

## 원자로 RI 생산용 조사용기 제작 및 시험

박울재, 한현수, 조운갑, 홍순복, 이철영  
한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

### 요 약

방사성동위원소 생산용 표적을 중성자 조사하기 위해 하나로의 제반 특성을 고려하여 조사용기를 개발하였다. IP(Isotope Production), HTS(Hydraulic Transfer System) 조사공별로 내·외부용기를 제작하였으며 재료는 검증된 Al-1050을 사용하였다. 내부용기는 냉간용접(Cold Welding) 하고, 외부용기는 TIG(Tungsten Inert Gas) 또는 전자빔으로 용접한 후 He을 충전하고 밀봉하였다. 조사용기의 건전성을 입증하기 위해 기포누설시험, 내압시험, 가열시험, 침투탐상시험, He 누설시험을 수행하였다. 기포누설시험 결과 내부용기는 90% 이상이  $3 \times 10^{-6}$  atm.cc/sec 이하의 누설율을 보였고, 내압시험 결과 파단압력은  $28 \text{kg/cm}^2$  정도였다. 외부용기는 TIG 용접시 70%, 전자빔 용접시 90% 이상이 누설율  $1 \times 10^{-8}$  atm.cc/sec 이하였다. 개발된 조사용기를 사용하여 하나로에서 200여회 방사성동위원소를 생산하였으나 중성자 조사중 누출을 포함한 기타의 문제가 발생하지 않았다. 조사용기 개발에서 확립된 밀봉시험, 내압시험 및 가열시험 방법은 기체표적이나 내압이 발생하는 표적용기의 개발 및 시험에 응용할 수 있다.

### 1. 서 론

방사성동위원소 생산과정은 크게 표적제작-중성자 조사-조사된 표적의 운반 및 해체-화학처리 및 가공-품질관리-반출로 구성된다. 표적은 조사 대상인 표적물질과 이것을 포함하는 내·외부 조사용기로 구성되며, 이중 조사용기는 원자로의 특성이나 조사위치에 따라 여러 가지로 분류되며 조사 후 취급방법도 달라진다. 1995년까지 사용한 연구로 1, 2호기에서는 중성자속이 낮고 조사공에 냉각수가 채워지지 않은 상태에서 중성자를 조사하여 표적 제작에 큰 어려움이 없었다. 그러나 하나로의 경우 최대 열출력은 30 MW로 연구로 2호기 보다 15배 가량 높고 최대 중성자속도 10배 가까이 높으며, 표적이 냉각수와 직접 접촉하는 Open-Tank-In-Pool형이어서 방사성동위원소 생산용 표적의 조사중 안전성 유지와 방사성오염 방지를 위해 새로운 조사용기의 개발이 필요하게 되었다.<sup>1)</sup>

본 연구에서는 하나로 특성 및 중성자 조사 시설에 적합한 조사 용기를 제작하고 그 성능을 시험 평가하여 중성자 조사중에 발생할 수 있는 사고를 대비하고 표적을 표준화함으로써 취급장비 개발과 방사선 작업등의 일관성을 유지하고자 하였다.

### 2. 조사용기제작

고출력의 원자로를 이용한 표적 조사에서는 원자로의 안전성 유지, 냉각수 오염방지, 표적의

침수보호 등을 고려하여 이중으로 된 내·외부용기를 사용한다. 용기의 재질은 중성자 포획 단면적이 작거나 중성자 조사 후 생성핵종의 반감기가 짧고, 열전도율 및 기계적 성질도 좋아야 하기 때문에 PE 나 poly-imide와 같은 유기중합체, 석영, Al, 스텐레스강 등이 사용된다. 본 연구에서는 핵반응 특성, 물리적 특성, 순도, 가공성, 가격 등을 고려하여 표준용기의 재질로 Na, Mn, Cu의 함유량이 적은 Al-1050을 사용하였다.

## 2.1 내부 조사용기

내부 조사용기는 중성자 조사 대상인 표적물질을 넣어 밀봉상태를 유지하는데 사용한다. 표적물질이 들어있는 Al 용기에 열을 가하여 용접을 하는 경우에는 용기내부의 공기팽창에 의해서 핀홀이 발생하고 표적물질도 변화될 가능성이 있으므로 냉간용접으로 내부용기를 제작하였다. 제작된 표준형 HTS, IP용 내부 조사용기의 세부도면 및 치수는 Fig. 1과 같다.

