 논문

용탕자중공급 PFC 법을 이용한 의료용 동위원소 Mo-99 조사타겟용 우라늄박판 제조공정개발

심문수 · 김창규 * · 김기환 * · 김우정 * · 이종현 †

충남대학교 녹색에너지기술전문대학원, *한국원자력연구원

Development of Uranium-foil Fabrication Technology for Mo-99 Irradiation Target by Self Gravity Flowing for PFC Method

Moon-Soo Sim, Chang-kyu Kim*, Ki-Hwan KIM*, Woo-Jung Kim*, and Jong-hyeon Lee†

Graduate School of Green Energy Technology, Daejeon

*Research Reactor Fuel Development Division, KAERI, Daejeon

Abstract

In order to complement the drawbacks of quartz crucible such as fragile-like break and melt-leakage through open slit nozzle, a new PFC system has been developed using a common graphite crucible and plugging system. The u melt is fed on to the rotating a roll through slit nozzle by self-gravity. The new equipment was designed and manufactured successfully. An effort for optimizing all related parameter has been made. Then using the optimized parameters about 10 meters u foil having very thin thickness, which meets the target thickness of 130 μm and enough width more than 60 mm could be made. The thickness homogeneity set improved, due to the lower eddy flowing of the melt flow the self-gravity feeding system.

Key words : PFC, Uranium foil, Continuous Polycrystalline Foil, Mo-99, Tc-99m.

(Received August 22, 2011 ; Accepted September 30, 2011)

1. 서 론

의료용 동위원소로 널리 사용하는 Mo-99는 Tc-99m의 모원 소로서 주로 방사성동위원소 우라늄-235의 핵분열생성물에서 추출하여 제조한다. 특히, Tc-99m은 방사성동위원소 관련 의약품 중에서 암 진단 및 치료목적으로 가장 많이 쓰이고 있으며, 핵 의학 분야에서 80%의 활용률을 차지한다[1,2].

현재까지 Mo-99를 생산하기 위해 고농축 우라늄합금 UAl₃ 박판 타겟을 사용하여 왔으나, 향후 핵 비확산 정책으로 인하여 저농축의 우라늄박판이 사용될 것으로 전망된다. 그러나 기존의 우라늄합금 UAl₃ 박판은 열간압연과 열처리의 반복을 통해 제조되기 때문에 생산성 및 경제성이 떨어지는 단점이 있다[3,4].

이와 같은 단점을 보완하고자 한국원자력연구원은 용탕을 급냉응고시켜 연속주조법으로 박판을 제조하는 PFC (Planar Flow Casting)법에 착안하여 새로운 타입의 개량된 PFC법을 개발하였다[5]. 그러나 기존장치의 석영관도가니는 충격에 약하고, 고가의 비용 및 재활용이 불가능하기 때문에 석영관도가니에 의한 다량의 폐기물이 발생하며, 또한 석영관도가니의 용탕을 slit의 표면장력으로 유지하기 때문에 원료 장입량에 한계가 존재한다. 따라서 본 연구에서는 석영관도가니를 재활용이 가능한 흑연도가니로 대체하였고 Tundish 및 Pouring-plug를 설치

하여 용탕을 자중으로 공급하는 장치로 개량하였다.

박판의 제조를 위한 제조변수로는 도가니 및 tundish slit 온도, slit과 롤 사이의 간격 및 노즐의 형상, 롤의 회전속도 등이 있다. 개량된 PFC장치는 위의 제조변수들을 최적화하고, 조사표적의 요구조건인 너비 60 mm, 두께가 균일한 박판의 제조를 수행하였으며 또한 자중으로 용탕을 공급하는 개념을 구현하였다. 시제조한 우라늄박판시료의 치수측정, X-ray 회절분석 등을 통하여 박판을 평가하고 미세조직을 관찰하였다.

