

Release Characteristics of Fission Gases with Spent Fuel Burn-up during the Voloxidation and OREOX Processes

사용후핵연료의 연소도 변화에 따른 산화 및 OREOX
공정에서 핵분열기체 방출 특성

Geun IL Park, Kwang Hun Cho, Jung Won Lee, Jang Jin Park,
Myung Seung Yang and Kee Chan Song
Korea Atomic Energy Research Institute, 150 Deokjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon

ngipark@kaeri.re.kr

박근일, 조광훈, 이정원, 박장진, 양명승, 송기찬
한국원자력연구소, 대전시 유성구 덕진동 150번지

(Received October 23, 2006 / Approved November 24, 2006)

Abstract

Quantitative analysis on release behavior of the ^{85}Kr and ^{14}C fission gases from the spent fuel material during the voloxidation and OREOX process has been performed. This thermal treatment step in a remote fabrication process to fabricate the dry-processed fuel from spent fuel has been used to obtain a fine powder. The fractional release percent of fission gases from spent fuel materials with burn-up ranges from 27,000 MWd/tU to 65,000 MWd/tU have been evaluated by comparing the measured data with these initial inventories calculated by ORIGEN code. The release characteristics of ^{85}Kr and ^{14}C fission gases during the voloxidation process at 500 °C seem to be closely linked to the degree of conversion efficiency of UO_2 to U_3O_8 powder, and it is thus interpreted that the release from grain-boundary would be dominated during this step. The high release fraction of the fission gas from an oxidized powder during the OREOX process would be due to increase both in the gas diffusion at a temperature of 700 °C in a reduction step and in U atom mobility by the reduction. Therefore, it is believed that the fission gases release inventories in the OREOX step come from the inter-grain and intra-grain on UO_2 matrix. It is shown that the release fraction of ^{85}Kr and ^{14}C fission gases during the voloxidation step would be increased as fuel burn-up increases, ranging from 6 to 12%, and a residual fission gas would completely be removed during the OREOX step. It seems that more effective treatment conditions for a removal of volatile fission gas are of powder formation by the oxidation in advance than the reduction of

spent fuel at the higher temperature.

Key words : DUPIC, Spent fuel, Voloxidation, OREOX, Oxidized powder, Fractional release percent, ^{85}Kr , ^{14}C ,

요 약

사용후핵연료의 건식 재가공을 위한 핵연료 원격 제조과정중 분말제조를 위한 산화 및 OREOX(산화·환원공정)열처리 공정으로부터 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열기체의 방출거동을 정량적으로 평가하였다. 특히 사용후핵연료의 평균 연소도가 27,000 ~ 65,000 MWd/tU 범위내에서 연소도 변화에 따른 핵분열기체의 방출 분율은 측정된 실험결과와 ORIGEN 코드로부터 계산된 초기 inventory를 상호 비교하여 구하였다. 500 °C 1차 산화공정(voloxidation)에서 ^{85}Kr 및 ^{14}C ($^{14}\text{CO}_2$)의 시간에 따른 방출거동은 UO_2 핵연료의 U_3O_8 으로의 분말화 정도와 밀접한 관련이 있는 것으로 보이며, 입계(grain-boundary)에 분포된 핵분열기체가 대부분 방출되는 것으로 여겨진다. 산화분말을 이용한 OREOX 공정으로부터 핵분열기체의 높은 방출율은 700 °C의 환원공정에서 온도 증가에 의한 기체 확산 및 UO_2 으로의 환원에 의한 U 원자 이동성 증가에 의존하며 주로 inter-grain 및 intra-grain에 분포된 핵분열기체가 방출된 것으로 판단된다. 일차 산화공정시 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열기체의 방출 분율은 핵연료 연소도가 증가함에 따라 높게 나타났고 방출 분율 범위는 총 inventory의 6 ~ 12% 정도며, 산화분말의 OREOX 공정처리시 잔류 핵분열기체 대부분이 방출되는 것으로 보인다. 아울러 사용후핵연료로부터 핵분열기체의 제거를 위해서는 고온 환원 분위기보다는 산화에 의한 분말화가 더 효과적인 것으로 여겨진다.

중심단어 : 듀픽, 사용후핵연료, 휘발성산화, 산화·환원, 산화분말, 방출 분율, ^{85}Kr , ^{14}C

I. 서론

조사된 핵연료가 고온조건에 노출될 경우 핵연료로부터 휘발성 및 준 휘발성 핵분열 생성물, 미량의 악티나이드 원소들이 방출될 수 있다. 이러한 공정은 원자로 중대사고시와 같은 고온 공정조건과 사용후핵연료의 건식 재가공 공정조건, 핵연료 조사시험 조건으로 크게 구분할 수 있다.

먼저 원자로 사고시에는 위험도 및 사고가 미치는 영향을 보다 정확하게 평가하기 위해서는 냉각재 상실사고(LOCA, Loss of Coolant Accident)시 환경 중에 방출되는 방사성물질의 종류와 양(선원항, source term)을 정확하게 예측하는 것이 필요하며, 이를 위하여 원자로 사고 조건에서 핵연료로부터 방출되는

방사성물질의 종류와 양을 실험적으로 구한다[1-3]. 핵분열생성물 방출 거동과 관련된 다른 연구 분야는 사용후핵연료의 건식 재가공시[4-6] 핵연료 산화 및 소결 공정과 같은 고온 열처리 조건에서 핵분열생성물의 방출 특성 분석 및 사용후핵연료 고온 용융공정 [7]에서 핵분열 생성물 거동 특성 분석 분야를 들 수 있다. 앞서 언급한 원자로 사고시 핵종 방출거동 특성 평가 분야에서는 주로 고온 스팀분위기에서 핵연료의 산화 등에 의한 핵분열생성물의 방출 특성을 규명하고 있지만, 사용후핵연료의 건식 재가공 분야에서는 스팀 분위기가 아닌 건조 공기 혹은 환원조건에서 방출 거동을 분석하기 때문에 핵분열생성물의 특성에 따라 원자로 사고시 조건에서 방출 거동과는 그 특성이 달라지게 된다.

사용후핵연료로부터 핵분열 생성물 방출거동에 관한 지금까지의 연구 결과를 보면, 핵분열 생성물 방출에 가장 큰 영향을 미치는 변수는 공정 온도이며, 그 이외에 핵연료 산화 정도, 분위기, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다[8-11]. 특히 핵연료의 산화에 의하여 UO_2 모체(matrix)내 핵분열 기체의 확산도는 증가하는 것으로 나타났으며 산화와 방출 동특성 상관관계를 정립하기 위한 실험을 주로 수행하였고[8,9], 연소도의 영향을 보면, ^{85}Kr 와 ^{137}Cs 의 방출속도는 주로 입계(grain)내에서의 확산에 의존하며 확산은 온도 및 결정립(grain boundary) 특성에 영향을 받으므로 연소도가 높아짐에 따라 핵분열생성물의 방출속도는 일반적으로 증가한 것으로 나타났다[10,11].

사용후핵연료의 재활용을 위한 핵비확산성 건식 공정 산화물 핵연료 기술개발을 위하여 DDFD (DUPIC Fuel Development Facility) 시설에서 경수로 사용후핵연료를 이용하여 건식 재가공 산화물 핵연료 제조 기술과 자격화 공정을 개발하고 원자로내 조사시험을 위해 건식 재가공 핵연료를 제조하였다. 건식 재가공 핵연료 제조공정 최적화를 위하여 2000년 ~ 2002년도에 DDFD (IMEF M6) 핫셀에서 사용후 경수로 핵연료 집합체 G23 연료봉중 평균 연소도 27,300 MWd/tU으로 균일한 부분만을 선정하여 개발된 건식 공정 산화물 핵연료 제조공정흐름에 따라 핵연료 분말, 소결체, 연료봉 제조 공정을 최적화하였다[12-14]. 최근 원자로에서 핵연료의 장주기 고연소도화가 일반적인 추세이므로 건식 재가공 핵연료 제조 공정에서도 연소도 증가에 따른 사용후핵연료의 특성 변화를 분석하고 그에 따른 건식 재가공 핵연료 제조공정 최적화 조건을 검토할 필요가 있다[15]. 일반적으로 핵연료의 연소도가 증가할수록 사용후핵연료내 핵분열생성물의 양 즉, 불순물의 양은 증가하며 동일 조건에서 산화시킬 경우 산화속도가 더 느려지는 것으로 알려져 있으며[16], 연소도 변화에 따른 산화거동은 여러 연구자에 의하여 어느 정도 규명되어 있다[8, 9, 16]. 또한 건식 재가공 핵연료 제조 특성에 미치는 영향을 분석하기 위하여 모의 사용후핵연료(SIMFUEL)를 이용한 연구를 간헐적으로 수

행하였으나, 40,000 MWd/tU 이상의 고연소도 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출속도에 대한 시험 데이터는 많이 확보되지 않은 상태이다.