냉간용접을 위하여 가공한 몸체와 캡을 중성세제로 닦고 2.5 N-NaOH 용액에 침지하여 불순물을 제거했다. 증류수로 세척하여 30%-CH<sub>3</sub>COOH 용액에 담근 후 꺼내어 다시 증류수로 세척하였다. 이 용기를 건조기에서 120°C로 완전 건조시킨 후 몸체와 캡의 접촉면에 생긴 산화막을 제거하였다. 냉간용접기에 장전한 후 유압프레스를 사용하여 0.5 ton/cm<sup>2</sup>의 압력을 가해 밀봉했다.

## 2.2 외부 조사용기

하나로에 설치된 HTS 및 IP 조사공은 내경이 39mm, 58mm 이고, 표적냉각방식이 수냉식으로 설계되어있다.<sup>2)</sup> 외부 조사용기는 직접 냉각수와 접촉하므로 발열, 내압상승, 조사중 부력을 견딜 수 있는 충분한 두께를 가져야 하며 용접할 때 용접열에 의해 팽창되는 내부 공기가 빠져나갈 수 있도록 0.5 mm 내외의 핀홀을 만들어 용접부위의 blow hole 발생을 방지하고 누설검사를 위하여 He 충전할 수 있도록 고려하여 제작하였다. 표준형 HTS, IP용 외부 조사용기의 세부도면 및 치수는 Fig. 2와 같다.

표적물질이 들어있는 내부용기를 장전하기 위해 가공된 몸체와 캡에 대한 외관 및 치수 검사를 실시한 후 내부용기와 동일한 방법으로 세척했다. 가공한 외부용기 중 20개를 선택하여 냉간용접된 내부용기를 외부용기에 넣고 상하로 흔들리지 않도록 알루미늄 박막을 충전제로 넣은 다음 10개는 TIG 용접하고, 나머지는 전자빔을 이용하여 용접하였다. 마지막으로 핀홀을 통하여 He를 충전한 후 He 분위기에서 핀홀을 TIG 용접하여 밀봉하였다.

## 3. 조사용기의 건전성 시험

사용되는 용기의 재료 검정 및 용접이 끝난 내·외부 조사용기의 건전성을 시험하였다. 내부용기는 기포누설시험, 내압시험, 가열시험<sup>3)</sup>을 하였고 원자로 수중에 직접 접촉하는 외부용기는 용접부위에 대한 침투탐상시험 및 He 누설시험을 하였다.

### 3.1 재료시험

조사용기에 사용되는 Al-1050을 원자로에서 방사화시켜 불순물 함량을 분석하였다.  $5 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>.sec 중성자속을 가진 조사공에서 10시간 조사한 후 냉각하여 불순핵종의 감마스펙트럼을 측정하였다. 불순핵종 검출에는 GMX-p HpGe detector가 부착된 다중과고분석기를 사용하였다.

### 3.2 내부 조사용기

내부 조사용기의 건전성을 시험하기 위해 첫 번째로 기포 누설시험을 수행하였다. 에틸렌글리콜 용액이 들어 있는 용기를 사전에 감압하여 용액 자체의 기포를 제거한 다음 내부용기를 용액에 충분히 잠기도록 넣은 후 30초 동안 100 mmHg 이하로 감압하여 기포 발생여부를 검사했다. 두 번째로 압접부의 기계적 강도 및 내압도를 측정하기 위해 내압시험을 수행하였다. IP용 내부용기의 표준형 치수에서 몸체와 캡의 두께를 Table 1과 같이 변화를 주어 가공한 후 각각을 조합하여 냉간용접을 하였다. 접합부위에 발생하는 슬러지의 양과 용기 몸체와 캡의 일치정도를 육안으로 조사한 결과  $B_1C_1$ ,  $B_2C_1$ ,  $B_3C_3$ 의 조합상태가 가장 우수했으므로 이들 용기 각각을 5개씩 취하여 밀봉부에  $\phi$  6mm의 홀을 뚫고 준비된 커넥터를 TIG 용접하여 압력시험 용기를 제작하였다. 제작된 압력시험 용기를 수압시험장치(Fig. 4)의 커넥터에 연결한 후 시험장치의 핸들을 서서히 움직여  $20\text{kg/cm}^2$  까지 압력을 가했다. 이상유무를 살핀 후 완전히 파괴될 때까지 압력을 가하여 내압강도를 측정하였다. 마지막으로 조사중에 발생한 열에 의한 용기의 물리적인 변화를 측정하기 위하여 가열시험을 수행하였다. 밀봉시험에 통과한 5개의 내부용기를 전기로에 넣어  $450\pm 2^\circ\text{C}$ 에서 30분간 가열하였다. 이 용기를 실온으로 냉각 후 기포누설법에 의한 밀봉시험을 수행하였다.

