

< 학술논문 >

DOI <http://dx.doi.org/10.3795/KSME-A.2015.39.12.1221>

ISSN 1226-4873(Print)
2288-5226(Online)

확산 접합된 오스테나이트계 재료의 인장특성에 미치는 후열처리의 영향

홍성훈* · 김성환* · 장창희** · 사인진**

* 한국과학기술원 원자력 및 양자공학과, ** 한국원자력연구원 수소생산원자로기술개발부

The Effect of Post-Bond Heat Treatment on Tensile Property of Diffusion Bonded Austenitic Alloys

Sunghoon Hong*, Sung Hwan Kim*, Changheui Jang**† and Injin Sah**

* Dept. of Nuclear and Quantum Engineering, KAIST,

** Nuclear Hydrogen Reactor Technology Development Division, KAERI.

(Received June 13, 2015 ; Revised October 7, 2015 ; Accepted October 14, 2015)

Key Words: Diffusion Bonding(확산접합), Post-bond Heat Treatment(후열처리), Austenitic Alloys(오스테나이트계 합금), Tensile Ductility(연신율)

초록: 미세유로채널 타입의 열교환기 제작에 필요한 과정 중 하나인 확산접합(Diffusion Bonding)에 대하여 연구를 수행하였다. 시험에 사용된 재료는 Alloy 800HT, Alloy 690, 그리고 Alloy 600 으로 다양한 온도에서 확산접합을 수행하고 상온에서 650 °C 까지 인장특성을 평가하였다. Alloy 800H 의 경우 모든 온도에서 확산접합부의 연신율이 크게 저하되었다. Alloy 690 과 Alloy 600 의 경우 500 °C 까지는 확산접합부도 높은 연신율을 보이거나 550 °C 이상에서는 연신율이 모재에 비해 감소하였다. 이는 확산접합부에서의 불충분한 결정립계 이동과 석출상에 의한 것으로 판단된다. 확산접합부의 인장 특성을 향상시키기 위해 후열처리를 수행한 경우 모든 재료에 대해 550 °C 까지 모재 수준으로 연신율이 회복되었다. 이러한 확산접합부의 인장특성의 변화와 미세조직간의 연관성에 대해 토의하였다.

Abstract: Diffusion bonding is the key manufacturing process for the micro-channel type heat exchangers. In this study, austenitic alloys such as Alloy 800HT, Alloy 690, and Alloy 600, were diffusion bonded at various temperatures and the tensile properties were measured up to 650 °C. Tensile ductility of diffusion bonded Alloy 800HT was significantly lower than that of base metal at all test temperatures. While, for Alloy 690 and Alloy 600, tensile ductility of diffusion bonded specimens was comparable to that of base metals up to 500 °C, above which the ductility became lower. The poor ductility of diffusion bonded specimen could have caused by the incomplete grain boundary migration and precipitates along the bond-line. Application of post-bond heat treatment (PBHT) improved the ductility close to that of base metals up to 550 °C. Changes in tensile properties were discussed in view of the microstructure in the diffusion-bonded area.

1. 서 론

제 4 세대 원전인 소듐 냉각고속로(Sodium-cooled Fast Reactor, SFR)의 증기 Rankine 사이클을 대신하여 초임계 이산화탄소(Supercritical-CO₂, S-CO₂) Brayton 사이클을 전력 변환 시스템으로 사용하는 방안이 제

시되고 있다.⁽¹⁾ S-CO₂ 사이클을 SFR 에 적용할 경우 기존 Rankine 사이클이 가지고 있던 고온 증기와 액체 나트륨의 반응으로 인한 폭발의 위험성을 제거함으로써 안전성을 향상시킬 수 있을 뿐만 아니라 500-550 °C 의 SFR 가동 온도에서 보다 높은 열효율을 가질 수 있다.^(2,3)

S-CO₂ 사이클이 SFR 에 적용되는 경우 중간 열교환기는 단위 부피당 열전달 효율이 높은 PCHE(Printed Circuit Heat Exchanger) 혹은

