2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

DUPIC 핵연료 제조공정 조건에 따른 핵분열 생성물 거동 특성

Fission Product Behaviors in Spent Fuel Materials during DUPIC Fuel Fabrication Process

김 종호, 남 승희, 이 정원, 양 명승
한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

경수로 사용후 핵연료를 이용하여 중수로 핵연료로 재활용하기 위한 DUPIC 핵연료 제조 공정조건에 따른 사용후 핵물질내 핵분열 생성물의 거동 특성을 분석하기 위한 기초 자료의 확보를 목표로, 사용후 핵물질에 포함된 여러 종류의 핵종을 분석할 수 있는 시스템을 설계·제작하여 조사재시험시설(IMEF) M6 핫셀 내부에 설치하고 DUPIC 핵연료 제조 단위공정별로 얻은 핵물질내 핵분열 생성물의 방사능을 측정하여 핵종 방출 거동의 예비 분석을 수행하였다. DUPIC 핵연료 제조 공정으로부터 얻은 사용후 핵연료 분말, 압분체 및 소결체내 핵분열 생성물의 방사능을 측정한 결과, OREOX(산화·환원) 공정으로부터 Cs-137의 방출양은 아주 낮지만 소결 공정과정에서 약 99% 정도 방출되고, Zr-95 및 Ru-103 등도 미량 방출되는 것으로 나타났다.

Abstract

In order to obtain the fundamental data for the analysis of fission product behaviors during DUPIC fuel fabrication process, which is to convert spent PWR fuel into CANDU reactor fuel, the measurement system of radioactivity in spent fuel materials by gamma spectrometry technique was installed in IMEF M6 hot cell, and the preliminary analysis on the release behaviors of fission gas during the DUPIC fuel fabrication process were conducted. Based on the radioactivity measurement for the spent oxidized powder, green pellet and the sintered pellet produced from DUPIC fabrication process, it was found that little Cs-137 was released during OREOX process, but almost 99% of Cs-137 was released during sintering process. The release rate of both Zr-95 and Ru-103 was not so high during sintering process.

1. 서 론

DUPIC(Direct Use of spent PWR fuel in CANDU reactors) 핵연료주기 기술의 개념은 경수로 사용후 핵연료를 이용하여 CANDU 원자로용 핵연료를 제조하는 재활용 기술 공정으로서, 핵확산 저항성이 큰 건식공정을 채택하고 있고 아울러 누적되는 사용후 핵연료 재활용 측면에서 유리한 장점을 가지고 있다. 최적화된 DUPIC 핵연료 제조공정을 살펴보면, 먼저 사용후 핵연료봉의 탈피복 과정을 거쳐 얻은 UO_2 fragments 를 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide Fuel)공정 및 혼합공정을 이용하여 균질 조성의 분말을 제조하고, 예비압분 및 과립화, 압분공정 그리고 고온 소결공정을 거쳐 고밀도의 DUPIC 핵연료를 제조하며, 각 단위 공정별 최적 제조조건을 Table 1 에 수록하였다.

특히 OREOX 공정은 Table 1 에서 보는 바와 같이 450℃~ 700℃의 산화· 환원분위기에서 3 회 반복하여 진행되고 소결 공정은 1,800℃의 수소분위기에서 수행된다[1~2]. 따라서 사용후 핵연료 분말화 및 압분체의 고온 소결과정에서 휘발성 핵종(I - 129, Kr - 85 등)을 포함한 준휘발성 핵종(Cs - 134, 137 등)이 방출하게 된다. 이상과 같이 사용후 핵연료를 이용한 DUPIC 핵연료 제조공정으로부터 이러한 핵분열 생성물이 방출되어 제거된다면 궁극적으로 DUPIC 핵연료의 취급 안전성 측면에서 보다 유리할 것으로 판단되므로, DUPIC 핵연료 제조공정조건에 따른 사용후 핵연료로부터 핵분열 생성물의 방출 거동 특성을 분석하는 것은 매우 중요하다.

