

PGNAA용 ^6LiF 열중성자 차폐체 개발

Development of ^6LiF Thermal Neutron Shield for PGNAA

김명섭 · 변수현* · 박지연 · 홍계원 · 최희동* · 전병진

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150
*서울대학교
서울특별시 관악구 신림동 산 56-1

요 약

한국원자력연구소 하나로의 즉발 감마 중성자 방사화 분석 장치에서 HPGe 감마선 계측기의 중성자 차폐체로 사용될 ^6LiF 타일을 개발하였다. $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 분말과 불산과의 반응을 이용하여 ^6LiF 분말을 얻었으며, 수율은 이론값의 86%였다. 유독한 LiF 분말을 안정한 타일로 제조하기 위해 ^6Li 가 자연 존재비로 함유된 LiF 분말을 이용하여 최적의 타일 소결 공정을 개발하였다. 소결 온도는 $720\text{ }^\circ\text{C}$ 이며, 온도 상승률은 $120\text{ }^\circ\text{C/h}$ 였다. ^6LiF 타일 제작시에는 가열 온도 $500\text{ }^\circ\text{C}$ 의 사전 열처리 공정을 추가하였다. 제작된 LiF tile의 밀도는 $2.4\sim 2.5\text{ g/cm}^3$ 로서 이론 밀도의 90% 이상이었다. 제작된 ^6LiF 타일의 밀도는 2.25 g/cm^3 였으며, 열중성자 투과율은 10^{-8} 미만으로서 열중성자 투과를 무시할 수 있는 수준이다. 따라서 이 타일이 PGNAA 장치에 사용하는데 매우 유용함을 확인하였다.

Abstract

The ^6LiF tile which will be utilized as the neutron shield of the gamma ray detector at the prompt gamma neutron activation analysis facility of KAERI-HANARO is developed. The ^6LiF powder is obtained by the reaction of hydrofluoric acid with the $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ powder, and the yield of the ^6LiF is 86% of the theoretical value. In order to fabricate the stable tile from toxic and irritant LiF powder, the optimum sintering procedure is developed using the LiF powder with naturally abundant ^6Li . The sintering temperature is $720\text{ }^\circ\text{C}$, and the heating rate is $120\text{ }^\circ\text{C/h}$. The preliminary heating process at $500\text{ }^\circ\text{C}$ is added in fabricating the ^6LiF tile. The density of fabricated LiF tile is $2.4\sim 2.5\text{ g/cm}^3$, and it is above 90% of theoretical density. The density of fabricated ^6LiF tile is 2.25 g/cm^3 , and the neutron transmission rate is below 10^{-8} , so the thermal neutron transmission is negligible. Therefore, the tile is confirmed to be useful for PGNAA facility.

1. 서 론

한국원자력연구소 하나로의 BNCT(Boron Neutron Capture Therapy) 장치에서 붕소 농도 분석에 이용될 즉발 감마 중성자 방사화 분석(Prompt Gamma Neutron Activation Analysis, PGNA) 장치는 pyrolytic graphite(PG) crystal에 의해 수직으로 회절된 열중성자를 인출함으로써 고속 중성자와 감마선 준위가 낮은 열중성자 환경을 조성한다. 회절된 열중성자는 collimator와 beam shutter를 거쳐 시료에 도달하고 즉발 감마선을 HPGe 감마선 계측기로 계측하여 붕소 농도를 분석하게 된다. HPGe 감마선 계측기 입구에는 HPGe 계측기가 받는 중성자 상해를 방지하고, 계측기 주변 물질로부터의 2차 감마선을 억제하기 위하여 중성자 차폐체가 설치되어야 한다. 이 차폐체는 2차 감마선 발생이 적고 분석 대상 감마선의 투과율은 가능한 커야 한다.

열중성자 차폐체로는 중성자 흡수단면적을 고려하여 Cd, B, Li 및 이 원소들의 화합물을 이용할 수 있다. 이러한 물질의 핵자료는 Table 1과 같으며, 열중성자 흡수당 감마선 방출 에너지는 Table 2와 같다.

Table 1. Nuclear data of Cd, B, Li, C, F and Al for thermal neutron.

Isotope	Natural abundance [%]	Cross-section [barn]	Reaction type	*Average released gamma-ray energy [MeV]	Comments
Cd-113	12.2	1.982×10^4	(n, γ)	9.04	E $_{\gamma}$ = 0.478 MeV(93.1%)
B-10	19.8	3838	(n, α)	0.445	
		0.52	(n, γ)	11.46	Q = 4.784 MeV, no γ
B-11	80.2	90.0053	(n, γ)	3.37	
Li-6	7.5	942	(n, α)	0	
		0.0383	(n, γ)	7.25	
Li-7	92.5	0.0455	(n, γ)	4.97	
C-12	98.89	0.00342	(n, γ)	4.95	
C-13	1.11	0.00091	(n, γ)	8.18	
F-19	100	0.00967	(n, γ)	8.23	
Al-27	100	0.0314	(n, γ)	9.50	

*Including delayed gamma-rays.

Table 2. Released energy of gamma-rays per thermal neutron capture.

Material	*Gamma-ray energy per capture [MeV]
Li-6	2.948×10^{-4}
nat. Li	3.255×10^{-3}
nat. B	4.465×10^{-1}
nat. Cd	9.04
⁶ LiF	3.793×10^{-4}
nat. LiF	4.381×10^{-3}
nat. B ₄ C	4.465×10^{-1}

* formula = $\frac{\sum \sigma_i f_i E_i}{\sum \sigma_i f_i}$ where,

σ_i : microscopic cross-section[barn]
 f_i : fraction ratio in element
 E_i : released gamma-ray energy[MeV]

이 표에서 알 수 있는 바와 같이 Li은 Cd과 B보다 중성자 흡수단면적은 작지만 열중성자 흡수에 따른 2차 감마선은 매우 작다. 따라서 중성자 흡수단면적과 2차 감마선 발생을 고려하면 Li 및 Li의 화합물이 유망한 소재로 기대되나, 금속 Li은 화학적으로 불안정하기 때문에 Li의 화합물이 최적의 소재로 알려져 있다. Li의 화합물로는 산화물, 수소화물, 불화물 등을 고려할 수 있지만, Li 함유 밀도, 화학적인 안정성, 유도방사능의 양, 취급의 용이성 등을 고려하면 불화물인 LiF가 최적의 소재로 평가받고 있다[1-4]. LiF가 HPGe 중성자 차폐체로 사용되려면, Li의 함유 밀도가 높고 적당한 두께를 지닌 bulky LiF가 유리한 형상이라 생각된다. 이를 제조하는 방법으로는 단결정 성장법과 분말을 이용한 소결법이 있으나, 가공성이나 경제성을 고려하면 후자의 방법이 유리하다[3].