† Corresponding Author, chjang@kaist.ac.kr

© 2015 The Korean Society of Mechanical Engineers

PFHE(Plate Fin Heat Exchanger)와 같은 미세유로 채널 방식이 적용될 것으로 예상된다. 이 중 PCHE의 경우 먼저 판상형태의 금속의 한쪽 면을 광화학 에칭(photo chemical etching)시켜 반원 형태의 미소채널을 만든 다음 여러 층의 판을 확산접합(diffusion bonding)방법으로 붙여 원하는 크기의 블록을 형성하게 된다. 따라서 확산접합부의 성능이 PCHE 타입 열교환기의 건전성 확보에 매우 중요하다.

따라서, 본 연구의 목적은 S-CO₂ 사이클의 중간 열교환기 후보재료인 여러 오스테나이트계 합금을 확산접합을 이용하여 접합하고 그 특성을 평가하는 것이다. 이를 위해 다양한 온도에서 확산접합부를 제작하고, 미세조직, 상온 및 고온 인장특성을 평가하였다. 특히, 인장특성을 향상시키기 위해 후열처리(Post Bond Heat Treatment, PBHT)를 수행하고 그 영향을 평가하였다. 또한 미세조직과 인장특성과의 연관성을 분석하였다.

2. 실험 방법

2.1 실험재료 및 확산접합부 제작

실험에 사용된 재료들은 고온환경에서 널리 사용되는 Alloy 800HT 와 니켈기 합금인 Alloy

690 과 Alloy 600 이다. 각 후보재료의 화학조성은 Table 1 에 나타나 있다.

Table 2 는 실험에 사용된 확산접합 조건이다. 확산접합에 사용되는 변수로는 온도, 압력, 시간 및 표면상태 등이 있으나,^(4,5) 표에서 보듯이, 본 연구에서는 접합 온도를 주된 변수로 두었다. 확산접합은 풀림(annealing)열처리온도 부근에서 이루어졌고 압력으로 인한 응력이 항복강도 이하로 유지되게 하여 접합에 따른 변형이 일어나지 않게 하였다. 접합 시간은 과도한 결정립 성장을 막기 위하여 70 min 으로 제한하였다.

또한, 확산접합부의 기계적특성을 향상시키고자 Table 2 에 명시된 조건에 따라 후열처리를 수행하였다. 후열처리는 고진공(10^{-6} torr)환경에서 수행된 후 상온으로 공냉되었다.

2.2 인장 성능 평가

확산접합된 시편의 인장특성을 평가하기 위해 입수(as-received) 상태의 모재 시편과 확산접합된 시편에 대한 인장시험을 실시하였다. 인장시험은 ASTM E8/E8M 규격을 따른 1.2 W X 0.5 T 의 미소인장 시편을 이용하였다. 인장시험시의 크로스헤드 속도는 0.1 mm/min 였으며 (reduced section 내에서의 변형속도는 3.33×10^{-4} /s), 시험은 상온, 500, 550, 및 650 °C 의 대기환경에서 수행되었다.

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

| Materials | Fe | Cr | Ni | C | Ti | Mo | Mn | Al | Si | Cu | Others |
|-------------|------|------|------|------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|----------------|
| Alloy 800HT | Bal. | 21.0 | 33.6 | .06 | .55 | .20 | .93 | .48 | .48 | .10 | .003B, .05Co |
| Alloy 600 | 9.33 | 16.1 | Bal. | .077 | .20 | - | .30 | .16 | .30 | .02 | .04Co |
| Alloy 690 | 8.34 | 28.3 | Bal. | 0.02 | .26 | - | .18 | .30 | .24 | .01 | .002B, < .01Nb |

