

2002 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

중성자 차폐용 중수소화 금속 재료 개발
**A Study on Development of Heavy Metallic Hydrides for Neutron
Shielding Application**

구 민, 김 용 수

한양대학교
서울특별시 성동구 행당동 17번지

유 병 규

원광보건전문대학
전북 익산시 신용동 344-2

신 희 성

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

본 연구에서는 고속 중성자 조사에 따른 원자로 용기의 조사 손상을 완화시키고 기계적 건전성을 확보할 수 있는 한 방안으로써 중수소화 금속 차폐재 개발 기초 연구를 수행하였다. 먼저 후보 수소화 금속을 선정하고 MCNP 코드 평가와 Cf-252 중성자 선원을 이용한 기초 실험을 수행하였다. 수소화 금속의 차폐재로서의 평가는 중성자를 흡수해 소멸시키지 않으면서 조사 손상을 일으키는 에너지를 얼마나 원활하게 낮추느냐 이므로 여기에 새로운 Z값을 도입하여 이를 통하여 평가토록 하였다. 그 결과 이 연구를 통해 가장 효율적인 노내 중성자 차폐재로서 ZrD₂와 TiD₂가 선정되었다.

Abstract

Mitigation of fast neutron irradiation damage on reactor vessel and improvement of mechanical integrity are desired for the successful plant life-time extension. In this study, the performance of metallic hydride for this application is

reviewed and compared. First, selected prospective metallic hydrides are evaluated by MCNP code and put into the attenuation test using Cf-252 neutron source. Since for the reactor application high moderation and reflection with no absorption are favored, Z factor is introduced for the evaluation. According to the Z value estimation ZrD_2 and TiD_2 are turned out to be the most favorable fast neutron shielding materials. More thorough evaluation by computer simulation and experimentally, will be followed.

I. 서론

방사선으로부터의 환경보호와 방사선장 저감화에 대한 국제적 추세에 따라 우리나라도 ICRP-60의 권고를 받아들여 '고시 제 98-12'에 의해 2003년부터는 '연간 50mSv를 넘지 않는 범위에서 5년간 100mSv 이하'로 규제하기로 결정하였다. 따라서 우리나라도 작업자를 포함한 원전 주위 환경의 방사선 노출의 최소화하고 유도 방사선을 줄이며 방출된 방사선을 안전하고 신속하게 처리/처분할 수 있는 방사선 저감화 연구 및 기술 개발이 시급하게 요구되고 있다.

일차적 저감화 기술개발의 대상은 원자로 노심에서 방출되는 고속 중성자와 감마선이다. 고속중성자는 원자로의 수명을 결정하는 압력용기의 건전성을 떨어뜨리는 주요 원인으로 고속중성자에 대한 방사선 저감화는 전세계적으로 원전의 노후화에 따른 원전수명 연장 연구의 주요 핵심 중의 하나로 떠오르고 있다. 또한 핵분열 반응과정에 수반되어 발생하는 고에너지 감마선은 1차 계통 주위의 방사선 준위를 결정하게 되어 작업자들의 피폭 등 작업환경 뿐만 아니라 원전의 방사선 환경에도 결정적인 영향을 미친다. 따라서 이들 고에너지 방사선 선원들의 수송 능력 평가와 함께 이들에 의한 방사선 준위를 실질적으로 낮출 수 있는 저감화 재료 기술개발이 크게 요구된다.

일반적으로 감마선의 차폐에는 원자량이 무거운 금속이 적당한 반면 고속 중성자의 차폐에는 원자량이 낮은 원소를 많이 함유한 금속이 가장 적합하다. 따라서 고에너지 감마선의 차폐재는 이미 납이나 감손 우라늄 등이 이미 개발되어 사용되고 있으며 고속 중성자 차폐의 경우 사용후 핵연료 저장시설과 같이 중성자의 흡수 상실이 문제가 되지 않는 경우는 보론 함유 금속을, 원자로 내에서와 같이 고속 에너지의 감쇄만이 바람직한 경우는 수소화 금속이 바람직한 재료로 알려져 있다. 그러나 고속 중성자의 차폐를 위한 이들 금속에 관한 개발 연구는 아직도 학술적인 범위 내에 머무르고 있는 실정이다. 따라서 원전수명 연장 등에 직접 활용될 수 있는 고속 중성자 차폐재의 개발과 상용하는 방사선 안전 신기술 개발과 확립에 큰 기여를 할 것으로 기대된다.