따라서 본 연구에서는 HPGe 계측기의 차폐체를 개발하기 위하여 분말 소결법으로 LiF tile을 제조하였으며, 최적의 소결 조건을 얻기 위하여 소결 변수가 소결체에 미치는 영향을 살펴보았다. 또한, 제조된 LiF tile의 중성자 차폐 성능을 예측하여 HPGe 계측기의 차폐체로서의 타당성을 평가하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 수행한 LiF 타일 제조를 위한 간단한 공정도는 Fig. 1과 같다.

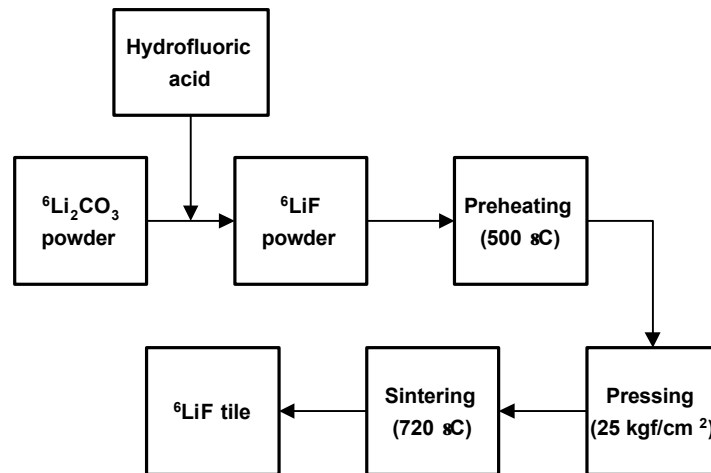


Fig. 1. Experimental procedure.

2.1. LiF 분말 준비

본 연구에서는 ${}^6\text{Li}$ 가 자연 존재비로 함유된 Aldrich사의 상용 LiF 분말(# 237965)과 ${}^6\text{Li}$ 농축도가 95%인 LiF 분말을 원료로 이용하였다. ${}^6\text{Li}$ 의 농축도는 중성자 흡수단면적 및 2차 감마선 발생에 대한 HPGe 계측기의 차폐체로서의 사양을 만족시키기 위한 중요한 변수이며, 농축도가 높을수록 유리하다. 그러나 ${}^6\text{LiF}$ 는 핵확산과 관련된 민감 물질이어서 구매가 불가능하였기 때문에 본 연구에서는 ${}^6\text{Li}$ 가 95% 농축된 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 분말을 구매하여 LiF로 변환하여 이용하였다. 변환은 수분이 10% 함유된 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 분말 (Oak Ridge National Laboratory 제조, ${}^6\text{Li}$ 농축도 : 95%)을 불산과 함께 아래 반응을 통하여 진행시켰으며,



반응 생성물인 ${}^6\text{LiF}$ 수용액을 건조시켜 ${}^6\text{LiF}$ 분말을 얻었다. ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 분말을 불산에 직접 혼합한 경우는 ${}^6\text{LiF}$ 를 회수하기 곤란할 정도로 반응이 격렬하기 때문에 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 분말을 물에 녹인 수용액을 불산과 반응시켰다. 반응 후 불산 잔량과 ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 잔량의 존재 유무는 각각 pH 측정과 X-선 회절 분석을 통해 확인하였다. 변환된 ${}^6\text{LiF}$ 분말의 총 양은 467 g으로 (1)식에 의해 이론적으로 계산한 양의 86%이다. 변환 완료된 ${}^6\text{LiF}$ 분말내 불순물은 ICP-AES 분석을 통해 Mg, Al, Si, Ca, Cu, Zn, Ba 등이 2.0~34 ppm 수준으로 함유되어 있음을 확인하였다. 한편, Aldrich사가 제조한 상용 LiF 분말은 순도가 99%이었고, 입자크기가 5 μm 이하였다.

2.2. LiF 소결

LiF 소결은 LiF 분말을 금형에 넣고 일축가압 성형과 냉간 정수압 성형(Cold Isostatic Press)을 한 뒤 box형 전기로에서 수행하였다. 분말의 합성시 분말에 잔존하여 소결체의 특성에 영향을 미칠 수도 있는 불순물을 배제하기 위하여 500 °C에서 3시간 동안 공기 중에서 유지한 전처리 분말도 준비하여 같은 절차로 소결하여 특성을 비교하였다.

일축가압 성형공정의 절차는 다음과 같으며, 성형공정의 각 단계를 Fig. 2에 도식적으로 나타내었다.

- ① 금형의 접촉면을 윤활유(oleic acid)로 고루 닦는다.
- ② 정밀 저울로 압축할 분말의 무게를 잰다.
- ③ Fig. 2(a)와 같이 금형 바닥판을 몸체에 끼운 상태에서 분말을 주입하고, 금형 내에 분말이 고르게 분포되도록 한다.
- ④ Fig. 2(b)와 같이 마개를 닫은 후 금형을 프레스에 장착하여 20~30 kgf/cm²에 도달할 때까지 압력을 서서히 가한다. 최종 압력에 도달하면 20초간 유지한 후 다시 감압한다. 금형을 60° 간격으로 회전하면서 가압·감압 과정을 6회 반복한다.
- ⑤ Fig. 2(c)와 같이 금형을 뒤집어서 몸체와 프레스 상판 사이에 인출용 봉을 설치 한 후 마개에 압력을 서서히 인가하여 압축 성형체를 금형 밖으로 밀어낸다.

