

TiN코팅한 지르칼로이-4튜브의 프레팅 특성

성지현, 김태형, 김석삼*
경북대학교 기계공학과 대학원, *경북대학교 기계공학부

Fretting Characteristics of TiN Coated Zircaloy-4 Tube

Ji Hyun Sung, Tae Hyung Kim, Seock Sam Kim*
Graduate School, Department of Mechanical Engineering,
Kyungpook National University, Taegu, Korea
*Department of Mechanical Engineering, Kyungpook National University, Taegu, Korea

ABSTRACT

The fretting wear characteristics of TiN coated Zircaloy-4 tube were investigated experimentally. The fretting wear experiment was performed using TiN coated Zircaloy-4 tube as the fuel rod cladding material and uncoated Zircaloy-4 tube as one of grids. TiN coating is probably one of the most frequently and successfully used PVD coatings for the mitigation of fretting wear. In this study, TiN coating by PVD was employed for improvement of Zircaloy-4 tube fretting characteristics. The fretting tester was designed and manufactured for this experiment. TiN coated Zircaloy-4 tube was used as the moving specimen, uncoated Zircaloy-4 tube as the stationary one. The number of cycles, slip amplitude and normal load were selected as main factors of fretting wear. The results of this research showed that the wear volume of TiN coated Zircaloy-4 tube increased as number of cycles, normal load and slip amplitude increase but the quantity of volume was lower than the case of uncoated Zircaloy-4 tube pairs.

Keywords : Fretting, TiN coating, PVD, Zircaloy-4, Improvement

1.서론

2000년 5월 현재 16기(13,716Mw)가 가동 중이고 4기(4,000Mw)가 건설 중에 있는 원자력발전소는 국내 전체 발전 설비용량의 40%이상을 차지하고 있다. 원자력발전은 현재까지 유일하게 실용화된 대체에너지원으로 소량의 연료로 막대한 에너지를 얻을 수 있을 뿐만 아니라 화석연료와는 달리 이산화탄소와 같은 환경 오염물질의 배출이 없어 환경 보전 차원에서 지속적인 개발이 불가피한 실정이다.

이러한 원자력발전소를 건설하고 운영함에 있어 가장 큰 관건이 되고 있는 사항은 발전소의 운전시에 발생할 수 있는 방사성 물질의 유출을 최소화하도록 갑작스런 사고를 미리 예방하고 주변환경을 깨끗하게 보전할 수 있도록 안정성을 확보하는 것이다.

국내에서 고리 1호기가 가동된 1978년부터 1996년 9월까지 11기의 원자로에서 모두 288회의 고장이 발생한 것으로 알려져 있다. 그리고 1999년 10월 4일과 2000년 5월 22일에도 방사능 피폭사고가 있었다. 그러한 방사능 관련 사고의 대부분은 크게 두 가지 원인으로 나누어 볼 수 있다.

첫째는 증기발생기 내에서 1차계통 냉각수의 흐름에 의한 증기발생기 튜브의 미세 진동으로 인해 발생하는 튜브 지지격자와 튜브 사이의 충격과 미끄럼운동에 의한 튜브의 손상[1-3]이다.

둘째는 원자로 내에서 핵연료봉과 지지격자 사이에서 발생하는 미세진동에 의한 핵연료봉의 손상이다[4-5]. 특히, 핵연료봉의 손상은 방사능 유출과 직결되기 때문에 원자력 발전소의 안정성에 있어 매우 중대한 문제이다. 핵연료봉은 노내에서 연소 중에 직경이 감소하며 이에 따라 붐을 지지하고 있는 그리드와의 간격 증대로 지지격자의 스프링 힘이 약해져 프레팅 현상이 발생하게 된다[5].

프레팅은 많은 사이클동안 미세진폭(일반적으로 수백 μm 이내)으로 상대운동을 하는 접촉계면에서 일어나는 마멸이다[6]. 1927년 Tomlinson이 "Fretting Corrosion"이라는 용어를 처음으로 사용한 이래 70년 이상이 지났지만 여전히 많은 산업 기계의 골칫거리가 되고 있다[7].

