

KAERI/AR-676/2003

고온조건에서 사용후핵연료로부터  
핵분열 생성물 방출 거동 분석

A Status of Art-Report on the  
Fission Products Behavior Released from Spent Fuel  
at High Temperature Conditions

2003. 04  
KAERI

한국원자력연구소

# 제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 핵연료 원격 제조 기술개발 분야에서 수행중인 핵연료 원격제조 및 재료특성 평가와 관련하여 수행한 “고온 조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출거동 분석”의 기술현황 분석보고서로 제출합니다.

제 목 : 고온 조건에서 사용후 핵연료로부터 핵분열 생성물 방출 특성 분석  
(A Status of Art-Report on the Fission Products Behavior  
Released from Spent Fuel at High Temperature Conditions)

2003년 04월

주 저 자 : 박 근일(건설공정 핵연료 기술개발부)

공동저자 : 김 중호, 이 정원, 이 재원, 김 웅기, 김 수성, 조 광훈, 이 도연,  
이 영순, 정 정환, 양 명승 (건설공정 핵연료 기술개발부)

## 요 약 문

고온 공정조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물의 방출 거동에 관한 시험은 미국의 ORNL(HI/VI 테스트)을 중심으로 프랑스 CEA(HEVA/VERCOS 테스트), 영국의 AEA, 캐나다의 CRNL(HOX 테스트)에서 각각 수행되었으며 최근 일본 JAERI에서도 관련 프로그램을 수행하고 있다. 사용후핵연료로부터 핵분열생성물의 방출 거동에 가장 큰 영향을 미치는 인자는 온도이며, 그 이외에 핵연료 산화 정도, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다. 특히 산화(스팀, 공기) 또는 환원 분위기(수소)에 따라 핵분열 생성물 방출속도 및 이동 거동은 핵분열생성물의 화학적 형태에 따라 달라지게 된다. 연소도의 영향을 보면, Kr-85와 Cs-137의 방출속도가 주로 입계내에서의 확산에 의존하며 확산은 주로 온도 함수이기 때문에 연소도가 증가함에 따라 방출속도는 증가하였다. 그러나 50,000 MWD/MTU 이상의 고연소도 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출속도에 대한 시험데이터는 많이 확보되지 않은 상태이다.

본 기술현황 분석 보고서에서는 고온인 건식 재가공 핵연료 제조 조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 및 핵분열성 물질의 방출특성을 분석하기 위하여 원자로 사고시 조건을 중심으로 각국에서 수행중인 시험 결과를 종합 정리하였다. 이를 바탕으로 원자로 사고시 조건에서 핵종 방출시험과 비교하여 상대적으로 시험결과가 많지 않은 국내 사용후핵연료의 건식 재가공시 제조조건에서 방출 가능한 핵분열기체 및 핵분열생성물의 거동을 예비분석하였다.

## SUMMARY

The experiments on the fission products release behavior from spent fuel at high temperature assuming reactor accident conditions have been carried out at Oak Ridge Nation Laboratory of USA in HI/VI tests, CEA of France in HEVA/VERCOS tests, AEA of England and CRNL of Canada in HOX test. The VEGA program to study the fission product release behavior from LWR irradiated fuel was recently initiated at JAERI. The key parameter affecting the fission product (FP) release behavior is temperature. In addition, other parameters such as fuel oxidation, burnup, pre-transient conditions are found to affect the FP releases considerably in the earlier tests. The atmosphere conditions such as oxidizing atmosphere (steam or air) or reducing atmosphere (hydrogen) can cause significant change of FPs release and transport behavior due to chemical forms of the reactive FPs which is dependent on the oxidation potential. The effect of fuel burnup on the Kr-85 or Cs-137 release showed that the release rates of these radionuclides increased with the increase of burnup, meaning that release rates are dominated by the atomic diffusions in the grains and they are primarily a function of temperature. However, the data on FPs release behavior using higher burnups above 50,000 MWD/MTU are not so many reported up to now.

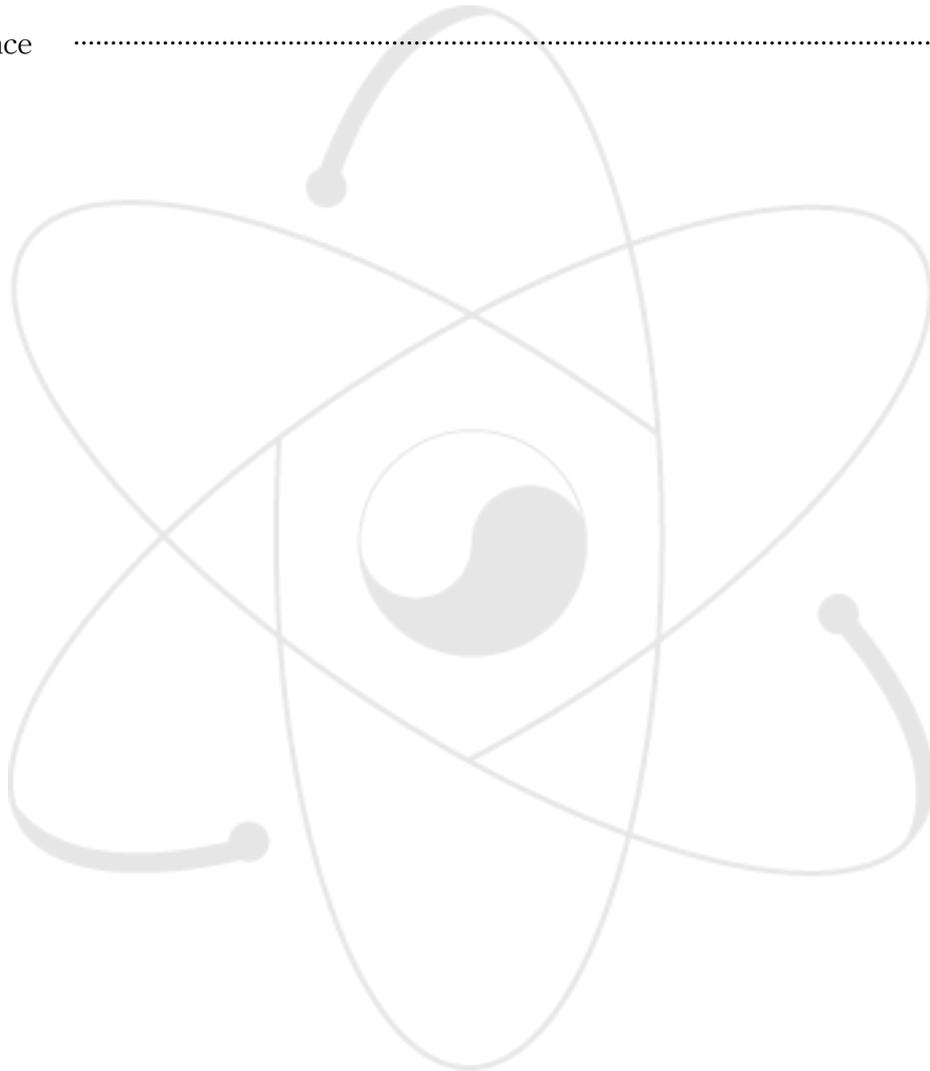
This report summarizes the test results of FPs release behavior in reactor accident conditions produced from other countries mentioned above. This review and analysis on earlier studies would be useful for predicting the release characteristics of FPs from domestic spent fuel. The release rates of fission gas or FPs from spent fuel at high temperature conditions during fabrication process of dry recycling fuel were also analyzed using many data obtained from earlier tests.

# Content

SUMMARY(Korea) .....	ii
SUMMARY(English) .....	iii
Table Content .....	x
Figure Content .....	xiii
<b>Chapter 1 Introduction</b> .....	<b>1</b>
Section 1. Overview .....	1
Section 2. Chemical characteristics of main fission products .....	3
Section 3. Review of research status .....	8
<b>Chapter 2 Research status of ORNL in USA</b> .....	<b>11</b>
Section 1. Overview .....	11
Section 2. Test equipment and method in HI/VI tests .....	14
1. Test conditions .....	14
2. Equipment and test methods .....	16
Section 3. Main results and Discussion .....	23
1. Release of volatile fission products .....	23
2. Release of non-volatile fission products .....	29
Section 4. Analysis of release data and modelling .....	33
1. Release rate constant .....	33
2. Diffusion coefficient .....	39
Section 5. Release rate constant and Diffusion coefficient for various fission products .....	42
Section 6. Summary of test results .....	62
<b>Chapter 3 Research status in Canada</b> .....	<b>63</b>
Section 1. Overview .....	63

Section 2. Test equipment and method in HOX test .....	64
1. Spent fuel characteristics .....	64
2. Test equipment .....	65
3. Test condition .....	68
Section 3. main results and Discussion .....	73
1. HOX-1 test .....	74
2. HOX-2 test .....	84
Section 4. Summary of test results .....	102
<b>Chapter 4 VEGA program in Japan .....</b>	<b>105</b>
Section 1. Overview .....	105
Section 2. Test equipment and method in HI/VI tests .....	107
1. Test equipment .....	110
2. Spent fuel characteristics and Test conditions .....	113
3. Radioactivity measurement and Chemical analysis items .....	114
Section 4. Analysis of test results .....	115
1. Preliminary analysis of test equipment using non-radioactive CsI .....	117
2. Results of VEGA test using irradiated fuel .....	117
3. Analysis of VEGA test results by VICTORIA 2.0 code .....	124
4. Effect of temperature on fission product release behavior .....	131
Section 4. Further test schedule .....	134
<b>Chapter 5 Research status of AEA in England .....</b>	<b>137</b>
Section 1. Overview .....	137
Section 2. Test equipment and method .....	137
1. Test equipment .....	137
2. Test conditions .....	139
3. Radioactivity measurement procedure .....	140
Section 3. Analysis of test results .....	141
1. Preliminary test data .....	141
2. Correction of contamination effect by particle .....	146

3. Estimated release amount of fission product .....	146
4. Analysis of test results .....	146
Section 4. Summary of test results .....	156
Chapter 6 <b>Summary of test results</b> .....	157
Reference .....	163

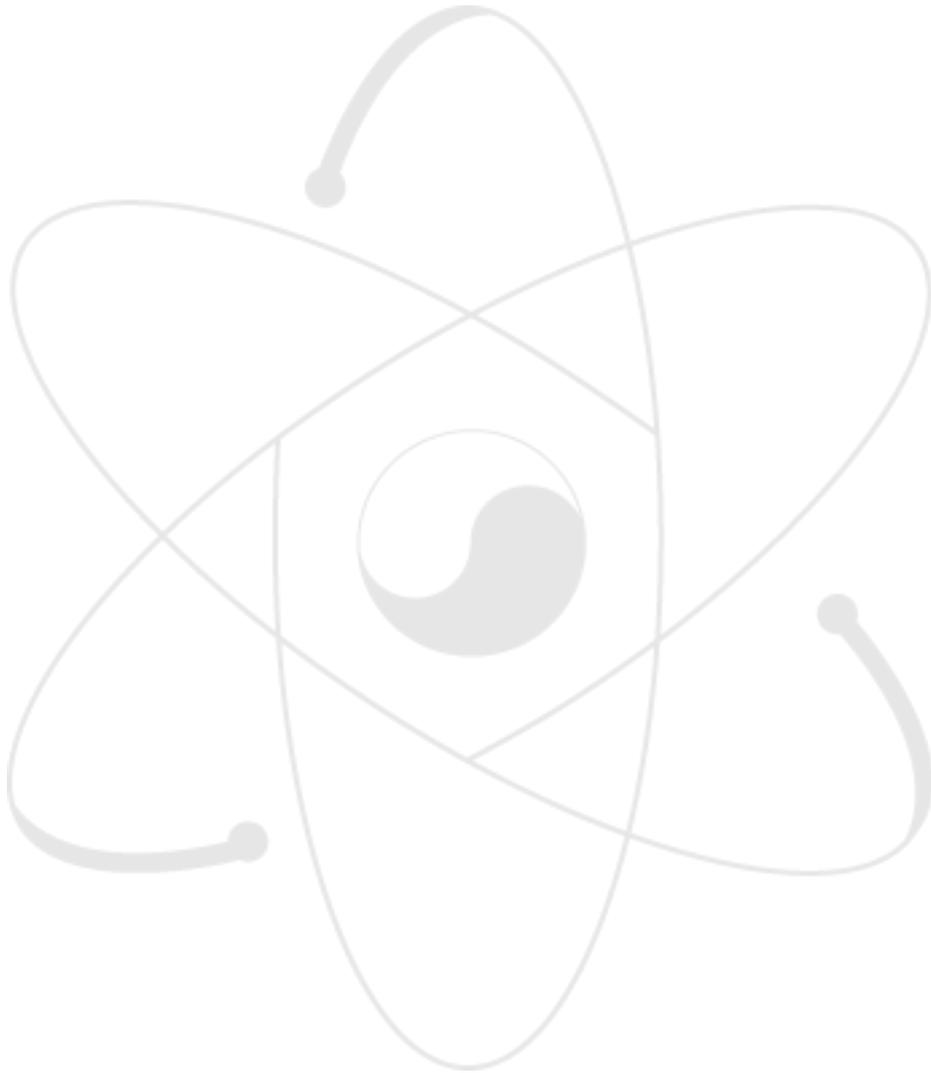


# 목 차

요 약 문	ii
SUMMARY	iii
표 목차	x
그림 목차	xiii
제 1 장 서 론	1
제 1 절 개 요	1
제 2 절 주요 핵분열생성물의 화학적 특성	3
제 3 절 연구동향 개요	8
제 2 장 미국 ORNL 연구 동향	11
제 1 절 개 요	11
제 2 절 HI/VI 시험장치 및 방법	14
1. 시험 조건	14
2. 시험장치 및 방법	16
제 3 절 주요 결과 및 분석	23
1. 휘발성 핵분열생성물의 방출	23
2. 비휘발성 핵분열생성물의 방출	29
제 4 절 방출율 자료의 해석 및 모델링	33
1. 방출속도 상수	33
2. 확산 계수	39
제 5 절 핵종별 방출속도 상수 및 확산계수	42
제 6 절 시험 결과의 종합분석	62
제 3 장 캐나다 연구 동향	63
제 1 절 개 요	63
제 2 절 HOX 시험장치 및 방법	64
1. 사용후핵연료 특성	64

2. 시험 장비 .....	65
3. 시험 조건 .....	68
제 3 절 주요 시험결과 분석 .....	73
1. HOX-1 시험 .....	74
2. HOX-2 시험 .....	84
제 4 절 종합 결론 및 분석 .....	102
제 4 장 일본 VEGA 프로그램 연구 동향 .....	105
제 1 절 개요 .....	105
제 2 절 시험 장치 및 방법 .....	107
1. 시험 장치 .....	110
2. 사용후핵연료 특성 및 시험 조건 .....	113
3. 방사능 측정 및 화학분석 항목 .....	114
제 3 절 시험 결과 분석 .....	115
1. 비방사성 CsI를 이용한 VEGA 시험장치 예비 테스트 .....	115
2. 조사된 핵연료를 이용한 VEGA 시험 결과 .....	117
3. VICTORIA 2.0 코드 모델에 의한 VEGA 테스트 시험 결과 분석 .....	124
4. 핵분열 생성물의 방출 특성에 미치는 온도의 영향 .....	131
제 4 절 향후 시험계획 .....	134
제 5 장 영국 AEA 연구 동향 .....	137
제 1 절 개요 .....	137
제 2 절 시험장치 및 방법 .....	137
1. 시험 장치 .....	137
2. 시험 조건 .....	139
3. 분석 절차 .....	140
제 3 절 시험 결과 및 분석 .....	141
1. 초기 시험 자료 .....	141
2. Particle에 의한 오염 영향 보정 .....	146
3. 핵분열생성물의 예상 방출량 .....	146
4. 시험 결과 분석 .....	146

제 4 절	시험 결과 요약 .....	156
제 6 장	시험결과 종합 분석 .....	157
참고 문헌	.....	163



# 표 목 차

Table 1-1	Summary of out-of-pile fission product release experiment	2
Table 1-2	Summary of in-pile fission product release experiment	3
Table 2-1	Fission-product release tests conducted in hot cells at ORNL since 1976	12
Table 2-2	Test temperature and gas flow rates in HI, VI tests	15
Table 2-3	Fuel characteristics used in HI and VI-tests	16
Table 2-4	Analytical techniques used for fission product analysis	22
Table 2-5	Released amount of fission products during HI and VI tests	24
Table 2-6	Comparison of cesium forms collected in steam and hydrogen atmosphere	26
Table 2-7	Release data as function of temperature and atmosphere	31
Table 2-8	Arrhenius type constants used in calculation of release rate coefficients in M-version of CORSOR	35
Table 2-9	Relative release rates and diffusion coefficients	38
Table 2-10	Release rate coefficients for HI and VI tests	43
Table 2-11a	Diffusion coefficients from HI and VI tests	44
Table 2-11b	Additional diffusion coefficients from HI and VI tests	45
Table 3-1	Fission product activity per gram $UO_2(0.88 U)$ in 1995 Feb.	65
Table 3-2	List of HOX-1 test conditions and sample weights of each batch	70
Table 3-3	List of HOX-2 test conditions and sample weights of each batch	71
Table 3-4	Oxidation conditions of HOX-2 test	73
Table 3-5	Summary of Kr release in HOX-1 tests	75
Table 3-6	Summary of Cs release in HOX-1 tests	79

Table 3-7	Radioactivity measured in the sheath from Fuel A .....	100
Table 3-8	Radioactivity measured in the sheath from Fuel B .....	100
Table 4-1	Test conditions of VEGA program .....	114
Table 4-2	Items of radioactivity measurement and chemical analysis in VEGA tests .....	115
Table 4-3	Main results of fission product release rate in VEGA tests .....	117
Table 4-4	Preliminary data on fractional release estimated from intensity change of $\gamma$ -peaks obtained by off-line measurement .....	131
Table 5-1a	Summary of experimental conditions in main programme. ....	142
Table 5-1b	Summary of experimental conditions in partial repeat programme .....	142
Table 5-1c	Summary of experimental conditions in High temperature programme. ....	143
Table 5-2a	Gravimetric data in main programme .....	143
Table 5-2b	Gravimetric data in partial repeat programme .....	144
Table 5-2c	Gravimetric data in high temperature programme .....	144
Table 5-3	Initial fission product inventory .....	145
Table 5-4	Errors associated with gamma spectroscopy analysis .....	145
Table 5-5	Summary of release present data .....	147
Table 5-6a	Iodine release results in partial repeat programme .....	148
Table 5-6b	Iodine release results in high temperature programme .....	149
Table 5-7	Iodine release results in partial repeat programme .....	149
Table 6-1	Comparison of released percent of main fission products in hydrogen atmosphere .....	160
Table 6-2	Comparison of released percent of main fission products in air (including steam) atmosphere .....	161
Table 6-3	Comparison of released percent of various fission products in DUPIC fuel fabrication condition .....	162

# 그림 목 차

Fig. 1-1	Ellingham diagram for fission products and UO <sub>2</sub> fuel .....	5
Fig. 2-1	Furnace used in the HI tests .....	18
Fig. 2-2	Vertical fission-product release furnace .....	19
Fig. 2-3	Vertical fission-product release apparatus .....	20
Fig. 2-4	Effect of atmosphere on amount of released cesium in aerosol and vapor form .....	27
Fig. 2-5	Temperature, fission-product release, and collection train operating histories for test VI-3 .....	28
Fig. 2-6	Post-test distribution of major fission products in VI-3 and VI-5 tests .....	30
Fig. 2-7	Release rate coefficients for Kr-85, obtained from ORNL tests .....	46
Fig. 2-8	Diffusion coefficients for Kr-85, obtained from ORNL tests .....	46
Fig. 2-9	Release rate coefficients for cesium, obtained from ORNL tests .....	47
Fig. 2-10	Diffusion coefficients for cesium, obtained from ORNL tests .....	47
Fig. 2-11	Release rate coefficients for cesium, obtained from other tests .....	48
Fig. 2-12	Diffusion coefficients for cesium, obtained from other tests .....	48
Fig. 2-13	Release rate coefficients for iodine, obtained from ORNL tests .....	52
Fig. 2-14	Diffusion coefficients for iodine, obtained from ORNL tests .....	52
Fig. 2-15	Release rate coefficients for iodine, obtained from other tests .....	53
Fig. 2-16	Diffusion coefficients for iodine, obtained from other tests .....	53
Fig. 2-17	Release rate coefficients for europium (Eu) .....	54
Fig. 2-18	Diffusion rate coefficients for europium (Eu) .....	54
Fig. 2-19	Release rate coefficients for cerium (Ce) .....	55

Fig. 2-20	Diffusion rate coefficients for cerium (Ce) .....	55
Fig. 2-21	Release rate coefficients for molybdenum (Mo) .....	56
Fig. 2-22	Diffusion rate coefficients for molybdenum (Mo) .....	56
Fig. 2-23	Release rate coefficients for ruthenium (Ru) .....	57
Fig. 2-24	Diffusion rate coefficients for ruthenium (Ru) .....	57
Fig. 2-25	Release rate coefficients for tellurium (Te) .....	58
Fig. 2-26	Diffusion rate coefficients for tellurium (Te) .....	58
Fig. 2-27	Release rate coefficients for antimony (Sb) .....	59
Fig. 2-28	Diffusion rate coefficients for antimony (Sb) .....	59
Fig. 2-29	Comparison of measured release rate coefficients for antimony in steam(cladding oxidized) and in hydrogen(cladding not oxidized) ; data for cesium shown for comparison .....	60
Fig. 3-1	Schematic of equipment setup of the HOX experiments .....	66
Fig. 3-2	Cumulative Kr-85 release in test HXA(UO <sub>2</sub> fragments from fuel A). Temp. history : heated in 4%H <sub>2</sub> /Ar to 400°C → exposed to air → heated to 1,400°C. A correction for transition time was applied .....	76
Fig. 3-3	Cumulative Kr-85 release in test AR1(UO <sub>2</sub> fragments from fuel B). Temp. history : heated in air to 400°C and 1,400°C. A correction for transition time was applied .....	77
Fig. 3-4	Cesium release in test HXA(UO <sub>2</sub> fragments from fuel A). Temp. history : heated in 4%H <sub>2</sub> /Ar to 400°C → exposed to air → heated to 1,400°C .....	80
Fig. 3-5	Cesium release in test AR1(UO <sub>2</sub> fragments from fuel B). Temp. history : heated in air to 400°C and 1,400°C .....	81
Fig. 3-6	Cesium release in test HR7(UO <sub>2</sub> fragments from fuel A). Temp. history : heated in 4%H <sub>2</sub> /Ar to 1,400°C → exposed to air → reduced in 4%H <sub>2</sub> /Ar at 700°C → oxidized in air to 400°C .....	82
Fig. 3-7	Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T7A .....	86

Fig. 3-8	Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T7B .....	87
Fig. 3-9	Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T2A .....	88
Fig. 3-10	Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T2B .....	89
Fig. 3-11	Cesium release in the OREOX process T2B .....	90
Fig. 3-12	Cesium release in the sintering process T7SC .....	91
Fig. 3-13	Cesium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar .....	93
Fig. 3-14	Ruthenium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar .....	94
Fig. 3-15	Cesium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement .....	95
Fig. 3-16	Count rate of Cs-134 measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement .....	96
Fig. 3-17	Ruthenium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement .....	97
Fig. 3-18	Activity of cesium measured in filter F2B from the OREOX process T2A(400°C and 1,400°C in air). The filter was cut into 3 transverse pieces and both surfaces of each piece were gamma-counted .....	98
Fig. 3-19	Activity of cesium measured in filter F2B from the OREOX process T7S. The filter was cut into 3 transverse pieces and both surfaces of each piece were gamma-counted .....	101
Fig. 4-1	Schematic diagram of VEGA experimental facility .....	108

Fig. 4-2	Photography of VEGA facility : Inside Hot-cell and Out-cell .....	109
Fig. 4-3	Photography of gaseous fission product trap device .....	109
Fig. 4-4	Schematic of VEGA furnace for oxidizing condition .....	111
Fig. 4-5	Schematic of VEGA furnace for inert condition .....	111
Fig. 4-6	Temperature distribution in apparatus for VEGA-1 and 2 tests ..	112
Fig. 4-7	Deposit mass and temperature at 60 min .....	116
Fig. 4-8	Fuel temperature and Cs fractional releases measured in VEGA-1 and 2 tests .....	118
Fig. 4-9	Comparison of release rate coefficients for Cs between VEGA-1 and VEGA-2 tests .....	120
Fig. 4-10	Comparison of diffusion coefficients for Cs between VEGA-1 and VEGA-2 tests .....	121
Fig. 4-11	Distribution of $\gamma$ -ray intensity in VEGA-1 and -2 apparatus .....	122
Fig. 4-12	Comparison of Cs deposition onto TGTs between VEGA-1 and VEGA-2 .....	122
Fig. 4-13	Microphotography of VEGA-1, 2 test fuels .....	123
Fig. 4-14	Decrease of gaseous diffusion in open pores at elevated pressure .....	125
Fig. 4-15	Comparison of Cs release between VICTORIA 2.0 and VEGA tests .....	126
Fig. 4-16	Fission product release model in VICTORIA 2.0 .....	127
Fig. 4-17	Expedient for fission product release rate calculation in case of FP concentration at $UO_2$ grain surface $\neq 0$ .....	127
Fig. 4-18	Comparison of Cs in $UO_2$ grain and open pores .....	129
Fig. 4-19	Cs release calculation with expedient for elevated pressure VEGA-2 .....	130
Fig. 4-20	Fractional release of Cs and fuel temperature histories of VEGA-1 and VEGA-3 tests .....	132

Fig. 4-21	Comparison of release rate coefficient of Cs between VEGA-1 and -3 tests .....	133
Fig. 4-22	Comparison of Cs release rate coefficient in all VEGA tests .....	135
Fig. 5-1	Schematic diagram of oxidation apparatus and iodine trap .....	138
Fig. 5-2a	<sup>85</sup> Kr release profile for RPC/NFB/02 #1/1. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 650°C and then in air for 90 minutes. ....	150
Fig. 5-2b	<sup>85</sup> Kr cumulative release profile for RPC/NFB/02 #1/1. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 650°C and then in air for 90 minutes. ....	150
Fig. 5-3a	<sup>85</sup> Kr release profile for RPC/NFB/02 #1/2. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 650°C and then in air for 7 hours .....	151
Fig. 5-3b	<sup>85</sup> Kr cumulative release profile for RPC/NFB/02 #1/2. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 650°C and then in air for 7 hours .....	151
Fig. 5-4a	<sup>85</sup> Kr release profile for RPC/NFB/02 #3/1. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 750°C and then in air for 90 minutes .....	152
Fig. 5-4b	<sup>85</sup> Kr cumulative release profile for RPC/NFB/02 #3/1. Heated in Ar/4%H <sub>2</sub> to 750°C and then in air for 90 minutes .....	152
Fig. 5-5	Summary of iodine release rates(650°C ~ 950°C : air tests) .....	153
Fig. 5-6	Graphical summary of fission product releases: 90 minutes-air tests .....	153

# 제 1 장 서 론

## 제 1 절 개 요

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 작업 종업자의 피폭, 발전소정지 등과 같은 문제는 물론 일반인의 방사능 피폭, 주위 환경 오염 등과 같은 심각한 문제를 야기할 수 있다. 따라서 원자로 사고 발생시 안전성 평가를 위하여 최근 연구에서는 확률론적 안전성 평가 방법이 널리 사용되고 있으며[1], 이는 발생할 수 있는 사고의 빈도에 그 사고가 미치는 영향을 곱한 후 이를 합산함으로써 원자로의 위험도를 종합적으로 평가하는 방법이다. 원자로의 위험도 및 사고가 미치는 영향을 보다 정확하게 평가하기 위해서는 LOCA 선원항(Source term, 환경 중에 방출되는 방사성물질의 종류와 양)을 정확하게 예측하는 것이 필요한데, 원자로 사고시 방출되는 방사성 물질의 종류 및 그 양은 전산 코드를 사용하여 예측하고 있다[2,3]. 전산 코드는 온도 상승에 따라 핵연료 펠렛으로부터 연료봉 내 공간으로의 방사성물질의 방출 및 파손된 피복관으로부터 원자로 냉각계통 및 격납용기를 지나 최종적으로 환경 중으로 방출되는 일련의 과정을 모사하고 있으며, 이러한 일련의 계산에 중요한 자료가 되는 것이 핵연료로부터 방출되는 방사성 물질의 종류와 양이다. 따라서 원자로 사고시 핵연료로부터 방출되는 방사성물질의 종류와 양을 실험적으로 정확하게 구하여야 하며, 원자로 사고 발생 시에 핵연료로부터 방출되는 방사성 물질의 종류 및 양에 관하여 세계적으로 많은 유사실험들로부터 그들의 거동특성에 관한 연구는 이 선원항의 예측을 보다 신뢰성 있게 하기 위한 것이다[4~6].

핵분열생성물 방출 거동과 관련된 다른 연구분야는 사용후핵연료의 건식 재가공시 핵연료 분말/소결 공정과 같은 고온조건에서의 핵분열생성물의 방출거동 특성 분석 및 사용후핵연료 고온 용융(Pyrochemical)공정으로부터 방출되는 핵분열기체 또는 핵분열생성물 방출거동 특성분석 분야를 들 수 있다. 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.

핵분열생성물의 방출에 관한 최초의 연구는 미국의 ORNL을 시작으로 하여 프랑스 CEA, 영국의 AEA, 캐나다의 AECL에서 각각 수행되었으며 최근 일본 JAERI에서도 관련 프로젝트를 수행하고 있다. 각 국에서 수행중인 핵분열생성물 방출거동 시험에 대한 특성을 Table 1-1에 비교·정리하였고, 핫셀에서의 테스트와 병행하여, 원자로 자체에서 핵분열 생성물 방출특성 평가 테스트(In-pile test)도 각 국에서 많이 수행하고 있으며 이를 Table 1-2에 수록하였다.

Table 1-1. Summary of out-of-pile fission product release experiments

시험명/ 국가	분위기	시험 핵연료	온도	주요 수행 내용	진행상황
HI/VI (ORNL, 미국)	스팀 수소 공기 (0.1 MPa)	Segment (15~20cm) (10~47 GWd/tU)	1,400~ 2,425℃	<ul style="list-style-type: none"> <li>· Kr,Cs 방출데이터 확보</li> <li>· 분위기에 따라 휘발성핵종 방출량 변화</li> </ul>	종료
UCT/UCE/ HCE, HOX (캐나다)	공기 스팀 수소 (0.1 MPa)	Fragment Segment (< 30g) (25~58 GWd/tU)	400~ 2,000℃	<ul style="list-style-type: none"> <li>· 스팀 또는 공기에 의한 산화가 핵종방출 특성에 미치는 영향 평가</li> <li>· DUPIC핵연료 제조공정별 핵종방출 특성 평가</li> </ul>	진행 또는 완료
HEVA/ VERCORS (Grenoble 프랑스)	스팀 수소 (0.1 MPa)	Segment (3 펠렛) (10~55 GWd/tU)	1,630~ 2,350℃	<ul style="list-style-type: none"> <li>· 제조사에 의한 I, Ba, Te 등의 방출 특성 평가</li> <li>· 에어로졸 형태 핵종의 분포 측정</li> </ul>	VERCORS -HT 시험 진행중
AET (영국)	공기 스팀 수소 (0.1 MPa)	Fragment (< 30g) (26 GWd/ tU)	650~ 1,400℃	<ul style="list-style-type: none"> <li>· 스팀 또는 공기의 산화조건에서 주요 핵분열 생성물방출을 측정 및 메커니즘 규명</li> </ul>	진행 또는 완료
VEGA (일본)	공기 스팀 수소 (0.1, 10 MPa)	Fragment Segment (<30g) (47 GWd/ tU)	2,500~ 2,900℃	<ul style="list-style-type: none"> <li>· 고온, 스팀/공기분위기에 서 핵종방출 특성 평가</li> <li>· 고압조건에서 핵종 방출 특성 비교</li> <li>· MOX 핵연료의 핵종방출 특성 평가</li> </ul>	진행중

Table 1-2. Summary of in-pile fission product release experiments

시험명 /국가	분위기	시험 핵연료	온도	주요 수행 내용	진행 상황
ST-1 ST-2 (SNL, 미국)	수소 (0.2~2 MPa)	Bundle : 4개 조사된 Segments(15cm, 47 GWd/tU)	2,215℃ 2,140℃	· In-pile(ST-1)과 VI-4 시험 비교 · 압력 영향 시험(ST-1, ST-2)	종료
PBF 1-4 (INEL, 미국)	스팀 (7 MPa)	Bundle : 26개 조사 segments+2개 미조사 연료봉 + 4 cr(100cm) (29~42 GWd/tU)	<2,275℃ (SCDAP+ RERAP5 코드로 추정)	· 다른 테스트 및 모델 결과의 비교	종료
PHEBUS -FPT10 (프랑스)	스팀 (0.2 MPa)	Bundle : 20개 미조사 연료봉 + 1 cr (trace 조사)	<2,800℃ (ICARE2 코드로 추정)	· 핵연료 열화 및 격납 용기내로 요오드 방출 특성 평가	진행 중

\* cr : control rod

이상의 In-pile 테스트는 여러 분위기 및 압력 조건,  $UO_2$ 의 용융온도까지 다루고 있으며 핵연료 온도 및 압력은 테스트 장치의 위치에 따라 크게 달라진다. 따라서 온도 및 분위기 조건에 따른 FP 방출거동 상관관계는 상당한 오차를 보일 수 있고 모델에도 영향을 미친다. 따라서 Out-pile 테스트와 같이 보다 정밀한 온도/압력 조건에서의 핵분열 생성물 방출 거동에 대한 시험이 요구된다.

## 제 2 절 주요 핵분열생성물의 화학적 특성

사용후핵연료내 핵분열생성물의 화학적 특성은 고온에서 핵종 방출특성과 밀접한 연관이 있다. 경수로 핵연료로부터 연소중 발생하는 핵분열생성물의 화학적 형태(금속 혹은 산화물)는 핵연료의 산소 포텐셜(potential)로부터 개략적으로 파악할 수 있으며[7], 핵분열생성물 방출 거동 특성을 보다 이해하기 쉽게 하기 위하여 주요 핵분열

생성물의 핵연료 내에서 연소중 거동 및 산화/환원 조건에 따른 화학적/열역학적 특성 변화를 간략하게 정리하였다.

즉 한 원소의 금속/산화물 평형 산소 포텐셜(또는 분압)이 핵연료의 산소 포텐셜보다 클 경우에는 해당 원소는 금속으로 존재하고 원소의 평형 산소 포텐셜이 핵연료 산소 포텐셜보다 작을 경우에는 산화물로 존재하게 된다[8]. 주요 핵분열생성물의 Ellingham 도표를 참고하면(Fig. 1-1 참조), 핵연료의 산소 포텐셜보다 높은 부분에 존재하는 원소들 즉 Ag, Pd, Rh 등은 금속으로 존재하고 평형 산소 포텐셜 값이 낮은 곳에 존재하는 Zr, Ce, Ba, Sr 등은 산화물로 존재한다. 또한 고온조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출 특성에 가장 큰 영향을 미치는 변수는 온도이며, 그 이외 핵연료 산화/환원 분위기, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다. 따라서 온도 및 기체 분위기에 따른 핵분열 생성물의 평형 증기압과 같은 열역학적 특성은 핵분열 생성물의 방출 특성을 분석하는 데 기본 자료가 될 것이다.

### 1. 핵분열기체 (Kr, Xe)

주로 불활성기체로서 핵연료내에 고용되지 못한 상태로 핵연료 모체(matrix)내에 분포하게 되며, 연소도에 따라 핵분열기체 생성량이 증가하게 되면 핵분열 파편의 이동 궤적 및 전위주위를 따라 발생된 결정 내부 기포 및 결정립계에 주로 분포하는 기포가 형성되고 이러한 기포들은 핵연료에서 방출되어 핵연료와 피복관 사이 및 plenum에 존재하게 된다. 따라서 이러한 핵분열기체의 방출 특성은 주로 온도에 의존하게 되며, 연소도가 증가할수록 그리고 초기 기공도가 낮을수록 방출량은 증가하게 된다. 핵연료 모체로부터 핵분열기체의 방출량은 산화/환원 분위기보다는 기체 확산에 가장 큰 영향을 미치는 온도에 주로 의존할 것으로 보인다.

### 2. 휘발성 핵분열생성물 (I, Br)

요오드(I)는 반응성이 큰 세슘(Cs)와 반응하여 CsI 형태로 존재할 가능성이 가장 큰 것으로 보고되고 있으며, 요오드 방출 특성에 대해서는 여러 모델들이 개발되고 있다. 각국의 연구동향에서 언급하겠지만 요오드는 주로 CsI 형태가 주를 이루고 원소 요오드 형태도 존재한 것으로 추정되고 있다.

### 3. 준휘발성 및 반응성 핵분열생성물 (Cs, Rb)

알칼리 금속으로서 핵연료의 팽윤(sewlling)과 피복관 내부 부식을 가속화시킬 가능성이 있어 주요 관심 대상이 되는 원소들이다.

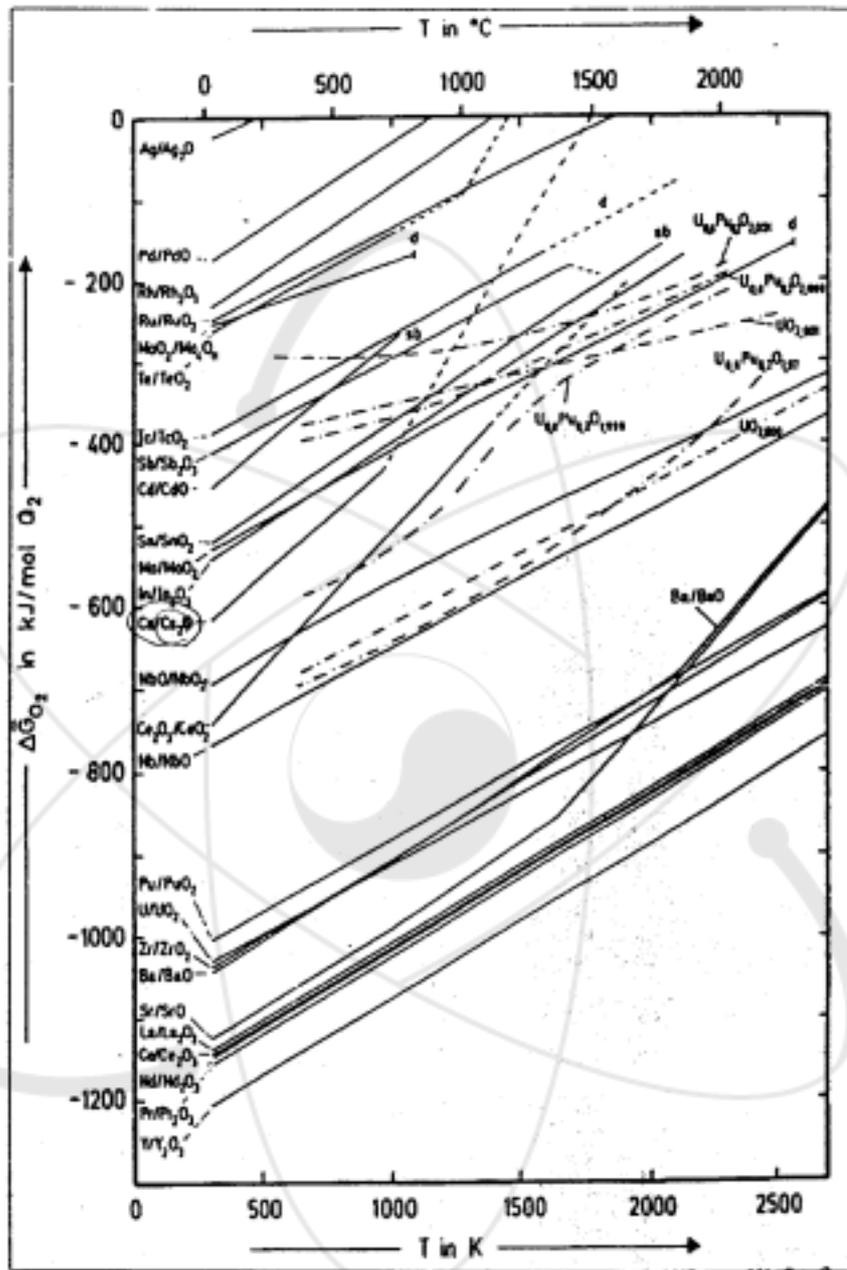


Fig. 1-1. Ellingham diagram for fission products and  $UO_2$  fuel.

핵연료내 산소대 금속비율(O/M비)이 커질수록 핵연료내에 남아있는 Cs이 양이 많은 것으로 나타나 있으며, U-Cs-O의 상태도를 보면 매우 복잡한 형태의 화합물을 취하고 있다. 1,000K에서 U-O-Cs-Mo-I 혼합물의 핵연료의 산소 포텐셜 변화에 따른 평형상태에서의 주요 화합물의 형태를 보면[9], O/M 비에 따른 안정된 고체 화합물 형태는 다르게 나타난다. 낮은 O/M비에서는 Cs는 Cs, CsUO<sub>3.56</sub> 형태가 주를 이루며, O/M비가 커지면(2.0047~2.0087) Cs<sub>2</sub>UO<sub>4</sub> 및 Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>가 안정된 형태가 되고, 높은 O/M비(2.0101~2.0130)에서는 CsI와 Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>가 주된 화합물이 된다. 준휘발성 기체 화합물의 형태를 보면, 낮은 O/M비에서는 Cs 또는 Cs<sub>2</sub>O 형태로 존재하지만 O/M비가 높아질수록 CsI가 안정한 화합물 형태가 된다. 이상의 결과로부터 Cs은 핵연료의 저온 부위에 주로 분포하는 데 이는 낮은 O/M비에서 발생한 Cs 또는 Cs<sub>2</sub>O가 저온 부위로 이동하기 때문으로 여겨지며, 연소도의 증가에 따라 증가된 O/M비에서는 발생한 MoO<sub>3</sub> 기체에 의해 Cs<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub>가 형성되는 데 이 화합물은 피복관 안벽에서 자주 관찰된다.

