'97 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

Mo-99 생산용 LEU 표적 핵설계

조 동건, 김 명현
경희대학교

손 동성
한국원자력연구소

요 약

하나로(HANARO)에서 Mo-99을 생산하기 위한 LEU(Low Enriched Uranium) 표적 설계를 하였다. 표적 길이 및 조사위치에 따른 Mo-99의 생성수율(Ci ^{99}Mo/gU) 변화를 분석하였으며, 표적 설계를 위하여 표적 두께, 반경크기, 밀도, 연료물질등을 채택하여 이들에 대한 민감도 분석을 수행하였으며, 수행결과 생성수율에 가장 영향을 미치는 설계변수는 표적 두께와 밀도로 나타났다. 표적 연료로 어떤 물질을 선택하던 거의 같은 생성수율을 나타내므로 핵적으로는 같은 성능을 나타냄을 확인하였다. 또한 열수력학 조건과 연간생산량을 만족하는 표적 핵연료 집합체 설계가 가능함을 확인하였다.

1. 서 론

핵의학 분야에서 진단용 방사선원으로 널리 사용되고 있는 ^{99m}Tc의 모핵종인 Mo-99은 연간 세계수요가 30만 Ci(6 day reference)이상에 달하고 있으나, 반감기가 67시간으로 짧아 비축될 수 없다. 그러므로 지속적이고 안정적인 생산이 요구되어지고 있다. 그러나 현재 세계 시장 수요의 90% 정도가 카나다 Nordion사에 의해 독점 공급되고 있는데, Mo-99 생산로인 NRU(National Research Universal) 원자로가 노후화로 인한 고장을 일으키거나, 노사분규가 발생할 경우 대체 공급원(back-up supply)이 없다[1,2,3].

대부분의 상업생산에는 많은 폐기물을 발생시키는 단점에도 불구하고 ^{235}U의 핵분열 생성물로부터 Mo-99을 추출하는 방법을 사용하고 있는데, 이는 Mo-99의 핵분열 생성율이 6.1%로 높으며, 비방사능(~10^4 Ci Mo-99/gMo)이 높아 제품의 질(quality)이 매우 우수하기 때문이다[1,2,3].

Fission Moly 생산용 표적으로는 HEU를 사용하는 것이 LEU를 사용하는 것에 비해 생성수율(Ci ^{99}Mo/gU)이 높으며, 폐기물 발생양이 적어 매우 유리하나, 최근 핵확산에 대한 우려 때문에 미국의 주도로 진행되고 있는 RERTR(Reduced Enrichment for Research and Test Reactors) 프로그램의 일환으로 모든 연구용 원자로의 핵연료 및 몰리브덴 생산 표적으로 저농축 우라늄을 사용할 것을 권장하고 있다[4]. 따라서, 본 연구에서는 '하나로'에서 핵분열 방법으로 Mo-99을 생산할 경우 LEU를 사용한 표적의 설계를 위하여 표적 길이 및 조사

위치, 표적 설계변수에 대한 민감도분석을 수행하였으며, 설계 제한 조건을 설정하여 표적 연료 집합체에 대한 최적의 핵설계를 하고자 하였다. 하나로의 운전조건 및 표적설계를 위한 계산 체계, 기초적인 표적의 핵특성에 대해서는 이미 발표[5]한 자료를 참조할 수 있으므로 본 논문에서는 생략하였다.

2. 표적의 조사위치 및 길이에 대한 생성수율 변화

하나로에서 Mo-99 생산을 위한 표적은 OR공에 장전될 수 있다. OR공은 열중성자 플럭스 (<0.625 eV)가 3.36×10^{14} nv로 높은 중성자속을 갖으며, 냉각재의 온도는 40℃이다. 60mm의 내경과 120cm의 길이를 갖으며, H_2O에 의해 상향 강제 대류 방식으로 냉각되므로 Fission Moly 표적이 장전되기에 적합한 조건을 가지고 있다. Mo-99 생산을 위한 OR공은 3,4,5,6,번공 4개 사용될 수 있다[6,7].