### 3.3 외부 조사용기

외부 조사용기 용접부위의 내부 결함을 관측하기 위하여 비파괴 검사법 중의 하나인 침투탐상 시험을 수행한 후 X-ray를 찍어 분석하였다. 전자빔으로 용접한 용기 중 5개를 임의로 선택하여 X-ray 투과검사를 했으며 촬영조건은 전압 120kV, 전류 5mA 이었다. 또한 검출감도가 최대  $2 \times 10^{-11}$  atm.cc/sec인 He 누설 검사장비(ASM 181T)를 이용해 He 누설시험을 하였다. 진공 챔버에 준비된 표적용기를 넣은 다음 감압하면서 누출되는 헬륨을 질량분석기로 검출하여 누설여부를 측정했다.

## 4. 시험결과 및 고찰

중성자 방사화 분석에 의한 Al-1050 재료시험 결과는 Table 2와 같다. 핵종분석 결과 장반감기 핵종인 Ga-72, Cr-51, Fe-59 등이 0.4% 정도로 조사용기의 재질로서 사용하는데 문제가 없음을 확인할 수 있었다.

내부용기의 기포누설시험에서는 100mmHg 감압하에서 30초 이내에 기포발생이 없으면  $3 \times 10^{-6}$  atm.cc/sec 이상의 누출구멍이 없는 것으로 판정했으며 시험 내부용기의 90% 이상이 통과하였다. 제작된 13개의 내부용기에 대해 수압시험장치를 이용하여 내압시험을 수행하였고 그 결과를 Table 3에 요약하였다. 대부분의 용기가 압접부에 균열이 생겨 누설되거나, 캡의 바닥부분이 팽창되면서 순간적으로 파괴되는 현상을 보였으며 최소  $20\text{kg/cm}^2$ , 최대  $40\text{kg/cm}^2$ , 평균  $28\text{kg/cm}^2$ 의 파괴압력을 보였다. 시험결과에서 내압이 가장 높았던 No. 11-13 내부용기는 캡 상부의 두께를 얇게 한 경우로, 압접 후 몸체와 캡의 끝점이 일치했고 슬러지의 양도 가장 적었으므로 캡을 제작할 때 바닥의 두께를 약간 늘리면 내압에 대한 상승효과를 가져올 수 있을 것이다. 내부용기의 가열시험 결과는 5개의 모든 용기에 대해 외관상 아무런 변화가 없었고 밀봉시험시 누설도 발생하지 않았다.

시험 결과로부터  $\text{TeO}_2$ ,  $\text{MoO}_3$  등의 분말표적이나, Ir 금속표적을 사용할 경우는 충분한 건전성

이 입증되었지만 기체표적이나 내압이 많이 발생하는 표적에 대해서는 더 높은 압력에 견딜 수 있는 용기의 설계 및 재질선택, 압접방법 등을 개발해야 할 것으로 사료된다.

외부용기는 원자로의 냉각수와 직접 접촉하기 때문에 높은 밀봉도가 요구되므로 에틸렌글리콜을 사용한 기포누설시험 대신 He 누설시험 및 침투탐상시험을 수행하였다.

