

사용후핵연료 건식 재가공 공정에서 핵종거동 분석

Fission Products Behavior in Spent Fuel Materials  
During Fabrication Process of Dry Recycling Fuel

박근일, 이정원, 조광훈, 이재원, 김웅기, 양명승

한국원자력연구소

대전광역시 유성구 덕진동 150

요약

사용후핵연료를 이용한 건식 재가공 핵연료 제조 공정조건에 따른 핵물질내 핵종의 방출 거동 분석을 목적으로, 고방사성 핫셀내에서 background 영향을 최소화하기 위한 납차폐 시료용기를 제작하고 표준선원을 이용한 성능시험을 수행하였으며 측정 효율성을 입증하였다. 평균 연소도 27,300 MWD/MTU, 냉각기간 15년인 경수로 사용후핵연료를 이용하여 제조된 산화분말 및 OREOXed 분말, 소결체에 대한 화학분석 결과를 토대로 제조공정별 핵종 거동 변화를 분석하였다. Cs-137 핵종의 경우 OREOX 공정시 초기 inventory와 비교하여 약 2~3% 정도 방출되었으며, 소결공정시 전량 또는 약 99%가 제거되는 것으로 나타났으며, Sb-125는 약 70%정도 방출되는 것으로 나타났다. 그러나 Eu-154, 155 및 Zr-95, Ru-103 등 준휘발성 핵종은 거의 방출되지 않는 것으로 나타났다.

Abstract

In order to analyze the fission product behaviors in spent nuclear materials during dry recycling fuel fabrication process, the lead-shielded sample holder was prepared to minimize a background effect during the radioactivity measurement of  $\gamma$ -ray fission product in highly radioactive hot-cell. The effective performance of this sample holder was confirmed using standard radioisotope of Cs-137 solution. The analysis on the release behaviors of fission products during the dry recycling fuel fabrication process were conducted. Based on the chemical analysis for the spent oxidized powder, OREOXed powder and the sintered pellet produced from spent PWR fuel with an average burnup of 27,300 MWD/MTU, 15 years of cooling time, it was found that

about 2~ 3% of initial Cs-137 inventory was released during OREOX process, and almost 99% of Cs-137 and about 70% of Sb-125 were released during sintering process. Eu-154,155, Zr-95 and Ru-103 were not released during sintering process.

## 1. 서 론

사용후핵연료가 고온조건에 노출될 경우 핵연료로부터 핵분열 생성물 및 악티나이드 원소 등과 같은 핵분열성 물질이 방출될 수 있으며, 이러한 조건은 원자로 사고시와 같은 고온 공정조건과 사용후핵연료의 건식 재가공시 제조조건으로 크게 구분할 수 있다. 먼저 원자로 사고시에는 위험도 및 사고가 미치는 영향을 보다 정확하게 평가하기 위해서는 LOCA시 선원항(Source term, 환경 중에 방출되는 방사성물질의 종류와 양)을 정확하게 예측하는 것이 필요한데 이를 위하여 원자로 사고시 조건에서 핵연료로부터 방출되는 방사성물질의 종류와 양을 실험적으로 구한다<sup>1-5</sup>. 핵분열생성물 방출 거동과 관련된 다른 연구분야는 사용후핵연료의 건식 재가공시 핵연료 분말/소결 공정과 같은 고온조건에서의 핵분열생성물의 방출거동 특성 분석 및 사용후핵연료 고온 용융공정으로부터 방출되는 핵분열기체 또는 핵분열생성물 방출거동 특성분석 분야를 들 수 있다<sup>6</sup>. 앞서 언급한 원자로 사고시 핵종 방출거동 특성평가 분야에서는 주로 고온 스팀분위기에서 핵연료의 산화 등에 의한 핵분열생성물의 방출 특성을 규명하고 있지만, 사용후핵연료 건식 재가공분야에서는 스팀 분위기가 아닌 건조조건에서 방출 거동을 분석하기 때문에 핵분열생성물의 특성에 따라 원자로 사고시 조건에서 방출 특성과 달라지게 된다.