하나로는 잉여반응의 제어를 위해 하프늄 튜브를 제어봉으로 사용한다. 따라서 전 주기에 걸쳐 제어봉의 위치가 변하고 그렇기 때문에 중성자속 분포도 주기초에서 주기말까지 크게 변하게 된다. 표적의 길이 및 축방향 장전위치를 결정하기 위해서는 각 OR의 중성자속 분포를 알아야 한다. 그림 1 및 2는 3,4,5,6번 OR공의 주기초와 주기말의 열중성자속 분포를 나타낸다. 예상했던 바와 같이 주기초에는 제어봉이 로심바닥으로부터 25cm까지 삽입되므로 중성자속이 아래로 많이 치우침을 볼 수 있으며 주기말에는 제어봉이 노심 상부로부터 10cm까지 인출되므로 일반 상업로와 같은 중성자속 분포를 나타낸다. 특히 제어봉과 가까이 있는 4,5번 OR공은 주기초에서 주기말까지의 중성자속 변화가 더 큼을 볼 수 있다. 본 연구에서는 3,5번 OR공을 사용한다는 가정하에 표적설계 계산을 수행하였다.

표적의 길이 및 축방향 조사위치를 결정하기 위하여 변수해석을 수행하였다. 표 1은 표적의 길이와 위치변화에 따른 Mo-99의 생성수율을 비교한 것이다. 표적길이 40cm를 기준으로 30cm인 경우 3% 정도의 이득을 가져왔으며, 50cm인 경우 약 5% 정도의 손해를 가져왔다. 또한 주기초에서 주기말까지 가장 일정한 생성수율을 나타내는 위치는 표적 길이 40cm, 축방향 조사위치가 로심바닥으로부터 7.5cm에서 47.5cm에 위치(이하 40-7.5)할 때이다. 길이에 따른 생성수율의 변화가 크지 않으며, 상업적으로 한 주기에 걸쳐 생산량이 크게 변동되지 않는 것이 이상적이므로 표적 길이 및 위치는 40-7.5로 결정하였다.

3. 표적설계 변수 연구

표적 설계를 위하여 각각의 설계 변수에 때한 민감도분석을 수행하였다. 민감도 분석에 사용된 표적 물질로는 환형타입으로 재작된 압분체 형태의 UN 표적 연료를 사용하였으며 농축도는 19.75w/o를 사용하였다. 민감도 분석에 사용된 설계 변수로는 표적의 두께, 반경 크기, 밀도, 연료 재질, 피복재 재질 등이다.

- 두께

표적의 두께에 따라 생성수율이 어떤 영향을 받는지를 알아보기 위하여 표적의 두께를 변화시켜가면서 두께에 따른 Mo-99의 생성수율 변화를 살펴보았다. 그림 3에서 보는 바와 같이 표적의 두께가 얇을수록 기하학적 자기차폐 효과가 감소하므로 생성수율이 급격히 증가함을 볼 수 있다. 열수력학 안전변수인 최대 표면 열출력밀도(Max. Surface Heat Flux) 또한 두께가 얇을수록 핵분열로 인한 총 열출력이 적어지므로 감소하는 것으로 나타났다.

- **표적 반경크기**

표적의 반경을 크게 하면 제작해야할 표적 개수를 줄일 수 있으므로 이점이 있다. 따라서 표적 반경크기를 변화시켜가면서 Mo-99의 생성수율 변화를 살펴보았다. 계산결과, 그림 4에서 보는 바와 같이 표적의 반경크기에는 크게 영향을 받지 않는 것으로 나타났다. 이는 표적이 안쪽과 바깥쪽에서 모두 냉각되는 환형타입이므로 표적 반경크기의 변화에 따른 감속재 양의 변화가 크지 않기 때문으로 분석된다. 열수력학 안전변수인 최대 열출력밀도는 표적 반경의 크기가 증가할수록 근소하게 증가하는 경향을 나타냈다.