He 누설시험의 합격기준을  $1 \times 10^{-8}$  atm.cc/sec 이하로 정하고 시험한 결과 TIG 용접의 경우 70% 이상, 전자빔 용접의 경우 90% 이상의 합격률을 보였다.(Table 4) 또한 전자빔으로 용접한 5개의 시편에 대해 침투탐상시험한 결과 용접부위에 crack이 발견되지 않았으며 용접 bead의 깊이 및 폭이 1.5mm 이하, 2.0-3.0mm로 밝혀졌고, X-선을 투과하여 용접부분을 검사한 결과 bead 내의 blow hole 발생이 없었다.(Fig. 5)

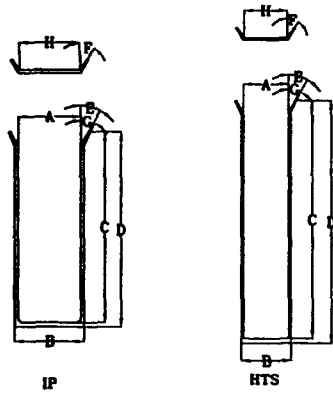
상기 결과로부터 TIG 용접보다는 전자빔용접이 밀봉 면에서 훨씬 우수한 것으로 밝혀졌고 또한 겉모양에 있어서도 용접부분이 깨끗하여 추가가공이 필요하지 않기 때문에 외부용기 용접이나 누출확율이 높은 표적용기는 전자빔용접을 이용하는 것이 바람직하다.

## 5. 결론

하나로의 수증 조사공에 투입되는 RI 생산용 조사용기 및 관련 기술을 개발하였다. IP 및 HTS 조사공용 표적을 내·외부 조사용기로 나누어 제작하여 시험한 결과, 내부용기는 90% 이상이 밀봉도  $3 \times 10^{-6}$  atm.cc/sec 이하였고,  $28 \text{kg/cm}^2$  정도의 내압에 견디는 것으로 나타났다. 외부용기는 TIG 용접시 70%, 전자빔 용접시 90% 이상이  $1 \times 10^{-8}$  atm.cc/sec 이하의 밀봉도를 유지하였다. 외부용기 용접에서는 TIG용접보다는 전자빔용접이 겉모양뿐만 아니라 밀봉 면에서 훨씬 우수한 것으로 나타나 외부 용접이나 누출확율이 높은 표적은 전자빔용접으로 제작하는 것이 바람직하다. 개발된 조사용기 제작법과 시험평가 기준에 적합하도록 방사성동위원소 생산용 표적용기를 제작하여 하나로에서 200여회 방사성동위원소 생산에 사용하였으나 조사중 누출을 포함한 기타 문제가 발생하지 않았다. 조사용기 개발에서 확립된 밀봉시험, 내압시험 및 가열시험 방법은 기체 표적이나 압력이 발생하는 표적용기의 개발 및 시험에 응용할 수 있다.

## 참고문헌

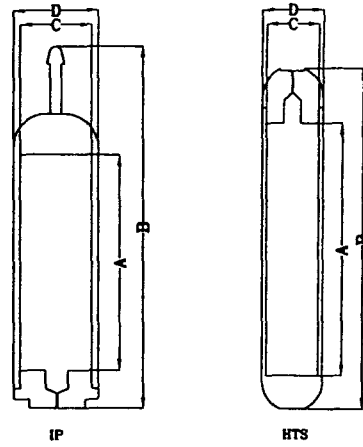
1. 김재록 외 13인, "방사성동위원소 생산 및 이용연구", Chap. 3, KAERI/RR-1362/93(1994)
2. 한국원자력연구소, "수력이송조사설비 설계보고서", Chap. A, KM-411-DM-T001(1994)
3. Hisamichi Yamabayashi et al., "Capsules used for radioisotopes production", JAERI/M-7972(1978)



**Dimension table unit : mm**

표기종류	A	B	C	D	E	F	G	H
IP	28	31	84	86	30°	35°	25°	27
HTS	20	22	105	107	30°	35°	25°	19

Fig. 1 Schematic Drawing of Inner Capsule



**Dimension table unit : mm**

표기종류	A	B	C	D
IP	95	160	34	38
HTS	111	150	24	28

Fig. 2 Schematic Drawing of Outer Capsule

Part Notations (mm)	Body			Cap		
	B <sub>1</sub>	B <sub>2</sub>	B <sub>3</sub>	C <sub>1</sub>	C <sub>2</sub>	C <sub>3</sub>
O <sub>1</sub>	30.95	30.95	30.95	29.00	28.10	28.10
O <sub>2</sub>	36.68	36.68	35.87	35.68	34.75	34.75
I <sub>1</sub>	28.05	28.05	28.05	28.20	27.00	27.00
I <sub>2</sub>	35.78	35.78	34.83	34.64	33.30	33.70
T <sub>1</sub>	0.45	0.55	0.52	0.52	0.725	0.525
T <sub>2</sub>	0.95	1.05	1.30	0.85	1.10	1.10
T <sub>3</sub>	6.3	6.5	6.0	6.05	6.05	6.05
T <sub>4</sub>	6.9	6.9	6.0	4.5	4.5	4.5