본 연구에서는 고속 중성자 조사에 따른 원자로 용기의 조사 손상을 완화시키고 기

계적 건전성을 확보할 수 있는 한 방안으로써 중수소화 금속 차폐재 개발 기초 연구를 수행하였다.

II. 실험방법

가. 예비 평가

본격적인 수소화 금속의 개발을 목적으로 한 연구를 수행하기에 앞서 다양한 수소화 금속을 이론적으로 검토하고 연구개발 방향을 설정하기 위해 예비 평가를 수행하였다. 먼저 여러 수소화 안정 금속들을 대상으로 핵적 특성, 단위 부피당 수소 원자 함유 수 등을 평가해 예비 수소화 금속을 ZrH_2 , TiH_2 , HfH_2 의 세가지로 압축하고 구체적인 평가를 수행하였는데 낮은 중성자 흡수 단면적과 높은 에너지 감쇄 능력을 고려해 이론적 검토 비교평가에 중수소화금속을 추가시켰다. 표 1에 ZrD_2/ZrH_2 , TiD_2/TiH_2 , HfH_2 수소화 금속들의 흡수 단면적과 에너지 감소율을 이론적 계산을 통해 비교 검토한 결과를 수록하였다. 각 수소화 금속은 H_2O 와 비교함으로써 1차계통 내에서 차폐재로서의 효용 가치를 볼 수 있었다. 표 1에서 알 수 있듯이 수소 함유 밀도에 있어서 TiD_2/TiH_2 가 상대적 우위를 보이거나 흡수 단면적에 있어서는 ZrD_2/ZrH_2 가 더욱 나은 결과를 보이고 있으며 에너지 감소율에 있어선 비슷한 값을 보였다. 또한 각 평가면에서 중수소 함유 금속 즉, TiD_2 , ZrD_2 이 우위를 보임에 따라 중수소 함유 금속물 개발의 필요성을 확인하게 되었다.

나. MCNP 코드 평가

본격적인 실험에 앞서 예비수소화금속들을 대상으로 Monte Carlo Simulation 전산코드인 MCNP 코드를 이용하여 각각의 흡수율과 에너지 감소율을 평가하였다. 전산 모사 계산과 실험과의 비교 평가를 위해 실험과 동일한 조건의 모사를 수행하였다. 즉, 중성자 선원은 Cf-252 (10 mCi)을 사용하였으며 각 수소화 금속의 0, 1, 3, 5 cm 두께를 통과한 중성자속의 강도와 에너지별 분포 변화를 계산하였다 (그림 1 실험장치 참조). 코드 계산을 통해 평가된 TiH_2/TiD_2 , ZrH_2/ZrD_2 수소화 금속에 대한 중성자 감소율은 그림 2에서 볼 수 있듯이 각 수소화 금속 두께의 증가에 따라 중성자 감소율이 지수적으로 증가함을 보이며 예상한 대로 이때 중수소 함유 금속, TiD_2 과 ZrD_2 은 중성자 흡수에 있어 TiH_2 와 ZrH_2 각각 보다 적게 나타나고 있음을 알 수 있다. 또한 각 금속 재료의 두께 5 cm에서의 중성자 에너지 분포 비교를 통하여, 비록 좀더 다양한 모사 평가가 필요하다고 판단되지만 이제까지의 결과로 볼 때, 중수소 함유 금속이 에너지 감소면에서 효과적임을 알 수 있었으며 이는 그림 3에 나타내었다.

여기서 수소함유 중성자 차폐재 평가에 있어 더욱 효율적인 비교를 위한 다음의 Z 값을 도입하였다. Z값은 다음의 식을 통하여 계산되며 다음 식은 수소화 차폐재를 통과하기 전후의 중

성자 개수의 차와 에너지 변화값의 비교를 나타내고 있다.

$$Z = \left(\frac{\Delta I}{I_0} \right) / \left(\frac{\Delta IE}{I_0 E_0} \right)$$

이 때 Z 값의 분자인 $\Delta I/I_0$ 는 중성자가 매질을 통과한 후 흡수되어 사라지는 분율을, 분모 $\Delta(IE)/I_0 E_0$ 는 매질 통과에 따른 총 에너지의 감소를 나타내게 된다. 수소화 금속의 차폐재로서의 평가는 중성자를 흡수해 소멸시키지 않으면서 조사 손상을 일으키는 에너지를 얼마나 원활하게 낮추느냐 이므로 결국 수소함유 중성자 차폐재 평가에 있어 Z 값이 작을수록 더욱 효과적임을 알 수 있다. MCNP 코드 계산 결과 Z 값은 그림 4에 나타내었다. 그림 4에서 볼 수 있듯이 중수소 함유 금속, TiD_2 와 ZrD_2 가 수소함유 금속, TiH_2 와 ZrH_2 에 비해 더욱 효과적인 것을 알 수 있다.

