

저밀도 폴리에틸렌의 방사선 조사에 따른 열발광 특성에 관한 연구

Thermoluminescence Characteristics of  
Gamma Irradiated Low Density Polyethylene

김기엽

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

이 청, 임기조

충북대학교  
충북 청주시 흥덕구 개신동 산 48

류부형

동국대학교  
경북 경주시 석장동 707

요 약

케이블 절연재로 사용되는 저밀도 폴리에틸렌의 방사선 열화를 열발광 특성을 이용하여 검토하였다. 저밀도 폴리에틸렌을 실온, 공기 중에서 5 kGy/hr의 선량율로 1000 kGy까지  $\gamma$  선을 조사하여 각 조사된 시편을 온도에 따라 측정하였으며, 조사선량에 따른 열발광 특성의 변화와 유전손실 및 체적저항율의 상관관계를 검토하였다. 그 결과 열발광 특성의 변화는 열화 평가의 중요지침으로 활용할 수 있음을 알 수 있었다.

Abstract

Radiation degradation of low density polyethylene (LDPE) used as cable insulation was evaluated with thermoluminescence characteristics. LDPE was irradiated with gamma ray up to 1000 kGy at a dose rate of 5 kGy/hr in the presence of air at room temperature. Each of the irradiated samples were carried out thermoluminescence analysis as a function of temperature. Interrelationship between thermoluminescence characteristics and dielectric and volume resistivity is investigated as well. In the results of thermoluminescence analysis showed that those would be significant factors for evaluation of radiation degradation.

1. 서 론

전력용 케이블과 기기의 절연시험 및 열화진단 기술은 고전압 전력전송 시스템의 승압으로 그 연구의 필요성이 요구되고 있으며[1], 케이블 절연재로는 폴리에틸렌이 주로 사용되는 추세이다. 저밀도 폴리에틸렌은 전기적으로 우수한 절연내력을 가지며, 기계적으로도 유연성(flexibility)을

가지지만, 낮은 용점으로 인해 절연재로 사용할 때는 주로 가교시켜 사용한다. 또 전력계통 및 전력기기의 대용량화에 따라 전력케이블 뿐만 아니라 기기의 절연재료에도 유기고분자 소재가 주로 사용되는 추세이나, 유기고분자 소재는 방사선에 대해 취약한 단점을 가져 이로 인한 각종 기기의 오동작이나 절연성능의 저하는 실로 심각한 문제라고 할 수 있다. 특히, 방사선 장내에서 사용되어지는 소재들은 내방사선성을 필수적으로 가져야 하나, 아직 절연재의 방사선 열화에 관한 연구는 미흡한 실정이다. 또한 전력케이블에 있어, 전력손실 뿐만 아니라 절연파괴를 일으킬 수 있는 유전율, 유전손실 및 기계적 특성에 관한 방사선 조사의 영향은 방사선 장내에서 피폭 뿐만 아니라 근접한 케이블 사이에서도 전자선의 집적에 의해 성능이 저하할 가능성이 높기 때문에 열화평가에서 중요한 요소라고 할 수 있다[2,3].

본 연구에서는 저밀도 폴리에틸렌의 방사선 열화를 열발광 특성으로 검토하였으며, 열발광과 절연 및 유전특성의 관계를 검토하였다.

## 2. 실험

### 2.1 시편의 제작

본 시험에 사용한 시편은 밀도 0.92 g/cm<sup>3</sup>, 용융지수 2.0g/10min의 첨가제를 함유하지 않은 펠렛형 저밀도 폴리에틸렌을 사용하였으며, hot press를 이용하여 120℃에서 15분간 가압, 용융하여 두께 0.2mm와 2mm의 시트형태로 제작하였다. 제작된 시트형태의 시편은 한국원자력연구소 방사선 조사시설의 Co<sup>60</sup>  $\gamma$ -ray 선원을 사용하여 실온, 대기 중에서 5 kGy/hr의 선량율로 각각 200, 400, 600, 800, 1000 kGy의 선량으로 조사하였다. 조사된 시트형상의 시편으로 각각의 측정에 적합하게 가공하여 사용하였다.