지금까지의 시험결과를 살펴보면, 핵분열생성물 방출에 영향이 가장 큰 변수는 온도이며, 그 이외 핵연료 산화 정도, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다<sup>7-10</sup>. 산화에 따른 영향을 보면 산화에 의한  $UO_2$  모체내 핵분열 기체의 확산도는 증가하는 것으로 나타났으며 산화와 방출 동특성 상관관계를 정립하기 위한 실험을 주로 수행하였다. 연소도의 영향을 보면, Kr-85와 Cs-137의 방출속도가 주로 입계내에서의 확산에 의존하며 확산은 주로 온도 함수이기 때문에 연소도가 증가함에 따라 방출속도는 증가한 것으로 나타났다. 그러나 50,000 MWD/ MTU 이상의 고연소도 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출속도에 대한 시험데이터는 많이 확보되지 않은 상태이다. 또 하나의 변수인 분위기의 영향을 보면, 산화(스팀, 공기) 또는 환원 분위기(수소)에 따라 핵분열 생성물 방출속도 및 이동 거동은 달라진다.  $UO_2$ 가 산화되면 핵연료 모체내의 핵분열생성물 확산도가 증가하게 되고, 또한 산화 포텐셜에 의하여 반응성이 있는 핵분열생성물의 화학적 형태가 달라지므로 이는 핵분열생성물의 유동성에 큰 영향을 미친다. Cs-137의 경우 고온의 산화분위기에서의 방출율은 거의 100%에 근접하나 고온이라도 환원분위기 또는 수증기 분위기 하에서는 15 ~ 65%의 방출율을 보였다. 또한 캐나다 AECL에서는 DUPIC 핵연료제조공정의 산화, 환원과정과 유사한 조건 하에서 사용후핵연료 fragment로부터 발생하는 세슘의 방출율을 측정 한 결과, 400°C ~ 700°C 사이의 온도범위에서는 산화/환원분위기에 관계없

이 방출율이 적었으며 산화분위기에서 온도를 1,200°C ~ 1,400°C 온도범위로 증가시킬 경우 거의 100%에 가까운 방출율을 보여 주었다. 루테튬(Ru)의 경우 공기중에서 산화될 때 방출속도는 약간 증가하지만 방출율은 매우 낮은 것으로 나타났고 Sb, Mo 및 Ag의 경우도 비슷한 거동을 보였다. 반면에 Ba, Sr Eu의 경우는 산화분위기보다는 환원분위기에서 방출속도가 증가한다. 이상과 같이 분위기 기체에 따라 핵분열생성물의 방출속도는 달라지는 데 지금까지의 시험들은 주로 정성적인 데이터를 얻는 데 치중하였고 정량적인 데이터를 얻기 위한 시험은 부족한 실정이다.

사용후핵연료 건식 재가공의 관점에서 보면 수소 분위기 및 공기-스팀 분위기(건조공기 분위기에서 데이터는 많지 않음)에서 각 나라에서 얻은 온도 범위별 주요 핵분열생성물의 방출율을 기준으로<sup>1-5, 7-10</sup> 사용후핵연료 건식 재가공 조건으로 설정된 500°C ~ 1800°C, 공기 및 수소기체 분위기에서 방출가능한 주요 핵분열생성물의 방출율을 Table 1에 상호 비교하였다. 아울러 사용후핵연료 건식 재가공조건은 원자로 사고시의 온도보다도 훨씬 낮아 다양한 핵분열생성물이 방출되지 않는 것으로 보이지만 시험 분위기가 공기/스팀 조건이 아닌 건조공기/수소 분위기이므로 기존의 각 나라에서 얻은 핵분열생성물 방출율보다는 비슷한 온도 범위로 가정할 경우 더 높게 나타날 것으로 예상된다.

