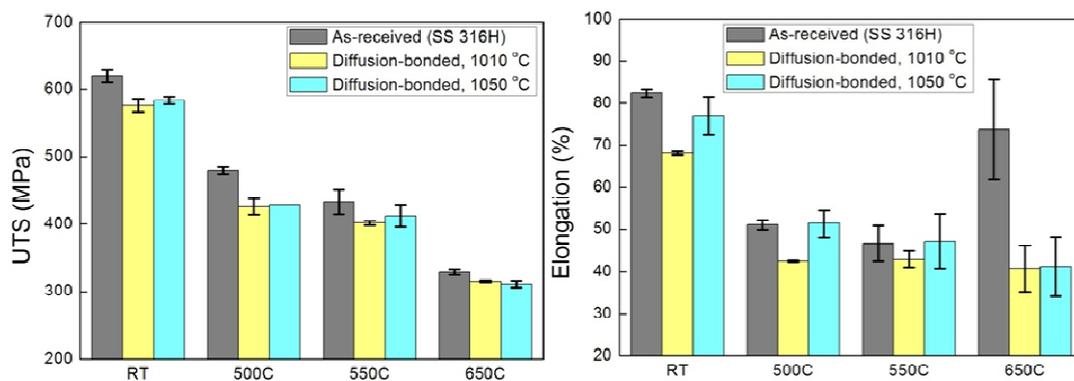
확산접합된 SS 316H 와 SS 347H 는 같은 오스테나이트계 스테인리스강이지만, 고온 인장특성에서 차이를 보여, 그 원인을 분석하기 위해 확산접합부 근처의 미세조직을 관찰하였다. Fig. 4 에서 보듯이, 두 재료 모두 접합부에서 결정립계 이동(grain boundary migration)이 확인되었고 이로 인해 550 °C 까지의 인장특성이 as-received 상태의 모재와 비슷한 거동을 보였을 것이라 판단된다. 한편, 650 °C 의 경우 결정립 크기가 영향을 미쳤을 것으로 판단된다. Linnenborn 등은 SS 347H 에서 결정립의 크기가 작을수록 확산속도가 빠르다고 보고한 바 있다.⁽¹⁰⁾ 즉, SS 347H 의 결정립의 크기(~ 20 μm)가 SS 316H(~ 80 μm)보다 작아 접합부 단위 면적당 결정립계가 많다. 따라서 확산 속도가 빠른 결정립계를 통한 원소들의 이동이 많이 발생하여 모재의 조직과 좀더 유사해졌을 것이라 판단된다.

Fig. 5 에서와 같이 확산접합된 Incoloy 800HT 의 미세구조에서는 결정립계 이동이 발견되지 않았고, 확산접합면 근처에서 재결정(re-crystallization)이 발

Table 3 Diffusion bonding efficiency and location of failure

Alloy	Diffusion bonding temperature	Test temperature	Diffusion bonding efficiency* (%)	Location of failure
SS 316H	1010	25	83	Parent
		500	83	Parent
		550	92	Parent
		650	55	Parent, bond-line
	1050	25	93	Parent
		500	100	Parent
		550	100	Parent
		650	56	Parent, bond-line
SS 347H	1050	25	100	Parent
		500	100	Parent
		550	100	Parent
		650	100	Parent
	1090	25	100	Parent
		500	100	Parent
		550	100	Parent
		650	100	Parent
Incoloy 800HT	1120	25	10	Bond-line
		500	10	Bond-line
		550	9	Bond-line
		650	9	Bond-line
	1150	25	42	Bond-line
		500	22	Bond-line
		550	26	Bond-line
		650	18	Bond-line
	1180	25	71	Bond-line
		500	71	Bond-line
		550	61	Bond-line
		650	44	Bond-line

*Diffusion bonding efficiency: similarity between as-received and diffusion bonded in elongation