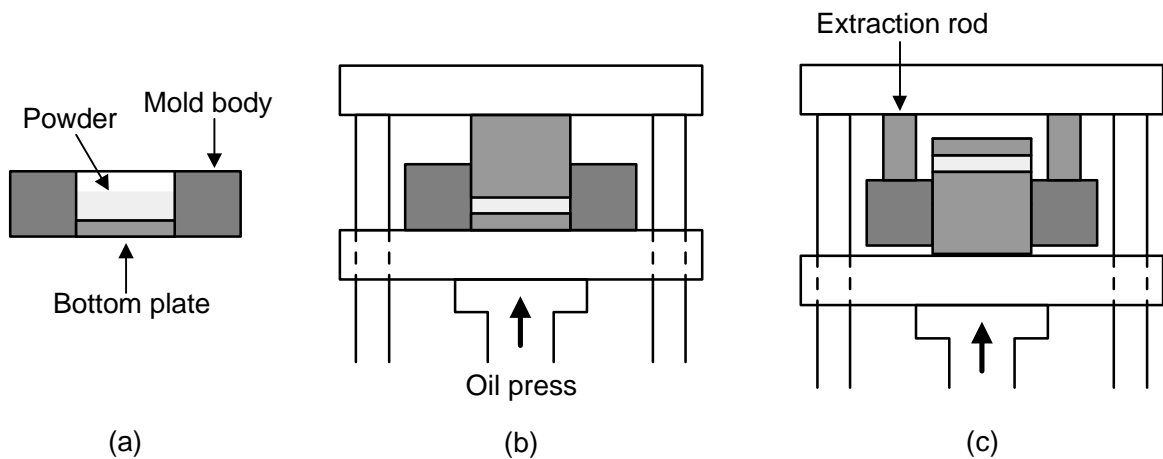


Fig. 2. Schematic diagrams of unidirectional pressing of LiF powder.

일축가압 성형된 성형체의 일부는 약 2,000 kgf/cm²의 압력으로 냉간 정수압 성형을 하였다. 소결은 Box형 전기로를 이용하였으며, Al₂O₃ boat 위에 성형체를 올려놓고 로의 hot zone에 장입한 뒤 720~750 °C에서 20시간 동안 공기 중에서 소결하였다. 승온속도는 120 °C/h와 250 °C/h의 두 경우로 조절하여 소결하였으며, 소결된 시편은 로에서 냉각하였다.

2.3. 특성 분석

분말의 특성 분석을 위해 상분석과 입자의 형상 및 크기를 살펴보기 위한 미세구조 관찰이 수행되었다. 상분석은 X-ray diffractometry법을 이용하였으며, Ni filtered Cu K_α radiation을 이용하였고, 측정된 2θ는 10°~70° 범위이었으며, scan speed는 4°/min이었고, scan step은 0.02°로 하였다. 입자의 형상 및 크기는 주사전자현미경(Scanning Electron Microscope : Jeol, JSM-5200)을 이용하여 관찰하였다. 한편 소결체의 특성 분석을 위해 소결체의 육안검사와 치수측정에 의한 소결밀도를 평가하였고, 분말의 경우와 마찬가지로 상분석 및 미세구조 분석을 수행하였다. 상분석

은 위의 분말과 같은 조건으로 수행하였으며, 미세구조 관찰을 위한 소결체는 절단한 뒤 미세연마하여 준비하고 주사전자현미경 및 광학현미경(Nikon Epiphot-TMF)을 이용하여 관찰하였다. 아울러 소결체의 입내 및 입계에 분포하는 원소의 분석을 위해 Energy Dispersive Spectroscopy 분석도 수행하였다. 한편 소결체의 표면상태는 육안검사와 더불어 표면조도 측정으로 확인하였다. 표면조도는 Tokyo Seimitsu Co의 surfcom 120A 장비를 사용하였으며, 아래 식을 사용하여 평균조도값을 측정하였고, 이 때 평가 길이는 3 mm, cutoff value는 0.08 mm, 측정 횟수는 각 시편당 5회였다.

$$Ra = \frac{1}{L} \int_0^L |f(x)| dx \quad (2)$$

여기서, L : evaluation length

x : axis of center line direction

f(x) : axis of vertical direction of x axis

3. 결과 및 고찰

3.1. 분말의 특성

Aldrich LiF 분말과 ^6Li 가 농축된 LiF 분말의 열처리 전후의 X-선 회절분석에 의한 상분석 결과와 주사전자현미경을 이용한 미세구조 관찰 결과를 Fig. 3과 Fig. 4에 각각 나타내었다. Fig. 3에서 볼 수 있듯이 Aldrich 분말이나 농축분말도 LiF 상만이 관찰되었으며, 농축분말은 500 °C에서 열처리를 하여도 결정방향에는 변화가 없음을 알 수 있다.

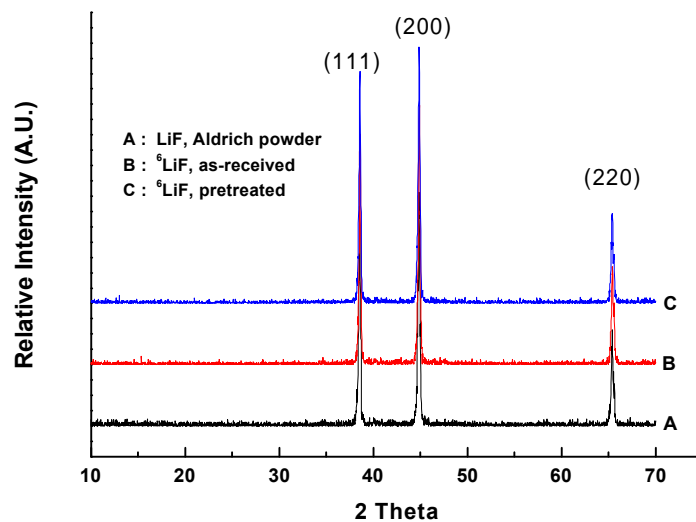


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of LiF powders.