따라서 본 논문에서는 국내 사용후핵연료를 이용한 건식 재가공시 핵분열 생성물 방출거동과 건식 재가공 핵연료의 원격 제조 특성과의 연관성을 평가하기 위하여 핫셀에서 건식 재가공 조건에 따른 사용후핵연료내 핵분열기체 방출거동 평가를 위한 시스템을 구성하였으며, 본 시스템을 이용하여 핵분열기체 방출 특성 시험을 수행하였다. 특히 27,300 ~ 65,000 MWd/tU 연소도 범위의 PWR 사용후핵연료를 이용하여 1차 산화 공정(500 °C에서 산화) 및 OREOX(Oxidation and Reduction of Oxide Fuel)공정(450 °C에서 산화, 700 °C에서 환원)으로부터 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열기체의 방출 거동을 실험적으로 측정하고, 산화-환원 분위기 및 연소도의 영향을 비교 평가하였다.

II. 실험

가. 핵분열기체 방출거동 실험장치

본 연구에서는 국내 사용후핵연료를 이용한 핵연료 원격 제조시 공정조건에 따른 핵분열기체(^{85}Kr , ^{14}C ($^{14}CO_2$ 형태), ^{129}I , $HTOI$)의 방출 거동 특성을 평가하기 위하여 사용후핵연료의 분말화 공정인 1차 산화(voloxidation) 및 OREOX공정에서 방출되는 핵분열기체를 실시간으로 측정할 수 있는 장치를 IMEF M6 핫셀 시설내에 설치하였다. 아울러 기존의 OREOX 공정조건 범위내의 온도 및 분위기에서 방출되는 핵분열 기체의 방출거동 특성 및 소량의 사용후핵연료 시편(분말, 조각형태)을 핫셀내에 설치된 튜브로(tube furnace)에 주입하고 다양한 시험조건에서 핵분열기체의 방출거동 특성을 평가할 수 있도록 측정 시스템을 구성하였으며, 이를 Fig. 1에 도식화하였다. 핫셀내에 설치한 배기체 처리장치에 의하여 OREOX 공정 또는 튜브로에서 방출되는 배기체내 준휘발성 핵종을 사전 제거하며, 휘발성 핵분열기체는 핵분열기체 모니터링 시스템으로 유입시킨 후 각 세부 장치에서 시간에 따른 방출거동을 측정하고 다시

핫셀내로 재유입시킨다.

Fig. 2는 OREOX로 또는 튜브로부터 방출된 배기체내 핵분열기체의 동적 방출거동을 평가하기 위한 기체 포집 또는 연속측정 흐름도이다. 기체 시료의 채취에 따른 안전성을 확보하기 위하여 모든 측정 장비 및 라인인 글로브박스내에 위치시키고, 박스 내부는 부압을 유지시켜 핫셀 내부로 기체가 유입되도록 하였으며, OREOX장치로부터 글로브박스내로 유입되는 배기체는 OREOX장치와 연결된 배기체 처리 장치를 통과시키지 않고 측정할 수 있도록 구성하였다. 상단 터보관과 글로브박스는 파이프로 연결되어 있고, 파이프내에 모든 기체 라인이 들어 있어 외부로 기체는 누설되지 않는다. 핫셀 환기계통 가동시 글로브박스내 부압 정도는 약 40 mmaq 로서 글로브박스내의 기체라인에서 누설이 일어나더라도 모든 기체는 핫셀 내부로 재유입된다.

글로브박스내에 설치된 각 장치의 특성을 보면, 먼저 산화 및 OREOX 공정에서 방출 가능한 세슘(Cs)을 응축시키기 위하여 배기체는 냉각코일을 통과한 후 HTO 형태의 트리튬을 제거하기 위한 실리카겔 충전 컬럼, 방사성 요오드(¹²⁹I)를 제거하기 위한 활성탄 컬럼을 통과시키고, ¹⁴C 흡수용액과 ⁸⁵Kr 측정 장치로 나누어져 유입시킨다. ¹⁴C 핵분열기체는 1.5 M NaOH 용액(1단 : 500 mL, 2단 : 200 mL)에 10 ~ 30분 동안 흡수시킨 후 LSC 분석을 통하여 시간대별 평균 방사능을 구하였으며, 유입 유량을 0.5 ~ 1 L/min범위로 하였다. ⁸⁵Kr 기체 방사능은 High Resolution Gas Monitoring 장비(RGM-02HR,

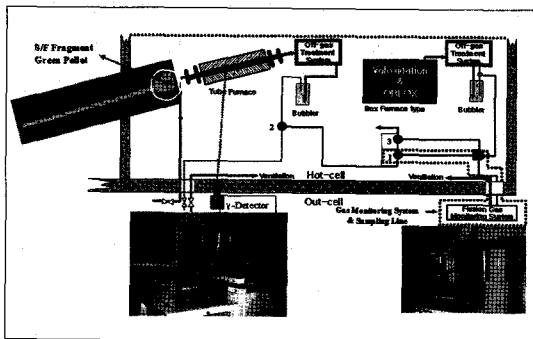


Fig. 1. Schematic diagram of apparatus for the analysis of volatile and semi-volatile fission products release behavior.

RADOS)를 이용하여 기체 상태로 측정하도록 구성하였다. 글로브박스내 ⁸⁵Kr 측정을 위한 기체 라인인 핫셀내 배기체 라인으로부터 글로브박스내 ⁸⁵Kr 측정 시스템과의 연결하고 기체는 Marinelli 탱크(316 cc)을 통과한 후 ¹⁴C 흡수용액으로부터 방출되는 기체와 혼합되어 다시 핫셀 내부의 환기 계통으로 유입된다. 아울러 핵연료 연소도별로 각 공정으로부터 방출되는 핵분열기체의 동적거동을 분석한 후 ORIGEN코드로부터 계산한 각 핵분열기체의 총 함량을 기준으로 하여 각 공정별 핵분열기체 방출 분율을 구하였으며, 측정 시간을 5분~10분으로 하였다. 이를 바탕으로 ⁸⁵Kr 핵분열기체의 시간에 따른 방출 분율(fractional release percent)은 아래의 식을 사용하여 구하였다.

$$\text{방출분율(\%)} = \frac{\text{CPS} \times \text{Factor}(\text{Bq/m}^3/\text{CPS}) \times \text{Gas flow}(\text{m}^3/\text{min}) \times \text{Measuring time}(\text{min})}{\text{Total inventory of } ^{85}\text{Kr Calculated by ORIGEN-code}} \quad (1)$$

나. 사용후핵연료 시험시편

본 실험에 사용된 사용후핵연료의 종류 및 특성을 Table 1, 2에 정리하였으며, 연소도 범위는 27,300 MWd/tU ~ 65,000 MWd/tU이다. Table 1, 2에 정리된 바와 같이, 고리 1호기에서 연소후 방출된 사용후핵연료 G23집합체내에서 연소도가 다른 핵연료봉 세 종류를 한 종류로 사용하였고, 다른 종류로는 울진 2호기에서 연소후 최근에 방출된 고연소도 사용후핵연료 K23 집합체중 M03 핵연료봉을 사용하였

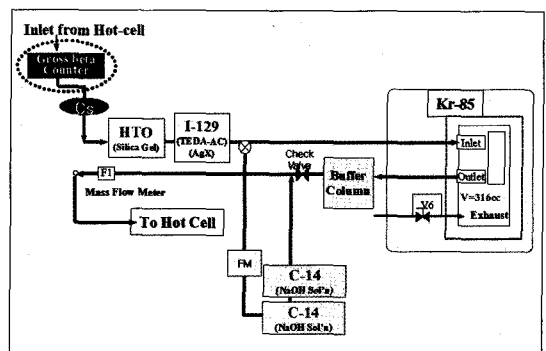


Fig. 2. Flow diagram of the measuring system for fission gases released from the voloxidation and OREOX processes.

