

## 개질 및 수첨 Bisphenol-A형 에폭시수지 중성자 차폐재 제조 및 특성

조수행<sup>\*</sup> · 김익수 · 도재범 · 노성기 · 박현수

한국원자력연구소

(1997년 2월 21일 접수, 1997년 6월 25일 채택)

## Fabrication and Characteristics of Modified and Hydrogenated Bisphenol-A Type Epoxy Resin Based Neutron Shielding Materials

Soo-Haeng Cho<sup>\*</sup>, Ik Soo Kim, Jae-Bum Do, Seung-Gy Ro and Hyun Soo Park

Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon 305-353, Korea

(Received 21 February 1997; accepted 25 June 1997)

### 요 약

방사성물질의 수송 및 저장용기 등에 사용되는 개질 및 수첨 에폭시수지계 중성자 차폐재, KNS-201/202 및 KNS-301/302를 제조하였다. 기본물질은 수소함량이 높은 개질 및 수첨된 비스페놀 A형 에폭시수지이며, 첨가제로는 폴리프로필렌, 수산화알루미늄 및 탄화붕소이다. 이들 중성자 차폐재들은 경화전에 유동성이 좋아 방사성물질의 수송 및 저장용기와 같은 복잡한 구조에 사용할 수 있다. 개발된 중성자 차폐재들의 열적 및 역학적 성질, 내방사선성 및 중성자 차폐능 등을 평가하기 위해 여러 특성시험을 행하였다. 개발된 중성자 차폐재(수소원자수 밀도,  $6.04\text{--}6.68 \times 10^{22} \text{ atoms/cm}^3$ )들은 외국산 중성자 차폐재, NS-4-FR(수소원자수 밀도,  $6.07 \times 10^{22} \text{ atoms/cm}^3$ )보다 수소원자수 밀도가 높아 차폐능이 우수한 것으로 나타났으며, 조사된 제반 특성들은 열분해온도; 257-264 °C, 열전도도;  $0.94\text{--}1.01 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ , 열팽창계수;  $1.22\text{--}1.73 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ , 인장강도;  $2.4\text{--}3.2 \text{ kg/mm}^2$ , 압축강도;  $9.7\text{--}15.2 \text{ kg/mm}^2$ , 굴곡강도;  $5.5\text{--}6.4 \text{ kg/mm}^2$ , 거시적 제거단면적;  $0.16\text{--}0.18 \text{ cm}^{-1}$  등을 나타냈다. 전반적으로 KNS-201/202와 KNS-301/302의 관련 특성들이 NS-4-FR보다 우수한 것으로 나타났다. 또한 KNS-301/302의 내방사선성 및 중성자 차폐능이 KNS-201/202보다 우수한 것으로 나타났다.

**Abstract**—New neutron shielding materials, KNS-201/202 and KNS-301/302 have been fabricated to be used for radioactive material shipping and storage cask. The base materials are a modified and a hydrogenated bisphenol-A type epoxy resin, and polypropylene, aluminium hydroxide and boron carbide are added. These shielding materials offer good fluidity at processing, which makes it possible to form this resin shield into complicated geometric shapes such as radioactive material shipping and storage cask. Several measurements were made for the shielding materials to evaluate the thermal and mechanical properties, radiation resistance and neutron shielding ability. The neutron shielding ability of the shielding materials was revealed to be better than that of a foreign shielding material, NS-4-FR, due to higher hydrogen atomic density. Other properties of the shielding materials are as follows: onset temperatures 257-264 °C, thermal conductivities  $0.94\text{--}1.01 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ , thermal expansion coefficients  $1.22\text{--}1.73 \times 10^{-6} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ , tensile strengths  $2.4\text{--}3.2 \text{ kg/mm}^2$ , compressive strengths  $9.7\text{--}15.2 \text{ kg/mm}^2$ , flexural strengths  $5.5\text{--}6.4 \text{ kg/mm}^2$ , macroscopic removal cross section  $0.16\text{--}0.18 \text{ cm}^{-1}$ . In general, the concerned properties of KNS-201/202 and KNS-301/302 were revealed to be better than those of NS-4-FR. It is also observed that the neutron shielding ability and radiation resistance of KNS-301/302 were better than those of KNS-201/202.

**Key words:** Neutron Shielding Material, Epoxy Resin-Type Shield, Neutron Shielding Property

### 1. 서 론

방사성물질의 수송 및 저장용기, 핵연료 재처리공장, 원자로, 액체 금속로, 싸이클로트론장치 등으로부터 발생되는 중성자는 에너지가 높고 투과력이 강하며, (n, γ)반응에 의한 2차 감마선을 발생시켜 인체에 장애를 주기 때문에 중성자를 안전하게 차폐할 재료가 절실히 요망된다.

현재 물, 물과 에틸렌글리콜과 같은 혼합물이나, 콘크리트, 고분자

물질, cermet, 붕소합금, 그리고 금속수소화물 등이 사용장소 및 조건에 따라서 중성자 차폐재로서 사용되고 있다. 액상의 단독 혹은 혼합물을 중성자 차폐재로서 사용할 때는 온도상승에 따른 부피팽창을 대비한 여분의 공간이 필요하다. 이 여분의 공간은 중성자 차폐효과를 고려하여 복잡한 구조로 만들어야 하므로 방사성물질의 수송 및 저장용기의 두께 및 무게는 증가하게 되고 용기의 용량(payload)이 감소되는 단점이 있다. 이러한 중성자 차폐재들의 단점을 보완하기 위해 최근에는 고분자물질 및 cermet 등의 중성자 차폐

재들이 미국, 일본 등지에서 개발중에 있다[1-3].