2. 실험 방법

2.1 PFC장치제작 및 공정조건수립

기존 PFC장비를 개량하여 용탕을 자중 공급하는 개념에 착안한 PFC장비를 제작하였다. Fig. 1(a)은 기존의 PFC공정도이며, Fig. 1(b)은 자중으로 용탕을 공급하는 개량된 PFC공정도이다. Fig. 1(a)에서는 고가의 석영관도가니를 사용하지만, Fig. 1(b)의 공정에서는 흑연재질의 도가니와 tundish를 사용한다. Fig. 2는 흑연tundish와 흑연pouring-plug의 사진이다. pouring-plug는 흑연도가니에서 출탕시 사용하였다. 고온에서 흑연과 용융된 우라늄의 상호반응을 억제하기 위하여 Y₂O₃를 붓으로 코팅을 하였다. Fig. 1(b)의 냉각롤은 Cu재질로 되어있으며, 너

†E-mail : jonglee@cnu.ac.kr

Fig. 1. U-foil fabrication flow sheet.

Fig. 2. The components of U-foil fabrication equipment; (a) crucible, (b) tundish-1, (c) tundish-2, (d) pouring plug.

Fig. 3. Vacuum planar flow caster for the fabrication of U-Foil.

비는 100 mm, 직경은 600 mm이다. 제조된 우라늄박판의 회수를 위하여 권선기를 제작, 설치하였다. Fig. 3은 본 실험에서 사용한 실제 PFC박판주조장치의 모습이다.

우라늄박판의 공정조건수립을 위한 제조실험을 실시하였다. 도가니에 DU (Depleted Uranium)잉곳을 약 3 kg 장입하고, 용탕

온도를 1300°C까지 승온 후에 1130~1200°C에서 출탕하였고, tundish온도 1220°C~1260°C, tundish의 slit gap은 0.4~0.7 mm, 회전롤-slit 간격은 0.6 mm로 하였다. 냉각롤의 회전속도는 1~3.5 m/s의 범위에서 실험하였다. 권선기의 회전수는 냉각롤의 회전속도에 준하는 값을 설정하였다. 우라늄은 산화성이 강한 물질이므로 진공챔버안에서 조업을 하였다.

2.2 우라늄박판의 특성평가

제조된 박판은 포인트-마이크로미터를 사용하여 두께를 측정하였고, 평균값은 박판의 무게와 너비 및 길이, 밀도로부터 계산하여 구하였으며, 제조변수에 따른 우라늄박판 두께의 변화량을 조사하였다. 제조한 우라늄박판은 거시적 조직 관찰을 위하여 Nitric acid 30 ml, Glacial acetic acid 30 ml, Glycerol 30 ml의 에칭액에 약 1분동안 에칭 후 광학현미경 관찰을 시행하였다. SEM관찰을 통해서 우라늄박판의 표면과 단면의 미세조직을 관찰하였다. 또한 X선 회절분석을 통하여 상 분석을 수행하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 4는 공정변수를 출탕온도 1180°C, tundish 1250°C, slit-gap 0.6 mm, slit-roll간격 0.6 mm 냉각롤 회전속도를 약 1.9 m/s로 설정하여 제조한 우라늄박판의 사진이다. 권선기를 통해 회수된 우라늄박판은 Fig. 4(a)에서와 같이 roll의 형태를 띠며 약 10m의 길이를 갖는다. Fig. 4(b)는 Fig. 4(a)와 같이 회수된 우라늄박판을 임의의 크기로 절단한 것이며, 절단한 우라늄박판은

Fig. 4. Shapes of fabricated U-foils (a) whole shape of U-foil (b) various cut piece of U-foil.

Fig. 5. Variation of U-foils thickness with roll velocity.

Fig. 6. Cracked U-foil (3 m/s).

약간의 굴곡을 갖고 있으나 가장자리 부분은 매끈하게 제조되었음을 관찰할 수 있다. 또한 약 10 m에 걸친 우라늄박판의 너비와 두께는 약 60 mm 및 200 μm로 균일하였다.