Cs는 공기중 산화분위기에서 제거되는 것으로 보고되고 있고 열역학적으로 기화성 산화물은 존재하지 않으며 산화시 대부분 증기압이 높지 않은 CsO<sub>2</sub> 형태로 존재하지만 환원분위기에서는 비등점이 948K이고 증기압이 매우 높은 Cs 금속 형태로 존재하게 된다. Rb는 산화과정에서 변화되는 양에 대해서 잘 알려져 있지 않고 기화성 산화물은 존재하지 않는다. 그러나 환원분위기에서 Cs과 마찬가지로 금속 형태로 존재하고 비등점이 970K이고 높은 증기압을 가지며 기체 수화물 형태도 가지고 있다.

#### 4. 고용점 금속 석출물 형태 핵분열생성물 (Mo, Tc, Ru, Rh, Pd)

하얀색의 석출물로서 주로 5 가지의 원소로 이루어져 있으며, 핵연료의 산소 포텐셜에 따라 석출물 속의 각 원소의 농도는 변화한다. 핵연료의 산소 포텐셜이 증가하면 석출물중 특히 Mo의 양이 점차 감소하며, 핵연료의 저온 부위에서 석출물의 농도가 많아지는 것으로 나타나는 데 이는 Mo와 Ru이 산화됨으로서 기화되어 저온의 영역으로 이동한 것으로 볼 수 있다.

Mo은 673K이상의 공기중에서 대부분 기화가 잘 되는 MoO<sub>3</sub>로 존재하며 환원 분위기에서는 대부분 금속형태로서 증기압이 매우 낮다. Ru은 고온 공기중에서 RuO<sub>2</sub>의 고체 형태로 존재하고 기체상으로 RuO<sub>4</sub> 형태가 있으며 온도가 증가할수록 기체상에서 RuO<sub>3</sub>의 존재 비율이 커져 1273K이상에서는 대부분 기화물인 RuO<sub>3</sub> 형태로 존재하고, 환원 분위기에서는 금속형태로 존재하게 되어 증기압이 매우 낮아진다. Rh의 경우 공기중에서 존재 형태는 Rh<sub>2</sub>O<sub>3</sub>이며 기체상으로는 RhO<sub>2</sub>를 들 수 있다. RhO<sub>2</sub>의 생

성 자유에너지(-210 ~ -250 KJ/mol)가  $Rh_2O_3$ 의 생성 자유에너지보다 (-80 ~ -110 KJ/mol)보다 작아 열역학적으로는 기체상  $RhO_2$ 가 더 안정한 형태일 것으로 추정되나, Rh의 방출은 열역학적 한계보다도 산소와의 반응 및 기화물의 확산에 따른 동적 특성에 의해 결정될 것으로 판단된다.

#### 5. 저융점 금속 석출물 형태 핵분열생성물 (Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb)

Pd은 여러 형태의 핵분열생성물과 반응하여 다양한 형태의 화합물을 형성한다. 흰색 석출물 내의 Mo-Ru-Rh-Tc-Pd의 비율은 해당 핵분열생성물의 핵분열 발생 수율 (fission yield)와 비례하지 않는 데, 그 주된 이유는 Pd의 증기압이 높기 때문에 증기압이 높은 다른 저융점 금속들과 혼합물을 이루어 핵연료-피복관 틈 또는 핵연료 중량의 공극에 존재하기 때문이다.

Sb는 공기중에서 산화될 경우  $Sb_2O_4$  형태로 존재하고 기체상은 SbO가 되며 증기압은 매우 낮다. 그러나 환원분위기에서는 금속형태로 존재한다.

#### 6. 산화 석출물 형태 핵분열생성물 (Zr, Ba)

Ba은 핵연료에 거의 용해되지 않고 산화석출물 형태로 존재하며, 이 산화 석출물은 Ba(Zr, U, Mo) $O_3$ 로 구성되어 있고 대부분 BaZrO<sub>3</sub> 형태로 존재한다. 이 혼합물에서 핵연료의 산소 포텐셜이 증가하면 BaMoO<sub>3</sub>의 양이 점차 증가하게 된다.

#### 7. 고용성 원소 형태 핵분열생성물 (Sr, Y, Zr, La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm)

대부분 희토류 원소(Rare Earth Element)들로서, Zr은 PuO<sub>2</sub>에 완전히 용해되고 UO<sub>2</sub>에는 온도에 따라 용해되는 정도가 달라진다. 그 예로서 1,200°C이하에서는 ZrO<sub>2</sub>의 용해도는 0.4 at.%이고 1,700°C에서는 50 at.% 이상의 용해도를 갖게 된다. 이들 원소들은 핵연료에 용해되어 핵연료의 산소 포텐셜 값에 변화를 주며 핵연료 모체의 열전도도에 영향을 미친다. 일반적인 선출력(약 70 kw/m)에서는 온도구배에 따른 희토류 원소의 반경방향 분포는 일어나지 않는 것으로 알려져 있다.

### 제 3 절 연구동향 개요

미국 ORNL에서는 LWR 사용후핵연료를 775~2,700K 온도범위로 과열하는 과정에서 핵분열생성물의 방출거동에 관한 연구를 수행하였으며 최종적으로 핵분열생성물의 방출 메카니즘을 제시하였다. 최근에는 핵연료의 거동을 좀 더 현실적으로 모사할 수 있는 HI(Horizontal Induction-heated, 1981년 시작), VI(Vertical Induction-heated, 1985년 시작) 및 HS(Horizontal Simulant) 테스트 등을 통하여 핵연료의 배열, 가열방법 및 분위기가 핵분열생성물의 방출에 미치는 영향에 관한 연구를 수행하였다. ORNL에서는 스팀, 수소 및 공기 분위기하에서 2,425℃까지 온도를 가열하면서 조사된 핵연료 시편(길이 : 15~ 20 cm)으로부터 핵분열 생성물의 방출거동 특성 시험을 수행하였다. 전기로 및 시편 가열은 유도가열 방법을 이용하였고, 시편의 방사능 감소 정도를 연속으로 측정(on-line measurement)하여 거동 특성을 평가하였다. 주요 관심 대상 핵분열생성물은 기체상(Kr) 및 휘발성(Iodine), 준휘발성 핵분열 생성물(Cs)로서 냉각기간이 상대적으로 긴 사용후핵연료를 사용하였기 때문에 측정 가능한 핵분열생성물의 종류는 한계가 있었다[10].

미국 SNL에서는 두 가지 ST(Source Term) 시험을 수행하였는데, 2,200℃의 환원 분위기에서 핵분열 생성물 방출에 미치는 압력의 영향을 시험하였으며 ST-1 테스트에서는 방출되는 핵분열생성물의 연속 측정(on-line)은 불가능하였다. 핫셀과 원자로에서의 거동 특성을 비교하기 위하여 ORNL에서는 ST-1 시험과 유사한 조건에서 VI-4 테스트를 수행하였다. 두 가지 테스트 결과는 큰 차이가 나지는 않았지만 in-pile 테스트에서 핵연료 모체(fuel matrix)내의 FP의 확산계수가 핵분열로 인하여 커지기 때문에 핵분열생성물의 방출 양은 다소 높게 나타났다.

캐나다에서는 고온조건에서 핵분열생성물의 방출거동에 미치는 핵연료의 산화 영향을 주로 평가하였는데, 핵연료의 산화로 인하여  $UO_2$  모체내의 핵분열 기체의 확산도는 증가하는 것으로 나타났으며 산화와 방출 동특성 상관관계를 정립하였다. 또한 사용후 핵연료의 재활용을 위한 건식 재가공 공정의 경우 핵연료봉의 탈피복후 사용후 핵연료의 분말화 및 소결과정을 거치는 데 이러한 일련의 제조 과정에서 온도 및 기체 분위기 변화에 따라 휘발성 및 준휘발성 핵종이 방출하게 된다. 캐나다 CRNL(Chalk River National Lab.)에서는 DUPIC 공정개발과 관련하여 핵연료 제조과정으로부터 발생하는 핵분열생성물 및 핵분열기체의 방출 특성 시험을 수행하였으며, 이를 HOX(Hot-Cell OREOX eXperiment)로 명명하였고, HOX 테스트는 1994년부터 시작하여 HOX1 ~ HOX3 시험을 수행하였다[11]. HOX-1 시험은 1994년 2

월~3월의 두 달간 수행되었으며, 여러 온도 및 기체분위기 조건에서 핵분열 생성물의 방출특성 예비 실험, 2가지 유형의 PWR 사용후핵연료로부터 분말 및 소결체 제조 특성, SEM 분석을 통한 OREOX 처리된 분말의 형상 등을 분석하여 핵분열 생성물의 방출거동과의 상호 연계성 분석을 주안점을 두고 수행하였다. HOX-2 시험은 1995년 3월과 4월에 수행되었고, 소결성이 우수한 분말 특성 분석에 초점을 두고 OREOX 공정을 보다 상세하게 평가하였으며 여러 가지 OREOX 공정조건별로 얻은 분말을 이용하여 압분체 및 소결체를 제조하였다. 특히 다양한 OREOX 및 소결공정 조건에서 방출되는 핵분열생성물(특히 Kr과 Cs)의 거동을 평가하였다.

일본에서는 원자로 사고시에 핵연료로부터 방출되는 방사성 핵종의 종류 및 거동 특성에 관한 다른 나라의 많은 유사실험 들을 광범위하게 분석한 후 이들이 수행하지 않은 온도 영역에서 핵종 방출실험을 수행하고 있다. 즉 지금까지 수행된 세계 각국의 연구는 실험온도가 최대 2,800°C 정도이고, 또 요오드나 세슘과 같은 휘발성의 방사성 물질을 주 대상으로 한 것이며, 준휘발성 및 비휘발성 방사성 물질의 방출에 대한 유사한 연구는 지금까지 거의 행해지지 않았다. 따라서 일본 JAERI에서는 핵연료의 용점(약 2,840°C) 가까운 고온상태에서 휘발성 방사성 물질 뿐만 아니라 Sr, Ba, Eu와 같은 준휘발성, 비휘발성의 방사성물질은 물론 U, Np, Pu 와 같은 악티나이드 원소의 방출거동을 연구하는 동시에 MOX 연료(U와 Pu의 혼합 산화물 연료)로부터의 방출 거동을 알아보기 위하여 VEGA(Verification Experiments of radionuclide Gas/Aerosol release) 장치를 제작하여 이미 1998년부터 핫셀에서 시험 중에 있다[12].

영국의 AEA Technology 사에서는 핵분열 생성물의 방출과 이동을 예측하기 위하여 CSNI-SOAR 코드를 개발하여 사용하고 있었으며, 이 코드는 산화분위기에서 핵연료로부터 방출되는 핵분열 생성물의 거동을 충분히 설명할 수 없다는 단점이 발견되어 이를 개선하기 위한 연구를 수행하였다. 따라서 코드 개선을 위하여 필요한 데이터 즉 923~1673K의 온도 범위, 산화분위기(공기중)에서 주요 핵분열 생성물(Kr, Ru, I, Cs) 들의 예상 최대 방출량 및 최소 방출량 등의 방출거동에 관한 데이터를 수집하기 위한 실험을 수행하였다.

프랑스 CENG(Centre D'Etude Nucleaire de Grenoble)에서는 HEVA/VERCORS 테스트를 통하여 비슷한 시험을 수행하였다. VERCORS-HT 테스트는 1996년도에 시작되었지만 전체적으로 데이터를 얻는 데 실패하였고, HEVA/VERCORS 테스트에서는 시험 핵연료를 재조사(re-irradiation)하여 단반감기 핵분열 생성물의 방출 특성을 평가하였다. 최근에는 많은 데이터를 얻어내어 미국 ORNL 연구 결과와 비교한 보고서를 발표하였다[13]. 특히 PHEBUS 원자로에서 핵분열 생성물 방출 거동 뿐만 아니

라 원자로 열화(Core degradation) 특성을 동시에 평가할 수 있는 프로그램을 시작하였다. PHEBUS-FP 프로그램은 선원항(Source term)에 관련된 모든 현상, 즉 열화된 노심으로부터 핵분열생성물 방출, 핵분열생성물의 격납용기로의 확산, 격납용기에서의 거동 등을 분석·평가하였다[14].

이상과 같이 핵분열기체 및 준휘발성 핵분열생성물의 방출 특성 시험은 여러 나라에서 많이 수행하였으나, 비휘발성 핵분열생성물 및 악티나이드 원소의 방출 특성에 대한 연구는 상대적으로 많이 수행되지 않았다. 본 보고서에서는 프랑스에서 수행한 결과를 제외하고 미국, 캐나다, 일본, 영국에서 고온조건에서 핵분열생성물 방출거동과 관련하여 수행한 연구 내용, 결과를 국가 별로 요약, 비교하여 정리하였다.



## 제 2 장 미국 ORNL 연구 동향

### 제 1 절 개 요

미국 ORNL(Oak Ridge National Laboratory)에서는 1975년부터 고온조건에서 방출되는 핵분열 생성물의 이동 거동 및 화학적 형태, 방출 속도 등에 관한 연구를 시작하였고 1993년 까지 HI 테스트[15~20] 및 VI 테스트[21~27]를 수행하였다.

본 시험은 원자로 사고시를 포함한 고온조건에서 핵연료내 핵분열 생성물의 물리·화학적 특성이 심하게 변화하므로 핵분열 생성물의 방출에 관한 신뢰성 있는 데이터 베이스를 구축하는 것은 상당히 어렵다. 따라서 고온 조건에서 핵연료로부터 방출되는 핵분열생성물의 종류 및 방출량을 시험적으로 구하고 모델링을 통하여 이를 예측하고자 하였다.

고 방사능 상업용 LWR 사용후핵연료를 이용한 핵분열생성물의 방출거동에 관한 연구는 1976년에 시작되어 현재까지 계속되고 있으며 이를 Tabel 2-1에 정리하였다. Table 2-1에 수록된 테스트들 중에서 ORNL에서는 두 종류의 시험(HI : Horizontal Induction-heated, VI : Vertical Induction-heated)를 최근에 본격적으로 수행하였다.

HS 테스트는 모의 PWR 사용후핵연료 시편 4개를 독일 Karlsruhe의 Nuclear Research Center에서 공급받아 1,900~2,700K의 스팀 조건하에서 수행하였다[28,29]. Table 2-1에 나타낸 실험이외에 가열로와 핵분열생성물 포집장치의 작동여부 및 핵분열생성물의 종류와 방출거동을 알아보기 위하여 방사성추적자를 사용한 테스트도 수행하였다. Table 2-1의 대부분의 테스트에서는 약 5~60분 동안에 온도를 2,700K 정도까지 가열하기 위하여 유도로(induction furnace)를 사용하였다. 저온의 테스트(775~1,745 K)에서는 약 24시간 유지시켰다. 1,475K까지의 온도에서 기체상, 휘발성의 핵분열생성물들에 대한 방출모델을 제시하였다.

HI 테스트는 1981년부터 시작되었으며 수평형 구조 전기로는 핵연료의 장전 및 인출, 테스트후 육안 관찰이 용이하게 설계되어 있고, 실험결과를 종합적으로 살펴보면 다음과 같다[15~20]. 휘발성 요오드의 방출량은 매우 적었으며 열구배관(Thermal Gradient Tube)에 응축된 요오드의 화학적 형태는 주로 CsI로서 이전 HT와 BWR 테스트에서 나타난 결과와 유사하였다[30]. 주요 관심 대상으로서 Zr-UO<sub>2</sub>의 반응이 핵분열생성물의 방출 증가에 미치는 영향을 평가하는 것인데, 가능한 메커니즘으로서

용융된 Zircaloy가  $UO_2$  입계(grain boundary)에 침투하여 펠렛 구조를 변화시키는 것이다. 그러나 HI-3, 4 및 5 테스트 결과 용융된 피복관이  $UO_2$ 와 반응은 하였지만, 핵분열기체 및 세슘등의 핵분열 생성물의 방출량은 증가하지 않았다[31]. 아울러 방출된 핵분열 생성물의 화학적 특성도 분석하였다.

Table 2-1. Fission-product release tests conducted in hot cells at ORNL since 1976.

시험명 <sup>a</sup>	시험용 핵연료 형태	연소도, MWD/MTU	시험 횟수	온도 범위, K	분위기 조건
HBU	H.B.Robinson (PWR)	30,000	11	775~475	스팀 공기
HT	H.B.Robinson (PWR)	30,000	4	1,575~1,875	스팀
BWR	Peach Bottom 2 (BWR)	13,000	4	1,125~1,475	스팀
HI	H.B.Robinson, Oconee (PWR) Peach Bottom(BWR)	10,000 ~ 40,000	6	1,675~2,275	스팀
HS	Simulated PWR fuel <sup>b</sup>	44,000	4	1,875~2,700	스팀
VI	Oconee, BR3(PWR)	40,000 ~ 47,000	6	1,975~2,700	스팀 공기 수소

(a) 시험명 : HBU(High Burnup), HT(High Temperature), BWR(Boiling-Water Reactor), HI(Horizontal Induction-heated), HS(Horizontal Simulant), VI(Vertical Induction-heated)

(b) 모의 가압경수로 핵연료 : 독일 KfK에서 공급받음, 방사성 핵분열생성물 추적자가 포함된 미조사  $UO_2$

VI 테스트는 1985년부터 시작되었으며, 핵연료가 실제로 원자로에 장전되는 경우와 같이 핵연료 시편을 전기로와 수직방향으로 위치시켜 핵연료가 용융 과정에서 보이는 거동을 보다 현실적으로 모사하고 있다. VI test는 정확한 온도측정과 높은 온도 및 3단계 포집 시스템을 설치하여 비휘발성 핵분열생성물(Ba, Sr, Mo, Eu, Ru, Ce 등)을 포함한 준휘발성, 휘발성 핵분열생성물의 포집 능력이 크다는 이점이 있다. 테스트 결과 적어도 시편 크기의 핵연료에 대해서는 핵연료의 위치방향이 핵분열생성물

의 방출에 큰 영향을 미치지 않는다는 사실을 알 수 있었다. VI 테스트는 노내 실험과 동일한 조건하에서 수행되었다. VI-4 테스트는 SNL에서 수행했던 ST-1 테스트와 동일한 시료를 사용하여 동일한 운전조건 하에서 수행하였다. 이로부터 동일한 조건하에서 가열 방법만을 달리 한 실험을 다시 수행하여 가열방법이 핵분열생성물의 방출에 미치는 영향이 크지 않다는 사실을 알 수 있었다[10].

이상의 시험결과를 이용하여 핵분열생성물의 방출율을 예측하기 위한 여러 가지 모델들을 개발하였으며, 크게 방출속도 상수 모델(NUREG-0072, CORSOR, CORSOR-M, CORSOR-O)[32~33]과 확산모델(ORNL-확산방출, ORNL-Booth, CORSOR-Booth 모델)[34]로 나눌 수 있다.

CORSOR-O(O : ORNL)모델에 사용된 방출속도 상수는 CORSOR, CORSOR-M 모델의 방출속도 상수를 대체하여 사용할 수 있다. CORSOR-O의 방출속도 상수는 이전에 사용된 상수 값과 크게 다른 데, 한 예로서 2,000K에서 Ru의 방출속도 상수는 CORSOR-M 모델 속도상수보다 361,000배만큼 크다. CORSOR-O 모델은 단순 2단계 연소도 의존성을 계산할 수 있고, CORSOR-M 모델에 고려되지 않은 분위기 영향을 모사할 수 있다. ORNL 및 다른 기관에서 수행한 핵종 방출 시험 결과는 주로 확산계수( $\text{cm}^2/\text{s}$ )로 표현하였는데, 이 계수값은 single-atom solid state 확산식(diffusion equation)에 모두 사용할 수 있다. ORNL-BOOTH 모델은 확산을 기본으로 한 모델로서 사용 가능한 확산식이 제시하였으며, ORNL-BOOTH 확산 모델은 확산계수가 CORSOR-BOOTH 모델과 호환이 가능하도록 설계하였고 Scale factor에 관한 정보를 이용하면 쉽게 수정이 가능하다. ORNL-BOOTH 모델에서는 확산식에 실험을 근거로 한 시간에 따른 핵종 방출 특성을 반영함으로써 단순 모델인 CORSOR-O의 단점을 보완하였다. 즉 방출속도 분율을 추정하는 대부분의 모델들은(NUREG-0772, CORSOR, CORSOR-M) 시간에 따른 핵분열 생성물 방출량을 과대 계산하고 방출분율 값 또한 크며, 일정 온도에서 30분 이상 경과될 경우 방출율은 과대 평가된다.

따라서 본 장에서는 미국 ORNL에서는 1975년 ~ 1993년 사이에 핵분열 생성물 방출 시험 결과(VI-1~7, HI-Series)를 종합적으로 분석하였으며 17개의 핵종 및 element의 방출 특성 시험 결과 및 방출율을 제시하였다. 아울러 프랑스 Grenoble에서 수행한 HEVA 시험결과 및 샌디아 국립연구소에서 수행한 결과(ST-1, 2 : In-reactor tests), INEEL에서 수행한 PBF-3, 4 시험 결과를 방출속도 분율(fractional release rates, NUREG-0772와 CORSOR 방출모델에서 사용한 단위, 방출속도 상수,  $\text{min}^{-1}$ )을 이용하여 상호 비교하였고, TMI 2호기에서의 핵종 방출 특성 결과와 동시에 제시하였다. 이상의 시험결과로부터 얻어진 핵종별 확산계수에 대한 정보는 여러 가

지 확산모델에 의하여 일어날 수 있는 방출 특성을 적절히 모사할 수 있는 기본 데이터로 활용 가능하다.

## 제 2 절 HI/VI 시험장치 및 방법

### 1. 시험 조건

최근 수행된 두 종류 시험(HI : Horizontal Induction-heated, VI : Vertical Induction-heated)의 세부적인 실험 조건을 Table 2-2에 정리하였는데, ORNL에서는 대기압 하에서 모두 13번의 테스트를 수행하였다. 아울러 Table 2-3에는 각각의 시험 조건에서 핵종 거동시험에서 사용한 사용후핵연료의 특성을 종합 정리 하였다. 시험 온도 범위를 보면, HI 테스트는 1,675~2,275K, VI 테스트는 2,300~2,700 K이었다. 7회의 VI 테스트에서는 두 단계에 걸쳐 서로 다른 온도에서 수행되었는데, 3회의 테스트는 수증기분위기 하에서 수행되었고 2회는 수소분위기, 나머지 2회는 수소/스팀 및 공기/스팀 분위기 하에서 수행되었다. 특히 VI-6 테스트에서는 시편을 수소분위기에 먼저 가열하고, 핵연료봉이 용융되고 난 후에는 스팀 분위기로 바꾸어  $UO_2$ 의 산화가 핵분열생성물의 방출이나 이동 특성에 미치는 영향을 연구하였다.

Table 2-2. Test temperature and gas flow rates in HI, VI tests.

Test No.	Atmosphere	First/Second Temperature			Gas Flow Rate(L/min)				
		Heat up rate(K/s)	Temp.(K)	Holding time(min)	Ar	He	H <sub>2</sub> O	H <sub>2</sub>	Air
HI-1	Steam	1.2	1675	30	0.3		1.0		
HI-2	Steam	1.3	2000	20	0.3		1.0		
HI-3	Steam	2.1	2275	20		0.15	0.3		
HI-4	Steam	2.3	2200	20		0.15	0.32		
HI-5	Steam	1.1	2025	20		0.25	0.41		
HI-6	Steam	2.3	2250	1		0.28	3.0		
VI-1	Steam	1.0/0.6	2020/2300	20/20		0.40	1.54		
VI-2	Steam	0.8	2300	60		0.30	1.54		
VI-3	Steam	0.3/0.3	2000/2700	20/20		0.40	1.60		
VI-4	Hydrogen	0.7/1.1	660/2440	23/20		0.405		0.40 5	
VI-5	Hydrogen	0.25/1.2	2000/2720	20/20		0.40		0.40	
VI-6	H <sub>2</sub> /Steam	0.83	2310	60		0.40	0.15 ~1.0	0.40	
VI-7	Air/Steam	0.48/0.48	2000/2000	20/20			0.95		1.0

Table 2-3. Fuel Characteristics used in HI and VI-tests

Test No.	Reactor	Burnup (MWd/kgU)	Grain Diameter ( $\mu\text{m}$ )	Fission gas release in-reactor (%)	Fuel length (m)	UO <sub>2</sub> mass (g)
HI-1	H.B. Robinson	28.1	3.4	0.3	203	137.3
HI-2	H.B. Robinson	28.1	3.9	0.3	203	135.3
HI-3	H.B. Robinson	25.2	4.3	0.3	203	136.2
HI-4	Peach Bottom 2	10.1	6.6	10.2	203	254.6
HI-5	Oconee	38.3	8.9	4.1	152	107.5
HI-6	Monticello	40.3	8.0	2.0	152	126.0
VI-1	Oconee	40	9.2	0.7	152	109.2
VI-2	BR3	44	12	~2	152	82.0
VI-3	BR3	44	12	~2	152	81.1
VI-4	BR3	47	12	~5	152	78.2
VI-5	BR3	42	12	~2	152	80.8
VI-6	BR3	42	12	~2	152	81.5
VI-7	Monticello	40.3	8.0	2.0	152	126.0

## 2. 시험장치 및 방법

HI test 및 VI test에서는 길이 15~20 cm(무게 100~200 g)인 zircaloy봉 UO<sub>2</sub> 핵연료 시편을 사용하였으며, 1,675~2,700 K 온도범위에서 수증기 및 수소 분위기에서 각각 수행하였다. 핵연료 시편의 가열을 위해 Fig. 2-1(HI 테스트용) 및 2-2(VI 테스트용)와 같이 특수 제작한 유도로를 사용하였다. 고온 실험에서 재질 선정이 중요한 데, 핵연료 봉 주위에 zirconia 실린더 또는 전기로 튜브를 설치한 후 외벽에 흑연 재질의 실린더를 설치하여 유도코일을 이용하여 가열하였다.

유도로내에 위치한 핵연료 시편으로부터 방출되는 핵분열생성물은 3개의 트레인으로 구성된 포집장치에서 포집되는 데, 각각의 트레인은 열구배관(Thermal Gradient Tube), 세 가지 형태의 필터 및 저온 활성탄 포집장치 등으로 구성되어 있다. TGT에서 온도를 400K까지 낮추며 내부 표면은 백금(Pt)재질의 실린더를 삽입하여 대부분의 실험에서 사용하는 데, 백금을 사용하면 핵분열 생성물에 의한 튜브의 화학적 변형을 최소화 할 수 있다[35, 36]. 그러나 스팀 및 수소 분위기에서는 산화 전처리된 스테인레스강이나 전처리하지 않은 스테인레스강을 각각 사용하였다. 필터 포집 장치 구성을 보면 압축된 석영면(Quartz wool)-두 층의 HEPA 필터가 전 단계에 설치되어 있고 실험 전후 TGT와 필터의 무게를 각각 측정하여 침적된 양을 구한다. 전단계 필터 후단에 3개의 활성탄 필터 카트리지가 설치되어 있는 데, 휘발성 핵종인 요오드 및 요오드 화합물을 포집하기 위하여 TEDA (TriEthylene DiAmine) 화학약품이 침착된 활성탄을 사용하였다. 조립된 필터들을 약 400~420K로 가열하여 수분의 응축 및 침착제의 휘발을 방지하였다. 최종적으로 응축 및 건조 단계(저온에서 제올라이트 사용)를 거친 후 액체질소 또는 프레온 기체를 이용하여 195K(-78℃)의 저온으로 유지되는 활성탄 포집장치에 의하여 불활성기체를 포집하였다.

핵분열생성물의 연속 측정을 위하여 감마 스펙트로미터 검출기를 Fig. 2-3에서 보는 바와 같이 여러 군데 설치하였다. 먼저  $UO_2$  연료의 위치를 계속적으로 감시할 수 있도록 검출기를 3개 배치하였는데, 이는 피복관 용융이 일어나는 실험에서는 핵연료가 실험도중 아래쪽으로 이동하기 때문이다. 또 다른 감마 스펙트로미터는 유도로상부와 TGT에 부착되어 있는 Cs-134, Cs-137를 측정하며 필터에 포집된 Cs-134, Cs-137도 아울러 측정하고, 저온 활성탄 포집장치에서는 Kr-85를 연속으로 측정한다. VI-4 테스트부터는 핵연료봉 상·하단방향으로 추가로 방사능 모니터를 설치하여 핵연료내 잔류 방사능을 측정하였다.

실험전후의 핵분열생성물의 방출 특성을 분석하기 위하여 먼저 ORIGEN-2 전산코드를 이용하여 핵연료 내에 존재하는 핵분열생성물의 양을 계산하였으며[37], 또한 감마 스펙트로미터를 이용하여 실험 전후의 감마 방출 핵종의 양을 측정하였다. 핵연료에 대한 ORIGEN-2 계산자료와 핵분열생성물의 포집장치에서 측정된 감마핵종방출 자료를 비교하여 핵분열생성물의 방출율과 그 핵분열생성물의 이동특성 및 침착특성을 알아보았다.

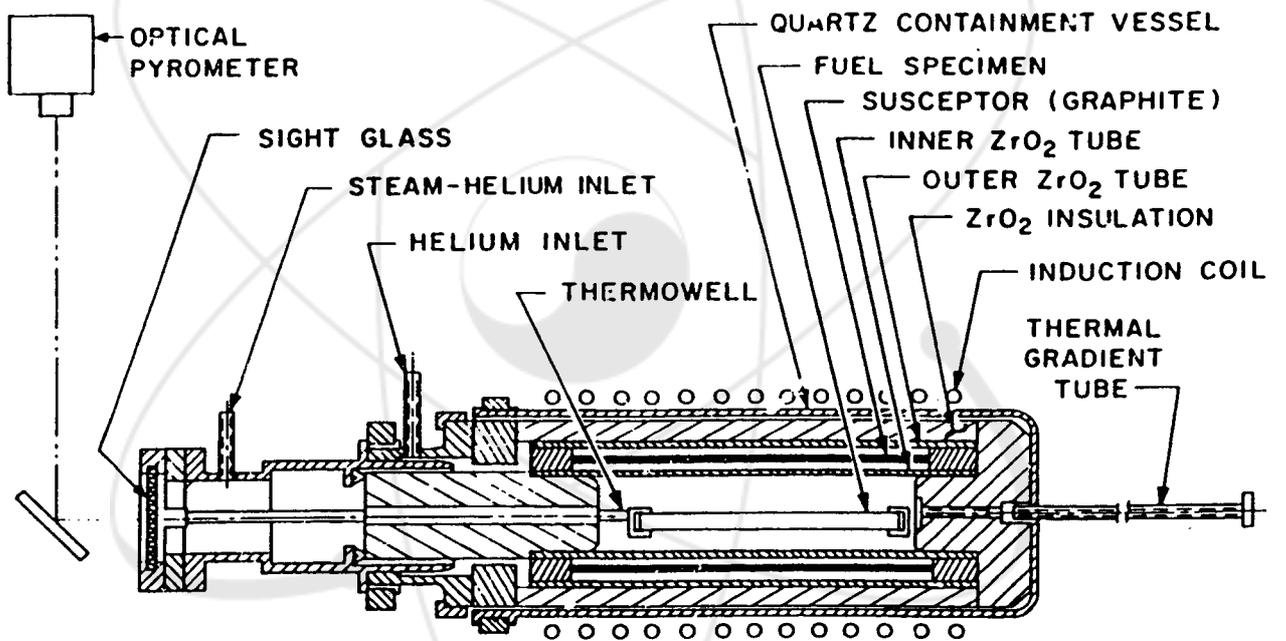


Fig. 2-1. Furnace used in the HI tests.

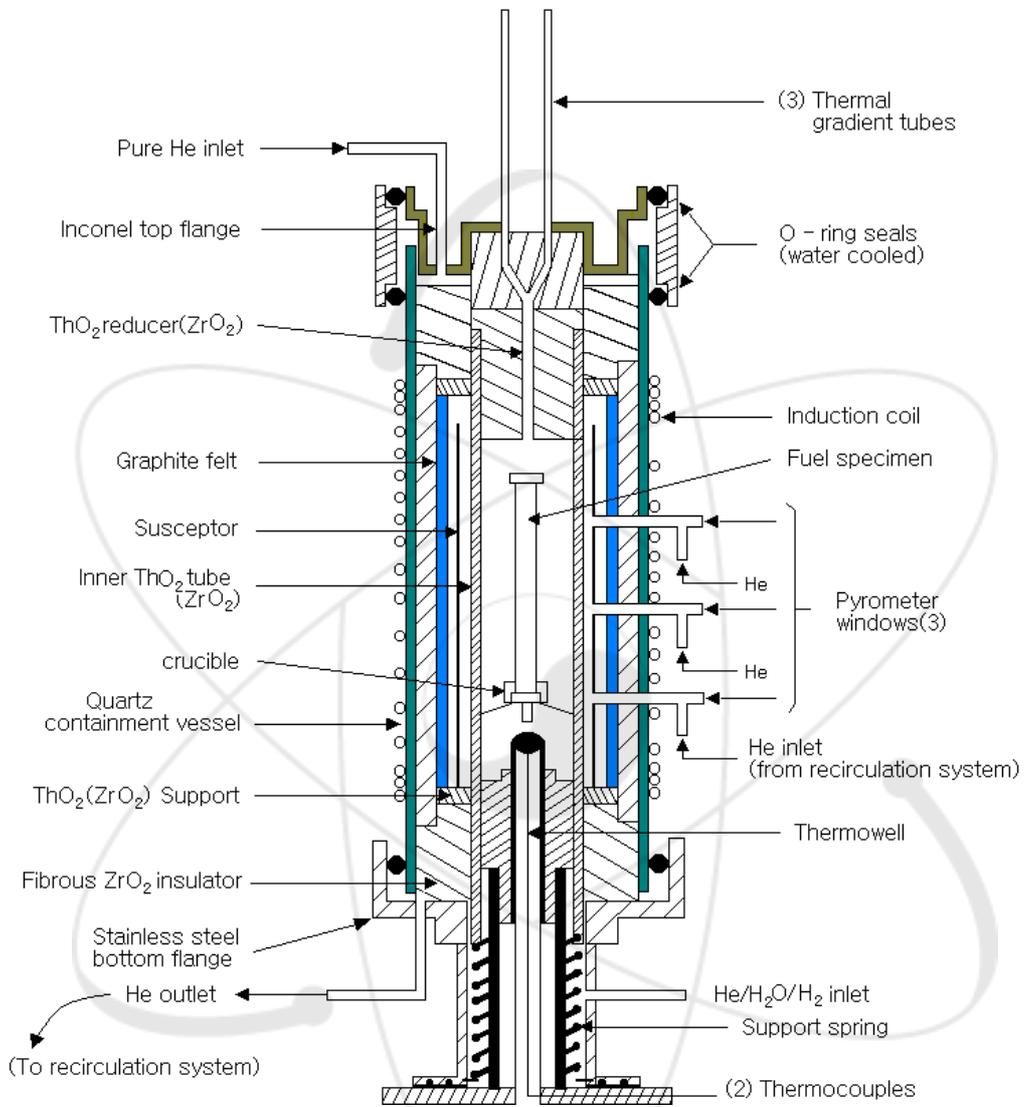


Fig. 2-2. Vertical fission-product release furnace.

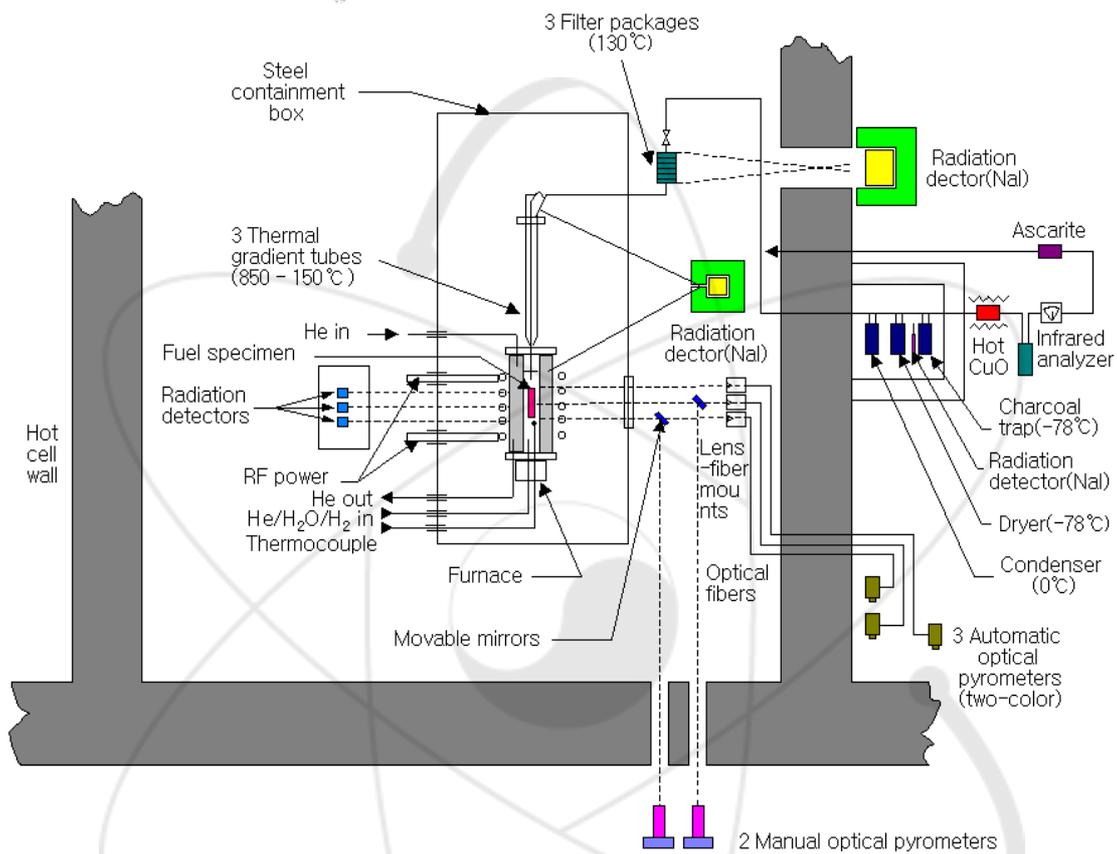


Fig. 2-3. Vertical fission-product release apparatus.

시험이 끝난 후 핵연료 시편이 들어있는 유도로내 도가니에 에폭시 수지를 채워 열화된 핵연료 시편을 안정화시키고 미세조직 및 화학적 특성 검사 등 여러 종류의 물성 시험을 수행하였다. 실험에 사용되었던 모든 장치들을 샘플링 하여 감마 스펙트로미터법 및 다른 방법으로 분석하였다. 즉 요오드 및 브롬에 대해서는 neutron activation 분석법, neon 보다 무거운 element에 대하여는 spark mass spectrometry, Mo, Te, Ba, U에 대해서는 emission spectrometer를 사용하여 분석하였다. 실험에 사용한 핵연료 시편은 냉각 시간이 길어서(약 6~10년), Kr-85, Ru-106, Sb-125, Cs-134, Cs-137, Ce-144, Eu-154, Ag-110m 등과 같이 제한된 원소만을 측정할 수 있었다. 실험에서 사용된 대부분의 시편들은 높은 농도의 Cs-134와 Cs-137을 함유하고 있었는데 이러한 원소들의 간섭으로 인하여 다른 원소에 대한 측정의 정확성이 떨어지는 것을 방지하기 위하여 X-ray 회절법과 같은 다른 분석방법을 사용하였다. TGT 표면의 침착 상태를 분석하기 위하여 SEM을 사용하였으나, 핵분열생성물의 방출에 대한 정보는 많이 얻을 수가 없었다. 이상과 같이 핵분열생성물 방출 특성을 분석하기 위하여 여러 가지 분석방법을 이용하였으며, 이를 Table 2-4에 종합 정리하였다.

Table 2-4. Analytical techniques used for fission product analysis.

분석방법	측정 시기	위 치	분석 원소
Gamma Spectrometer	시험전/후	핵연료 시편	장반감기 $\gamma$ -선 방출 핵종 : Ru, Sb, Cs, Ce, Eu
	On-line	TGT,활성탄 포집장치, 필터	Cs, Kr
	시험후	유도로 구성장치 TGT, 필터	Ru, Sb, Cs, Ce, Eu
Neutron Activation Analysis	시험후	활성탄, 유도로 장치 용해용액, TGT, 필터	I, Br
Chemical Analysis	시험후	유도로 장치 필터	U, Pu
ICP-Emission Spectrometer	시험후	유도로 장치 용해용액, TGT 또는 필터	Sr, Mo, Ru, Te, Ba, U

### 제 3 절 주요 결과 및 분석

HI 및 VI 테스트로부터 방출되는 핵분열생성물들중 주요 관심 대상 핵종의 방출율을 Table 2-5에 수록하였다.

VI 테스트의 경우 방출되는 핵분열 생성물의 포집률 위하여 세 종류 장치(Table 2-5에 제시된 A, B, C train, 3-TGTs 및 필터)를 시간(즉 온도 변화)변화에 따라 각각 사용하며 각각의 train에 포집된 핵분열생성물을 분석하였다. 발생하는 핵분열생성물의 형태는 증기상 및 에어로졸 형태로 나눌 수 있으며, 형태별로 구분하여 방출량을 구하였다. 예를 들면 TGT에 포집된 핵분열생성물은 모두 증기 형태로 발생된 것으로 가정하였고, 필터에 포집된 것은 에어로졸 형태로 가정하였다.

주요 핵분열 생성물의 방출 특성(방출 속도 및 확산계수 등)은 추후 상세하게 언급 하겠지만 종합적으로 시험 결과를 정리하면 다음과 같다.