Table 1. 건식 재가공 제조조건과 유사조건에서 각 나라별 핵종 방출율 시험결과 비교

시험기관 (시험명)	사용후핵연료 특성			시험조건		주요 핵종 방출분율 (Released % of inventory)									
	연소도 (MWD/ MTU)	냉각 기간 (년)	시료 형태	온도 (°C)	분위기	<sup>85</sup> Kr	<sup>129</sup> I	<sup>131</sup> I	<sup>137</sup> Cs	<sup>106</sup> Ru	<sup>144</sup> Ce	<sup>125</sup> Sb	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu	<sup>95</sup> Zr
미국 (VI)	40,300	10	Seg. (20cm)	2,000	공기/ 스팀	69	42	0	71	3	0	52	0.05	0	0
프랑스 (HEVA)	28,000	10	Seg. (20g UO <sub>2</sub> )	1,800	수소/ 스팀	-*	-	0	38	<2	<3	20	<3	0	0
캐나다 (HOX)	28,000	20	Fragment (5 g)	700/ 1,650	공기/ 수소	100	-	0	65	0	0	-	0	0	0
일본 (VEGA)	47,000	6.5	Seg. (10g UO <sub>2</sub> )	2,500	스팀	-	-	0	94	52	0	-	0	0	0

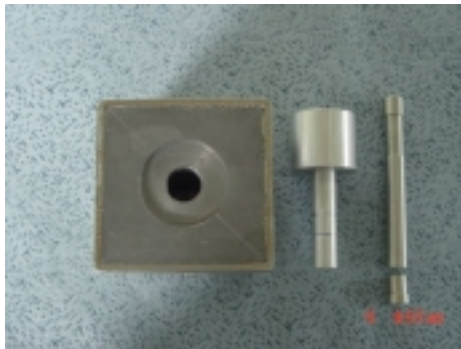
(주) \* : No data

따라서 국내 사용후핵연료를 이용한 건식 재가공시 핵종 방출거동 평가를 목적으로 본 연구에서는 고방사성 핫셀조건에서 건식 재가공 조건에 따른 사용후핵연료내 핵종거동 변화를 측정하기 위한 시스템 구성 및 예비 성능 시험을 수행하였으며, 아울러 27,300 MWD/MTU 연소도인 경수로 사용후핵연료를 이용하여 OREOX공정(450°C에서 산화, 700°C에서 환원)을 거친 분말 및 및 소결공정(1,850°C에서 환원)에서 제조된 소결체의

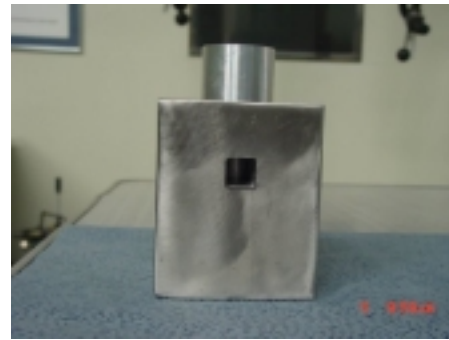
화학분석 결과로부터 핵종 방출 거동을 예비분석하였다.

## 2. 실험

핫셀내에서 핵연료내 감마 핵종의 방사능 측정은 collimator를 통과한  $\gamma$ -선만을 측정할 수 있는 데, 핫셀내에서 시료의 위치에 따라 측정효율이 달라지므로 측정의 일관성 및 효율 증대를 위하여 시료 위치 및 검출기(Detector, DSPP-259, EG&G) 위치가 항상 일정하여야 한다. 이를 위하여 사용후핵연료를 이용한 핵연료 원격 제조 조건별로 얻은 분말 및 소결체내 핵종 농도 변화를 비연속으로 측정하기 위한 시험장치를 보완하였다. 핫셀 내부 background의 영향을 최소로 하고 시료 위치를 고정하기 위하여 Fig. 1과 같은 납차폐 시료 용기를 제작(두께 : 100 mm, 시료주입 hole : 12 mm)하였고, 납차폐 시료 용기의 성능 테스트를 위하여 Cs-137 용액(1.2 ml)을 이용한 방사능 측정을 수행하였다.



