Proceeding of the Korean Radioactive Waste Society
Vol. 2(1), June 2004

OREOX 공정에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체 방출거동

박근일, 김웅기, 이도연, 이영순, 이정원, 양 명승
한국원자력연구소, 대전광역시 유성구 덕진동 150번지

사용후핵연료를 이용한 건식 핵연료 원격 제조 공정중 OREOX공정으로부터 핵분열기체 방출특성 평가를 위한 실험을 수행하였다. 사용후핵연료 분말화 공정인 1차 산화 및 OREOX공정에서 방출되는 핵분열기체를 실시간으로 측정할 수 있는 장치를 제작·설치하였으며, 측정 대상 핵분열기체는 Kr-85를 포함하여 C-14($^{14}CO_2$ 형태), I-129, 기체상 트리튬 등이다. 그림 1은 방출되는 핵분열기체를 포집 또는 연속측정하기 위한 개념도이며, 그림 2는 핫셀구역에 설치된 장치 사진이다. 실험에 사용된 사용후핵연료는 평균 연소도 27,000 MWD/MTU, 냉각기간 16년인 사용후핵연료(G23-C13A)와 평균 연소도 65,000 MWD/MTU, 냉각기간 2.6년인 고연소도 사용후핵연료(K23-M03)였다. 분말화를 위하여 1차 산화(500℃, 5시간)처리후 OREOX 공정(500℃ 산화 2시간, 700℃ 환원 7시간, 3-cycles)을 거치게 되며, 두 공정에서 방출된 Kr-85 및 C-14($^{14}CO2$)의 시간에 따른 방출거동을 분석하였다. 그림 3은 G23-C13A 사용후핵연료를 사용하여 1차 산화후 OREOX 공정에서 방출되는 Kr-85 핵분열기체의 count수 변화를 나타낸 결과로서, 1차 산화과정인 500℃에서 Kr-85가 방출되었기 때문에 OREOX 공정중 첫 번째 산화과정에서 방출되지 않는 것으로 나타났으며, 1-cycle OREOX과정에서 Kr-85는 전량 방출되는 것으로 확인되었다. 이러한 방출거동은 그림 4의 K23-M03 고연소도 사용후핵연료에서도 나타났는 데, 1차 산화과정중 약 350℃부터 Kr-85가 방출되기 시작하여 500℃에 도달후 약 2시간동안 핵연료 외부 표면으로부터 방출되는 것으로 나타났다. Kr-85의 방출거동은 기체 분위기에 의존하지 않고 온도만의 함수임을 그림 5를 통하여 확인할 수 있었다. 그림 5는 K23-M03 사용후핵연료 산화분말을 OREOX 처리하는 과정에서 방출된 Kr-85 거동을 측정한 결과인데, 그림 3의 결과와 유사하게 1-cycle 산화 과정에서는 기체 방출이 이루어지지 않고 1-cycle 환원 단계로의 승온과정인 약 550℃부터 다시 방출이 되기 시작한 것으로 나타나 Kr-85 핵분열기체는 핵연료내 입계로부터 확산에 의하여 방출거동이 지배를 받고 있음을 확인하였고, K23-M03 고연소도 사용후핵연료는 G23-C13A와 다르게 Kr-85는 2nd-cycle OREOX공정을 거친 후 전량 방출되는 것으로 나타났는 바, 이는 사용후핵연료내 total inventory의 차이에 의하여 기인된 것으로 여겨진다. 그림 6은 K23-M03 사용후핵연료 일차 산화분말의 OREOX 처리과정에서 시간에 따른 C-14($^{14}CO_2$)의 방출거동을 측정한 결과이다. C-14 핵분열기체는 1.5M NaOH 용액에 흡수시킨 후 LSC 분석을 통하여 구하였으며 그림 6의 결과는 시간에 따른 용액의 농도 변화로서 누적량을 나타내고 있다. 그림에서 보는 바와 같이 1-cycle 산화과정에서는 거의 방출이 되지 않았지만 환원과정인 700℃에 도달한 후 방출되기 시작하여 2nd-cycle OREOX 과정이후 거의 방출되지 않는다는 것을 확인하였다. 지금까지 500℃ 산화분위기에서 사용후핵연료로부터 핵분열기체중 트리튬은 100%인 반면 C-14은 약 20% 정도를 방출되는 것으로 알려져 있는 데, 본 결과를 바탕으로 사용후핵연료 분말화 공정에서 핵분열기체를 전량 방출시키기 위해서는 적어도 700℃에서 운전하여야 함을 간접적으로 유추할 수 있었다.

