

에폭시수지계 중성자 차폐재의 차폐능에 관한 연구

조수행, 최병일*, 신형준, 노성기, 박현수

한국원자력연구소

* 원자력환경기술원

요 약

방사성물질의 수송용기 등에 사용되는 에폭시수지계 중성자 차폐재를 제조하였다. 기본물질은 개질(KNS-102) 및 수소 첨가된 비스페놀 A형(KNS-106) 그리고 페놀-노블락형 에폭시수지(KNS-611)이며, 첨가제로는 수산화알루미늄 및 탄화붕소이다. 이들 중성자 차폐재들은 유동성이 좋아 수송용기와 같은 복잡한 구조에 사용할 수 있다. 제조된 중성자 차폐재들을 방사선 조사선량에 대한 영향과 가압경수로 사용후핵연료 28다발을 수송할 수 있는 수송용기에 적용하여 차폐능 평가를 수행하였다. 0.7 MGy 까지 중성자 차폐재들은 방사선 조사선량의 증가에 따라 중성자 차폐재의 거시적 제거 단면적(Σ_R)은 약간 증가하는 경향을 나타내었으며, 수송용기에 적용하여 ANISN 전산코드로 차폐능 평가를 수행한 결과 정상수송시 중성자 차폐재의 두께가 12 cm 이상 일 때 수송용기 반경방향표면에서 최대 방사선량율은 168 ~ 214 $\mu\text{Sv/h}$ 로 나타났으며, 수송용기 표면에서 100 cm 지점에서의 최대 방사선량율은 74 ~ 93 $\mu\text{Sv/h}$ 로 나타났다. 이들은 모두 관련된 법규들에서 규정된 최대 허용방사선량율을 만족하는 것으로 나타났다.

1. 서 론

방사성물질의 수송용기 등으로 부터 발생하는 중성자는 에너지가 높고 투과력이 강하며, (n, γ)반응에 의한 2차 감마선을 발생시켜 인체에 장애를 주기 때문에 중성자를 안전하게 차폐할 중성자 차폐재료가 개발되고 있으며, 최근에는 기본물질이 고분자물질로 된 중성자 차폐재들이 미국, 일본 등지에서 개발 중에 있다[1-3]. 그러나 개발된 중성자 차폐재의 방사선 조사선량에 대한 영향과 차폐능평가에 대한 자료들이 매우 미흡한 실정이다. 본 연구에서는 기계적 및 전기적 성질, 내후성, 내부식성 및 치수안정성 등이 우수한 개질 및 수소 첨가된 비스페놀A형 에폭시수지와 이들보다 반응성 및 내열성이 더욱 우수한 노블락형 에폭시수지와 경화제에 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제를 혼합하여 중성자를 효과적으로 차단할 수 있는 중성자 차폐재를 제조하여, 이들의 방사선 조사선량에 대한 영향과 중성자 차폐재의 차폐능을 평가하기 위하여 가압

경수로 사용후핵연료 28다발을 장전할 수 있는 수송용기에 적용하여 1 차원 수송 전산코드인 ANISN[4]으로 비교·평가하였다.

2. 실험

2.1. 실험재료

본 실험에서 수지계 중성자 차폐재의 기본물질로는 상온 경화용 액상 에폭시수지를, 첨가제로는 난연제로 수산화알루미늄 그리고 열중성자 흡수제로는 탄화붕소를 사용하였다. 기본물질로 사용된 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지들은 비스페놀 A형의 디그리시딜 에테르 수지를 알킬그리시딜 에테르로 개질한 저점도형수지이고, 비스페놀 A의 구조식에서 페닐기가 시크로헥산 고리로 된 수소 첨가된 비스페놀 A형 에폭시수지이며, 또한 페놀-노블락형 에폭시수지이다. 이들은 점도(7 ~ 50 poise at 25 °C)가 낮아 첨가제를 많이 넣을 수 있는 잇점을 가지고 있다. 경화제로는 폴리아미도아민과 폴리에테르디아민을 개질 및 수소 첨가된 비스페놀 A형 에폭시수지에 그리고 변성 방향족 아민 경화제는 페놀-노블락형 에폭시수지에 사용하였다. 소포제로는 BYK-Chemie GmbH의 BYK-066을 사용하였다. 저속 혹은 열중성자에 대한 차폐효과를 크게 하기 위하여 탄화붕소(입자크기, 5 ~ 8 μm)를 첨가하였으며, 차폐재에 유독가스를 발생시키지 않으면서, 난연성을 부여하고 자기소화성을 촉진시키는 것으로 알려져 있으며, 결정수형으로 약 35%의 물을 함유하고 있어, 고속중성자를 열중성자로 감속시키는 작용을 하는 수산화알루미늄(입자크기, 21 μm)을 첨가하였다.