사용후 핵연료의 고온 열처리 조건에 따른 핵분열 생성물의 방출 특성에 대한 연구는 미국 ORNL[3]을 필두로 프랑스의 CEA[4], 캐나다의 AECL[5~7] 및 영국의 AEAT[8] 등에서 수행되고 있다. 이들 연구는 주로 원자로 사고 조건과 같은 고온 습윤분위기에서 발생하는 핵분열 생성물의 종류 및 방출거동을 실험적으로 규명함으로써 사고시 선원항(source term)에 관한 데이터베이스를 구축하기 위한 것이다. Table 2 는 각국의 연구 수행 내용을 개략적으로 비교 · 정리하였다.

그러나 국내의 경우 사용후 핵연료를 이용한 연구는 DUPIC 핵연료 제조 분야에서 처음으로 수행하고 있으며, 고온 공정조건에서 사용후 핵연료로부터 핵분열 생성물의 방출거동에 대한 특성분석 연구는 초기 단계라 할 수 있다. 따라서 본 연구에서는 DUPIC 핵연료 제조 공정조건에 따른 사용후 핵연료내 핵분열 생성물의 거동 특성을 분석하기 위한 기초자료의 확보를 목표로, 사용후 핵물질에 포함된 여러 종류의 핵종을 분석할 수 있는 시스템을 설계 · 제작하여 핫셀내에 설치하고 DUPIC 핵연료 제조 단위공정별로 얻은 핵물질내 핵분열 생성물의 방사능을 측정하여 핵종 방출 거동의 예비 분석을 수행하였다.

2. 실 험

본 연구에서 DUPIC 핵연료 제조를 위하여 사용한 경수로 사용후 핵연료는 초기 농축도 3.21 wt. %, 평균 연소도 27,300 MWD/MTU, 냉각기간 15년(고리 1호기로부터 방출일 : 1986. 10)인 G23 집합체중 A1, B5, B7, C8, D9 연료봉(이하 G23 - 5B로 명명)을 대상으로 하였다. 5 개의 연료봉을 탈피복한 후 얻은 UO_2 fragments를 450℃의

공기분위기에서 산화시키고, 전체 산화분말을 혼합하여 균질한 조성의 분말을 제조하였다. 그리고 산화분말을 사용하여 Table 1에 제시된 제조 공정 조건에서 OEROXed 분말, 압분체(green pellet) 및 소결체를 각각 제조하였으며, 임의 실험 벳취를 선정하여 세 종류의 핵물질내에 포함된 핵분열 생성물은 ã-spectrometry system을 사용하여 측정하였다.

Table 1. Optimal operating conditions for DUPIC fuel fabrication

Process	Operating conditions
OREOX - 3 Cycles	■ Oxidation condition - 450°C, 2 hrs, Air, 5.5 L/min ■ Reduction condition - 700°C, 7 hrs, Ar/4% H_2, 13 L/min ■ Passivation condition - 80°C, 4 hrs, Ar/2% O_2, 2 L/min
Milling	- Attrition Ball - milling, 20 min, 450 & 600 rpm
Pre - compaction and Granulation	- Precompaction : 0.8 ton/cm^2 - Granulation : Sieve # 12 pass(1mm)
Mixing	- 0.2 wt% zinc stearate add, 20 min - mixing
Final compaction	- Pressure : 1.2 ~1.8 ton/cm^2
Dewaxing	- 800°C, 3 hrs, Ar/4% H_2, 4 L/min
Sintering	- 1,800°C, 10 hrs, Ar/4% H_2, 8 L/min

Table 2. Release rate of fission products on the experiments conducted in various countries

