

HANARO Fission Moly Target으로서의 LEU와 HEU의 특성 비교

조 동진, 김 명현
경희대학교

요 약

하나로(HANARO)를 이용하여 핵분열 방법으로 진단용 방사선원인 ^{99m}Tc 의 모핵종인 Mo-99를 생산할 경우, HEU 및 LEU UO_2 표적이 사용될 수 있다. 표적연료로서 HEU(93w/o ^{235}U)가 LEU(19.75w/o ^{235}U)에 비해 생성수율(Ci/gU)이 높게 나타났으며 제품의 질(quality)을 좌우하는 비방사능(Ci ^{99}Mo /gMo)은 같게 나타났다. HEU가 같은 Mo-99의 방사능량을 얻기 위해서는 우라늄 장전량이 적어지므로 폐기물측면과 용해측면에서 이득이나 농축도를 고려하면, 큰 이득이 발생하지 않으므로 하나로에 LEU를 사용하는 것도 타당하다 할 수 있다.

1. 서론

핵의학 분야에서 진단용 방사선원으로 널리 사용되고 있는 ^{99m}Tc 의 모핵종인 Mo-99은 연간 세계 수요가 30만 Ci(6 day reference)이상이며 반감기가 67시간으로 매우 짧다. 그러므로 지속적이고 안정적인 생산을 요구하고 있다. 그러나 현재 세계 시장 수요의 90% 이상이 캐나다의 Nordion 사에 의해 독점공급되고 있어 대체 공급원(back-up supply)이 필요하다

Mo-99 생산방법에는 Mo-98에 중성자를 흡수시켜 Mo-99를 생산하는 방법과 ^{235}U 의 핵분열 생성물로부터 Mo-99을 추출하는 방법이 있다. Mo-98의 중성자 흡수방법에 의해 생성되는 Mo-99은 비방사능($\sim 10^4$ Ci Mo-99/gMo)이 낮으나 핵분열 방법에 비해 매우 간단하다는 잇점이 있다. 핵분열방법에 의해 생성되는 Mo-99은 핵분열 생성율이 6.1%로 높으며, 비방사능($\sim 10^4$ Ci Mo-99/gMo)이 높아 제품의 질이 매우 우수하다. 따라서 상업생산에는 많은 폐기물을 발생시키는 단점에도 불구하고 핵분열에 의한 Mo-99 생산방법을 택하고 있다.

연구용 원자로인 하나로(HANARO)는 30MWt의 열출력 및 높은 중성자 플럭스를 갖으며, LEU $\text{U}_3\text{Si}-\text{Al}$ 연료를 사용하고 있다. 로심 외부에 동위원소 생산이 가능한 OR공이 있다.

최근 핵확산에 대한 우려 때문에 미국의 주도로 진행되고 있는 RERTR(Reduced Enrichment for Research and Test Reactors) 프로그램의 일환으로 모든 연구용 원자로에 핵연료 및 몰리브덴 생산 표적으로 저농축 우라늄을 사용할 것을 권장하고 있다. 따라서, 본 연구에서는 하나로에

서 핵분열 방법으로 Mo-99을 생산할 경우 표적 연료로서의 LEU와 HEU에 대한 성능을 비교하여 향후 표적 핵연료 설계의 지침을 마련하고자 하였다.

2. 하나로(HANARO) 제원

하나로(HANARO)는 개방 수조형(open-tank in pool type) 원자로이며, H₂O에 의해 상향 강제 대류 방식으로 냉각되고 있다. 핵연료로 U₃Si 입자가 Aluminum matrix에 분산된 형태의 연료를 사용하며, 길이 70Cm, 19.75w/o 농축도를 갖는다. 감속재로는 H₂O/D₂O를 사용하며, 반사체로 D₂O를 사용한다. 내부 로심(inner core)에는 8개의 원형 유동관(circular flow tube)이 있으며, 이 유동관 안에는 18개의 핵연료 봉을 갖는 핵연료 다발이 장전된다. 또한, 20개의 육각형 유동관(hexagonal flow tube)이 있으며, 이곳에는 36개의 핵연료 봉을 갖는 핵연료 다발이 장전된다. 또 캡슐 테스트를 위한 3개의 6각형 유동관이 로심 중앙에 있다. 외부 로심(outer core)에는 8개의 고정식 원형 유동관이 있는데 4개는 18봉 핵연료 다발이 장전되며, 4개는 동위원소 생산을 위해 사용할 수 있도록 설계되어 있다. 내부 로심의 원형 유동관에는 원자로 정지를 위한 4개의 SOR(Shut Off Rods)과 원자로 제어를 위한 4개의 CAR(Control Absorber Rods)이 있다.