Fig. 5는 공정변수 중 냉각물의 회전속도(m/s)에 따른 우라늄박판의 두께변화를 나타낸 그래프이다. 냉각물의 속도가 증가함에 따라 우라늄박판의 두께는 역으로 감소하는 경향을 보인다. 이는 S. N. Tewari, D. Ma 등의 앞선 연구와 같은 것으로 Ag-19wt.%우라늄의 melt spun실험을 통해 냉각물의 회전속도가 증가할수록, melt-puddle의 접촉면과 시간이 감소하며 이에 따라 제조되는 박판의 두께가 감소함을 증명하였다[6,7].

Fig. 6은 냉각물을 약 3 m/s로 회전시키며 제조한 우라늄박판의 이미지이다. 우라늄박판의 중심부에 섬유형태로 크랙이 발생하고 좌우로 찢어지는 현상이 발생하였다. 또한 slit gap을 0.5 mm이하로 하였을 때, tundish내에서 용탕의 출탕이 원활히 이루어지지 못한 채 잔류하게 되어 그 상태로 응고하였다.

Fig. 7은 기존의 PFC법으로 제조한 우라늄박판(a)과 개량된 PFC법으로 제조한 우라늄박판(b)의 이미지이다. 용탕을 가압하여 우라늄박판을 제조하는 기존의 PFC법으로 제조한 우라늄박판(a)은 표면에 다수의 pin-hole과 굴곡이 관찰되며, 용탕을 자중으로 공급하여 우라늄박판을 제조하는 개량된 PFC법으로 제조한 우라늄박판(b)에서는 pin-hole 및 굴곡이 관찰되지 않았다.

Fig. 7. Compared U-foil (a) former PFC method (b) self gravity flowing PFC method.

Fig. 8. Cross section of U-foil.

이는 용탕에 압력을 가하면 냉각물과 tundish slit에서 분사되는 용탕이 충돌할 때 용탕의 과도한 유동을 야기시켜 고르지 못한 표면을 갖는 우라늄박판이 제조되는 반면, 자중으로 공급하게 되면 용탕의 유동속도가 낮지만 안정적으로 롤과 용탕이 접촉하면서 퍼들의 안정성이 증가되는 효과를 가져오는 것으로 해석되며 그 결과 고른 표면의 우라늄박판이 제조되었다.

Fig. 8은 Fig. 7의 (a), (b)를 사진의 세로방향, 즉 박판의 폭 방향으로 각각 절단하고, 단면을 광학현미경으로 관찰한 결과이다. 용탕을 가압하여 제조한 우라늄박판의 단면(a)과 비교하여 용탕을 자중으로 공급하여 제조한 우라늄박판의 단면(b)이 보다 편차가 적은, 균일한 두께를 갖고 있는 것으로 관찰되었다. Table 1은 (a)와 (b)의 우라늄박판을 포인트-마이크로미터로 평균값과 표준편차를 측정된 값이다. 용탕을 가압하여 제조한 우라늄박판이 갖는 두께의 표준편차는 23.5 μm로, 용탕을 자중으로 공급하여 제조한 우라늄박판이 갖는 두께의 표준편차 12.3 μm의 약 2배에 해당하는 값을 보였다. 이는 감압으로 인하여 용탕의 유동이 안정되면서, 외류 발생의 억제와 냉각물에서의 분포가 고르게 이루어진 상태로 응고되기 때문에, 비교적 균일한 두께의 우라늄박판이 제조된 것이라 해석된다. 또한 실제 동위원소생산에 사용되는 우라늄박판의 두께는 100~150 μm이며 표준편차는 ± 15 μm이다. 본 실험에 의해 제조된 박판은

Table 1. Variation of U-foil thickness according to injection pressure

Point Pressure	1	2	3	4	5	6	7	8	9	Average Thickness(μm)	Standard deviation(μm)
melt pressure (μm)	106	155	86	135	131	116	108	158	117	124	23.5
self gravity (μm)	150	148	130	117	120	147	141	127	138	135	12.34

평균두께는 135 μm , 표준편차는 12.34 μm 를 가짐으로써, 실제로 사용하는 우라늄박판의 치수에 부합하였다.