고속중성자는 거의 같은 질량의 수소원자와의 충돌에 의하여 에너지가 흡수되면서 효과적으로 감속되기 때문에 수소원자 밀도가 높은 고분자물질이 기본소재로 많이 사용되고 있다. 또한 열중성자에 대한 차폐효과를 크게 하기 위하여 고분자물질의 기본소재에 열중성자 포획단면적이 큰 붕소 혹은 붕소화합물, 리튬화합물 등이 첨가되며, 또한 각종 성능향상제가 첨가되어 제조되는 중성자 차폐재는 그 종류가 매우 다양하다[4-9]. 고분자계 중성자 차폐재들은 가공성, 차폐능, 내방사선성, 열적 성질, 역학적 성질 등이 서로 다른 특성들을 가지며, 또한 제조 가격에 있어서도 차이가 많다[5-8].

기계적 및 전기적 성질, 내약품성, 내후성 및 내부식성 등이 우수한 비스페놀A형 에폭시수지와 경화제에 폴리프로필렌, 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제를 혼합하여 중성자 차폐재를 제조하여, 이들의 경화전의 유동성, 열적 및 역학적 특성, 내방사선성, 차폐능 등을 고찰하였다[10]. 그러나 본 연구에서는 열적 및 역학적 성질을 향상시키고, 특히 수소원자수 밀도를 높혀 중성자 차폐능을 향상시키기 위하여 알킬 그리시딜 에테르로 개질한 비스페놀A형 에폭시수지와 수첨된 비스페놀A형 에폭시수지를 기본물질로 한 중성자 차폐재를 제조하여, 이들의 열적 및 역학적 특성, 내방사선성, 차폐능 등을 고찰하였다.

## 2. 실험

### 2-1. 실험재료

본 실험에서 수지계 중성자 차폐재의 기본물질로는 상온 경화용 액상 에폭시수지를, 첨가제로는 고속 중성자 감속에 매우 효과적인 수소원자수 밀도가 높은 폴리프로필렌을, 난연제로는 수산화알루미늄을, 그리고 열중성자 흡수제로는 탄화붕소를 각각 사용하였다.

기본물질로 사용된 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지들은 비스페놀A형의 diglycidyl ether resin을 alkyl glycidyl ether( $R-O-CH_2CH-CH_2$ ,  $R=C_{12-14}$ )로 개질한 저점도형수지(YD-114E, 국도화학(주))이고, 비스페놀 A의 구조식에서 페닐기가 시크로헥산 고리로 된 수첨 비스페놀A형 에폭시수지(ST-3000, 국도화학(주))이다. 이들은 점도(7-11 poise, 25-40 poise at 25 °C)가 낮아 첨가제를 많이 넣을 수 있는 잇점을 가지고 있다. 경화제로는 fatty acid, polymerized acid 및 tetraethylene pentamine의 혼합물을 탈수축합에 의해 제조한 폴리아미도아민(G-A0533, 국도화학(주))과 폴리에테르디아민인 polyoxypropylenediamine(JEFFAMINE D-230)을 사용하였다. 소포제로는 BYK-Chemie GmbH의 BYK-055 및 BYK-066을 사용하였다. 중성자 차폐재의 수소원자 밀도를 증가시키기 위한 목적으로 폴리프로필렌(입자크기, 112  $\mu m$ )을 첨가하였으며, 저속 혹은 열중성자에 대한 차폐효과를 크게 하기 위하여 붕소화합물 중에서 열중성자 포획단면적이 크고, 중성자 차폐시에 고준위의 2차 방사선이나 장수명 2차 부산물을 발생시키지 않는 등 중성자 흡수제로서 이상적인 특징을 많이 갖고 있는 탄화붕소( $B_4C$ )(입자크기, 5-8  $\mu m$ )를 첨가하였다. 또한 차폐재에 유독가스를 발생시키지 않으면서, 난연성을 부여하고 자기소화성을 촉진시키는 것으로 알려져 있고, 결정수형으로 약 35%의 물을 함유하고 있어, 고속중성자를 열중성자로 감속시키는 작용을 하는 수산화알루미늄(입자크기, 21  $\mu m$ )을 첨가하였다[10].

### 2-2. 실험장치 및 방법

본 연구에 사용한 실험장치는 중성자 차폐재 제조의 기본물질인 액상 에폭시수지와 경화제, 분말형태의 폴리프로필렌, 수산화알루미늄, 탄화붕소 등의 첨가제들을 균일하게 혼합하기 위하여 Dispermat

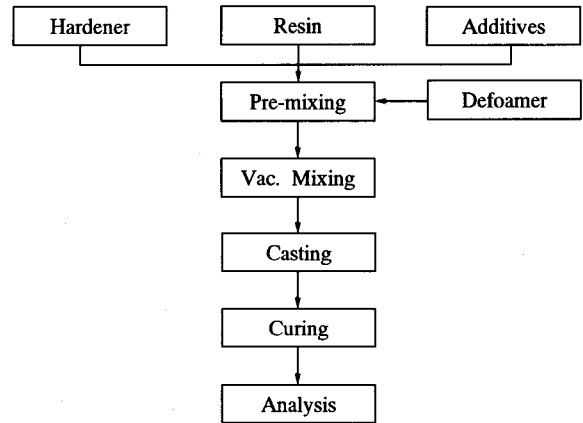


Fig. 1. Flow chart of specimen preparation.