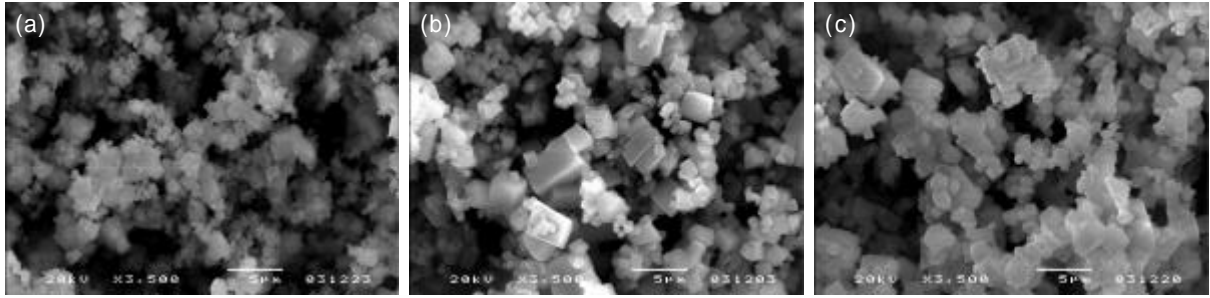


Fig. 4. Micrographs of LiF powders : (a) Aldrich LiF, (b) ^6LiF before preheat treatment and (c) ^6LiF after preheat treatment.

한편 Fig. 4에 나타낸 각 분말들의 미세구조를 살펴보면, Aldrich LiF 분말의 입자크기가 가장 작았으며, ^6LiF 분말은 Aldrich 분말에 비하여 입자크기가 크게 관찰되었다. 한편 ^6LiF 분말을 500 °C에서 3시간 동안 전처리한 분말의 미세구조를 보면 입자크기의 변화는 없었다고 판단되나 육안으로 관찰된 전처리 분말의 응집현상이나 전처리 분말을 분쇄하여 보면 agglomeration 보다는 약한 aggregation 상태가 진행되었다고 생각되며, 아울러 LiF의 용융온도가 848 °C이고 Stewart [5-6] 등의 보고를 고려하면 입자간의 neck이 형성되어 aggregation이 형성되었다고 판단된다.

3.2. 소결체 특성

720 °C 및 750 °C에서 소결한 LiF 소결체의 소결밀도는 2.4~2.5 g/cm³으로서 이론 밀도의 90% 이상이었으며, 중성자 차폐체로 우수한 밀도 값을 나타내었다. 소결체의 미세구조와 상분석 결과를 Fig. 5와 6에 각각 나타내었다.

미세구조상으로는 분말의 종류나 분말의 전처리 여부에 관계없이 비슷한 소결거동을 나타내고 있다고 판단된다. Aldrich 분말, 500 °C 전처리된 농축분말 및 전처리 전의 농축분말을 720 °C에서 각각 소결하여 얻어진 미세구조인 Fig. 5의 (a), (c)와 (d)를 살펴보면, 약 50 μm 까지 결정이 성장하며, 치밀하게 소결되었음을 볼 수 있다. 한편, 기공은 입내와 두 입자간의 접촉한 입계에 존재함을 볼 수 있다. 반면, Aldrich 분말과 농축분말을 750 °C에서 각각 소결한 Fig. 5의 (b)와 (e)에 나타낸 미세구조를 보면, 720 °C에서 소결한 경우에 비하여 결정성장이 더 많이 진행되어 약 100 μm 까지도 성장하였으며, 아울러 기공의 분포가 입내와 세입자가 만나는 triple junction에 대부분 모여 있음을 관찰할 수 있다. 이러한 기공분포는 720 °C에서 소결한 시편에 비하여 입계의 이동이 더 빠르게 많이 진행되었음을 의미한다[7]. LiF가 HPGe 검출기 계측기의 차폐체로 사용되려면, LiF가 중성자에 노출되어 발생하는 tritium을 차폐체 외부로 방출하지 않는 구조를 지녀야 한다. 이를 위해서는 LiF 소결체가 닫힌 기공을 갖고, 입자 크기가 큰 경우가 유리하다고 판단된다. 소결체의 입자 크기가 커지면 생성된 tritium이 입계를 통한 확산보다는 이동이 더 어려운 bulk 확산을 하여야 할 경로가 길어지고, 입내에 존재하는 닫힌 기공은 tritium을 trap하는데 좋은 공간을 제공하게 된다. 따라서 tritium 방출억제의 관점에서는 소결온도가 높은 750 °C의 경우가 더 유리한 미세구조를 지니고 있다고 생각된다. 한편, 농축분말을 소결한 시편에서 입계에 약간의 큰 void가 관찰된다. 이는 분말을 성형할 때 이미 존재하는 void로 소결이나 입자성장의 진행을 방해하며, 치밀화 반응이 종료되어도 남아 있게 되리라 판단된다. 이러한 현상은 분말특성에서 언급하였듯이 농축분말이 Aldrich 분말에 비하여 입자가 굵고 입자분포 폭이 좁아 성형성이 나빴기 때문이라고 추정된다.