스팀 분위기하에서 수행한 HI 테스트의 경우 휘발성 핵분열생성물(Kr, I, Cs)은 3%(1,675K)~60%(2,275K)의 방출율을 보였고 소량의 Ag와 Sb의 방출도 관찰되었으며, 시험후 20분이내에 60%이상의 상당량의 핵분열생성물이 방출되었다. TGT(1,125~425K) 내에서 요오드의 침적이 775~875K에서 최대치를 보여주어 요오드가 CsI 형태로 침적된 것으로 판단되며, 그 외 몇 군데에서 요오드의 peak가 발견되어 CsI 이외의 요오드 화합물도 존재함을 알 수 있었다. 침착 거동 연구로부터 Sb는 지수 함수적으로 침착되고 백금으로 된 TGT와 쉽게 합금 되어서 이로부터 Sb가 증기(vapor) 상태로 이동하였음을 알 수 있었다. HI-3, 4, 5 테스트의 경우는 핵연료봉 산화가 일어나지 않도록 낮은 수증기 유량 하에서 수행되었는데, 테스트후 시편의 미세조직검사를 수행한 결과 핵연료와 연료봉과의 상호 반응이 핵연료봉 용융점(~2,100 K) 이상에서 일어남을 알 수 있었지만, Zr-UO<sub>2</sub> 반응은 Kr, Cs, I와 같은 핵분열생성물의 방출에 심각한 영향을 주지 않는 것으로 나타났다.

#### 1. 휘발성 핵분열생성물의 방출

불활성 기체(Kr, Xe), 할로젠 원소(I, Br), 알칼리 금속(Cs, Rb)과 같은 휘발성 및 준휘발성 핵분열생성물들은 낮은 온도에서 방출된다.

Table 2-5. Released amount of fission products during HI and VI tests

Test NO.	Temp. (K)	Effective time (min)	Amount released (% of Inventory)						
			<sup>85</sup> Kr	<sup>134</sup> Cs	<sup>129</sup> I	Te (appx.)	<sup>125</sup> Sb	<sup>154</sup> Eu	<sup>106</sup> Ru
HI-1	1,675	33.19	2.83	1.75	2.48	~0.25	>0.02		
HI-2	2,000	20.23	51.5	50.50	65.6	~0.5	1.55		
HI-3	2,275	21.80	59.0	58.80	43.2	~0.3	>0.001		
HI-4	2,200	19.91	21.1	31.70	30.1	<0.4	>0.009	<0.6	
HI-5	2,025	23.05	15.8	20.30	27.3		>0.33	~0.021	
HI-6	2,100	9.33	29.6	33.10	30.1		0.068		
VI-1A	2,000	24.67		28.62	23.2		0.14		
VI-1B	2,240	14.00		17.44	11.4		10.68		
VI-1C	2,300	16.15		17.17	10.6		22.34		
Total	2,300	27.37	46.0	63.23	45.3		33.16		
VI-2A	2,150	9.76		31.24	20.6		0.09		
VI-2B	2,298	18.01		26.20	15.9		49.0		
VI-2C	2,302	41.82		9.71	3.5		19.0		
Total				67.15	40.0		68.1		
VI-3A	2,000	24.12	26.2	22.10	24.2	1.7	~0.1		0
VI-3B	2,530	19.53	66.2	65.74	50.8	68.8	80.6		0.13
VI-3C	2,704	22.86	7.03	12.03	4.0	28.3	18.6		4.88
Total	2,700	31.22	99.5	99.87	79.0	98.8	99.2	<0.01	5.01
VI-4A	2,290	8.06	85.2	59.03	45.2		1.46	18.26	
VI-4B	2,431	8.01	6.5	26.19	13.9		3.26	0.28	
VI-4C	2,445	13.66	2.7	10.65	27.7		1.64	0.09	
Total	2,440	24.64	94.4	95.87	86.8		6.36	18.63	0
VI-5A	2,005	23.23	31.4	30.85	33.5	3.2	0.18	0.85	
VI-5B	2,515	7.20	57.8	59.68	34.0	25.0	9.84	35.03	
VI-5C	2,720	21.38	10.8	9.43	2.7	53.3	8.04	21.47	
Total	2,700	26.46	100	99.96	70.2	81.5	17.88	57.35	0
VI-6A	2,150	13.22	42.0	47.0	30.1	5.0	0	2.4	
VI-6B	2,311	18.01	16.9	12.1	7.1	4.0	0.6	0.1	
VI-6C	2,314	43.03	16.4	21.1	39.5	54.4	63.5	11.2	
Total			75.3	80.2	76.7	63.4	63.5	13.7	
VI-7A	2,000	28.3	39	40.8	23		0		
VI-7B	2,300	10.1	14	11.8	8		5.0		
VI-7C	2,300	23.6	12	18.8	11		47.0		
Total	2,300	30.9	69	71.4	42		52.0	0.045	<2.8

VI 테스트 결과, 온도가 핵분열생성물의 방출에 가장 큰 변수였지만 분위기와 유지시간 등도 주요한 변수로 작용하였고, 연소도, 조사온도, 핵연료의 grain 크기와 승

온속도 등도 핵분열생성물의 방출에 영향을 미치지만 그 영향은 미미한 것으로 나타났다.

HI 테스트의 경우 휘발성 핵분열생성물(Kr, I, Cs)은 3%(1,675K)~60%(2,275K)의 방출율을 보였지만, VI 테스트에서는 HI 테스트보다 온도가 더 높기 때문에 휘발성 핵분열 생성물의 방출율은 대부분 99%이상을 나타내었다. 요오드는 가장 유해한 핵분열생성물 중 하나로서 방출되는 화학종의 형태 및 방출 후 거동은 대단히 중요하다. TGT에 침착 되어있는 핵분열생성물 특히 요오드나 세슘 등의 분포상태와 필터에 부착되어 있는 핵분열생성물을 비교하여 이들 핵분열생성물의 화학적 결합형태 및 이동 특성을 예측할 수 있다. HI 테스트시 방출되는 요오드의 화학적 형태는 방출율이 1%를 초과하는 실험에서 방출되는 요오드는 거의 모두 원소요오드보다 상대적으로 덜 휘발성인 CsI 형태로 존재하였으며, HI 테스트는 스팀 분위기에서 시험을 수행하였기 때문에 미량의 원소요오드( $I_2$ ), HI 및  $CH_3I$ 도 발생하였다. 일반적으로 방출된 요오드 중 약 1%만이 휘발성 형태인  $I_2$ , HI 등으로 존재하며 휘발성 형태로 존재하는 요오드의 총량은 상대적으로 일정하였는데, 이러한 사실로부터 핵연료로부터 생성되는 요오드가 불순물과 반응하여 휘발성 형태의 요오드로 전환되는 메카니즘이 일정하게 진행되고 있음을 유추할 수 있었다. 참고적으로 핵연료로부터 TGT 까지 이동하는데 걸리는 시간은 1초 이하이지만 침적된 물질은 배관으로 흐르고 있는 기체 분위기에 20분 이상 노출될 수도 있다. 이러한 결과는 요오드의 거동에 관한 Beahm의 연구결과와 상당히 잘 일치한다[38,39].

세슘(Cs)은 fission yield가 요오드의 약 10배이며, 요오드보다 반감기가 길고, 인체나 주위환경에의 위해도가 크다. 핵분열생성물의 이동특성은 핵분열생성물의 성질뿐 아니라 주위분위기에 따라서 큰 영향을 받으며 사고의 결과에도 지대한 영향을 미친다. 수증기분위기 하에서 수행한 실험결과(VI-3)와 수소분위기 하에서 수행된(VI-5) 실험결과를 비교해 보면(Table 2-6 및 Fig. 2-4 참조), 서로 다른 분위기에서의 핵분열생성물의 이동특성을 알 수 있다. 수증기 분위기 하에서는 CsI와 CsOH의 복합 형태로 방출되는 것으로 확인되었는데, 약 10%의 Cs은 CsI와 같은 거동특성을 보이고, 나머지 90%는 CsOH와 같은 거동특성을 보였다. 유도로 출구의 좁은 온도구간에서  $Cs_2ZrO_3$ 형태의 혼합물이 형성되었는데, 이는 추적자를 이용하여 수행한 유사한 실험에서도 확인된 바 있다[30]. 유도로 외부에서 Cs의 70%는 에어로졸 형태로 필터에 포집되고 나머지 30%는 기상의 증기 형태로 TGT에 응축된다. 그러나 수소 분위기에서는(VI-5 테스트) 증기상과 에어로졸 형태가 서로 역전되는 분포를 보이는데 이로부터 수소분위기 하에서는 대부분의 Cs이 증기상으로 방출된다는 사실을 알 수 있었다. 즉

60%의 세슘은 TGT에, 33%는 필터에 포집되었다[30]. 따라서 수증기 비율이 높은 조건에서는 소량의 Cs만이 증기 형태로 방출되고 대부분의 Cs는 에어로졸 형태로 방출되므로 증기 형태로 방출된 Cs는 발전소내 차가운 부분에 응축되고, 에어로졸 형태로 방출된 Cs는 멀리 이동하게 되어 Cs의 포집을 위한 고용량, 고효율의 필터 시스템이 필요하게 된다. 즉 Cs의 경우 산화분위기가 환원분위기보다 훨씬 더 위험하다고 할 수 있다.

Table 2-6. Comparison of cesium forms collected in steam and hydrogen atmosphere

Location	Cs		
	Atmosphere	Mass, g	Percentage released
Test VI-3	Steam		
Furnace		0.026	10.4
TGTs		0.057	22.9
Filters		0.166	66.7
Total		0.249	100.0
Test VI-5	Hydrogen		
Furnace		0.018	7.7
TGTs		0.142	60.4
Filters		0.075	31.9
Total		0.235	100.0

CESIUM IN VAPOR FORM, VI-2,3,4,5

VAP2-AEROSOL-104

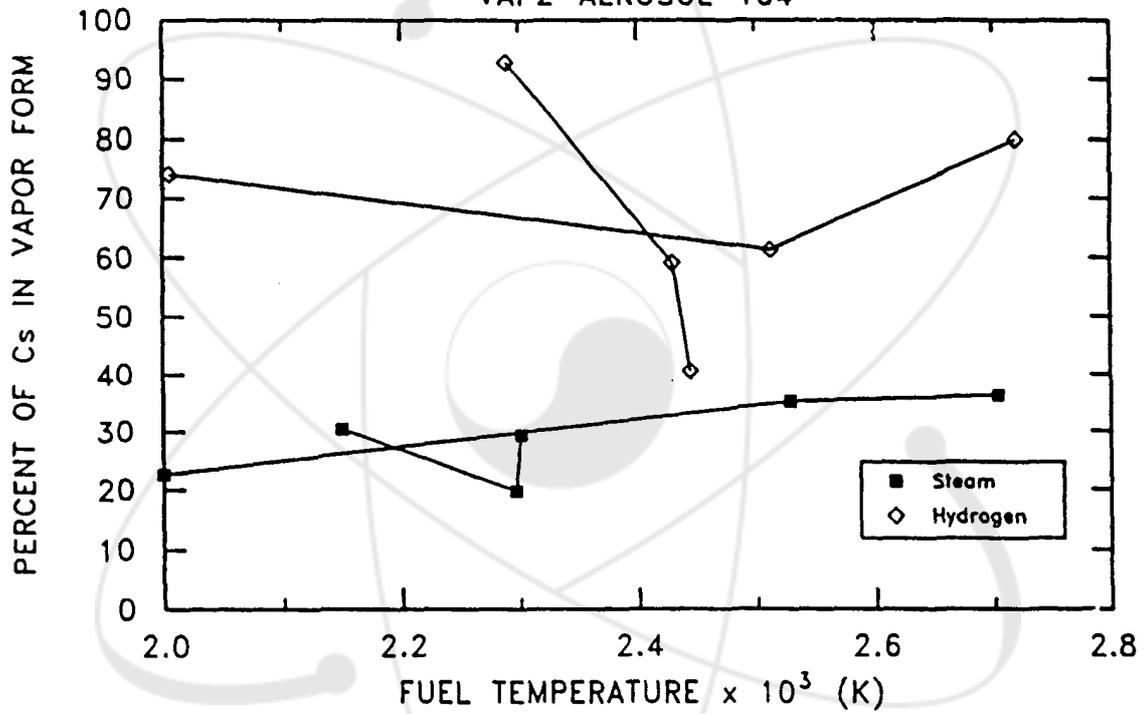


Fig. 2-4. Effect of atmosphere on amount of released cesium in aerosol and vapor form.

VI 테스트로부터 휘발성/준휘발성 핵분열 생성물의 방출 거동중 가장 특징적인 점은 Kr과 Cs의 시간 및 온도변화에 따른 방출거동은 분위기에 상관없이 매우 유사하게 나타났으며 Br과 Rb의 방출거동도 각각 화학적 유사성을 가지는 요오드 및 세슘과 유사한 것으로 나타난 것이다. 그 예로서 2,000K와 2,700K 온도의 수증기 분위기 하에서 수행한 VI-3 test의 온도이력 및 온도변화에 따른 Kr, Cs의 방출 거동을 Fig. 2-5에 나타내었으며, 핵분열생성물을 온도별로 포집하기 위하여 train을 바꾸어가며 실험한(train A→train B→train C)결과이다. 스팀(VI-3)과 수소(VI-5) 분위기에서 휘발성 핵분열 생성물의 방출 속도는 매우 빨라 2,700K에 도달한 후 10분이내에 완료되며, Kr-85와 Cs-134는 VI 모든 테스트에서 거의 유사한 거동을 보였다.

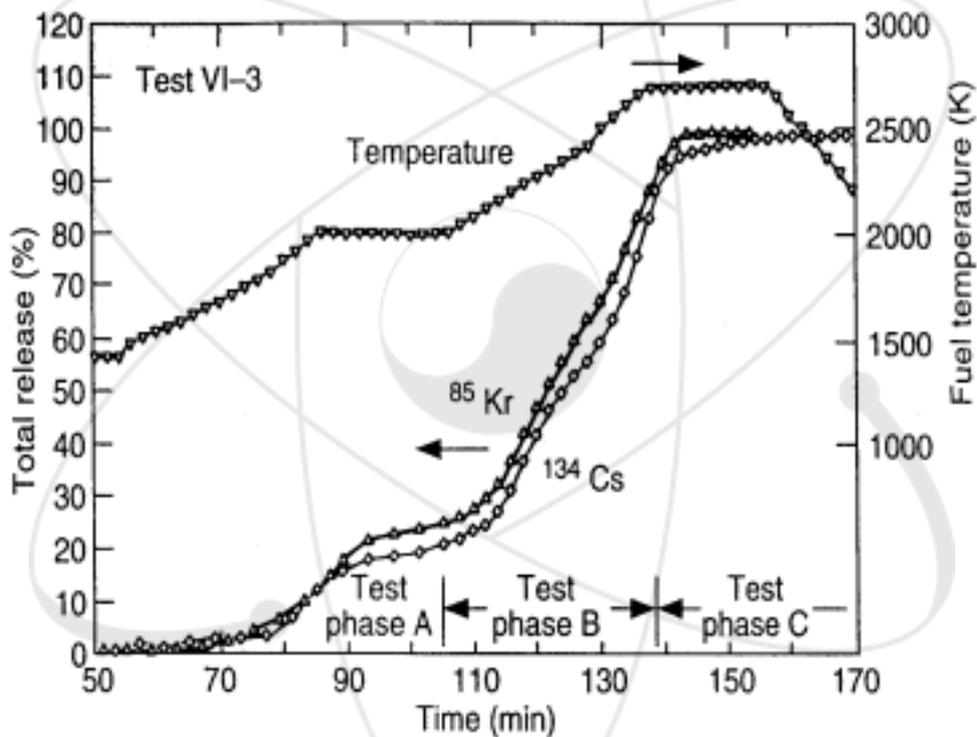


Fig. 2-5. Temperature, fission-product release, and collection train operating histories for test VI-3.

## 2. 비휘발성 핵분열생성물의 방출

열역학적 특성을 고려하여 비휘발성 핵분열생성물은 준휘발성(Te, Sb), 저휘발성(Sr, Ba, Eu), refractories Mo, Ru, Zr, Ce) 3개의 그룹으로 나눌 수 있으며, 이러한 핵분열생성물의 물리·화학적 성질은 산화상태에 따라 급격하게 변화하므로 분위기에 따라 서로 다른 방출특성을 보인다. 예를 들면, Mo, Ru, Te 등의 금속원소와 그 산화물은 서로 다른 방출특성을 보이고 있는 데, 핵연료내 핵분열 생성물의 화학적 형태에 따른 이론 방출속도에 대해서 많은 분석이 수행되었다[30,40]. 일반적으로 저휘발성 그룹에 대한 방출자료는 휘발성 그룹에 비하여 고온의 실험으로부터 얻을 수 있으므로 방출 자료들도 상대적으로 빈약하다. HI/VI 테스트에서 비휘발성 핵분열생성물의 방출 거동은 휘발성 핵분열 생성물의 방출 거동과 다르게 시험 분위기에 따라 다르게 나타났으며 Sb, Te, Eu, Mo, Ba, Sr 핵종을 중심으로 방출거동을 분석하였다.

Fig. 2-6은 VI-3와 VI-5 테스트후 유도로 바닥에서부터 거리에 따른 주요 핵분열생성물 분포를 측정한 결과이다. VI-3 실험의 경우 핵연료봉이 완전히 산화되었지만 핵연료는 손상되지 않았으며, 수소 분위기(VI-5 테스트)에서는 핵연료봉 및 핵연료가 시험후 손상되었다. Sb와 Te의 방출속도는 금속 핵연료봉이 있는 경우가 없는 경우보다 훨씬 낮았으며 또한 상당량의 Eu이 핵연료로부터 방출되어 유도로 상부에 누적된 것으로 나타났다.

앞서 언급한 바와 같이 Kr과 Cs의 방출 거동은 기체 분위기에 민감하지 않고 유사한 거동을 보였지만 비휘발성 핵분열생성물의 거동은 기체 분위기 및 핵연료봉의 산화/용융정도에 따라 다르게 나타났다(Table 2-7 참조).

Eu, Ba, Sr의 경우는 원소가 산화물 형태보다 더 휘발성이 강하므로 환원상태에서 최대 방출이 일어나게 되며, 시험결과 Eu의 거동이 Ba이나 Sr의 거동과 거의 일치하였다. Sb의 경우는 스팀 분위기에서 더 높은 방출율(VI-3 : 99%, VI-5 : 18%)을 보였으며, Eu의 경우는 수소 분위기에서 더 높게(VI-3 : <0.01%, VI-5 : 57.4%) 나타났다. 이와 같이 Sb와 Eu의 방출거동 특성이 차이가 나는 이유는 원소와 산화물의 특성으로 해석할 수 있다.

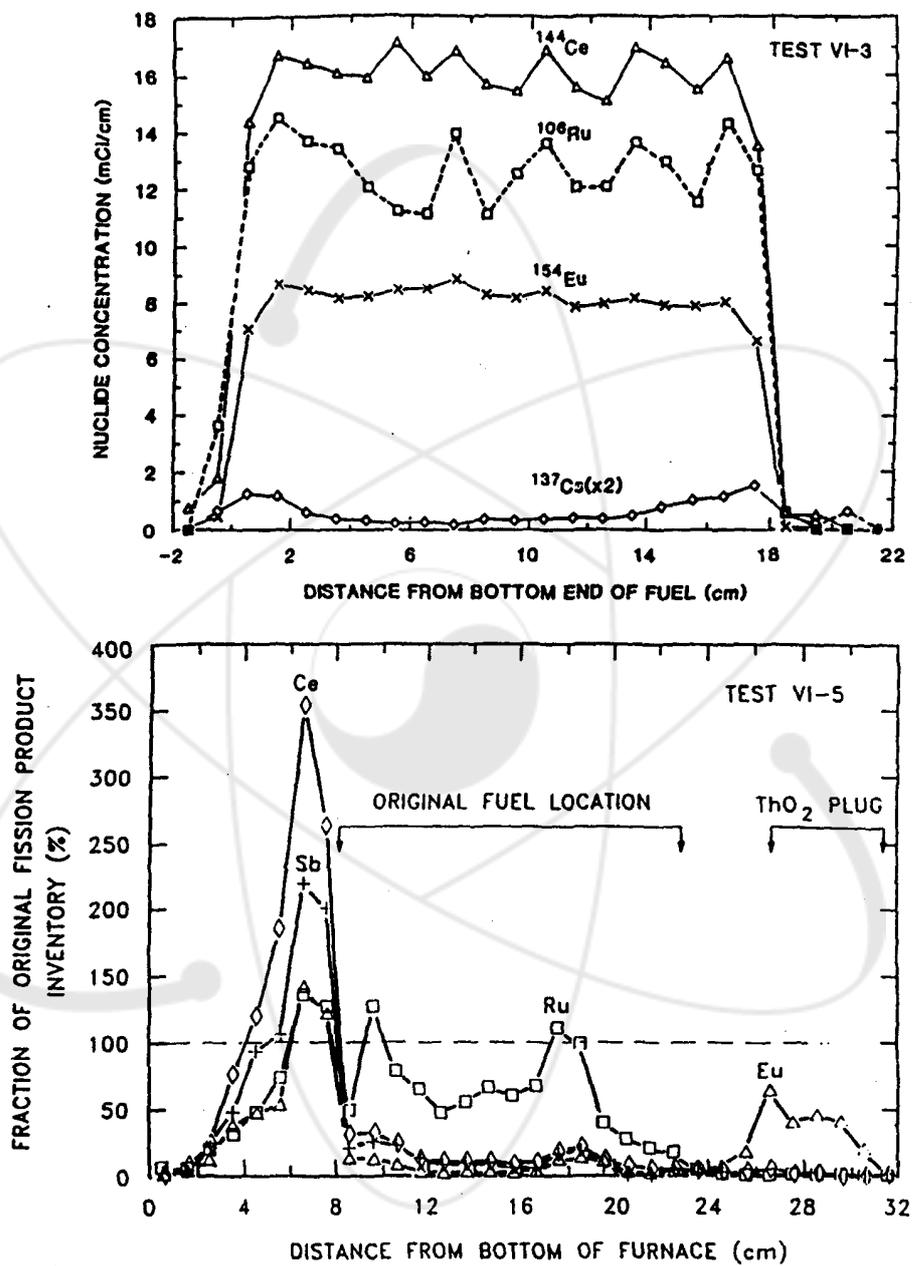


Fig. 2-6. Post-test distribution of major fission products in VI-3 and VI-5 tests.

Table 2-7. Release data as function of temperature and atmosphere

Test No.	Maximum temperature, K	Effective time, min	Reactive atmosphere	Fission product released (% of inventory)		
				Cs (Kr, I)	Sb (Te)	Eu (Ba, Sr)
VI-3A	2000	34	Steam	22	0	0
VI-5A	2000	33	Hydrogen	31	0	1
VI-2AB	2300	25	Steam	57	49	0
VI-4ABC	2440	31	Hydrogen	96	6.4	19
VI-3ABC	2700	46	Steam	100	99	~0.01
VI-5ABC	2700	31	Hydrogen	100	18	57

즉 수소분위기에서 Eu의 방출율이 더 커진 것은 핵연료로부터 방출되는  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 가 산화가가 더 낮은 산화물로 환원되거나 또는 Eu 원소로 환원되었기 때문이다. Alchard와 Albert는 가장 비휘발성인  $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 는  $1,600^\circ\text{C}$  수소분위기에서  $\text{Eu}_3\text{O}_4$ 로 환원되어 휘발된다고 보고하였다[41]. 아울러 Sb와 Te은 고온에서 핵연료로부터 손쉽게 방출될 것처럼 보이지만, 그들은 핵연료봉 금속과 결합한 상태로 존재하고 있어 연료봉이 완전히 산화될 때까지는 연료봉 안에 갇혀있고 산화가 거의 끝날 경우 급격하게 방출된다. Te의 이러한 거동은 모의 zircaloy-clad  $\text{UO}_2$  핵연료를 사용하여 실험한 Collins 등의 실험결과와 잘 일치한다[40]. Refractory 금속인 Ru, Mo의 경우는 산화물( $\text{RuO}_4$ ,  $\text{MoO}_3$ )이 원소형태보다 훨씬 휘발성이 강하므로 산화 분위기에서 방출율이 더 증가하게 된다. 초창기 ORNL에서 LWR 핵연료를 공기 중에서 실험한 결과 Lorenz 등은 Ru이 775K 부근의 온도에서도 낮지만 감지될 수 있는 정도의 방출율을 보인다고 보고한 바 있다[42]. CRL의 Iglesias 등은 핵연료 시편만을 사용하여 공기 분위기에서 가열할 경우 상당히 높은 Ru 방출율을 보였으며 1,600K에서 Ru의 방출율이 100%에 달한다는 사실을 보고하였다[43]. 그러나 VI-3 테스트(2,700K, 수증기분위기)에서 Ru은 약 5% 정도의 방출율을 보였으며, VI-7 테스트(2,000K, 공기/스팀 분위기)에서는 3%미만의 방출율을 나타내었고 나머지 테스트에서는 거의 방출되지 않았다. Mo와 Ba의 방출율은 2,300K이하의 모든 실험에서 1% 이하로 매우 낮았으나 VI-3 실험의 경우 2,700K에서 10~20%로 비교적 높은 방출율을 보였다. 아울러 Zr이나 Ce은 핵연료로부터 거의 방출되지 않는 것으로 나타났다.

Table 2-7에 나타난 바와 같이, VI-5 테스트에서 Sb, Te, Eu의 방출율은 기타 VI

테스트 경우보다 상대적으로 높게 나타났다. 이는 핵연료봉의 산화 및 용융시 강한 환원 분위기(Zr의 산화에 의한 수소 발생)가 형성되어 UO<sub>2</sub>의 환원 및 산화물 형태의 핵분열생성물(Eu, Sr, Ba 등)의 환원반응에 의한 것으로 이로 인하여 방출율이 크게 증가한 것으로 해석할 수 있다. 즉 Zircaloy의 산화 및 용융반응이 비휘발성 핵분열생성물의 방출 거동에 어느 정도 영향을 미침을 알 수 있었다.

악티나이드 원소의 경우 방출율은 매우 낮았으며, 방출될 경우 주로 에어로졸 형태가 대부분이다. VI-2 테스트(2,300K, 수증기분위기)에서는 0.026%의 우라늄이 VI-3 테스트(2,700K, 수증기분위기)에서는 0.69%의 우라늄이 유도로 외부에 축적되었다. 원자로 안전성 측면에서 상당히 중요한 의미를 가지는 플루토늄(Pu)은 위 두 실험에서 우라늄의 방출율보다 적어도 한 단계 낮은 방출율을 보였다.



## 제 4 절 방출율 자료의 해석 및 모델링

고온조건에서 핵연료로부터 핵분열생성물의 방출속도를 예측하기 위하여 사용되는 모델은 크게 두 가지가 있다.

먼저 방출속도 개념의 “방출속도 분율(Fractional Release Rate)” 모델로서, 방출속도 상수  $k$ (단위 : 1/min)를 사용한다. 낮은 방출속도에서  $k$ 는 단위 시간당 방출되는 분율과 같아지게 되며, 분율(fraction)이란 개념은 초기의 핵분열생성물 inventory를 나타내는 것은 아니고 해당되는 시간에서 inventory를 기준으로 한다. 이 단위를 사용하는 이유는 단위 시간당 방출분율을 사용함으로써 시험결과를 쉽게 해석할 수 있기 때문이다.

두 번째는 **확산 모델(Diffusion model)**로서 단위자(single atom) 확산방정식과 확산계수를 사용하여 저연소도 핵연료로부터 온도증가에 따른 핵분열기체(Kr, Xe, Cs 등)의 방출정도를 추정하는 상관관계식을 유도한다[44]. 1985년도에 확산방정식을 사용함으로써 사고시 온도에서 핵분열생성물의 방출을 잘 예측할 수 있다는 것을 ORNL 테스트를 통하여 입증하였고, 이를 ORNL 확산방출(ORNL Diffusion Release) 모델로 명명하였다. 또한 캐나다 연구자들이 핵분열생성물 방출 모델링을 위하여 본 모델에 사용되는 확산방정식을 단순화하였는데, 이를 Booth 모델이라고 한다[45].

### 1. 방출속도 상수(Release Rate Coefficient)

#### 가. 방출속도 분율(Fractional Release Rate) 모델 개요

앞서 언급한 바와 같이 본 모델에서는 방출속도를 표현하기 위하여 속도상수,  $k$ (1/min)를 사용하며, Albrecht 등에 의해 처음 사용되었고 그후 Lorenz와 Wicher가 NUREG-0072에서 본 모델을 도입하였다[32]. 본 모델의 컴퓨터 버전을 CORSOR이라고 부르며, 가장 흔히 쓰는 버전은 CORSOR-M인데 온도의 함수로서  $k$  값을 얻기 위한 상관식( $1/T$  vs.  $k$ )을 사용한다[33]. CORSOR-M 프로그램에 의하여 계산된 핵분열기체, 세슘, 요오드의 방출속도 상수는 NUREG-0072와 CORSOR에 의하여 구한 값과 거의 일치하지만, 저휘발성 핵분열생성물의 방출속도 상수는 NUREG-0072와 CORSOR에 의하여 구한 결과와 비교하여 상당한 차이를 보인다.

방출속도 분율 모델(NUREG-0072, CORSOR, CORSOR-M)은 핵분열생성물의 방출 특성에 미치는 핵연료 형상(fuel morphology)의 영향을 해석할 수 없는 단점을 가

지고 있는 데, 그 예로서 핵연료 연소도에 따른 grain 크기의 변화의 영향을 들 수 있다[32]. 따라서 핵연료 가열시간이 길어지거나 방출량이 많을 경우 본 모델에 의하여 계산된 방출속도 상수는 실제 값과 많은 차이를 보였다[32]. 그 예로서 VI-2 테스트의 경우, 2,300K에 도달한 경우 세슘의 k값은  $0.056 \text{ min}^{-1}$ 이었으나 세슘 방출율이 63%를 넘어선 후 60분 후에는 약  $0.003 \text{ min}^{-1}$ 으로 계산되었다.

#### 나. 방출속도 분율 모델

먼저 해당되는 핵분열생성물의 k 값을 구하기 위하여 CORSOR-M 모델에서는 다음 식을 사용한다.

$$k = k_0 e^{(Q/RT)} \quad (1)$$

여기서 k : 방출속도 상수,  $\text{min}^{-1}$

$k_0$  : Table 2-8로부터 구한 상수값[33],  $\text{min}^{-1}$

Q : 활성화 에너지, cal/mol, Table 2-8 참조[33]

R : 기체상수,  $1.987 \text{ cal/mol} \cdot \text{K}$

T : 절대온도, K

#### (1) "Sum of Product " 방법

다음 단계는 다음 식을 사용하여 방출된 inventory 분율을 구하는 것이다.

$$F = 1 - e^{-kt} \quad (2)$$

여기서 F : 시간 t에서 방출된 inventory 분율

t : 시간, min

k : 방출속도 상수,  $\text{min}^{-1}$

상기 식에서 k는 일정한 것으로 가정하였는 데, 온도가 일정한 경우에만 해당된다. 그러나 온도는 시간에 따라 변하고 따라서 k값도 시간에 따라 변하게 된다. 식(2)는  $k \cdot \Delta t$ 를 kt 대신 대입한 경우에 사용할 수 있고, t는 1분으로 하면 가장 적절하다.

Table 2-8. Arrhenius type constants used in calculation of release

rate coefficients in M-version of CORSOR.

Species	$k_0$ ( $\text{min}^{-1}$ )	Q (Kcal/mol)
Cs, I, Kr Xe, Te	$2.0 \times 10^5$	63.8
Ag	$7.9 \times 10^3$	61.4
Sb	(a)	(a)
Ba	$2.9 \times 10^5$	100.2
Sn (Clad)	$5.95 \times 10^3$	70.8
Ru	$1.62 \times 10^6$	152.8
UO <sub>2</sub>	$1.46 \times 10^7$	143.1
Zr (Clad)	$8.55 \times 10^4$	139.5
Zr	$2.67 \times 10^8$	188.2
Fe	$2.94 \times 10^4$	87.0
Mo	(b)	(b)
Sr	$4.4 \times 10^5$	117.0
Cr	$4.62 \times 10^4$	84.5
Ni	$5.36 \times 10^4$	92.2
Mn	$5.04 \times 10^3$	56.8
La group	0	(c)

(a) : 방사학적 중요도 및 원자로 재료와의 화학적 반응도가 낮으므로 제외

(b) : 낮은 증기압과 방사학적 중요도가 낮으므로 제외

(c) : LaO로 전환되기 전에는 증기압이 매우 낮으므로 제외

다음은 CORSOR-M를 이용하여 UO<sub>2</sub>로부터 세슘의 총 방출량을 예측하기 위한 계산 예이다. 운전조건은 1,500K에서 100분간 가열하고 2,000K에서 10분간 가열하며, 승온 및 냉각시간은 무시한다. 식(1)과 참고문헌[33]로부터 k값은 1,500K에서  $k=1.01 \times 10^{-4} \text{ min}^{-1}$ , 2,000K에서  $k=2.132 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$ 이다. 1,500K에서  $k \cdot \Delta t = (1.01 \times 10^{-4}) \cdot (100) = 0.0101$ , 2,000K에서는 0.2132가 된다. 두 개의 합은 0.2233이며, 식(2)의 kt에 이 값을 대입하면  $F=0.2$ 를 얻을 수 있다. 이 값은 110분후 방출된 총 비율로서 초기 inventory의 20%가 방출된 것으로 계산되었다. 따라서 시간 간격을 임의로 조정하여 시간 변화에 따른 방출분율을 계산할 수 있다. 즉  $\Delta t=1$ 분일 경우  $k \cdot \Delta t=0.000101$ 이고 2분에서는  $k \cdot \Delta t=0.000202$ 가 되며 최종 110분이 경과한 경우는  $k \cdot \Delta t=0.2233$ 이 된다.

## (2) "Inventory Reduction" 방법

본 방법은  $k \cdot \Delta t$ 의 합을 사용하지 않으며,  $f=1-e^{-kt}$ 로 식(2)를 다시 쓰고 f는 초기 inventory가 아닌 임의 시간에서의 inventory 분율을 나타낸다. 각각의 시간 구간에서 해당되는  $k\Delta$ 만을 상기 식에 사용하고, inventory는 시간이 경과됨에 따라 방출된 만큼 감소한다.

다. 시험 데이터로부터 "k" 계산

방출속도 상수는 식 (1) 결과값 변화로부터 아래의 식들을 사용하여 정확하게 얻을 수 있다.

$$k = \frac{-\ln(1-F)}{t} \quad (3)$$

대부분의 시험에서 크립톤 및 세슘의 방출정도는 on-line 감마 측정장치를 이용하여 분단위로 연속 측정이 가능하기 때문에 방출속도 상수는 이러한 데이터를 이용하여 다음 식으로부터 구할 수 있다.

$$k = -\ln[1 - (F_2 - F_1)/(1 - F_1)] / (t_2 - t_1) \quad (4)$$

여기서  $F_1$  :  $t_1$ 에서 초기 inventory와 비교하여 방출된 분율

$F_2$  :  $t_2$ 에서 초기 inventory와 비교하여 방출된 분율

$t_1, t_2$  :  $F_1$  및  $F_2$ 에 해당하는 시간

시간 간격( $t_1-t_2$ )은 보통 1분이며 방출분율 데이터는 k 값의 변화가 심하지 않게 완

만한 경향을 보여주어야 하고,  $F_1$ ,  $F_2$ ,  $t_1$ ,  $t_2$ , 온도는 on-line 감마측정 데이터를 사용할 경우 측정구간의 중간지점에 해당되는 값을 택해야 한다. 식 (4)는 온도가 일정한 경우에만 사용 가능하고 온도가 변화하는 경우에는 부적절하다. 온도가 변화하는 구간에서는  $k$ 값에 미치는 온도의 영향이 고려되어야 하는 데, ORNL에서는 모든 핵종에 대하여 활성화 에너지  $Q=63,800$  cal/mol을 도입하여 이를 보정하였다.

#### 다. CORSOR-O(방출속도 분율 모델로 주로 사용)

CORSOR-O("ORNL"의 O를 의미) 모델은 앞서 언급한 방출속도 분율 모델을 기본으로 1985년도에 CORSOR 모델의 미비한 점을 검토한 후 시험 데이터를 정확히 예측하기 위하여 개선된 모델이다[34]. CORSOR-O에서는 모든 핵종에 대하여 단일온도 활성화에너지 값( $Q=55,000$  cal/mol)을 사용하며, 식(1)의  $k_0$  값은 핵연료봉 산화 정도 및 기체 분위기에 따라 달라진다.

CORSOR-O에서 크립톤과 세슘에 대한  $k_0$  값은  $12,000\text{min}^{-1}$ 이며, 다른 모든 핵종에 대해서는 방출속도 확장계수,  $C_k$ 를 적용하여 각각의  $k_0$  값을 구하였으며, 이를 Table 2-9에 정리하였다. CORSOR-O 모델에 의한 핵분열생성물의 종류별 온도 변화에 따른 방출속도 계산값은 시험 결과와 상당히 잘 일치하였다.

Table 2-9. Relative release rates and diffusion coefficients

Element			CORSOR-O release rate ( $R_k$ )	ORNL- BOOTH relative "D" ( $R_D$ )	CORSOR- BOOTH Scale factor (SFACT) <sup>a</sup>
Initial fuel condition	Reduced fuel	Oxidizing fuel or Cladding			
Kr, Cs	Kr, Cs	Kr, Cs	1.0	1.0	2.0
I	I	I, Te(oc) <sup>b</sup>	0.8	0.64	1.6
		Sb(oc)	0.5	0.25	1.0
Ag	Ag	Ag, Sn-clad	0.4	0.16	0.8
		Mo	0.25	0.0625	0.5
	Ba		0.2	0.04	0.4
	Sr, Eu	Mn <sup>c</sup>	0.1	0.01	0.2
Ba, Te, Sb, Sn-clad	Te, Sb, Sn-clad	Ba, Ru, Fe <sup>c</sup> , Cr <sup>c</sup> , Co <sup>c</sup>	0.02	$4 \times 10^{-4}$	0.04
Sr, Mo	Mo	Sr	0.01	$1 \times 10^{-4}$	0.02
	Ce		0.002	$4 \times 10^{-6}$	0.004
UO <sub>2</sub> <sup>c</sup>		UO <sub>2</sub>	0.0006	$3.6 \times 10^{-7}$	0.0012
Zr-clad	Zr-clad	Zr-clad	0.0002	$4 \times 10^{-8}$	0.0004
Ce, La	La	Ce, La	0.0002	$4 \times 10^{-8}$	0.0004
Eu	UO <sub>2</sub>	Eu	0.00006	$3.6 \times 10^{-9}$	0.00012
Ru	Ru		0.00004	$1.6 \times 10^{-9}$	0.00008
Pu	Pu	Pu	0.00002	$4 \times 10^{-10}$	0.00004

(a) : CORSOR-BOOTH내의 Scale Factor, 고연소도 영역에서 세슘 핵종 고려  
 $D=0.0025e^{(-91.100/1.99/T)}$

(b) : Oxidized Cladding

(c) : 핵분열생성물이 아닌 모든 핵종의 확산계수 계산시 "grain 크기"는  $6\mu\text{m}$ 를 사  
 용함. 연소도에 관계없이 고연소도에서 얻은 상관식을 사용.

## 2. 확산계수(Diffusion Coefficients)

### 가. 확산방출 모델의 개요

확산개념을 도입한 모델로는 ORNL-확산방출 모델과 ORNL-Booth 모델이 있다 [34]. ORNL-확산방출 모델은 휘발성 핵분열 생성물의 방출 특성만을 다루고 있지만 ORNL-Booth 모델의 경우는 핵연료봉 구조 물질(Zr, Sn, Fe, Cr, Mn, UO<sub>2</sub>)을 포함한 여러 종류의 핵분열 생성물의 방출속도를 계산할 수 있다. 본 확산모델에서 UO<sub>2</sub> grain 크기가 매우 중요한데, grain 반경을 6 $\mu$ m로 가정하였다.

또 하나의 모델은 CORSOR-BOOTH 모델인데, 위에서 언급한 두 모델에 사용되는 확장인자(scale factor)를 쉽게 바꿀 수 있게 구성된 모델이다.

### 나. 확산방출 모델

본 모델과 방출속도 분율 모델과의 가장 큰 차이점은 확산계수가 정량적인 방출속도 분율(fraction/min)과 직접 연결할 수 없는 것이다.

첫 번째 단계는 확산계수를 계산하여야 하는데, 모든 확산모델은 식 (1)과 같이 1/T의 상관식을 사용한다. D<sub>0</sub>와 Q 값은 참고문헌에 제시되어 있다[4,46].

$$D = D_0 e^{(-Q/RT)} \quad (5)$$

여기서 D : 확산계수, cm<sup>2</sup>/s, D<sub>0</sub> : Multiplier, cm<sup>2</sup>/s

Q : 활성화 에너지, cal/mol, R : 기체상수, 1.987 cal/mol · K

T : 절대온도, K

두 번째 단계는 방출된 분율을 계산하는 것이다. Booth와 Rymer의 확산방정식을 기본으로 균일한 구형의 grain으로 구성된 이상적인 UO<sub>2</sub> matrix 내에서 단위자 확산을 가정하고, 다음의 두 가지 경우에 대하여 각각 다른 수식을 적용한다.

핵분열생성물의 방출율이 적을 경우(Dt/a<sup>2</sup> ≤ 0.1547 일 경우) 다음 식을 사용한다.

$$F = 6 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} - 3 \frac{Dt}{a^2} \quad (6)$$

여기서 F는 방출분율

D는 확산계수, cm<sup>2</sup>/sec

t는 시간, sec

a는 측정된 초기 grain 반경, cm

초기 grain 반경(a)은 모든 계산과정에서 일정한 것으로 가정하였지만 실제로는 grain 크기는 고온에서 커지게 된다. 따라서 ORNL에서는 식 (5)의 D<sub>0</sub>와 Q 값에

grain 성장 효과가 포함되어 있는 것으로 가정하였다.