Table 1. Characteristics of spent PWR fuels used in this study

고리 1호기 사용후핵연료(G23 집합체) (27,300 ~ 39,600 MWd/tU)	울진 2호기 사용후핵연료(K23-M03) (65,000 MWd/tU)
<ul style="list-style-type: none"> • 방출년도 : 1986, 10, 24 • 초기농축도: 3.21 wt% • 기타 관련 이력(option) - Cycle 4 ~ Cycle 7 • 집합체 형태 : 14×14 • 조사후시험(PTE)시설로 이송일: 1990. 6. 1 	<ul style="list-style-type: none"> • 방출년도 : 2001, 5, 15 • 초기농축도: 4.2 wt% • 기타 관련 이력(option) - 제 8주기('97.6.14~'98.8.23)(436 일) - 제 9주기('98.10.24~'00.1.7)(441 일) - 제 10주기('00.3.3~'01.5.15)(439 일) • 집합체 형태 : 17×17

다. G23 집합체내 핵연료봉별로 냉각기간이 다른 것은 건식 재가공 제조년도가 다르기 때문이다. 특히 G23-5B는 G23 집합체중 A1, B5, B7, C8, D9의 5 개 연료봉으로부터 추출한 것으로 평균 연소도는 27,300 MWd/tU이다.

특히 고연소도 핵연료인 K23 핵연료 집합체는 17×17 형태의 집합체이고 2001년 5월에 방출되었으며 농축도는 4.2 %이고 평균 연소도는 52,328 MWd/tU 을 나타냈다. K23 집합체에서 본 연구를 위해 고연소도 연료봉 중에서 K23-M03 연료봉을 선정하였으며 이 연료봉의 평균 연소도는 56,000 MWd/tU을 나타냈다. 본 연구에서는 Fig. 3에 나타난 연료봉의 연소도 분포에서 보는 바와 같이 연소도가 균일한 중심부 약 2.4 m의 연료봉에 대해 10 개의 rod-cut으로 절단한 후 건식 재가공 핵연료 연구시설(DFDF)로 수송하였다. 감마 스캔 결과 10개 rod-cut의 평균 연소도는 65,000 MWd/MtU을 나타냈으며 이는 기존 핵연료 연소도의 2 배 이상이다.

사용후핵연료 rod-cut으로부터 기계적 방법을 이용하여 실험용 핵물질 시편만을 회수하였고, 이를 건식 재가공 핵연료 제조에 사용하였으며 동시에 핵종

방출 거동 시험을 수행하였다. Table 3에는 사용후핵연료 시편을 이용하여 수행한 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 방출 거동 시험 조건을 정리하였다. 일차 산화 조건은 500 ℃ 공기분위기하에서 5~ 7시간이고, OREOX 공정 조건은 공기분위기하에서 산화온도 및 시간으로 각각 450 ℃ 및 2시간을 설정하였고, 환원조건은 4 % H₂/Ar 분위기에서 700 ℃ 및 7시간으로 설정하고 산화-환원을 3회 반복하였다(Fig. 4 참조). 아울러 기존 OREOX 공정 조건에서의 방출거동 시험과의 비교 평가를 위하여 산화-환원 조건별 방출거동 시험을 튜브로를 이용하여 별도로 세부 실험을 수행하였다.

Table 2. Burn-up characteristics of spent PWR fuels used in this experiment

핵연료	연소도(MWd/tU)	냉각기간 (yr)
G23-5B	27,300	16
G23-K10A	35,000	18
K23-M03	65,000	2.8

Table 3. Test conditions for the release of ⁸⁵Kr and ¹⁴C fission gases during voloxidation and OREOX process

실험 No.	핵연료명	연소도 (MWd/tU)	초기 사용 무게(g)	공정 조건	실험 장치
VT-1	G23-5B	27,300	500.2	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-2	G23-K10A	35,000	308.34	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-3	K23-M03	65,000	302.26	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-4	K23-M03	65,000	302.17	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-5	K23-M03	65,000	302.39	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-6	K23-M03	65,000	110.99	일차산화 OREOX	OREOX로
VT-7	K23-M03	65,000	9.96	환원(700 ℃)후 산화(700 ℃)	튜브로
VT-8	K23-M03	65,000	8.1	환원(1,000 ℃)	튜브로

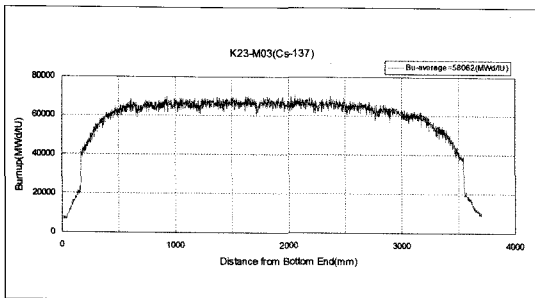


Fig. 3. Burn-up distribution of K23-M03 spent fuel rod.

III. 결과 및 고찰

가. Voloxidation 공정 및 원자로 증대사고시 핵분열기체 방출거동

사용후핵연료의 휘발성 산화공정인 Voloxidation 공정은 미국 ORNL에서 처음 개발되었으며, 초기에는 사용후핵연료의 산화를 통한 분말화 및 습식 용해조의 용액내 방사능을 줄이기 위하여 트리튬을 사전 제거하는데 주 목적을 두고 있었다[17, 19]. 따라서 voloxidation 공정조건은 대부분 500 ℃ 산화분위기였으며, 사용후핵연료로부터 핵분열기체 중 트리튬 방출율은 100 %인 반면 기타 핵분열기체의 방출 분율은 낮게 나타났다. 지금까지 수행된 사용후핵연료 voloxidation 공정 실험결과로부터 핵분열기체의 종류별 방출 분율을 정리하면 Table 5와 같다[8, 17-19]. 이상의 결과에서와 같이 트리튬은 ⁸⁵Kr 또는 ¹⁴C 핵분열기체가 전량 제거될 경우 동시에 쉽게 제거되므로 본 논문에서는 측정 대상에서 트리튬을 제외하였으며, I-129 핵분열기체 방출거동은 핵종 분석방법 정

Table 5. Comparison of typical release fraction of fission gases during voloxidation at 500 ℃, 5 h

실험 기관	사용후 핵연료 (MWd/tU)	연소도	온도 (℃)	핵분열기체 방출율(%)			
				³ H	¹²⁹ I	¹⁴ C	⁸⁵ Kr
Savannah	MOX	25,000 ~ 40,000	500	>99.9	8	39	10
River Lab	PWR	28,000	500	>99.8	8	17~22	7~17
JAERI	MOX	50,000	700	90	68	25	7

립후 평가할 예정이다.

아울러 원자로 증대 사고조건인 수소 분위기 및 공기-스팀 분위기하에서 수행한 핵분열생성물 방출 거동 실험 결과중, 사용후핵연료의 건식 재가공 조건으로 설정된 온도범위인 500 ℃ ~ 1800 ℃에서 스팀-수소기체 분위기하에서 주요 핵분열생성물의 방출 분율을 Table 6에 상호 비교하였다[1-3].