다. 실험적 평가

예비 평가와 MCNP 코드 계산을 통하여 TiD_2 와 ZrD_2 중성자 차폐재가 다른 금속 차폐재에 비하여 효과적임을 확인할 수 있었다. 이를 실험적으로 확인하고 이를 통하여 최종적인 고속 중성자 차폐재의 개발을 위한 실용적 평가를 위해 다음의 실험을 수행하였다. 이 실험에서는 중수소화금속을 구할 수 없으므로 TiH_2 , HfH_2 , ZrH_2 수소화 금속의 차폐 능력을 실험적으로 평가하여 이전의 MCNP 코드 계산과 비교하고 이를 바탕으로 중수소화금속의 성능을 평가하고자 하였다.

(1) 실험절차

그림 1의 개략도에서 볼 수 있듯이 중성자 선원에서 발생하는 중성자를 TiH_2 , HfH_2 , ZrH_2 수소화 금속 분말을 통과시킨 후 이를 MCA (Multi-Channel Analysis)를 통하여 계측함으로써 차폐재의 특성을 평가하도록 하였다. 먼저 수소화 분말을 담아 중성자 선원에 넣을 수 있는 그림 5 (a)와 같은 시험용기를 금속 분말 15.7cc 정도까지 담을 수 있도록 제작하였다. 중성자 선원으로 Cf-252 (10 mCi)를 사용하였으며 TiH_2 , HfH_2 , ZrH_2 수소화 금속 분말을 높이 0, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 cm 간격으로 늘려가며 측정하였다.

조사시간은 각각에 대하여 300초로 하였으며 실험 장치 사진은 그림 5에 나타내었다. 실험절차를 간략히 하기 위하여 실험 전 각 금속 분말을 각각의 시험용기에 넣어 1cm당 g값을 측정하여 g값만으로 높이를 늘려갈 수 있도록 하였으며 이 과정에서의 오차는 실험적 오차로 간주

하였다.

III. 결과 및 토의

MCA(Multi-Channel Analysis)를 통하여 측정된 각각의 수소화 금속 분말의 중성자 흡수율 비교는 그림 2에 나타내었다. 결과에서 볼 수 있듯이 HfH₂는 이론적 평가 결과와 마찬가지로 TiH₂와 ZrH₂ 보다 중성자 흡수율이 훨씬 크게 나타났으며 전체적으로 모든 금속 분말의 두께 증가에 따라 MCA 장치에 흡수된 중성자는 지수적으로 감소함을 볼 수 있었다. 이들 결과는 거의 유사한 경향을 보임을 알 수 있는데 특히 TiH₂와 ZrH₂ 수소화 금속은 실험값과 MCNP 코드 계산값이 유사하게 나타남을 볼 수 있었다.

이에 앞서 실험값과 MCNP 코드 계산 값을 비교하는 과정에 있어 이론적 밀도값으로 계산한 MCNP 코드 계산 값과의 보정이 필요하였다. 따라서 밀도적 차이에 의한 보정은 다음의 계산 방법을 통하여 유도하였다.

$$\frac{I_t}{I_0} = e^{-\Sigma_t x} = e^{-N_t s x}$$
$$\frac{I_e}{I_0} = e^{-\Sigma_e x} = e^{-N_e s x}$$