**Fig. 1** Tensile properties of diffusion-bonded SS 316H

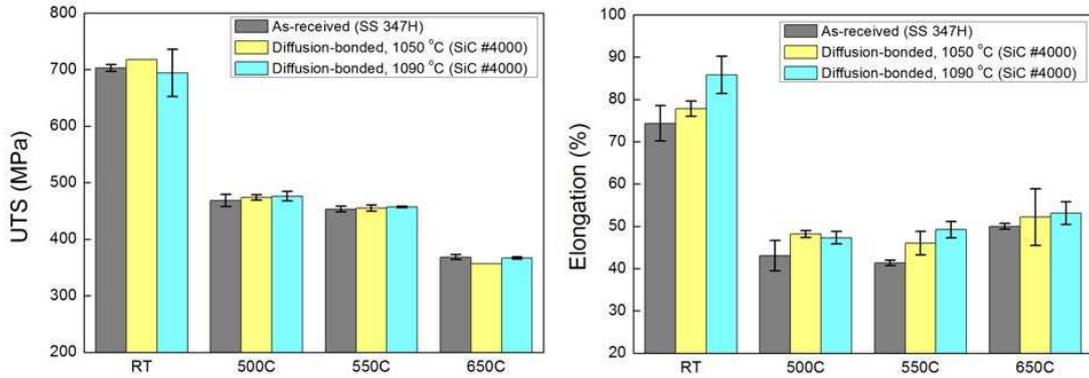


Fig. 2 Tensile properties of diffusion-bonded SS 347H

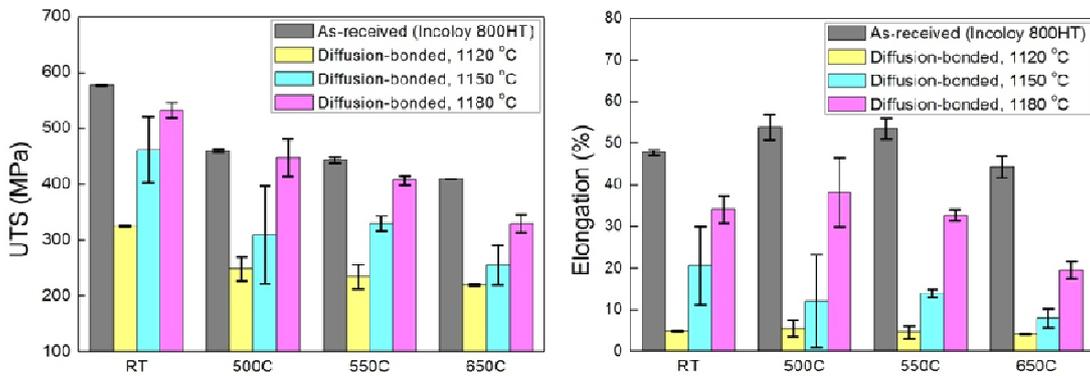


Fig. 3 Tensile properties of diffusion-bonded Incoloy 800HT

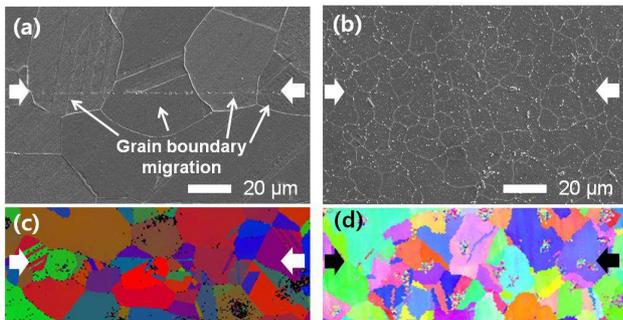


Fig. 4 SEM images of diffusion bonded (a) SS 316H (1050 °C/8 MPa) and (b) SS 347H (1050 °C/8 MPa), EBSD image of (c) SS 316H and (d) SS 347H

생한 것을 볼 수 있다. 결정립계 이동이 제한된 이유로는 접합부를 따라 석출물(precipitate) 들을 형성되었기 때문인 것으로 보인다(Fig. 6). 석출물은 EDS 선 분석(line scanning)과 EELS 분석을 통해 Ti(2p Ti = 454.1 eV) 와 C(1s C = 284.5 eV)⁽¹¹⁾로 이루어져 있는 Ti-rich 탄화물인 것으로 확인할 수 있었다. 접합면에 형성된 석출물의 경우, Duvall 등은 Udimet 700 에 대하여 Ti(C,N)과 NiTiO₃ 이 형성되었다고 보고하였고, 이로 인하여 접합성능이 감소하였다고 보고한바 있다. 본 연구에서 수행된

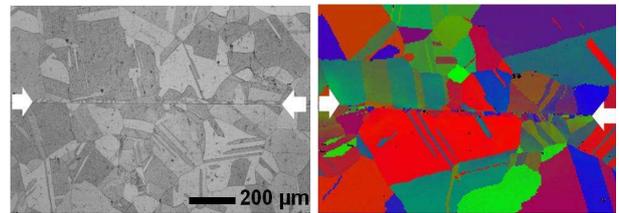


Fig. 5 Diffusion bonded Incoloy 800HT (1150 °C, 10 MPa): (a) Optical microscope, (b) EBSD