Table 6에 나타낸 바와 같이, 약 2,000 ℃의 스팀 분위기하에서 핵분열기체 방출 분율은 42 %(¹²⁹I) ~ 69 %(⁸⁵Kr)로서 전량 제거되지 않았다. 이는 스팀 분위기하에서는 낮은 산소 포텐셜로 인하여 핵연료의 분말화가 일어나지 않고 초기 핵연료 형태를 유지하므로 기체-고체의 접촉 면적이 낮고 UO₂ matrix로부터 확산에만 의존하기 때문인 것으로 여겨진다.

나. 사용후핵연료의 연소도별 산화(Voloxidation)에 의한 분말화 특성

기계적 탈피복(slitting) 공정으로부터 회수된 사용후핵연료의 성형체 또는 핵연료 조각(fragment)을 4 단 트레이에 넣고 OREOX로에 장전한 후 산화시켜 분말을 제조하였는데, 본 일차 산화공정은 Fig. 4의 건식 재가공 핵연료 원격 제조 공정도에 나타나 바와 같이, 회수된 핵연료의 성형체를 분말화하고 이를 혼합하여 핵분열성 물질(fissile material)인 ²³⁵U 및 ²³⁹Pu, ²⁴¹Pu의 혼합 균일성을 증가시키는 데 목적을 두고 있다.

일반적으로 공기중에서 UO₂의 U₃O₈으로 완전 산

Table 6. Comparison of fission products release percent under severe accident conditions

시험기관 (시험명)	사용후핵연료 특성			시험조건		주요 핵종 방출 분율 (Released % of inventory)								
	연소도 (MWd/tU)	냉각기간 (년)	시료 형태	온도 (℃)	분위기	⁸⁵ Kr	¹²⁹ I	¹³⁷ Cs	¹⁰⁶ Ru	¹⁴⁴ Ce	¹²⁵ Sb	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu	⁹⁵ Zr
미국 (VI)	40,300	10	Segment (20 cm)	2,000	스팀	69	42	71	3	0	52	0.05	0	0
프랑스 (HEVA)	28,000	10	Segment (20g UO ₂)	1,800	수소/스팀	*	*	38	<2	<3	20	<3	0	0
캐나다 (HOX)	28,000	20	Fragment (5 g)	700/1,650	공기/수소	100	*	65	0	0	*	0	0	0
일본 (VEGA)	47,000	6.5	Segment (10g UO ₂)	2,500	스팀	*	*	94	52	0	*	0	0	0

(주) *: No data.

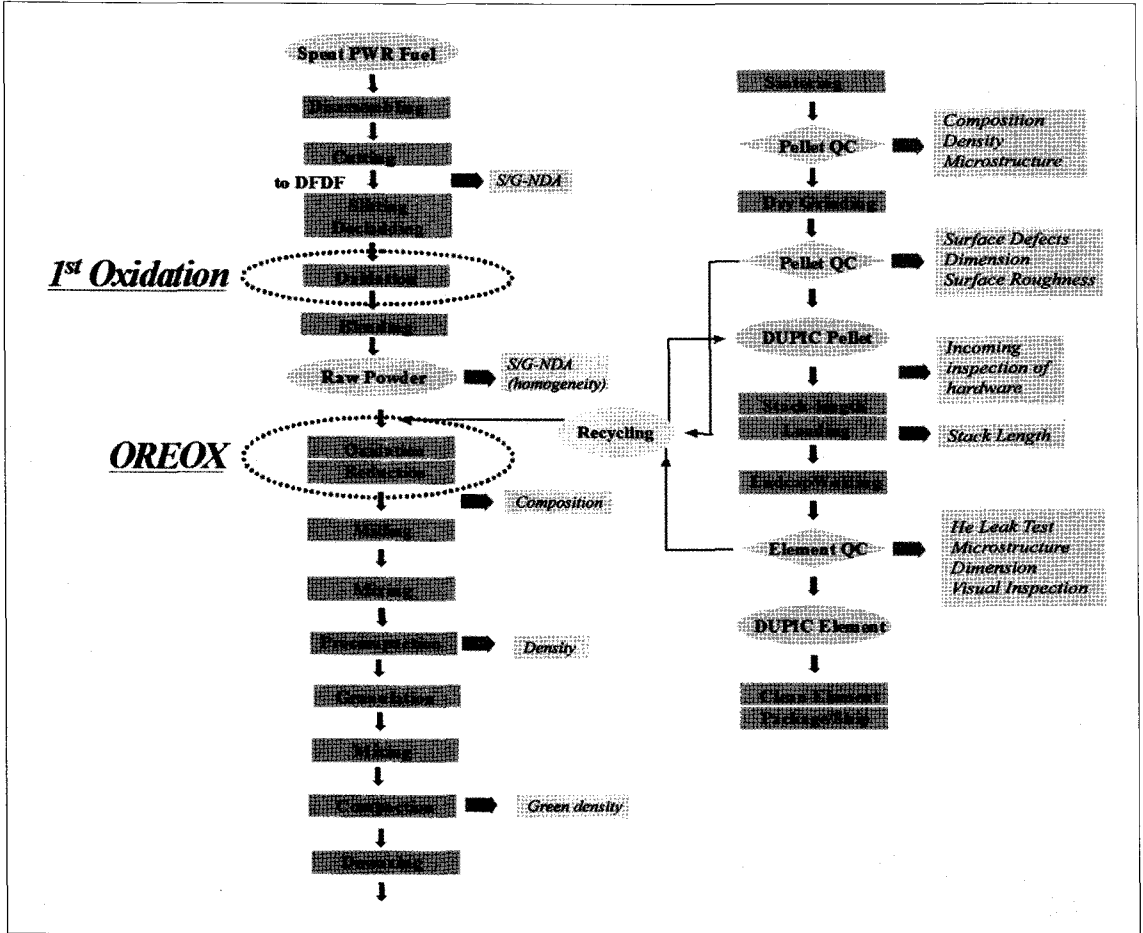


Fig. 4. Qualified process flow chart of the DUPIC fuel fabrication.

화시 나타난 이론적 무게이득은 3.97 %로서 500 °C에서 수행한 UO_2 의 산화실험 데이터 결과를 보면 무게이득은 평균 4 % 정도로 알려져 있으며 산화시간

은 약 2시간이면 산화가 거의 완료되는 것으로 나타났다[16, 20]. Fig. 5는 500 °C에서 5시간 동안 사용후 핵연료를 산화처리하여 얻어진 무게 이득(weight gain, wt%)을 핵연료 연소도의 함수로 도식한 결과이다.

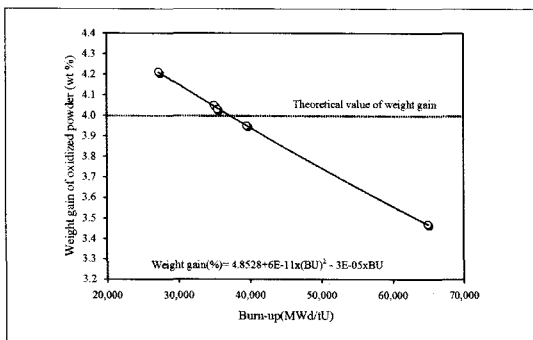


Fig. 5. Variation in weight gain of oxidized powder with spent fuel burn-ups.