- **밀도**

표적 연료로서 압분체 형태로 제작하거나 분말형태를 사용한다면 집적도에 대한 자유도가 높다. 따라서 실제밀도 변화에 따라 생성수율 및 최대 표면 열출력 밀도가 어떻게 변하는 지를 알아보기 위하여 실제밀도를 변화시켜 보았다. 계산 결과 그림 5에서 보는 바와 같이 T.D의 %가 낮을수록 생성수율은 높게 나타났으며, 최대 표면 열출력 밀도는 낮아지는 경향을 보였다. 이는 두께가 얇을수록 생성수율이 증가하고 표면 열출력 밀도가 감소하는 것과 같은 이유이다.

- **연료 재질**

표적 연료로서 어떤 물질을 사용하는 것이 핵적으로 유리한지를 알아보기 위하여 우라늄 장전양을 일정하게 유지시키면서 각 물질에 대한 민감도분석을 수행하였다. 표 2는 민감도 분석에 사용된 표적 연료 물질과 결과를 나타낸다. 계산 결과, 표 2와 그림 6에서 보는 바와 같이, 같은 우라늄양이 장전되면 표적 연료로 어떤 물질을 선택해도 핵적으로는 같은 생성수율을 나타냄을 볼 수 있다. 그리고 두께에 따른 생성수율의 영향이 가장 적은 물질은 UO_2 연료를 분말형태로 제작하는 것과 하나로 핵연료인 U_3Si-Al 연료이나 U_3Si-Al는 Si를 함유하고 있어 Mo을 분리하는 공정에서 어려움이 많으며, 다량의 Al을 함유하고 있어 폐기물 처리에도 문제점이 많다.

- **피복재**

Fission Moly 표적의 피복재로 Al, Zry 및 S/S 등이 사용될 수 있다. 이에 각각에 대한 민감도 분석 수행결과, 생성수율에 있어서 Al과 Zry는 비슷하나 S/S은 Al과 Zry 비해 약 3% 정도의 생성수율 감소를 가져왔다.

4. LEU 표적 집합체 설계

앞의 민감도분석 수행결과를 바탕으로 저농축 우라늄을 사용하여 하나로 조건에 맞도록 Mo-99 생산용 표적 핵연료 집합체를 직접 설계하여 보았다.

설계 제한 조건은 다음과 같다.

가) 표적은 가능한 국내제작이 가능해야 한다..

나) Mo-99의 생성수율은 가능한 한 높게 설계되어 폐기물의 양이 적게 발생되어야 한다.

다) 상업성을 위하여 Mo-99의 연간 생산량은 6만 Ci (6day reference 기준) 이상이어야 한다.

라) 열수력학 안전성 측면에서 표적의 최대 열출력 밀도는 2.76 MW/m^2보다 작게 설계 되어야 한다.

앞에서 표적 연료로 어떤 물질을 선택하든 핵적으로는 같은 성능을 유지한다는 결과와, 국내제작이 가능해야한다는 설계요건에 따라 표적 연료는 UO_2 분말을 표적연료로 사용하기로 결정하였으며, 표적 연료로서의 UO_2 분말은 그림 6에서 보는 바와 같이 두께에 따른 생성수율의 변화가 크지 않으므로 상업적으로 쉽게 구할수 있는 두가지의 크기의 Zry-4 피복관을 활용하고 UO_2 분말을 vibratory compaction하여 그림 7과 같은 연료봉을 제작한후 표 3과 같은 6가지의 핵연료 집합체안을 구성하였다. 계산 결과, 모두 연간생산량을 만족시켰으며, 이중 열수력학 조건을 만족시키는 것은 Case 3과 6이었다.

Mo-99 생산용 표적 집합체는 운전중에 장입해야 하므로 잉여반응도가 적은 것이 유리하다. 이러한 측면에서는 Case 6이 더 유리하다. 따라서 설계 제한조건을 만족시키는 설계안 Case 6을 도출해 내었다.