Table 2 Diffusion bonding condition

| Alloy | Temperature (°C) | Pressure (MPa) | Duration time | PBHT |
|-------------|------------------|----------------|-----------------------------------|--------------|
| Alloy 800HT | 1120 | 10 | - | - |
| | 1150 | | | - |
| | 1180 | | | 1100 °C/20 h |
| Alloy 690 | 1010 | 9 | Hold (10 min) + Pressure (60 min) | - |
| | 1040 | | | - |
| | 1070 | | | 1010 °C/20 h |
| Alloy 600 | 1010 | 9 | - | - |
| | 1040 | | | 1010 °C/20 h |

2.3 미세조직 관찰

주사전자현미경(Scanning Electron Microscope, SEM), 전자후방산란회절(Electron Back-scattered Diffraction, EBSD), 투과전자현미경(Transmission Electron Microscope, TEM) 등을 이용하여 접합부 부근의 결정립계 이동, 재결정화, 석출상 분석 등과 같은 미세조직 분석을 수행하였다. 투과전자현미경 분석을 위한 시편은 집속이온빔(Focus Ion Beam, FIB)을 이용하여 접합부의 수직향 방향으로 채취하였다. 석출물은 에너지분산형 분석기(Energy Dispersive Spectroscopy, EDS)를 이용하여 분석하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 확산 접합된 Alloy 800HT 의 인장특성

Fig. 1 은 다양한 접합 온도에 따른 확산접합된 Alloy 800HT 의 인장특성을 입수조건의 모재와 비교한 결과이다. 그림에서 보듯이 접합 온도에 상관없이 상온 및 고온(~650 °C)까지 모든 확산접합부 시편이 입수조건의 모재에 비해 인장특성이 현저히 감소하였다. 또한 최종과단은 모든 경우에서 접합면에서 발생하였다. 한편, 접합온도에 따른 인장특성, 특히 연신율은 1180 °C 에서 가장 좋은 결과를 보였다. 이는 높은 온도에 노출될 경우 접합면을 통한 원자간의 확산이 더욱 촉진되었기 때문이라 판단된다. 이러한 결과는 온도변수가 다른 변수들에 비해 접합효율을 증가시키는데 상대적으로 큰 영향을 미친다는 기존 연구(67) 와도 일치하는 결과이다.

확산접합부의 특성을 개선하기 위해 온도, 압력, 시간 및 표면상태 등의 변수를 조절할 수 있지만 접합온도나 압력을 증가시키는 것은 재료의 변형을 야기할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 Alloy 617 및

Alloy 230 에 대해 수행된 선행연구(8) 사례를 참고하여 확산접합부에 후열처리를 수행하였고 인장특성에 끼치는 영향을 평가하였다. 일단 확산접합 상태로 가장 연신율이 우수한 1180 °C 에서 접합된 시편에 대해 후열처리(1100 °C/20 h)를 수행하였다. 후열처리 온도로는 과도한 강도저하를 피하기 위해 모재의 풀림열처리온도 범위 중 낮은 영역의 것을 선택하였다.

Fig. 1 에 후열처리된 확산접합부의 인장특성 평가 결과를 같이 나타내었다. 그림에서 보듯이 후열처리를 적용한 경우 상온에서 550 °C 까지 연신율이 모재 수준까지 회복되었다. 또한 최종과단도 시편의 표점거리 (gauge length) 안의 임의의 위치에서 발생하였다. 이러한 과단위치의 변화는 후열처리를 통해 확산접합면의 특성이 개선됨을 간접적으로 보여준다.

3.2 확산 접합된 Ni-기 합금들의 인장특성

Fig. 2 와 Fig. 3 은 확산접합된 Alloy 690 과 Alloy 600 의 인장특성 결과이다. Alloy 800HT 의 경우와 유사하게 접합온도가 증가할수록 높은 연신율을 보였으며 이는 앞서 설명했듯이 높은 온도에서 확산이 더욱 촉진되었기 때문으로 판단된다. 하지만 Alloy 800HT 와는 다르게, 확산접합부의 연신율은 상온에서 500 °C 까지는 입수조건의 모재 수준으로 잘 유지되었고 과단도 표점거리 내에서 임의의 위치에서 발생하였다. 하지만 550 °C 이상에서는 상당한 인장특성의 저하가 발생하였는데 이는 미세구조 관찰을 통해 설명될 수 있을 것으로 보인다.