연소도 35,000 MWd/tU인 G23-K10A 핵연료의 산화분말은 산화후 최종 무게이득이 4.05 %로서 이론값에 근접하였으며, G23-5B 핵연료의 경우는 4.2 %를 보여주었다. 따라서 핵연료 연소도가 40,000 MWd/tU 이하인 경우에는 불순물 함량에 관계없이 산화가 충분히 이루어져 대부분 미세한 산화분말 형상을 보여주고 있음을 알 수 있었다. 그러나 K23-M03 고연소도 사용후핵연료의 경우 일차 산화후 제조된 U_3O_8 분말의 산화 무게이득은 이론 무게이득인

4 wt%보다 낮은 3.47 %였다. 고연소도 핵연료의 경우, 무게이득이 낮게 나타난 것은 UO_2 의 U_3O_8 으로 완전 산화가 힘들다는 것을 암시하며 산화후 분말형상에서도 동일한 특성이 나타났다. 핵연료 연소도가 40,000 MWd/tU 이하인 경우에는 대부분 미세한 산화분말 형상을 보여주고 있지만, 고연소도 핵연료의 경우 미세 산화분말내에서 입자크기가 약간 큰 산화분말을 관찰할 수 있었다. 일반적으로 산화분말의 평균 입자크기는 약 8 ~ 12 μm 로서 핫셀내에서 입자크기 분포를 측정하는 것은 어렵다. 고연소도 핵연료의 경우 완전 산화가 힘든 것은 주로 핵연료내 불순물로 다량 함유된 핵분열생성물의 영향으로 해석할 수 있다. 반면에 모의 사용후핵연료 산화실험 결과를 보면 연소도 범위 60,000~70,000 MWd/tU 핵연료의 산화시 핵분열생성물의 영향은 크지 않는 것으로 나타났다[16]. 그러나 본 연구에서 얻은 연소도 65,000 MWd/tU의 사용후핵연료의 산화에 의한 무게이득 및 분말 형상 결과로부터 핵분열생성물의 함량이 높아질 경우 산화에 미치는 영향이 큰 것으로 나타났다.

다. 일차 산화과정(Voloxidation)에서 ^{85}Kr 및 ^{14}C 방출 거동

Fig. 6은 K23-M03 사용후핵연료를 이용하여 산화공정시 각 배취별(Table 3의 VT-3,4,5)로 수행한 산화 시간에 따른 ^{85}Kr 방출결과를 계수율(cps) 변화로 나타낸 결과이다. 그림에서 보는 바와 같이 ^{85}Kr 가 방출되기 시작하는 온도는 350 $^{\circ}C$ 로서 방출이 시작된

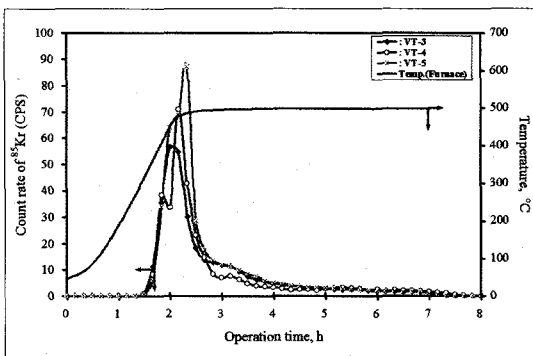


Fig. 6. Typical release behavior of ^{85}Kr from K23-M03 spent fuel during the 1st voloxidation.

후 500 $^{\circ}C$ 에 도달하였을 때 최대점을 보이고 이후 감소하기 시작하여 4 시간동안 ^{85}Kr 의 방출이 계속 되었다. 그리고 각 배취별 ^{85}Kr 방출거동은 재현성이 좋았으며, 시료의 분말화가 본격적으로 이루어지는 약 400 $^{\circ}C$ 부근에서 분말의 비표면적 증가로 인하여 방출속도가 급격하게 증가함을 알 수 있었다.

Fig. 7과 8은 1차 산화과정(500 $^{\circ}C$)에서 사용후핵연료의 연소도에 따른 ^{85}Kr 방출거동을 비교한 결과로서, 시간에 따라 방출된 ^{85}Kr 핵분열기체의 계수를 변화(Fig. 7)와 이를 바탕으로 구한 시간에 따른 핵연료별 ^{85}Kr 누적 방출 분율(Fig. 8)변화를 도식한 것이다. 1차 산화과정 중 ^{85}Kr 핵분열기체의 방출거동은 핵연료의 연소도별로 약간 차이가 나는 것으로 판단된다. 고연소도 사용후핵연료의 경우 약 350 $^{\circ}C$ 에서 ^{85}Kr 가 방출되기 시작하였으며, 연소도가 낮아질 경우 방출 시작 온도는 약간 상승하여 약 400~450 $^{\circ}C$

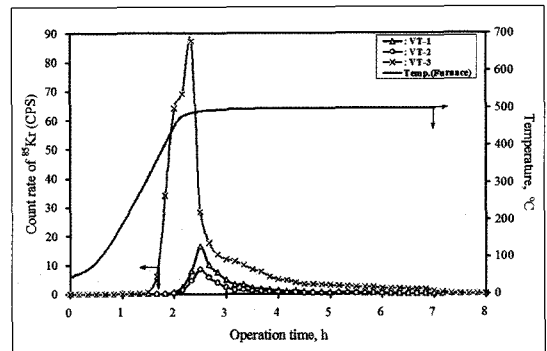


Fig. 7. Release characteristics of ^{85}Kr fission gas with spent fuel burn-ups during the 1st voloxidation(VT-1, 2, and 3).

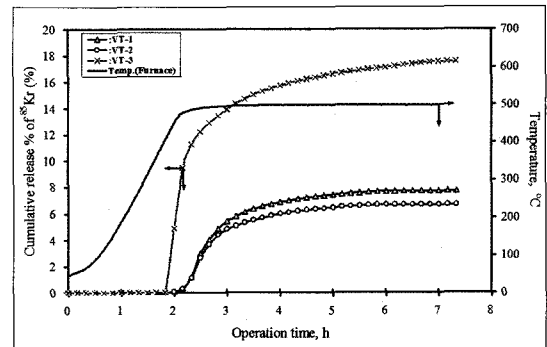


Fig. 8. Cumulative release fraction of ^{85}Kr fission gas with spent fuel burn-ups during the 1st voloxidation.

구간에서 방출이 시작되었다. 아울러 연소도가 낮을 경우에는 온도가 500 °C에 도달 후 약 2시간동안 핵연료 외부 표면으로부터 방출되는 것으로 나타났지만 고연소도 핵연료의 경우에는 총 4시간 정도 계속 방출되었다.

이러한 특성은 연소도별 ⁸⁵Kr의 함량(inventory) 차이 뿐만 아니라 핵연료내에서 핵분열기체의 방출 메커니즘이 약간 상이하다는 것을 의미한다. 즉 고연소도 핵연료의 경우 핵분열기체의 입계(grain-boundary)로의 이동성이 다소 높아 쉽게 방출이 일어나며, 아울러 방출율은 더 높은 것으로 판단된다. Fig 9는 500 °C의 산화공정에서 사용후핵연료로부터 ¹⁴C 핵종의 방출거동을 분석한 결과로서 산화 시간에 따른 NaOH 흡수용액내 ¹⁴C 핵종의 방사능 변화를 나타낸 것이다. 그림에서 보는 바와 같이 ¹⁴C 핵종 방출 거동은 ⁸⁵Kr 핵종의 방출 특성과 거의 유사하였다.

Table 7은 연소도 27,000 ~ 65,000 MWd/tU 범위의 사용후핵연료를 이용하여 500 °C, 5시간의 산화 공정(voloxidation)으로부터 구한 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체의 평균 방출 분율을 정리한 결과로서, 각 배취

Table 7. Release fraction percent of ⁸⁵Kr and ¹⁴C fission gases during 1st voloxidation process at 500 °C, 5 h

실험 No.	연소도 (MWd/tU)	방출 분율(%)	
		⁸⁵ Kr	¹⁴ C
VI-1	27,300	7.7	7.5
VI-2	35,000	6.6	12.0
VI-3,4,5,6*	65,000	17.6	15.0

*: VI-3,4,5,6 배취별 방출 분율의 평균값

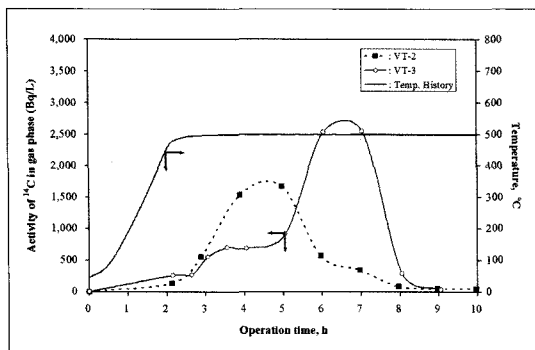


Fig. 9. Release characteristics of ¹⁴C fission gas with spent fuel burn-ups during the 1st voloxidation (VI-2, 3).

