

실리콘고무계 및 에폭시수지계 차폐재의 방사선 영향에 관한 연구

조수행, 김익수, 신영준, 도재범, 노성기

한국원자력연구소

요 약

방사성물질의 수송 및 저장용기 등에 사용되는 실리콘고무계 및 수소 첨가된 비스페놀-A형 에폭시수지계 중성자 차폐재들의 인장강도, 압축강도, 비중, 무게, 수소함량 등에 방사선이 미치는 영향을 검토하였다.

방사선 조사선량의 증가에 따라 실리콘고무계 중성자 차폐재(KNS-101 및 102)들의 인장강도, 압축강도, 비중 등이 증가하는 경향을 나타내었으며, 차폐재의 무게는 거의 변화가 없었으나, 수소함량은 약간 감소하는 경향을 나타내었다. 또한 에폭시수지계 중성자 차폐재(KNS-201 및 202)들의 인장강도 및 압축강도는 0.1 MGy까지는 방사선 조사선량의 증가에 따라 증가하다가 0.1 MGy 이상에서는 감소하는 경향을 나타내었으며, 조사선량의 증가에 따른 차폐재들의 비중, 무게 및 수소함량은 크게 변하지 않는 것으로 나타났다.

1. 서 론

방사성물질의 수송 및 저장용기, 핵연료 재처리공장, 원자로, 액체금속로, 싸이클로트론장치 등으로 부터 발생되는 중성자는 에너지가 높고 투과력이 강하며, (n, γ) 반응에 의한 2차 감마선을 발생시켜 인체에 장애를 주기 때문에 중성자를 안전하게 차폐할 고성능 차폐재료 개발이 요망된다. 고속중성자는 거의 같은 질량의 수소원자와의 충돌에 의하여 에너지가 흡수되면서 효과적으로 감속되기 때문에 수소원자수 밀도가 높은 고분자물질이 중성자 차폐재의 기본소재로 많이 사용되고 있다. 차폐효과를 높이기 위하여 고분자물질의 기본소재에 열중성자 포획단면적이 큰 붕소 혹은 붕소화합물, 리튬화합물 등이 첨가되며, 또한 각종 성능향상제가 첨가되어 제조되는 중성자 차폐재는 그 종류가 매우 다양하며[1,2], 최근에는 고분자물질 및 cermet 등의 중성자 차폐재들이 미국, 일본 등지에서 개발 중에 있다[3,4].

본 연구에서는 액상 실리콘고무와 수소 첨가된 비스페놀A형 에폭시수지를 기본물질로 하고 여기에 폴리프로필렌, 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제를 혼합하여 실리콘고무를 기본물질

로 한 중성자 차폐재(KNS-101/102)와 수소 첨가된 비스페놀A형 에폭시수지를 기본물질로 한 중성자 차폐재(KNS-201/202)를 제조하였으며, 방사선 조사선량이 이들 중성자 차폐재의 역학적 특성에 미치는 영향에 대하여 고찰하였다.

2. 실험

2.1. 실험재료

본 실험에서 수지계 중성자 차폐재의 기본물질로는 내열성 및 난연성이 우수한 상온 경화용인 액상 실리콘고무와 기계적 성질, 내후성 및 치수 안정성 등이 우수한 상온 경화용 에폭시수지를, 첨가제로는 폴리프로필렌, 수산화알루미늄 그리고 탄화붕소를 사용하였다. 액상 실리콘고무는 주재(base, part A)와 경화제(hardener, part B)로 나누어 공급되는 부가형 2 성분형 액상 실리콘고무로서 혼합시 주재와 경화제의 무게비율(또는 부피비율)을 1 : 1로 균일하게 혼합하면 상온에서도 완전히 경화가 되나, 가열하면 보다 빠르게 경화된다. 또 다른 기본물질인 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지는 수소를 첨가한 비스페놀A형 에폭시수지이며, 경화제로는 폴리아미도아민과 폴리에테르디아민을 무게비율 1 : 1로 혼합하여 사용하였다. 그리고 중성자 차폐재의 수소원자수 밀도를 증가시키기 위한 목적으로 폴리프로필렌을 첨가하였으며, 저속 혹은 열중성자에 대한 차폐효과를 크게 하기 위하여 탄화붕소를 첨가하였다. 또한 차폐재에 유독가스를 발생시키지 않으면서, 난연성을 부여하고 자기소화성을 촉진시키기 위하여 수산화알루미늄을 첨가하였다.