2.2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용한 실험장치는 중성자차폐재 제조의 기본물질인 액상 에폭시수지에 분말형태의 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제들을 균일하게 혼합하기 위하여 Dispermat VL-C형의 진공혼합기를 사용하였다. 혼합시에는 경해진 무게비율로 각 시료들을 준비하여 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지와 경화제는 당량비율로 혼합한 후, 소포제와 분말시료들을 진공혼합기에 넣어 일정시간 동안 진공하에 혼합하였다. 각종의 시편틀에 액상의 혼합물을 넣고 상온에서 경화시켜서 특성시험에 알맞는 시편을 제작하였다.

본 연구에서는 가공의 용이성 및 중성자 차폐재의 특성을 고려하여 중성자 차폐재의 조성비를 Table 1에서 나타낸 바와 같이 조절하였다.

Table 1. Composition of shielding materials

Shielding material	Composition(wt.%)			
	Resin	Hardener	Al(OH) ₃	B ₄ C
KNS-102	27.5	10.5	59	3
KNS-106	27.5	10.5	59	3
KNS-611	26.5	11.5	59	3

제조된 시편에 대한 방사선 조사실험은 고준위 방사선원(Co-60, 86,500 Ci)에 의한 감마선 조사에 의해 행하여졌으며, 시험에 사용한 조사선량은 0.15 MGy, 0.3 MGy, 0.5 MGy 및 0.7 MGy 이고, 이들은 각각 평균조사선량 5 kGy/h으로 30시간, 60시간, 100시간 그리고 140시간 동안 조사하여 얻었다. 그리고 조사된 시편들의 중성자 차폐능시험은 자발적 핵분열 중성자선원인 Californium-252을 사용하였으며, 중성자선원의 방출률은 1.01×10^9 n/s이며, 중성자선원과 계측기 사이의 거리는 50 cm, 시편의 크기가 350 mm(W) x 350 mm(H) x 25 mm(T)인 중성자 차폐재와 계측기 사이의 거리는 15 cm이다.

2.3. 방사선원 및 차폐계산

방사선원항 계산에는 ORIGEN-2 코드[5]가 이용되었으며, 대상 핵연료는 고연소도 핵연료에 해당되는 PWR 17x17 배열 집합체로 4.5 w/o 농축도, 37.5 MW/MTU의 비출력으로 연소된 최대 연소도가 50,000MWD/MTU이고 냉각기간이 10 년인 사용후핵연료에 대하여 방사선원항을 계산하였다. 본 연구에서는 수송용기에 사용될 중성자 차폐재의 차폐효과를 비교하기 위하여 ANISN 전산코드의 계산에 이용된 핵단면적 자료 DLC-23/CASK[6]는 중성자 22 에너지군과 감마선 18 에너지군으로 구성되어 있고 29개 원소에 대한 P3까지의 자료가 수록되어 있으며 열중성자와 각 원소간의 2차 감마선까지 계산할 수 있다. 본 연구에서는 제조된 중성자 차폐재에 대한 중성자 차폐능을 평가하기 위하여 외국에서 널리 사용되는 중성자 차폐재인 미국 Bisco Products사 제품인 NS-4-FR과 중성자 차폐재의 두께를 10 ~ 15 cm로 변화시키면서 이에 대한 방사선량을 비교·평가하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. 중성자 차폐능을 위한 원자수 밀도 분석

중성자 감속효과가 매우 큰 수소원자와 열중성자 흡수단면적이 큰 붕소원자의 원자수 밀도가 중성자 차폐능과 밀접한 관계를 가지므로 중성자 차폐재의 원자수 밀도의 파악이 필요하다. Table 2는 중성자 차폐재, KNS-102, KNS-106, KNS-611 및 NS-4-FR의 원자수 밀도를 나타낸 것이다. Table 2에서 보는 바와 같이 이들 중성자 차폐재들의 수소 원자수 밀도는 외국산 중성자 차폐재인 NS-4-FR과 비슷하거나 높게 나타났다.