여기서,

$$I_t = \text{Theoretical intensity}$$

$$I_e = \text{Experimental intensity}$$

두 식을 나누어 양변에 로그를 취하면

$$\frac{I_t}{I_0} = \left(\frac{I_e}{I_0} \right)^{\frac{N_t}{N_e}}$$

$$N = \frac{rN_A}{M} \quad \text{이므로}$$

따라서

$$\frac{I_t}{I_0} = \left(\frac{I_e}{I_0} \right)^{\frac{r_t}{r_e}}$$

결과적으로 이론적 평가와 마찬가지로 ZrH_2 가 TiH_2 에 비하여 중성자 흡수율이 작다는 사실을 확인할 수 있었다. 따라서 중성자 흡수면으로 본다면 ZrH_2 가 가장 효과적이라고 볼 수 있다. 그러나 중성자 에너지 감량적 면에서는 오히려 TiH_2 가 ZrH_2 에 비하여 약간 더 효과적인 것으로 나타났으므로 앞으로의 좀 더 철저한 중성자 에너지 분포 평가를 통하여 최종적인 결과를 도출 할 수 있으리라 본다.

IV. 결 론

이 연구에서는 고속중성자 차폐와 고에너지 중성자 조사에 따른 원자로 용기의 조사 손상을 완화시키고 기계적 건전성을 확보할 수 있는 한 방안으로써 수소화 금속 개발 기반 연구를 수행하였다. 본격적인 수소화 금속 개발을 위해 후보 수소화 금속을 선정하고 MCNP 코드 평가와 Cf-252 중성자 선원을 이용한 직접적 실험을 수행하였다. 이 연구를 통해 가장 효율적인 노내 중성자 차폐재로서 ZrD_2 와 TiD_2 가 선정되었다. 추후 연구는 얇은 박막 금속 시편을 이용한 activation 연구를 통해 좀 더 Z값을 철저히 평가한 후 최종 후보 수소화 금속을 선정할 계획이다. 이 연구를 통해 소개되는 중수소화 금속의 특성 평가 결과는 과학기술적으로도 많은 인용과 함께 학술적 연구에서 뿐만 아니라 실제 실용화를 위한 연구의 기초자료로서 충분히 활용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 2001년 한국과학재단에서 지원한 방사선 안전 신기술 연구 센터의 지원을 받아 수행한 연구 결과의 일부입니다.

참고문헌

- 1) IAEA, State of the Art Technology for Decontamination and Dismantling of Nuclear Facilities, Technical Reports Series No. 395 (1999)
- 2) Donald R. Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, Technical Information Center Energy Research and Development Administration, 1976.
- 3) C.H.P. Lupis, "Chemical Thermodynamics of Materials," Prentice Hall, 1993.
- 4) M. W. Chase et al, "JANAF Thermochemical Tables Third Edition Part I, Al-Co," Journal of Physical and Chemical Reference Data Vol. 14, 1985.
- 5) Y. S. Tang, and J. H. Saling, "Radioactive Waste Management," Hemisphere Publishing Co., 1990.

표 1. 수소화 금속의 이론적 평가 비교

	ZrD ₂	ZrH ₂	TiD ₂	TiH ₂	HfH ₂	H ₂ O
N_i/N_{H_2O}	1.08	1.08	1.41	1.41	1.19	1.00
$\Sigma_{a,i}/\Sigma_{a,H_2O}$	0.309	1.39	1.2	2.61	933	1.00
\mathbf{x}_{tot}^*	1.516	1.219	1.531	1.234	1.207	1.319

$$\mathbf{x}_{tot}^* = \frac{\Sigma_{S,M}}{\Sigma_{tot}} \mathbf{x}_M + \frac{2\Sigma_{S,H\ or\ D}}{\Sigma_{tot}} \mathbf{x}_{H\ or\ D}$$