2.2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용한 실험장치는 중성자차폐재 제조의 기본물질인 액상 실리콘고무와 에폭시수지에 분말형태의 폴리프로필렌, 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제들을 균일하게 혼합하기 위하여 HAAKE Rheomix 600과 Dispermat VL-C형의 진공혼합기를 사용하였다. 혼합시에는 정해진 무게비율로 각 시료들을 준비하여 액상 실리콘고무는 주재와 경화제를 같은 무게비율로 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지와 경화제는 당량비율로 혼합하였다. 고속중성자, 저속 및 열중성자의 차폐효과에 관계되는 수소원자수 밀도와 붕소원자수 밀도, 가공성의 용이 및 중성자 차폐재의 다른 특성을 고려하여 제조된 중성자 차폐재시편의 조성비는 Table 1에 나타내었다.

Table 1. Composition of shielding materials

Shielding material	Composition (wt.%)				
	Silicone rubber	Epoxy resin	Polypropylene	Al(OH) ₃	B ₄ C
KNS-101	70	-	10	18	2
KNS-102	49	-	-	49	2
KNS-201	-	38	-	59	3
KNS-202	-	38	3	56	3

제조된 시편에 대한 방사선 조사실험은 고준위 방사선원(Co-60, 86,500 Ci)에 의한 감마선조사에 의해 행하여졌으며, 시험에 사용한 조사선량은 0.05 MGy, 0.1 MGy, 0.5 MGy 및 1.0 MGy 이고, 이들은 각각 평균조사선량 5 kGy/h으로 10시간, 20시간, 100시간 그리고 200시간 동안 조사하여 얻었다. 그리고 조사된 시편들의 인장강도, 압축강도, 비중, 무게 등의 변화와 차폐재의 주요 구성원소인 수소(H)함량 변화를 측정하였다.

2.3. 분석

실리콘고무계 중성자 차폐재에 대한 인장강도 및 압축강도시험은 KS M 6518에 따라서 행하였으며, 에폭시수지계 중성자 차폐재에 대한 인장강도 및 압축강도시험은 KS M3015에 따라서 행하였다. 주요 구성원소인 수소의 조사 후의 변화량을 측정기 위한 수소원소는 CHN-1000 Elemental Analyzer (LECO Co.)로 분석하였다. 또한, 각 차폐재의 비중값은 Sartorius Research RC 210P에 의해 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 인장강도에 대한 영향