	ORNL (USA)	CEA (France)	CRL (AECL)	AEAT (UK)
Cs - 137	63 ~ 100%	15 ~ 68%	75 ~ 100%	40%(1673K) 1 ~ 2%(1273K)
Ru - 106	< 5%	< 5%	~ 2 %	-
Eu - 154	14 ~ 57%	< 15%	-	-
Zr - 95	-	-	<2 %(2,273K)	-
Experimental conditions	- UO_2 fragment - 2000~2440K - Steam, H_2, Air	- Burn up : 19940~ 36700 - 1900~2370K - Steam, H_2	- UO_2 fragment - Burn up : 10700~ 22700 - 1625~2350K - Steam, Air	- UO_2 fragment - Burn up : 26000 - 923~1673K - Air

사용후 핵물질의 고온 열처리 조건에 따라 방출되는 핵종의 거동 특성을 분석하기 위한 실험장치를 조사재시험시설(IMEF) M6 핫셀 내부에 설치하였으며, 실험장치의 개략도를 Fig. 1에 도식하였다. 주요 장치로는 고온 가열용 전기로, 사용후 핵연료로부터 방출되는 방사능을 측정하는 감마 방사능 측정장치, 산화,환원분위기를 조절하기 위한 가스 공급장치 및 배기가스 처리장치 등을 들 수 있으며, 각 장치의 특성은 다음과 같다.

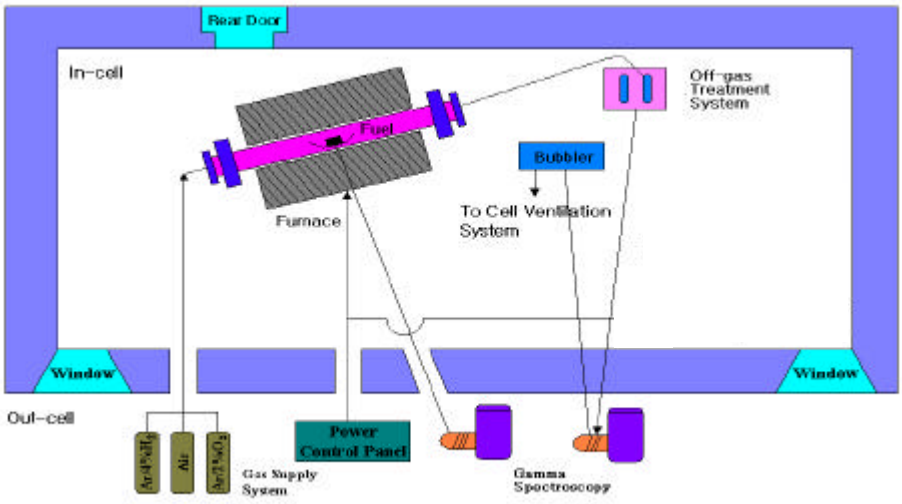


Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus for the analysis of fission product behaviors during DUPIC fuel fabrication process.

감마방사능 측정장치 : 고온 열처리 과정에서 방출되는 핵분열 생성물의 종류 및 방사능 양뿐만 아니라 OEROXed 분말, 압분체 및 소결체내에 포함된 핵분열 생성물을 on-line으로 측정하여 실시간에 따른 핵분열 생성물의 방출율을 측정하기 위한 장치로서, 고순도 게르마늄 검출기, 증폭기, 다중파고분석기, 고전압공급장치, 액체질소 이송장비 등으로 구성되어 있다.

고온 전기로 : 고온 열처리용 전기로는 반응온도 및 분위기를 조절하기 위하여 사용된다. 산화·환원과정은 산화가 450℃, 환원이 700℃에서 진행되며 소결과정은 약 1,800℃에서 진행된다. 향후 고온 열처리조건에 따른 핵분열 생성물 방출 거동을 분석하는 데 사용된다.

배기가스 처리장치 : 고온 열처리과정에서 발생하는 핵분열 생성물, 악티나이드 및 에어로졸, 증기입자 등을 제거하기 위한 장치로서 TGT(Thermal Gradient Tube), HEPA filter, Balston filter, Bubbler 등으로 구성되어 있다. 향후 고온 열처리조건에 따른 핵분열 생성물 방출 거동을 분석하는 데 사용된다.