방출율이 클 경우( $Dt/a^2 > 0.1547$ 일 경우) 다음 식을 사용한다.

$$F = 1 - \frac{6}{\pi^2} \exp\left[-\frac{\pi^2 Dt}{a^2}\right] \quad (7)$$

(식) 6과 (7)은 서로 근접하지만 동일한 값을 얻을 수는 없으며, 가장 근접한 경우가  $Dt/a^2 = 0.1547$ {식(6)=0.8673, (식)7=0.8679}일 때이다.

온도 변화에 따른 D값의 변화는 식(5)를 이용하여 구할 수 있고 각 시간 간격에서  $D \cdot \Delta t$ 를 합산하여 식 (6), (7)에 대입하면 F를 구할 수 있다. 이러한 방법은 방출속도 분율을 구하는 계산절차와 동일하다.

다. 시험 데이터로부터 “D” 계산

식 (5)에 사용된 Q/R 값은 45,779이며, CORSOR-BOOTH 모델에서도 동일한 값을 사용한다. D<sub>0</sub> 값을 구하는 방법을 보면, 시행오차 방법을 이용하여 식(6), 또는 (7)을 이용하여 구한 F값이 실제 시험 데이터와 허용 오차 범위내에 접근할 때까지 계속 반복 계산하여 구한다. ORNL에서는 포집장치중 train A, B, C 사용시간(즉 이 시간은 온도 변화를 의미함)별로 세슘의 방출분율을 가장 적절하게 계산할 수 있는 D 값을 구하기 위해  $D\Delta t$ 의 합인  $Dt$ (t : 구간별 전체 시험시간)로 대체하여 사용하였으며, train A, B, C 운전시간별 effective time( $t_{\text{eff}}$ )은 앞서 구한 D 값을 train별 시간구간에 서 구한  $Dt$ 의 합으로 나누어 구한다.

다른 핵분열생성물의 방출에 따른 확산계수는 A, B, C train의 운전후에 각 핵종별로  $Dt/a^2$ 을 아래 식을 이용하여 계산한 후 시험값과 비교하여 구한다.

$$Dt/a^2 = \frac{2}{\pi} - \frac{f}{3} - 2\sqrt{\left[\frac{1}{\pi^2} - \frac{f}{3\pi}\right]} \quad f < 0.85 \quad (8)$$

$$Dt/a^2 = -\frac{1}{\pi^2} \ln\left[\frac{\pi^2(1-f)}{6}\right] \quad f > 0.85 \quad (9)$$

여기서 f는 시험 시작부터 각각의 A, B, C train 운전후까지 총 방출되는 분율을 의미한다.

이상과 같이 임의의 시험 조건에서 얻은 결과를 이용하여 각 train별(A, B, C)로 나누어 핵분열생성물별 종류별로 확산계수를 구하였다.

#### 라. ORNL-BOOTH 모델(확산방출속도 모델로 주로 사용)

ORNL-확산방출 모델의 확장 버전으로, CORSOR-BOOTH 모델에서 사용한 (Q

vs.  $1/T$  기울기를 동일하게 사용하여 온도( $1/T$ )와 활성화에너지의 상관관계를 모든 핵분열 생성물에 적용하였다[46]. 본 모델에서 사용한  $D_0$ 는  $0.10 \text{ cm}^2/\text{s}$ 이고  $Q=91,100 \text{ cal/mol}$ 로서 CORSOR-BOOTH 모델과 동일한 값이며, 식(5)를 간략히 표현하면 다음과 같고 Table 2-9에 제시한 각 핵분열 생성물별 상대적인  $D(R_D)$ 를 사용한다.

$$D = 0.01 R_D e^{(-45,779/T)} \quad (10)$$

#### 마. CORSOR-BOOTH 모델

본 모델은 핵분열생성물별 확장인자(scale factor)를 도입하고 단일온도 활성화에너지를 사용하는 확산방출 모델이다. 아울러 CORSOR-BOOTH 모델 프로그램을 변형시키기 위하여 CORSOR-O 모델에 사용한 확장인자를 사용한다(Table 2-9 참조). 표에서 보는 바와 같이, CORSOR-BOOTH 확장인자는 CORSOR-O 인자와 선형관계가 있고 2배 높은 값을 가진다.

## 제 5 절 핵종별 방출속도 상수 및 확산계수

HI-1 ~ HI-6 및 VI-1 ~ VI-7 테스트로부터 실험적으로 구한 주요 핵종별 방출 속도 및 모델식을 근거로 한 확산계수 값은 Table 2-10 및 2-11에 종합·정리하였다. 특히 사고시와 같이 온도 변화가 심하고 임의 온도에서 유지 시간이 매우 복잡할 경우 실험 결과로부터 얻은 방출속도만을 이용하여 방출율을 구하기는 힘들며 실험적으로 구한 방출속도를 사용하여 설정된 모델내의 확산계수를 구한 후 본 모델을 이용하여 사고시 주요 핵분열생성물 방출 선원항을 구하고 있다. 아울러 이론적으로 구한 결과와 사고시(PBF SFD 1-3, TMI 사고) 나타난 온도 변화[47] 및 핵분열생성물 방출 특성 결과를 상호·비교하여 모델을 검증한다. 본 절에서는 실험적으로 구한 핵종별 방출속도 및 확산계수 변화 특성을 정리하였다.

### 1. Kr 및 Cs

HI/VI 테스트로부터 온도변화에 따른 Kr 및 Cs의 방출 속도 및 확산계수 값은 Fig. 2-7 ~ 2-10에 각각 도식하였다. 또한 HI/VI 테스트 결과와 다른 시험으로부터 구한 Cs의 방출 속도 및 확산계수를 Fig. 2-11~2-12에 각각 도식하였으며, 실제 사고시의 결과도 함께 제시하였다. CORSOR-M 모델보다 ORNL 확산모델을 이용할 경우 시험 결과를 보다 잘 예측할 수 있었으며, grain 크기가 확산계수에 포함되기 때문에 방출속도 계수와 확산 계수를 직접 비교하는 것은 불가능하다. 그러나 전체적으로 보면,  $10^{-10}\text{cm}^2/\text{sec}$ 의 확산계수가 10%/분(방출계수 0.1/분)의 방출 속도에 해당하며, 확산계수에서 100배 변화할 경우 방출분율은 10배 정도 변화한다.

1,700K 이상의 온도에서 Kr과 Cs의 방출속도는 유사하지만, 상대적으로 낮은 온도에서 Kr의 방출속도가 Cs보다 더 높게 나타났다. Kr의 경우, 핵연료봉이 손상될 경우 plenum에 존재한 기체가 처음으로 방출되고, 핵연료 내에 존재하는 Kr은 온도가 증가함에 따라 서서히 방출하게 된다. 500~900K(223°C~623°C) 온도 범위에서 Kr의 전형적인 방출율은 핵연료 inventory의 1 ~ 2% 정도이다[48]. 이상의 결과는 방출특성 시험시 핵연료봉이 제거되지 않은 상태에서 구한 결과로서, DUPIC 핵연료 제조공정과 같이 연료봉이 없는 핵연료 시편만을 사용하여 시험할 경우 Kr 및 Cs의 방출속도는 크게 달라진다.

Table 2-10. Release rate coefficients for HI and VI tests

Test No.	Release rate coefficients for HI and VI tests (min <sup>-1</sup> )													
	<sup>85</sup> Kr	<sup>134</sup> Cs	<sup>129</sup> I	Te (appx.)	<sup>125</sup> Sb	Sn (clad) (appx.)	Ba (appx.)	Sr (appx.)	<sup>154</sup> Eu	Mo (appx.)	<sup>106</sup> Ru	UO <sub>2</sub>	<sup>144</sup> Ce	<sup>110m</sup> Ag (appx.)
HI-1	8.6-4	5.3-4	7.6-1	7.5-5			2.3-6	<6.0-7		4.4-7		6.0-9		9.1-5
HI-2	3.6-2	3.5-2	5.3-2	3.4-2	7.7-4					3.0-3				1.4-3
HI-3	4.1-2	4.1-2	2.6-2	1.4-4	4.6-5	8.0-4	2.7-4			2.7-4				>6.9-6
HI-4	1.2-2	1.9-2	1.8-2	2.0-4	4.5-4	5.3-4	2.2-5	<2.5-6		9.4-5		2.0-8		>4.7-5
HI-5	7.5-3	9.8-3	1.4-2		1.4-4	2.2-4	3.3-5	<3.0-4		6.0-5				8.6-3
HI-6	3.8-2	4.3-2	3.8-2		6.6-3			9.1-6						6.6-3
VI-1A		1.4-2	1.1-2		5.7-5					5.7-3		4.1-8		6.1-3
VI-1B		2.0-2	1.1-2		8.1-3					5.3-3		5.4-6		1.4-2
VI-1C		2.4-2	1.1-2		1.8-2					2.1-2		7.4-7		9.0-2
VI-1ABC	2.3-2													
VI-2A		3.9-2	2.4-2		9.2-5	1.2-2	2.0-3			4.8-3		9.4-7		
VI-2B		2.7-2	1.2-2		3.7-2	6.3-2	8.6-3			4.9-2		4.0-6		
VI-2C		6.2-3	1.4-3		1.1-2	3.7-2	8.6-4			2.4-2		5.5-6		
VI-3A	1.3-2	1.0-2	1.2-2	7.1-4	4.1-5	2.6-3	1.3-3	2.9-4		3.3-3		6.6-7		
VI-3B	1.2-1	9.5-2	5.7-2	6.2-2	8.4-2	3.8-2	9.3-3	6.7-4		4.4-2	6.7-5	2.8-4		
VI-3C	1.2-1	2.0-1	7.7-3	1.4-1	1.4-1	2.8-2	6.0-3	3.3-4		2.3-2	2.2-3	3.5-4		
VI-3ABC									3.2-6				<6.4-5	
VI-4A	2.4-1	1.1-1	7.5-2		1.8-3	6.2-4	9.3-3		2.5-2	9.8-4				
VI-4B	7.2-2	1.3-1	3.7-2		4.2-3	6.3-5	1.6-2		4.3-4	6.7-3				
VI-4C	2.9-2	9.3-2	8.3-2		1.3-3	5.9-5	7.7-3		8.1-5	7.5-4				
VI-5A	1.6-2	1.6-2	1.8-2	4.3-4	7.8-5		4.5-3	2.6-3	3.7-4	2.2-4		6.5-7		
VI-5B	2.6-1	2.8-1	9.9-2	1.4-3	1.4-2		5.3-3	2.3-2	6.1-2	3.2-4		4.7-6		
VI-5C	3.3-1	2.6-1	4.1-3	1.8-1	4.4-3		4.3-2	8.8-3	1.9-2	7.2-4		4.6-6		
VI-5ABC													7.6-4	
VI-6A	4.1-2	4.8-2	2.7-2	3.9-3	<3.3-4		8.5-3	1.2-3	1.9-3	3.5-4		2.3-7		
VI-6B	1.9-2	1.4-2	5.9-3	2.4-3	3.3-4		5.1-3	6.5-4	5.7-5	1.3-4		1.1-7		
VI-6C		1.7-2	2.3-2		2.3-2		4.4-3	7.6-4	2.8-3	3.0-3		1.2-7		
VI-6C1	3.6-3			0 <sup>a</sup>										
VI-6C2	1.8-2			3.6-2										
VI-7A	1.7-2	1.9-2	9.2-3				5.2-4	1.1-4		2.8-5				
VI-7B	2.6-2	2.2-2	1.1-2		4.9-3		2.3-4	2.7-4		1.2-4				
VI-7C	1.8-2	2.1-2	7.2-3		2.9-2		1.8-3	2.4-4		2.2-3				
VI-7ABC									1.5-5					

\* 8.6-4 : 8.6 × 10<sup>-4</sup>

Table 2-11a. Diffusion coefficients from HI and VI tests

Test No.	Diffusion coefficient (cm <sup>2</sup> /s)					
	<sup>85</sup> Kr	<sup>134</sup> Cs	<sup>129</sup> I	Te (appx.)	<sup>125</sup> Sb	Sn(clad) (appx.)
HI-1	1.03-15	3.91-16	7.9-16			
HI-2	1.03-12	9.81-13	1.9-12		6.6-16	
HI-3	1.64-12	1.63-12	7.6-13		3.1-18	7.3-15
HI-4	4.00-13	9.68-13	8.6-13		6.5-16	2.9-15
HI-5	3.41-13	5.78-13	1.1-12		1.3-16	5.8-16
HI-6	2.61-12	3.35-12	2.7-12		9.3-14	
VI-1A		1.21-12	7.7-13		2.5-17	
VI-1B		4.18-12	1.9-12		2.7-13	
VI-1C		6.72-12	2.4-12		2.3-12	
VI-1ABC	3.22-12					
VI-2A		6.51-12	2.6-12		4.4-17	7.2-13
VI-2B		1.11-11	3.5-12		9.7-12	2.5-11
VI-2C		3.29-12	4.9-13		5.6-12	2.3-11
VI-3A	1.74-12	1.20-12	1.5-12	6.3-15	<2.2-17	8.4-14
VI-3B	6.29-11	4.86-11	2.6-11	2.3-11	3.6-11	1.2-11
VI-3C	7.21-11	1.20-10	4.7-12	8.5-11	8.6-11	1.5-11
VI-4A	1.07-10	3.46-11	1.8-11		1.4-14	1.6-15
VI-4B	4.39-11	7.25-11	1.7-11		1.4-13	3.4-16
VI-4C	1.75-11	5.67-11	4.8-11		7.3-14	3.6-16
VI-5A	2.69-12	2.58-12	3.1-12	2.3-15	<7.3-17	
VI-5B	1.37-10	1.49-10	4.6-11	2.2-14	7.4-13	
VI-5C	1.99-10	1.55-10	2.3-12	9.7-11	6.2-13	
VI-6A	9.14-12	1.19-11	4.3-12	1.0-13	<1.1-15	
VI-6B	8.68-12	6.72-12	1.9-12	2.5-13	<1.1-15	
VI-6C		9.30-12	1.2-11	7.8-11	7.9-12	
VI-6C <sub>2</sub>	1.86-12			0 <sup>a</sup>	0 <sup>a</sup>	
VI-6C <sub>2</sub>	1.12-11			1.3-11	1.4-11	
VI-7A	1.60-12	1.77-12	4.9-13			
VI-7B	4.84-12	4.17-12	1.2-12		5.5-14	
VI-7C	4.07-12	5.00-12	1.1-12		3.7-12	

\* 1.03-15 :  $1.03 \times 10^{-15}$

\*\* Assumes that entire C-phase release occurred during high steam flow period.  
NUREG/CR-6261

Table 2-11b. Additional diffusion coefficients from HI and VI tests

Test No.	Ba (appx.)	Sr (appx.)	<sup>154</sup> Eu	Diffusion coefficient(cm <sup>2</sup> /s)								
				Mo (appx.)	<sup>104</sup> Ru	UO <sub>2</sub>	Pu	<sup>144</sup> Ce	<sup>110m</sup> Ag (appx.)	Zr (appx.)	La (appx.)	
HI-1	7.6-21	5.1-22		2.7-22						1.1-17	4.6-21	6.7-20
HI-2				9.8-1.5		5.1-26				2.3-15	6.1-21	
HI-3	1.1-16			1.1-16						6.9-20	9.0-24	
HI-4	1.5-18	2.0-20		2.8-17		1.3-24				7.0-18		<3.1-23
HI-5	7.2-18			2.4-17						4.5-13	3.4-21	
HI-6										9.2-14		
VI-1B				2.3-13		1.2-23				2.6-13		
VI-1B				5.1-13		1.3-19				1.9-12		
VI-1C				3.9-12		3.8-20				2.7-11		
VI-2A	1.9-14			1.2-13		4.5-21	4.8-2					
VI-2B	8.0-13			1.6-11		1.9-19	1					
VI-2C	1.5-13			1.4-11		1.1-18	6.3-2					
							1					
							9.2-2					
							1					
VI-3A	2.3-14	1.0-15		1.3-13		5.6-21						
VI-3B	1.1-12	9.5-15		1.5-11	4.5-17	8.1-16						
VI-3C	1.5-12	8.0-15		1.3-11	5.9-14	3.4-15						
VI-3ABC			<1.7-19							<6.7-17		
VI-4A	3.6-13		2.4-12	4.1-15								
VI-4B	2.2-12		7.9-14	2.3-13								
VI-4C	1.8-12		1.5-14	5.0-14								
VI-5A	2.4-13	7.8-14	1.6-15	5.9-16		5.1-21						
VI-5B	1.3-11	3.0-12	1.2-11	4.0-15		1.6-19			8.0-15			
VI-5C	2.2-11	2.3-12	8.2-12	1.1-14		4.7-19						
VI-5ABC												
VI-6A	4.7-13	9.8-15	2.4-14	8.4-16		3.6-22						
VI-6B	7.5-13	1.4-14	1.5-15	8.1-16		4.7-22						
VI-6C	1.1-12	3.4-14	2.4-13	2.1-13		9.1-22						
VI6-C <sub>2</sub>				3.6-13								
VI-7A	1.8-15	8.4-17		5.3-18								
VI-7B	7.1-15	5.7-16		9.2-17								
VI-7C	1.1-13	9.9-16		2.9-14								
VI-7ABC			3.4-18									

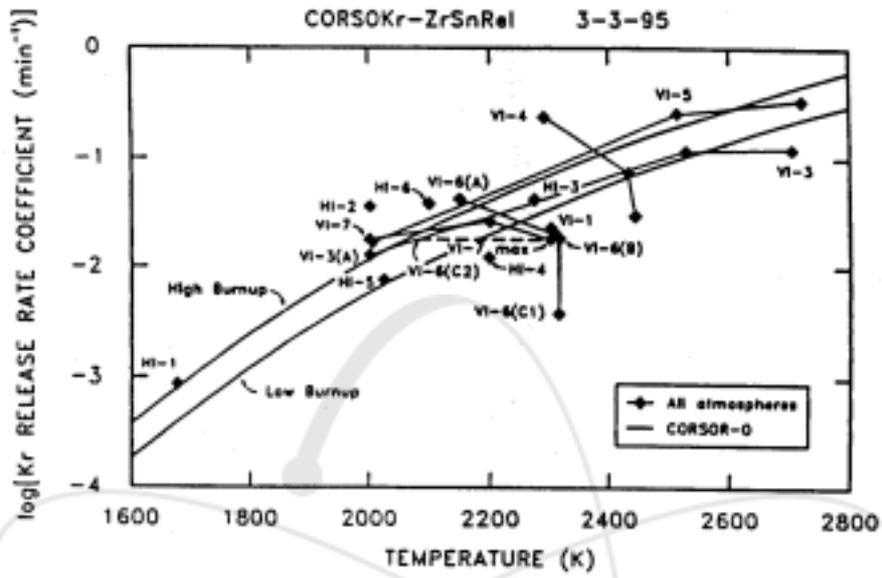


Fig. 2-7. Release rate coefficients for Kr-85, obtained from ORNL tests.

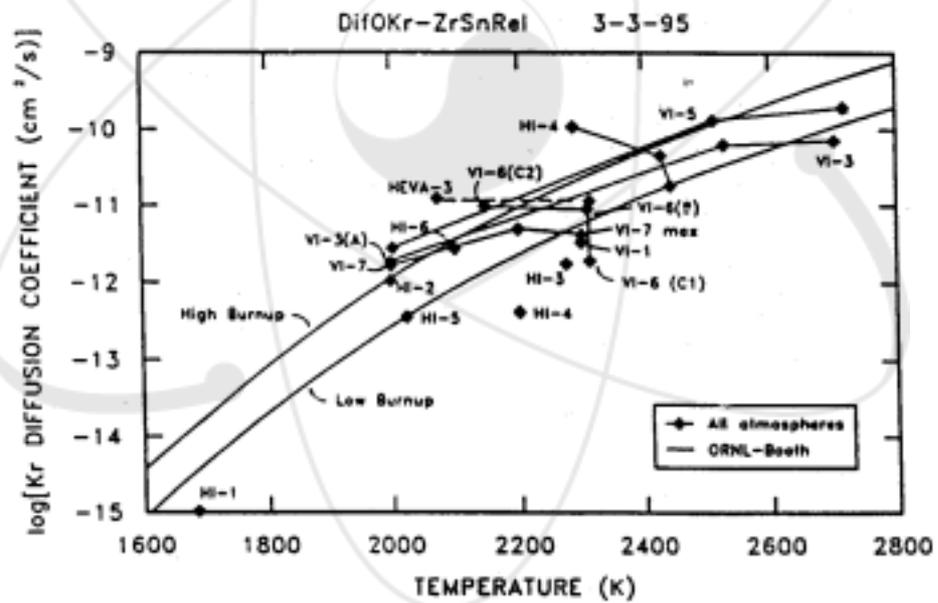


Fig. 2-8. Diffusion coefficients for Kr-85, obtained from ORNL tests.

CESIUM RELEASE RATE COEFFICIENTS, ORNL TESTS

Fig. CorsOCs-CSARP93 3-5-95

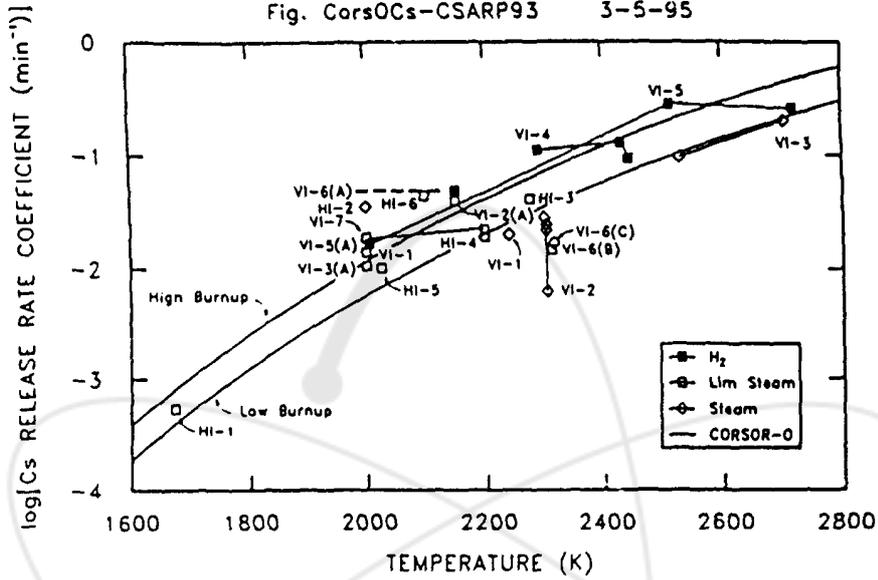


Fig. 2-9. Release rate coefficients for Cesium, obtained from ORNL tests.

CESIUM DIFFUSION COEFFICIENTS, HI & VI TESTS

DifOCs-CSARP93 3-5-95

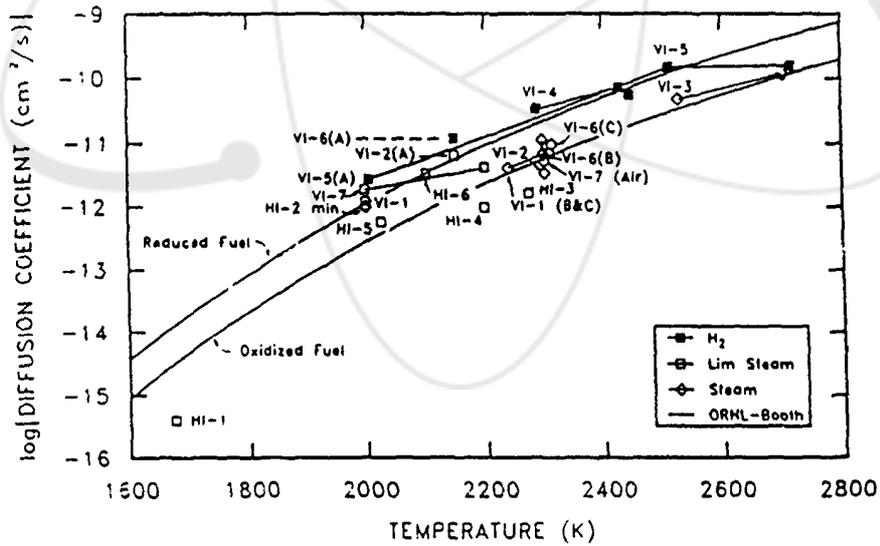


Fig. 2-10. Diffusion coefficients for Cesium, obtained from ORNL tests.

CESIUM RELEASE RATE COEFFICIENTS IN OTHER TESTS

Fig. CorsOCsX-CSARP93 3-5-95

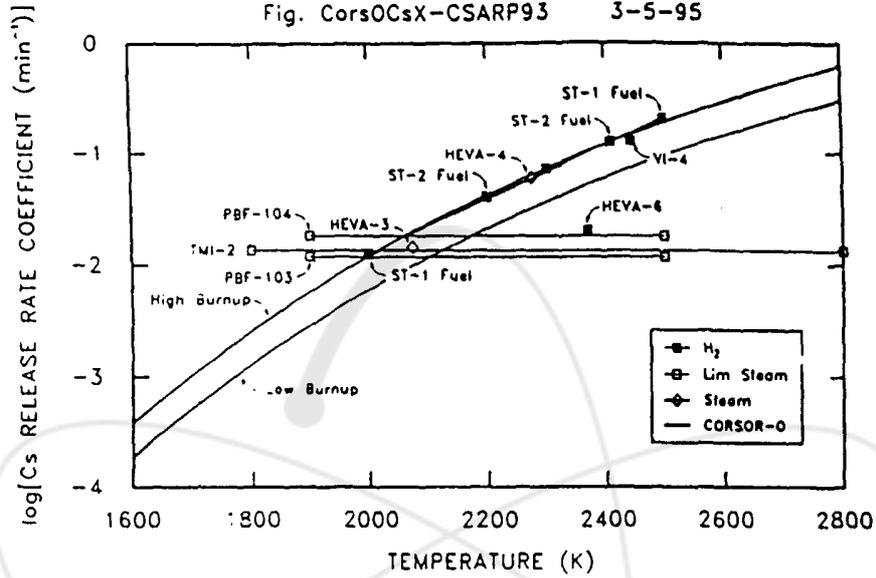


Fig. 2-11. Release rate coefficients for Cesium, obtained from other tests.

CESIUM DIFFUSION COEFFICIENTS IN OTHER TESTS

DifOCsX-CSARP93 3-5-95

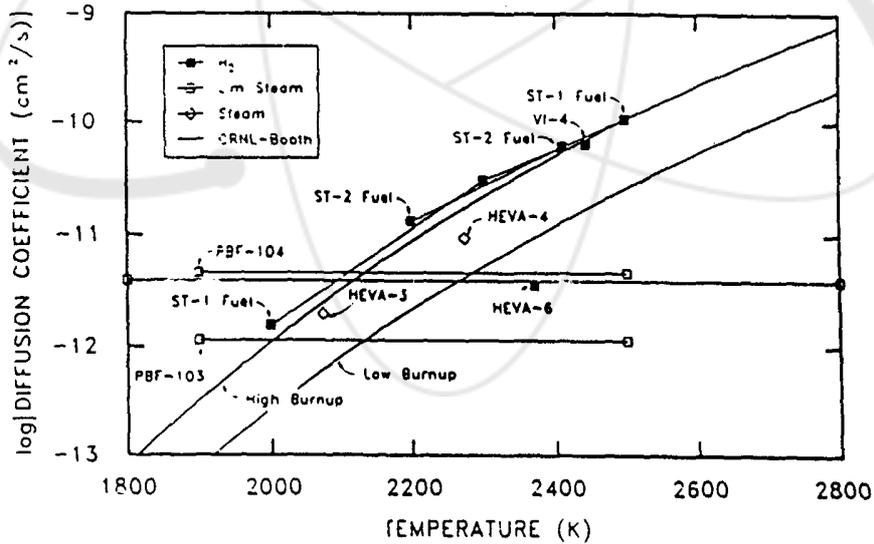


Fig. 2-12. Diffusion coefficients for Cesium, obtained from other tests.

1,600K이하의 온도에서 Cs의 방출속도가 요오드 방출 속도보다 낮게 나타났는데, 그 이유는 이 온도 영역에서는 보통 cesium uranates를 형성하기 때문으로 해석하였다[48~50].

## 2. Iodine(요오드)

HI/VI 테스트로부터 온도변화에 따른  $^{129}\text{I}$ 의 방출 속도 및 확산계수 값을 Fig. 2-13~14에 각각 도식하였고, 다른 시험에서 구한 결과를 Fig. 2-15~16에 각각 도식하였으며, 실제 사고시의 결과를 제시하였다.

Kr 및 Cs의 시험결과와 다르게  $^{129}\text{I}$ 의 방출 속도는 온도변화에 따라 데이터가 매우 불규칙한 경향을 보였다. 이러한 결과의 원인으로서는 방출된 요오드의 측정방법상의 오차일 가능성이 가장 큰 것으로 분석하였다.  $^{129}\text{I}$ 의 방사능은 TGT 및 필터내에 침적된 핵종을 용해시켜( $\text{NH}_4(\text{OH})_2 + \text{H}_2\text{O}_2$  용액)와 용액내의  $^{137}\text{Cs}$ 과 다른 핵종들을 분리한 후 neutron activation 방법을 사용하여  $^{130}\text{I}$ 로 전환시켜 농도를 측정한다. 이 경우 요오드의 완전 용해가 이루어져야 하는 데 예비 테스트 결과 약 95%의 용출율을 보였지만 이에 대한 보정이 정확히 수행되지 않았다. 또 하나의 원인으로서는 ORIGEN-2 코드 결과 값에 대한 신뢰도를 들 수 있다[37]. 요오드 방출율은 다른 핵종과 다르게 ORIGEN 코드 계산값을 기준으로 구하는 데(직접 측정이 어려움) 코드 계산값에 따라 방출속도가 달라지기 때문이다.

Fig. 2-13 및 2-14에 나타낸 바와 같이 요오드의 방출율이 2,500K이상의 온도에서 급격하게 감소한 것은 물리·화학적 특성상 비현실적이며 위에서 언급한 바와 같이 장치로부터 추출시 완전히 용해되지 않았기 때문으로 해석된다. 따라서 2,500K 이상의 온도영역에서 요오드의 방출속도는 Kr 및 Cs의 방출속도보다 낮은 값을 보여주었으며, 이러한 결과를 고려하여 CORSOR-O와 ORNL-Booth 모델에서 요오드의 방출속도는 측정값보다 25% 높은 값을 사용하였다.

## 3. Eu

Eu의 방출속도는 Fig. 2-17 및 2-18에 나타난 바와 같이 용해된 Zircaloy가 핵연료 및 핵분열생성물과 반응할 경우 급격하게 증가하였다. Eu은 대부분 증기상으로 방출되며, 온도가 감소함에 따라 포집장치에 침적된다. VI-4 및 5 테스트에서 Eu의 침적온도는 1,800~ 2,200K로 추정하였으며 핵연료로부터 방출된 Eu이 포집장치에 도달하는지의 여부는 불확실하다.  $^{154}\text{Eu}$ 의 방사능은 감마선 측정장치를 이용하는데, 실제 측

정값보다 ORIGEN-2 코드를 이용하여 구한 inventory가 약 2배정도높게 나타났으며 이를 고려하여 Eu의 방출속도는 실험적으로 구한 값에 1.77배만큼 곱하여 모델식에 사용하였다.

#### 4. Ce

HI/VI 테스트에서 냉각기간이 긴 사용후핵연료를 사용할 경우 Ce의 반감기가 짧기 때문에(284 day) 감마선 측정 시스템으로 방사능을 측정하기 어려웠다. 따라서 VI-5 테스트에서만 Ce 방출속도를 구할 수 있었으며(Fig. 2-19, 2-20), CORSOR-O 모델에 VI-5의 결과를 그대로 적용하였다.

#### 5. Mo

Fig. 2-21, 22는 Mo의 방출속도 및 확산계수 값 변화를 보여주고 있으며, 산화분위기에서 Mo의 방출속도는 크게 증가한다.

#### 6. Ru

스팀-헬륨 부분위기에서 Ru의 방출속도는 Mo보다 훨씬 낮으며 VI-3 테스트에서 Ru이 소량 방출된 것으로 감지되었다. Fig. 2-23, 24에서는 HI/VI 테스트 이외에 다른 시험(HBU, HS 테스트 및 사고시 측정 결과 포함)에서의 Ru 방출속도 및 확산계수 변화를 보여주고 있다. 이상과 같이 핵연료봉이 부착된 시편을 사용하여 수행한 시험에서 Ru의 방출속도는 매우 낮지만 핵연료 시편만을 사용하여 공기중에서 시험한 경우 방출속도는 크게 증가한다.

Ru는 산화 분위기에서 휘발성 산화물( $RuO_4$ )을 형성한다.  $UO_2$  시편만을 사용하여 775K~975K의 공기중에서 방출시험을 수행한 결과[43,51],  $RuO_2$ 의 일부는  $RuO_4$ 로 산화되어 방출속도가 증가하여 VI-3 테스트시보다 약 1,000배 이상 높아진 것으로 나타났다. Fig. 2-23에 도식한 바와 같이 HBU-5,6 시험(775K~975K, 공기 분위기)에서도 Ru의 방출을 확인하였다. 그러나 스팀 분위기 시험(HBU-5, 6 이외의 시험)에서는 1,475K까지 Ru은 전혀 방출되지 않는 것으로 나타났다.

#### 7. Te(Tellurium) 및 Sb

Te의 방출속도는 연구자마다 다르게 나타났다. NUREG-0722에서의 Te 방출속도는 세슘, 요오드 및 기타 핵분열 기체보다 훨씬 낮은 것으로 보고되었으나 다른 시험

에서는 세슘 등과 비슷한 방출속도를 나타내었다. 따라서 NRC에서는 이에 대한 상세 시험을 ORNL에 의뢰하였으며 시험 결과 Te의 방출속도는 Zircaloy 핵연료봉이 있는 시편을 사용할 경우 매우 낮은 값을 보였으며, Zircaloy 핵연료봉이 1,975K에서 90% 정도 까지 산화되더라도 요오드 방출속도의 약 1/40정도를 나타내었다(Fig. 2-25, 26 참조). HI/VI 테스트에서 Sb(antimony)의 방출은 주로  $^{125}\text{Sb}$ 의 감마 방사능을 측정하여 구하였는데, 냉각기간이 긴 핵연료를 사용할 경우에는 방출속도가 매우 낮아 Te과 비슷한 거동을 보였으며 이를 Fig. 2-27~28에 도식하였다. 비휘발성인 핵분열생성물의 방출은 on-line으로 측정할 수 없기 때문에 이러한 원소들에 대한 시간-온도 변화에 따른 방출율은 실험후 3계열의 포집장치로부터 얻어낸 실험 자료에 의하여만 해석될 수 있다. Sb의 방출속도 상수를 Cs과 비교하여 온도의 함수로 Fig. 2-29에 나타내었는데, Sb의 방출속도는 핵연료봉이 산화되었을 때의 경우가 산화되지 않았을 때보다 약 30배정도 크게 나타남을 알 수 있었으며, Cs의 방출속도에 근접하게 된다.

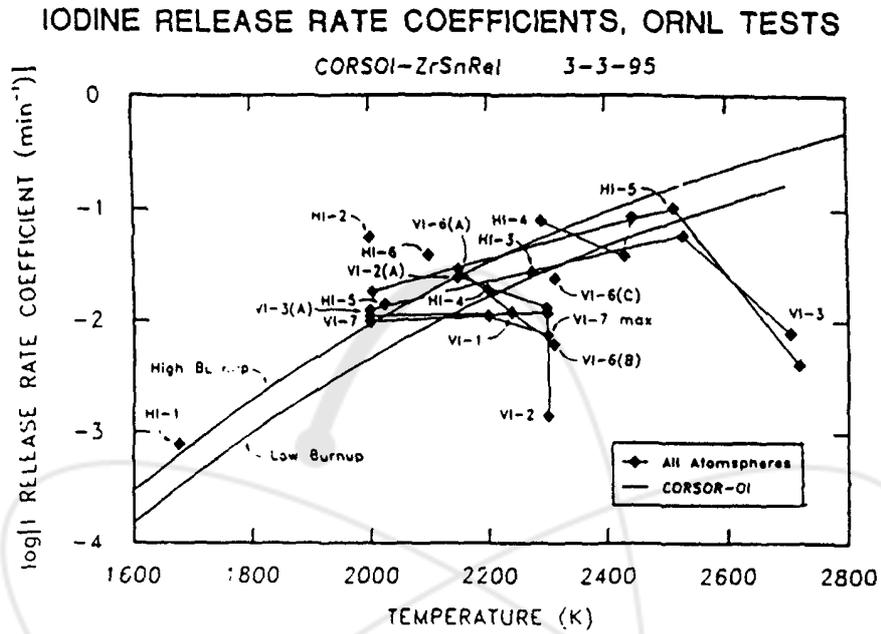


Fig. 2-13. Release rate coefficients for Iodine, obtained from ORNL tests.

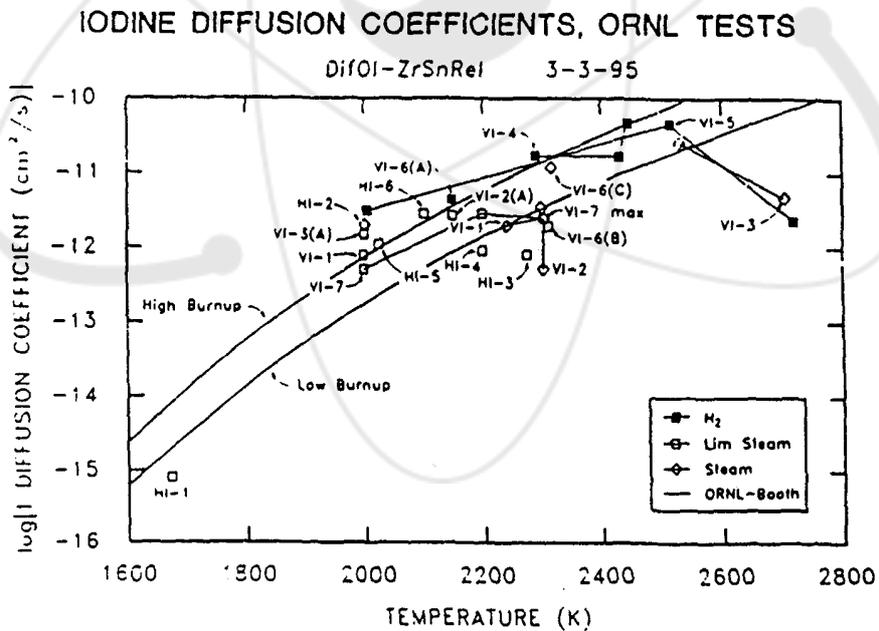


Fig. 2-14. Diffusion coefficients for Iodine, obtained from ORNL tests.

IODINE RELEASE RATE COEFFICIENTS, OTHER TESTS

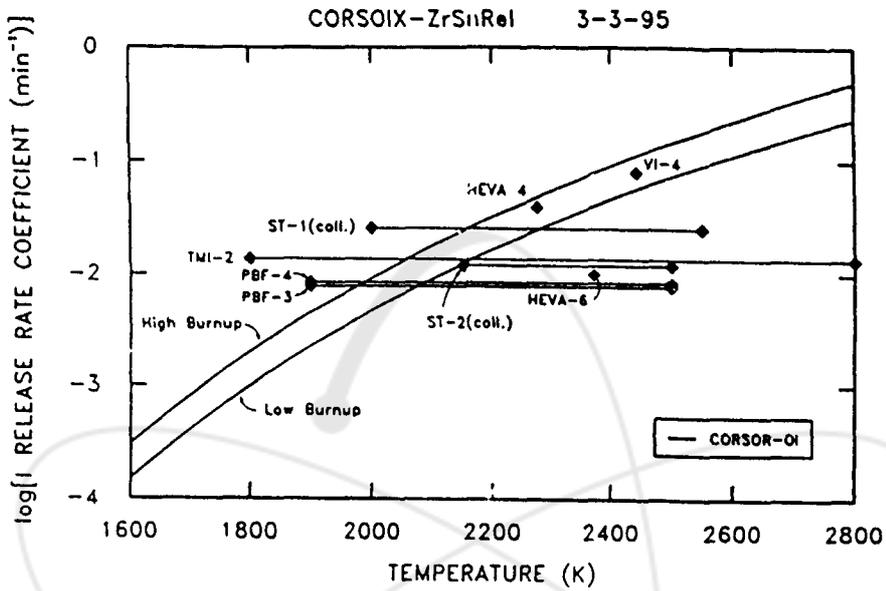


Fig. 2-15. Release rate coefficients for Iodine, obtained from other tests.

IODINE DIFFUSION COEFFICIENTS, OTHER TESTS

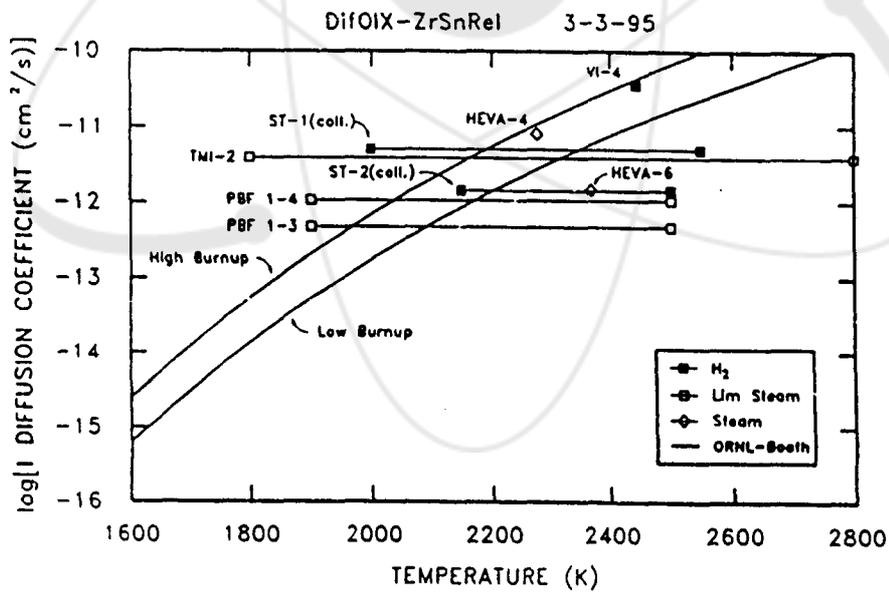


Fig. 2-16. Diffusion coefficients for Iodine, obtained from other tests.