인장특성을 개선하기 위해 최적의 접합조건인 1070 °C(Alloy 690), 1040 °C(Alloy 600)에서 확산접합된 시편에 대해 후열처리(1010 °C/20 h)를 수행하였다. Alloy 800HT 의 경우와 마찬가지로

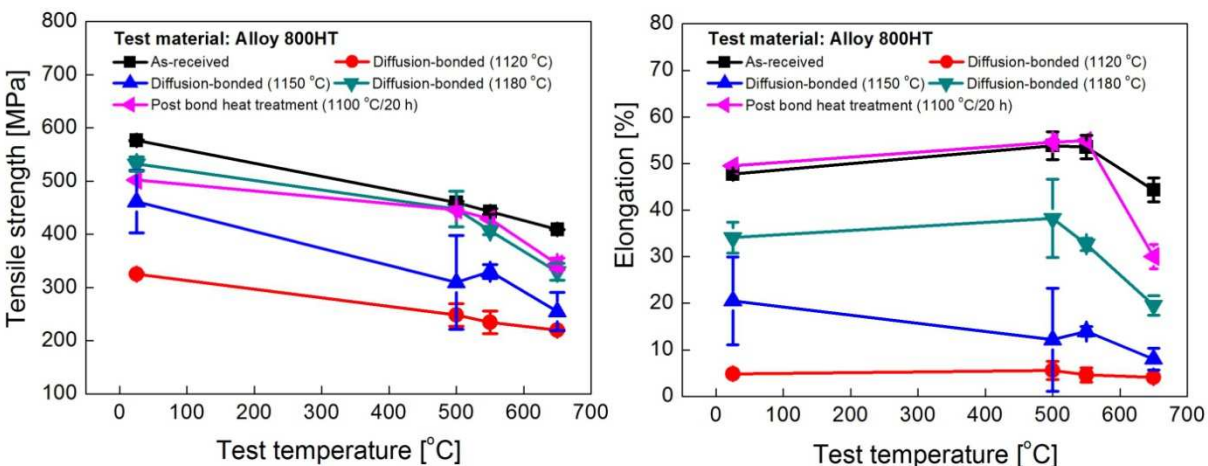


Fig. 1 Tensile properties of diffusion-bonded Alloy 800HT

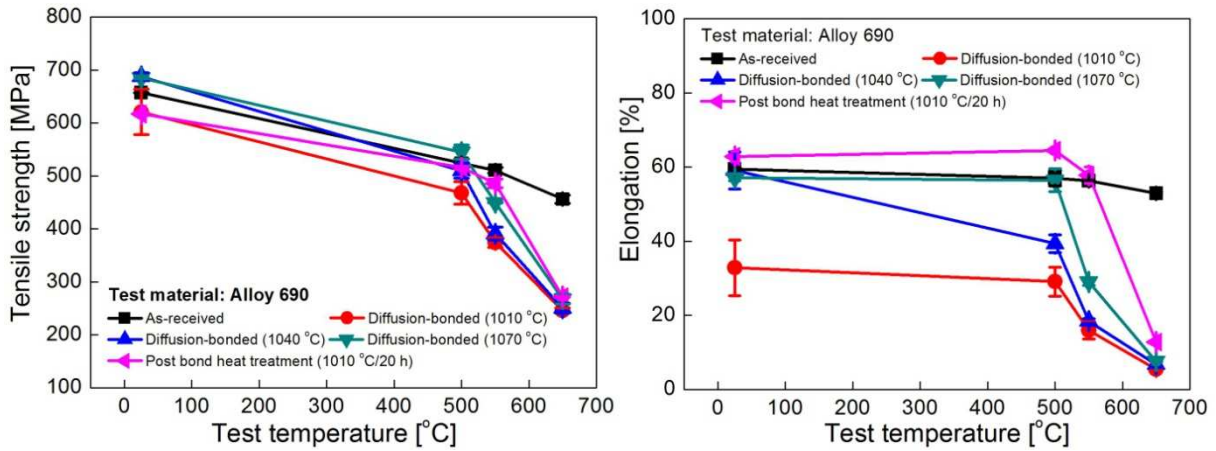


Fig. 2 Tensile properties of diffusion-bonded Alloy 690

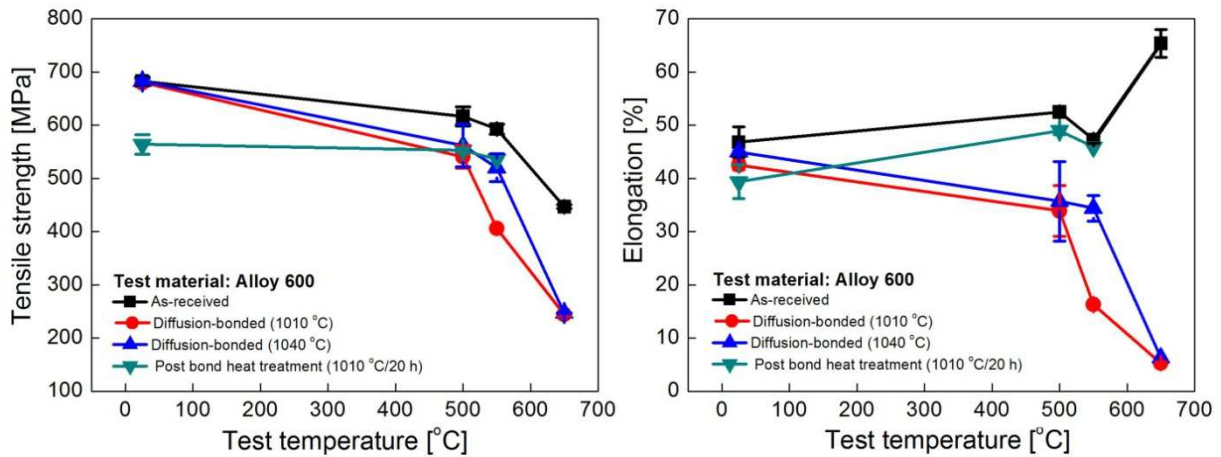


Fig. 3 Tensile properties of diffusion-bonded Alloy 600

모재의 풀립열처리온도 범위 중 낮은 영역의 것을 선택하였다. 후열처리 결과 550 °C 에서도 연신율이 모재와 상응하는 값을 보였으며 파단위치도 표점거리 내에서 임의의 위치였다. 이러한 인장특성의 향상은 미세구조 관찰을 통해 원인을 설명할 것이다. 후열처리를 적용하였음에도 불구하고 650 °C 에서는 여전히 모재에 비해 낮은 인장특성을 보이는데 이는 인장변형기구에 의한 영향으로 판단된다. 결정립과 결정립계의 강도가 같아지는 등강도 온도 (equicohesive temperature ~ 용융온도의 1/2)이상의 온도에서는 인장 변형기구가 주로 입계파괴의 형태로 나타나게 된다. 본 연구에서 수행한 확산접합의 경우, 접합부가 평면형태의 결정립계를 보이므로 이 접합부를 따라 균열이 쉽게 진전하게 됨으로써 모재에 비해 낮은 인장특성을 보이는 것으로 판단된다.