가스 공급장치 : 반응분위기(산화 또는 환원분위기)를 조절하기 위하여 필요한 아르곤, 수소, 산소 등의 가스를 공급하기 위한 장치이다. 용기에서 나온 가스는 밸브조작에 의해

라인필터, 감압밸브(2단계), 유량계를 거쳐 최종적으로 고온 전기로 안으로 공급된다. 향후 고온 열처리조건에 따른 핵분열 생성물 방출 거동을 분석하는 데 사용된다.

3. 결과 및 고찰

3.1 OREOX 공정중 핵분열 기체의 방출 특성

본 연구에서는 실험 부분에서 이미 언급한 바와 같이 사용후 핵연료 산화분말을 OREOX 공정에 사용하였다. 따라서 먼저 G23-5B 산화 분말내에 포함된 주요 핵분열 생성물(휘발성 및 준휘발성 핵분열 생성물 포함)의 조성을 ORIGEN 전산코드로 계산하였으며, 이를 Table 3에 나타내었다. Table 3에서 알 수 있듯이 사용후 핵연료 분말내 핵분열 생성물로부터 방출되는 총 방사능에 미치는 Cs-137의 기여도는 약 28%로서 상당히 높은 편이며, Kr-85 및 Eu-154 등도 무시하지 못할 정도이고, I-129와 Xe-133으로부터 방출되는 방사능은 거의 무시할 만하다.

Table 3. Fission product activity in oxidized powder (G23-5B powder)

Nuclide	g/MTHM	Ci/MTHM	Contribution to total F/P activity, %
Cs-134	4.96×10^{-1}	$6.42\times10^{+2}$	0.30
Cs-137	$6.88\times10^{+2}$	$5.99\times10^{+4}$	28.15
Ru-106	3.34×10^{-3}	$1.12\times10^{+1}$	0.01
Ce-144	3.73×10^{-4}	1.19×10^{0}	0.00
Eu-154	6.64×10^{0}	$1.79\times10^{+3}$	0.84
Eu-155	1.05×10^{0}	$4.87\times10^{+2}$	0.23
Sr-90	$3.35\times10^{+2}$	$4.36\times10^{+4}$	20.49
Nb-95	2.68×10^{-21}	3.81×10^{-20}	0.00
Zr-95	2.19×10^{-21}	1.72×10^{-20}	0.00
Tc-99	4.96×10^{-1}	$1.11\times10^{+1}$	0.01
Rh-106	3.14×10^{-9}	$1.12\times10^{+1}$	0.01
Sb-125	2.29×10^{-1}	$2.37\times10^{+2}$	0.11
H-3	1.92×10^{-2}	$1.85\times10^{+2}$	0.09
C-14	2.17×10^{-5}	9.68×10^{-5}	0.00
Kr-85	7.50×10^{0}	$2.94\times10^{+3}$	1.38
I-129	$1.45\times10^{+2}$	2.55×10^{-2}	0.00
I-131	0.00×10^{0}	0.00×10^{0}	0.00
Xe-133	0.00×10^{0}	0.00×10^{0}	0.00
Total F/P	$\mathbf{2.81\times10^{4}}$	$\mathbf{2.13\times10^{5}}$	

Table 1에 제시된 바와 같이, OREOX 공정은 산화는 450℃, 공기 5.5 L/min 유속으로 2시간, 환원은 700℃, (4% H_2 + 96% Ar) 가스를 사용하여 13 L/min 유속으로 7시간, 승온 및 감온속도은 4℃/min를 유지하였으며 산화·환원을 3회 반복하였으며, 소결공정 전까지는 고온공정이 포함되어 있지 않다. 따라서 OREOX 공정으로부터 방출되는 핵분열 기체의 종류 및 방출율은 사용후 핵연료 산화분말과