VL-C형의 진공혼합기를 사용하였다. 혼합시의 혼합기의 내부온도는 상온, 압력은 2-4 mbar, impeller disc 속도는 60-100 rpm, 시료의 부피는 800  $cm^3$ , 혼합시간은 25-30분으로 하였다.

Fig. 1의 흐름도에서 볼 수 있듯이 혼합시에는 정해진 무게비율로 각 시료들을 준비하여 액상의 프리 폴리머인 에폭시수지와 경화제를 당량비율로 혼합한 후, 소포제와 분말시료들을 진공혼합기에 넣어 일정시간 동안 진공하에 혼합하였다. 점도가 낮은 액상 에폭시수지에 분말형의 첨가제를 넣고 혼합하면 액상과 분말의 계면에 기포들이 존재한다. 이들을 제거하기 위하여 에폭시수지의 무게비율로 0.5-1.0%의 소포제를 넣고, 진공도 2-4 mbar 내외의 진공혼합기 안에서 25-30분 동안 혼합하여 혼합물 내부의 기포를 제거하였다. 기포가 제거된 후 각종의 시편들에 액상의 혼합물을 넣고 상온에서 경화시켜서 특성시험에 알맞는 시편을 제작하였다.

본 연구에서는 고속중성자, 저속 및 열중성자의 차폐효과에 관계되는 수소원자수 밀도와 붕소원자수 밀도, 가공성의 용이성 및 중성자 차폐재의 다른 특성을 고려하여 제조된 중성자 차폐재시편의 조성비를 Table 1-1에, 화학조성비를 Table 1-2에 나타내었다.

제조된 시편에 대한 방사선 조사실험은 대단위 조사시설의 방사선원(Co-60, 86,500 Ci)에 의한 고준위 감마선조사[high intensity gamma irradiation, (HIGI)]에 의해 행하였다[11]. 시험에 사용한 조사선

Table 1-1. Composition of shielding materials

| Shielding material | Composition(wt.%) |          |               |                     |                  |
|--------------------|-------------------|----------|---------------|---------------------|------------------|
|                    | Resin             | Hardener | Additive      |                     |                  |
|                    |                   |          | Polypropylene | Al(OH) <sub>3</sub> | B <sub>4</sub> C |
| KNS-201            | 27.5              | 10.5     | —             | 59                  | 3                |
| KNS-202            | 27.5              | 10.5     | 3             | 56                  | 3                |
| KNS-301            | 27.5              | 10.5     | —             | 59                  | 3                |
| KNS-302            | 27.5              | 10.5     | 3             | 56                  | 3                |

Table 1-2. Chemical composition of shielding materials

| Element (wt.%)              | Shielding material |         |         |         |
|-----------------------------|--------------------|---------|---------|---------|
|                             | KNS-201            | KNS-202 | KNS-301 | KNS-302 |
| Carbon                      | 27.26              | 29.81   | 25.38   | 27.94   |
| Hydrogen                    | 6.03               | 6.36    | 6.64    | 6.97    |
| Nitrogen                    | 1.24               | 1.24    | 1.30    | 1.29    |
| Oxygen                      | 42.73              | 40.88   | 43.94   | 42.09   |
| Boron                       | 2.33               | 2.33    | 2.33    | 2.33    |
| Aluminum                    | 20.41              | 19.38   | 20.41   | 19.38   |
| Density(g/cm <sup>3</sup> ) | 1.676              | 1.620   | 1.658   | 1.605   |

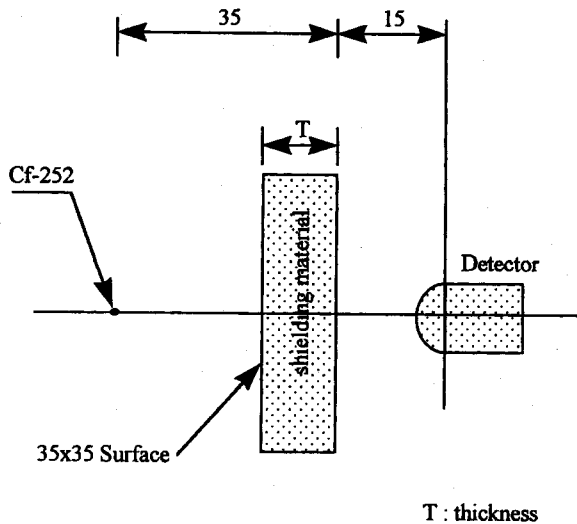


Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus(unit : cm).

량은 0.1 MGy, 0.5 Mgy 및 1.0 MGy이고, 이들은 각각 평균조사선량 5 kGy/h로 20시간, 100시간 그리고 200시간 동안 조사하여 얻었다. 방사선 조사시 조사면적의 크기에 따른 조사선량의 편차를 줄이기 위하여 100 mm(W)×360 mm(L)×80 mm(H) 크기의 상자에 시편들을 넣어 조사대 전면판과 8 cm되는 거리에 평행하게 설치하여 조사하였다. 중성자 차폐재의 차폐능시험은 자발적 핵분열 중성자선원(spontaneous fission neutron source)인 Californium-252에 의해 행해졌으며 시험을 위한 장치의 개요도는 Fig. 2와 같다. 중성자선원의 방출률은  $1.01 \times 10^9$  n/s이며, 중성자선원과 계측기 사이의 거리는 50 cm, 시편의 크기가 350 mm(W)×350 mm(H)×25 mm(T)인 중성자 차폐재와 계측기 사이의 거리는 15 cm이다.