5. 결 론

하나로를 이용하여 핵분열방법으로 Mo-99을 생산할 경우, 40cm의 길이 표적을 로심바닥으로부터 7.5cm에 조사시키는 것이 생산수율이 크게 변동되지 않는다는 측면에서 가장 유리한 것으로 나타났다. 표적 설계 변수 연구에 있어서는 생성수율에 영향을 주는 인자는 두께 및 밀도였으며, 각 연료 물질에 대한 민감도 분석 수행 결과, 같은 우라늄양이 장전되면 구성물질에 상관없이 같은 생성수율을 나타내므로 핵적으로는 같은 성능을 나타내는 것으로 나타났다. 표적 집합체 설계에 있어서는 열수력학 안전성과 상업성을 만족시키는 집합체 설계가 가능함을 보였다

참고문헌

1. S. C. Mo "Production of ^{99}Mo Using LEU and Molybdenum Targets in a 1MW TRIGA Reactor," Proc. 16th Int. Mtg. on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, October 4-7, 1993, Oarai, Japan, JAERI-M 94-042, pp. 394-400 (March 1994).
2. J. L. Snelgrove et al., "Development and Processing of LEU Targets for ^{99}Mo Production-Overview of the ANL Program," 18th International Meeting, Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Preceedings, Paris, September 18-21, 1995.
3. Richard L. Coats and Edward J. Parma, "Medical Isotope Production:A New Research Initiative for the Annular Core Research Reactor," Proceedings of the 1994 Topical Meeting on Advances in Reactor Physics, Knoxville, Tennessee, April 11-15, 1994
4. 김병구 외, "Feasibility Study on Fission Moly Target Development," KAERI/RR-1595/95, 1996.
5. 조동건, 김명현, "HANARO Fission Moly Target으로서의 LEU와 HEU의 특성 비교", 97춘계학술발표회 논문집, 한국원자력학회, 1997.
6. "하나로 안전성분석 보고서", KAERI/TR-710/96, 한국원자력연구소,1996.
7. 김학노, "MCNP를 이용한 다목적 연구로의 핵설계 전산체계에 대한 검증 연구", KAERI/책임-30/94, 1994.

표 1. 표적 길이 및 위치에 따른 Mo-99 생성수율

구 분 / 표적길이	표적의 위치(cm) (Bottom 기준)	생성수율 (Ci ^{99}Mo/gU)				
		BOC	MOC	EOC	Avg.	Yield Ratio to 40cm-M(*Wh*)
30cm	10.0	4.537±0.0120	4.677±0.0120	4.298±0.0120	4.504	1.045
	13.5	4.482±0.0120	4.516±0.0120	4.398±0.0120	4.465	1.036
	17.0	4.409±0.0125	4.478±0.0121	4.428±0.0121	4.438	1.030
40cm	4.0	4.311±0.0109	4.362±0.0107	4.017±0.0109	4.230	0.982
	7.5	4.323±0.0110	4.326±0.0107	4.278±0.0107	4.309	1
	11.0	4.336±0.0110	4.317±0.0109	4.197±0.0106	4.283	0.994
50cm	1.0	4.175±0.0099	4.112±0.0099	3.996±0.0099	4.094	0.950
	3.5	4.144±0.0100	4.106±0.0099	3.985±0.0098	4.078	0.946
	6.0	4.107±0.0101	4.170±0.0099	4.060±0.0098	4.112	0.954

표 2. 각 표적 연료 물질에 따른 생성수율 (Ci ^{99}Mo/gU)

구 분 / ^{235}U 장전량	U-metal	U_3Si-Al	U/Al2 Alloy	UN solid	UN powder	UO2 solid	UO2 powder
10 g	6.374±0.0093	6.453±0.0092	6.351±0.0093	6.472±0.0093	6.361±0.0099	6.526±0.0092	6.463±0.0112
17.5 g	4.975±0.0091	4.993±0.0091	5.061±0.0090	4.985±0.0090	4.901±0.0096	5.094±0.0110	5.075±0.0091
25 g	4.108±0.0090	4.153±0.0090	4.226±0.0090	4.225±0.0096	4.053±0.0097	4.163±0.0089	4.189±0.0110