(a) 납차폐 시료용기 및 분말 충전튜브



(b) 납차폐 시료용기 정면도

Fig. 1. 핫셀내에서 OREOX 분말 및 소결체내 감마핵종 측정을 위한 납차폐 시료용기

사용후핵연료를 이용한 핵연료 원격제조를 위하여 혼합공정을 거친 사용후핵연료 산화분말의 화학분석을 수행하였으며, 이를 통하여 핵물질내 fissile material의 총 농도 및 동위원소별 농도, 핵분열생성물 중 Cs-134,137 동위원소의 핵종 거동 변화를 분석하였다. 핵연료 원격 제조를 위하여 사용한 경수로 사용후 핵연료는 초기 농축도 3.21 wt. %, 평균 연소도 27,300 MWD/MTU, 냉각기간 15년(방출일 : 1986. 10)인 G23 집합체중 A1, B5, B7, C8, D9 연료봉(이하 **G23-5B로 명명**)을 대상으로 하였다. 5개의 연료봉을 탈피복한 후 얻은 UO<sub>2</sub> fragments를 450°C의 공기분위기에서 산화시키고, 전체 산화분말을 혼합하여 균질한 조성의 분말을 제조하였다. 아울러 동일한 사용후핵연료 분말을 이용하여 Table 2의 건식 재가공 제조조건으로부터 얻은 OREOXed 분말 및 소결체의 화학분석을 수행하여 분말 및 소결체내 fissile material의 총 농도 및 동위원소별 농도, 핵분열 생성물, 희토류원소, 백금족 원소 농도를 측정함으로써 제조 공정조건에 따른 핵종 방출 거동을 분석하였고, 아울러 화학분석 결과를 g-IU 기준으로 재계산하여 ORIGEN 코드 결과

와 비교하였다.

Table 2. 사용후핵연료 이용 건식 핵연료 제조 공정조건

공정	시험 조건
산화·환원공정 (OREOX Process)	- 산화 : 450℃, 2시간, 공기, 5.5 L/min - 환원 : 700℃, 7시간, 아르곤/4% 수소, 13 L/min - Passivation : 80℃, 4시간, 아르곤/2% 산소, 2 L/min
분쇄공정 (Milling Process)	◦ 수평식 ball-milling 방식 - Milling time : 20분(10분: 450rpm, 10분:600rpm) - 0.4 Kg(zirconia ball), 5 mm(Φ) - 450, 600 rpm
예비압분공정	◦ 약 0.8 ton/cm <sup>2</sup> ◦ Sieve # 12 통과 : 1 mm
혼합공정 (Mixing Process)	◦ 0.2wt% zinc stearate (예비압분진 1차혼합) ◦ 0.2wt% zinc stearate(2차혼합) ◦ 20분간 혼합
최종압분 (Final Compaction)	◦ 최종압분압력 :1.2 ~ 4.0 ton/m <sup>2</sup>
소결공정 (Sintering)	◦ 소결온도 : 1,800℃, 10시간, Ar/4% H <sub>2</sub> , 8.0 L/min