### 2.2 측정

#### 열발광 분석 (Thermoluminescence analysis)

방사선 조사에 따른 저밀도 폴리에틸렌의 절연특성과 유전 특성 변화의 상관관계를 규명하기 위하여 온도에 따른 열발광량을 측정하였다. 열발광량 분석은 Thermo-luminescence Detector (Saint-Gobain Industrial Ceramics, TLD Model 2210)를 사용하여 산소 분위기에서 50℃로 열적 평형을 유지한 후 6℃/sec의 승온속도로 가열하면서 50~250℃의 온도 범위에서 분자내 캐리어의 탈트랩으로 인한 발광량을 검지하여 이를 방전전하량으로 환산하여 표시하였다.

#### 유전특성 분석 (Dielectric analysis)

시편의 유전특성의 측정은 유전측정장치 (TA instruments사, Type 2970)을 이용하였다. 두 금 (gold) 전극 사이에 두께 0.2 mm의 시편을 장착하고, 1 Hz 주파수의 교류 1 V의 정현파 전압을 인가, 교류전계를 생성시켜 시편을 분극시키고, 이로 인해 나타나는 전압과 전류의 위상각 차이를 이용하여 유전율과 유전손실을 측정하여,  $\tan \delta$ 을 구하였다. 상부전극은 가드, 링의 형상을 하고 있으며, 하부전극은 시편의 온도를 감지하기 위한 RTD (resistance temperature detector)를 내장하고 있다. 그림 1은 유전특성 측정장치의 개략도를 나타낸 것이다. 시편은 양 전극 사이에 300N의 압력으로 고정시켰으며, 질소가스 순환 후 3℃/min의 승온속도로 -150~50℃의 범위에서 측정하였다.

#### 체적저항율 (Volume resistivity)

체적저항율은 Electrometer & High Resistance Meter (Keithley 6517A)와 Test Fixture

(Keithley 8009)를 사용, 60 Hz, 1 kV의 전압을 인가하여 실온에서 측정하였다. 체적저항을 측정의 개략도를 그림 2에 나타내었다.

### 3. 결 과

#### 열발광 분석 (Thermoluminescence analysis)

인가한 에너지에 의한 재료의 발광량 검지는 결함 및 열화를 진단하는 유용한 수단이 되어 왔으며, 발광량 검지는 전압인가에 의한 전계발광(electroluminescence)과 열 인가에 의한 열발광(thermoluminescence)으로 나눌 수 있다. 전계발광으로 인한 빛 방출은 고분자 재료에 인가한 고전계에 의해 주로 발생하며, 부분방전이 개시되기 이전에 국부적으로 전계가 집중하는 점에서 전하의 방출에 의한 것이기 때문에 극저온 및 고온의 모든 온도범위에서 미소한 체적에서만 발생한다. 또한 전계발광은 고전압 기기 및 케이블의 절연재에 내재한 결함을 검출하기 위해 발광을 이용한 부분방전 검출법으로도 사용하고 있다[4]. 반면, 열발광은 전압을 인가하지 않은 상태에서 실온 이상의 온도에서만 관측이 가능하며 열이 인가된 모든 부분에서 온도에 의해 발광하는 빛의 세기가 의존하게 된다. M. Ieda, T. Mizutani, Y. Suzuoki 등의 연구에 의하면, 실온 이상에서 폴리에틸렌의 열발광은 트랩된 전하 캐리어의 탈트랩과 발광중심부(luminescent center)와의 적절한 재결합에 기인한다고 하였다[5]. 본 연구에서 측정된 방사선 조사선량의 변화에 따른 저밀도 폴리에틸렌의 열발광량의 변화를 온도에 따라 그림 3에 표시하였으며, 그림에서 보는 바와 같이 미조사 시편에 비해 방사선이 조사된 시편에서는 전체적으로 열발광량이 증가하는 경향을 나타내고 있다. 방사선 조사선량에 따라서는 대체로 발광량이 증가하는 경향을 보이고 있으며, 이것은 방사선 조사에 의한 폴리에틸렌의 분자쇄 절단으로 인해 도전성 이온, 가스 등의 캐리어의 생성이 많아져 발광량의 증가를 초래한 것으로 보인다[6]. 또 S. S. Bamji와 A. T. Bulinski 등은 가교 폴리에틸렌에서 가교부산물이 열발광의 광원으로 작용한다고 FT-IR 분석을 통해 지적하였는데[7], 이것은 가교 후 생성된 유극성 가교부산물로 인해 전하 캐리어의 트랩 및 탈트랩이 더욱 용이하게 발생하여 열발광량을 증가시키기 때문이다. 저밀도 폴리에틸렌의 방사선 조사에 의한 화학적 변화에 관한 기존의 연구에 의하면[8], 조사선량의 증가에 따라 카르보닐, 히드록시, 이중결합 등이 증가하므로 이들 극성기의 생성이 열발광에 직접적인 영향을 미친다고 할 수 있으며 이러한 극성기의 영향은 S. S. Bamji 등의 가교 폴리에틸렌에서 가교부산물의 열발광에 미치는 영향과 같은 경우라고 할 수 있다.