### 2.3. 분석

중성자 차폐재의 특성시험으로 열적 시험은 열안정성시험, 열전도도시험 및 열팽창시험, 역학적 시험은 인장시험, 압축시험 및 굴곡시험을 행하였다. 열안정성시험은 ASTM E537에 따라서 시료 10-15 mg을 취하여 질소 유속 90 ml/min, 가열속도 5 °C/min, 상온에서 800 °C까지 TGA 측정을 하였다. 열전도도시험은 ISO 8894-1에 따라서 hot wire method인 QTM-500(Kyoto Electronics)에 의해 열전도도를 측정하였으며, 시편의 크기는 50 mm(W)×100 mm(L)×10 mm(T)이었다. 열팽창시험은 ASTM D696에 따라서 DuPont 2100 Thermal Analysis(TMA)에 의해 열팽창계수를 측정하였으며, 시편의 크기는 6 mm(W)×6 mm(L)×4 mm(T)이었다.

인장시험은 KS M3015에 따라서 Zwick Model 1446로 crosshead 속도를 5 mm/min로 일정하게 유지하며 인장강도를 측정하였으며, 시편은 KS M3015의 규격에 의해 제작하였다. 압축시험은 KS M3015에 따라서 Zwick Model 1446로 시험속도를 1 mm/min로 일정하게 유지하며 압축강도를 측정하였으며, 시편의 크기는 12.7 mm(W)×12.7 mm(L)×25.4 mm(T)이었다. 굴곡시험은 KS M3015에 따라서 Zwick Model 1446로 시험속도를 2 mm/min로 일정하게 유지하며 굴곡강도를 측정하였으며, 시편의 크기는 10 mm(W)×80 mm(L)×4 mm(T)이었다.

중성자 선량률은 Polyethylene 감속재로 된 9" remmeter(Eberline Co.)로 측정하였다.

원소 분석에서 수소, 탄소 및 질소 원소 분석은 CHN-1000 Elemental Analyzer(LECO Co.)로, 붕소 원소는 ICP-AES(Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometer)로 분석하였다.

Table 2. Thermal stabilities of shielding materials

| Description              | Shielding material |         |         |         |
|--------------------------|--------------------|---------|---------|---------|
|                          | KNS-201            | KNS-202 | KNS-301 | KNS-302 |
| Onset temp.(°C)          | 257                | 257     | 263     | 264     |
| Weight loss(%) at 800 °C | 46.4               | 50.7    | 50.4    | 50.6    |

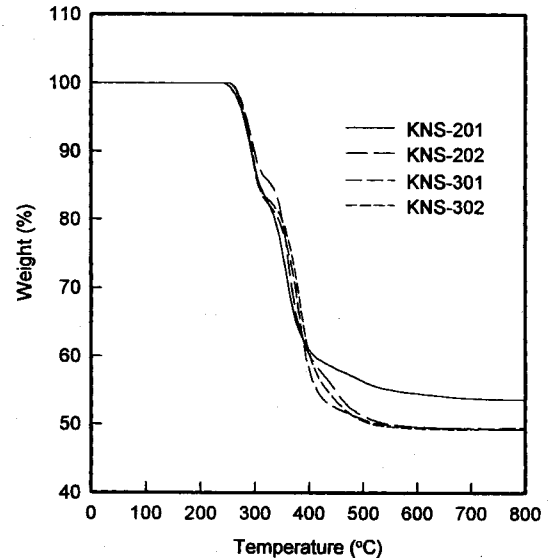


Fig. 3. TGA curves for epoxy resin based shielding materials.

## 3. 결과 및 고찰

### 3-1. 열적 특성

#### 3-1-1. 열안정성

제조된 중성자 차폐재, KNS-201/202 및 KNS-301/302 시편들의 TGA 분석결과를 Table 2와 Fig. 3에 나타내었다. Table 2에서 보는 바와 같이 중성자 차폐재 KNS-301/302가 KNS-201/202보다 열분해 온도가 높게 나타났다. 그러나 Fig. 3에서 보는 바와 같이 중성자 차폐재들의 온도에 따른 무게변화는 비슷하게 나타났지만, 특히 KNS-201의 무게변화가 제일 적게 나타났다. Table 2에서 보는 바와 같이 중성자 차폐재들의 열분해 온도는 257-264 °C로 나타났다. 이들 차폐재를 사용후 핵연료 수송용기에 적용할 경우, 정상 수송조건에서 중성자 차폐재 부분의 온도는 120 °C 전후이므로 제조된 중성자 차폐재들이 모두 열적으로 안정하다는 것을 알 수 있다. 또한 이들 열분해온도는 외국에서 개발된 차폐재들의 열분해온도와 거의 비슷하거나 보다 우수한 것으로 나타났다[10].

#### 3-1-2. 열전도도

제조된 중성자 차폐재, KNS-201/202 및 KNS-301/302 시편들의 열전도도측정 결과를 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 보는 바와 같이 KNS-201의 열전도도값이 다른 중성자 차폐재들보다 크게 나타났다. 또한 이들 중성자 차폐재들은 Table 3에서 보는 바와 같이 외국에서 사용후핵연료 수송용기에 널리 사용되는 중성자 차폐재, NS-4-FR보다 열전도도값이 크게 나타났다. 폴리프로필렌이 첨가된 KNS-202와 KNS-302의 열전도도값이 낮은 것으로 보아 폴리프로필렌[무게분율(3 wt.%)이 열전도도값에 어느정도 영향을 미치는 것으로 나타났다.