방사선 조사선량이 실리콘고무계 중성자 차폐재 KNS-101과 KNS-102의 인장강도에 미치는 영향을 Fig. 1에 나타내었으며, 방사선의 조사선량을 1.0 MGy 까지 증가시켰을 때, KNS-101 차폐재의 인장강도는 점차적으로 약간씩 증가하는 경향을 보이고, KNS-102 차폐재는 조사선량의 증가에 따라 인장강도가 처음에는 약간 감소하다가 다시 약간 증가하는 경향을 보였다. 방사선 조사선량의 증가에 따라 차폐재의 인장강도가 증가하는 이유는 주쇄의 절단반응보다는 측쇄에 생긴 자유라디칼간의 결합에 의한 망상구조를 이루는 가교결합반응이 우세하기 때문인 것으로 해석할 수 있다. 본 실험에서 기본소재로 사용한 실리콘고무는 Polydimethylsiloxane((CH₃)₂SiO)_n으로, 주쇄를 이루고 있는 Si-O (101 Kcal/mole)의 결합에너지는 측쇄를 이루고 있는 Si-C (50-80 Kcal/mole) 및 C-C (83.2 Kcal/mole)의 결합에너지보다 큰 것으로 알려져있다. 이것은 Si-O의 전기음성도차가 크기 때문에 Si-O가 이온결합에 가깝게 되어 있어서 에너지적으로 안정화가 되어있기 때문이라 알려져 있다[5]. 따라서 폴리디메틸실록산고무에 방사선을 조사하면 결합에너지 값으로 볼때 주쇄절단보다는 측쇄절단으로 생긴 라디칼의 가교결합이 우세하여 인장강도를 증가시키는 것으로 생각된다[6]. 또한 방사선 조사선량이 에폭시수지계 중성자 차폐재 KNS-201과 202의 인장강도에 미치는 영향을 Fig. 1에 나타내었으며, 방사선 조사선량이 0.1 MGy까지 증가함에 따라 KNS-201 및 202 차폐재들의 인장강도는 증가하다가, 0.1 MGy 이상에서는 조사선량의 증가에 따라 인장강도가 감소하는 경향을 나타내었다. 이는 에폭시수지가 실리콘고무와는 달리 주쇄와 측쇄를 이루고 있는 결합이 다 같이 C-C 결합이 포함되어 있어 방사선 조사시 주쇄절단

및 축쇄절단반응이 경쟁적으로 일어날 것으로 생각되며, Fig. 1에서 보는 바와 같이 방사선 조사 초기에는 축쇄의 절단반응이 우세하게 진행되나 방사선 조사선량이 증가하면 경쟁반응으로 주쇄 절단반응이 우세하게 된 것으로 생각된다.

3.2. 압축강도에 대한 영향

방사선 조사선량이 실리콘고무계 중성자 차폐재의 압축강도에 미치는 영향을 Fig. 2에 나타내었으며, 방사선 조사선량이 1.0 MGy까지 증가함에 따라 KNS-101과 KNS-102 차폐재들의 압축강도가 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 방사선조사에 의하여 차폐재의 기본물질인 실리콘고분자의 축쇄절단으로 생성된 자유라디칼간의 가교결합이 우세하므로 압축강도가 증가하는 것으로 판단된다. 특히 폴리프로필렌이 첨가된 KNS-101의 경우는 Fig. 2에서 보는 바와 같이 조사선량이 증가함에 따라 KNS-102 차폐재보다 압축강도가 보다 더 증가하는데, 이는 폴리프로필렌과 실리콘폴리머사이의 가교결합도 함께 이루어지기 때문인 것으로 판단된다. 또한 방사선 조사선량이 예폭시수지계 중성자 차폐재의 압축강도에 미치는 영향을 Fig. 2에 나타내었으며, 방사선 조사선량이 0.1 MGy까지 증가함에 따라 KNS-202 차폐재의 압축강도는 증가하는 경향을 나타내었으나, 0.1 MGy 이상에서는 KNS-202 차폐재의 압축강도가 거의 변화하지 않는 경향을 나타내었다. 이때 0.1 MGy까지 압축강도가 증가하는 것은 예폭시수지와 폴리프로필렌과의 가교결합수가 많아져 압축강도가 증가하는 것으로 판단된다. 또한 KNS-201의 압축강도는 방사선 조사선량에 거의 영향을 받지 않는 것으로 나타났다.