별로 구한 방출 분율의 평균값을 수록한 것이다. 연소도 27,000 ~ 35,000 MWd/tU 범위의 사용후핵연료의 경우, 평균 방출 분율은 6 ~ 8%이지만 고연소도 핵연료(K23-M03, 65,000 MWd/tU)의 경우는 12 ~ 17%로 높게 나타났는데, 이러한 방출 거동 특성 차이를 다음과 같이 해석할 수 있다.

원자로에서 핵연료의 조사중 생성된 핵분열기체의 핵연료내 분포 특성을 보면, UO₂ 모체(matrix)로부터 입계로 확산·이동되어 존재한 경우 (grain-boundary inventory), 모체내에 분포하는 경우 (Inter-grain or Intra-grain inventory), 입계로 이동한 기체 bubble의 확산에 의한 핵연료-피복판 gap으로 이동 (Gap inventory)하여 분포하는 것이다[21, 22]. 따라서 gap에 분포한 핵분열기체는 사용후핵연료봉 절단시 대부분 방출된 것으로 판단된다. 따라서 사용후핵물질의 산화후 분말 입자크기는 8 ~ 12 μm 정도

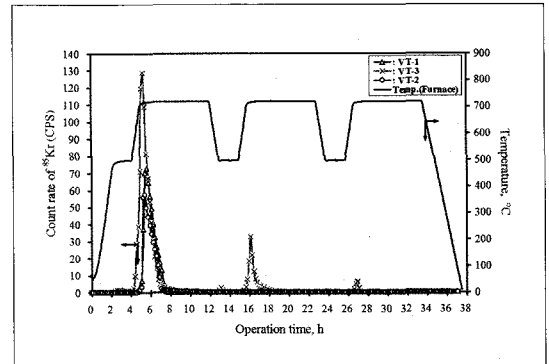


Fig. 10. Release characteristics of ⁸⁵Kr fission gas with spent fuel burn-ups during the OREOX process (VI-1, 2, and 3).

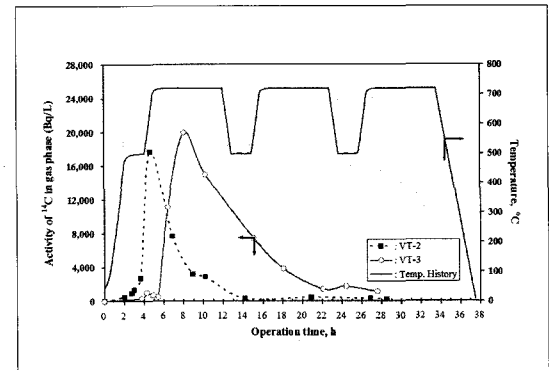


Fig. 11. Release characteristics of ¹⁴C fission gas with spent fuel burn-ups during the OREOX process (VI-2, 3).

가 되므로 1차 산화과정에서는 주로 입계에 분포하고 있는 핵분열기체(⁸⁵Kr 및 C-14포함)가 대부분 방출된다는 것을 의미한다.

라. OREOX 공정에서 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 방출 거동

일차 산화처리한 분말을 이용하여 OREOX 공정으로부터 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체의 동적 방출거동을 분석하였다. Fig. 10은 연소도가 다른 여러 종류의 일차 산화된 분말을 이용하여 3 cycle OREOX 공정중 운전시간에 따른 ⁸⁵Kr 방출에 의한 배기체내 계수를 변화를 도식한 것이며, Fig. 11은 K23-M03 사용후핵연료 일차 산화분말의 OREOX 처리과정에서 시간에 따른 ¹⁴C(¹⁴CO₂)의 방출거동을 측정된 결과로서 1.5 M NaOH 용액에 흡수시킨 후 LSC 분석을 통하여 구하였고 시간에 따른 용액의 농도 변화로서 누적량을 나타내었다.

전체적으로 방출거동을 분석하면, OREOX 공정중 1st-cycle 산화과정에서는 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체는 방출되지 않고 1-cycle 환원 단계로의 승온과정인 약 550 °C부터 다시 방출되기 시작한 것으로 나타났는데, 이러한 결과는 다음과 같이 해석할 수 있다. 앞서 언급한 바와 같이 500 °C 일차 산화과정에서 주로 입계에 분포되어 있는 핵분열 기체가 대부분 방출되는 것으로 여겨지며, 아울러 OREOX 공정 중 첫 번째 산화과정에서 비슷한 산화온도로 인하여 분말화가 더 이상 이루어지지 않기 때문에 inter-grain, intra-grain에 존재하는 핵분열기체가 방출되지 않아 나타난 현상으로 볼 수 있다. 그러나 700 °C 환원공정으로 전

환되는 과정에서 온도 상승으로 인하여 grain 내부에 분포되어 있는 핵분열기체의 단순 열적 확산(thermal diffusion) 및 산화분말의 환원에 의한 U 원자 vacancy 생성으로 인하여 산소 원자의 확산에 의한 U 원자 이동성이 증대되고, 이에 따른 inter-grain 또는 intra-grain에 위치한 핵분열기체의 원자 확산성이 증가하여 핵분열기체의 방출량이 빠르게 증가한 것으로 보인다[11, 22]. K23-M03 고연소도 핵연료의 경우 연소도가 낮은 G23-K10A, G23-5B 핵연료와 다르게 ⁸⁵Kr는 2nd-cycle OREOX공정에서도 방출되는 것으로 나타났는데, 이는 고연소도 사용후핵연료내 핵분열기체의 총 함량이 높으며 동일한 핵분열기체의 확산계수를 가지고 방출되는 것으로 가정할 경우 1st-cycle OREOX 공정에서 전량 방출되지 못하여 나타난 현상으로 여겨진다. 이상의 시간에 따른 ⁸⁵Kr 방출량을 기준으로 총 함량 값을 사용하여 시간에 따른 ⁸⁵Kr 누적 방출 분율을 구하였으며 이를 Fig. 12에 나타내었다.

OREOX 공정으로부터 핵분열기체의 방출 메커니즘을 종합하면, 방출 거동에 가장 지배적인 메커니즘은 온도 상승에 의한 단순 열적 확산에 따른 grain 내부로부터 핵분열기체의 확산을 들 수 있고, 또 다른 방출 구동력(driving force)은 산화분말의 환원에 의한 U 원자 vacancy 생성으로 인하여 산소 원자의 확산에 의한 U 원자 이동성이 증대되고 이에 따른 inter-grain 또는 intra-grain에 위치한 핵분열기체의 원자 확산성이 증가하여 방출량이 증가한다는 것으로 해석할 수 있다[21, 22]. 아울러 ¹⁴C 핵분열기체의 방출거동은 ⁸⁵Kr와 비슷하게 나타나 두 종류 핵분열기체의 핵연료내 분포 특성이 유사하다는 것을 알 수 있다.

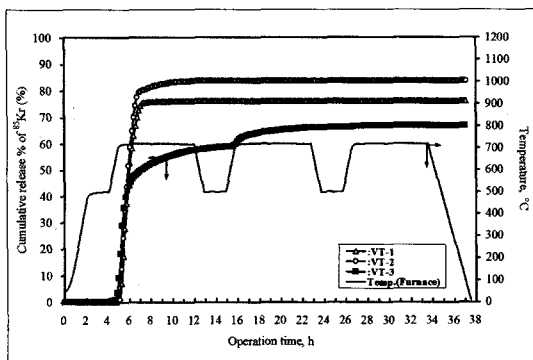


Fig. 12. Cumulative release fraction of ⁸⁵Kr fission gas with spent fuel burn-ups during the OREOX process.