#### 3-1-3. 열치수 안정성

제조된 중성자 차폐재, KNS-201/202 및 KNS-301/302 시편들의 열팽창계수측정 결과를 Table 4에 나타내었다. Table 4에서 보는 바

Table 3. Thermal conductivities of shielding materials

| Description                    | Shielding material                                    |         |         |         |
|--------------------------------|---|---------|---------|---------|
|                                | KNS-201   | KNS-202 | KNS-301 | KNS-302 |
| Thermal conductivity (W/m · K) | 1.006   | 0.926   | 0.952   | 0.936   |
| Reference[18]                  | Bisco Products NS-4-FR(Fire Resistant Shielding):0.65 |         |         |         |

Table 4. Thermal expansion coefficients of shielding materials

| Description   | Shielding material                                    |         |         |         |
|---|---|---------|---------|---------|
|   | KNS-201   | KNS-202 | KNS-301 | KNS-302 |
| Thermal expansion coefficient ( $\times 10^{-6} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ ) (50-180 $^{\circ}\text{C}$ ) | 1.259   | 1.728   | 1.215   | 1.418   |
| Reference[18]   | Bisco Products NS-4-FR(Fire Resistant Shielding):1.97 |         |         |         |

와 같이 KNS-301의 열팽창계수값이 다른 중성자 차폐재들보다 낮게 나타났다. 이는 비스페놀 A 구조식에서 페닐기가 시크로헥산 고리로 된 수첨 비스페놀 A형 에폭시수지가 열적으로 안정한 때문으로 생각된다. Table 4에서 보는 바와 같이 폴리프로필렌이 첨가된 중성자 차폐재들의 열치수안정성이 낮게 나타났다. 또한 이들 중성자 차폐재들의 열치수안정성이 외국산 중성자 차폐재, NS-4-FR보다 우수한 것으로 나타났다.

### 3-2. 역학적 특성

제조된 중성자 차폐재인 KNS-201/202 및 KNS-301/302 시편들의 역학적 특성 시험결과를 Table 5에 나타내었다. Table 5에서 보는 바와 같이 인장강도 및 굴곡강도면에서는 KNS-201과 202이 KNS-301과 302보다 우수하고, 반면에 압축강도에서는 KNS-301과 302가 KNS-201과 202보다 우수한 것으로 나타났다. 폴리프로필렌이 첨가된 중성자 차폐재(KNS-202와 302)들의 기계적 강도가 전반적으로 낮게 나타났으며, 특히 압축강도에서는 더욱더 낮게 나타났다. 이는 폴리프로필렌의 입자크기가 수산화알루미늄과 탄화붕소보다 큰 것에 기인한 것[12]과 압축강도에서는 폴리프로필렌 자체의 압축강도가 낮은 것에 기인한 것으로 생각된다. 또한 Table 5에서 보는 바와 같이 이들 중성자 차폐재들의 역학적 성질이 전반적으로 NS-4-FR보다 우수한 것으로 나타났다.

### 3-3. 내방사선성

Table 5. Mechanical strengths of shielding materials

| Description                                | Shielding material   |         |         |         |
|--|--|---------|---------|---------|
|  | KNS-201  | KNS-202 | KNS-301 | KNS-302 |
| Tensile strength (kg/mm <sup>2</sup> )     | 3.19   | 2.76    | 2.74    | 2.44    |
| Compressive strength (kg/mm <sup>2</sup> ) | 13.16  | 9.70    | 15.22   | 10.47   |
| Flexural strength (kg/mm <sup>2</sup> )    | 6.42   | 5.86    | 6.12    | 5.51    |
| Reference[18]                              | Bisco Products NS-4-FR(Fire Resistant Shielding):<br>• Tensile strength:2.99 • Compressive strength:7.38<br>• Flexural strength:5.34 |         |         |         |

고분자물질에 방사선을 조사하면 여러 가지 원자들의 자유라디칼 혹은 여기상태의 분자가 동시 다발적으로 생성되며, 중간체를 형성하는 다단계반응과 반응물질들간에 여러 형태의 화학반응이 경쟁적으로 일어나 고분자물질의 화학구조가 변화하게 되며, 이로 인해 방사선의 조사는 고분자물질의 특성에 큰 영향을 미치게 된다. 이런 영향들을 규명하기 위하여 평균 조사선량률이 5 kGy/h인 고준위 방사선원을 사용하여 차폐재 시편에 방사선을 조사하였다. 또한 방사선조사에 의한 인장강도, 압축강도 및 굴곡강도의 시험결과 평균값의 편차는 0.7-8.6% 정도의 범위였다.

#### 3-3-1. 인장강도에 대한 영향

일반적으로 고분자에 방사선을 조사하면 주쇄(main chain)의 절단, 측쇄(side chain)의 절단 및 분해기체의 발생과 불포화결합의 생성이 경쟁적으로 일어나며, 주쇄절단으로 생긴 말단의 자유라디칼은 서로 반응하여 불균등화 또는 재결합을 하며, 측쇄절단으로 생긴 자유라디칼은 서로 반응하여 절단 혹은 가교결합을 하게 되어[13, 14] 분자의 구조가 바뀌게 된다. 따라서 방사선 조사선량이 중성자 차폐재의 인장강도에 영향을 미치게 되며, 이 결과를 Fig. 4에 나타내었다. Fig. 4에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 0.1 MGy까지 증가함에 따라, KNS-202, KNS-301 및 302 중성자 차폐재들의 인장강도는 증가하다가, 0.1 MGy 이상에서는 조사선량의 증가에 따라 인장강도가 감소하는 경향을 나타내었다. 이와 같이 방사선 조사선량의 증가에 따라 초기의 인장강도값이 증가하는 이유는 주쇄의 절단보다는 측쇄에 생긴 자유라디칼간의 결합이 우세하여 인장강도가 큰 망상구조를 이루는 가교결합수가 증가하기 때문으로 해석할 수 있으며[15], 또한 수지계와 분말형의 무기물질과의 계면에서 발생하는 내부응력이 사슬(chain)절단으로 완화된 것에 기인한 것으로 생각된다[16]. 그러나 방사선 조사선량이 0.1 MGy 이상에서는 측쇄가 교결합에 의한 인장강도의 증가효과보다는 주쇄라디칼이 첨가제에 의해 재결합을 하지 않고 불균등화반응으로 절단되는 반응이 활발해져 인장강도가 감소하는 것으로 생각된다. 또한 KNS-201은 다른 중성자 차폐재들보다 인장강도가 크게 감소하는 것으로 나타났다. 한편으로 폴리프로필렌이 함유된 KNS-202 및 KNS-302 차폐재들의 인장강도의 증가폭은 크게, 감소폭은 낮게 나타났다. 이는 방사선 조사선량이 0.1 MGy 이하에서는 폴리프로필렌과 에폭시수지와 가교결합이 활발하나 그 이상에서는 폴리프로필렌이 가교결합보다