3.3 확산 접합부의 미세조직

3.3.1 Alloy 800HT

확산접합부의 인장특성 저하 및 후열처리에 따른

인장특성 개선에 대한 원인을 파악하기 위해 확산접합부 근처의 미세조직을 관찰하였다. 선행연구에서 Alloy 800HT 확산접합부의 미세구조를 분석하고 석출물이 접합부의 특성을 감소시킨다고 보고한 바 있다.⁽⁹⁾ 또한, 결정립계 이동이 발견되지 않고 확산접합부 주위에 재결정이 발생함을 보고하였고 접합부를 따라 Ti-rich 탄화물의 석출을 확인하였다. 다른 연구자들도 이러한 탄화물은 1100 °C 이상에서 석출되는 2차 탄화물로 보고하였다.⁽¹⁰⁾

Fig. 4는 확산접합된 Alloy 800HT 를 1100 °C 에서 20 h 동안 후열처리를 수행한 후, 접합부를 TEM 및 EDS 로 분석한 결과이다. 후열처리 전과 동일하게 접합면에 Ti-rich 탄화물이 연속적으로 발견되었다. 이는 본 연구에 적용한 후열처리 온도가, MC 형태의 탄화물이 기지로 고용되기에는 충분하지 않았기 때문으로 판단된다. 하지만, 탄화물이 여전히 존재함에도 연신율이 증가된 것은 높은 온도에 노출시킴으로써 추가적인 원자간의 확산으로 인해 결정립계 이동이 일부 발생하였기 때문으로 판단된다.

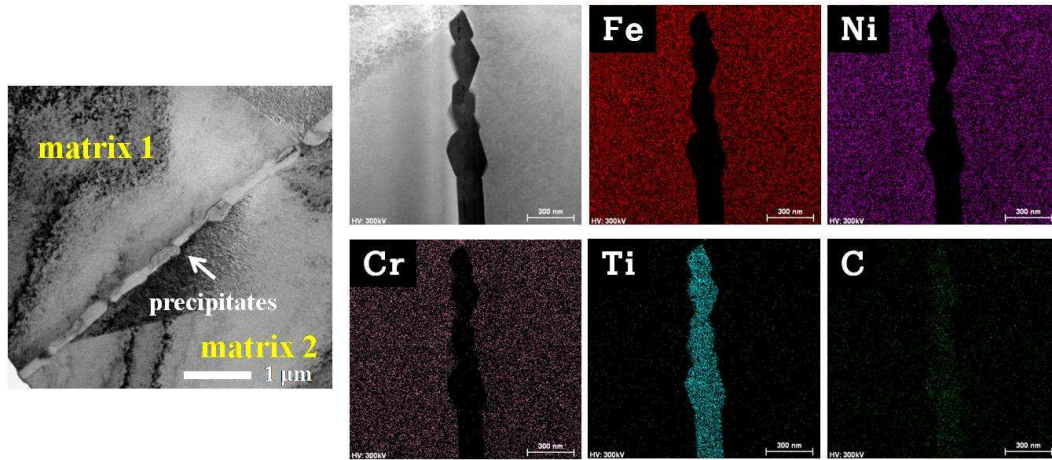


Fig. 4 Element mapping image by TEM-EDS analysis of bond-line precipitations of diffusion bonded Alloy 800 (PBHT, 1100 °C / 20 h)

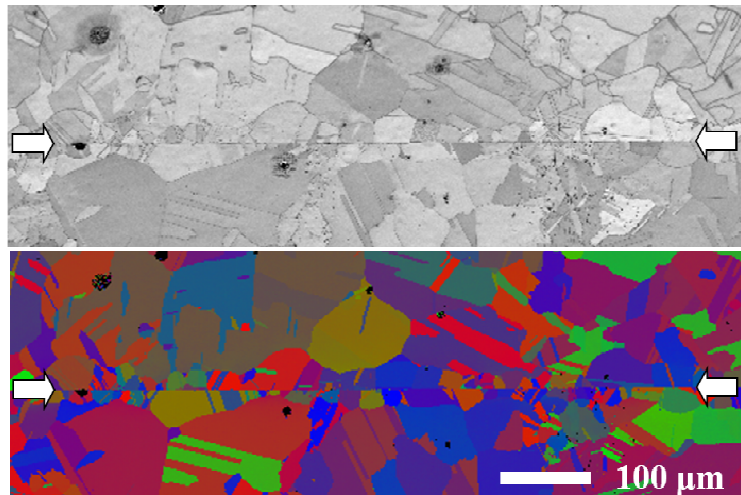


Fig. 5 SEM and EBSD image of grain boundary orientation along the bond-line of diffusion bonded Alloy 690