이러한 프레팅은 매우 작은 접촉면적 및 미끄럼거리에서 여러 가지 마멸기구들의 복합적인 작용으로 발생하기 때문에 해석하기가 매우 어렵다. 그러므로, 프레팅 연구는 진폭, 하중, 온도, 환경, 주파수 등 프레팅에 영향을 주는 인자 중 주된 관련인자들만을 선별하여 여러 가지 재질에 대해서 연구가 수행되고 있다.

이렇게 인자가 많은 만큼 프레팅을 줄이기 위한 방법도 다양하다. 경우에 따라 각각의 경우에 알맞은 방법을 사용해야 하는데 크게 아래 3가지로 나눌 수 있다[8].

1. 설계의 변화 - 접촉부의 재료 및 기하학적인 변경으로 프레팅을 줄일 수 있다. 그러나 이 방법은 돈 및 시간이 많이 드는 과정일 뿐 아니라 예기치 않은 다른 문제를 일으킬 가능성도 있다.

2. 윤활제의 사용 - 액체나 고체윤활제 등

상황에 맞는 윤활제를 사용함으로써 마찰을 줄이는 방법(anti-friction)이다. 그러나 프레팅 접촉부의 낮은 미끄럼속도와 높은 압력으로 그다지 효율적이지 못하다.

3. 표면공학의 응용 - 프레팅은 피로, 마멸, 부식과 관계 있는 현상이므로 표면처리나 코팅은 프레팅의 이상적인 대처방안이 될 수 있다. 코팅종류에 따라 100배 이상으로 마멸량을 줄일 수 있다[9].

코팅중에서도 PVD TiN코팅은 프레팅을 줄이는 데 있어 가장 유용한 코팅중의 하나이다[10].

따라서 본 연구에서는 현재 원자력 발전소에서 핵연료봉 피복재로 사용되고 있는 지르칼로이-4 튜브의 프레팅을 줄이기 위해 모재위에 PVD TiN코팅을 하여 핵발전소에서 지지격자로 사용되는 지르칼로이-4 튜브를 상대로 마멸특성을 연구, 분석하고자 한다.

2. 실험

2.1 실험장치

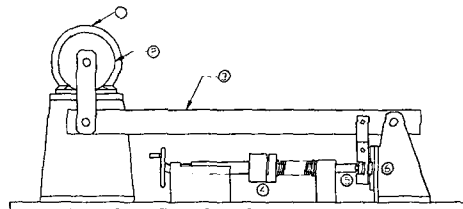


Fig. 1 Schematic diagram of fretting wear tester

- | | |
|------------------|-------------------|
| ① Motor | ② Eccentric plate |
| ③ Vibrating beam | ④ Load cell |
| ⑤ Specimen | ⑥ LM guide |

본 실험에 사용된 실험장치는 편심량을 조절함으로써 진폭을 조절할 수 있도록 설계된 편심 조절식 프레팅 실험기[6]이다. 또한 프레팅의 특성상 실험시간이 작게는 166.7분에서 많게는 833분까지 걸리는 단점이 있으므로 이러한 것을 줄이기 위해 지그 2개를 동

시에 실험할 수 있도록 설계, 제작되었다. 그 개략도는 Fig. 1에 나타내었다.

2.2 시험편

원자력발전소의 11곳의 지지격자 중 가장 하단의 인코넬(Inconel)지지격자를 제외하면 나머지는 모두 핵연료봉 피복재와 동일한 지르칼로이-4이다. 따라서 이동시편으로는 TiN코팅한 지르칼로이-4튜브를 30mm로 절단하여 사용하고 고정시편으로는 코팅하지 않은 지르칼로이-4튜브를 25mm로 절단하여 사용하였다. 두 시편 모두 직경이 9.7mm이고 두께는 1.3mm이다. 지르칼로이-4튜브의 물성치를 Table. 1에 나타내었다.