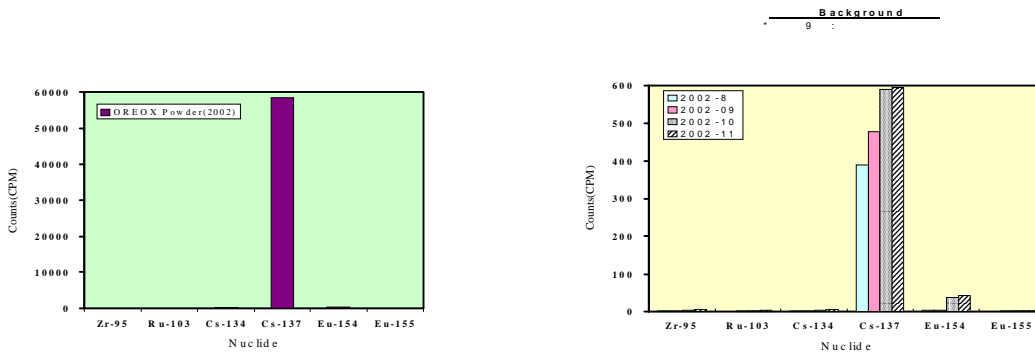
### 3. 결과 및 고찰

#### 3.1 핫셀에서의 핵종거동 측정 시스템 예비성능 시험

사용후 핵연료를 이용한 핵연료 제조 공정조건에서 핵분열 생성물의 방출거동에 대한 특성분석을 위하여 사용후 핵물질에 포함된 여러 종류의 핵종을 분석할 수 있는 장비를 핫셀내에 설치하고 핵연료 제조 단위공정별로 얻은 핵물질내 핵분열 생성물의 방사능을 측정하여 핵종 방출 거동의 예비 분석을 수행한 바 있다<sup>6</sup>. Table 2의 OREOX 공정으로부터 방출되는 핵분열 기체의 종류 및 방출율은 사용후 핵연료 산화분말과 성형체에 대한 방사능 측정으로부터 간접적으로 구한 결과, 본 공정으로부터 방출되는 주요 핵분열 기체는 Kr-85이고(2002년도에 시간에 따른 방출율 측정), Cs-137의 방출량은 극히 미미한 것으로 나타났다. 아울러 소결 공정과정에서 Cs-137은 약 99% 정도 방출·제거되고, Zr-95 및 Ru-103 등도 미량 방출되었던 것으로 확인한 바 있다. 따라서 사용후 핵연료의 총 방사능에 큰 영향을 미치는 Cs-137이 핵연료 소결공정 에서 방출·제거됨으로써 건식 재가공 핵연료의 취급 안전성 증대가 기대될 것으로 판단하였다.

그러나 현재 핫셀내에는 제조된 핵연료가 상당량 저장되어 있으므로 감마 핵종 측정장비로 핫셀내 background 방사능을 측정한 결과, Cs-137은 약 480 CPM으로 상당히 높게

나타났고 Eu-154, Zr-95 등도 검출되었다. 특히 제조된 핵연료의 저장용기가 주변에 위치할 경우 핫셀내 background 방사능은 OREOX 분말과 비교하여 Cs-137의 경우 약 1/100 정도였다(Fig. 2 참조).



(a) OREOX 분말

(b) 핫셀내 background 측정시

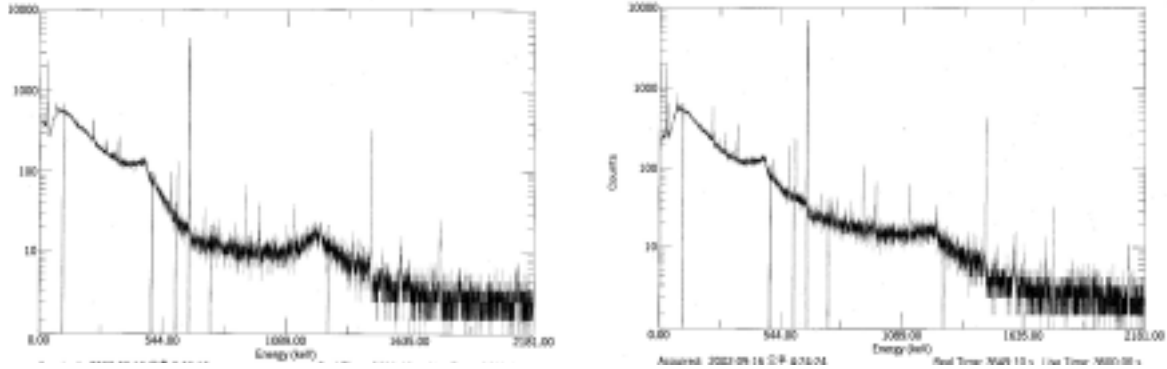
Fig. 2. 감마핵종장비 이용 OREOX분말 및 핫셀 background 측정시 핵종별 count수.