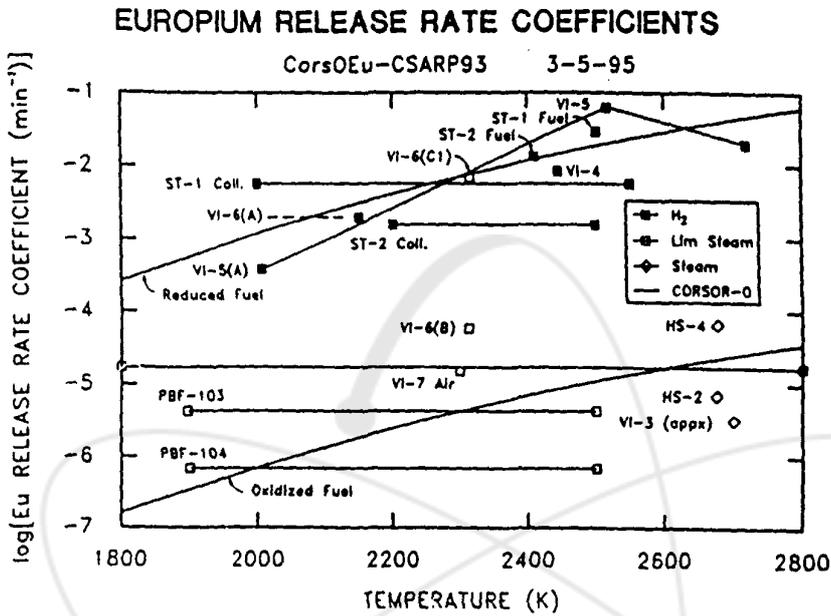


Fig. 2-17. Release rate coefficients for Europium (Eu).

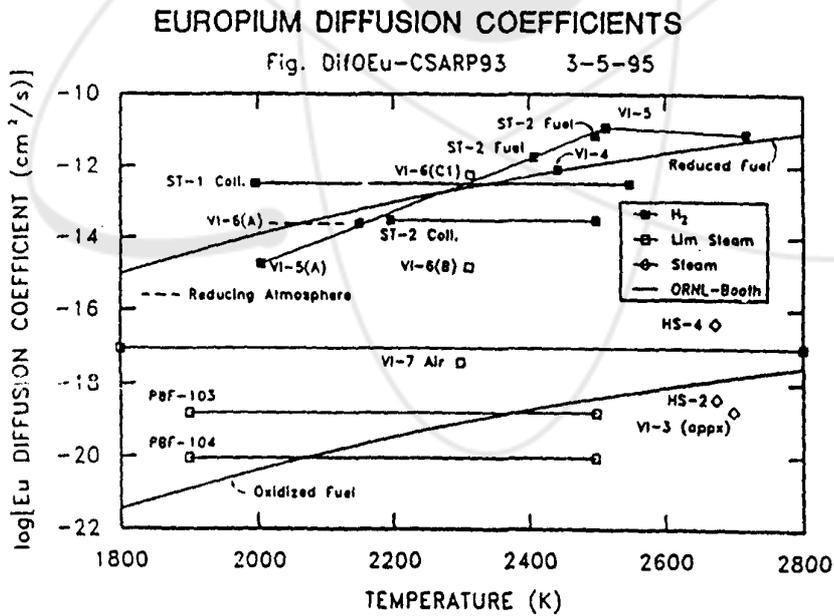


Fig. 2-18. Diffusion rate coefficients for Europium (Eu).

### CERIUM RELEASE RATE COEFFICIENTS

CorsOCe-ZrSnRel 3-27-95

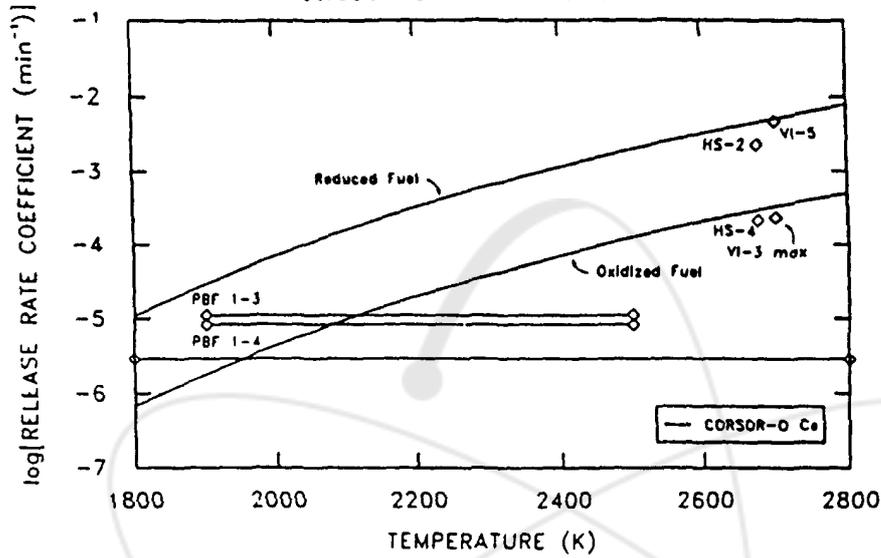


Fig. 2-19. Release rate coefficients for Cerium (Ce).

### CERIUM DIFFUSION COEFFICIENTS

DifOCe-ZrSnRel 3-27-95

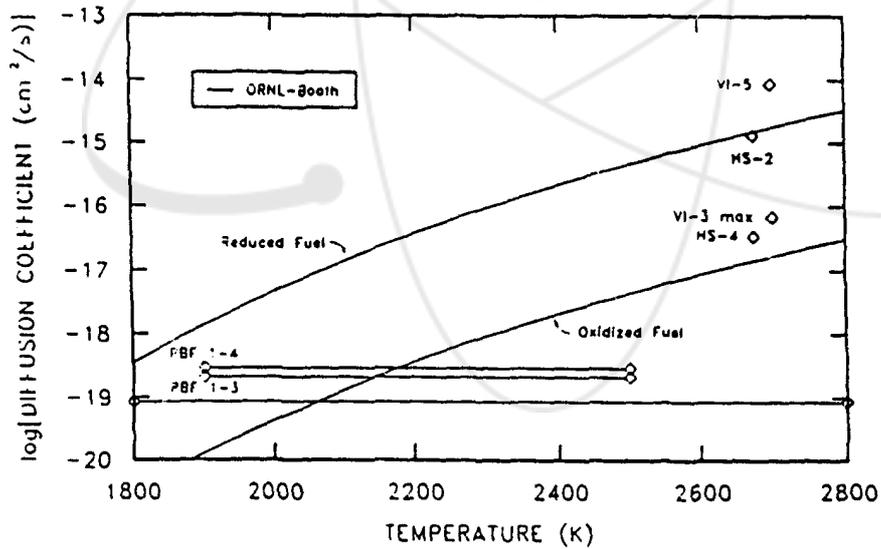


Fig. 2-20. Diffusion rate coefficients for Cerium (Ce).

MOLYBDENUM RELEASE RATE COEFFICIENTS

Fig. CORSOMo-CSARP93 3-5-95

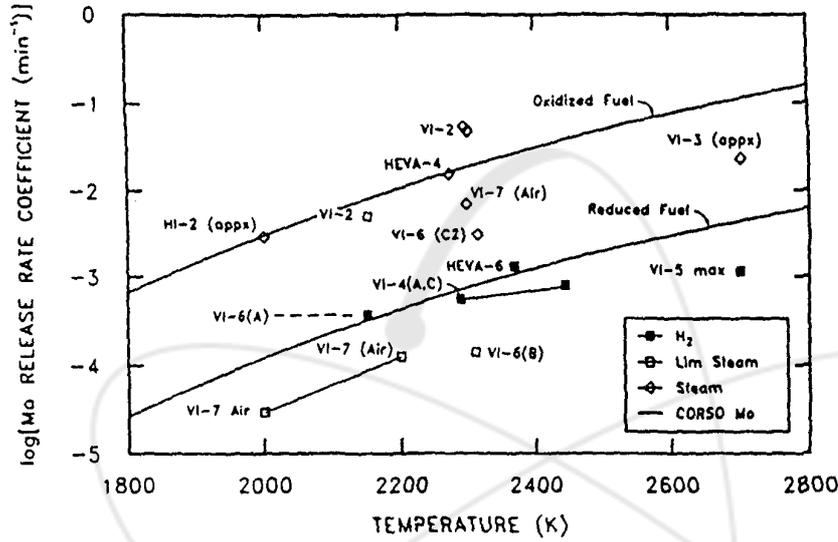


Fig. 2-21. Release rate coefficients for Molybdenum (Mo).

MOLYBDENUM DIFFUSION COEFFICIENTS

Fig. DifOMoOR-CSARP93 3-5-95

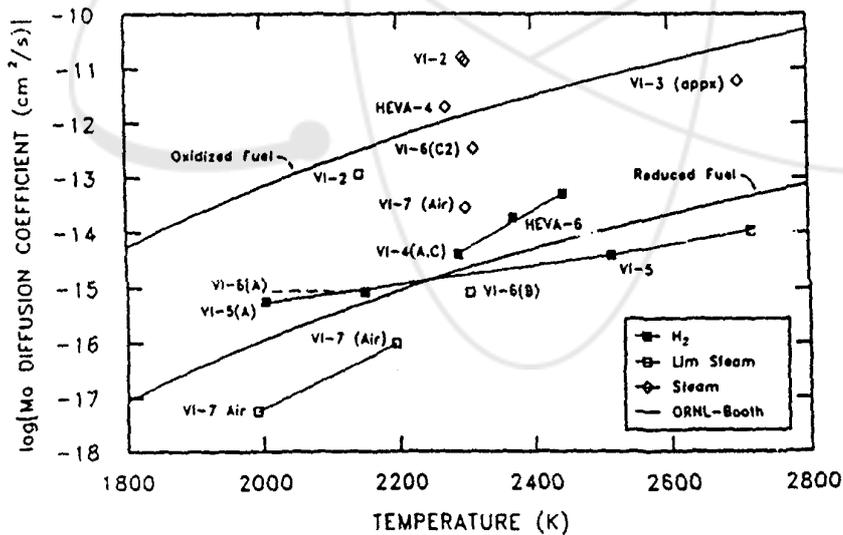


Fig. 2-22. Diffusion rate coefficients for Molybdenum (Mo).

### RUTHENIUM RELEASE RATE COEFFICIENTS

CorsORu-ZrSnRel 3-3-95

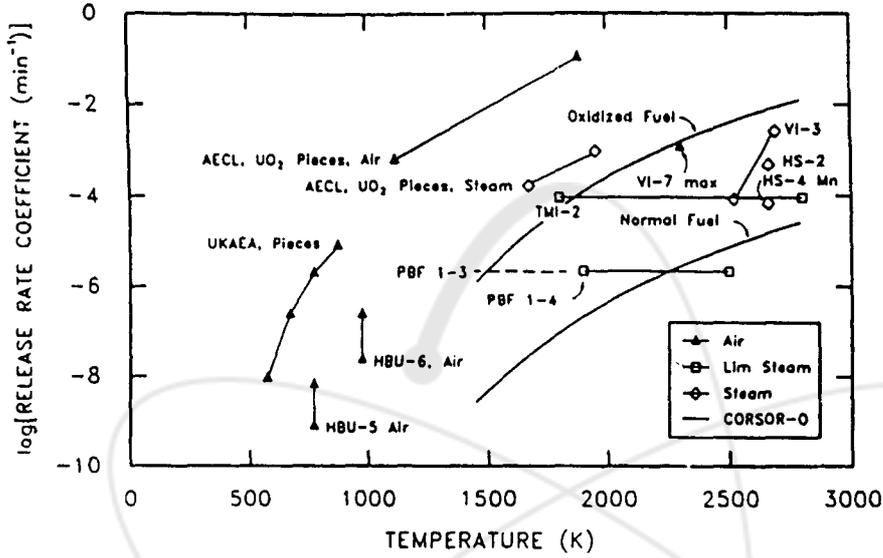


Fig. 2-23. Release rate coefficients for Ruthenium (Ru).

### RUTHENIUM DIFFUSION COEFFICIENTS

DifORu-ZrSnRel 3-3-95

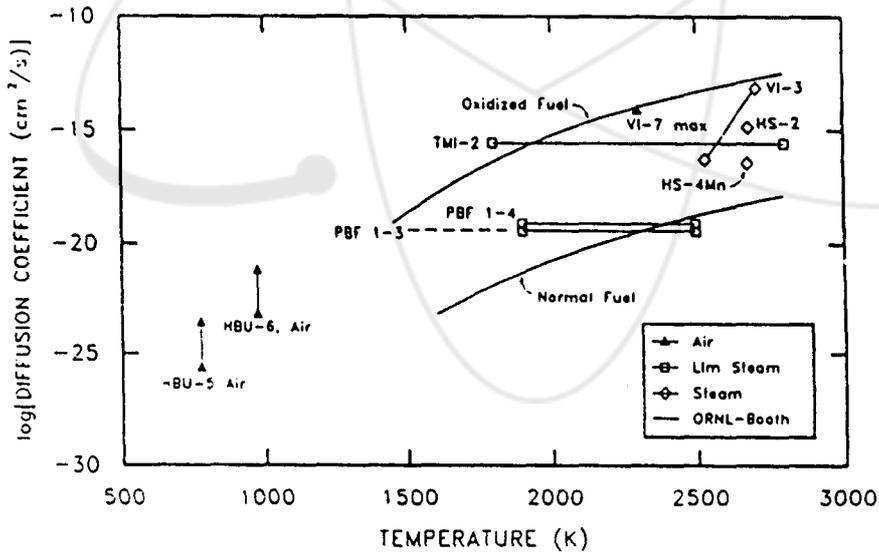


Fig. 2-24. Diffusion rate coefficients for Ruthenium (Ru).

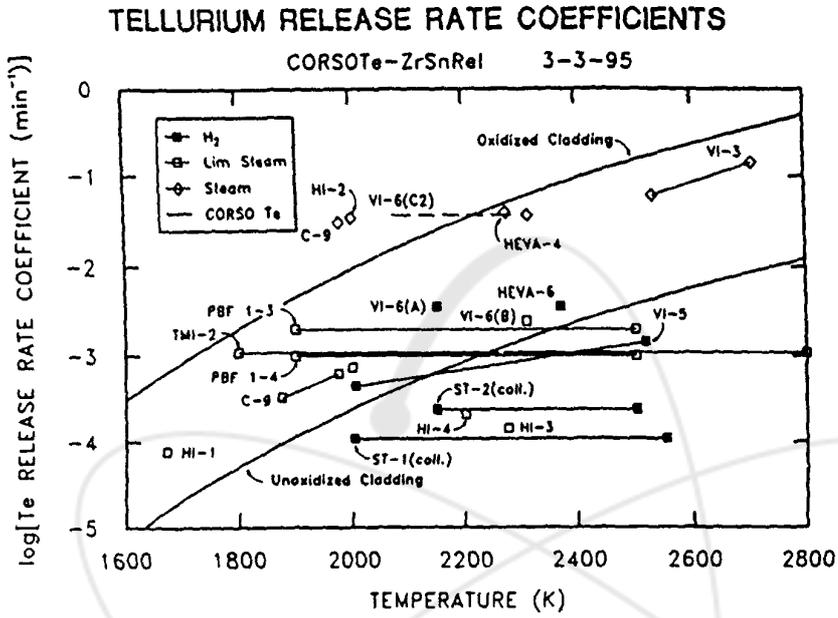


Fig. 2-25. Release rate coefficients for Tellurium (Te).

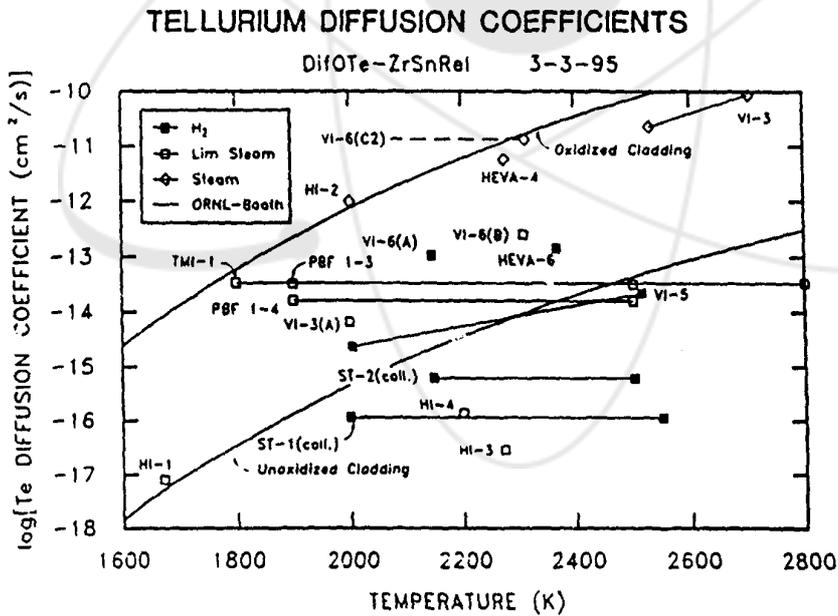


Fig. 2-26. Diffusion rate coefficients for Tellurium (Te).

ANTIMONY RELEASE RATE COEFFICIENTS

Fig. CorsOSb-CSARP93 3-5-95

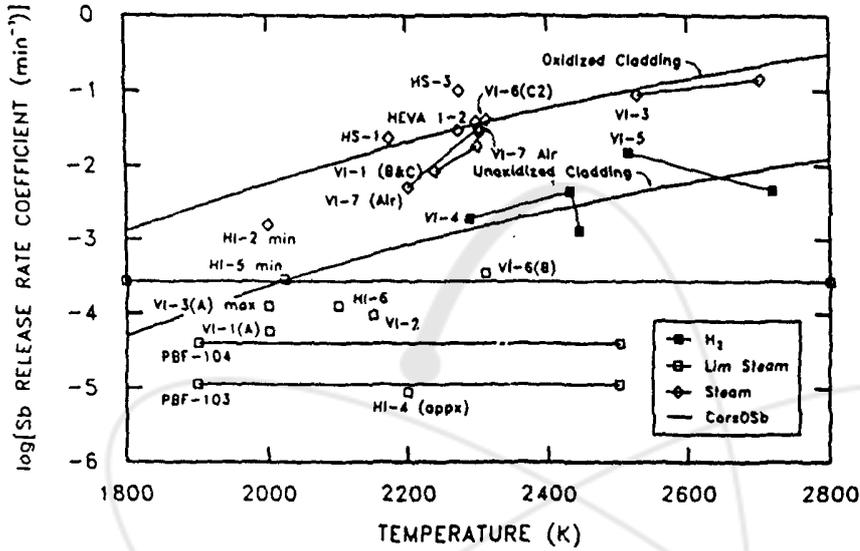


Fig. 2-27. Release rate coefficients for Antimony (Sb).

ANTIMONY DIFFUSION COEFFICIENTS

DifOSb-CSARP93 3-5-95

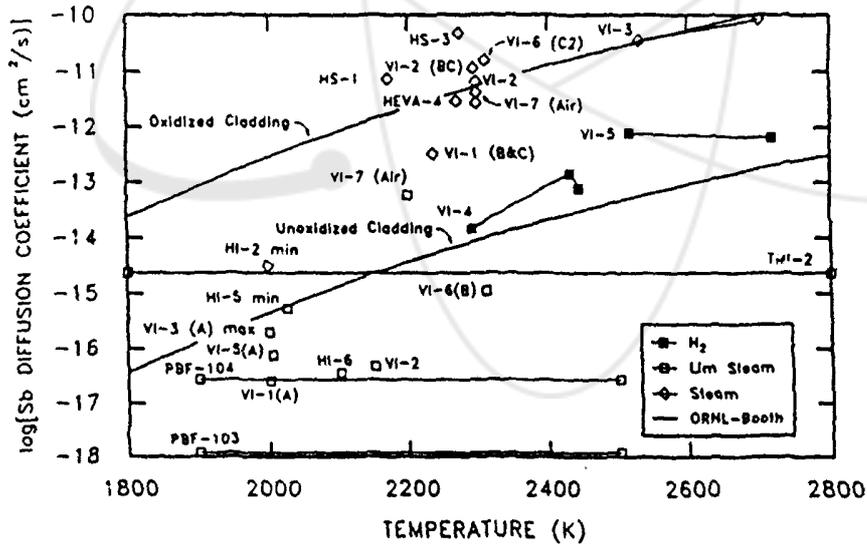


Fig. 2-28. Diffusion rate coefficients for Antimony (Sb).

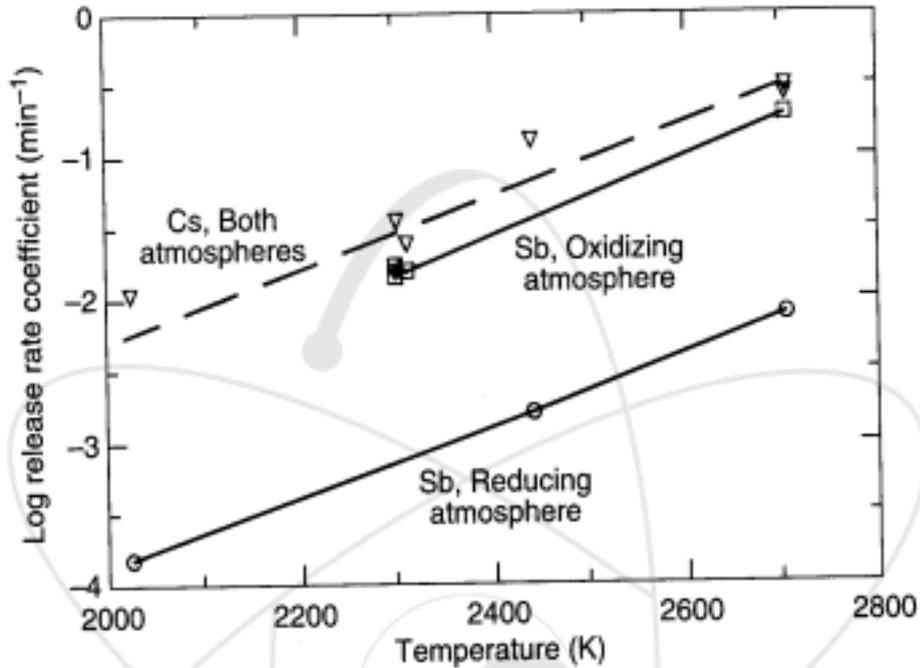


Fig. 2-29. Comparison of measured release rate coefficients for antimony in steam(cladding oxidized) and in hydrogen(cladding not oxidized) ; data for cesium shown for comparison.

## 8. 핵연료 연소도의 영향 해석

연소도는 확산 계수에 영향을 미친다. 중연소도, 고연소도 핵연료를 사용하여 수행한 ORNL 핵분열생성물 방출 특성 시험으로부터 측정된 grain 크기는 Booth와 Rymer 방정식에서의 equivalent sphere size에 해당함을 알 수 있었다. 그러나 저연소도 핵연료를 저온에서 가열한 실험에서는 입계와 edge가 open-pore 구조내에서 고립되어 있기 때문에 이러한 현상을 볼 수 없었다. ORNL에서는 상대적으로 좁은 영역 내의 연소도를 가진 핵연료를 가지고 실험을 수행한 결과 핵분열 생성물 방출 특성에 미치는 연소도의 영향을 충분히 분석할 수 있는 결과를 얻지는 못하였다. 고전적 의미의 확산계수  $D$ 는 연소도 범위에 따라 다음과 같은 식으로 구할 수 있다.

고연소도 범위(38,000~44,000 MWd/MTU)에서는 다음의 상관관계를 나타내며,

$$D = 0.0000763 \times \exp\left[\frac{-74,300}{1.99T}\right]$$

저연소도 범위에서는(10,000~30,000 MWd/MTU) 다음과 같다.

$$D = 0.002 \times \exp\left[\frac{-95,700}{1.99T}\right]$$

## 9. 실험 결과의 상호비교

ORNL 실험결과에서 얻은 자료들은 다른 나라의 핵분열생성물 방출 모델의 개발과 검증을 위해 사용되고 있다. 미국 SNL(Sandia National Lab.)에서 개발한 VICTORIA 코드는 핵분열생성물의 거동에 영향을 미칠 수 있는 화학반응이나 화합물을 광범위하게 제시하고 있다. SNL 이외의 다른 연구소에서도 핵분열생성물의 거동을 해석하기 위하여 ORNL이 개발한 모델을 사용하고 있으며 그 실험 결과가 ORNL 모델 결과와 일반적으로 잘 일치함을 보여주고 있다. FASTGRASS 및 다른 핵분열생성물 방출코드의 개발자인 Rest는 ORNL 결과를 사용하면 FASTGRASS 계산 결과가 잘 일치한다고 보고하였다. 그러나 실험결과와 상호비교는 아주 제한적인 조건하에서 수행되었는데, 이는 대부분의 실험조건이 서로 다르거나, 불확실성이 너무 큰 조건 하에서 얻은 결과들이어서 일관성이 있는 비교작업은 이루어지지 않았다.

사고시 핵분열생성물의 방출에 관하여 ORNL 실험결과와 가장 직접적으로 비교할 수 있는 실험은 프랑스 Grenoble에서 수행한 HEVA program이다. HEVA 실험은 ORNL의 경우보다 더 작은 시편을 사용하고, 단주기 핵종의 측정을 위하여 재조사한 시편을 사용하였다는 점을 제외하고는 ORNL의 VI 계열 실험과 대단히 유사하다. Le Marois와 Warlop은 2,075 ~ 2,275 K의 온도 범위에서 휘발성인 Cs과 I의 방출을 값이 CORSOR 값보다 3배정도 낮게 나타나 ORNL의 실험결과와 매우 잘 일치한다고 보고하였다[13].

## 제 6 절 시험 결과의 종합 분석

ORNL에서는 고온조건에서 핵분열생성물의 방출에 관한 핫셀 시험을 온도, 시간, 기체 분위기, 연소도 등의 변수로 하여 광범위하게 수행하였고, 이들 결과를 이용하여 원자로 사고시 해석을 위한 전산 코드에 적용할 수 있는 대다수의 데이터 베이스를

구축하였다. 특히 ORNL 확산 방출 모델은 핵분열 생성물의 방출을 예측하는데 있어 사용이 간편하고 신뢰성이 높기 때문에 핵분열 생성물 방출 관련 실험에서 휘발성 핵종의 방출속도를 계산하는데 적절한 것으로 보고되었다. 주요 시험결과를 요약하면 다음과 같다.

- LWR 사용후핵연료를 대상으로 1,700~2,700 K의 온도범위에서 휘발성 핵분열생성물들에 대하여 수행한 방출 실험결과, Kr 및 Cs의 방출속도는 대단히 크고 서로간에 유사한 방출거동을 보였다. 특히 2,700 K 부근의 고온에서는 거의 모든 휘발성 핵종이 약 10분만에 전부 방출되었다.
- 다만 알칼리 금속의 경우에는 화학적 반응성이 크기 때문에 수증기 또는 수소분위기 하에서 서로 다른 이동특성을 보여준다. Cs의 경우 환원분위기에서는 주로 응축 가능한 형태로 존재하지만 산화분위기에서는 대부분이 에어로졸 형태로 존재한다. 공기 또는 유기물질에 노출이 되면 halide 원소의 이동특성은 크게 변화되어 안전성 해석에서 매우 중요한 위치를 차지하게 된다. 이 경우 비휘발성인 CsI가 휘발성인 I<sub>2</sub>나 유기요오드와 같은 형태로 바뀔 수 있는 가능성은 중요한 인자로 간주된다.
- 비휘발성인 원소들의 방출은 분위기(수증기 또는 산소)에 민감하였다. Te, Sb의 경우 방출속도가 휘발성 핵종과 비슷한 정도로 보이지만, 이들 핵분열 생성물은 금속 zircaloy에 갇혀있어서 피복관이이 완전 산화될 때까지는 방출되지 않는다.
- 고온(2,700 K)에서의 실험결과로부터 분위기가 비휘발성 원소들의 방출속도에 미치는 영향을 알 수 있었다. 수소분위기 하에서 Eu의 방출율은 수증기분위기에서의 방출율보다 약 1000배정도 크지만, Sb의 방출율은 수증기에서의 방출율의 약1/5정도이다. 이러한 실험결과로부터 핵분열생성물의 방출율이 분위기에 많은 영향을 받는다는 사실을 알 수 있다.
- 수증기분위기 하에서 형성되는 에어로졸 양과 방출되는 총량은 공기분위기 하에서 형성되는 에어로졸 양과 방출되는 총량보다 약 5배정도 높았다. 에어로졸은 순수한 증기보다 상대적으로 잘 움직일 수 있는 형태이므로 그 위험도가 커진다.

## 제 3 장 캐나다 연구 동향

### 제 1 절 개 요

캐나다에서는 고온조건에서 핵분열생성물의 방출거동에 미치는 핵연료의 산화 영향을 주로 평가하였는데, 핵연료의 산화로 인하여  $UO_2$  모체내의 핵분열 기체의 확산도는 증가하는 것으로 나타났으며 산화와 방출 동특성 상관관계를 정립하였다[52,53].

아울러 가압경수로 사용후핵연료는 CANDU(가압중수로)에 재사용하기에 충분한 핵분열성 물질을 가지고 있으므로, 캐나다는 한국 원자력연구소와 공동으로 가압경수로 사용후핵연료를 건식공정을 이용하여 CANDU 원자로에 재사용하기 위한 DUPIC(Direct Use of Spent PWR Fuel In CANDU)프로그램을 수행하고 있다. 이를 위하여 사용후핵연료를 이용한 고품질의 CANDU 핵연료 소결체 제조 시험을 수행하였는데, 모든 공정은 높은 방사능 때문에 차폐된 핫셀내에서 수행되어야 하며 처리과정 중에 유출되는 핵분열생성물들은 감시와 처리가 적절히 이루어져야 하고 이 공정과정에서 발생하는 피복관의 취급도 중요하다.

캐나다 CRNL(Chalk River National Lab.)에서는 DUPIC 공정개발과 관련하여 핵연료 제조과정으로부터 발생하는 핵분열생성물 및 핵분열기체의 방출 특성 시험을 수행하였으며[54~57], 이를 HOX(Hot-Cell OREOX eXperiment)로 명명하였다. HOX 테스트는 1994년부터 시작하여 HOX1 ~ HOX3 시험을 수행하였다. PWR 사용후핵연료로부터 소결성이 우수한  $UO_2$  분말을 제조하기 위하여 OREOX(Oxidation/REduction of OXide fuel)공정을 선택하였다. 3회의 산화/환원 공정동안  $UO_2$ 는  $U_3O_8$ 로 산화되고 다시  $UO_2$ 로의 변화 과정을 겪으며, 산화과정 동안 약 32%의 부피증가가 이루어짐으로서 분말화가 이루어지고, 주기적인 산화-환원 과정을 통해서 미세분말을 얻을 수가 있다. 특히 소결공정보다는 OREOX 공정에서 상당량의 핵분열생성물을 제거하기 위하여 1,100℃에서 annealing 단계를 도입하였다. 아울러 환원단계에서 12%CO/Ar 기체를 사용하여 핵분열 생성물의 방출량을 증대시키기 위한 시험도 HOX-1 시험에서 수행하였다[56].

HOX-1 시험은 1994년 2월~3월의 두 달간 수행되었으며, 여러 온도 및 기체분위기 조건에서 핵분열 생성물의 방출특성 예비 실험, 2가지 유형의 PWR 사용후핵연료

로부터 분말 및 소결체 제조 특성, SEM 분석을 통한 OREOX 처리된 분말의 형상 등을 분석하여 핵분열 생성물의 방출거동과의 상호 연계성 분석을 주안점을 두고 수행하였다.

HOX-2 시험은 1995년 3월과 4월에 수행되었고, 소결성이 우수한 분말 특성 분석에 초점을 두고 OREOX 공정을 보다 상세하게 평가하였으며 여러 가지 OREOX 공정 조건별로 얻은 분말을 이용하여 압분체 및 소결체를 제조하였다. 특히 다양한 OREOX 및 소결공정 조건에서 방출되는 핵분열생성물(특히 Kr과 Cs)의 거동을 평가하였다[11].

본 장에서는 캐나다에서 수행한 DUPIC 핵연료 제조공정으로부터 방출되는 핵분열생성물 거동 특성을 주로 분석한 HOX-1 및 HOX-2의 시험결과를 정리하였다.

## 제 2 절 HOX 시험장치 및 방법

### 1. 사용후핵연료 특성

HOX-1, 2 시험에서는 연소도가 다른 두 가지 종류의 가압경수로(LWR) 사용후핵연료를 사용하였다. 핵연료 A는 초기 U-235 농축도 2.55%, 연소도 28,000 MWD/MTU, 원자로로부터 방출일시는 1974년 5월이며, 핵연료 B는 초기 농축도 3.5%, 연소도 58,000 MWD/MTU, 방출일시는 1988년 2월이었다. HOX-1,2 시험에서는 fragment 형태의 사용후핵연료 시편을 사용하였고, 초기 산화온도와 핵분열 생성물 방출특성에 미치는 핵연료 연소도의 영향을 고찰하기 위하여 두 가지 핵연료 모두 산화실험에 사용하였다. 아울러 HOX-2 실험에서는 DUPIC 핵연료 제조 관점에서 공정 변수의 영향을 분석하기 위하여 핵연료 A만 사용하여 OREOX 공정을 통한 소결체 제조 특성 시험도 병행하여 수행하였다. 사용후핵연료 A 및 B의 ORIGEN 코드 계산에 의한 핵분열생성물 분포 정도를 Table 3-1에 정리하였다. HOX-1 시험에 사용된 사용후핵연료는 냉각기간이 6 ~ 20년(핵연료 A), 7 ~ 21년(핵연료 B)으로서 상당히 길었기 때문에 감마 측정장치를 이용하여 측정 가능한 핵종은 Kr, Cs, Eu (핵연료 A), Kr, Cs, Eu, Rh(핵연료 B)이다.

따라서 HOX-2 시험에서는 OREOX 공정과 소결공정 동안 Ru의 유출특성을 시험하기 위하여 Darlington 발전소에 저장중인 사용후핵연료 시편(약 1g)을 실험 시료에 첨가하여 사용하였다. 본 실험에 사용된 사용후핵연료(K03250Z 다발중 12번 핵연료

봉)는 초기 U-235 농축도 0.71%, 연소도 9,600 MWD/MTU 로서 원자로 방출일시는 1993년 7월이었다.

Table 3-1. Fission product activity per gram UO<sub>2</sub>(0.88 U) in 1995 Feb.

Fuel	A	B
방출일시	1974. 5	1988. 2
주요 핵종		
Cs-134(GBq)	$3.47 \times 10^{-3}$	0.186
Cs-137(GBq)	1.78	4.79
Ru-106(GBq)	$1.05 \times 10^{-5}$	0.186
I-129(GBq)	$9.00 \times 10^{-7}$	$1.88 \times 10^{-6}$
Kr-85(GBq · MeV)	$4.60 \times 10^{-2}$	0.171
Sb-125(GBq)	$2.37 \times 10^{-3}$	0.181
Sr-90(GBq)	1.21	2.66
Y-90(GBq)	1.21	2.66
Te-125m(GBq)	$5.77 \times 10^{-4}$	$2.87 \times 10^{-2}$
Pm-147(GBq)	$1.78 \times 10^{-2}$	0.588
Eu-154(GBq)	$4.79 \times 10^{-2}$	0.441
Eu-155(GBq)	$8.73 \times 10^{-3}$	0.179
Pu-239(g)	$4.85 \times 10^{-3}$	$5.17 \times 10^{-3}$
U-235(g)	$7.83 \times 10^{-3}$	$1.78 \times 10^{-3}$

## 2. 시험 장비

Fig. 3-1은 시험 장비의 전체적인 개략도이다. 핫셀내에 설치된 장비는 가열로, 산소센서, 비상흡입장치, 가스 세정장치, 분말압분 프레스, 수동 유압펌프 등이며, 핫셀 외부에 설치된 장치는 감마 측정장비, 가스 공급장치, 제어판넬, 데이터 수집 시스템 등이다.

### 가. 가열로(Furnace Assembly)

가열로는 OREOX 공정에 의한 UO<sub>2</sub> 분말 제조 및 소결체를 제조하는데 사용된다. 가열로는 수평형 튜브 가열로 형태(SATECTM 6KW, 모델번호 : FH-080-RA- 33-3×12)이고 튜브 직경은 76mm이다. 가열 element는 8-몰리브데늄-2-규소이며 최대 운전온도는 1700℃이다. 알루미늄 재질의 가열로 튜브 양쪽은 O-링을 사용하여 밀봉하였다. 시료 온도 측정을 위하여 R-형 열전대를 시료 가까이에 설치하였으며, 가열

로 유출부에 산소센서를 설치하여 배기가스중의 산소 분압을 측정함으로써 환원공정의 종결 여부를 확인하였다[58].

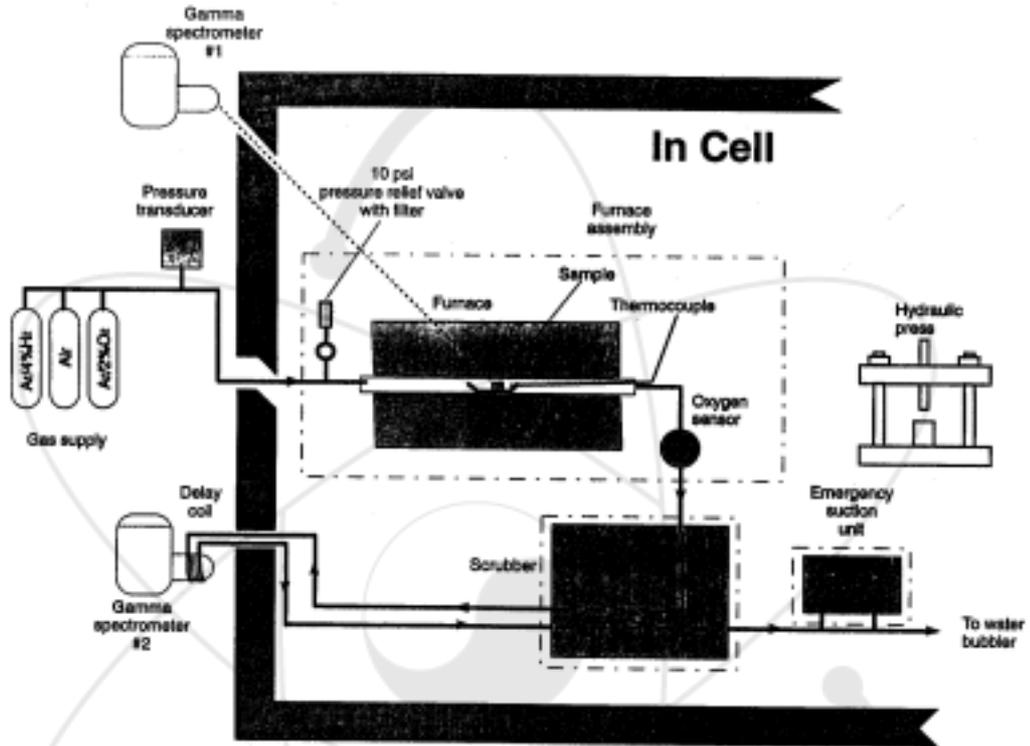


Fig. 3-1. Schematic of equipment setup of the HOX experiments.

사용후핵연료 시편(최대 약 10g 정도)을 산화 알루미늄 접시에 담은 후 가열로 내부로 주입되며, 접시는 반원통 모양으로 길이 14mm, 직경 55mm이다. 최대 9개까지의 알루미늄 접시를 알루미늄 쟁반에 담아 가열로 중간에 투입할 수 있으며, 소결공정에는 압분체를 담기 위해 다른 유형의 알루미늄 접시를 사용하였다.

가열로 튜브 중앙에 위치한 핵연료로부터 약 250mm 공기 흐름 아래쪽으로 Kentucky Stone Ball 점토로 만들어진 두께가 약 20mm 정도의 고다공성 세라믹 필터(WNRE에서 공급)를 고온 유리섬유로 고정하여 설치하였으며 세슘 및 루테튬과 같은 준휘발성 핵분열 생성물을 가열로 튜브 후단에서 포집하여 필터 효율을 측정하였다.

시험 조건에 맞추어 가열로내 분위기 기체(공기, Ar/4%H<sub>2</sub>, 또는 Ar/2%O<sub>2</sub> 등의 기체)를 공급하며 유량은 니들밸브를 사용하여 조절하고 제어판에 설치된 로타미터를 사용하여 유속을 측정하였다.

#### 나. 기체 포집장치 (Gas Scrubber )

가열로로부터 방출되는 핵분열 기체 및 휘발성 핵분열생성물을 포집하기 위하여 기체 포집장치를 설치하였다. 방출된 기체는 먼저 금속, Steel-wool 필터(HOX-1 시험) 또는 붕규산-유리섬유필터(HOX-2 시험)를 통과하며 핵분열 생성물 및 에어로졸 형태의 악티나이드 원소(HOX 시험에서는 방출 가능성이 낮음) 그리고 수증기 등이 제거된다. Kr-85와 같은 불활성 핵분열 기체는 기체 포집장치에 의해 제거되지 않으며 핫셀 외부에 설치된 감마 측정 장비의 delay coil로 방출기체를 공급하여 시간에 따른 Kr-85 방사능을 측정하고 다시 핫셀 내부로 흘러가 활성탄필터, 질량 유속계를 통과한 후 급속 배기시설로 흘러가게 되어 있다. 수평으로 설치된 필터나 공급라인, 밸브등은 포집장치내의 압력을 증가시키지 않고 급속 전환이 가능하게 되어 있으며, 최종적으로 water bubble 발생장치는 포집장치의 끝쪽에 설치되어 시각적으로 기체 흐름을 확인할 수 있다.