Fig. 9는 개량된 PFC법으로 제조한 우라늄박판의 냉각률과의 접촉면(a)과 자유표면(b)을 SEM으로 관찰한 사진이다. Fig. 9(a)는 요철이 없이 매끈한 면을 가지고 있었다. 일반적으로 PFC법에 의해 제조된 박판의 경우, 냉각률 접촉면 결합이 주로 관찰되며, 자유표면의 경우 양호한 면을 나타낸다[9]. 그러나 본 연구의 경우 주요 냉각률접촉면 결합인 air pocket은 확인되지 않았다. 이 결과는 기존의 PFC공정 조건이 35 m/s의 빠른 회전속도인 반면 본 연구는 1~3 m/s로서 약 10배 이상의 회전 속도 차이가 있어 상대적으로 난류발생 위험성이 낮아지고, 10^{-3} torr이하의 진공분위기와 냉각률의 표면연마를 통해 요철을 없앴으므로 냉각률과의 접촉면에서 발생하는 air pocket등의 결함이 크게 감소한 것으로 판단된다. 또한, 자중용탕공급으로 가압에 비해 상대적으로 낮은 저속의 용탕공급으로 인해 용탕과 냉각률과의 접촉이 안정적으로 되면서 양호한 퍼들을 형성시킨 것도 양호한 접촉면 형성에 기여했을 것으로 여겨진다. 반면,

Fig. 9(b)는 자유표면의 결함인 액적이 관찰되었다. 액적발생은 퍼들이 롤 표면을 타고 유입되는 공기에 의해서 진동하여 불안정한 경우 퍼들 앞쪽의 경계영역(down stream meniscus)에 있는 액적이 이미 응고가 완료된 표면에 떨어져 생긴다고 보고된 바 있다[9].

Fig. 10은 PFC법으로 제조된 일반적인 결정질 박판의 전형적인 응고조직구조를 나타낸 모식도이다. 결정질 박판의 하단부에는 미세한 등축성 chill zone, 그 후 방향성을 띄는 주상정, 주상정세포조직 순으로 조직이 천이한다고 보고된 바 있다[10]. 이와 같은 주상정 조직은 방사선 조사시 이방성성장으로 인하여 타겟의 파손이 일어날 수 있어 바람직하지 않은 조직이다. 이는 개량된 PFC법으로 제조된 우라늄박판에도 이와 같은 구조가 형성되어 있을 것으로 예측되어 박판 단면에 대한 미세조직 관찰을 실시하였다.

Fig. 11은 개량된 PFC법으로 제조된 우라늄박판의 단면을 광학현미경으로 관찰한 결과이다. 약 20 μm 의 미세한 크기의 결정립들이 우라늄박판 전체에 고르게 분포하고 있음이 관찰되며, 이는 Fig. 10의 모식도와는 다른 결과로, 냉각속도 차에 의한 조직의 변화는 관찰되지 않는다. 이와 같은 결과는 우라늄박판의 두께가 평균 135 μm 정도로 작아서 냉각률접촉면과 자유표

Fig. 9. Scanning electron micrographs of the roll-side (a) and the free surface (b) of the U-foils.

Fig. 10. Schematic representation of the solidified microstructure of PFC foils[8].

Fig. 11. Optical observation on the cross-section of U-foil.

Fig. 12. X-ray diffraction pattern of the obtained U-foil.

면간의 냉각속도 차이가 없기 때문에 등방성을 갖는 미세한 결정립들이 형성된 것으로 해석된다. 앞선 연구에 의하면, 기존의 열간압연법으로 제조된 우라늄박판의 경우 원자로 내에서 조사시 결정립의 이방성 성장으로 인하여 타겟물질의 파손의 위험성이 있다고 보고되었다[11,12]. 그러나 PFC법으로 제조된 우라늄박판은 원자로 내에서 조사시 결정립이 등방성의 성장을 하여 보다 원자로 내에서 보다 안전한 조사거동을 보일 것이라 기대된다.