따라서 핵물질내 핵종변화를 측정하기 위하여 핫셀내 background 영향을 최소화 하기 위한 납차폐 시료용기를 Fig. 1과 같이 제작하였고 이의 성능 테스트를 위하여 Cs-137 용액(1.2 ml, Well-type HPGE 검출기 측정결과 : 약 1,500 CPM)을 이용한 방사능 측정 시험을 수행하였다. 먼저 용액이 함유된 유리 용기를 납차폐 시료 용기에 넣고 레이저 포인트 부분에 용액이 위치하도록 하여 15cm 거리에서 10회 반복 측정한 결과 평균 870 CPM이었으며 동일한 거리에서 유리용기가 외부에 노출된 경우는 평균 550 CPM이었다 (Fig. 3 참조). 따라서 시료가 어느 정도 떨어진 상태에서 핵종 방사능을 측정할 경우 이상과 같이 납차폐 시료 용기를 사용하면 측정효율이 더 높다는 것을 알 수 있었다.

### 3.2. 제조된 핵연료의 화학분석을 통한 핵종거동 분석

Table 3은 U/Pu 총량 및 각 동위원소의 양을 초기 U(Initial U)을 기준으로 하여 변환시킨 결과이다. 평균값으로부터 각 시료의 분석결과와 차이 분율을 계산한 결과인데 U-235의 경우 0.62 ~1.7%로서 2% 이하를 유지하였고 Pu-239의 경우 0.46~1.27%로서 전체적으로 만족할 만한 균일도 값을 나타내어 매우 고르게 혼합되어 있음을 알 수 있었다. 참고적으로 건식 재가공 핵연료 제조를 위한 사용후핵연료 산화분말의 균일도 (homogeneity)는 5% 미만으로 설정되어 있다. 핵분열성 물질인 U-235의 경우 0.84~

0.86 wt% 범위를 보였고, Pu-239는 0.43 wt% 정도를 나타내었다.



(A) 시료용기 외부

(B) 시료용기 내부

Fig. 3. Cs-137 용액 이용 납차폐 시료용기 성능시험 결과

Table 3. 산화분말내 U/Pu 총량 및 동위원소별 농도

Nuclide	Units	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4	Average	
U-Content	g/g-powder	0.77745	0.78585	0.80183	0.79576	0.790223	
Pu-Content	g/g-powder	0.006877	0.006844	0.006954	0.007001	0.006919	
U-234	g/g-powder	0.000148	0.000151	0.000151	0.000153	0.000151	
U-235	g/g-powder	0.008403	0.008496	0.008684	0.008612	0.008549	
U-236	g/g-powder	0.002944	0.003002	0.002851	0.002920	0.002929	
U-238	g/g-powder	0.765955	0.774201	0.790144	0.784074	0.778594	
Pu-238	g/g-powder	0.000128	0.000152	0.000113	0.000146	0.000135	
Pu-239	g/g-powder	0.004322	0.004287	0.004384	0.004376	0.004342	
Pu-240	g/g-powder	0.001648	0.001638	0.001673	0.001688	0.001662	
Pu-241	g/g-powder	0.000459	0.000453	0.000463	0.000467	0.000461	
Pu-242	g/g-powder	0.000320	0.000315	0.000321	0.000324	0.000320	
Cs-134	Bq/g	2.261E+07	2.219E+07	2.227E+07	2.227E+07	2.234E+07	
Cs-137	Bq/g	1.996E+09	2.007E+09	2.042E+09	2.042E+09	2.021E+09	

하나로 4차 조사시험용으로 사용된 OREOXed 분말 및 소결체내 fissile material의 총 농도 및 동위원소별 농도, 핵분열 생성물, 희토류원소, 백금족 원소 농도 측정 결과를 Table 4에 수록하였는 데, 시료에 대한 화학 분석 결과를 g-IU 기준으로 재계산하여 ORIGEN 코드 결과와 비교하였다. U/Pu 총량 및 동위원소별 측정농도와 ORIGEN 코드 결과와의 오차는 매우 적었다. Table 4의 OREOXed 분말 및 소결체에 대한 화학분석 결과와 Table 3의 OREOX전 초기 산화분말에 대한 화학분석 결과를 토대로, 건식 재가공 조건에 따른 핵종 거동 변화를 보면 다음과 같다.