#### 다. 비상 흡입장치(Emergency Suction Unit, ESU)

비상 흡입장치는 가열로 튜브가 파손된 경우에 작동하는 안전 장치이다. 이 장치는 압력센서(정밀도 0.01 psi), 격막 펌프(34 L/min 용량), 슬레노이드 밸브로 구성되어 있으며, 만약 가열로내 압력이 설정치 이하로 내려갈 경우에 압력 변환장치에 붙어있는 경보기가 울리며, 일단 장치가 작동되기 시작하면 유입구에서 공급기체 흐름이 차단되고 펌프가 작동하여 기체 포집장치와 가열로 튜브 틈새로부터 방출되는 기체를

흡입하여 핫셀 내부로의 유출을 최소화한다.

## 라. 감마선 분광계(Gamma Spectrometer System)

핫셀 외부에 2 대의 감마 스펙트로미터를 설치하여 핵분열 생성물의 방출정도를 측정한다. 하나는 가열로에 들어있는 핵연료 시료의 핵분열 생성물 함유량을 직접 측정하기 위해 사용되며, Kr-85 불활성기체는 핫셀 외부의 납으로 쌓인 상자 안에 설치된 또 다른 감마 스펙트로미터를 이용하여 측정한다.

감마 스펙트로미터를 이용하여 사용후핵연료 시편내 핵분열 생성물의 방사능을 직접 측정함으로써 Cs, Ru, Eu 등의 방출 정도를 구할 수 있다. 즉 시험전과 시험기간동안 시편 counting 속도를 측정하여 아래 식으로 방출율을 구할 수 있다[59].

$$R = (1 - \frac{I_t}{I_s}) \times 100\%$$

여기서  $I_t$  : 시험기간중 감마선 counting 속도

$I_s$  : 시험전의 동일  $\gamma$ -선 counting 속도(각 핵종별 표준값)

만일  $I_t$  와  $I_s$  값이 같을 경우 해당 핵분열생성물의 방출은 일어나지 않은 것이며,  $I_t$  가 0이면 100% 방출된 것이다.

그러나  $UO_2$  시편의 경우 산화시  $U_3O_8$ 으로 변환되어 분말화가 일어나므로 시편 밀도가 낮아지고 분말의 spreading으로 인한 기하학적 특성 변화가 일어나 감마 스펙트로미터에 노출된 표면적이 커지게 되어 이에 따른  $\gamma$ -선 측정값이 증가하게 된다. 공기중 산화시험시에 이러한 현상이 일어나  $I_t$  가  $I_s$  값보다 커지는 경우가 나타나 “Negative release(방출율 감소)”를 보였다. 이러한 경우 시료의 기하학적 변화를 고려하여야 하는 데 HOX 시험에서는 구체적인 데이터를 구하지 못하였다.

아울러 앞서 언급한 바와 같이 Kr-85 측정을 위하여 delay coil를 사용하였는데 감마 측정 시스템의 기하학적인 특성을 고려하고 표준선원을 사용하여 검출기의 측정 효율을 보정하였으며, 이를 통하여 counting 속도를 방사능(activity)으로 변환하였다. 이 경우 delay coil내 Kr의 counting 속도는 기체 유량과 체류시간에 영향을 받기 때문에 이러한 영향을 고려하여 Kr-85의 방사능을 구하였다.

## 3. 시험 조건

### 가. HOX-1 시험

HOX-1 시험에서 설정한 OREOX 주요 공정 조건 및 시험목적은 다음과 같다.

- 400℃, 공기분위기에서  $UO_2$  산화 :  $U_3O_8$  분말 제조

- 1,400℃, 공기분위기에서 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말이 annealing : 휘발성, 준휘발성 F/P 제거
- 700℃, 4% H<sub>2</sub>/Ar 또는 500℃, 12% CO/Ar분위기에서 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 분말의 UO<sub>2</sub> 로 환원
- 공기중 노출전 100℃이하 CO<sub>2</sub> 분위기에서 UO<sub>2</sub> 분말의 피막처리(Passivation)
- 모든 시험에서 승온 속도 : 6℃/분(원자력연구소 공정의 경우 4℃/분)
- 유량: 대부분의 시험에서 1.0 ℓ/분

사용한 총 시편은 18개로서 핵연료 A의 경우는 16개, 핵연료 B는 2개의 시편을 사용하였으며, Table 3-2에 HOX-1에서 수행한 시험조건을 정리하였다. HOX-1 시험에 사용된 총 시료량은 측정하였으나 각각의 시험에 사용된 시편 양은 정확히 측정하지 않고 각 벡취당 사용된 총 시료 양을 추정하였다. 시험 완료후 Eu의 count량을 측정하여(본 시험 조건에서 Eu은 방출되지 않기 때문) 시료 양의 오차 범위를 구하였다.

#### 4.2. HOX-2 시험

HOX-2의 총 시험 회수는 8회로서, 특히 2가지 유형(OREOX 공정 및 고온 산화실험)의 시험을 주로 실시하였다. OREOX 공정 시험명은 T1, T2, T3, T7로 명명하였고 산화실험은 T5, T6, T8, T9로 명명하여 실시하였다. 각 실험별로 2~3번의 회분식 실험을 실시하였으며 핫셀에서의 실험시간을 단축시키기 위해 일부 시료는 재사용하였고, SEM 분석도 동시에 수행하였다. S1과 S2 실험에서는 핵연료 A와 핵연료 B 피복관의 방사능 정도를 분석하기 위하여 공기 분위기 500~600℃에서 annealing 시험을 실시하였다. T1, T2, T3, T7 실험에서는 유출된 핵분열 생성물을 포집하기 위해 KSB 점토필터를 가열로 안에 설치하여 사용하였으며[60,61], KSB 필터 위쪽과 아래쪽에 열전대를 설치하여 필터 온도를 측정하였고 필터는 실험후에  $\gamma$ 선 분석을 실시하였다. Table 3-3에 HOX-2 시험 조건을 정리하였고, 산화공정 시험 특성은 Table 3-4에 요약하였다. 가열 및 유량 조건은 다음과 같다.

- 산화/환원공정시 가열 속도 : 약 6℃/분
- 공기 : 200 ml/분, 4%H<sub>2</sub>/Ar : 1 ℓ/분
- 피막처리 : 초기 0.5시간(20ml/min), 0.5시간(50ml/분) 최종 1시간(200ml/분)
- 소결공정 : 유량(1.25 ℓ/분), 가열/냉각 속도(240℃/h)

Table 3-2. List of HOX-1 test conditions and sample weights of each batch

시험명	시험조건	최대온도에서 정지시간 (시간)	시료 갯수	시료당 추정 무게	각 벤틀당 추정무게 (g)	SEM 분석
<b>핵연료 A</b>						
HX1	440℃(공기)	4.5	9	10	88.2±13.2	○
HX2	HX1 → 1,320℃(공기)	1.5	7		68.6±10.3	○
HY2	HX2 → 1,300℃(공기) → 1,740℃(공기)	1.5 → 0.5	6		58.8±8.8	○
HXA	400℃(공기)→ 1,400℃(공기)	2.5 → 3.5	6	3	19.7±3.0	
HX4	HX1 → 1,400℃(공기)	4	1		19.6±3.9 (HX5포함)	○
HX5	HY2 → HX4		1		9.8±1.5	
HR1	HXA→ 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar)→ 100℃(CO <sub>2</sub> )	1 → 0.5	3		9.8±0.3	○
HR2	HR1→ 400℃(공기)	1	2		6.6±0.8	○
HRA	HR2→ 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar)→ 100℃(CO <sub>2</sub> )	1 → 0.5	2		6.6±0.8	○
HR3	HRA→400℃(공기)→700℃ (4%H <sub>2</sub> /Ar)→100℃(CO <sub>2</sub> )	1 → 1 → 0.5	1		3.3±0.5	○
HR4	HXA→500℃(12%CO/Ar)→ 100℃(CO <sub>2</sub> )	2 → 0.5	3		9.9±1.3	○
HR5	HR4→400℃(공기)→500℃(12% CO/Ar)→100℃(CO <sub>2</sub> )	1→ 2 → 0.5	2		6.6±0.8	○
HR6	HR5→400℃(공기)→500℃(12% CO/Ar)→100℃(CO <sub>2</sub> )	1→ 2 → 0.5	1		3.3±0.8	○
HR7	1,400℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→1,400℃(공 기)→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→400℃ (공기)	1→ 3→ 1 → 1	2	5	14.8±2.3 (HRB포함)	○
HRB	HR7→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→400℃( 공기)→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→100℃ (CO <sub>2</sub> )	1→ 1 → 1 → 0.5	1		5.0±2.3	○
HR8	HY2→HR7→HRB				9.8±1.5	
<b>핵연료 B</b>						
AR1	400℃(공기)→ 1,400℃(공기)	3 → 4	1	5	5.3±0.4	
ARA	AR1→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→400℃( 공기)→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→400℃ (공기)→700℃(4%H <sub>2</sub> /Ar)→100 ℃(CO <sub>2</sub> )	1→ 1 → 1 → → 1 → 1 →0.5	1		5.3±0.4	○
AR2	400℃(공기)→ 1,400℃(공기)	2.5 → 3	1	5	4.5±0.4	
ARB	AR2→500℃(12%CO/Ar)→400 ℃(공기)→500℃(12%CO/Ar)→ 400℃(공기)→500℃(12%CO/ Ar)→ 100℃(CO <sub>2</sub> )	2→ 1 → 2 → → 1 → 2 →0.5	1		4.5±0.4	○

\* 유량 : 대부분 1.0 ℓ/분

Table 3-3. List of HOX-2 test conditions and sample weights of each batch

시험명	시험조건	시료 갯수	시료당 추정 무게	SEM 분석
<b>Test 1</b>				
○3-Cycles OREOX 시험 수행후 각 조건별 시험 - 350℃(공기), 4.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 2.5 h - 350℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 2 h - 350℃(공기), 2 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 2 h		6	60	
T12	○1-Cycles OREOX 추가 -500℃(공기), 2 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 7 h	2		○
T13	○T12 시료 압분시험 -압력(20/50 ksi)→압분밀도(59.6% TD)→소결전 Broken	1		
T14	○1-Cycles OREOX 추가 -400℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 4 h	1		○
T15	○T14 시료 압분시험 -압력(20/50 ksi)→ Broken	1		
T16 T17	○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ Broken ○Broken 펠렛의 3-Cycles OREOX 추가(T7 시험조건임) -500℃(공기), → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 시간: T7조건 참조 ○압분체 소결 : 1,650℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 1.25 L/min, 5 hr	2		○ (T16B)
<b>Test 2</b>				
○4-Cycles OREOX - 400℃(공기),2.5 h→1,400℃(공기),3 h→700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 3 h - 350℃(공기),11 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 3.5 h - 350℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 3.5 h - 350℃(공기), 3 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 4 h		6	60	
T22 T23	○ 추가 공정 없음	2		
T24	○1-Cycles OREOX 추가 -500℃(공기), 2 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 7 h	2		○
T25	○T24 시료 압분시험 -압력(20/50 ksi)→압분밀도(58.3 TD) -소결:1,650℃(4% H <sub>2</sub> /Ar),1.25 L/min, 5 hr→ 88.1% TD	1		
T26 T27	○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ Broken ○Broken 펠렛의 3-Cycles OREOX 추가(T7 시험조건임) -500℃(공기), → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 시간: T7조건 참조 ○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ Broken	2		○

(계속)

시험명	시험조건	시료 갯수	시료당 추정 무게	SEM 분석
<b>Test 3</b>				
○3-Cycles OREOX 시험 수행후 각 조건별 시험 - 400℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 7.5 h - 400℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 4.8 h - 400℃(공기), 3.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 2 h		6	60	
T35 T36	○1-Cycles OREOX 추가 -500℃(공기), 2 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 7 h ○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ Broken	2		○ (T36)
T33 T34	○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ Broken	2		
T31 T32	○시험 실패	1		○
<b>Test 7(KAERI에서 수행한 자격화시험과 유사)</b>				
○3-Cycles OREOX - 500℃(공기), 2.7 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 5.8 h - 500℃(공기), 11.5 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 5 h - 500℃(공기), 2.3 h → 700℃(4% H <sub>2</sub> /Ar), 4.8 h		5 (R)*	50	
T71	○압분시험: 압력(25/60 ksi)→ 압분밀도(59.2% TD)	1 (R)		
T72 T73	○압분시험: 압력(15/40 ksi)→ 압분밀도(57.2% TD)	2		○
T74 T75	○압분시험: 압력(20/50 ksi)→ 압분밀도(60.3% TD)	2		
소결 공정**	○소결 : 1,650℃(4% H <sub>2</sub> /Ar),1.25 L/min, 5 hr ○소결체 밀도 - T71 : 86.1 %(침적밀도) - T72, T3 : 73.8% (기하학적 밀도) - T74, T75 : 86.0% (침적밀도)	2		○

(주) \* R : T16, T17, T26, T27 파손된 펠렛 Recycle

\*\* 필터부근의 가열로 튜브 깨짐, 재소결함

Table 3-4. Oxidation conditions of HOX-2 test

시험명	시험조건	시료 갯수	시료당 추정 무게	SEM 분석
T8	○400℃(공기), 2 h : 핵연료 A(T82), B(T81)	2	10	
T5	○500℃(공기), 2 h : 핵연료 A(T52), B(T51)	2	10	
T6	○600℃(공기), 2 h : 핵연료 A(T62), B(T61)	2	10	
T9	○700℃(공기), 2 h : 핵연료 A(T82), B(T91)	2	10	

핵연료 A와 B의 피복관 annealing 실험(S1과 S2)은 공기분위기에서 수행하였으며, 온도는 각각 500℃와 600℃ 이었다. 실험에 사용된 피복관의 길이는 50mm로서 annealing은 1시간동안 실시하였고, 실험 전·후에 대하여  $\gamma$ -선 방사능을 측정하였다. 아울러 가열로 튜브와 필터를 OREOX와 소결공정 후 튜브와 필터의 길이 축 방향으로의 방사능 분포 측정을 위하여  $\gamma$ -선 분석을 실시하였다. 튜브와 필터를 프로그램 가능한 이동식 테이블 위에 올려놓고 100×6mm<sup>2</sup>의 slot을 가진 납으로 된 collimator를 통해서 방사능을 측정하였다. 특히 가열로내 필터를 설치한 실험에서는 필터를 포함한 튜브의 방사능을 측정한 후, 필터를 튜브에서 제거한 다음 다시 튜브만의 방사능을 측정하였다. HOX-2 시험에서는  $\gamma$ -선 분석을 실시한 7개월 후인 1996년 12월에 필터를 가로축으로 2~3층으로 자른 후 각 층별로 양쪽 표면에 대한  $\gamma$ 선 분석을 실시하였고, 이 경우 방사능 정도가 낮은 것을 보완하기 위해 5cm 두께의 납으로 된 직경 2cm의 구멍을 가진 collimator를 사용하였다. 방사능 활성도에 따라 필터와  $\gamma$ -spectrometer와의 거리를 76 cm~226 cm로 다르게 위치시켰고 측정된 방사능 계수율은 Bq 단위로 환산하였다.

### 제 3 절 주요 시험 결과 분석

HOX-1 시험은 다양한 제조 조건에서 분말의 형상 및 사용후핵연료로부터 핵분열 기체 및 핵분열 생성물의 방출 거동에 관한 예비 시험에 주안점을 두었으며, HOX-2 시험은 DUPIC 핵연료 제조 관점에 주 목적을 두고 중점적으로 실험을 수행하였고 여러 시험 조건에서 핵분열 기체 및 핵분열 생성물의 제거특성 평가시험

도 병행하였다. 한국원자력연구소는 2000 ~ 2002년도 초반까지 IMEF M6 핫셀에서 사용후핵연료를 이용한 DUPIC 핵연료 제조공정 시험을 다양하게 수행하였으며 이를 바탕으로 DUPIC 핵연료 제조공정 조건을 최적화하였다. HOX 시험조건과 KAERI에서 설정한 최적 제조조건과 비교하여 보면, HOX-2 시험중 Test-7이 KAERI 제조조건과 가장 유사하다고 볼 수 있다.

## 1. HOX-1 시험

HOX-1 시험에서 측정된 핵분열 생성물은 Kr, Cs, Eu 및 Ru(핵연료 B에서만 측정됨)이었다. 캐나다에서는 사용후핵연료 입계(grain boundary)에 존재하는 핵분열 생성물 존재 정도를 분석하기 위하여 다양한 시험을 수행하였는데[53,62], HOX-1 시험결과를 종합적으로 분석한 결과 지금까지 수행한 핵분열 생성물의 방출 특성에 미치는  $UO_2$  산화의 영향 시험 결과와 유사하였다[63,64].

### 가. Kr 방출 특성

Table 3-2에 제시된 시험조건에서 얻은 Kr 방출 결과를 Table 3-5에 정리하였다. 여기서 ORIGEM 코드 결과로부터 얻은 inventory를 기준으로 구한 방출분율(% of inventory)가 100을 넘는 경우는 시료의 무게와 ORIGEN 코드의 계산결과에 의한 영향으로 볼 수 있다. 주요 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 핵연료 A와 B로부터 Kr의 방출 동역학적 특성은 비슷하지만 방출량은 연소도의 영향으로 차이를 보였다.
- 공기중에서 Kr의 방출이 시작되는 온도는 약  $400^{\circ}C$ 이고 온도가 증가할수록 ( $1,320^{\circ}C$ 에서  $1,400^{\circ}C$ ) 추가로 방출이 일어났다.
- 핵연료 A의 경우(연소도 28,000 MWD/MTU)  $400^{\circ}C$ 에서 총 방출율은 약 3.5%였으나(Fig. 3-2 : HXA 시험), 핵연료 B(연소도 58,000 MWD/MTU)의 경우는 27~28%였다(Fig. 3-3 : AR1 시험). 이는 핵연료의 연소도가 증가함에 따라 입계 내에 핵분열기체인 Kr-85의 존재량이 증가하기 때문이다.
- 기체 분위기에 따른 영향으로서 특히 HR7 시험에서  $1,400^{\circ}C$ , 4% $H_2/Ar$  분위기에서 Kr의 방출은 없었지만 공기를 공급하여 계속 가열할 경우 방출량은 증가하였다. 그러나 Kr의 방출 특성이 기체 분위기에 의존하는 것 보다 기체 종류별에 따라 핵연료의 산화가 큰 영향을 받기 때문에 나타난 현상으로 생각된다.

Table 3-5. Summary of Kr release in HOX-1 tests

시험명	전처리	시험조건	추정 시료양(g)	계산된 Inventory (mCi)	방출량 (mCi)	방출분율 (% of inventory)
HX1	None	440℃, 공기	88.2±13.2	167.6	9.35	5.6
HX2	HX1	1,320℃, 공기	68.6±10.3	130.3	141.7	109
HX4	HX1	1400℃, 공기	9.9±5.4	18.8	19.9	106
HXA	None	400℃, 공기	19.7±3.0	37.4	1.6	4.3
		1400℃, 공기			44.3	118
HR1	HXA	700℃, 4%H <sub>2</sub> /Ar	9.8±0.3	18.6	0.09	0.5
HR7	None	1,400℃, 4%H <sub>2</sub> /Ar	5.0±4.8	9.5	0.0	0.0
		1400℃, 공기			12.8	13.5
AR1	"	400℃, 공기	5.3±0.4	38.1	14.2	37
		1400℃, 공기			44.6	117
AR2	"	400℃, 공기	4.5±0.4	32.4	8.3	26
		1400℃, 공기			22.3	69

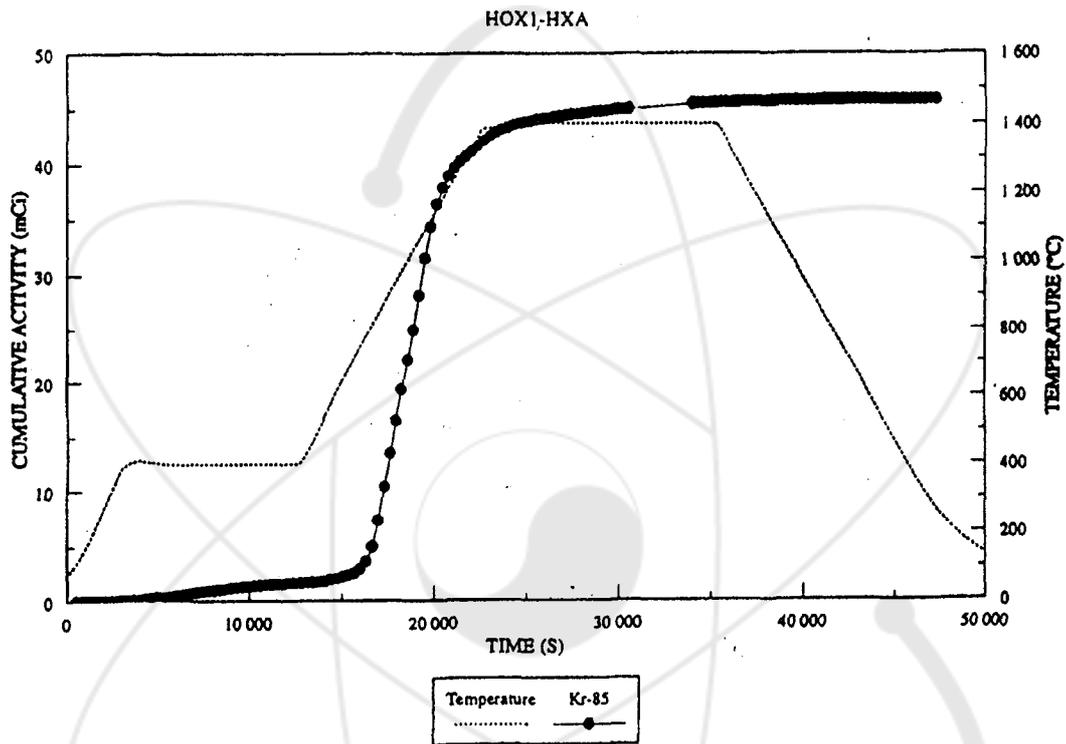


Fig. 3-2. Cumulative Kr-85 release in test HXA(UO<sub>2</sub> fragments from fuel A).  
 Temp. history : heated in 4%H<sub>2</sub>/Ar to 400°C → exposed to air →  
 heated to 1,400°C. A correction for transition time was applied.

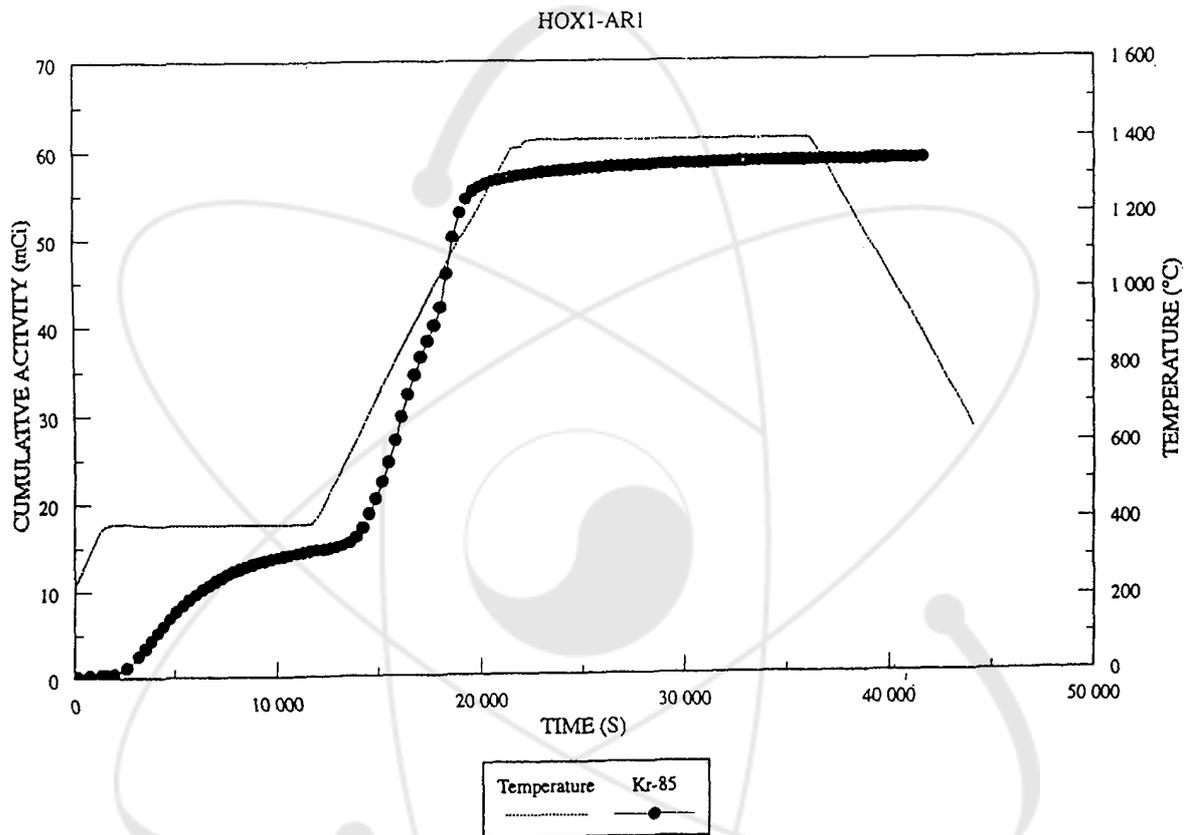


Fig. 3-3. Cumulative Kr-85 release in test AR1(UO<sub>2</sub> fragments from fuel B).  
 Temp. history : heated in air to 400°C and 1,400°C. A correction for transition time was applied.

## 나. Cs 방출 특성

세슘의 경우 700°C 이하의 시험 조건에서는 핵연료로부터 방출이 일어나지 않았으며, 1,320°C ~ 1,400°C의 공기분위기에서  $U_3O_8$ 을 가열할 경우 방출되었으며, Cs가 방출된 시험 조건에서의 결과를 Table 3-6에 정리하였다. 주요 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 핵연료 A의 경우 800~ 820°C의 온도범위에서 방출이 시작되었지만 핵연료 B의 경우는 방출이 시작되는 온도 범위는 710~ 750°C였다.
- 1,400°C, 공기분위기에서 약 200~ 230분 경과후 방출된 Cs의 총 양은 inventory를 기준으로 약 97~98%였으며, 핵연료의 종류에 무관하게 나타났다(Fig. 3-4, 3-5 참조). Fig. 3-4에 방출율이 "0" 이하로 떨어진 것은 앞서 설명한 바와 같이 산화에 의한 시료의 기하학적 형태가 분말로 변하여 counting 속도가 증가하였기 때문이다.
- 온도변화에 따른 영향을 보면, 핵연료 A의 경우 최대 온도가 1,320°C에서(HX2) 약 92분 경과후 Cs의 방출율은 72%정도 였으나 1,400°C에서(HX4)에서는 84%로 증가하였다.
- 핵연료 A 시편(fragment)을 4% $H_2$ /Ar 분위기에서 1,400°C까지 가열하고 15 분간 유지할 경우 Cs의 방출이 없었지만 공기로 기체를 전환시킬 경우에는 150 분후 Cs의 방출율은 약 96%로 크게 증가하였다(HR7 시험 : Fig. 3-6 참조). 이는 Kr의 경우와 마찬가지로 현상으로 해석되며 KAERI에서 수행한 핵연료 제조공정시 Cs의 방출거동과는 차이를 보였다.

Table 3-6. Summary of Cs release in HOX-1 tests

시험명	전처리	시험조건	방출분율 (%)	비고
HX1	None	440℃, 공기	Negative*	-400℃, 17분후 나타남
HX2	HX1	1,320℃, 공기	76	-800℃ 도달후 방출 시작됨 -1,320℃, 92분후 방출율
HX4	HX1	1,400℃, 공기	97	-820℃ 도달후 방출 시작됨 -1,420℃, 233분후 방출율
HXA	None	400℃, 공기	Negative*	-400℃, 40분후 나타남
		1400℃, 공기	98	-800℃ 도달후 방출 시작됨 -1,400℃, 217분후 방출율
HR7	None	1,400℃, 4%H <sub>2</sub> /Ar	Not detected	-1,400℃, 15분후까지 측정
		1400℃, 공기	96	-1,400℃, 150분후 방출율
		700℃, 4%H <sub>2</sub> /Ar 400℃, 공기	Not detected	
AR1	None	400℃, 공기	Not detected	-400℃, 172분후까지 측정
		1400℃, 공기	97	-1,400℃, 233분후 방출율
AR2	None	400℃, 공기	Not detected	-400℃, 170분까지 측정
		1400℃, 공기	98	-1,400℃, 200분후 방출율

\* Negative : 시료의 기하학적 특성 변화(분말화)로 counting수 증가

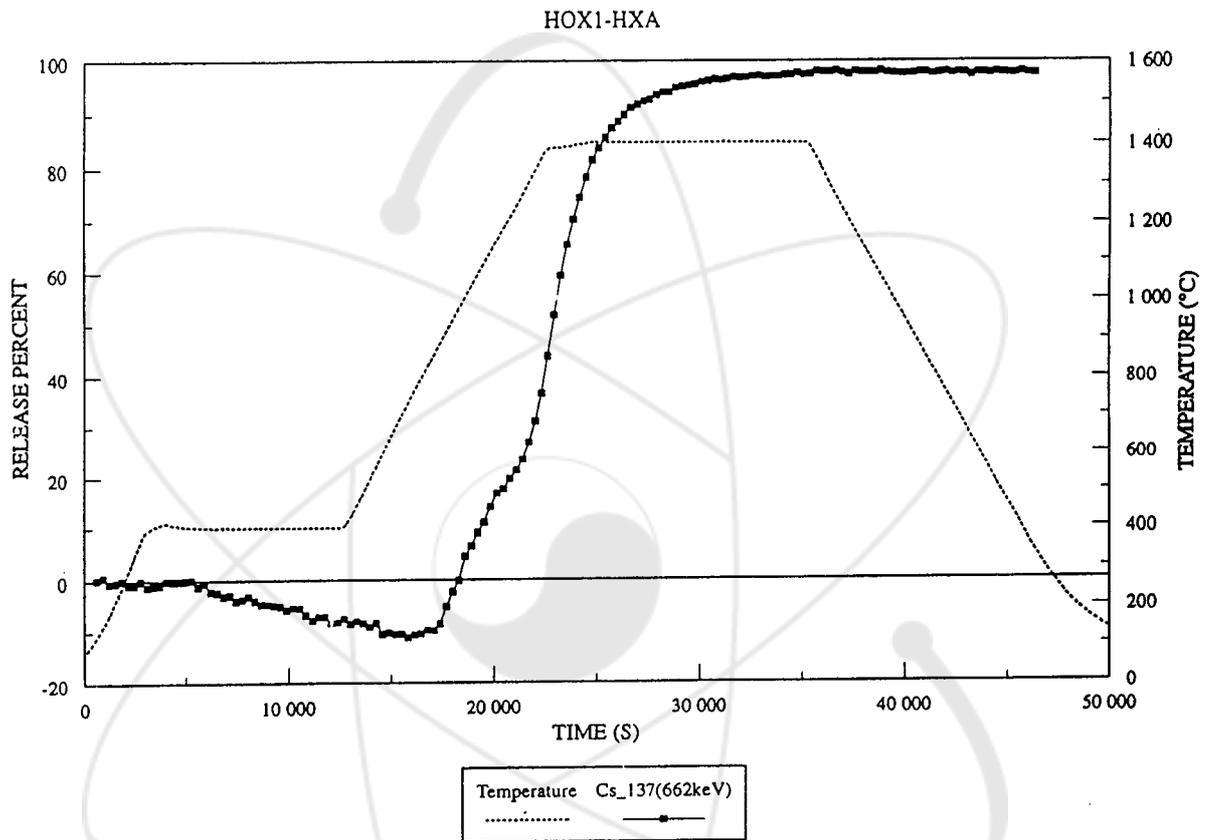


Fig. 3-4. Cesium release in test HXA(UO<sub>2</sub> fragments from fuel A).  
 Temp. history : heated in 4%H<sub>2</sub>/Ar to 400°C → exposed to air → heated to 1,400°C.

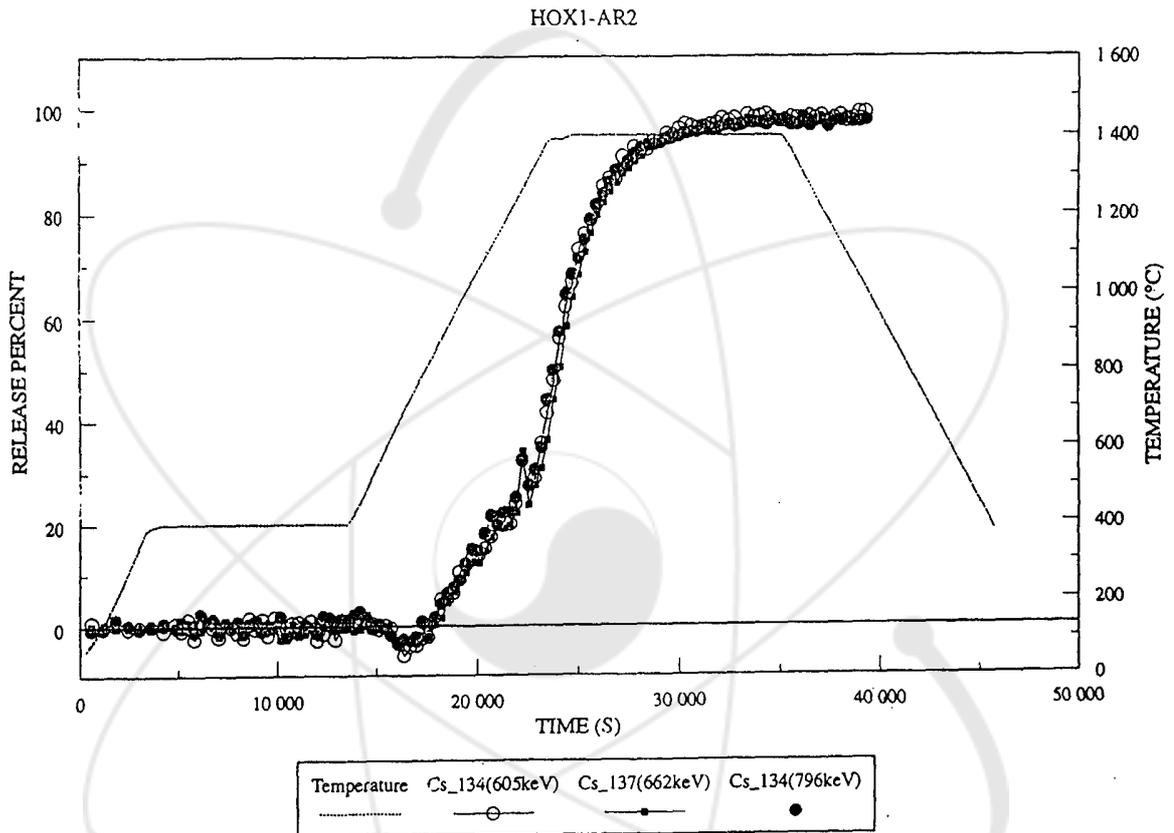


Fig. 3-5. Cesium release in test AR1(UO<sub>2</sub> fragments from fuel B).

Temp. history : heated in air to 400°C and 1,400°C.

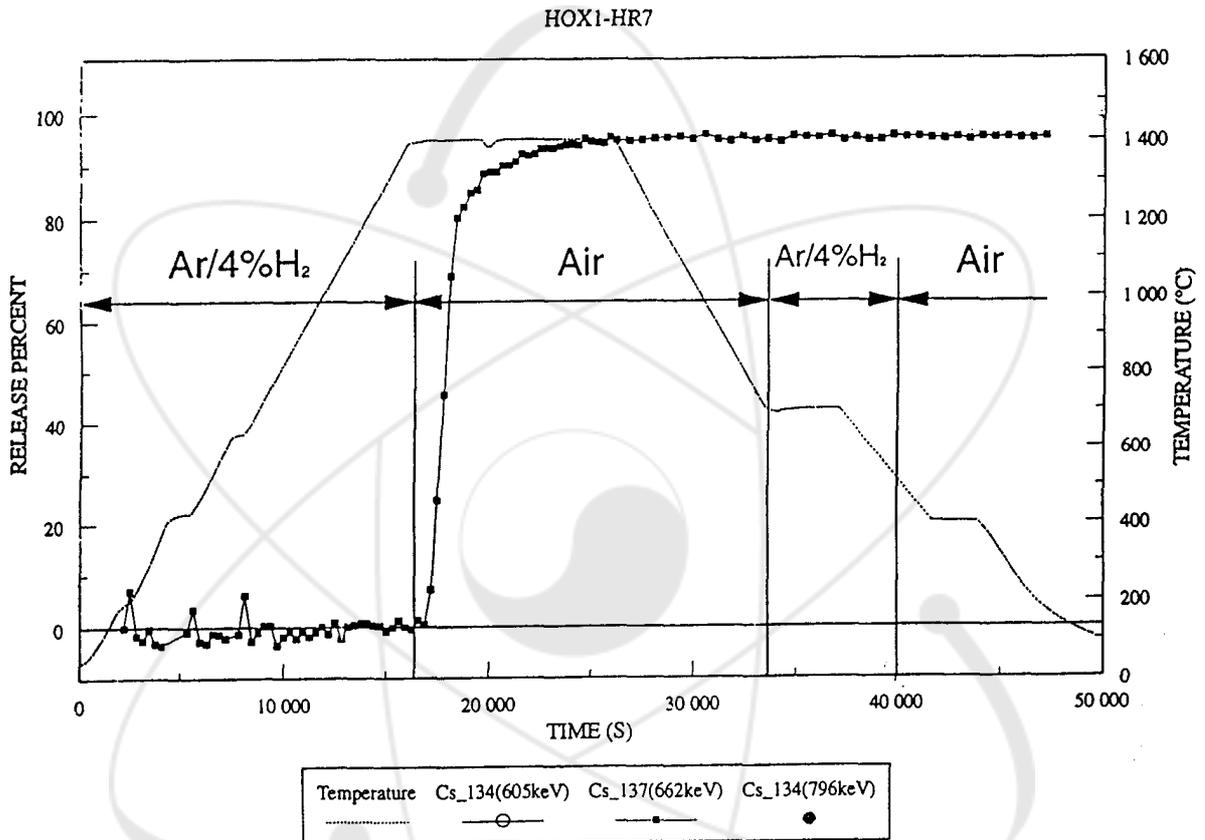


Fig. 3-6. Cesium release in test HR7(UO<sub>2</sub> fragments from fuel A).

Temp. history : heated in 4% $H_2$ /Ar to 1,400°C → exposed to air → reduced in 4% $H_2$ /Ar at 700°C → oxidized in air to 400°C.

#### 다. 시험후 핵연료내 핵분열생성물 방사능 측정

여러 시험조건에서 핵분열생성물의 방출량을 확인하기 위하여 시험 완료후 핵연료내 각 핵종의 방사능을 측정하였다.

- 1,740°C에서 핵연료 A U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 시편의 annealing 후(HX2, HY2 시험) 핵연료내 잔류 Cs의 양을 측정한 결과, 잔류 방사능은 각각 18.8±0.04 mCi/g(HX2), 0.22±0.04 mCi/g(HY2)이었다. HX2 시험으로부터 Cs의 방출율은 76%으로 잔류량은 24%가 되어 초기 inventory와 비교하여 12 mCi (50mCi×0.24) 정도이지만 측정값이 약간 높게 나타났으며 이는 시료의 기하학적인 변화 영향인 것으로 판단된다.
- Ru은 반감기가 짧아 핵연료 B의 경우에만 측정하였는 데, Rh-106(Ru-106의 decay daughter로서 반감기 29.9 s)의 방사능은 낮게 나타났다. 그러나 1,400°C, 공기중에서 가열할 경우 Ru은 900°C 이상의 온도에서 매우 빠르게 방출되어 (AR1 및 AR2 시험) 100% 가까이 도달하였다.
- Eu의 방출은 모든 시험에서 나타나지 않았다.

#### 라. HOX-1 시험 종합분석

연소도가 다른 두 종류의 LWR 사용후핵연료(핵연료 A : 31,750 MWD/MTU, 핵연료 B : 57,292 MWD/MTU)를 이용한 DUPIC 핵연료 제조 공정중 OREOX 및 소결공정으로부터 핵분열생성물 방출 특성 예비시험을 수행하였으며, 주요 결과는 다음과 같다.

- Kr의 방출특성은 핵연료의 연소도에 따라 큰 차이가 나지는 않았지만 400°C에서 방출량은 A의 경우 약 3.5%, B는 25 ~ 27% 정도였다. Kr은 공기중에서 400°C 정도부터 방출되기 시작하였으며, 연소도가 낮은 핵연료 A의 경우 4%H<sub>2</sub>/Ar 분위기에서 1,400°C로 가열할 경우에도 Kr이 방출되지 않았지만 공기중에서 가열할 경우는 방출량이 크게 증가하였다.
- Cs 방출은 핵연료 A의 경우 800~820°C, 핵연료 B의 경우는 약간 낮은 710 ~ 750°C 온도 범위에서 방출되기 시작하였으며, 공기분위기에서 최대온도 1,320°C로 약 1.5시간 가열할 경우 총 방출량은 약 76%였지만 1,400°C로 최대 3.8시간정도 가열하였을 경우 총 방출량은 97 ~ 98% 였다. 그러나 4%H<sub>2</sub>/Ar 분위기에서 1,400°C로 가열할 경우에도 Cs은 방출되지 않았지만 공기중에서는 방출속도가 크게 증가하여 2.5시간후 최대 방출량은 96%정도 였다.
- Ru의 경우 공기중에서 900°C이상으로 가열할 경우 방출이 일어났으며, 방출속도는 매우 빨랐고 방출량은 100%에 접근하였다. 그러나 Eu의 방출은 모든 시험조

건에서 감지되지 않았다.