Table 2. Atomic number densities of shielding materials

Shielding material	Atomic number density ($\times 10^{22}$ atoms/cm ³)					
	H	B	C	O	Al	N
KNS-102	6.10	0.22	2.25	2.78	0.77	0.09
KNS-106	6.50	0.22	2.11	2.74	0.77	0.09
KNS-611	5.90	0.22	2.36	2.72	0.77	0.11
NS-4-FR[7]	6.00	-	2.33	2.71	0.81	0.15

3.2. 거시적 제거단면적

제조된 중성자 차폐재들의 중성자 차폐능시험 결과를 Fig. 1에 나타내었다. Fig. 1에서 보는 바와 같이 수소 원자수 밀도가 높은 중성자 차폐재의 순으로 거시적 제거단면적이 큰 순으로 나타났다. 이는 수소 원자수 밀도가 중성자 차폐능에 영향을 미치는 주요한 인자임을 알 수 있다. 또한 Fig. 1에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 0.7 MGy까지는 방사선 조사선량의 증가에 따라 중성자 차폐능을 나타내는 거시적 제거단면적이 약간 증가하는 경향을 나타내었다. 이는 주쇄의 절단보다는 측쇄에 생긴 자유라디칼간의 결합이 우세하여 큰 망상구조를 이루는 가교결합수가 증가하기 때문으로 해석할 수 있다[8]. 여기서 거시적 제거단면적(macroscopic removal cross section, Σ_R)은 중성자 차폐재의 차폐능을 나타내는 단면적으로서 차폐재 단위 두께 1 cm에서 중성자의 모든 핵반응확률이라는 물리적 의미를 갖는다. 중성자 차폐재의 거시적 제거단면적은 유효 선량당량률의 감소율로서 다음 식(1)에 의해 산출하였다[2].

$$D_i/D_0 = \exp(-\Sigma_R \times T) \quad (1)$$

여기서, D_0 : 선원과 계측기 사이에 차폐재가 없을 때의 중성자 선량 당량률(mSv/h), D_i : 선원과 계측기 사이에 차폐재가 있을 때의 중성자 선량 당량률(mSv/h), Σ_R : 거시적 제거단면적(cm^{-1}), T : 중성자 차폐재 두께(cm)이다.

3.3. 수송용기에 대한 차폐해석

수송용기의 정상 수송조건에서 최대 방사선량을 허용기준치는 국내과학기술부고시 제 85-8 호 제 22조, IAEA Safety Series No. 6 para. 465 그리고 미국의 10 CFR 71.47에서 전용적재인 경우 차량 및 수송용기의 표면에서 2,000 $\mu\text{Sv/h}$, 용기표면으로부터 100 cm 거리에서 100 $\mu\text{Sv/h}$ 로 규정하고 있다. 장전통에 물이 없는 공냉식(dry cavity)의 수송형태를 가정하여 계산하였다. 이러한 조건하에서 가압경수로 사용후핵연료 28다발을 장전할 수 있는 수송용기에 대한 예폭 시수지계 중성자 차폐재에 대한 방사선 차폐해석을 통하여 방사선량이 허용기준치 이내으로 만족하는지를 확인하고자 하였다. ANISN 코드를 사용하여 수송용기의 표면과 표면으로부터 100 cm 거리에서 제조된 중성자 차폐재, KNS-102, KNS-106 및 KNS-611의 두께에 따른 최대 방사선량율을 Fig. 2와 3에 나타내었다. Fig. 2와 3에서의 방사선량율은 중성자 및 감마선에 대한 총 방사선량율을 뜻하며, 감마선량율은 핵연료로부터 직접 방출되는 1차 감마선과 중성자와 경원소

의 반응을 통하여 생성되는 2차 감마선에 의한 방사선량을 포함한 값이다. Fig. 2에서 보는 바와 같이 수송용기 표면에서 방사선량의 경우 12 cm 두께의 중성자 차폐재를 적용하였을 경우에는 KNS-102는 181 $\mu\text{Sv/h}$, KNS-106은 168 $\mu\text{Sv/h}$, KNS-611은 214 $\mu\text{Sv/h}$ 그리고 NS-4-FR은 211 $\mu\text{Sv/h}$ 로 나타났다. 또한 Fig. 3에서 보는 바와 같이 수송용기 표면으로부터 100 cm 떨어진 지점에서 방사선량의 경우 12 cm 두께의 중성자 차폐재를 적용하였을 경우에는 KNS-102는 79 $\mu\text{Sv/h}$, KNS-106은 74 $\mu\text{Sv/h}$, KNS-611은 93 $\mu\text{Sv/h}$ 그리고 NS-4-FR은 92 $\mu\text{Sv/h}$ 로 나타났다. 이와 같은 결과들로부터 제조된 중성자 차폐재들의 중성자 차폐능은 NS-4-FR보다 비슷하거나 보다 우수한 것으로 판단된다.

4. 결 론

1. 에폭시수지를 기본물질로 하여 제조한 중성자 차폐재, KNS-102, KNS-106 및 KNS-611은 방사선 조사선량 0.7 MGy까지는 방사선 조사선량의 증가에 따라 약간 증가하는 경향을 나타내었으며, 이러한 결과로부터 제조된 중성자 차폐재의 중성자 차폐능이 방사선 조사선량에 거의 영향을 받지 않을 것으로 판단된다.
2. 중성자 차폐재, KNS-102, KNS-106 및 KNS-611을 가압경수로 사용후핵연료 28다발을 장전할 수 있는 수송용기에 적용시 ANISN 전산코드로 해석한 결과 KNS-102와 KNS-106 중성자 차폐재는 차폐두께가 11 cm 이상, KNS-611은 12 cm 이상일 때 수송용기 표면으로부터 100 cm 거리에서 방사선량은 허용규제치인 100 $\mu\text{Sv/h}$ 이하를 만족하였다.