OREOX 공정시 Cs-137의 경우 초기 inventory와 비교하여 약 2~3% 정도 방출되는

것으로 판단되며, 소결공정을 거친 후에는 Cs-134, Cs-137은 전량 또는 약 99%가 제거 되는 것으로 나타났다. 또한 Sb-125는 측정오차를 감안하더라도 약 70%정도 방출되는 것으로 나타났으며, Eu-154, 155 및 Zr-95, Ru-103 등 준휘발성 핵종은 거의 방출되지 않는 것으로 나타났다. 특히 백금족 원소중 Ru, Te의 소결 전후의 농도가 차이가 나는 것은 핵연료내에 균일하게 분포되지 않았기 때문이며 아울러 불용성의 화학적 특성을 가지고 있기 때문이다<sup>1)</sup>.

Table 4. 분말 및 소결체 화학분석 결과와 ORIGEN 코드 결과와 비교 (g-IU Basis)

	Nuclide	Units	B7-Powder	B7-Pellet	ORIGEN Code	
					Units	Values
	U-Content	g/g-IU	0.96974	0.96885	g/gIU	<b>0.96329</b>
	Pu-Content	g/g-IU	0.00867	0.00876	g/gIU	<b>0.00761</b>
	U-234	g/g-IU	0.00011	0.00015	g/gIU	<b>0.00022</b>
	U-235	g/g-IU	0.01048	0.01050	g/gIU	<b>0.01031</b>
	U-236	g/g-IU	0.00386	0.00385	g/gIU	<b>0.00366</b>
	U-238	g/g-IU	0.95454	0.95378	g/gIU	<b>0.94910</b>
	Pu-238	g/g-IU	0.00027	0.00013	g/gIU	<b>0.00009</b>
	Pu-239	g/g-IU	0.00540	0.00553	g/gIU	<b>0.00497</b>
	Pu-240	g/g-IU	0.00206	0.00212	g/gIU	<b>0.00175</b>
	Pu-241	g/g-IU	0.00055	0.00057	g/gIU	<b>0.00050</b>
	Pu-242	g/g-IU	0.00039	0.00040	g/gIU	<b>0.00030</b>
Fission Product						
	Cs-134	MBq/g-IU	1.901E+01	<N.D.	MBq/g-IU	<b>2.380E+01</b>
	Cs-137	MBq/g-IU	1.916E+03	1.777E+01	MBq/g-IU	<b>2.216E+03</b>
	Eu-154	MBq/g-IU	5.400E+01	5.298E+01	MBq/g-IU	<b>6.663E+01</b>
	Eu-155	MBq/g-IU	1.138E+01	1.122E+01	MBq/g-IU	<b>1.803E+01</b>
	Sb-125	MBq/g-IU	4.595E+00	1.115E+00	MBq/g-IU	<b>8.769E+00</b>
Rare Earth Element						
	Gd	g/MTIU(ppm)	89	102	g/MTIU(ppm)	<b>73.75</b>
	Eu	g/MTIU(ppm)	109	119	g/MTIU(ppm)	<b>99.85</b>
	Sm	g/MTIU(ppm)	679	746	g/MTIU(ppm)	<b>728.40</b>
	Nd	g/MTIU(ppm)	3,317	3,653	g/MTIU(ppm)	<b>3361.00</b>
	Pr	g/MTIU(ppm)	905	998	g/MTIU(ppm)	<b>935.00</b>
	Ce	g/MTIU(ppm)	1,775	1,967	g/MTIU(ppm)	<b>1953.00</b>
	La	g/MTIU(ppm)	1,076	1,182	g/MTIU(ppm)	<b>1016.00</b>
	Y	g/MTIU(ppm)	362	397	g/MTIU(ppm)	<b>395.50</b>
	Zr	g/MTIU(ppm)	3,016	3,449	g/MTIU(ppm)	<b>3122.00</b>
Platinum Group						
	Rh	g/MTIU(ppm)	103	396	g/MTIU(ppm)	<b>387.80</b>
	Pd	g/MTIU(ppm)	1,047	1,019	g/MTIU(ppm)	<b>1008.00</b>
	Mo	g/MTIU(ppm)	2,929	2,461	g/MTIU(ppm)	<b>2766.00</b>
	Ru	g/MTIU(ppm)	218	1,243	g/MTIU(ppm)	<b>1740.00</b>
	Te	g/MTIU(ppm)	465	No data	g/MTIU(ppm)	<b>389.00</b>