3. 조사 및 냉각 시간에 따른 Mo-99 특성 변화

조사 및 냉각에 따른 Mo-99의 특성을 알아보기 위하여 ORIGEN2 코드를 사용하여 단순 계산하여 보았다. 표적 연료는 19.75w/o LEU UO₂ 연료라 가정하였고, 표적에서 발생하는 열출력 밀도는 하나로의 평균열출력 밀도와 같다고 가정하였으며, 라이브러리는 PWR 라이브러리를 사용하였다.

그림 1은 LEU 표적을 장전한 후 계속 조사시켰을 경우 Mo-99의 생성 거동을 나타낸 그래프이다. 이 결과, Mo-99의 방사능은 반감기가 67시간으로 매우 짧아 약 20일 후에는 평형 상태에 도달함을 볼 수 있었다. 그리고 조사시간에 따른 생성율을 보면, 7일 동안 조사되었을 때 방사능이 평형상태값의 약 83%에 도달하였으며, 그 이상의 조사는 생성율과 붕괴율이 평형을 이루므로 방사능이 증가하지 않음을 알 수 있었다.

그림 2는 조사시간에 따른 Mo-99의 비방사능을 나타내는 그래프이다. 그림에서 보는 바와 같이 시간이 지남에 따라 핵분열로부터 생성된 폴리브텐 동위원소들이 안정화되므로 비방사능은 감소함을 볼 수 있다. 7일간의 조사후 원자로 인출시 Mo-99의 비방사능은 $\sim 10^4$ Ci이며, Mo-99의 비방사능은 조사시간의 함수임을 알 수 있다.

그림 3 및 4는 7일 동안 조사시킨 후 표적을 원자로로부터 인출하였을 경우 총방사능 및 붕괴열을 나타낸다. 조사된 표적은 높은 방사능을 가지므로 용해과정으로 들어가기 위해서는 어느 정도의 냉각 시간이 필요하다. 그림에서 보는 바와 같이, 약 하루 정도 냉각시키면 짧은 핵종이 많이 붕괴하므로 인출 시점에 비해 방사능이 약 34% 감소함을 볼 수 있다.

4. LEU 및 HEU 표적 장전에 따른 계산 결과

4.1 조사 조건 및 Fission Moly 표적 재원

하나로에서 Mo-99 생산을 위한 표적은 OR공에 장전된다. OR공은 열중성자 플럭스 (<0.625 eV)가 3.36×10^{14} nv로 높은 중성자속을 갖으며, H₂O에 의해 강제 대류 방식으로 냉각되므로 Fission Moly 표적이 장전되기에 적합한 조건을 가지고 있다. Mo-99 생산을 위한 OR공은 60mm의 내경을 갖으며, 4개 사용될 수 있다.

KAERI에서 제안한 Fission Moly 표적은 그림 5에서 보는 바와 같이, 각 OR공 한개 당 7개가 장전된다. 이 표적은 서로 다른 내경을 갖는 관 사이에 UO₂ 분말을 넣고 vibro-compaction한 형태이다. 표적의 내경은 10.8mm, 외경은 15.16mm이며, 표적 핵연료 두께는 1.4mm를 사용하였다. 표적 피복재로는 지르칼로이 튜브를 사용하였으며, 피복재의 두께는 0.34mm를 사용하였다. 핵연료의 밀도는 40% TD로 가정하였으며, 표적의 길이는 40cm, 표적의 높이는 플럭스가 가장 높은 중앙 위치에 놓인다고 가정하고 계산하였다. 이렇게 가정하였을 경우, 표적당 우라늄 장전량은 LEU (19.75w/o) UO₂ 연료인 경우 17.1g-²³⁵U, HEU(93w/o) UO₂인 경우 81.4g-²³⁵U이다.

4.2 계산모델 및 체계

핵특성 해석은 Monte Carlo code인 MCNP-4A를 사용하였으며, ENDF/B-V 라이브러리를 사용하였다. 계산모델은 하나로(HANARO) 전체 로심을 묘사한 후 OR3,4,5,6공에 그림 5의 Fission Moly 표적을 묘사하였다. 표적의 농축도로 93w/o, 19.75w/o LEU UO₂에 대해 각각 계산하였다. 중성자 선원으로 10,000 particles/cycle, 300 cycle을 사용하였다. 조사에 따른 표적당 Mo-99 생성량을 산출하기 위해 ORIGEN2 코드를 병행하여 사용하였다. Mo-99의 방사능은 앞서 선행한 결과를 바탕으로 7일의 조사시간, 1일의 냉각 시간, 1일의 용해시간으로 가정하고 Mo-99의 수율(6 day reference 기준)을 산출하였다.