Fig. 12는 개량된 PFC법으로 제조된 우라늄박판의 X-ray회절피크로 α -우라늄 상에 의한 피크가 관찰된다. 냉각률에 의한 우라늄박판이 급속응고 되었으나 고온조직인 β 및 γ 상은 meta-stable상태로 존재하지 않고 안정한 α -우라늄 상으로 변태된 것으로 추측되며 공기중에 노출된 표면 부분에서는 산화막에 의한 UO_2 불순물이 형성된 것으로 예상된다.

4. 결 론

- 1) 자중을 이용한 용탕공급개념에 착안하여 만든 PFC장비로 연속적인 우라늄박판을 10 m 제조할 수 있었다.
- 2) 본 PFC공정을 이용하여 제조한 우라늄박판은 20 μ m 정도의 미세한 결정립이 관찰되었고, 원자로 내에서 조사시 이방성 조사성장을 억제할 수 있을 것으로 예상된다.
- 3) 자중에 의한 용탕의 공급으로 인하여 용탕에 가압을 했을 때보다 우라늄박판표면의 조도가 향상되었다.
- 4) 본 PFC법을 통해, 기존의 문제점이었던 석영관의 파손과 용탕의 누출문제를 해결하였고, 도가니와 tundish를 흑연으로 교체함으로써 재사용이 가능하여 경제성이 향상되었으며 제조한 박판의 특성이 향상되어 실제 적용성이 높아졌다.

참고문헌

- [1] A. A. Sameh and H. J. Ache: Radiochimia Acta, "Production Techniques of Fission Molybdenum-99," 41 (1987) 65
- [2] A. A. Sameh and H. J. Ache: IAEA-TECDOC-515, "Production Techniques of Fission ^{99}Mo ," Fission Molybdenum for Medical use, (1989) 47-64
- [3] J. L. Snelgrove, et al: Nuclear Engineering and Design, "Development of Very-high-density Low-enriched-uranium Fuels," 178 (1997) 119
- [4] J. L. Snelgrove, et al: in Proc. 22nd Int. Conf. on RERT, "Progress in Converting Mo-99 Production from High-to-Low-Enrichment uranium-1999," 1 (1999) 2-7
- [5] Ki-Hwan Kim, et al: J. Kor. Foundrymen's Soc. "Fabrication and Characterization of Wide uranium Foils by Planar Flow Casting Method," 27 (2007) 225
- [6] S. N. Tewari et al: Mater. Sci. Eng., "Effects of Process Parameters on Melt-spun Ag Cu, 98 (1988) 89-93
- [7] D. Ma and P.R.Sahm: Acta Metall. Mater, "Solidification Behavior of Superalloy in 939 in Melt Spinning," 40 (1992) 251
- [8] H. H. Liebermann : J. of Crystal Growth., "Rapidly Solidified Alloys Made by Chill Block Melt-spinning Process," 70 (1984) 497
- [9] Sung-Hwan Moon, et al: J. of the Korean Inst. of Met & Mater, "Effect of PFC parameters on the Thickness and Surface Defect of Amorphous Alloy Ribbon," 34 (1996) 1282
- [10] Sang-Mok Lee and Chun-Pyo Hong: J. Kor. Foundrymen's Soc, "Fabrication of Wide Al-Ni Polycrystalline Ribbons by Planar Flow Casting and its Solidification Characteristics," 15 (1995) 35
- [11] G. F. Vandegrift, et al.: Ind. Eng. Chem. Res, "Modification of Targets and Processes for Conversion of Mo-99 Production from High-to-Low-Enriched Uranium," 9 (2000) 39
- [12] K. H. Kim, et al: J. Korean Nuclear Society, "Stable In-reactor Performance of Centrifugally Atomized u-10wt.%Mo Dispersion Fuel at Low Temperature," 33 (2001) 365