#### 4. 결 론

사용후핵연료를 이용한 건식 재가공 핵연료 제조 공정조건에 따른 핵물질내 핵종 거동 변화를 분석하기 위하여 고방사성 핫셀내에서 background 영향을 최소화하기 위한 납차



폐 시료용기를 제작하고 성능 테스트한 결과 시료가 어느 정도 떨어진 상태에서 핵종 방사능을 측정 효율성을 입증하였다. 평균 연소도 27,300 MWD/MTU, 냉각기간 15년인 경우로 사용후핵연료를 이용하여 제조된 산화분말 및 OREOXed 분말, 소결체에 대한 화학 분석 결과를 토대로 건식 재가공 조건에 따른 핵종 거동 변화를 보면 다음과 같다.

- OREOX 공정시 Cs-137의 경우 초기 inventory와 비교하여 약 2~3% 정도 방출되는 것으로 판단된다.
- 소결공정을 거친 후에는 Cs-134, Cs-137은 전량 또는 약 99%가 제거되는 것으로 나타났다으며, Sb-125는 약 70%정도 방출되는 것으로 나타났다. 그러나 Eu-154, 155 및 Zr-95, Ru-103 등 준휘발성 핵종은 거의 방출되지 않는 것으로 나타났다.
- 백금족원소중 Ru, Te 핵종은 핵연료 모체내에 불용성의 화학적 특성을 가지고 있기 때문에, 소결체 핵연료내에 균일하게 분포되지 않는 것으로 나타났다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 중장기 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

## References

1. M.F. Osborne, R. A. Lorenz, ORNL Studies of Fission Product Release under Severe LWR Accident Conditions, Nucl. Safety, 33-3, July-Sept., 1992(May 1993).
2. B.J. Lewis, F.C. Iglesias, C.E. L. Hunt, et al., Release Kinetics of Volatile Fission Products under Severe Accident Conditions, Nuclear Technology, 99, 330, 1992.
3. T. Nakamura, A. Hidaka, et al., Research Program(VEGA) on the Fission Product Release from Irradiated Fuel, JAERI-Tech-99-036, 1999.
4. B. Andre, G. Ducros, J.P. Leveque and M.F. Osborne, R.A. Lorenz, Fission Product Release at Severe Light Water Accident Conditions : ORNL/CEA Measurements versus Calculations, Nucl. Tech., 114, 23, 1996.
5. Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connell, T. Kunnel and R.S. Dickson, Report on the HOX2 Experiment : Fission Product Release and Trapping during the OREOX and Sintering Processes, RC-1840, DUPIC-AE-022, 1998.
6. 김 종호, 남 승희, 양 명승, 이 정원, DUPIC핵연료 제조공정중 발생하는 방사성핵분열생성물의 방출거동, 한국원자력학회 춘계 학술발표, 조선대, 5월, 2002.
7. R. A. Lorenz, et al., Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel,

NUREG/CR-0722(ORNL/NUREG/TM-287/82), ORNL, 1980.

8. D.M. McCracken, Oxidation of  $UO_2$  at 400 to 1,000°C in Air and Its Relevance to Fission Product Release, AECL-8642, CRNL, 1985.
9. R. Williamson, S.A. Beetham, Fission Product Release during the Air Oxidation of Irradiated Uranium Dioxide, Fission Product Transport Processes in Reactor Accidents, Ed. J.T. Rogers, Hemisphere, NY, 1990.
10. R.A. Lorenz, M.F. Osborne, A Summary of ORNL Fission Product Release Tests with Recommended Release Rates and Diffusion Coefficients, NUREG/CR-6261 (ORNL/TM-12801), 1995.
11. 박 광현, 핵연료 제조 및 품질관리 기술개발-핵연료내 핵분열생성물의 형태 및 거동연구, KAERI/CM-062/95, 한국원자력연구소, 1995.