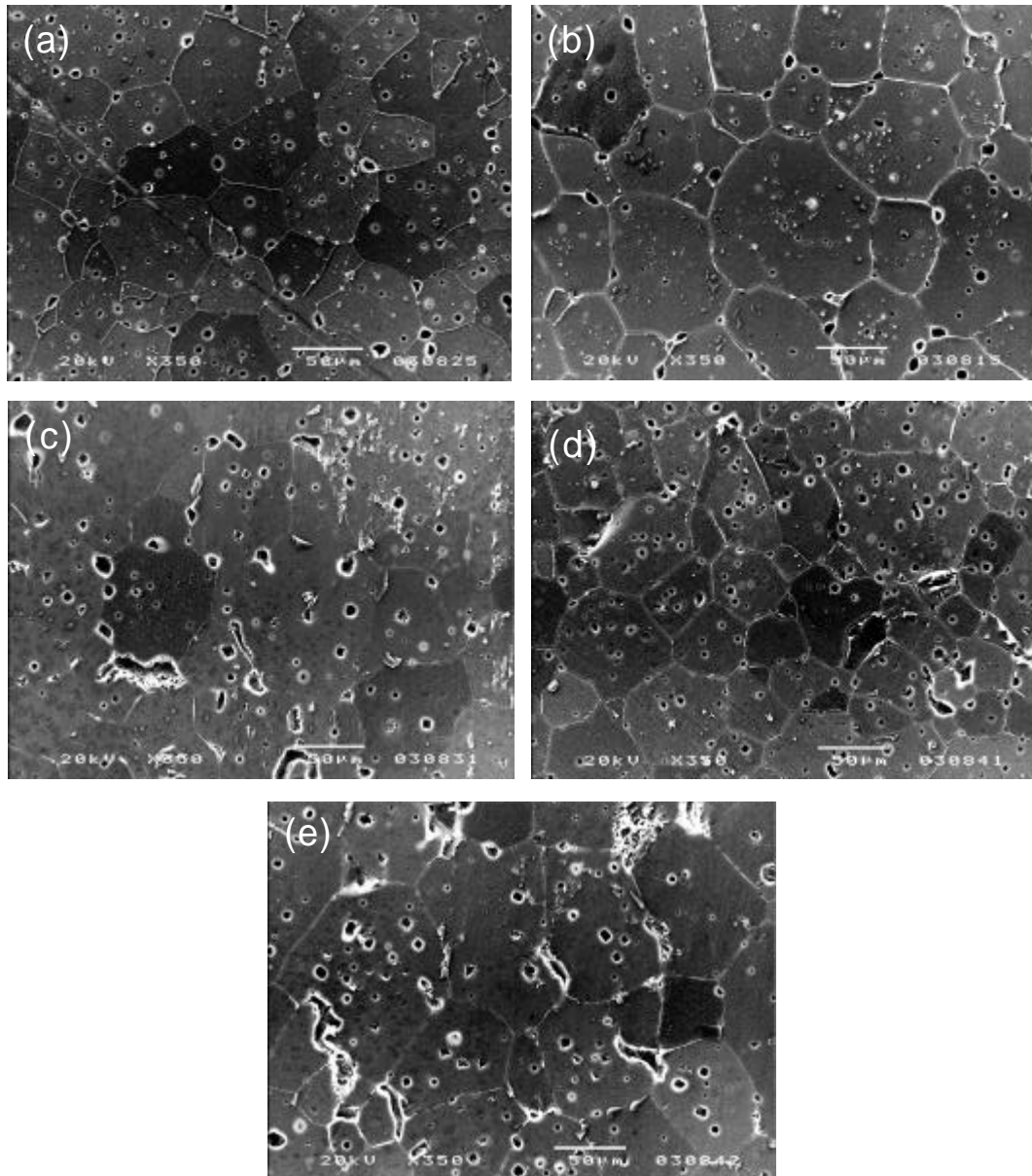


Fig. 5. Micrographs of sintered LiF : (a) Aldrich powder, 720 °C, (b) Aldrich powder, 750 °C, (c) pre-heated ^6Li powder, 720 °C, (d) as-received ^6Li powder, 720 °C and (e) as-received ^6Li powder, 750 °C.

Fig. 6은 LiF 소결체를 X-선 회절분석하여 상분석한 결과이다. 분말의 경우와 마찬가지로 LiF peak만이 관찰되었으며, 다른 물질은 검출되지 않았다. 그런데 소결체에서 관찰되는 preferred orientation은 앞의 분말의 경우와 달리 일정한 경향성을 지니고 있지 않았다. JCPDS 45-1460에 나타난 LiF의 표준 X-선 회절분석 peak를 보면 강도 (200)면에서 100이었고, (111)면, (220)면 순서로 강도가 90 및 50으로 감소하였다. 이러한 경향은 앞의 출발원료에서는 잘 일치하고 있었으나, 소결체에서는 소결이 진행됨에 따라 결정이 성장하며 주 결정면이 바뀌었다. 그러나 같은 Aldrich 분말을 같은 소결조건에서 소결한 Fig. 6의 (b)와 (c)의 경우나 같은 소결온도에서 소결한 Aldrich 분말과 농축분말의 경우인 Fig. 6의 (a)와 (d) 및 (b)와 (e)를 각각 비교하여 보아도

특별한 경향성을 지니고 있지 않음을 알 수 있다. 이는 LiF가 NaCl 구조를 지닌 육면체의 각진 분말이어서 입자의 배열양상에 따라 X-선 회절분석이 이루어진 면의 주 결정면에 차이가 있었다고 생각되며, 이에 대해서는 별도의 분석이 필요하다. 본 연구에 제조하고자 하는 차폐체의 중성자에 대한 성능은 LiF의 결정면에 의존한다는 보고는 없으며, 더욱이 LiF 소결체는 다결정이므로 주 결정면이 다르더라도 성능에 영향을 주지 않으리라 생각된다.