참 고 문 헌

1. K. A. Blakely, M. F. Gaffney and P. T. B. Shaffer, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 34, 199 (1980).
2. H. Taniuchi, T. Iida, F. Matsuda and H. Nagahama, IAEA-SM-286/135, 123 (1987).
3. H. J. Rack, S. A. Dupree and J. F. Smugeresky, SAND78-2317 (1979).
4. W. W. Engle, "ANISN-ORNL, A One Dimensional Discrete Ordinate Transport Code with Anisotropic Scattering," Oak Ridge National Laboratory, CCC-254 (1975).
5. A. G. Croff, "A User's Manual for the ORIGEN-2 Computer Code," Oak Ridge National Laboratory, ORNL/TM-7175 (1980).
6. G. W. Morrison, E. A. Stracker and R. H. Odegaaden, "CASK : 40 Group Coupled Neutron and Gamma-Ray Cross Section Data," DLC-23/Cask, (1974).
7. Technical Bulletin, Bisco Products, Inc., (1986).
8. R. R. Burn and G. R. Blessing, *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 39, 429 (1981).

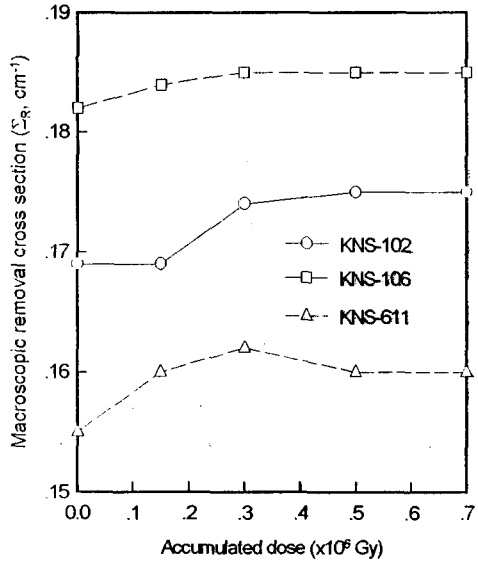


Fig. 1. Radiation-induced macroscopic removal cross section of shielding materials.

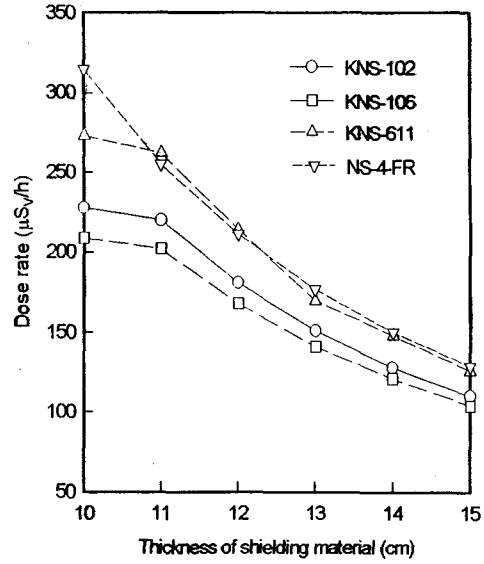


Fig. 2. Dose rates of neutron shielding materials at the cask surface, as a function of thickness.

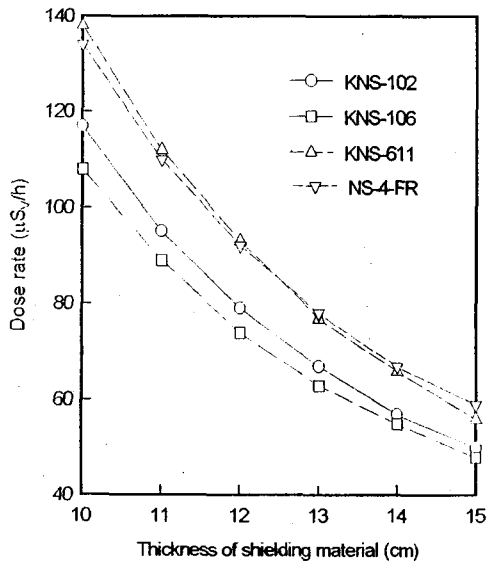


Fig. 3. Dose rates of neutron shielding materials at 100 cm from the cask surface, as a function of thickness.