#### 유전특성 분석 (Dielectric analysis)

절연재료의 유전율과 유전손실은 물질 고유의 특징으로 전압, 온도 및 주파수에 의존한다[9]. 방사선 조사에 따른  $\tan \delta$ 의 온도 의존성을 그림 4에 나타내었다.  $-50^{\circ}\text{C}$  이하의 극저온에서는 방사선 조사 유무에 관계없이 거의 균일한 수치를 나타내고 있다. 극저온에서는 쌍극자의 이동도에 영향을 미쳐 분자간 동결로 인해 이러한 경향을 보인 것으로 사료된다.  $-50^{\circ}\text{C}$  이후에서는 방사선 조사선량의 증가에 따라  $\tan \delta$ 의 증가를 나타내고 있다. 폴리에틸렌은 방사선 조사선량에 따라 가교도가 증가하는 고분자로 가교도의 증가에 따라 분자간의 응집이 생기며, 이로 인해 쌍극자의 이동도가 떨어져 유전율이 감소하게 되므로  $\tan \delta$ 가 증가한 것으로 보인다[10]. 또 방사선이 조사되면 각각의 조사선량에 따라서 고분자의 화학적 구조변화가 발생하게 되며, 선량 증가에 따른 산화, 가교반응 중 생성된 카르보닐, 히드록시, 이중결합 등의 전기전도에 기여하는 극성기의 증가로 유전율은 증가하게 된다[11]. 그러나 반응에 따라 시편 내부에서 열이 발생하므로 저밀도 폴리에틸렌의 구조결합은 무질서하게 될 것이고 그 중간에 비교적 체적이 큰 공극이 생기게 되면, 공극 주위의 결합쇄끼리의 간격이 좁아져 응집된 구조로 되게 된다[12]. 본 연구에서 유전손실과 유전율의 비로 표현되는  $\tan \delta$ 의 조사선량에 따른 증가는, 방사선 조사에 의해 형성된 극성기로

인한 유전율의 증가분보다 무질서한 구조결합에 기인한 유전율의 감소분이 더 우세하게 작용하였기 때문인 것으로 사료된다. 방사선 조사에 따른  $\tan \delta$ 는  $-50^{\circ}\text{C}$  이상에서부터 다소 증가하였지만, 400 kGy 이하의 저선량의 경우 상온 이하에서는 큰 차이를 보이지 않았다.

#### 체적저항율 (Volume resistivity)

방사선 조사에 따른 저밀도 폴리에틸렌의 체적저항율의 변화와  $50\sim 250^{\circ}\text{C}$  사이에서의 집적 열발광량을 그림 5에 나타내었다. 체적저항율은 저선량 조사에서 급격한 감소를 보였으며, 그 후의 영역에서는 일정하게 포화하였다. 이러한 경향은 집적 열발광량과는 반대의 성향을 나타내고 있기 때문에, 200 kGy에서의 급격한 체적저항율의 감소는 방사선 조사에 의한 도전성 캐리어 및 이온의 증가에 기인한 것으로 볼 수 있다. 체적저항율에 비해 집적 열발광량은 600 kGy까지 선형적인 증가를 보여 방사선 열화검지에 더 유용한 것으로 나타났다.

#### 4. 결 론

저밀도 폴리에틸렌의 방사선 열화를 열발광 특성으로 검토하였으며, 또 열발광과 절연 및 유전 특성의 관계를 검토한 결과 다음과 같았다

- 방사선 조사선량이 증가함에 따라 저밀도 폴리에틸렌의 열발광량은 증가하였으며, 400 kGy 이상의 경우  $200^{\circ}\text{C}$ 에서 최대로 발현됨을 볼 수 있었다.
- 유전손실은  $-50^{\circ}\text{C}$  이상에서 방사선 조사선량이 증가함에 따라 유전손실이 증가하였으나, 열발광 측정에 비해 선량에 따른 확연한 차이를 나타나지 않았다.
- 선량에 따른 직선적인 변화로 체적저항율은 200 kGy가 최대이며, 열발광의 경우 600 kGy까지 나타내고 있는 것으로 열발광이 선량에 민감하며 열화평가지침으로 우수함을 알 수 있었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력연구개발사업지원을 받았기에 감사 드립니다.