성형체에 대한 방사능 측정으로부터 간접적으로 구할 수 있다. Fig. 2는 산화 분말과 압분체에 대한 감마 스펙트로미터 측정 결과를 상호 비교한 결과로서, Eu-154를 기준 핵종으로 다른 핵분열 생성물의 방사능 정도를 normalization하여 표시하였다. 일반적으로 Eu-154는 비휘발성으로 알려져 있고, 반감기도 약 8.8년 정도로 OREOX 공정 및 소결 공정을 전후로 그 양이 변하지 않을 것으로 판단되며 실제 감마 스펙트로미터를 이용하여 OREOX 공정 및 소결과정 전후에서 측정한 Eu-154의 count수에도 변화가 없었다. 그림에서 보는 바와 같이 OREOX 공정으로부터 Cs-137의 방출율은 상당히 낮은 것으로 나타났는데, AECL에서도 DUPIC 핵연료를 사용하여 수행한 고온에서의 핵종 방출 거동을 실험한 결과 OREOX 공정으로부터 방출되는 주요 핵분열 기체는 Kr-85이고(거의 전량 방출됨) Cs-137의 방출량은 극히 미미한 것으로 나타났는 바, 두 실험 결과가 거의 일치하고 있다[9].

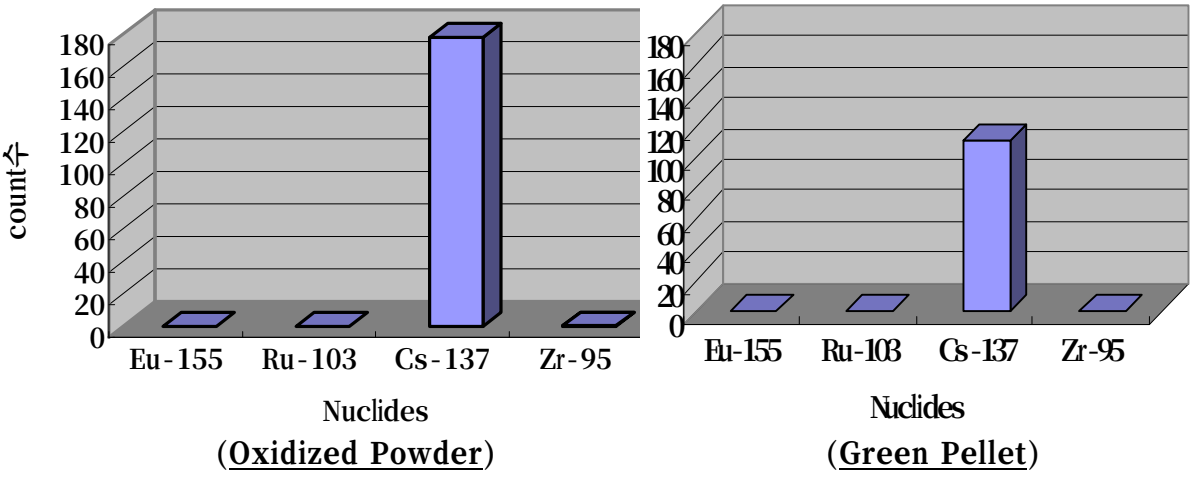
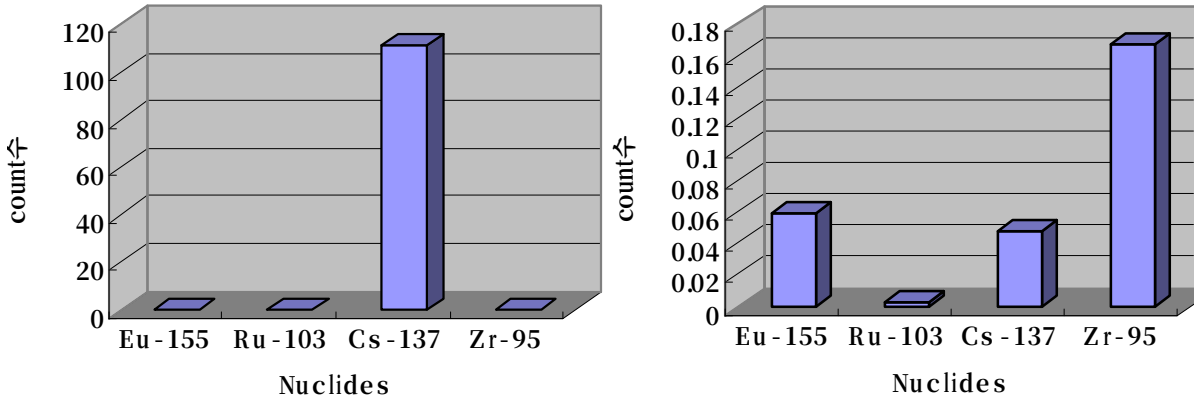