Table 8. Release fraction percent of ⁸⁵Kr and ¹⁴C fission gases during 1st voloxidation and OREOX processes

실험 No.	연소도 (MWd/AU)	1차 산화공정		OREOX 공정		총 방출율	
		⁸⁵ Kr	¹⁴ C	⁸⁵ Kr	¹⁴ C	⁸⁵ Kr	¹⁴ C
VT-1	27,300	7.7	7.5	79.2	72.1	86.9	79.6
VT-2	35,000	6.6	12.0	83.5	76.5	90.1	88.5
VT-3,4,5,6*	65,000	17.6	15.0	66.7	66.8	84.3	81.8

* : VT-3,4,5,6 벤틀럴 방출 분율의 평균값

Table 8은 연소도 27,000 ~ 65,000 MWd/tU 범위의 사용후핵연료를 이용하여 1차 산화공정 및 OREOX 공정으로부터 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열 기체의 평균 방출 분율 및 전체 공정에서의 총 방출 분율을 종합 정리한 결과이다.

먼저 1차 산화공정인 voloxidation시 ^{85}Kr 및 ^{14}C 의 방출 분율을 보면, 연소도 40,000 MWd/tU 이하의 사용후핵연료에서 방출 분율은 ^{85}Kr 의 경우 6 ~ 8%로서 Table 5에 정리한 기존 실험결과와 유사하게 나타났다. ^{14}C 의 경우는 7 ~ 12%로서 기존 데이터보다 약간 낮은 값을 보였다. 고연소도 사용후핵연료의 경우 ^{14}C 및 ^{85}Kr 의 방출 분율은 각각 15%와 18%로서 저연소도에 비하여 상대적으로 높은 값을 보여주었는데, 이는 장주기 고연소도에 의하여 핵연료 자체의 결정립에 크랙이 많이 생성되어 inter-grain에 분포된 핵분열기체의 방출때문에 상대적으로 높은 방출 분율을 나타낸 것으로 판단된다. 1차 산화 및 OREOX 공정시 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열기체의 총 방출 분율을 보면, 연소도 40,000 MWd/tU 이하를 갖는 사용후핵연료의 경우 연소도가 증가함에 따라 방출 분율은 증가하였으나 고연소도 핵연료는 상대적으로 낮은 방출 분율을 나타내었다. 국내 원자력발전소로부터 방출된 사용후핵연료의 연소도 증가에 따른 연료봉내 gap으로의 핵분열기체 방출 분율 분석 결과에 의하면, Fig. 13에 나타낸 바와 같이 연소도가 증가함에 따라 기체 방출 분율은 높아지며, K23-M03 고연소도 사용후핵연료의 경우 ^{85}Kr 등을 포함한 핵분열기체의 총 방출 분율은 10% 정도로 나타났다.

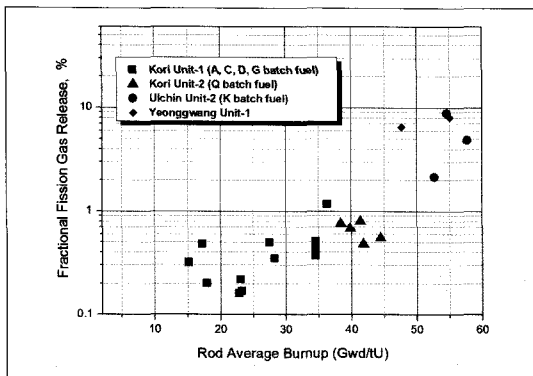
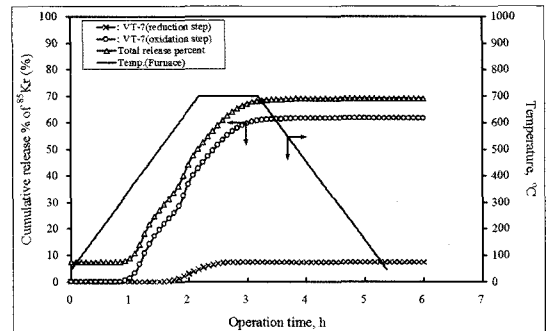


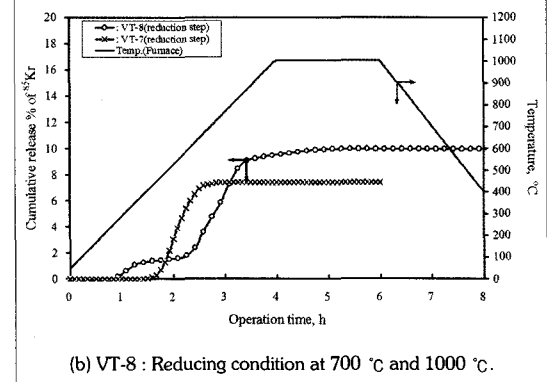
Fig. 13. Fractional fission gas release to fuel-sheath gap with rod average burn-ups.

본 연구에서는 ORIGEN 코드 계산 결과를 사용하여 연소에 의하여 생성된 핵연료내 핵분열기체의 함량을 기준으로 핵분열기체의 방출 분율을 구하였으며, gap내에 존재하는 핵분열기체가 핵연료봉 절단시에 대부분 방출될 경우 1차 산화 및 OREOX 공정으로부터 측정된 총 기체 방출 분율은 상대적으로 낮은 값을 갖게 된다. 따라서 핵분열기체의 gap 함량이 상대적으로 높은 고연소도 사용후핵연료의 경우 사용후핵연료의 분말화 열처리 과정으로부터 핵분열기체의 방출 분율은 저연소도 사용후핵연료의 경우와 비교하여 상대적으로 낮은 값을 나타낼 것이다.

이상과 같이, 1차 산화공정(voloxidation)시 ^{85}Kr 및 ^{14}C 핵분열기체의 방출 분율은 사용후핵연료의 연소도가 증가함에 따라 높은 값을 보여 주었고, 1차 산화분말의 OREOX 공정시 약 70% 이상의 방출 분율을 나타내었다. 따라서 연료봉 절단시 사용후핵연료봉내 gap에 존재하는 핵분열기체의 연료봉 방출



(a) VT-7 : Reduction and subsequent oxidation at 700 °C.



(b) VT-8 : Reducing condition at 700 °C and 1000 °C.

Fig. 14. Release characteristics of ^{85}Kr fission gas under different atmosphere conditions [VT-7, 8].

및 측정 오차를 고려할 경우, 사용후핵연료의 1차 산화 및 OREOX공정에 의한 분말화 과정에서 이들 대부분은 제거됨을 알 수 있었다.

마. 열처리 분위기에 따른 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 방출 거동

사용후핵연료로부터 핵분열기체의 방출거동에 미치는 기체 분위기의 영향을 평가하기 위하여 Fig. 1에 보여주는 튜브로를 이용하여 Table 3의 VT-7, 8에 제시된 조건에서 K23-M03 고연소도 사용후핵연료를 사용하여 세부 실험을 수행하였다. Fig. 14(a)는 700 °C 환원분위기에서 1시간 환원실험을 수행한 후 동일한 사용후핵연료를 사용하여 700 °C 산화분위기에서 1시간동안 산화시키는 과정에서 ⁸⁵Kr 누적 방출 분율 변화를 도식한 결과로서, 700 °C 환원 분위기에서 ⁸⁵Kr 누적 방출 분율은 약 7 %로서 매우 낮게 나타났고 방출이 시작되는 온도는 500 °C 이상이였으며, 동일 온도에서 산화시킬 경우는 약 350 °C에서 방출이 시작되어 최종 방출율은 약 62 %로 나타났다. Fig. 14(b)는 1,000 °C 환원분위기에서 ⁸⁵Kr 누적 방출 분율을 700 °C 환원조건에서 구한 결과와 비교한 그림으로서, 환원 분위기에서 1,000 °C까지 온도를 상승시킬 경우에도 최종 방출율은 약 10 %임을 보여주었다. 이상과 같이 사용후핵연료로부터 핵분열기체를 효과적으로 제거하기 위해서는 환원분위기에서 온도를 상승시키는 것 보다 산화조건에서 핵연료의 분말화에 의한 기-고 접촉 면적을 증대시키는 것이 유리한 것으로 나타났다.