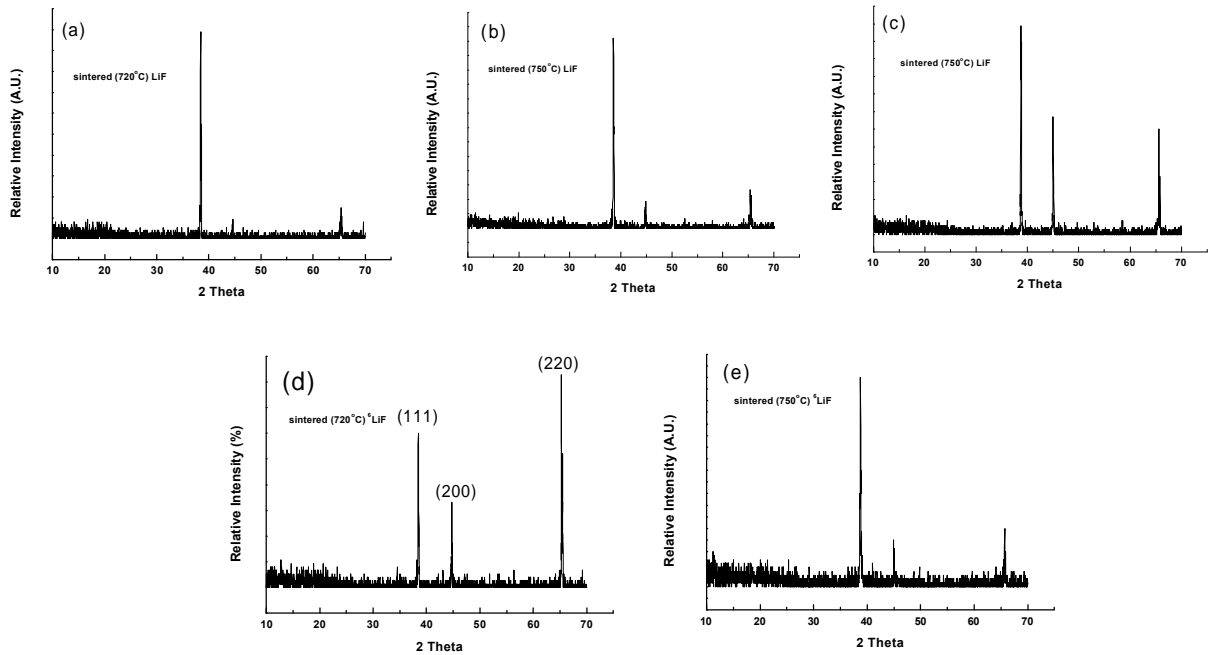


Fig. 6. X-ray diffraction patterns of sintered LiF : (a) Aldrich powder, 720 °C, (b), (c) Aldrich powder, 750 °C, (d) ⁶Li rich powder, 720 °C, and (e) ⁶Li rich powder, 750 °C.

LiF 소결체에 존재하는 불순물 성분의 존재를 확인하기 위하여 소결체의 입계와 입내에 대한 EDS 분석을 수행하고, 그 결과를 Fig. 7에 나타내었다. Fig. 7의 (a)는 Aldrich 분말을 이용하여 750 °C에서 소결한 LiF의 미세구조이며, (b)는 (a)에서 관찰되는 LiF 입계에 존재하는 성분 (spectrum 1)과 LiF 입자 내(spectrum 2)에 존재하는 성분을 EDS로 분석한 결과들이다.

Spectrum에서 알 수 있듯이, 입계에 존재하는 물질은 미량의 Mg, Mn, Fe 등으로 구성되어 있었으며, 입내에서는 탄소만이 불순물로 관찰되었다. 이 금속성분으로 이루어진 입계상은 ⁶Li 농축분말의 소결체에서는 관찰되지 않았으며, Aldrich 분말의 소결체에서도 불연속적으로 소량이 관찰되었다. 이 미량의 금속성분들은 출발원료의 순도가 99%이었던 점을 고려하면, 이에 포함되었던 불순물이라고 예측된다. 그러나 입내에서 관찰되는 탄소는 Aldrich 분말의 소결체 뿐만 아니라 ⁶Li 농축분말의 소결체에서도 관찰되었다. 이는 Li₂CO₃로부터 합성된 반응에서 잔존하는 성분이라 생각되며, 성능평가 결과에 따라선 전처리 공정이 필요할 수도 있다[6]. 아울러 Aldrich 분말도 리튬의 carbonate로부터 합성되었다고 생각된다.

3.3. ⁶LiF tile 제조

단면적이 50×50 mm²인 금형을 이용하여 Aldrich 상용 LiF 분말을 15 g 주입하여 소결한 tile은 Fig. 8과 같다. LiF tile을 제조할 때는 시편의 크기가 커서 소결 후의 시편형상 변화를 고려하여 냉간 정수압(CIP) 공정의 영향을 살펴보고자 하였다. Fig. 8의 (a)는 CIP 공정을 거친 경우에

고, (b)는 CIP 공정을 거치지 않고 소결한 경우를 각각 나타낸다. 소결 온도는 720 °C이다.