Table. 1 Chemical composition and mechanical properties of Zircaloy-4

| Chemical Element | Sn | Fe | Cr | C | O | Zr |
|-----------------------|---------------------|------|------|-------|-------|---------|
| Composition (wt%) | 1.3 | 0.23 | 0.12 | 0.016 | 0.125 | balance |
| Mechanical Properties | UTS(MPa) | | 722 | | 369 | |
| | 0.2%YS (MPa) | | 525 | | 298 | |
| | Elongation 5.00(cm) | | 23 | | 29 | |

고정시편의 코팅은 실제 산업현장에서 많이 사용하고있는 발저스 한국 코팅 유한회사의 BAI 830MR1방식을 통해 행해졌다.(Fig. 2)

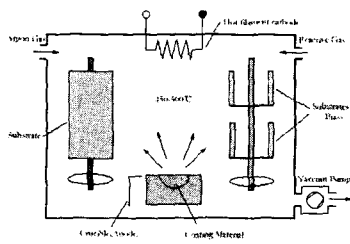


Fig. 2 Schematics of BAI 830MR1

BAI 830MR1방식은 TiN을 물리적 증기 증착법(Physical Vapour Deposition)중에 IP(Ion-Plating)를 사용하여 코팅하는 방법으로 제품명 Balinit A라 불리어 진다. 코팅두께는 4 μ m이고, 코팅후 경도는 50g미세경도로 2300Hv, 표면거칠기는 최대거칠기 R_{max}로 0.2 μ m이었다. 그리고 Balinit A의 최대사용온도는 600 $^{\circ}$ C로써 핵연료봉 피복재 최고온도 399 $^{\circ}$ C보다 높은 값을 보였다.

2.3 실험조건

실험은 두 개의 시편을 직각으로 위치시키고 하중은 20N에서 100N까지 20N간격으로 5단계. 진폭은 40 μ m, 70 μ m, 100 μ m, 200 μ m의 4단계, 진동수는 1 $\times 10^5$ cycles, 3 $\times 10^5$ cycles 및 5 $\times 10^5$ cycles의 3가지 경우로 각각 실험하였다.

시험편의 왕복 미끄럼 진동수는 실제상황에서의 최대값과 맞추기 위해 1초당 10회(10Hz)로 고정하였고 온도 및 습도는 주변환경의 영향을 최소화 하기 위해 공기조절기로 20-24 $^{\circ}$ C, 60-70%를 유지하였다.

실험전·후 초음파세척기로 10분씩 세척하고 공기건조기로 건조시켰으며 SurfTester와 광학현미경으로 마멸면의 폭과 길이를 측정하였다. 그리고 실험중의 진폭은 비접촉식 변위계로 측정하였다.

3. 실험결과와 고찰

3.1 진폭, 하중 증가에 대한 마멸량의 변화

TiN코팅한 지르칼로이-4튜브를 프레팅 실험을 한 결과 Fig. 3에서 보듯이 진폭의 증가에 따라 100 μ m이하에서는 거의 마멸량을 보이지 않다가 100 μ m를 넘어서면서 마멸량이 급증하고 있다. 이것은 100 μ m를 임계거리로 하여 마멸기구가 바뀜을 나타내는 것이다. 이러한 현상은 Iwabuchi[11], Chol[6]등이 발표한 기존의 연구결과에서도 보여주고 있듯이

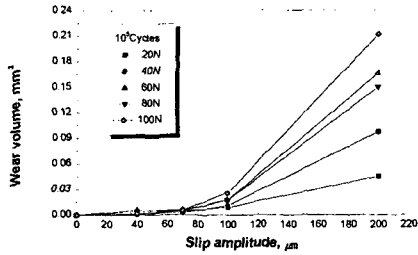


Fig. 3 Wear volume as a function of slip amplitude at 10^5 cycles

Partial Slip에서 Gross Slip으로 넘어가는 시점이다.

그리고 하중의 증가에 따른 마멸량의 관계를 보면 $40\mu\text{m}$ 의 임계거리 이하의 진폭에서는 60N과 80N을 임계로 마멸량의 형태가 급격히 떨어진다. 나머지 진폭에서도 60N을 임계로 급격한 감소를 관찰할 수가 있었다. 이 이유를 SEM사진을 통해 분석한 결과 일정 진폭이하에서는 동일한 진폭일 때 하중이 증가함에 따라서 고착상태로 진행되기 때문에 마멸량이 감소하는 것으로 밝혀졌다. Cho[12] 등의 논문에서도 유사한 결과를 보였는데 단 임계하중이 20-40N으로 나타나 있었다. 이는 TiN의 높은 하중지지능력으로 인해 60N-80N으로 임계하중이 늦춰진 것으로 여겨진다. Cho[6] 등의 논문에서는 80N에서 전형적인 프레팅 마멸면이 관찰되었으나 본 실험에서는 100N이하에서는 그러한 면이 관찰되지 않은 것도 같은 이유로 여겨진다.