Table 1. Dimension of Part of Inner Capsule

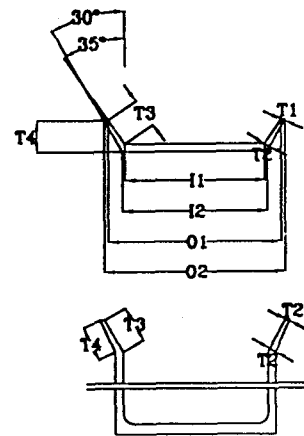


Fig. 3 Symbols used in Table 1

Element	Ga	Cr	Au	Sb	U	Fe	Ta	Mo	La	As	W	Zn	Co	Cu
Al-1050 (ppm)	282	9.41	13.8	0.31	2.03	3298	131	-	-	-	-	-	-	-

Non Detectable

Table 2. Element Composition Analysis of Al-1050 Material  
by Neutron Activation Analysis

Type	Sample	Partial Rupture Pressure(kg/cm <sup>2</sup> )	Breakdown Pressure(kg/cm <sup>2</sup> )
B <sub>1</sub> C <sub>1</sub>	1	-	30, Rupture of weld surface
	2	22	30, "
	3	-	25, "
	4	20	25, "
	5	24	28, "
B <sub>2</sub> C <sub>1</sub>	6	24	25, "
	7	24	26, "
	8	23	25, "
	9	24	25, "
	10	24	26, "
B <sub>3</sub> C <sub>3</sub>	11	-	40, "
	12	38	40, "
	13	-	40, "

Table 3. Results of Internal Pressure Test

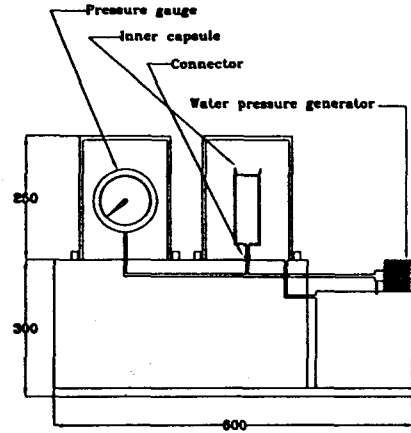


Fig. 4 Schematic Drawing of Apparatus for Internal Pressure Test

Sample No.	Welding Method	Leak Rate (atm.cc/sec)	Approval	Sample No.	Welding Method	Leak Rate (atm.cc/sec)	Approval
1	TIG	2.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	11	E. B.	2.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
2		6.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	12		2.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
3		5.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	13		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
4		5.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	14		6.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
5		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	X	15		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
6		5.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	16		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
7		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	17		8.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
8		5.0 x 10 <sup>-10</sup>	X	18		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
9		1.0 x 10 <sup>-10</sup>	X	19		3.0 x 10 <sup>-10</sup>	X
10		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O	20		7.0 x 10 <sup>-10</sup>	O
Passing Rate		70%		Passing Rate		90%	

Table 4. Results of Outer Capsule He-leak Test

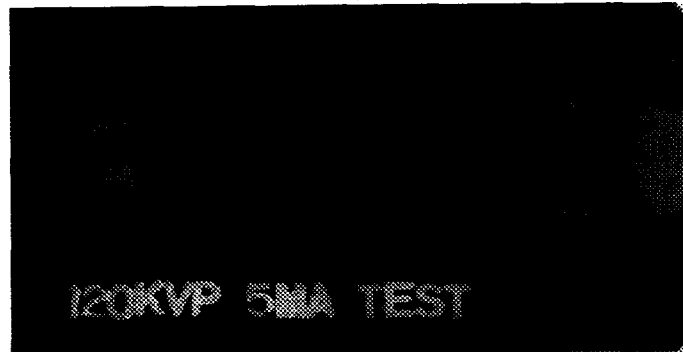


Fig. 5. Photograph of X-ray film