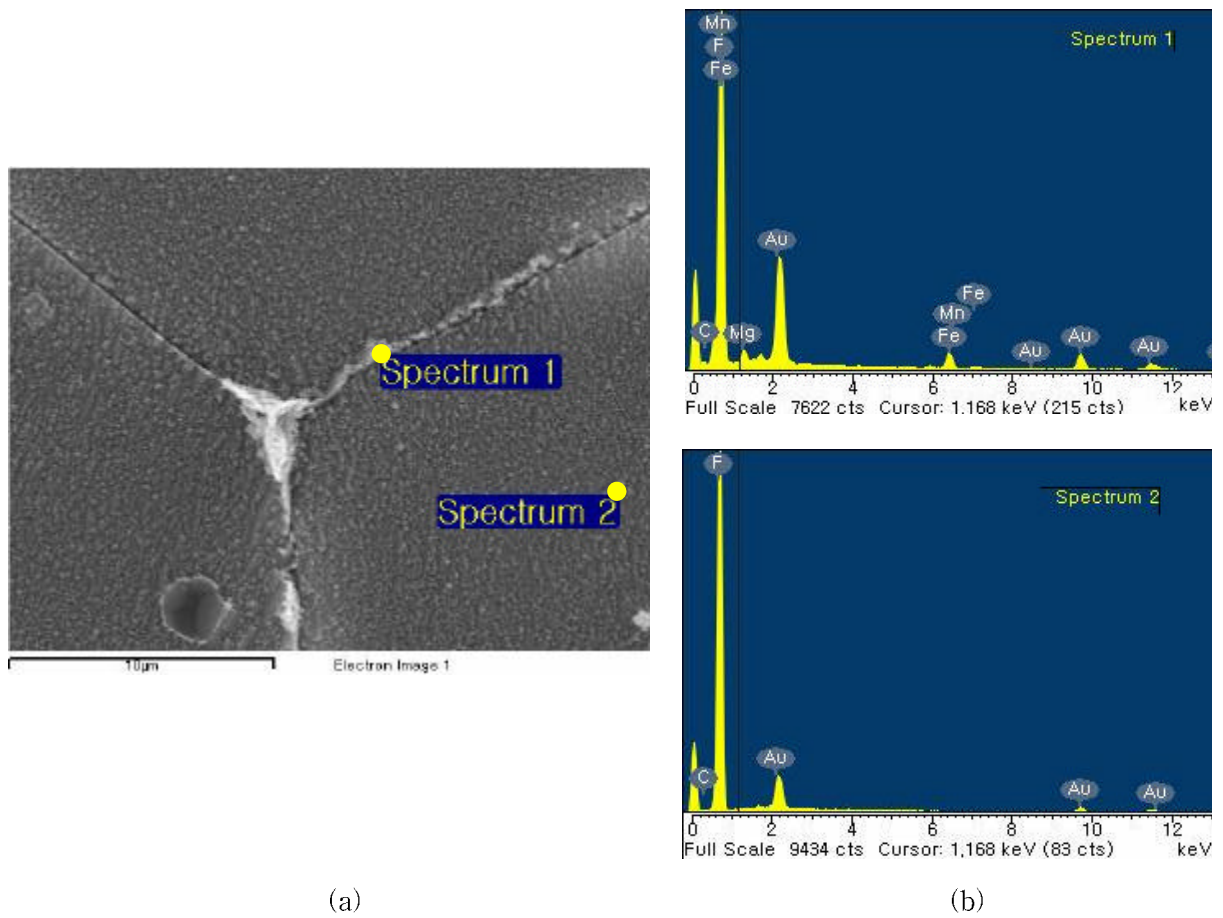


Fig. 7. Micrograph (a) of LiF sintered 750 °C using Aldrich powder and EDS spectrums (b) of grain boundary(spectrum 1) and inner grain(spectrum 2).

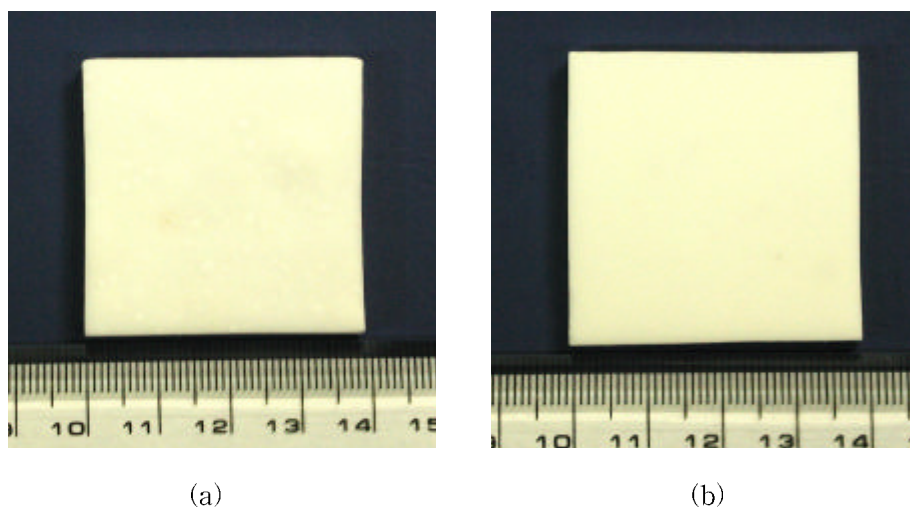


Fig. 8. LiF tiles using Aldrich powder with CIP process(a) and without CIP process(b).

육안검사에 의한 소결체의 표면 상태는 (a)에 비해 (b)가 월등히 우수하였다. CIP 압축을 거친 소결체의 표면 상태가 이와 같이 좋지 않은 이유는 가압을 위한 canning시 사용한 비닐 주머니가 LiF 성형체에 밀착될 때 성형체 표면에 발생한 손상 때문이라고 생각된다. 따라서 예비 시작품의 제작 공정에서는 CIP 압축 과정을 생략하였다. 두 가지 소결 조건에서 소결 전후의 크기 및 질량을 비교한 결과는 Table 3과 같다. LiF tile의 밀도는 2.4~2.5 g/cm³으로서 이론 밀도(2.64 g/cm³)의 90% 이상이었다.

Table 3. Comparison of dimension and density of LiF before/after sintering.

	Green			Sintered		
	Weight	Size		Size	Weight	Density
		uniaxial press	CIP			
CIP pressed tile	15.00 g	50×50×5.0t	43×43×4.4t	39.1×39.1×4.1t	14.87 g	2.37 g/cm ³
uniaxial pressed tile	15.00 g	50×50×5.0t	·	39.4×39.7×3.8t	14.90 g	2.51 g/cm ³

상용 LiF 분말을 이용한 소결 시험 결과를 근거로 하여 동일한 공정으로 ⁶LiF 분말을 15 g 주입하여 제작한 ⁶LiF tile은 Fig. 9(a)와 같다. LiF 소결시와 동일한 공정으로 제작하였음에도 불구하고 표면 상태가 매우 불균일하게 형성되었다. 또한 소결 과정에서의 변형이 심각하여 형태가 정사각형에서 크게 벗어나 있다. 이러한 현상은 앞의 소결시편의 미세구조(Fig. 5(c), (d))에서 예측되었듯이 출발분말의 특성이 상용 LiF 분말과 차이가 있었기 때문이며, 아울러 일부 분말에 포함된 불순물이 휘발하면서 발생한 것으로 보인다. 따라서 분말을 압축 성형하기 전에 500 °C에서 열처리하는 전처리 과정을 설정하였다. 사전 열처리 공정을 거쳐 ⁶LiF tile을 제작한 결과는 Fig. 9(b)와 같다. 제작된 ⁶LiF tile의 크기는 39.9×40.0×4.16 mm³, 질량은 14.954 g, 밀도는 2.25 g/cm³이다. Fig. 9(a)와 비교할 때 표면 상태가 크게 개선되어 LiF tile과 동등한 품질을 얻을 수 있었으며, 평균 조도 값은 3.94 μm였다.