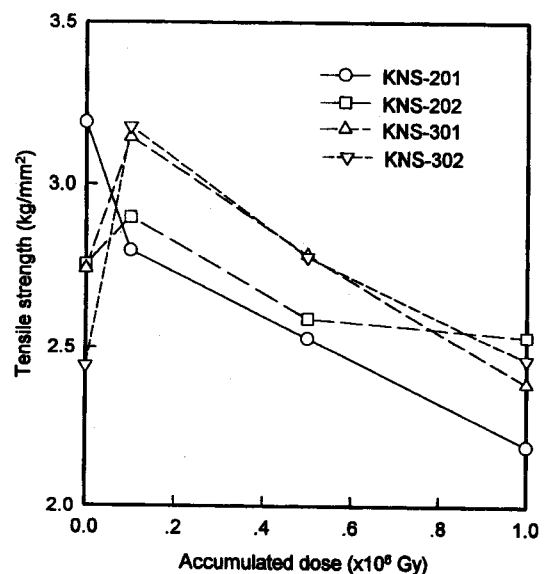


Fig. 4. Radiation-induced tensile strength of shielding materials.

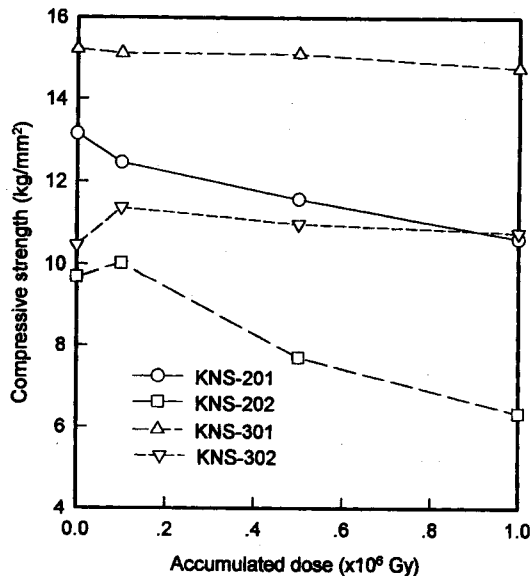


Fig. 5. Radiation-induced compressive strength of shielding materials.

는 절단반응이 우세한 것에도 기인한 것으로 생각된다[17].

### 3-3-2. 압축강도에 대한 영향

방사선 조사선량이 중성자 차폐재의 압축강도에 미치는 영향을 Fig. 5에 나타내었다. Fig. 5에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 0.1 MGy까지 증가함에 따라 KNS-202 및 KNS-302 차폐재들의 압축강도는 증가하는 경향을 나타내었으나, 0.1 MGy 이상에서는 KNS-302가 변화폭이 거의 없는 반면에 KNS-202는 감소하는 경향을 나타내었다. 0.1 MGy까지 압축강도가 증가하는 것은 에폭시수지와 폴리프로필렌과의 가교결합을 하는 등 조사선량의 증가에 따라 가교결합수가 많아져 압축강도가 증가하는 것으로 판단된다. 수첨된 에폭시수지의 중성자 차폐재인 KNS-301의 압축강도는 방사선 조사선량에 거의 영향을 받지 않는 것으로 나타났지만, alkyl glycidyl ether로 개질된 에폭시수지 중성자 차폐재인 KNS-201은 방사선 조사선량의 증가에 따라 압축강도가 감소하는 것으로 나타났다.

### 3-3-3. 굴곡강도에 대한 영향

방사선 조사선량이 중성자 차폐재의 굴곡강도에 미치는 영향을

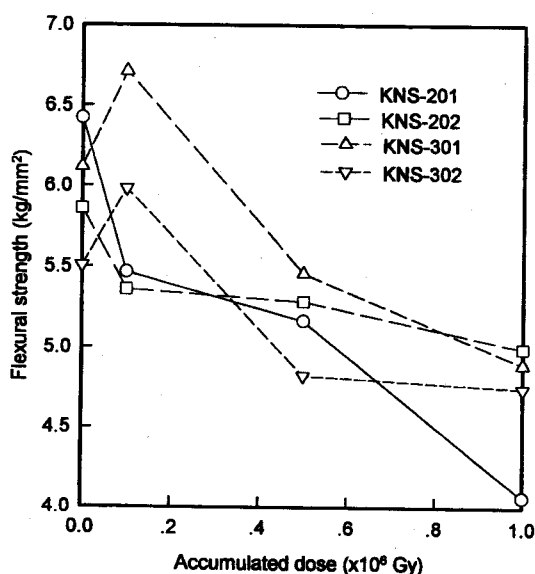


Fig. 6. Radiation-induced flexural strength of shielding materials.