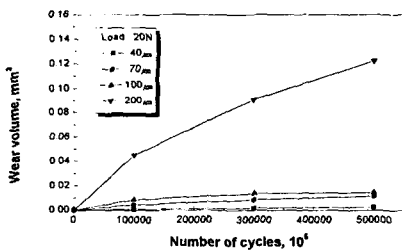


Fig. 5 Wear volume as a function of number of cycles at 20N

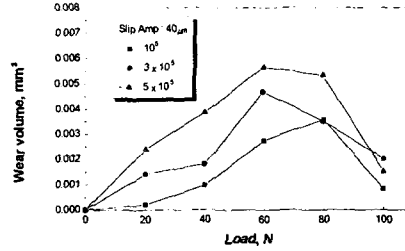


Fig. 4 Wear volume as a function of normal load at $40\mu\text{m}$

3.2 왕복수 증가에 대한 마멸량의 변화
일반적으로 정도의 차이는 있으나 진동수가 증가하면 마멸량도 증가하게 된다. 이는 왕복수가 늘어남에 따라 미끄럼 거리가 늘어나기 때문이다.

Fig. 5에서 보는 바와 같이 작은 왕복수에 서는 그래프의 기울기가 급격해지고 왕복수의 증가에 따라 그 기울기가 완만해 짐을 잘 볼 수 있다. 이는 실험 초기에 시편들의 접촉형태가 이론적으로는 점접촉의 형태로부터 시작되지만, 마멸이 진행됨에 따라 접촉면적은 점점 증가하게 되어 마멸을 유발시키는 접촉압력이 감소하게 되기 때문이다. 그리고 Cho[6] 등이 발표한 코팅하지 않은 지르칼로 이-4 튜브보다 10^5 에서는 3배이상, 3×10^5 에서는 1.7배 5×10^5 에서는 1.2배의 마멸개선을 가져왔다. 그러나 Fig. 6과 같이 전체 미끄럼 거리 및 하중의 증가에도 불구하고 마멸량이 거의 변화가 없는 부분($400\mu\text{m}$ 이하)도 존재한다. 이 부분은 대부분 진폭이 $100\mu\text{m}$ 이하의

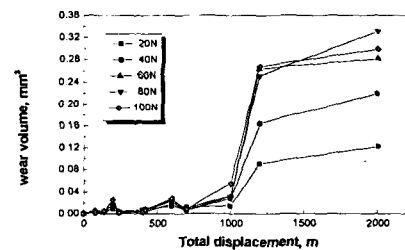


Fig. 6 Wear volume as a function of total displacement

Partial Slip구간으로써 하중 및 진동수가 증가하더라도 마멸량이 크게 증가하지 않는 것을 볼 수가 있다.

3.3 비마멸률의 변화

비마멸률은 마멸량을 하중과 미끄럼거리로 나눈 값으로 하중과 미끄럼거리에 반비례하게 된다.

Fig. 7은 하중의 변화에 따른 비마멸률의 변화를 보이고 있다. 하중이 증가함에 따라 절대값 및 기울기의 차이는 있으나 대체적으로 감소하는 경향을 보인다. 이것은 하중의 증가에 따라 진실접촉면적이 늘어나며 이러한 진실접촉면적의 증가는 접촉부의 마멸과 관계하는 압력을 강하시키므로 비마멸률도 줄어드는 것으로 여겨진다.

Fig. 8은 진폭의 증가에 따른 비마멸률의 변화를 보이고 있다. 이론적으로라면 진폭이 증가하면 미끄럼거리가 증가하며 비마멸률이 감소하여야 한다. 그러한 경향은 어느 임계 진폭이까까지는 발생하지만 그 이상에서는 이러한 진폭의 증가가 훨씬 더 큰 마멸을 발생시키게 되어 그래프와 같이 급격한 비마멸률의 상승을 보인다.