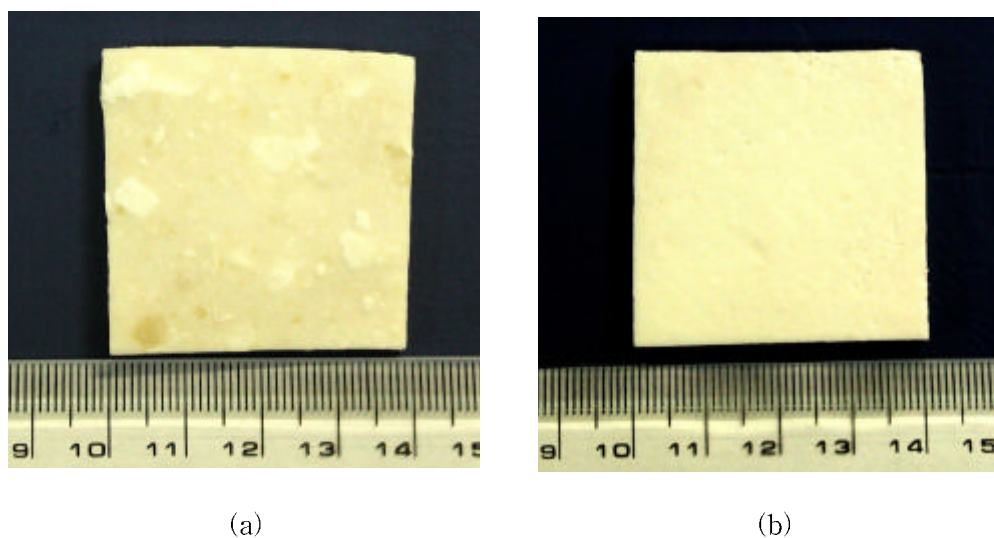


Fig. 9. ⁶LiF neutron shielding tile using (a) as-received powder and (b) pre-heated powder.

3.4. 열중성자 차폐 성능

제작된 ${}^6\text{LiF}$ tile의 열중성자 차폐능은 tile 밀도 및 ${}^6\text{Li}$ 농축도, ${}^6\text{Li}$ 의 중성자 흡수단면적을 이용하여 예상할 수 있다. ${}^6\text{LiF}$ tile의 밀도 2.25 g/cm^3 으로부터 tile내 ${}^6\text{Li}$ 의 수밀도는 5.79×10^{22} 개/cm³이며, 두께 4 mm인 tile에 대한 열중성자 투과율은 10^{-8} 미만으로서 열중성자 투과 효과를 무시할 수 있는 수준이다. 따라서 본 연구에서 개발된 ${}^6\text{LiF}$ tile은 2차 감마선이 생성되지 않는 조건으로 열중성자를 완전히 흡수하는 용도에 최적임을 알 수 있으며, PGNAA를 비롯한 Neutron Depth Profiling, Neutron Radiography 등 여타 장치에도 활용될 수 있다.

4. 결 론

- 1) 720 °C 및 750 °C에서 소결한 LiF 소결체의 소결밀도는 $2.4 \sim 2.5\text{ g/cm}^3$ 로서 이론 밀도의 90% 이상이었으며, 중성자 차폐체로 우수한 밀도 값을 나타내었다.
- 2) 720 °C에서 각각 소결된 LiF는 약 50 μm 까지 결정이 성장하고, 치밀하게 소결되었으며, 기공은 입내와 두 입자간의 접촉한 입계에 주로 위치하였다. 반면, 750 °C에서 소결한 LiF는 720 °C에서 소결한 경우에 비하여 결정 성장이 더 많이 진행되어 약 100 μm 까지도 성장하였으며, 기공은 입내와 세입자가 만나는 triple junction에 대부분 모여 있음을 관찰할 수 있었다. 이러한 입자성장이나 기공분포는 Li과 중성자의 반응에서 생성되는 tritium의 방출거동과 밀접한 관계가 있으며, 입자가 크고 닫힌 기공을 입내에 갖는 구조가 유리하다고 생각된다.
- 3) 소결 LiF의 입내에는 탄소성분이 검출되었다. 이는 Li_2CO_3 로부터 합성된 반응에서 잔존하는 성분이라 생각되며, 성능평가 결과에 따라선 전처리 공정이 필요할 수도 있다. 500 °C에서 전처리한 분말을 이용하여 소결체를 제조하면 소결체의 표면조도가 작아져 표면상태가 개선되었다.
- 4) ${}^6\text{LiF}$ tile의 소결밀도가 2.25 g/cm^3 이면 tile 내 ${}^6\text{Li}$ 의 수밀도는 5.79×10^{22} 개/cm³이고, tile 두께를 4 mm로 하면 열중성자 투과율은 10^{-8} 미만으로서 열중성자 투과 효과를 무시할 수 있는 수준이 되어 2차 감마선이 생성되지 않는 조건으로 열중성자를 완전히 흡수하는 용도에 최적이라 생각된다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업으로 수행되었다. ${}^6\text{Li}_2\text{CO}_3$ 로부터 ${}^6\text{LiF}$ 를 분말을 합성하여 주신 원자력연구소 화학연구팀에 감사를 드리며, 실험과 미세구조 관찰에 도움을 주신 기능성재료의 김원주 박사와 김정일 씨, 그리고 원자력재료기술개발팀의 조해동 씨께 감사를 드린다.

참고문헌

1. S.F. Mughabghab, M. Divadeenam and N.E. Holden, "Neutron Cross Sections, Vol.1", 5-1, Academic Press, (1981).
2. S.F. Mughabghab, M. Divadeenam and N.E. Holden, "Neutron Cross Sections, Vol.1", 3-1, Academic Press, (1981).

3. T. Kobayashi and K. Kanda, KURRI-TR-198, (1980).
4. M.W.A. Stewart and W.J. Buykx, J. Am. Ceram. Soc., 71 (1988) C-68.
5. M. Rossbach, Anal. Chem., 63 (1991) 2156.
6. M.W.A. Stewart and W.J. Buykx, in Advanced in Ceramics vol 27, p.109, Edited by G.W. Hollenberg, The Am. Ceram. Soc. Inc, (1990).
7. Z.Y. Wang, M.P. Harmer and Y.T. Chou, J. Am. Ceram. Soc., 69 (1986) 735.