Table 6. Atomic densities of shielding materials

| Shielding material | Atomic density( $\times 10^{22}$ atoms/cm <sup>3</sup> ) |          |          |        |       |          |
|--------------------|--|----------|----------|--------|-------|----------|
|                    | Carbon   | Hydrogen | Nitrogen | Oxygen | Boron | Aluminum |
| KNS-201            | 2.291  | 6.042    | 0.089    | 2.696  | 0.217 | 0.764    |
| KNS-202            | 2.422  | 6.157    | 0.086    | 2.493  | 0.210 | 0.701    |
| KNS-301            | 2.111  | 6.576    | 0.092    | 2.742  | 0.215 | 0.756    |
| KNS-302            | 2.249  | 6.681    | 0.089    | 2.543  | 0.208 | 0.694    |

Reference Bisco Products NS-4-FR(Fire Resistant Shielding):  
[18] • Hydrogen atomic density:  $6.07 \times 10^{22}$  atoms/cm<sup>3</sup>

Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에서 보는 바와 같이 방사선 조사선량이 0.1 MGy까지 증가함에 따라 KNS-301과 302 차폐재들의 굴곡강도가 증가하다가, 0.1 MGy 이상에서는 감소하는 경향을 나타내었으나, KNS-201과 202는 방사선 조사선량의 증가에 따라 감소하는 경향을 나타내었다.

## 3-4. 중성자 차폐능

### 3-4-1. 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 6은 중성자 차폐재, KNS-201과 202 및 KNS-301과 302의 원자수 밀도를 나타낸 것이며, 이는 Table 1-2의 중성자 차폐재의 화학조성비와 "Reactor Physics Constants"(ANL-5800)의 자료를 사용하여 계산한 결과를 나타낸 것이다. Table 6에서 보는 바와 같이 이들 중성자 차폐재들의 수소원자수 밀도는 외국산 중성자 차폐재, NS-4-FR 보다 높게 나타났다.

### 3-4-2. 거시적 제거단면적

중성자 차폐능시험 결과를 Table 7에 나타내었다. Table 7에서 보는 바와 같이 수소원자수 밀도가 높은 KNS-301의 거시적 제거단면적( $\Sigma_R$ )이 KNS-201보다 크게 나타났다. 이는 수소원자수 밀도가 중성자 차폐능에 영향을 미치는 주요한 인자임을 알 수 있다. 또한 Table 7에서 보는 바와 같이 외국산 중성자 차폐재인 NS-4-FR보다 높게 나타났다. 여기서 거시적 제거단면적(macroscopic removal cross section)은 중성자 차폐재의 차폐성능을 나타내는 단면적으로서 차폐재 단위 두께 1cm에서 중성자의 모든 핵반응확률이라는 물리적 의미를 갖는다. 중성자 차폐재의 거시적 제거단면적은 유효 선량당량률의 감소율로서 다음 식 (1)에 의해 산출하였다[4].

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

여기서,  $D_0$ : 선원과 계측기 사이에 차폐재가 없을 때의 중성자 선

Table 7. Macroscopic removal cross section of shielding materials

| Description   | Shielding material |         |
|---|--------------------|---------|
|   | KNS-201            | KNS-301 |
| Neutron energy, E(MeV)  | 0.524              | 0.524   |
| Shield thickness, T(cm)   | 2.5                | 2.5     |
| Source to detector distance(cm)                                   | 50                 | 50      |
| Source to shield distance(cm)                                     | 35                 | 35      |
| Attenuated( $D_0$ )/Unattenuated( $D_0$ )                         | 0.6629             | 0.6337  |
| Macroscopic removal cross section, $\Sigma_R$ (cm <sup>-1</sup> ) | 0.16               | 0.18    |

Reference[18] Bisco Products NS-4-FR(Fire Resistant Shielding):  
• Neutron energy: 1.1 MeV  
• Macroscopic removal cross section:  $0.13 \text{ cm}^{-1}$

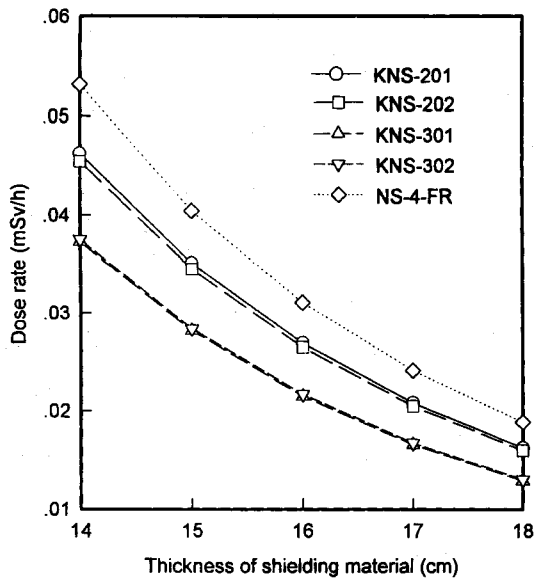


Fig. 7. Dose rates of neutron shielding materials at the cask surface, as a function of thickness.