#### 참고문헌

1. S. S. Bamji, "Threshold Voltage for Electrical Tree Inception in Underground HV Transmission Cables", IEEE Trans. on Electrical Insulation, Vol.27, No.2, pp.402-404, 1992
2. Rex W. Gould *et al*, "Practical Aspects of Polymer Stabilisation", British Polymer Journal, Vol.16, 1984
3. C. Oproiu *et al*, "Transitory and Permanent Effects of Electron Beam Irradiation on Insulating Materials", Nuclear instruments and Methods in Physics Research B 166-167, pp.669-675, 2000
4. F. H. Kreuger, "Partial Discharge Detection in High-Voltage Equipment", ISBN 0-408-02063-6, 1989
5. M. Ieda, T. Mizutani and Y. Suzuoki, Memoirs of the Faculty of Engineering, Nagoya University, Japan, Vol.32-2, pp. 173, 1980
6. J. R. Laghari and A. N. Hammoud, "A Brief Survey of Radiation Effects on Polymer Dielectrics", IEEE Trans. on Nuclear Science, Vol.37, No.2, pp.1076-1083, 1990

7. S. S. Bamji and A. T. Bulinski, "Thermoluminescence in XLPE Cable Insulation", IEEE Trans. on Dielectric and Electrical Insulation, Vol.3, No.2, 1996
8. K. Y. Kim *et al*, "Dielectric Properties on Gamma Ray Irradiated Low Density Polyethylene", Journ. of KIEEME, Vol.13, No.11, pp.938-942, 2000
9. 家田正之 外 3人, "誘電體現象論", 日本電氣學會, pp.83-101, 1975
10. D. W. Clegg and A. A. Collyer, "Irradiation Effects on Polymers", ISBN 1-85166-563-3, 1991
11. M. Ieda *et al*, "Relationship between Electrical Conduction and Distribution of Polar groups in Low Density Polyethylene", 1993 25th International Workshop on Electrical Insulation Materials, Nagoya, Japan, Sept. 6-8, pp.297-300, 1993
12. 전춘생, "고분자 절연재료내의 Tree 성장과 유전손 특성에 미치는 초음파의 영향", 대한전기학회 논문지, 40권 12호, pp.1242-1251, 1991