3.3.2 Ni-기 합금

Fig. 5 는 확산접합된 Alloy 690 의 전자후방산란 회절 분석 결과이다. 그림에서 보듯이 접합면 근처에서 재결정화가 발생하였으나 접합면에서는 평면형태의 결정립계가 관찰되었다. 평면형태의 결정립계의 존재는 두 접합 모재 간의 결정립계 이동이 발생하지 않았음을 의미한다. 타 문헌에서도 Ni 기 합금에서 이러한 미세구조를 확인한 바 있다.^(6,8)

결정립계의 이동을 제한한 원인을 분석하기 위해 투과전자현미경 분석을 수행하였다. 확산접합된 Alloy 690 의 투과전자현미경 분석 결과, 접합면을 따라 약 300 nm 크기의 석출물과 수십 nm 크기의 석출물들이 관찰되었고 이러한 석출물들은 Alloy 800HT 의 경우와 달리 Cr-rich 탄화물인 것으로 확인되었다. Jalilian 등은 확산 접합된 Ni 기 합금에서 $M_{23}C_6$ 형태의 Cr-rich

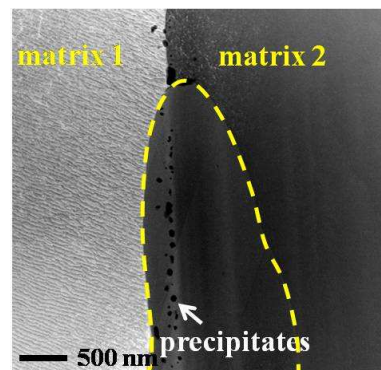


Fig. 6 TEM image of Alloy 690 (PBHT, 1010 °C/20 h)

탄화물을 보고하였으며,⁽¹¹⁾ Basuki 등은 Mo-rich 탄화물을 확인한 바 있다.⁽¹²⁾ 또한, Ravisankar 등은 (Cr, Mo, Ti, Al)-rich 상이 석출된다고 보고한 바 있다.⁽⁷⁾ 따라서, 확산접합된 Alloy 690 에서는 Cr-rich 탄화물이

접합면에 석출됨으로써 결정립계의 이동을 방해하고 인장특성을 감소시킨 것으로 판단된다.

앞서 Alloy 800HT 의 경우와 마찬가지로, Fig. 6 에서 보듯이 후열처리를 수행한 Alloy 690 확산접합부의 경우, 접합면에 여전히 석출물들이 존재하였다. 따라서 이러한 석출물의 존재에도 불구하고 550 °C 까지의 인장특성이 입수조건인 모재 수준으로 향상된 것은 접합면을 가로질러 부분적인 결정립계의 이동이 발생하였기 때문으로 판단된다. 또한, 후열처리 동안 접합면을 통한 원자간의 추가적인 확산도 접합효율에 영향을 주었을 것이라 생각된다.

4. 결 론

오스테나이트계 합금인 Alloy 800HT 와 니켈기 합금인 Alloy 690, Alloy 600 의 확산접합부의 인장특성을 상온에서 650 °C 까지 평가하였다. 또한, 연신율을 향상시키기 위한 방법으로 후열처리를 수행하였다. 인장시험과 미세조직 분석을 통해 다음과 같은 결론을 얻었다.

(1) 확산접합된 Alloy 800HT 은 상온에서 650 °C 까지 입수조건인 모재에 비해 인장특성이 현저하게 감소하였다. 이를 개선하기 위해 후열처리를 수행하여 550 °C 까지 인장특성이 모재 수준으로 개선됨을 확인하였다.