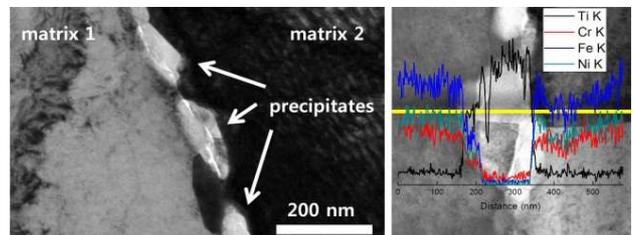


Fig. 6 Diffusion bonded Incoloy 800HT (1150 °C/10 MPa): (a) TEM, (b) EDS

확산접합은 고진공 상태(10⁻⁶ Torr) 에서 이루어졌지만, 낮은 산소 분압에서도 산화막은 형성될 수 있다. 그러나, Incoloy 800HT 에서는 TiC 가 인장특성을 감소시킨 원인으로 판단된다.⁽¹²⁾ 따라서 Ti-rich 탄화물이 확산접합부 양쪽의 모재 사이에 존

재함으로써 접합부가 모재에 비해 상대적으로 취화되어 상온 및 고온 인장특성이 현저하게 감소한 것으로 판단된다.

4. 결 론

초임계 이산화탄소 사이클의 후보 구조재료인 오스테나이트계 스테인리스강과 Fe-Ni-Cr 합금을 확산접합하였다. 확산접합부의 미세조직을 분석하고 상온에서 650 °C 까지의 인장특성을 평가하였다. 인장시험과 미세조직 분석을 통해 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 확산접합된 오스테나이트계 스테인리스강들은 550 °C 까지 as-received 상태의 모재와 유사한 인장특성을 보였다.

(2) 확산접합된 SS 347H 는 SS 316H 에 비해 상대적으로 작은 결정립 크기로 인해 결정립계를 통한 원소들의 확산이 많이 발생하였다. 이로 인해 SS 347H 는 650 °C 에서 상대적으로 우수한 인장특성을 보인 것으로 판단된다.

(3) 확산접합된 Incoloy 800HT 의 인장강도와 연신율은 as-received 상태의 모재에 비해 현저하게 감소하였다. 이는 확산접합부에 Ti-rich 탄화물이 석출되어 접합부를 약하게 만들었기 때문으로 생각된다.

후 기

본 연구는 미래창조과학부의 원자력중장기 연구개발사업인 혁신형 소듐냉각고속로개발 과제의 일환으로 수행되었습니다. 저자 중 일부는 BK-Plus 사업의 지원으로 본 연구에 참여하였습니다.

참고문헌

(References)

- (1) Chang, Y. I., Finck, P. J. and Grandy, C., 2006, *Advanced Burner Test Reactor Preconceptual Design Report*, Argonne National Laboratory report ANL-ABR-1 (ANL-AFCL-173).
- (2) Klins, M. A., 1984, *Carbon Dioxide Flooding*, D. Reidel Publishing Company, Holland.
- (3) Beech, D. J. and May, R., 1999, "Gas Reactor and Associated Nuclear Experience in The UK Relevant to High Temperature Reactor Engineering," *Proceedings of the First Information Exchange Meeting on Basic Studies on High-Temperature Engineering*, Paris, France
- (4) Nam, H. Y., Kim, J. B., Lee, J. H. and Park, C. G., 2011, "Concept Development and Review of Current Technical Issues for SFR Steam Generator," *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. A*, Vol. 35, pp.1083~1090.
- (5) Dostal, V., Driscoll, M. J. and Hejzlar, P., 2004, *A Supercritical Carbon Dioxide Cycle for Next Generation Nuclear Reactors*, MIT Annual and Progress Reports, MIT-ANP-TR-100.
- (6) Stephenson, D. J., 1991, *Diffusion bonding 2*, Elsevier Applies Science.
- (7) Bartle, P. M., Houldcroft, P. T., Needham, J. C., Sheldon, E. F., Westgate, S. A. and Wilson, J. P., 1979, *Diffusion Bonding as a Production Process*, The Welding Institute.
- (8) Zhang, G., Chandel, R. S. and Seow, H. P., 2001, "Solid state diffusion bonding of Inconel 718," *Science and Technology of Welding and Joining*, Vol. 6, pp. 235-239.
- (9) Ravisankar, B., Krichnamoorthi, J., Ramakrishnan, S. S. and Angelo, P. C., 2009, "Diffusion bonding of SU 263," *Journal of Materials Processing Technology*, Vol. 209, pp. 2135~2144.
- (10) Linnenborm, V., Terenbaum, M. and Cheek, C., 1955, "Tracer Diffusion of Iron in Stainless Steel," *Journal of Applied Physics*, Vol. 26, pp. 932~936.
- (11) Moulder, J. F. and Stickle, W. F., 1992, *Handbook of X-ray Photoelectron Spectroscopy*, Perkin-Elmer Corporation.
- (12) Duvall, D. S., Owczarski, W. A., Paulonis, D. F. and King, W. H., 1972, "Methods for Diffusion Welding the Superalloy Udimet 700," *Welding Research Supplement*, pp. 41~49.