표 3. 집합체 장전에 따른 우라늄 장전량 및 열출력 밀도

Case #	Rod #/Ass.	% T.D	Total U-235 Loading (Kg)	Reactivity Worth (%$\Delta\rho$)	Avg. LHR (Kw/m)	Max. LHR (Kw/m)	Max. SHF (MW/m^2)
1	7	70	424.3	0.8473±0.00068	175.9±0.0058	247.4±0.0647	3.034±0.0647
2	7	50	303.0	0.7036±0.00068	159.7±0.0059	238.8±0.0631	2.929±0.0631
3	7	30	181.8	0.6644±0.00065	131.6±0.0055	197.0±0.0590	2.292±0.0590
4	3	70	181.8	0.5488±0.00073	223.8±0.0073	314.0±0.0536	3.850±0.0536
5	3	50	143.6	0.3957±0.00072	199.2±0.0074	276.3±0.0558	3.388±0.0558
6	3	30	77.9	0.4155±0.00072	133.6±0.0076	165.5±0.0535	3.477±0.0535

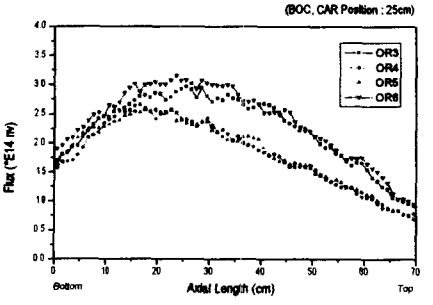

그림 1 각 OR공의 주기초 열중성자속 분포

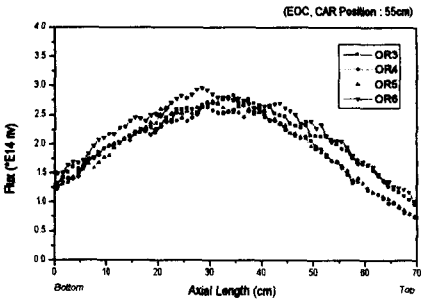

그림 2 각 OR공의 주기말 열중성자속 분포

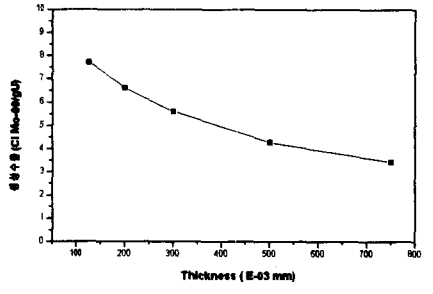

그림 3 표적 연료 두께에 따른 Mo-99의 생성수율 변화

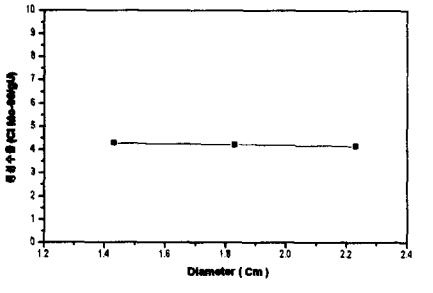

그림 4 표적 반경크기에 따른 Mo-99 생성수율 변화

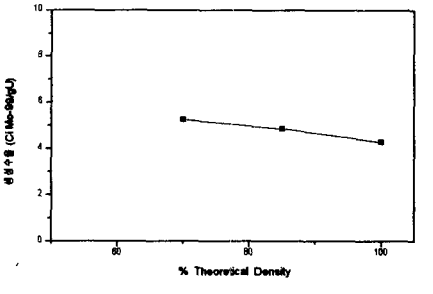

그림 5 밀도에 따른 Mo-99 생성수율 변화

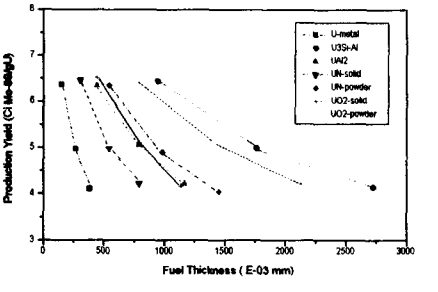

그림 6 물질에 따른 Mo-99 생성수율 변화

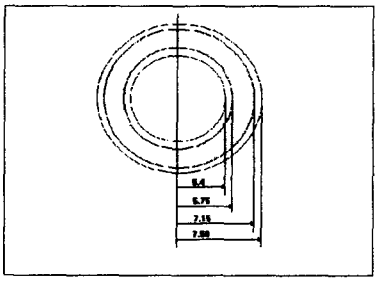

그림 7 Mo-99 생산용 표적 평면도