Fig. 2. Count number of various fission products in the oxidized powder(before OREOX) and green pellet(after OREOX).

3.2 소결 공정 중 핵분열 기체 방출 특성

소결 공정은 Table 1에 제시된 바와 같이 압분체를 수소분위기(4% H_2 + 96% Ar) 하에서 5℃/min의 승온 속도로 가열하여 1,800℃에서 10시간 동안 수행된다. Fig. 3은 소결 공정으로부터 제조된 소결체에 대한 감마 스펙트로미터 측정 결과와 압분체의 측정 결과를 상호 비교한 결과로서, Fig. 2와 동일하게 Eu-154를 기준 핵종으로 다른 핵분열 생성물의 방사능 정도를 normalization하여 표시하였다. 그림에서 보는 바와 같이 DUPIC 소결체 제조 공정 과정에서 Cs-137, Ru-103 등의 준휘발성 핵분열기체가 다량 방출되었음을 알 수 있었다. 따라서 이러한 고방사능 핵분열 기체가 DUPIC 핵연료 제조과정에서 방출되어 제거됨으로서 궁극적으로 DUPIC 핵연료의 취급 안전성 측면에서 보다 유리할 것으로 판단된다.



(Green Pellet) (Sintered Pellet)

Fig. 3. Count number of various fission products the in green pellet(before sintering) and sintered pellet(after sintering process).

3.3 제조공정에 따른 사용후 핵물질내 핵분열 생성물 거동 특성

DUPIC 핵연료 제조공정중 OREOX 공정 및 소결 공정에서 방출 가능한 핵분열 생성물의 종류 및 방사능을 Fig. 4에 종합 정리하였다.