량 당량률(mrem/h)

$D_i$ : 선원과 계측기 사이에 차폐재가 있을 때의 중성자 선

량 당량률(mrem/h)

$\Sigma_R$ : 거시적 제거단면적( $\text{cm}^{-1}$ )

T: 중성자 차폐재 두께(cm)

#### 3.4.3. 수송용기에 대한 차폐해석

중성자 차폐재, KNS-201과 202 및 KNS-301과 302를 가압경수로 사용후핵연료 28다발을 장전할 수 있는 수송용기에 사용할 경우의 차폐해석 결과를 Fig. 7과 8에 나타내었다. 차폐해석은 수송용기의 정상수송조건에서 수행하였으며 수송용기는 사용후핵연료를 전용 적재하는 것으로 하고 내부 장전통은 물이 없는 공냉식인 것으로 하였다. 수송용기의 반경방향의 최대 방사선량률을 1 차원 차폐계산코드인 ANISN 코드로 수송용기의 옆표면과 옆표면으로부터 2m 지점에서의 중성자 선량률을 계산하였다. Fig. 7과 8에서 보는 바와 같이

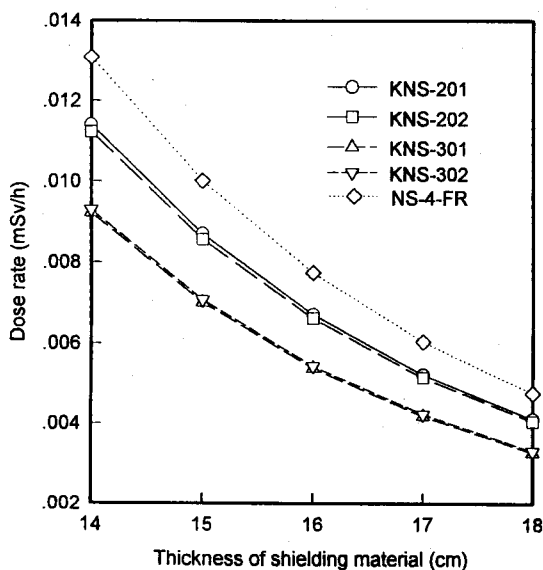


Fig. 8. Dose rates of neutron shielding materials at 2 m from the cask surface, as a function of thickness.

수소원자수 밀도가 높은 중성자 차폐재인 KNS-301과 302의 중성자 선량률은 KNS-201과 202 및 NS-4-FR의 중성자 선량률보다 낮게 나타났다.

## 4. 결 론

중성자 차폐재 제조 및 특성시험 결과로 얻은 결론은 다음과 같다.

(1) 개질 및 수첨된 비스페놀-A형 에폭시수지계 중성자 차폐재는 열적 및 역학적 특성 측면에서 외국산 차폐재보다 우수한 것으로 나타났다.

(2) 개질 및 수첨된 비스페놀-A형 에폭시수지계 중성자 차폐재는 수소원자수 밀도가 외국산 차폐재보다 크게 나타나 중성자 차폐능이 우수한 것으로 나타났다.

(3) 수첨된 비스페놀-A형 에폭시수지계 중성자 차폐재인 KNS-301과 302는 알킬 그리시딜 에테르로 개질한 비스페놀-A형 에폭시수지계 중성자 차폐재인 KNS-201과 202보다 열적 및 역학적 특성이 우수한 것으로 나타났으며, 특히 내방사선성 특성과 중성자 차폐능 특성에서는 더욱더 우수한 것으로 나타났다.

## 참고문헌

- Aleksander, J. P. and Ilhan, A. A.: *J. Am. Ceram. Soc.*, **72**(5), 775 (1989).
- Blakely, K. A., Gaffney, M. F. and Shaffer, P. T. B.: *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **34**, 199(1980).
- Rack, H. J., Dupree, S. A. and Smugeresky, J. F.: SAND78-2317, 1979.
- Taniuchi, H., Iida, T., Matsuda, F. and Nagahama, H.: IAEA-SM-286/135, 123(1987).
- Dickson, L. W.: AECL-9556(1988).
- Iida, T., Taniuchi, H. and Fujisawa, K.: *RAMTRANS*, **2**, 79(1991).
- Saunders, C. B., Dickson, L. W. and Singh, A.: AECL-9084(1987).
- Wilski, H.: *Radiat. Phys. Chem.*, **29**, 1(1987).
- Morita, Y., Hagiwara, M. and Kasai, N.: *J. Appl. Polym. Sci.*, **27**, 3569(1982).
- Cho, S. H., Do, J. B., Ro, S. G. and Do, C. H.: *J. of Korean Ind. & Eng. Chemistry*, **7**(3), 597(1996).
- Cho, S. H., Oh, S. C., Do, J. B., Shim, J. S. and Kang, Y.: *HWA-HAK KONGHAK*, **34**(2), 237(1996).
- Ferrigno, T. H.: "Handbook of Fillers and Reinforcements for Plastics", ed. Katz, H. S. and Milewski, J. V., Van Nostrand Reinhold Company, New York, 11(1978).
- Sisman, O. and Parkinson, W. W.: "Engineering Compendium on Radiation Shielding", Vol. II Shielding Materials, Jaeger, R. G., and Hoenig, A. eds., Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York, 294 (1975).
- Silicone and Its Application, Japan Toshiba, Co. Ltd., 1988.
- Burn, R. R. and Blessing, G. R.: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, **39**, 429 (1981).
- Seo, K. S., Fornes, R. E., Memory, J. D. and Gilbert, R. D.: *Polymer Preprints*, **28**(1), 313(1987).
- Wolf, K. W., Memory, J. D., Gilbert, R. D. and Fornes, R. E.: *J. Appl. Phys.*, **54**(10), 5558(1983).
- Technical Bulletin, Bisco Products, Inc., 1986.