- 공기중에서  $UO_2$ 를 산화시킬 경우  $U_3O_8$ 으로의 상 변화에 의한 분말화가 일어나며 이에 따라 측정시료의 기하학적 특성이 초기와 비교하여 크게 변화하게 된다. 즉 온도가 증가함에 따라 핵분열생성물이 방출됨으로 시료의 방사능은 시간이 지남에 따라 감소해야 하지만 상기의 원인으로 인하여 counting 속도가 증가하였다 (apparent negative release). 핵연료 A는  $400^{\circ}C$  부근에서 이러한 현상이 나타났고 핵연료 B는  $550^{\circ}C$ 에 도달할 때 까지 counting 속도의 증가는 일어나지 않았다.

#### 마. 핵연료 제조 관련 추가 시험내용

HOX-1 시험은 DUPIC 핵연료 제조 공정 조건을 설정하기 위하여 여러 운전 조건(OREOX 및 소결공정)으로부터 핵분열생성물 방출 특성 및 분말 특성을 분석하였다. 따라서 HOX-2에서 보다 정밀한 시험을 수행하기 위하여 다음과 같은 추가 시험 항목을 설정하였다.

- SIMFUEL을 이용하여 OREOX 공정에 의하여 제조된 핵연료는 만족할만한 결과를 얻었지만 실제 사용후핵연료의 경우는 분말 특성이 다르게 나타났다. 따라서 고온에서의 annealing의 영향을 중심으로 OREOX 공정 개선 시험을 수행하여야 한다.
- HOX-1 시험에서는 핵분열생성물 방출 거동과 핵연료 제조 특성과의 상호 연관성을 설정하기 힘들었다. 핵연료 제조관점에서만 OREOX 공정을 설정할 경우 Cs 및 휘발성 핵분열생성물의 방출율이 감소될 수 있으며, 핵분열생성물의 제거율도 높고 소결성이 우수한 분말 및 핵연료 제조를 위한 OREOX 및 소결공정을 설정하여야 한다.
- 밀링공정과 같은 추가 제조공정을 설정하여 시험하여야 한다,

## 2. HOX-2 시험

핵분열 생성물의 방출 특성 및 제조 특성 시험을 위하여 핵연료 A만을 사용하여 수행하였고, 핵분열생성물 방출 특성에 미치는 산화의 영향과 연소도의 영향을 분석하기 위하여 핵연료 B만을 사용하였다. 아울러 가열로 튜브와 필터, 피복관의 감마 방사능 측정도 병행하였다.

### 가. OREOX 및 소결공정중 핵분열생성물 방출 특성

핵분열생성물 방출 특성과 관련하여 얻은 주요 결과를 요약하면 다음과 같다.

- Test 7 : 350℃ 공기분위기에서의 산화 및 700℃, Ar/4%H<sub>2</sub> 분위기에서의 환원공정 동안 Kr-85만 방출되었으며, Cs, Eu 및 Ru 등은 방출되지 않았다. 한국원자력연구소에서 수행한 DUPIC 핵연료 제조를 위한 자격화 시험조건과 유사한 Test 7 시험 조건중 OREOX 공정 동안 Kr의 방출 동역학 결과를 Fig. 3-7과 3-8에 제시하였다. Kr은 각각의 산화-환원단계별로 모두 방출되었으나 대부분의 Kr 유출은 첫 번째의 산화-환원 과정에서 나타났다. Test 7-OREOX 공정에서 Kr 유출이 첫 번째 산화과정에서 Kr의 방출율은 약 21%이었고, 첫 번째 환원단계에서 약 68%의 방출이 나타났다(Fig. 3-7). 2번째와 3번째의 산화-환원 단계에서 방출량은 총 방출량을 기준으로 약 11%정도였다.
- Test 2 : 많은 양의 핵분열 생성물을 방출시키기 위하여 400℃에서 산화시킨 후 1400℃까지 가열하였다(Fig. 3-9). 이 과정에서 가열로 튜브가 1400℃에 도달한지 1,500초 후에 파열되었으며 파열이 일어난 직후 공급기체를 Ar/4%H<sub>2</sub>로 전환되었고 ESU 장치가 작동되어 핵분열생성물의 핫셀내로 확산을 감소시켰다. 가열로 튜브를 교체한 후 실험을 계속 진행시키며 방출시험을 수행한 결과, Fig. 3-10에 나타난 바와 같이 고온 산화과정동안 Kr은 91%가 방출되었고(이 값은 가열로 튜브가 파열된 경우에 방출된 약간의 Kr을 포함한 결과), 2번째와 3번째의 산화-환원 과정 중에는 약 0.4%에 불과한 매우 적은 양의 Kr이 방출되었다. Cs의 경우 약 55%가 고온산화-환원 과정에서 방출되었다(Fig. 3-11 참조).
- 소결공정 : 소결중에 Kr의 방출은 거의 없었으며 이는 OREOX 공정중에 대부분의 Kr이 방출되었기 때문이다. Cs는 소결온도가 1200℃에 도달했을 때 방출되기 시작하였으며, 총 방출량은 시험전 초기 측정값과 비교하여 약 55~65% 정도였다.(Fig. 3-12). 소결공정중에 Eu의 방출이 일어난 것으로 측정되었지만 이는 시료의 기하학적인 변화에 기인하는 것으로 판단되며, 이전의 수행한 동일 조건의 CRL 실험에서는 Eu은 방출되지 않았고[65] 또한 가열로 튜브와 필터의  $\gamma$ 선 측정에서도 관찰되지 않았다. 따라서 Cs의 방출 특성도 시료의 기하학적 변화에 영향을 받은 것으로 판단되며, 실제 방출율은 Fig. 3-12에 제시한 값보다 더 낮아질 것이다.

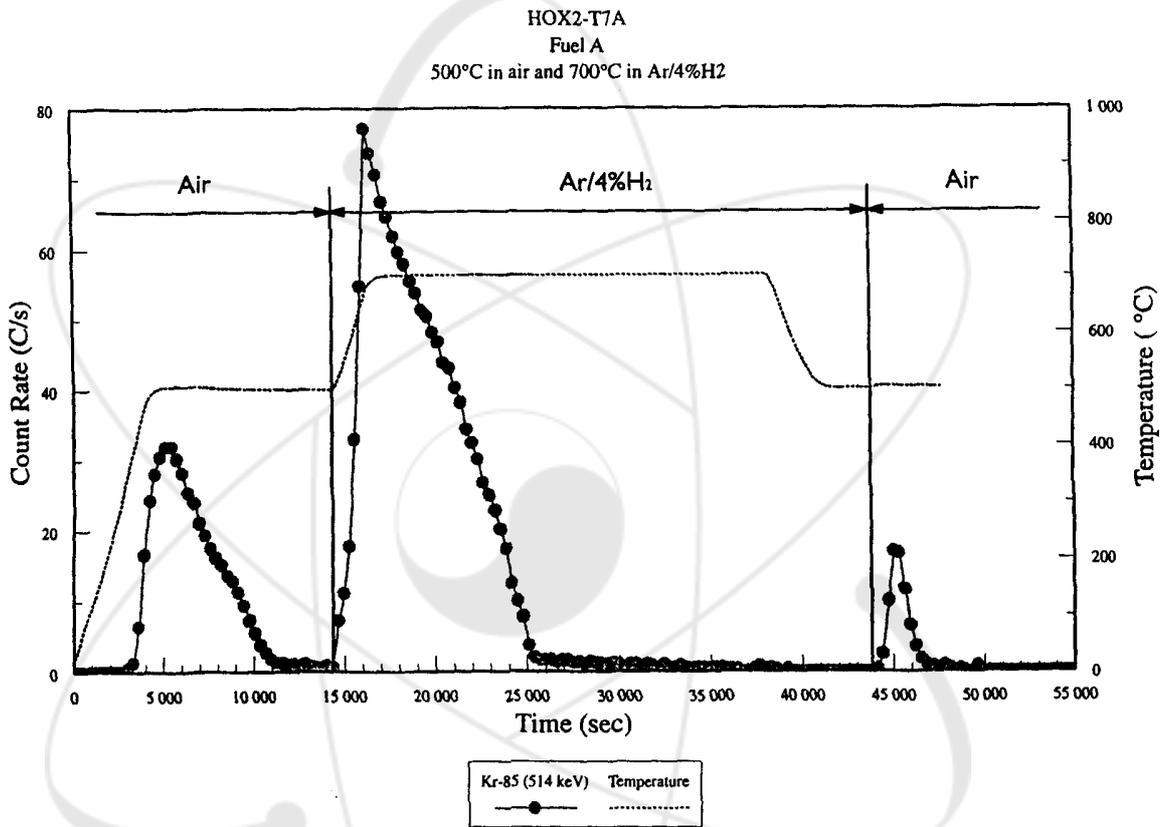


Fig. 3-7. Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T7A.

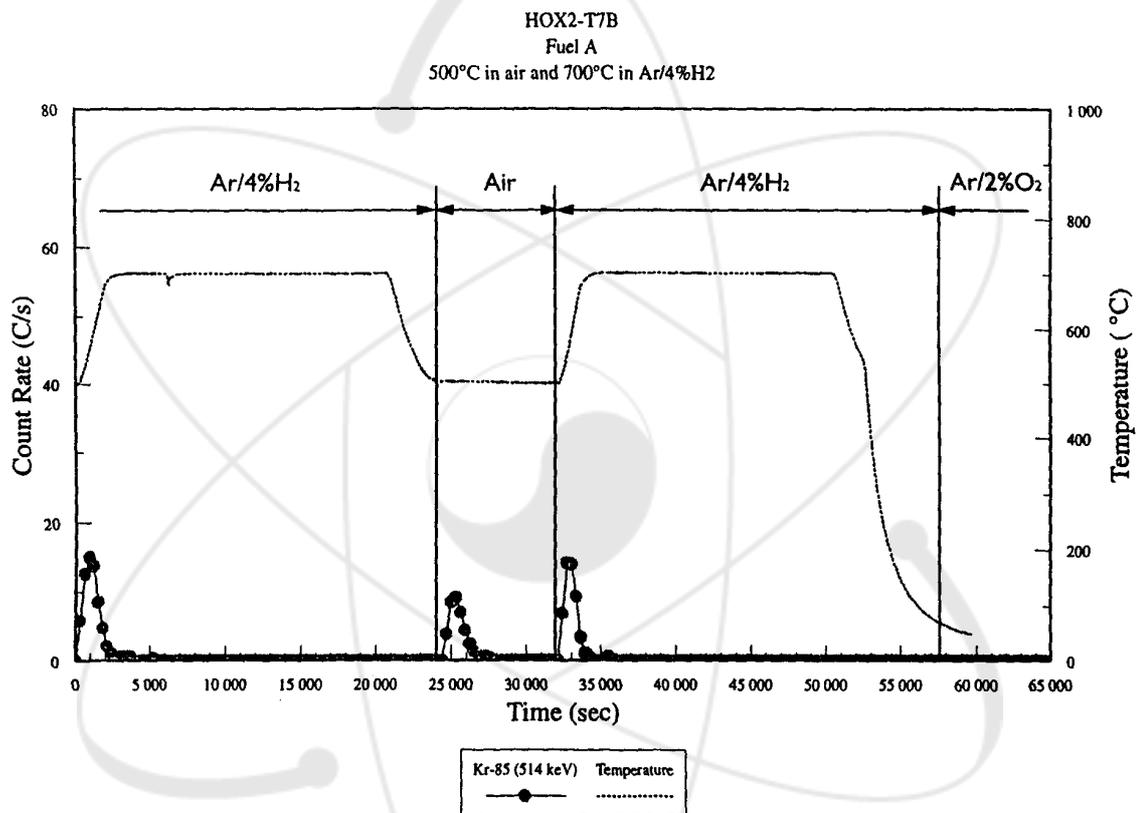


Fig. 3-8. Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T7B.

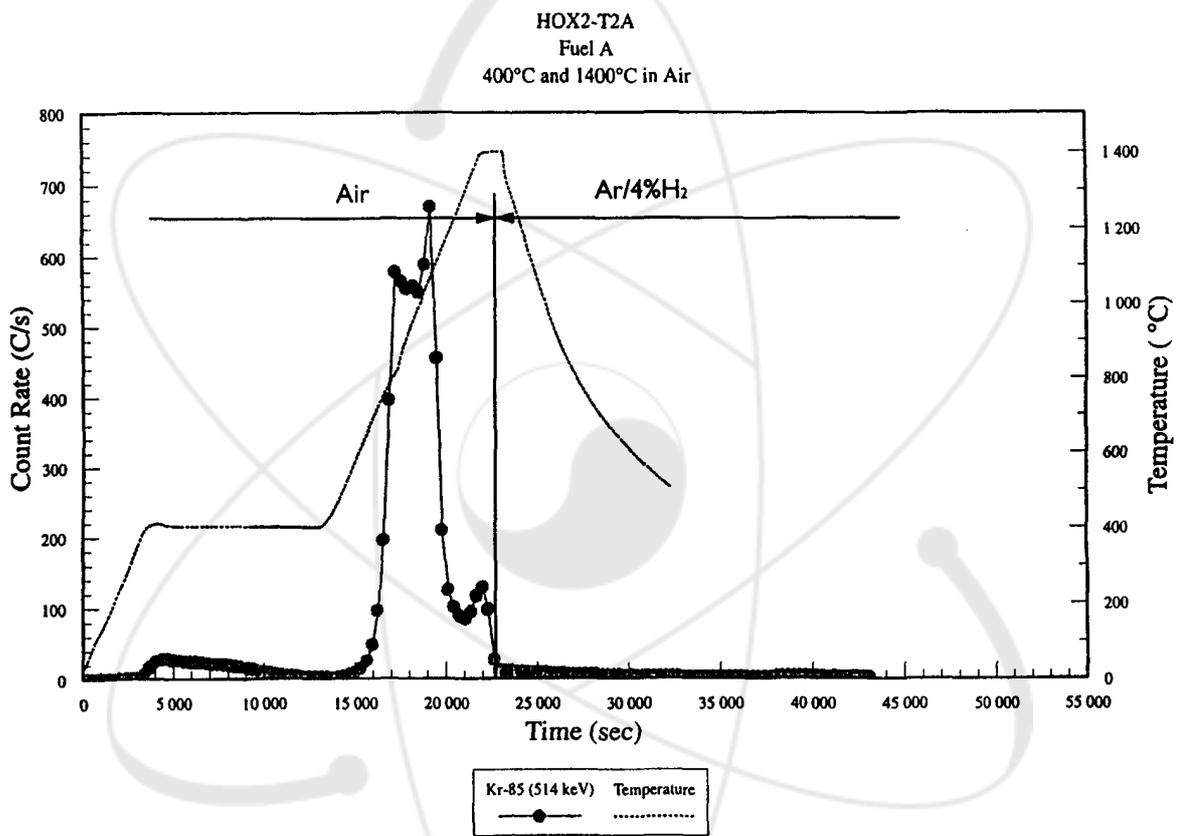


Fig. 3-9. Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T2A.

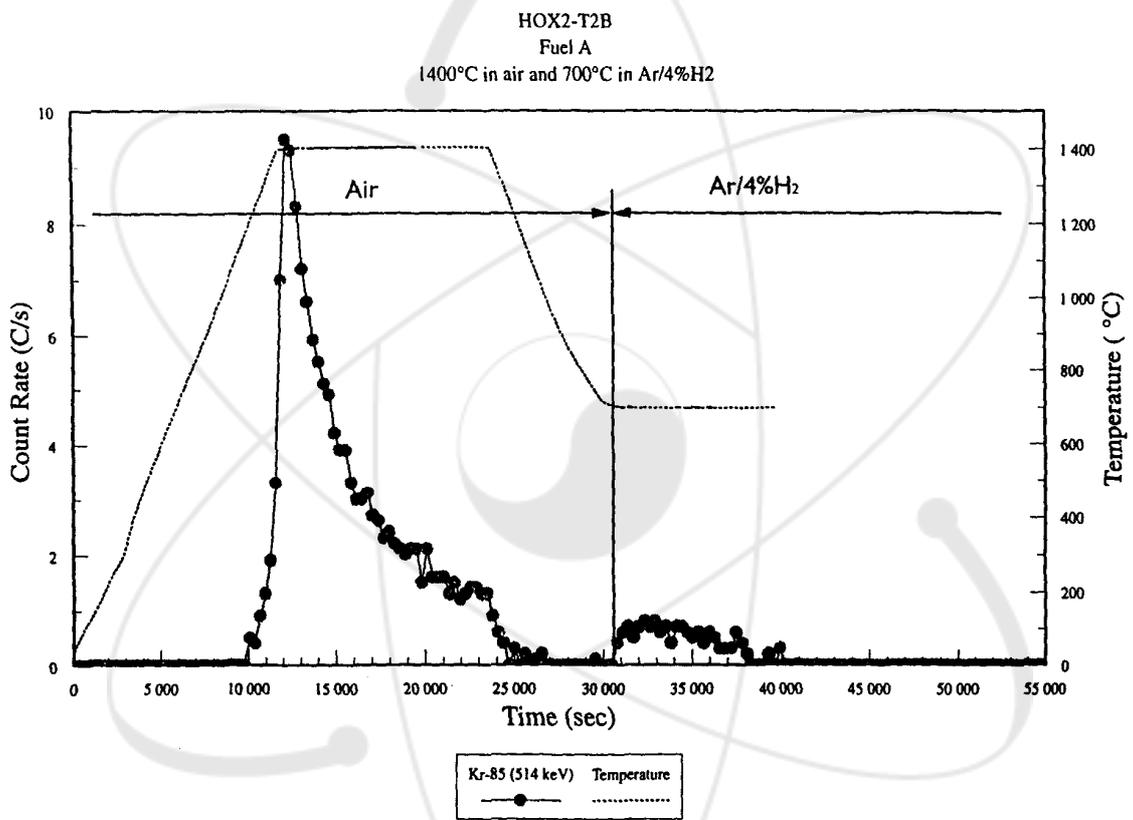


Fig. 3-10. Measured count rates of Kr-85 in the OREOX process T2B.

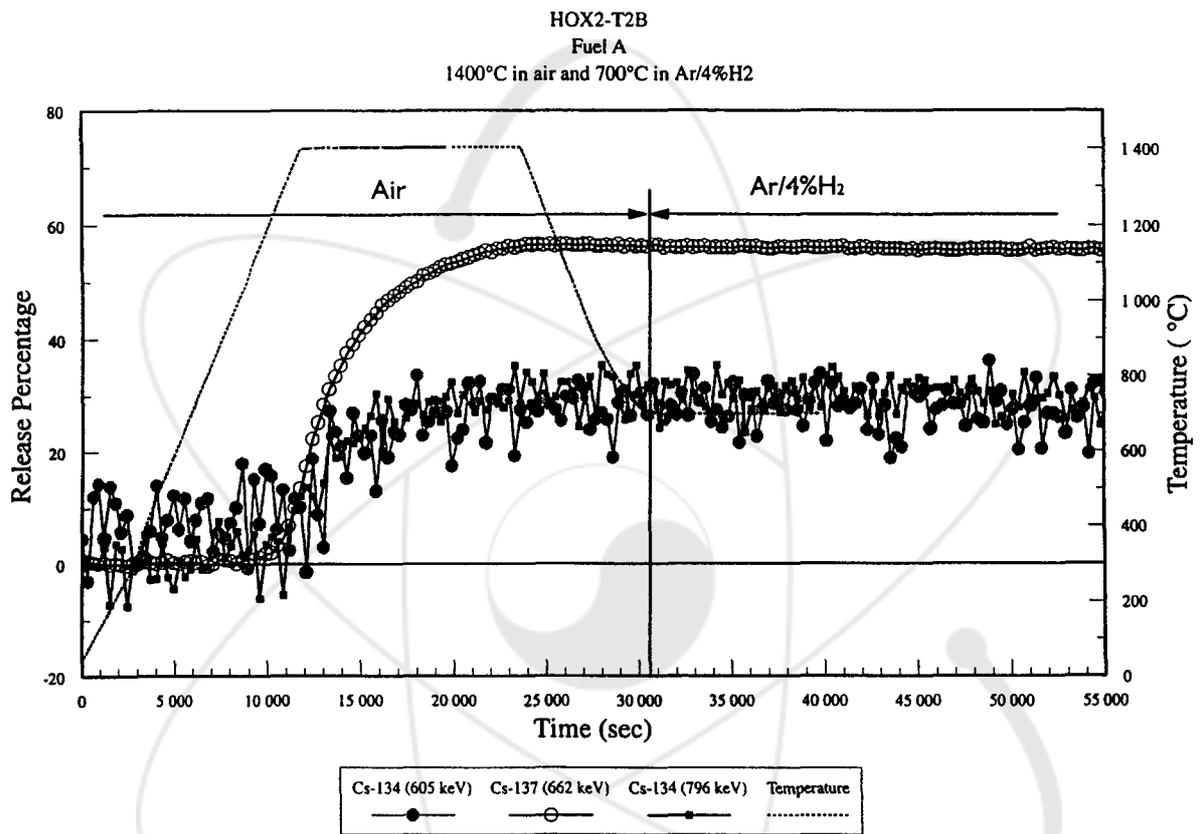


Fig. 3-11. Cesium release in the OREOX process T2B.

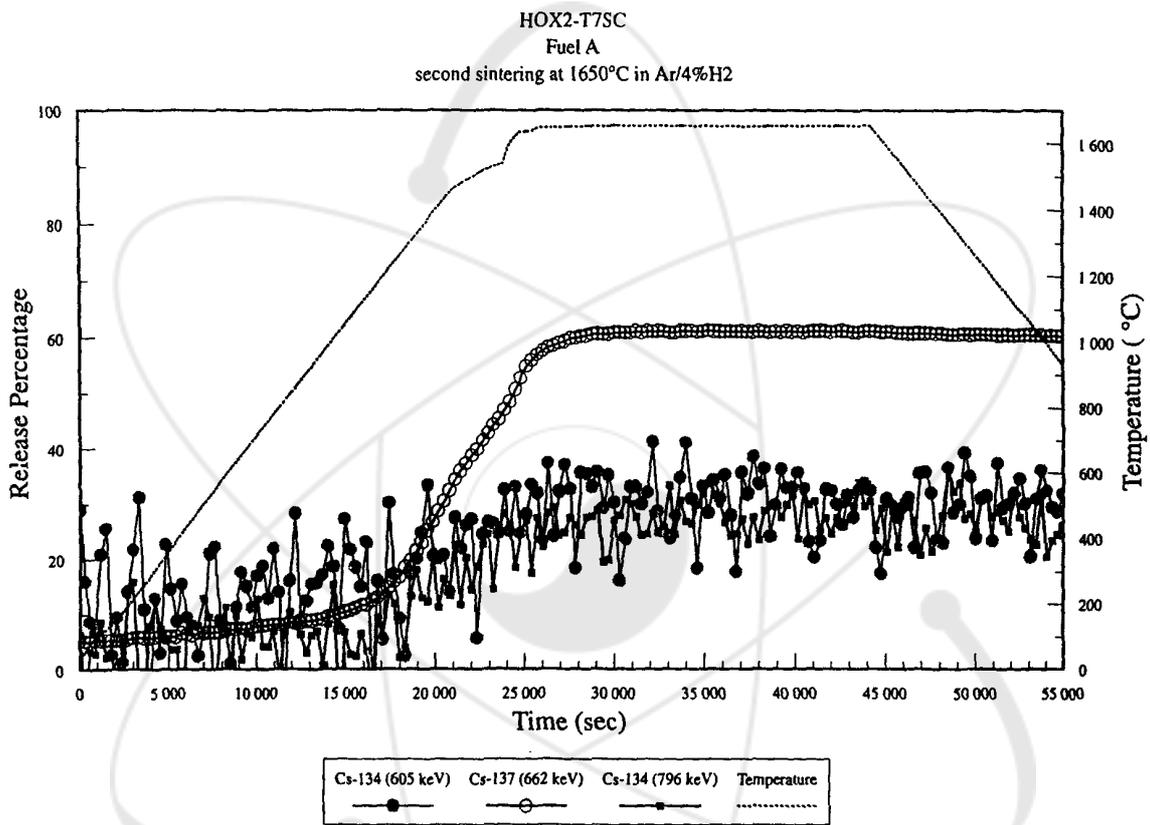


Fig. 3-12. Cesium release in the sintering process T7SC.

#### 나. 필터에 포집된 핵분열생성물 방사능 측정

OREOX와 소결공정에서 방출된 핵분열생성물의 KSB 필터에 의한 포집성능을 분석하였다. Eu는 방출되지 않았으므로 Cs와 Ru의 필터 포집성능을 측정하였고 주요 결과는 다음과 같다.

##### ■ Test 2 시험

- OREOX 공정동안 필터 표면 온도와 시료 온도를 측정하였다. 시료 온도가 annealing 온도에 도달하였을 때 가열로 튜브가 파괴되었으며, 시료온도가 1400℃ 인 경우 공기 흐름방향 위쪽 표면 필터의 온도는 900℃, 흐름방향 아래쪽 온도는 480℃였다. 시험이 끝난후 가열로와 필터내 Cs-137에 대한 분포를 측정한 결과, Fig. 3-13에 나타낸 바와 같이 필터가 위치한 지점에서 Cs-137 측정값이 매우 높게 나타났고, Cs-134의 경우는 Cs-137과 비슷한 유형을 보여주고 있으나 낮은 측정값을 보여 주었다. Eu-154는 검출되지 않았으며 방출된 Ru은 필터주위에 포집된 것으로 나타났다(Fig. 3-14).
- 필터를 가열로 튜브에서 제거한 후 튜브만의  $\nu$ -스캐닝을 수행하였다. 튜브내 Cs와 Ru의 측정값은 매우 낮게 나타났으며 이로부터 Cs 및 Ru는 대부분 필터에 포집되었다는 것을 확인하였다(Fig. 3-15~3-17).
- Fig. 3-18은 필터내에 포집된 Cs의 방사능 분포를 길이 방향으로 측정한 결과이다. 필터 길이 방향에 따른 Cs-134, 137의 6개의 방사능 측정 데이터(두께 2/3지점에서 중첩된 데이터는 필터 층별로 위와 아래쪽 표면에 대해서 측정한 값을 나타냄)로부터 알 수 있듯이 대부분의 방사능은 필터의 중앙 부분에서 분포되어 있고 방사능 분포는 Fig. 3-13의 결과와 일치함을 알 수 있었다. Ru-106의 경우 매우 낮은 방사능과 측정 지연으로 인하여 필터에서는 측정되지 않았다.
- 가열로 튜브가 파손된 후 수행한 OREOX 공정에서 시료 온도와 필터 표면의 온도를 측정한 결과, 시료 온도가 1400℃일 경우 필터 유입측과 유출측의 온도는 각각 810℃와 480℃ 이었다. Eu와 Ru는 가열로 튜브에서 검출되지 않았으며 Cs은 필터 주위에 포집된 것을 알 수 있었다.
- T2S 실험 즉, 1650℃에서 소결공정중 필터 전·후방 온도 격차는 560℃이었으며 유하방향 위쪽의 온도는 1,040℃이었고 아래쪽의 온도는 480℃의 값을 나타내었다. 소결공정중  $\nu$ -스캐닝 결과 Eu, Cs, Ru 등이 방출되지 않았으며 필터의  $\nu$ 선 측정 결과 Cs의 방사능은 5MBq 이하로 매우 낮고 필터 두께 방향에 따라 일정한 분포를 보였는데, 이는 불활성 분위기에서 시험 결과와 일치한다.

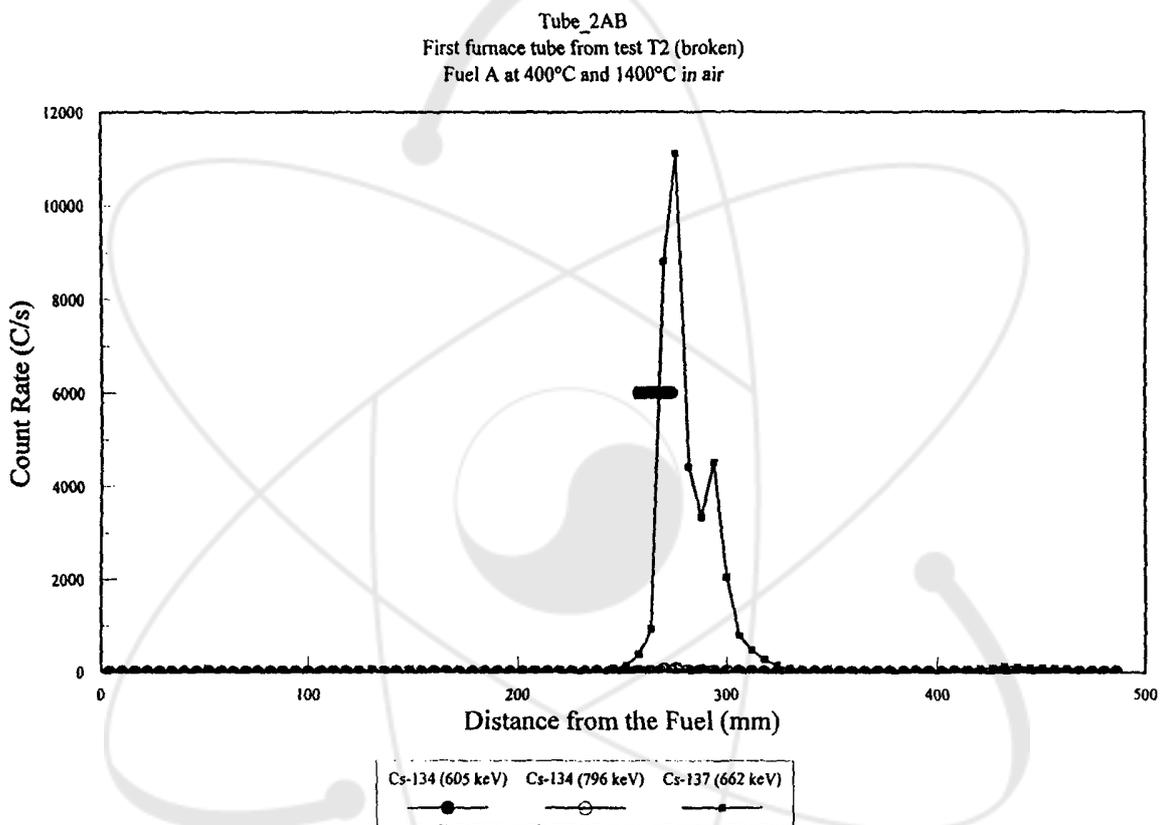


Fig. 3-13. Cesium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar.

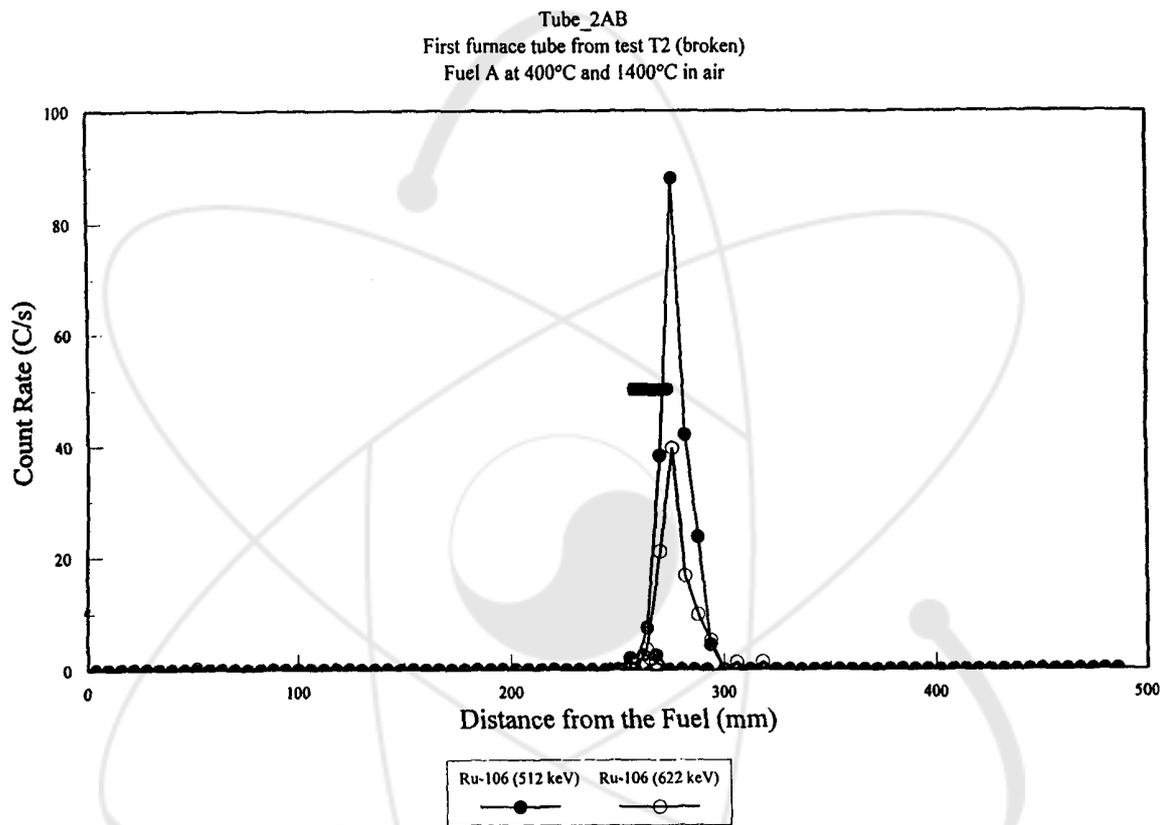


Fig. 3-14. Ruthenium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar.

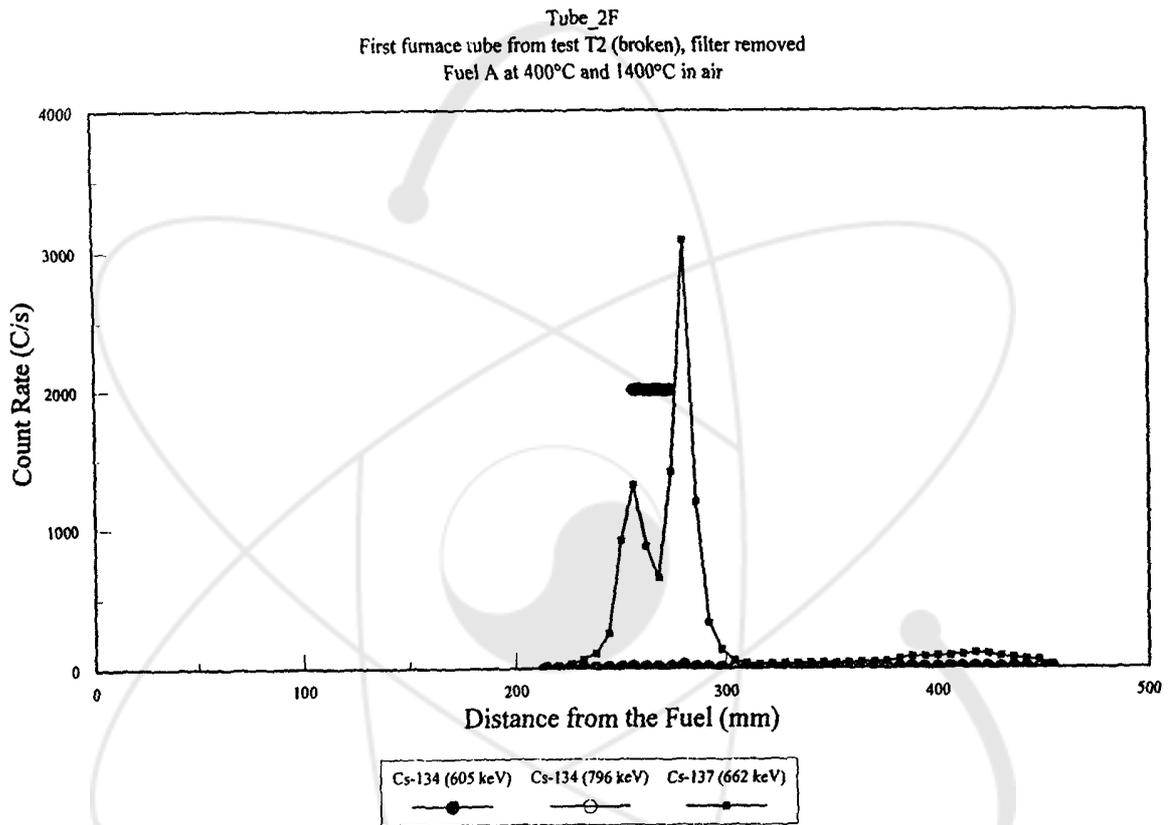


Fig. 3-15. Cesium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement.

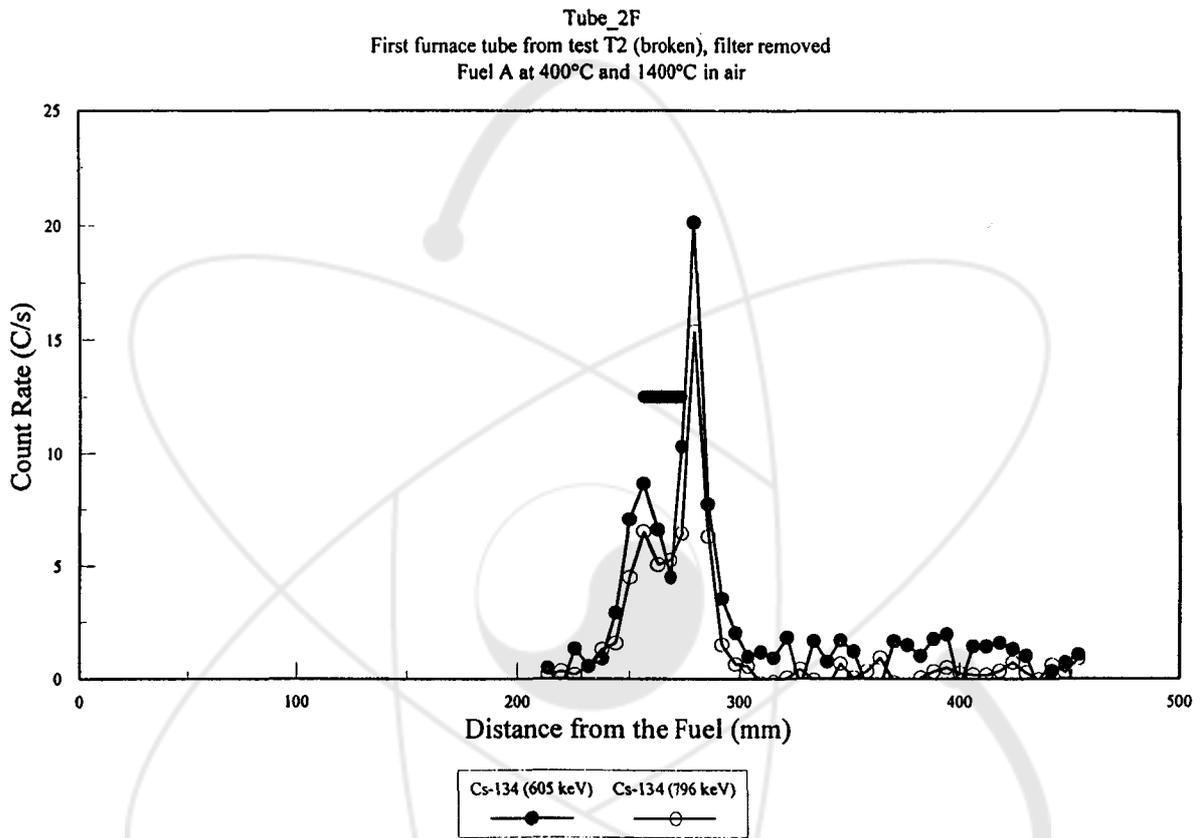


Fig. 3-16. Count rate of Cs-134 measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement.

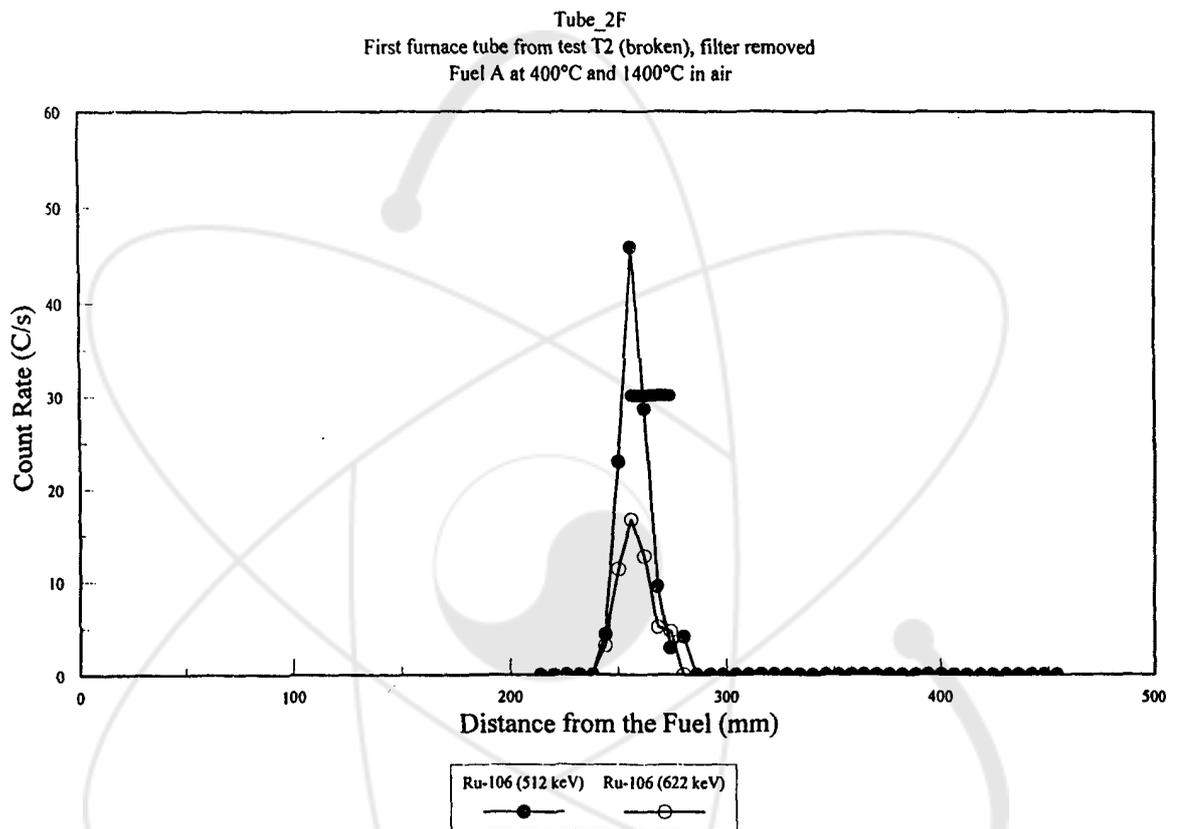


Fig. 3-17. Ruthenium count rate measured along the furnace tube used in the OREOX process T2A. The location of KSB clay filter is indicated by the bar. The filter was removed before this measurement.