3.4 마멸면의 미시적 관찰

두 개의 구가 미끄럼 없이 압축되면 최대 인장응력이 접촉면의 가장자리에서, 최대 전단응력은 접촉표면의 조금 아래에서 발생되게 된다[13]. Fig. 9에서 이러한 최대인장응

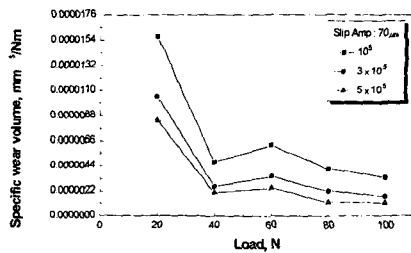


Fig. 7 Specific wear rate of moving specimen as a function of normal load

로 인하여 마멸면의 가장자리의 TiN코팅에 크랙이 발생, 성장함을 잘 보여주고 있다.

Fig. 10은 40μm, 100N의 SEM사진으로 전형적인 고착-미끄럼 영역을 가진 프레팅 마멸면의 모양을 나타내고 있다. 100N이하의 하중에서는 이와 같은 형상이 발견되지 않는 것으로 보아 TiN코팅으로 인해 하중지지능력이 커져서 고착영역이 높은 하중에서 발생한 것으로 보인다. 역시 이 사진에서도 고착영역과 슬라이딩 영역의 경계면에서 심한 크랙이 발생하고 있는 것으로 보아 TiN코팅은 특유의 취성과파괴로 인해 떨어져 나감을 살펴볼 수 있다. 이러한 취성과파괴와는 다르게 Fig. 11에는 코팅이 파괴된 후 계속 반복되는 왕복운동으로 인해 마멸면의 곳곳에 피로 크랙이 발생하는 것을 잘 보여주고 있다. 그러나 하중과 진폭이 큰 영역인 Fig. 12를 보면 마멸면 전체에 심한 응착이 일어났음을 잘 알 수가 있다.

따라서 TiN코팅한 지르칼로이-4튜브의 주된 마멸기구는 코팅이 남아있는 초기의 경우 TiN코팅의 취성과파괴가 지배적이고 코팅이 파괴된 후에는 왕복운동으로 인한 피로파괴가 지배적이다. 그리고 진폭이 커지고 하중이 높아지게 되면 Gross Slip영역으로 넘어가면서 전체 마멸면의 응착으로 인한 마멸이 지배적이다.

4. 결론

본 연구에서는 실제로 원자로에서 사용하

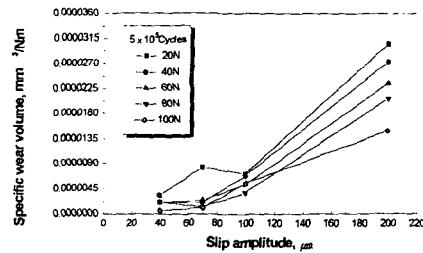


Fig. 8 Specific wear rate of moving specimen as a function of slip amplitude

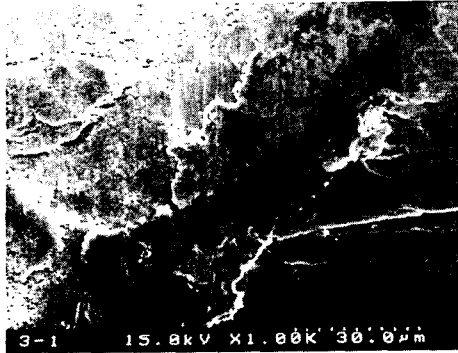


Fig. 9 Initiation and propagation of crack in TiN coating(40 μ m, 60N, 1 \times 10⁵cyc.)

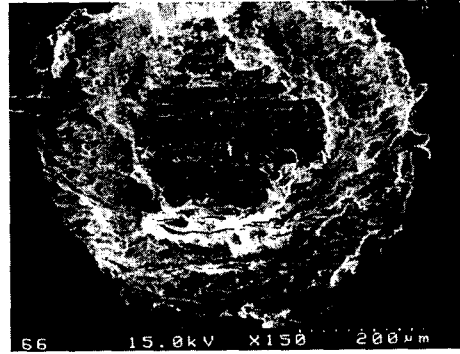


Fig. 10 Initiation and propagation of crack in boundary of Stick and slip region (40 μ m, 100N, 3 \times 10⁵cyc.)