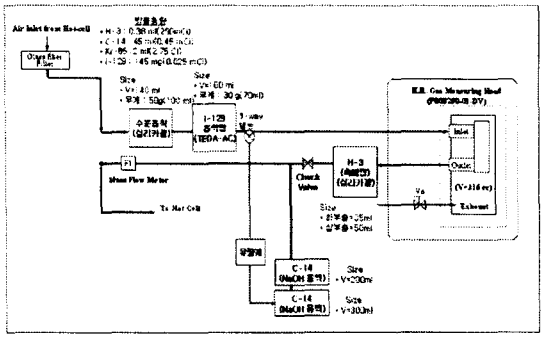

그림 1. 핵분열기체 방출거동 시험 장치흐름도

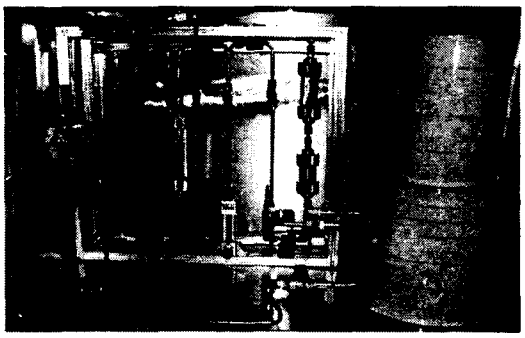

그림 2. 핫셀구역에 설치된 핵분열기체 방출 거동 시험장치

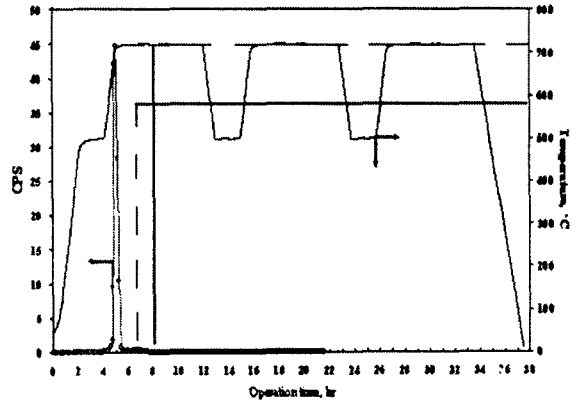

그림 3. G23-C13A 사용후핵연료 OREOX 공정중 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

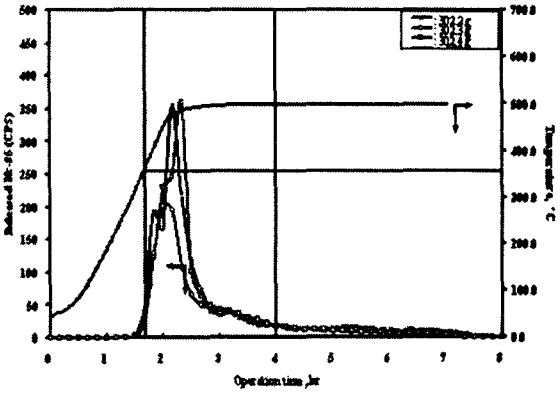

그림 4. K23-M03 사용후핵연료 1차 산화공정에서 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

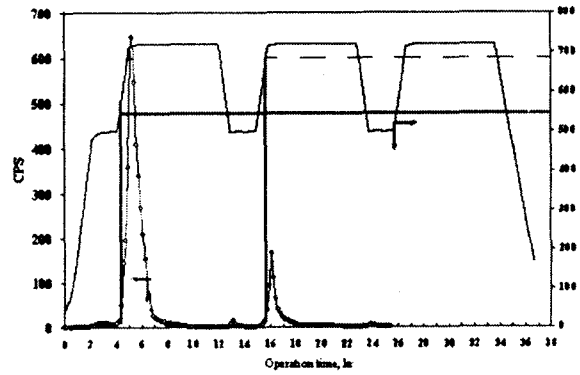

그림 5. K23-M03 사용후핵연료 OREOX 공정중 시간에 따른 Kr-85 방출거동.

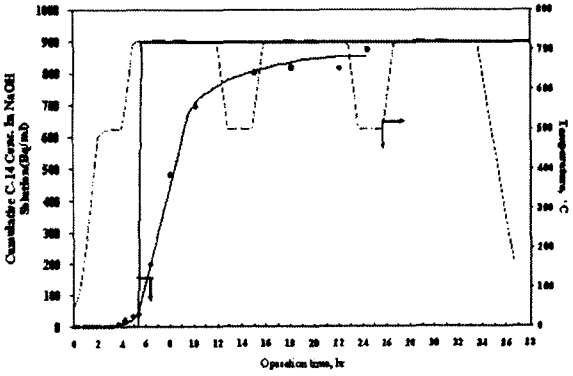

그림 6. K23-M03 사용후핵연료 OREOX공정에서 시간에 따른 C-14 방출거동.