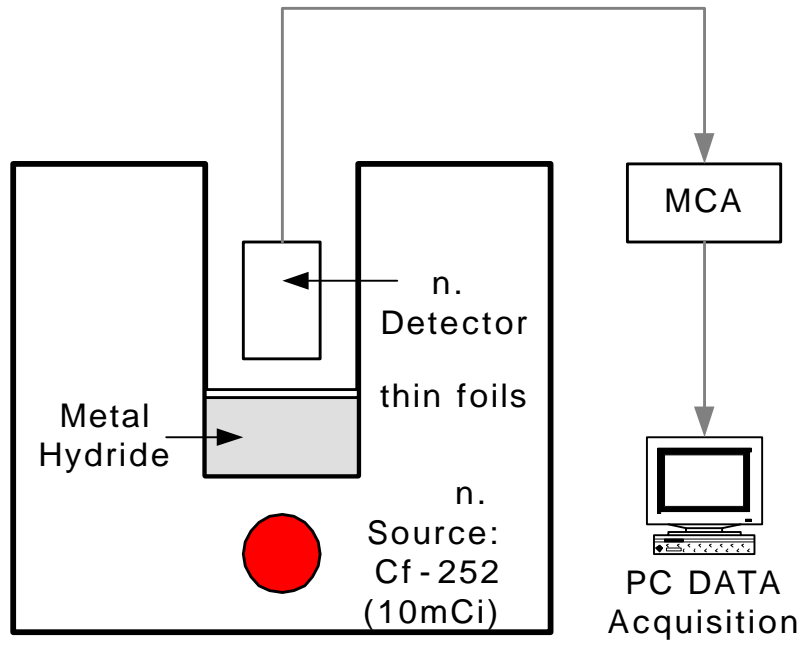


그림 1. 실험장치의 개략도

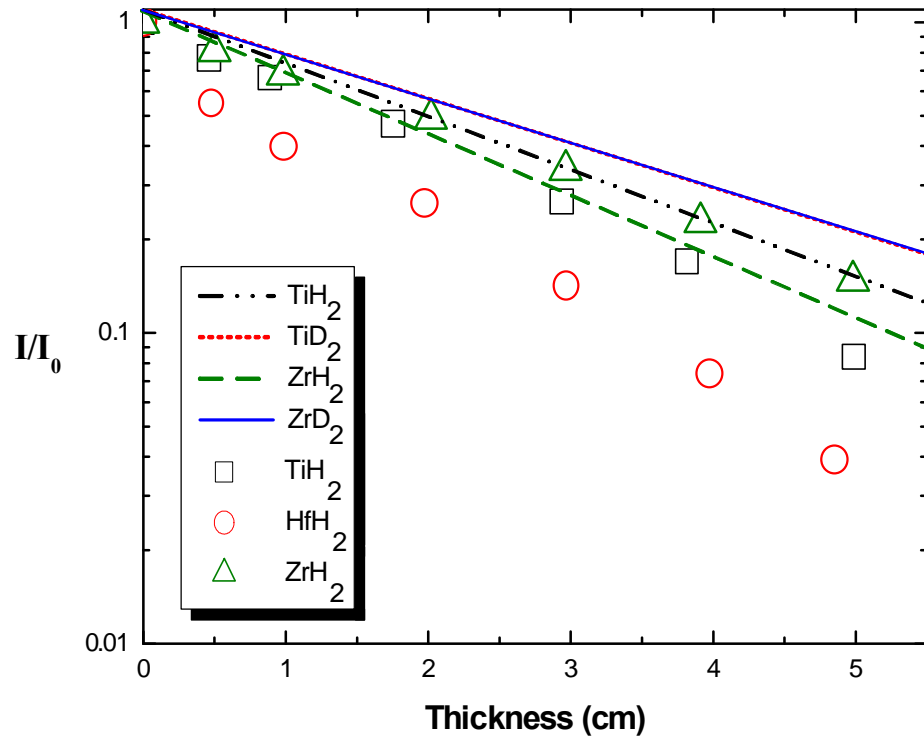


그림 2. MCNP 계산과 실험에 의한 수소화 금속의 두께에 따른 중성자 흡수율 비교

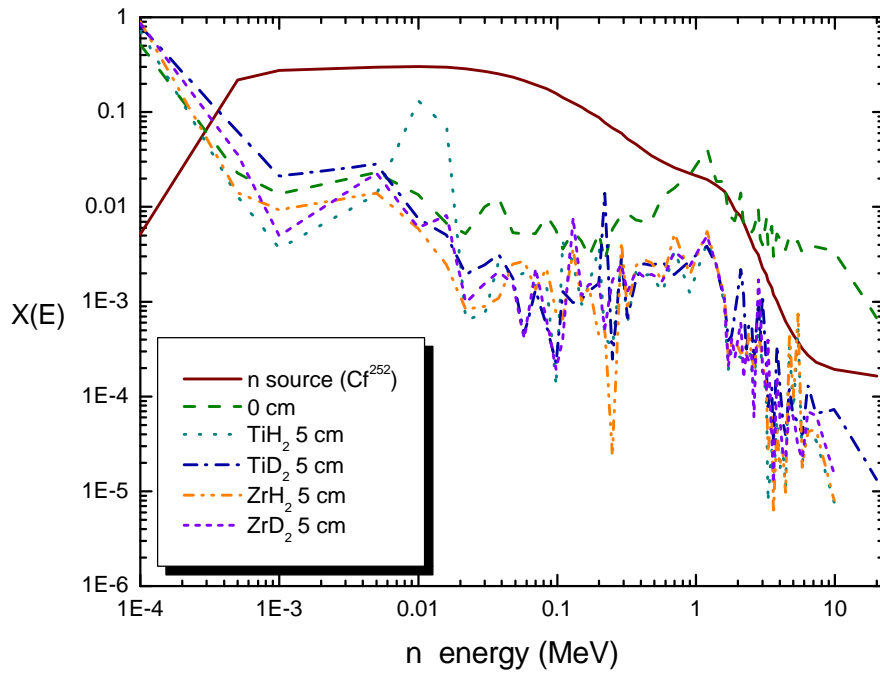


그림 3. MCNP 계산에 의한 중성자 에너지 분포 변화