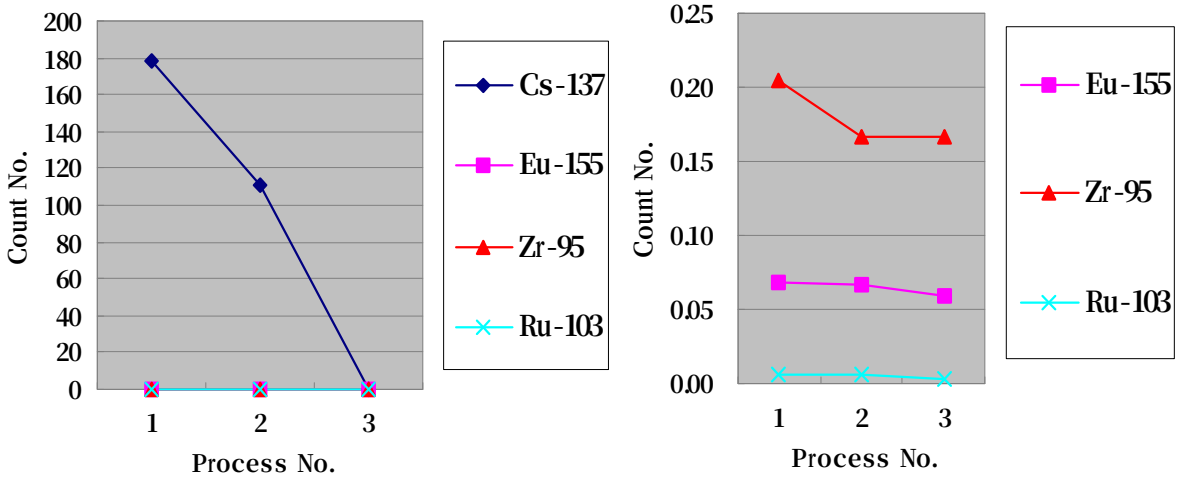


Fig. 4. Count rates of fission products during DUPIC fuel fabrication process [1 : Before OREOX process, 2 : After OREOX, 3 : After Sintering process].

그림에서 보는 바와 같이 OREOX 공정으로부터 Cs-137의 방출율은 측정 오차를 고려할 경우 약 15% 정도로 낮게 나타났으나, 소결 공정과정에서 99% 이상 방출되어

제거됨을 알 수 있었다. 아울러 준휘발성 핵종인 Ru-103, 비휘발성 핵종인 Zr-95도 DUPIC 핵연료 제조 공정과정에서 미량 방출되는 것으로 나타났다.

4. 결 론

DUPIC 핵연료 제조 공정조건에 따른 핵종거동 분석 시스템을 설계·제작하여 핫셀내에 설치하고 DUPIC 핵연료 제조 단위공정별로 얻은 핵물질내 핵분열 생성물의 방사능을 측정하여 핵종 방출 거동의 예비 분석을 수행한 결과, 다음과 같은 결론을 얻었다.

- DUPIC 핵연료 제조 공정중 OREOX 공정으로부터 방출되는Cs-137 핵분열 생성물의 양은 아주 낮은 것으로 나타났다.
- 소결 공정과정에서 Cs-137은 약 99% 정도 방출·제거되고, Zr-95 및 Ru-103 등도 미량 방출되었다.
- 사용후 핵연료의 총 방사능에 큰 영향을 미치는 Cs-137이 DUPIC 핵연료 소결공정에서 방출·제거됨으로써 DUPIC 핵연료의 취급 안전성이 증대되었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 중장기 원자력연구개발 사업의 일환으로 수행되었습니다.

References

1. 양명승 등, "핵연료 제조 및 품질관리기술개발: 경·중수로 연계 핵연료주기 기술개발, KAERI/RR-1744/96(1996).
2. 양명승 등, "DUPIC 핵연료제조 및 공정기술개발: 경·중수로 연계 핵연료주기 기술개발, KAERI/RR-2022/99(1999).
3. M.F. Osborne, R.A. Lorenz," ORNL Studies of Fission Product Release under Severe Accident Conditions," Nuclear Safety, Vol.33, No.3 (1992).
4. J. Leveque, B. Andre, G. Ducros, G. Marois, G. Lhiaubet," The HEVA Experimental Program," Nuclear Technology, Vol. 188(1994).
5. Z.Liu, et al., "Fission-Product release and morphologies of powders produced by the OREOX process," DUPIC-AR-FT-06, AECL(1995).
6. M.A. Ryz, J.D. Sullivan, D. Randell, J.W. Lee, "Manufacturing Report for DUPIC Elements, " DUPIC-AE-032, AECL(1999).
7. J.D. Sullivan, D. Randell, J.W. Lee, "Manufacturing Report for DUPIC Elements," DUPIC-AE-032, AECL(1999).
8. S.A. Beetham, R. Williamson,"Fission Product Release from Fuel in Oxidizing Atmospheres," AEA TSD0646, AEA Technology(1995).

9. Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connor and T. Kunkel, R.S. Dickson, "Report in the HOX2 Experiment : Fission - Product Release and Trapping During the OREOX and Sintering Processes," DUPIC - AE - 032, AECL(1998).