(2) 확산접합된 Alloy 690 과 Alloy 600 은 500 °C 까지 입수상태의 모재와 유사한 인장특성을 보였다. 후열처리를 수행한 후, 550 °C 까지 인장특성이 모재 수준으로 개선되었다.

(3) 확산접합 시험편의 경우, 접합면에 TiC (Alloy 800HT), Cr-rich 탄화물(Alloy 690 & 600)이 석출됨으로써 결정립계 이동이 방해되고 평면 형태의 결정립계를 보였다. 이러한 원인으로 인장특성이 감소되었을 것이라 판단된다.

(4) 후열처리를 적용한 이후에도 확산접합부에 탄화물은 여전히 존재하였다. 그럼에도 불구하고 인장특성이 개선된 것은 부분적인 결정립계 이동과 접합면을 통한 원자간의 추가적인 확산에 기인한 것으로 판단된다.

본 연구에서는 Alloy 800HT, Alloy 690, Alloy 600 합금에 적용가능한 최적의 확산접합조건을 도출하려 하였다. 이를 위해 후열처리를 수행하였으나 연신률의 회복정도는 충분하지 않았다. 따라서 본 연구에 사용된 온도보다 다소 높은 온도에서 후열처리가 필요할 것으로 판단되며 현재 해당연구를 수행하고 있다.

후 기

본 연구는 미래창조과학부의 소듐냉각고속로 개발 과제 MSIP/NRF(Nuclear R&D Program 2013M2A8A6035683)의 일환으로 수행되었습니다. 저자 중 일부는 BK-Plus 사업의 지원을 받고 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) 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
- (3) 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.
- (4) Stephenson, D. J., 1991, *Diffusion bonding 2*, Elsevier applies science
- (5) Bartle, P. M., Houldcroft, P.T., Needham, J.C., Sheldon, E.F., Westgate, S.A., Wilson, J.P., 1979, *Diffusion Bonding as a Production Process*, The Welding Institute
- (6) Zhang, G., Chandel, R. S., Seow, H. P., 2001, "Solid State Diffusion Bonding of Inconel 718," *Science and Technology of Welding and Joining*, Vol. 6, pp. 235~239
- (7) Ravisankar, B., Krichnamoorthi, J., Ramakrishnan, S. S., Angelo, P. C., 2009, "Diffusion Bonding of SU 263," *Journal of Materials Processing Technology*, Vol 209, pp. 2135~2144
- (8) Sah, I., Kim, D., Lee, H. J., Jang, C., 2013, "The Recovery of Tensile Ductility in Diffusion-Bonded Ni-Base Alloys by Post-Bond Heat Treatments," *Materials and Design*, Vol, 47, pp. 581~589
- (9) Hong, S., Sah, I., Jang, C., 2014, "Evaluation of High-Temperature Tensile Property of Diffusion Bond of Austenitic Alloys for S-CO₂ Cycle Heat Exchangers," *Trans. Korean Soc. Mech. Eng. A*, Vol. 38, pp. 1421~1426
- (10) Duvall, D. S., Owczarski, W. A., Paulonis, D. F., King, W. H., 1972, "Methods for Diffusion Welding the Superalloy Udimet 700," *Welding Research Supplement*, pp. 41~49
- (11) Jalilian, F., Jahazi, M., Drew, R. A. L., 2006, "Microstructural Evolution during Transient Liquid

Phase Bonding of Inconel 617 Using Ni-Si-B Filler Metal,” *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 423, pp. 269~281

(12) Basuki, W. W., Kraft, O., Aktaa, J., 2012, “Optimization of Solid-state Diffusion Bonding of

Hastelloy C-22 for Microheat Exchanger Applications by Coupling of Experiments and Simulations,” *Materials Science and Engineering: A*, Vol. 538, pp. 340~348.