3.3. 비중 및 무게변화에 미치는 영향

방사선 조사선량이 실리콘고무계 중성자 차폐재의 비중에 미치는 영향을 Fig. 3에 나타내었으며, 방사선조사량이 증가함에 따라 KNS-101과 KNS-102 차폐재의 비중은 약간 증가하는 것으로 나타났다. 한편, 방사선 조사선량의 변화에 따른 중성자 차폐재의 무게변화를 Table 2에 나타내었으며, 방사선 조사선량이 증가함에 따라 실리콘고무계 중성자 차폐재의 무게에는 크게 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 이와같은 결과로부터 방사선조사에 의하여 차폐재들이 고밀도화가 됨으로서 차폐효과가 증가될 것으로 판단된다. 또한 방사선 조사선량이 예폭시수지 중성자 차폐재의 비중 및 무게변화에 미치는 영향을 Fig. 3과 Table 2에 나타내었다. Fig. 3에서 보는 바와 같이 방사선조사량이 증가함에 따라 KNS-201과 202 차폐재들의 비중은 거의 변화가 없는 것으로 나타났다. 또한 Table 2에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 증가함에 따라 차폐재의 무게에는 크게 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 이와 같은 결과로부터 차폐재에 함유된 첨가물 중에서 특히 붕소가 방사선의 조사량이 1.0 MGy까지 되어도 큰 손실이 없어 열중성자 차폐효과에 거의 영향을 받지 않을 것으로 판단된다.

Table 2. Effects of radiation on weight of shielding materials

Dose (MGy)	Shielding material (weight(g))											
	KNS-101			KNS-102			KNS-201			KNS-202		
0	104.62	104.79	105.17	130.07	129.94	128.95	13.650	13.687	13.280	13.222	13.128	12.782
0.1	104.65	-	-	130.05	-	-	13.647	-	-	13.223	-	-
0.5	-	104.89	-	-	129.95	-	-	13.618	-	-	13.126	-
1.0	-	-	105.35	-	-	129.01	-	-	13.274	-	-	12.786

3.4. 수소함량에 변화에 미치는 영향

방사선 조사선량이 실리콘고무계 중성자 차폐재의 수소함량 변화에 미치는 영향을 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량의 증가에 따라 수소함량이 약간 감소하는 것으로 나타났으나, 차폐재의 중성자 차폐성능에는 크게 영향을 미치지 못할 것으로 판단된다 [6]. 또한 방사선 조사선량이 에폭시계 중성자 차폐재의 수소함량 변화에 미치는 영향을 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 차폐재들의 수소함량에 큰 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 따라서 중성자 뿐만 아니라 γ 선 등의 방사선을 많이 내는 방사성물질을 차폐하는 차폐재들의 중성자 차폐성능은 거의 영향을 받지 않을 것으로 판단된다.

4. 결 론

- 실리콘고무계 중성자 차폐재는 방사선 조사선량의 증가에 따라 인장강도 및 압축강도, 비중은 증가하는 반면에 에폭시수지계 중성자 차폐재는 방사선 조사선량의 증가에 따라 인장강도는 영향을 받지만 압축강도 및 비중은 거의 영향을 받지 않는 것으로 나타났다.
- 방사선조사에 의해서 실리콘고무계 중성자 차폐재는 고밀도화가 됨으로서 차폐효과가 증가될 것으로 판단된다.
- 방사선 조사선량이 에폭시수지계 중성자 차폐재의 수소함량 및 무게변화에는 거의 영향을 미치지 않는 것으로 나타났다. 한편, 실리콘고무계 중성자 차폐재는 무게변화에는 거의 영향을 받지 않는 것으로 나타났으며, 수소함량은 약간 감소하는 것으로 나타났지만 중성자 차폐능에는 크게 영향을 미치지 않을 것으로 판단된다.

참 고 문 헌

- H. Taniuchi, T. Iida, F. Matsuda and H. Nagahama, IAEA-SM-286, 123 (1987).
- T. Iida, H. Taniuchi and K. Fujisawa, RAMTRANS, 2, 79 (1991).
- K. A. Blakely, M. F. Gaffney and P. T. B. Shaffer, Trans. Am. Nucl. Soc., 34, 199 (1980).
- H. J. Rack, S. A. Dupree and J. F. Smugeresky, SAND78-2317 (1979).