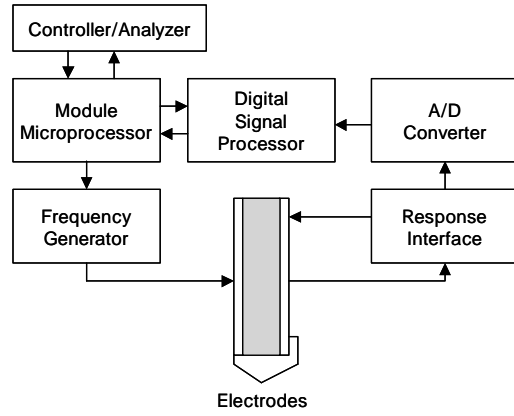


그림 1. 유전율 및  $\tan \delta$  측정장치의 개략도

Fig. 1. Block diagram of permittivity and  $\tan \delta$  measurement system

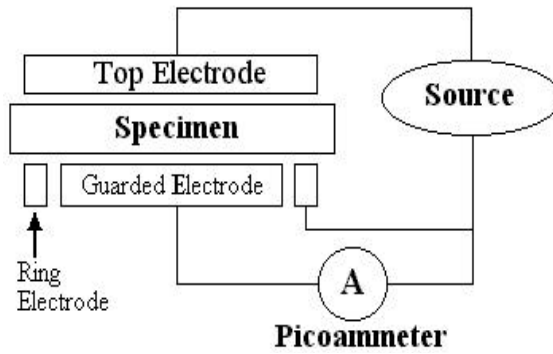


그림 2. 체적저항율 측정의 개략도

Fig. 2. Schematic diagram of volume resistivity measurement

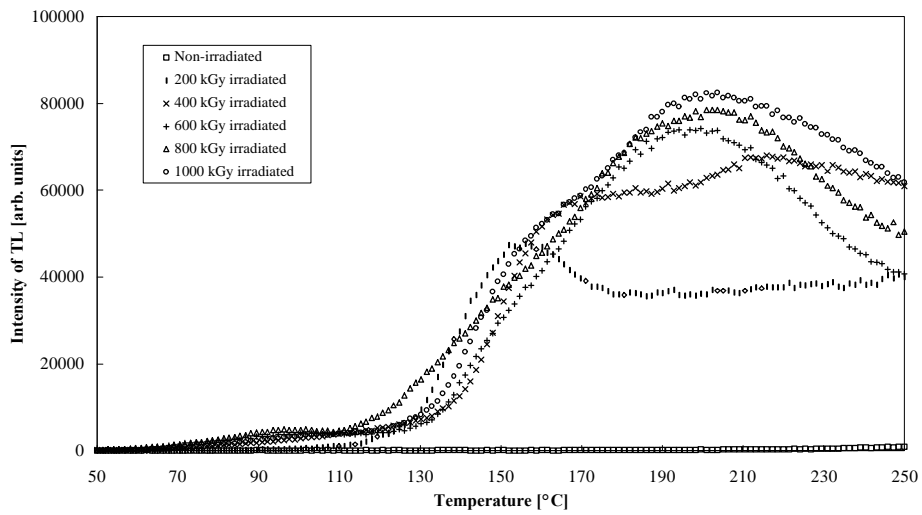


그림 3. 방사선 조사에 따른 열발광 스펙트럼  
 Fig 3. Spectra of thermoluminescence in irradiated LDPE

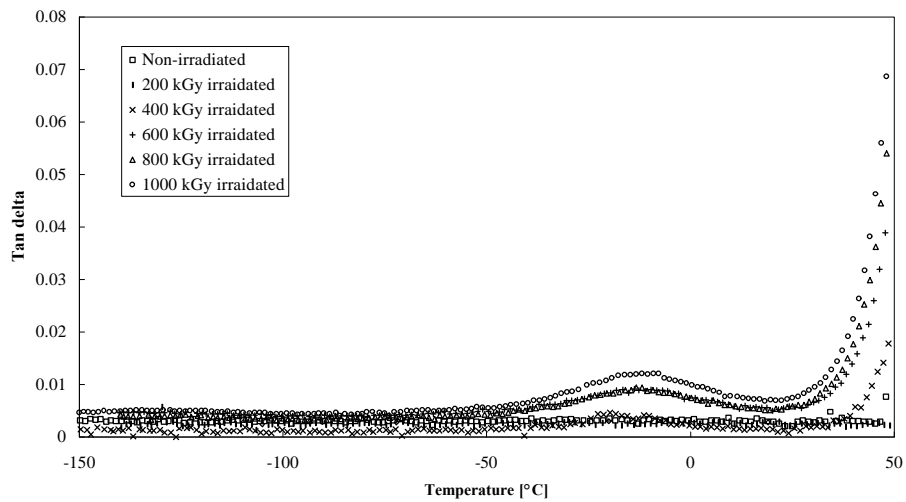


그림 4. 저밀도 폴리에틸렌의  $\tan \delta$  의 조사선량 및 온도 의존성  
 Fig 4. Temperature and dose dependency of  $\tan \delta$  on  $\gamma$ -ray irradiated LDPE

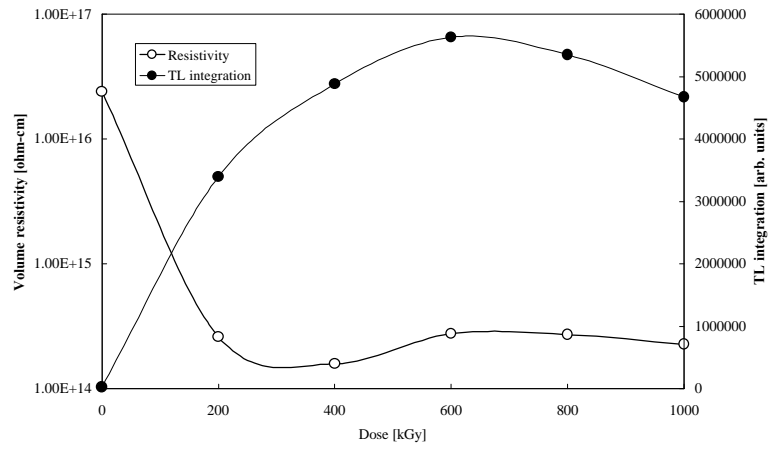


그림 5. 방사선 조사에 따른 저밀도 폴리에틸렌의 체적저항율 및 집적 열발광량 (50~250℃)  
 Fig. 5. Volume resistivity and TL integration between 50 to 250℃ of irradiated LDPE