IV. 결론

사용후핵연료의 전식 재가공을 위한 DUPIC 공정 중 소결성이 우수한 분말 제조 열처리 기술로 이용되는 1차 산화(voloxidation) 및 OREOX 공정으로부터 사용후핵연료의 연소도 변화에 따른 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체의 방출거동을 평가하였다. 1차 산화공정(voloxidation)조건인 500 °C, 5시간 동안 사용후핵연료의 산화처리후 얻어진 무게 이득 변화에 미치는 핵연료 연소도의 영향을 분석한 결과, 연소도 40,000 MWd/tU이하의 핵연료 산화분말은 산화후 최종 무

게이득이 4 ~4.2 wt%로서 이론값에 근접하였으나 65,000 MWd/tU 고연소도 사용후핵연료의 경우 U₃O₈ 분말의 산화 무게이득은 약 3.5wt %로서 U₃O₈ 로의 완전 산화가 일어나지 않는 것으로 나타났다. 1차 산화공정시 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체의 방출 분율은 6 ~ 15 % 범위로서 사용후핵연료의 연소도가 높아짐에 따라 방출 분율은 증가하였으며, 1차 산화분말을 OREOX 처리할 경우 핵분열기체의 방출 분율은 약 70% 이상으로서 연료봉 절단시 사용후핵연료봉 내 gap에 존재하는 핵분열기체의 방출 및 측정 오차를 고려할 경우 사용후핵연료의 1차 산화 및 OREOX 공정에 의한 분말화 과정에서 ⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 핵분열기체 대부분이 제거됨을 알 수 있었다. 아울러 사용후핵연료로부터 핵분열기체를 효과적으로 제거하기 위해서는 산화조건에서 핵연료의 분말화에 의한 기체-고체 접촉 면적을 증대시키는 것이 보다 유리한 것으로 판단된다.

사용후핵연료의 분말화 공정인 1차 산화과정에서는 산화후 분말 입자크기는 8~ 12 μm정도가 되므로 이를 고려할 경우 주로 입계에 분포하고 있는 핵분열기체(⁸⁵Kr 및 ¹⁴C 포함)가 대부분 방출되는 것으로 여겨지며, OREOX 공정에서 핵분열기체 방출 분율은 70 ~84 %로서 주로 환원 단계에서 온도 상승에 의한 단순 열적 확산에 따른 grain 내부로부터 핵분열기체의 확산 및 산화분말의 환원에 의한 U 원자 vacancy 생성으로 인하여 산소 원자의 확산에 의한 U 원자 이동성이 증대되고, 이에 따른 inter-grain 또는 intra-grain에 위치한 핵분열기체의 원자 확산성이 증가하여 방출량이 증가한 것으로 결론지을 수 있다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력증강기 연구개발 사업의 일환으로 수행하였습니다.

참고문헌

[1] 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).
- [2] R. Dubourg, H. Faure-Geors, G. Nicaise and M. Barrachin, "Fission Products Release in the First Two PHEBUS Tests FPT0 and FPT1," Nuclear Engineering and Design, 235, pp. 2183-2208 (2005).
- [3] A. Hidaka, T. Kudo and T. Nakamura, H. Uetsuka, "Decrease of Cesium Release from Irradiated UO₂ Fuel in Helium Atmosphere under Elevated Pressure of 1.0 MPa at Temperature up to 2,773 K," J. of Nuclear Science and Technology, 39(7), pp. 759-770 (2002).
- [4] M.S. Yang, Y.W. Lee, K.K. Bae, "Conceptual study on the DUPIC fuel manufacturing technology," Proc. Int. Conf. and Technology Exhibition on Future Nuclear System, GLOBAL'93, p.740, Sept. 12-17, 1993, Seattle, USA.
- [5] M.S. Yang, J.J. Park, J.W. Lee, Development of manufacturing equipment and QC equipment for DUPIC fuel, KAERI/TR-1319/99, Korea Atomic Energy Research Institute (KAERI), (1999).
- [6] H.J. Ryu, K.C. Song, G. I. Park, J.W. Lee and M.S. Yang, "Remote Fabrication and Irradiation Test of Recycled Nuclear Fuel Prepared by the Oxidation and Reduction of Oxide Fuel," J. of Physics and Chemistry of Solids, 66, pp. 671-674 (2005).
- [7] 오승철, 허진복, 홍순석, 이원경, 서중석, 박성원, "사용후핵연료의 전기화학적 금속전환을 위한 5 kg U₃O₈/Batch 규모의 Mock-up 시험," 한국 방사성 폐기물 학회지, 1(1), pp. 47-53 (2003).
- [8] J.A. Stone, "Voloxidation Studies with UO₂ Reactor Fuels," National Topical Meeting Fuel Cycles for the 80'S, CONF-8009430-(summ.), pp. 14-17, Sept. 29- Oct. 2, 1980, Gatlinburg, TN, USA.
- [9] D.R. McCracken, Oxidation of UO₂ at 400 to 1,000 °C in Air and Its Relevance to Fission Product Release, Chalk River Nuclear Laboratory, AECL-8642 (1985).
- [10] R.A. Lorenz, M.F. Osborne, Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel, Oak Ridge National Laboratory, NUREG/CR-0722 (ORNL/NUREG/TM-287/82) (1980).
- [11] J.Y. Colle, J.-P. Hiernaut, D. Papaioannou and C. Ronchi, A. Sasahara, "Fission Product Release in High-Burn-up UO₂ oxidized to U₃O₈," J. of Nuclear Materials, 348, pp. 229-242 (2006).
- [12] 양명승, 박장진, 이정원, "DUPIC 핵연료 제조 및 QC 장비 개발," 한국원자력연구소, KAERI/TR-1319/99 (1999).
- [13] 김웅기, 김수성, 박근일, 이재원, 이정원, 조광훈, 이도연, 이영순, 정정환, 신원철, 양명승, "조사시험 용 DUPIC 핵연료 제조 사양서 및 시험검사계획서 개발," 한국원자력연구소, KAERI/TR-2349/2002 (2002).
- [14] 박근일, 이정원, 김수성, 김웅기, 이재원, 조광훈, 이도연, 이영순, 정정환, 신원철, 양명승, "조사시험 용 DUPIC 핵연료 제조 및 운전절차서 개발," 한국 원자력연구소, KAERI/TR- 2382/2003 (2003).
- [15] K. Une, M. Hirai, K. Nogita, T. Hosokawa, Y. Suzawa and S. Shimizu, Y. Etoh, "Rim Structure Formation and High Burnup Fuel Behavior of Large-grained UO₂ Fuels," J. of Nuclear Materials, 278, pp 54-63 (2000).
- [16] J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino and M. Coquerelle, "Phase Characterisation of Simulated High Burn-up UO₂ Fuel," J. of Alloys and Compounds, 271-273, pp. 610-615 (1998).
- [17] J. A. Stone and D. R. Johnson, Measurement of Radioactive Gaseous Effluents from Voloxidation and Dissolution of Spent Nuclear

Fuel, Savannah River Laboratory, DP-MS-78-7 (1978).

- [18] G. Uchiyama, M. Kitamura, K. Yamazaki, S. Torakai, S. Sugikawa, M. Maeda and T. Tsujino, "Study on Voloxidation Process for Tritium Control in Reprocessing," *Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle*, 17(1), pp. 63-79 (1992).
- [19] Y. Kosaka, K. Itoh, H. Kitao, Y. Mori, T. Shimada, H. Yamatoya, K. Sutou and O. Amano, "A Study on the Dry Pyrochemical Technique for the Oxide Fuel Decladding," *J. of Nuclear Science and Technology, Supplement 3*, pp. 902-905 (2002).
- [20] 김건식, 유길성, 민덕기, 노성기, 김은가, "Oxidation Behavior of Unirradiated and Irradiated UO₂ in Air at 150~375°C," *한국원자력학회지*, 29(2), pp. 93-98 (1997).
- [21] J. H. Evans, "Post-irradiation Fission Gas Release from High Burn-up UO₂ Fuel Annealed under Oxidising Conditions," *J. of Nuclear Materials*, 246, pp.121-125 (1997).
- [22] Y. S. Kim, "Theoretical Analysis of Two-stage Fission Gas Release Processes : Grain Lattice and Grain Boundary Diffusion," *J. of Nuclear Materials*, 326, pp. 97-105 (2004).