5. Silicone and Its application, Japan Toshiba, Co.Ltd. (1988)

6. R. R. Burn and G. R. Blessing, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 39, 429 (1981).

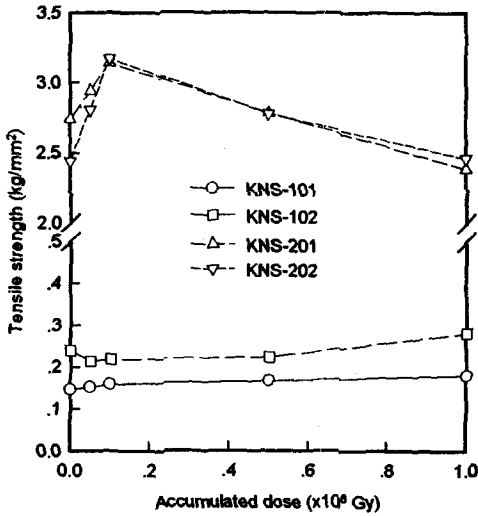


Fig. 1. Radiation-induced tensile strength of shielding materials.

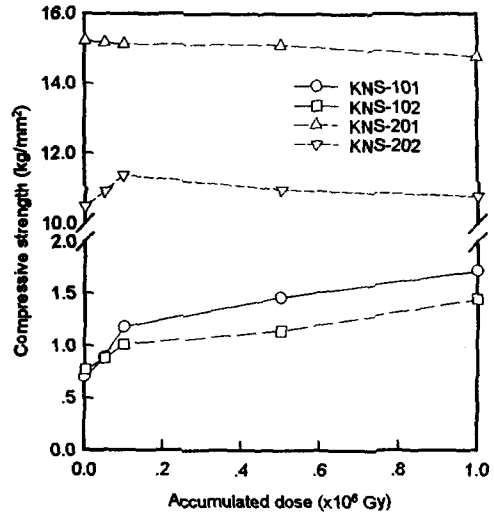


Fig. 2. Radiation-induced compressive strength of shielding materials.

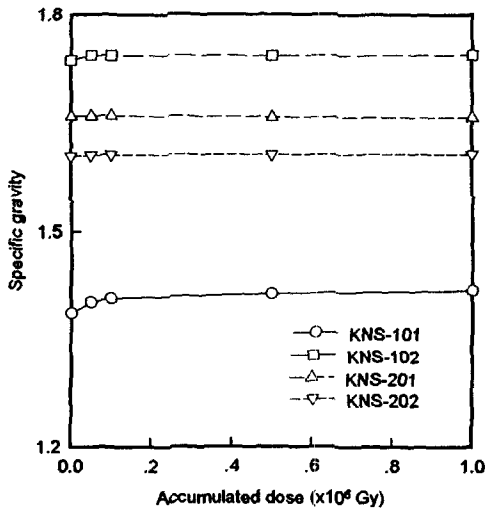


Fig. 3. Effects of radiation on specific gravity of shielding materials.

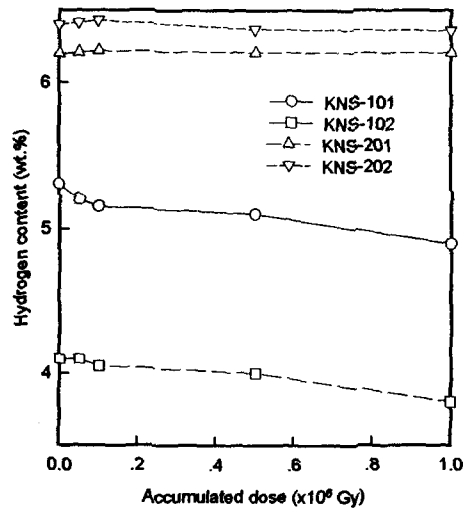


Fig. 4. Effects of radiation on hydrogen content of shielding materials.