4.3 결과 분석

표1은 Fission Moly 표적으로 HEU UO₂와 LEU UO₂가 장전되었을 때의 핵특성 결과를 보여준다. 표에서 보는 바와 같이 하나로(HANARO) 핵연료와 농축도가 같은 LEU 표적마저도 선출력 밀도가 하나로(HANARO) 설계제한치(design limit)인 90kW/m를 모두 초과하고 있어, 안전성측면에서 그림 5의 표적 설계형태는 재고되어야 하는 것으로 나타났다. 이는 기하학적 자기차폐가 많이 줄었기 때문으로 분석된다.

표 1. 우라늄 장전량 및 열 출력밀도

OR공 한 개당 7개의 표적, OR공 4개 모두장전시					
Enrichment	Total U Loading(Kg)	Reactivity Worth (% $\Delta \rho$)	Avg. Linear Heat Generation rate (Kw/m)	Max. linear heat generation rate (Kw/m)	Max. Surface Heat Flux(MW/m ²)
93w/o HEU UO ₂ Target	2.452	1.7674	206.5	280.9	5.898
19.75w/o LEU UO ₂ Target	2.455	1.1341	133.6	165.5	3.477

표 2는 조사에 따른 Mo-99의 생성량 및 수율을 나타낸다. 제품의 질(Quality)을 나타내는 비방사능은 농축도에 따라 서로 같게 나타났으며, 생성량 측면에서는 표적한개당(6 Day Reference 기준) HEU UO₂인 경우 458 Ci, LEU UO₂인 경우 296 Ci로 나타났다. 생성수율면에서는 Heavy Metal U당 HEU가 LEU에 비해 약 1.5배정도 많게 나타났으며 이는 우라늄 장전량이 1.5배 절감됨을 의미한다. 따라서 표적용해시 처리해야 할 양이 1.5배 감소되므로 처리 시간을 줄여 용해시 발생하는 Mo-99의 붕괴 손실을 줄일 수 있으며, 폐기물량도 줄일 수 있다.

표 2. 조사에 따른 Mo-99 생성량 및 수율

7일 조사시간, 1일 냉각 시간, 1일 용해시간, 6 day reference 기준				
Enrichment	표적당 ⁹⁹ Mo 생성량 (Ci ⁹⁹ Mo/Target)	비방사능 (Ci ⁹⁹ Mo/gMo)	1g U당 ⁹⁹ Mo 생성수율 (Ci ⁹⁹ Mo/gU)	1 Ci ⁹⁹ Mo생성을 위한 U 장전 요구량(gU/Ci ⁹⁹ Mo)
93w/o HEU UO ₂ Target	457.7	9.718×E+03	5.22	1.916×E-01
19.75w/o LEU UO ₂ Target	296.8	9.715×E+03	3.374	2.964×E-01

표 3은 용해시 발생하는 붕괴열 및 Pu 생성량을 나타낸다. 붕괴열은 HEU가 LEU에 비해 2.3배 정도 높게 나타났으며, Pu 생성량은 LEU가 HEU에 비해 34배정도 많이 생성되는 것으로 나타났다. 그러나, PWR 라이브러리를 사용하였으므로 라이브러리에 민감한 영향을 받는 액티나이드계열인 Pu 생성량은 다소 큰 오차를 나타낼 것으로 예상된다. 따라서 하나로의 라이브러리를 사용하여 재평가 하여야 할 것이다.

표 3. 표적 붕괴열 및 Pu 생성량

7일 조사시간, 1일 냉각 시간, 1일 용해시 기준			
Enrichment	Decay Heat (W/Target)	Pu Build-up (gPu/KgU)	Pu Production Ratio to 93w/o HEU UO ₂ Target
93w/o HEU UO ₂ Target	101.9	7.417 E-03	1
19.75w/o LEU UO ₂ Target	44.3	2.561 E-01	34.3

5. 결론

하나로 OR3, 4, 5, 6공을 이용하여 핵분열방식으로 Mo-99을 생산할 경우, KAERI 에서 제안한 그림 5 형태의 표적은 LEU, HEU 모두 선출력밀도(kW/m)가 설계 제한치를 초과하므로 표적 설