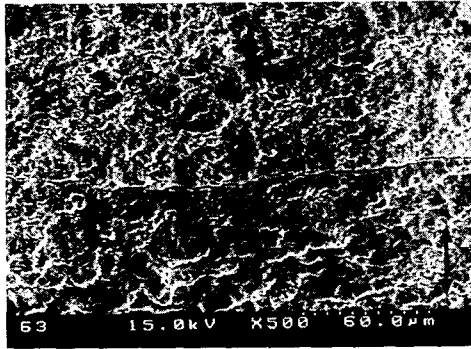


Fig. 11 Propagation of fatigue crack in Wear Scar(40 μ m, 60N, 5 \times 10⁵cyc.)

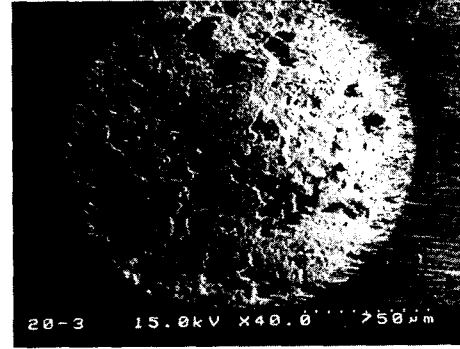


Fig. 12 Adhesion wear over all worn surface(200 μ m, 100N, 1 \times 10⁵cyc.)

고 있는 핵연료봉의 프레팅 특성의 개선을 위해 TiN코팅을 하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. TiN코팅을 한 지르칼로이-4튜브의 경우도 임계미끄럼거리가 100 μ m로 지르칼로이-4튜브와 유사한 결과를 보였다.
2. TiN코팅의 높은 하중지지능력에 의해 스틱영역이 높은 하중값(100N)에서만 발견되었다.
3. TiN코팅한 지르칼로이-4튜브의 주된 마멸기구는 임계진폭이하에서는 TiN코팅의 취

성파괴와 반복되는 왕복운동으로 인한 피로 크랙으로 인한 파괴였고, 임계진폭 이상 고하중에서는 응착이 주된 마멸기구였다.

참 고 문 헌

1. 원자력산업, KAIF News Letter, No. 582, 1998.
2. Fisher, N. J., Chow, A. B. and Weckwerth, M. K., "Experimental Fretting-Wear Studies of Steam Generator Materials", Journal of Pressure Vessel Technology, Vol. 117, pp.312-320, 1995.

3. Ko, P. L., "Heat Exchanger Tube Fretting Wear : Review and Application to Design", *Journal of Tribology*, Vol. 107, pp.149-156, 1985.
4. Ko, P. L., "Experimental Studies of Tube Frettings in Steam Generators and Heat Exchangers", *Journal of Pressure Vessel Technology*, Vol. 101, pp.125-133, 1979.
5. Cho, K. H., Kim, T. H. and Kim, S. S., "Fretting Wear Characteristics of Zircaloy-4 Tube", *Wear*, Vol. 219, pp.3-7, 1998.
6. R.B.Waterhouse, *Fretting Corrosion*, Pergamon Press, Oxford, 1972
7. J.Sato, Recent trend in studies of fretting wear, *Trans. JSLE* 30(1995) 853-858
8. Yongqing Fu, Jun Wei, Andrew W. Batchelor, "Some considerations on the mitigation of fretting damage by the application of surface-modification technologies", *Journal of Materials Processing Technology*99, pp231-245, 2000
9. L.Vincent, Y. Berthier, M.C. Dubourg, M. Godet, *Mechanics and materials in fretting*, *Wear* 153(1992) 135-148
10. B. Blanain, H. Mohrbacher, E. Liu, J.P.Celis, J.R. Ross, *Hard coatings under vibration contact conditions*, *Surf Coat. Technol.* 74/75(1995), 953-958
11. Iwabuchi, A., "The Effect of Slip Amplitude and Load in Fretting Wear", *Japanese Society of Mechanical Engineers*, Vol. 44, No. 378, pp.692-699, 1978.
12. K.H. Cho, K.C. Roh, S.S. Kim, S.J. cho, "Fretting Wear Characteristics of Zircaloy-4 Tube in Light Water", *Journal of KSTLE*, Vol.14, No.4, pp88-94, 1998
13. Hamilton, G. M., "Explicit equations for the stresses beneath a sliding spherical contact" *Proc. Instn. Mech. Engrs*, Vol. 197C, pp53-59, 1983