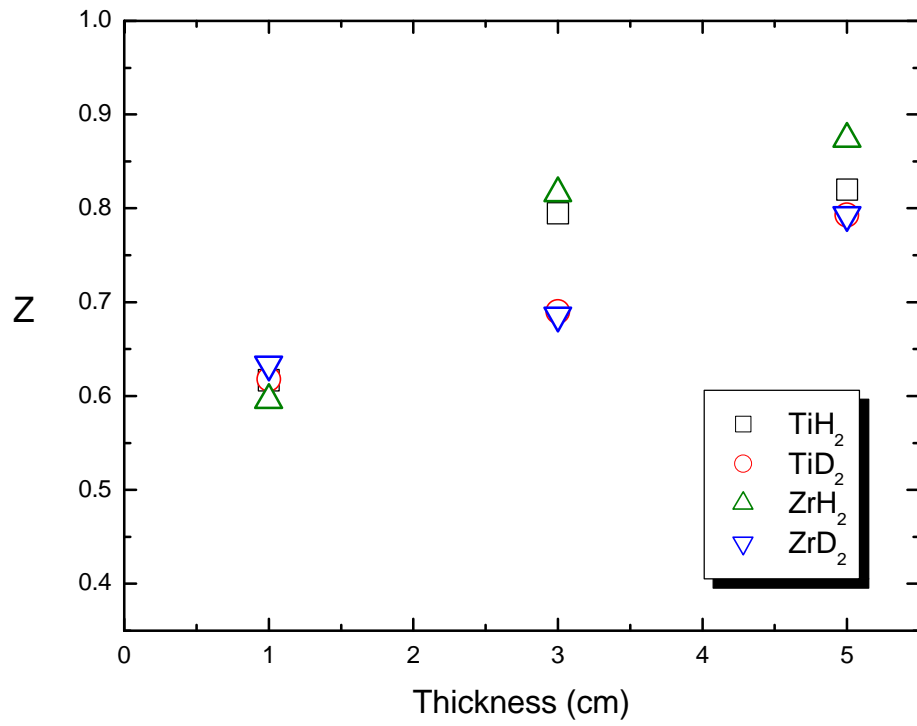


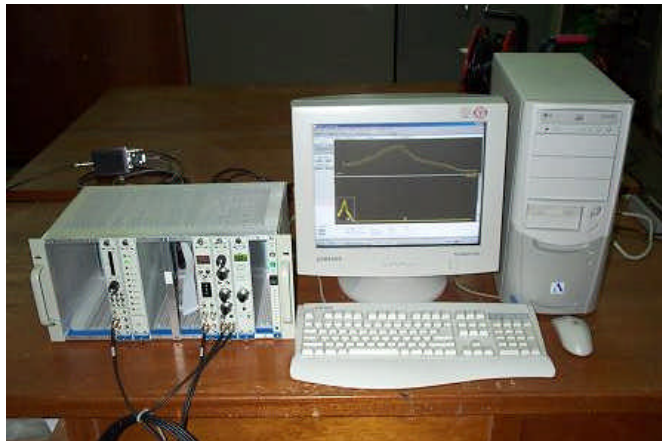
그림 4. 여러 수소화 금속의 Z값



(a)



(b)



(c)

그림 5. (a) 시험용기, (b) 중성자 선원에 조사중인 시험용기,
(c) MCA (Multi-Channel Analysis) 장치