계는 다시 이루어져야 한다. Mo-99 생성수율(Ci⁹⁹Mo/gU) 측면에서는 HEU가 LEU보다 높게 나타나 다소 유리한 면을 나타냈다. 따라서, 장전해야 할 표적 연료량을 고려한다면, 같은 Mo-99의 생성량을 얻기 위해서는 HEU가 LEU에 비해 장전량이 줄어든다. 그러므로, HEU의 용해시간을 줄여 Mo-99의 붕괴 손실을 줄일 수 있고, 발생하는 폐기물 양도 줄일 수 있다. 그러나 HEU의 농축도를 고려한다면, 큰 이득이 발생하지 않으므로 Fission Moly 표적으로 LEU UO₂를 사용하는 것도 타당하다 할 수 있다.

참고문헌

1. S. C. Mo "Production of ⁹⁹Mo 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 ⁹⁹Mo 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. Choong Sung Lee, Byung Chul Lee, Chul Gyo Seo and Hark Rho Kim, "Criticality Measurement and Benchmark Calculation in HANARO," The 5th Asian Symposium on Research Reactors, Proceedings, Taejon, Korea, May 29-31, 1996.
5. J. Briesmeister, Editor, "MCNP-4A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4A," LA-12625-M, Los Alamos National Laboratory, 1993.
6. "Feasibility Study on Fission Moly Target Development," KAERI/RR-1595/95, 1996.

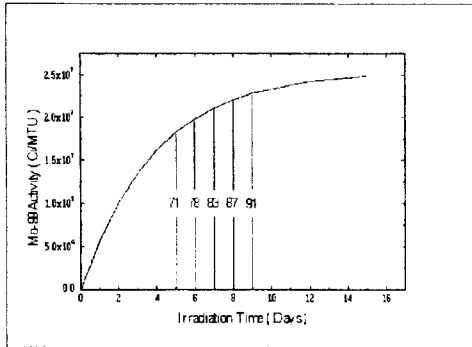


그림 1. 조사시간에 따른 Mo-99의 방사능 변화

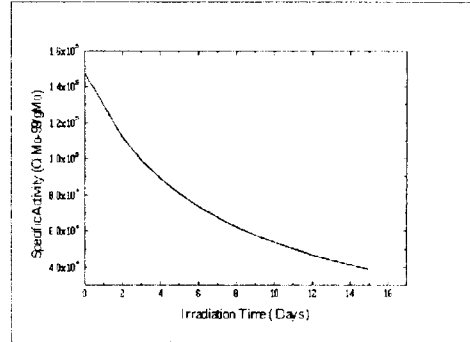


그림 2. 조사시간에 따른 Mo-99의 비방사능 변화

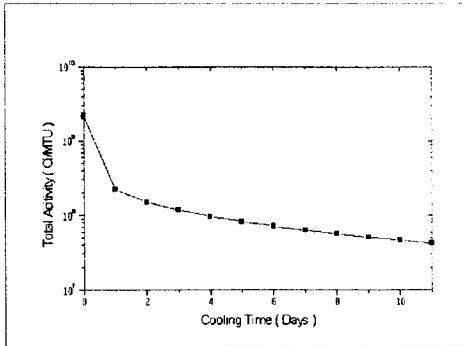


그림 3. 조사후 냉각시간에 따른 총방사능 변화

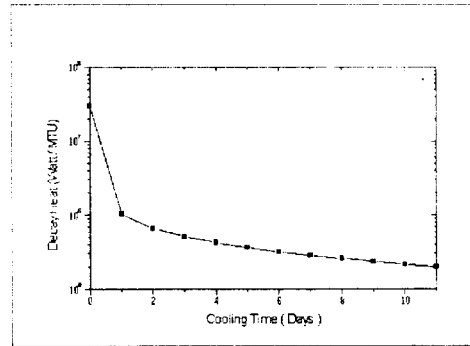


그림 4. 조사후 냉각시간에 따른 총붕괴열 변화

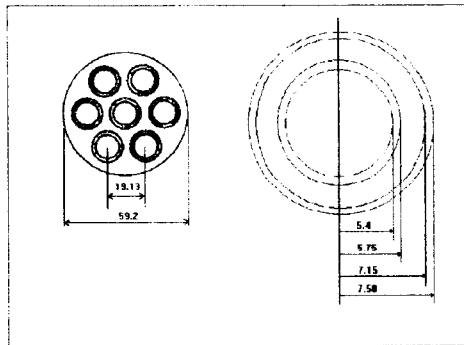


그림 5. Fission Moly Target Assembly 및 Rod