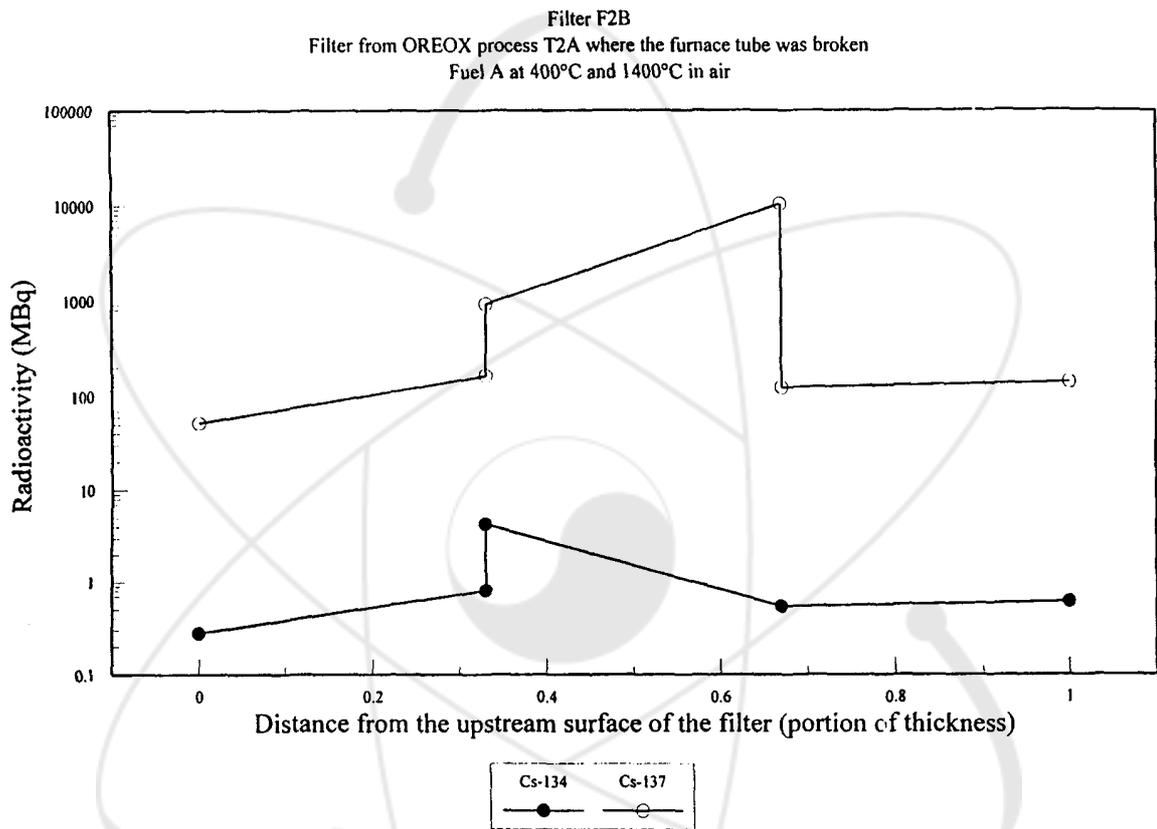


Fig. 3-18. Activity of cesium measured in filter F2B from the OREOX process T2A(400°C and 1,400°C in air). The filter was cut into 3 transverse pieces and both surfaces of each piece were gamma-counted.

## ■ Test 7 시험

- 소결 과정중(T7S) 1,350°C에서 가열로 튜브의 파손으로 인하여 실험이 중지되었다. 튜브 파손시 가열로 튜브의 Cs 방사능을 측정된 결과, 최대 방사능은 필터 주위에서 관찰되었고 Eu와 Ru는 전혀 검출되지 않았다. 필터가 제거된 후 필터 설치장소의 Cs 계측율은 1/10로 감소하였다. 필터 내에서의 Cs 방사능 분포 측정 결과를 Fig. 3-19에 나타내었는데, 대부분의 방사능은 필터의 1/3 상류 방향에 위치하는 것을 알 수 있으며 3개의 단면 중에서 중간 부분보다 맨 아래쪽 단면이 더 높은 값을 보였다.
- 두번째 소결공정(T7SC 공정)을 가열로 튜브 내에서 필터를 제거한 후에 수행하였다. 압분체들은 1,650°C, 4%H<sub>2</sub>/Ar 분위기 하에서 5.5 시간동안 소결하였으며 소결공정 후 소결로 튜브내의 Cs의 분포는 튜브의 끝단에서 높은 방사능 분포를 보이는 것을 알 수 있다. 이상과 같이 본 시험에 사용한 필터는 Cs의 포집에 매우 유용한 것을 알 수 있다.

### 다. 산화분위기에서 핵분열 생성물 방출 특성

400~700°C 공기분위기 하에서 1시간 동안 핵연료 A, B의 산화실험을 수행하였다(T8, T5, T6, T9 실험). 산화실험 동안 Kr만이 방출되었으며, 사용된 핵연료의 양은 같았지만 산화온도에 따라 방출되는 Kr의 양은 다르게 나타났다. 방출율을 방사능의 정도로 환산하면 400°C와 500°C, 600°C, 700°C에서의 Kr 방출비는 1 : 1.6 : 1.9 : 4.4였다. Annealing 온도가 높아질수록 Kr의 방출량은 증가하였다.

### 라. 피복관의 annealing시 핵분열생성물 방출 특성

핵연료 A와 B의 피복관 annealing 시험을 500°C와 600°C의 공기 분위기하에서 1시간 동안 실시하였다. Annealing 과정의 처음 단계에서 Kr의 방출량은 매우 낮았으며, Cs와 Ru, Eu 등의 방출은 측정되지 않았다. 600°C에서 1시간동안 annealing을 실시한 핵연료 A 피복관 단면 변화는 없었다.

Annealing 후 핫셀에서 피복관의 감마선 측정을 수행하였고, 비교실험을 위해 annealing을 하지 않은 피복관도 측정하였다. Table 3-7과 3-8에 핵연료 A와 B의 결과를 각각 나타내었는데, 피복관의 방사능은 일괄적인 결과를 보이지 않았다. 이는 피복관의 길이가 서로 다르고 붙어있던 UO<sub>2</sub>의 양 차이에서 기인하는 것으로 판단된다. Annealing 기간동안 Eu의 유출이 없었던 것으로 가정하면 방사능은 시료의 차이와 방사능 형태에 따른 차이 영향을 보정하기 위하여 Eu-154로 일반화시킬 수

있다. 위와 같은 일반화후 각 피복관의 방사능 활성도를 annealing 전과 후에 대해 비교할 수 있다. 이런 방법으로 비교할 수 있는 근거는 Cs나 Ru가 500℃와 600℃에서 annealing 되는 동안 방출되지 않기 때문이다. 이 결과는 앞의 단락에서 제시한 것처럼 실험 기간 동안에 관찰 결과와 일관된 경향을 나타내었다.

Table 3-7. Radioactivity measured in the sheath from Fuel A

핵종	측정값 (MBq)			Eu-154 count수에 의한 일반화		
	초기	500℃ annealing	600℃ annealing	초기	500℃ annealing	600℃ annealing
Zr-95	0.128±0.033	0.128±0.033	0.0603±0.04	0.128	0.515	0.064
Sb-125	4.45±0.14	4.71±0.16	3.62±0.12	4.45	4.21	3.75
Cs-134	0.975	0.475±0.018	0.497±0.010	0.975	0.425	0.515
Cs-137	170	180±0.2	145±0.1	170	164	150
Eu-154	2.04±0.05	2.28±0.05	1.97±0.04	2.04	2.04	2.04
총량	178	188	151	178	168	156

Table 3-8. Radioactivity measured in the sheath from Fuel B

핵종	측정값 (MBq)			Eu-154 count수에 의한 일반화		
	초기	500℃ annealing	600℃ annealing	초기	500℃ annealing	600℃ annealing
Zr-95	3.06±0.25	2.59±0.16	3.33±0.40	3.06	3.40	3.26
Sb-125	143±1	110±0.7	111±0.8	143	144	109
Cs-134	79.3±1.1	66.8±1.1	82.9±1.1	79.3	87.7	81.1
Cs-137	430±0.4	362±0.4	452±0.5	430	475	442
Eu-154	8.48±0.16	6.46±0.16	8.67±0.2	8.48	8.48	8.48
총량	664	548	658	664	719	643

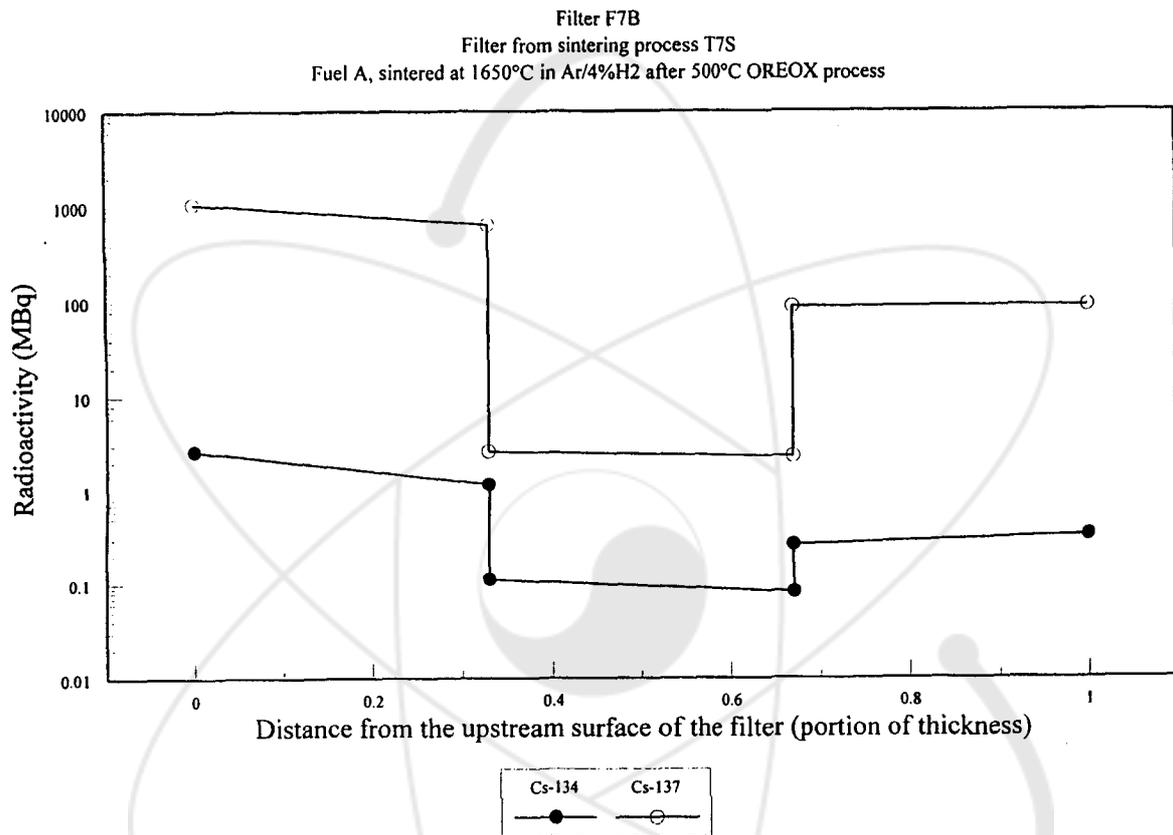


Fig. 3-19. Activity of cesium measured in filter F2B from the OREOX process T7S. The filter was cut into 3 transverse pieces and both surfaces of each piece were gamma-counted.

## 제 4 절 종합 결론 및 분석

HOX-2 시험에서는 분말 특성과 가공 조건에 따른 압분 특성 이외에도 산화 온도나 산화-환원 주기의 횟수, annealing 과정, 핵연료의 연소도[2], 핵분열생성물의 방출/포집 특성을 평가하였으며, 주요 분석결과는 다음과 같다.

- HOX-1 시험에서와 같이[55], 350°C~400°C, 공기 분위기에서 산화 공정동안 Kr이 방출되었으며, 다음 단계인 700°C, Ar/4%H<sub>2</sub> 분위기의 환원공정에서도 추가적인 Kr 방출이 일어났다. 최초의 산화-환원 주기에서 대부분의 Kr이 방출되었고 이어지는 산화-환원 과정에서 잔류 Kr이 방출되었다.
- 400°C에서 산화된 분말의 경우 약 11%의 Kr이 남아있었으나, 1,400°C에서의 annealing을 거친 시료는 약 0.4%만이 남아 있었다. OREOX 공정 동안 대부분의 Kr이 방출되어 소결공정에서는 거의 방출되지 않았다.
- Cs 방출 특성은 Kr의 방출과 매우 다른 경향을 보였다. OREOX 공정중 350~500°C, 산화공정에서 Cs의 유출은 거의 일어나지 않았으나, 분말의 Cs 함유량 중의 58%가 1,400°C에서 annealing되는 동안 방출되었다. 소결공정 중에도 Cs가 유출되었다.
- 고온에서의 annealing공정이 Cs 방출 특성에 미치는 영향을 보면, 1400°C에서 annealing후 제조된 압분체 분말(T2S 시험)은 Cs가 다량 방출되었으나, 500°C의 저온에서 제조된 압분체의 분말은(T7S 시험) 대부분의 Cs를 함유하고 있었다. 필터의 Cs 방사능 측정 결과를 보면, T7S가 T2S보다 10배정도 높은 값을 보였다.
- KSB 점토필터를 이용한 방출된 Cs와 Ru의 포집효율은 우수하였다. 필터의 위쪽과 아래쪽 온도차는 330°C~560°C로 시료의 온도에 따라 다르게 나타났으며, 필터의 방사능은 전반적으로 높은 값을 나타내었다. 필터를 사용한 가열로 튜브와 사용하지 않은 튜브를 비교하여 보면, 필터가 없는 튜브에서는 Cs가 튜브 끝단까지 이동하였다.
- 필터의 포집 메커니즘을 보면, 대부분의 Cs가 pollucite(CsAlSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>)의 형태로 KSB 필터에 포집되는 것으로 나타났다. 이때 필터의 온도는 950°C~1400°C정도이며 Cs는 Cs 산화물이나 수산화물 형태로 배출된다. 또한 Cs는 온도가 950°C~1100°C 일 때 유리상 형태로(CsAlSi<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) 포집될 수 있다. Cs와 Ru는 필터와의 화학반응과 온도차에 기인하는 물리적 침적 메커니즘에 의해 포집되는 것으로 판단된다.
- 400°C~700°C에서 핵연료가 산화기간동안 Kr의 유출은 온도가 증가함에 따라 증

가하였고 Cs의 유출은 검출되지 않았다. 그러나, 분말의 성상을 관찰한 결과 최적 제조 온도는 500°C 근처인 것으로 판단된다[66].

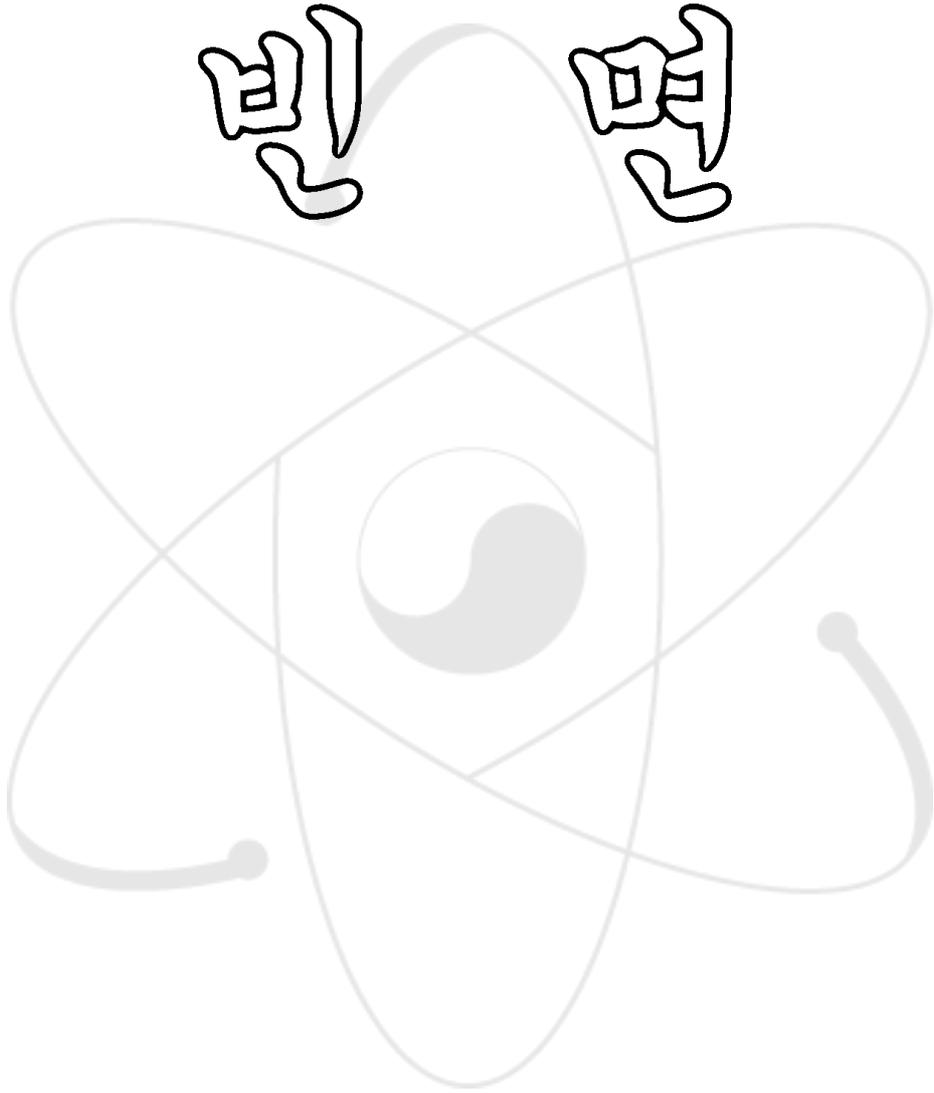
- 500°C와 600°C에서 피복관의 annealing 기간동안 소량의 Kr이 방출되었고 Cs의 경우는 방출되지 않았으며 annealing 후에도 핵연료 피복관의 방사능은 매우 높았다.

#### 바. HOX-2 시험결과 요약

HOX2 실험에서는 2개의 사용후 PWR 핵연료(핵연료 A, B)를 사용하였으며, 핵연료 A는 초기 U-235 농축도 2.55%, 연소도 28,000 MWD/ MTU, 원자로로부터 방출일시는 1974년 5월이며, 핵연료 B는 초기 농축도 3.5%, 연소도 58,000 MWD/MTU, 방출일시는 1988년 2월이다. HOX-2 시험에서는 핵연료 A 시료를 사용하여 여러 가지 OREOX 공정조건에서  $UO_2$  분말을 제조하였으며, 제조된 분말로 압분체와 소결체를 제조하였다. 주요 결과를 요약하면 다음과 같다.

- (1) HOX-2 시험은 3-cycles OREOX 공정을 적용하였으며, Ar/2% $O_2$  기체를 이용한 산화피복 처리단계(passivation)를 포함하였다. 제조된 분말은 압분과정을 거친 후 1650°C, Ar/4% $H_2$  기체분위기에서 소결공정을 거치게 된다.
- (2) 첫 번째 산화/환원 주기에서 대부분의 Kr이 방출되었고 남아있는 Kr은 이후 주기 동안에 방출되었기 때문에 소결기간 중에는 Kr의 방출이 거의 없었다. 400 ~ 550°C의 산화과정에서 온도가 증가함에 따라 Kr의 방출량은 증가하였다.
- (3) 세습의 경우에서 350~500°C로 운전되는 OREOX 공정에서 방출되지 않았으나 1400°C 공기분위기에서 산화시킨 경우 분말이 annealing 되며 많은 양의 Cs가 방출되었다. 1650°C, Ar/4% $H_2$  기체분위기의 소결과정 중에 초기 Cs양의 절반이 방출되었으며, 피복관의 annealing 과정 중에는 Kr과 Cs가 거의 유출되지 않았다. Kentucky Stone Ball 필터에 의한 Cs/Ru의 포집성능은 우수한 것으로 나타났다.

심명



## 제 4 장 일본 VEGA 프로그램 연구동향

### 제 1 절 개 요

앞서 서론 및 제 2 장에서 언급한 바와 같이, 원자로의 안전성 평가를 목적으로 사고시에 핵연료로부터 방출되는 방사성 핵종의 종류, 양 및 거동특성에 대하여 세계적으로 많은 유사실험들이 수행되었고 현재에도 개발된 코드의 신뢰성 증대를 위하여 다양한 시험이 수행 중에 있다. 그러나 지금까지 수행된 연구는 시험온도가 최대 2,800 °C 정도이고, 또 요오드나 세슘과 같은 휘발성의 방사성물질을 주 대상으로 한 것이 대다수로서 준휘발성이나 비휘발성의 방사성물질에 대한 동종의 연구는 지금까지 행해지지 않았다. 핵연료의 용점(약 2,840 °C)을 상회하는 온도에서의 방출거동이나 실제 원자로의 노심과 같은 고압에서의 방출거동에 대해서는 실험의 곤란성으로 인하여 거의 연구되지 않고 있는 실정이다. 그러나 1979년 발생한 TMI 발전소의 냉각재 유출 사고 분석결과 핵연료의 용점 부근까지 온도가 상승한 경우가 발생하였는 바 핵연료의 용점을 초과하는 온도에서의 방사성 핵종의 방출거동 시험이 필요하게 되었다. 핵연료의 용점 가까운 고온상태에서는 휘발성의 방사성물질 뿐만 아니라 Sr, Ba, Eu와 같은 준휘발성, 비휘발성의 방사성물질은 물론 U, Np, Pu 와 같은 악티나이드 원소도 방출되기 쉬운 상태가 된다.

따라서 이러한 특성을 반영하여 일본 JAERI Tokai Research Establishment내 원자력 안전성 연구센터(Nuclear Safety Research Center)-원자로 안전성연구팀(Reactor Safety Research Dept.)에서는 고온/고압조건(최대 3,000°C, 10 bar)에서 시험을 수행할 수 있는 장치를 개발하여 1999년 9월부터 사용후핵연료를 이용한 VEGA (Verification Experiments of radionuclide Gas/Aerosol release) 프로그램 시험을 수행중에 있으며, 향후 6년간 경수로 사용후핵연료 및 MOX 핵연료를 이용한 핵종 방출 거동 시험 계획을 수립하였다.

VEGA 프로그램과 기존의 고온조건에서의 핵종방출 거동 특성시험과의 차이점을 살펴보면 다음과 같다.

기존의 핵분열생성물 방출거동 특성 시험의 경우, 원자로에서의 온도 및 압력조건에 대한 측정기술 및 데이터 확보보다도 방출된 핵분열생성물의 측정기술에 더 주안점을 두고 있으며 보다 정확한 온도 및 압력이력에 대한 데이터 확보를 위하여 핫셀

에서의 시험을 수행하였는 데, 이는 앞장에서 이미 언급한 바 있다. 특히 프랑스 CEA의 경우 입자형태로 방출된 핵분열생성물의 입자크기를 주로 분석하였고 현재 시험가능한 최대온도를 약 2,700℃까지 증대시키기 위한 장치를 개발하였다[13].

그러나 VEGA 프로그램의 주요 특성을 정리하면 다음과 같다.

- ① 핵연료 용융온도 이상인 3,000℃까지 온도를 상승시킬 수 있으며, 이 경우 비휘발성 핵분열생성물뿐만 아니라 TRU 특히 Pu의 방출특성에 관한 시험을 수행할 수 있다. 이는 MOX 연료(U와 Pu의 혼합 산화물 연료)가 일본내에서 사용이 시작되고 있으므로 사전에 이러한 정보를 얻어둘 필요가 있기 때문이며, 참고적으로 MOX 연료로부터의 방출 거동에 관한 실험은 세계 어느 곳에서도 수행된 바가 없다.
- ② 온도가 급격히 상승할 경우(1℃/초 정도의 비율) 즉 TMI 발전소에서의 사고 발생 시나리오에 맞추어 실험을 수행하고 있다. 또한 압력 10기압 정도에서 실험을 수행하는 것은 세계 최초의 일이며, 압력에 관해서는 이론상으로는 영향이 있을 것이라고 생각되지만 장치 제작의 곤란으로 인하여 지금까지 실험에 의해 입증된 바 없다. 따라서 압력의 영향도 알아볼 수 있도록 장치를 설계하였다.
- ③ 기존의 핵종거동 특성시험과 마찬가지로 불활성기체, 스팀, 수소 및 혼합기체에 대한 영향을 평가할 수 있고 동시에 비휘발성 핵분열생성물 및 TRU 에어로졸의 입자크기를 측정할 수 있다.
- ④ 핵연료 펠렛내의 입계 등에 누적된 불활성 핵분열생성물 기체의 방출거동 시험도 수행 가능하며 이는 정상운전 및 사고시 핵연료의 거동을 평가하는 데 이용된다.
- ⑤ 본 시험으로부터 얻어진 데이터는 사고시 원자로 안전성을 평가할 수 있는 해석 코드의 입력자료로 이용된다.

VEGA 프로그램은 지금까지 수행되어 온 핫셀 테스트에서의 시험조건 이상의 온도와 압력에서 핵분열생성물의 방출 거동 평가를 목표로 하고 있으며, 보다 정밀한 온도와 압력 조건에서 시험을 수행하기 위하여 다음과 같이 시험 조건 및 장치를 구성하였다.

- 핵연료 용융온도까지 고온 조건(3,000℃) 및 산화/환원 분위기(ThO<sub>2</sub> 도가니 사용)
- 고압조건에서 핵분열생성물 방출 특성 및 이동 경로
- 단반감기 핵분열생성물의 방출 및 이동 경로 (NSRR에서 시험 핵연료의 재조사) 특히 핵연료봉 용융에 의한 핵연료내로의 용해 특성의 핵분열생성물 방출 거동에 미치는 영향을 보다 상세하게 평가하고자 하며, 이러한 데이터는 핵분열생성물의 방

출 및 이동거동 모델링의 입력자료로 활용된다. 현재까지의 시험결과를 종합적으로 분석한 결과, 보다 정확한 선원항 모델식을 얻기 위해서는 핵연료 입계(grain)에서의 확산공정 및 핵연료 표면에서의 화학/증발 공정등이 고려된 semi-mechanistic 모델 개발이 필요하다. 이상과 같은 특성을 가지고 있는 VEGA 프로그램은 6년간의 계획을 수립하여 현재 다양한 조건에서 장치의 성능시험 및 핵분열생성물 방출 특성 시험을 수행중에 있다. VEGA 프로그램 시험 일정은 아래 나타낸 바와 같으며, 년 2회 테스트를 기준으로 하고 있다.

	'96	'97	'98	'99	'00	'01	'02	'03	'04	'05
Construction of Facility	→									
Experiments				Unoxidizing Condition	Oxidizing Condition			MOX Fuel		
Analyses				Test Analyses and Model Development		Verification			Incorporation into THALES-2	Application

## 제 2 절 시험 장치 및 방법

VEGA 시험시설은 Tokai 연구소 핵연료시험시설(RFTF)내 NO. 5 핫셀내에 설치되어 있다. 본 시험장치는 크게 스팀/기체 공급 시스템, 핵연료를 가열하는 고주파 유도 가열로, 방사성 미립자를 포집하는 열구배관(TGT, Thermal Gradient Tube) 및 필터 박스, cascade impactor, 그리고 방사성 불활성기체 및 요오드, 트리튬 등을 포집하는 저온 포집장치(aerosol/charcoal 필터), 핵연료 및 방출되는 핵분열생성물의 방사능량을 연속으로 측정하는 감마 측정시스템 등으로 구성되어 있으며, 장치 구성도 및 사진은 Fig. 4-1 및 4-2에 나타낸 바와 같고 Fig. 4-3은 기체상 핵분열생성물 포집장치 사진을 보여주고 있다.

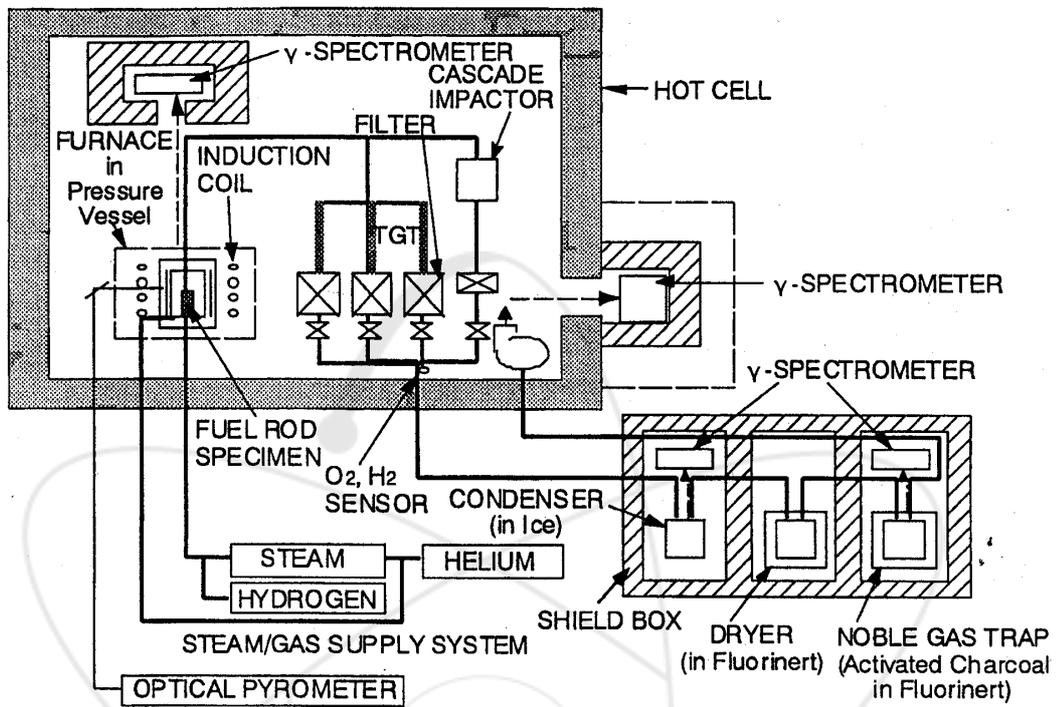


Fig.1 Schematic of VEGA facility

Fig. 4-1. Schematic diagram of VEGA experimental facility.

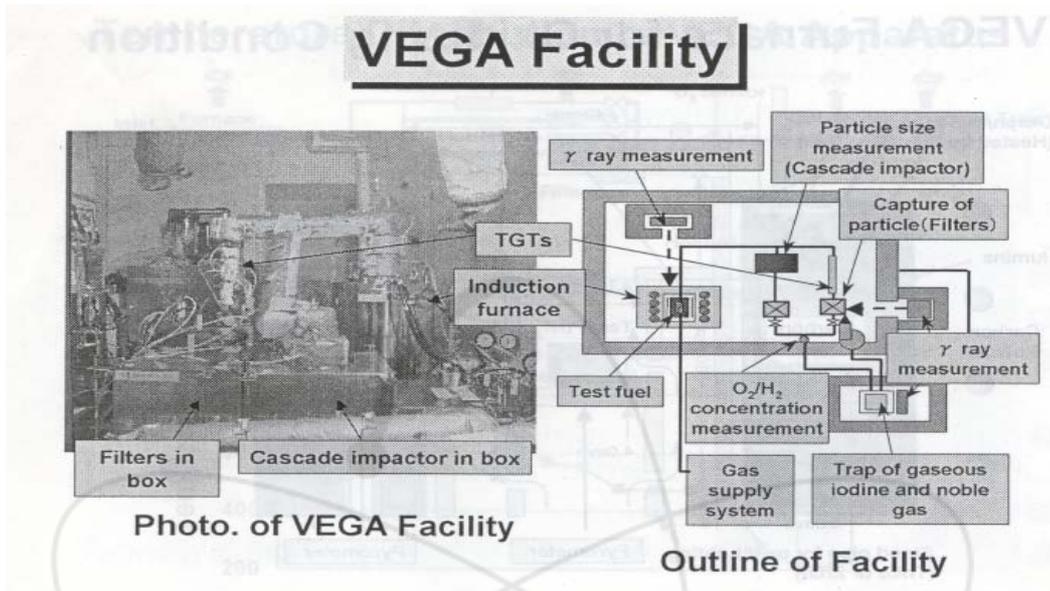


Fig. 4-2. Photography of VEGA facility : Inside Hot-cell and Out-cell.

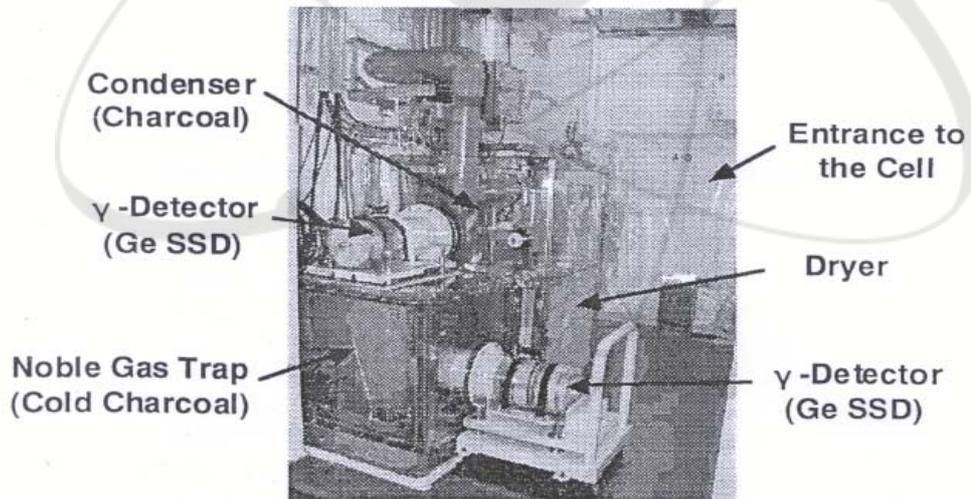


Photo.2 Gaseous FP trap device

Fig. 4-3. Photography of gaseous fission product trap device.

1. 시험 장치

#### 가. 유도 가열로

유도로에 사용되는 재질은 최대 사용온도와 산화/환원 분위기에 따라 달라지는 데, 최대 온도가 2,200℃ 이하일 경우  $ZrO_2$ 를 사용하며 그 이상의 온도에서는 환원분위기일 경우 텅스텐(W)을 사용하고 산화분위기에서는  $ThO_2$ 를 사용한다.  $ThO_2$ 는 원자력 재료로서 가공이 쉽지는 않으며 원심 slip 캐스팅 혹은 금속 몰딩 기술을 사용하여 제작하였다. Fig. 4-4는 산화분위기에서 사용하는  $ThO_2$  재질의 유도 가열로 구조를 보여주고 있다. 알루미늄 튜브 외벽에 고주파 유도코일(최대 출력 40 kW, 주파수 15~ 25 kHz)을 감고, 전기 전도성을 갖는 graphite susceptor에 열이 전달하여 원둘레 방향으로 내부를 가열한다. 내부 튜브에는 graphite의 산화를 방지하기 위하여 스팀 등의 산화성 기체가 흐르지 않도록 하였으며, 가열로 외부는 carbon felt와 carbon 분말로 만든 보온재를 사용하였다. 환원성 분위기에서 사용하는 텅스텐 재질의 유도로는 Fig. 4-5에 나타낸 바와 같이  $ThO_2$  유도료와 구조는 유사하지만, graphite susceptor가 없으며 텅스텐을 직접 가열하여 열을 전달한다. 내관 외측에는 가열효율을 향상시키기 위하여 열반사판 등이 설치되어 있고 외측의 열반사판에는 열에 강한 탄탈륨(Ta)을 사용하고 있다.

또한 고압실험을 수행하기 위하여 고주파 유도코일을 포함한 가열로 전체를 압력 용기 내부에 넣고 기체 공급시스템과 필터 전 밸브까지를 가압하며, 내부가 파손될 경우를 대비하여 외부의 압력을 0.05 MPa 정도 높게 하여 방사성 물질이 핫셀 외부로 누출되는 것을 방지하도록 설계하였다.

핵연료의 온도는 도가니 밑바닥에 위치한 광온도계를 사용하여 측정하였고 또한 내부 튜브에 광온도계를 삽입하여 온도를 측정하였다. 3,000℃까지의 온도를 직접 측정할 수 있는 열전대는 없기 때문에 측정 가능한 2,200℃까지는 열전대와 광온도계로 온도를 측정하고, 그 이상의 온도에서는 광온도계만으로 측정하였다. 광온도계의 신뢰성은 여러 종류의 용점을 가지는 금속을 실제로 녹여 측정함으로써 검증하였다. Fig. 4-6은 VEGA-1, 2 테스트로부터 얻은 시험장치별 온도 분포를 보여주고 있다.

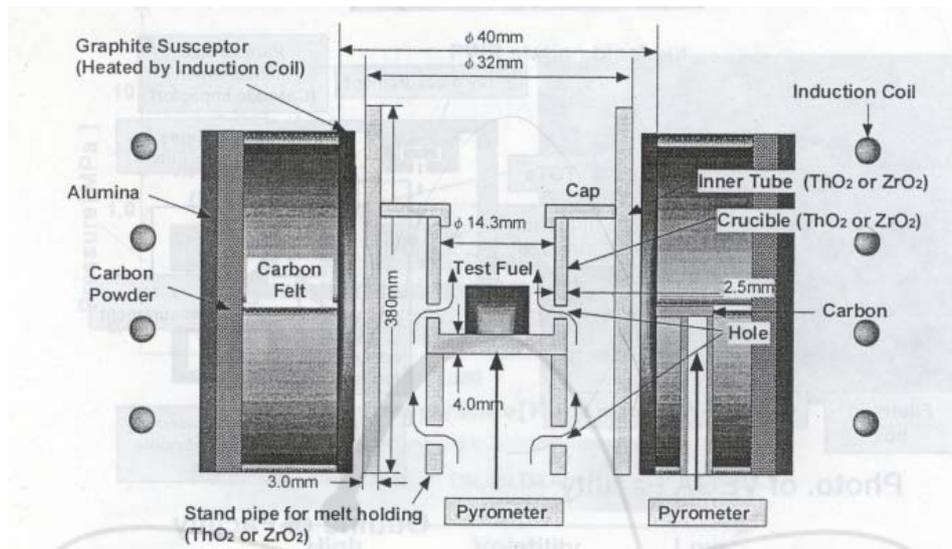


Fig. 4-4. Schematic of VEGA furnace for oxidizing condition.

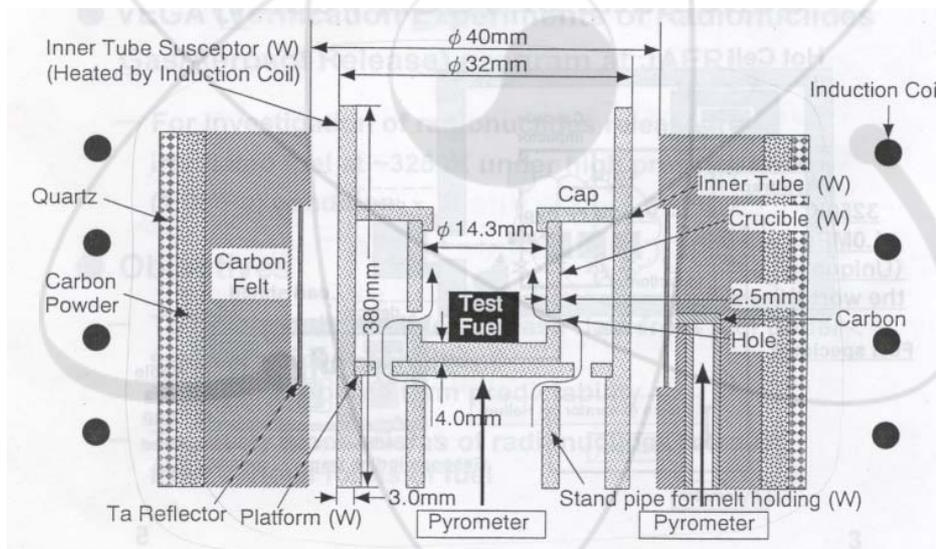


Fig. 4-5. Schematic of VEGA furnace for inert condition.

## Temperature Distribution in VEGA Apparatus

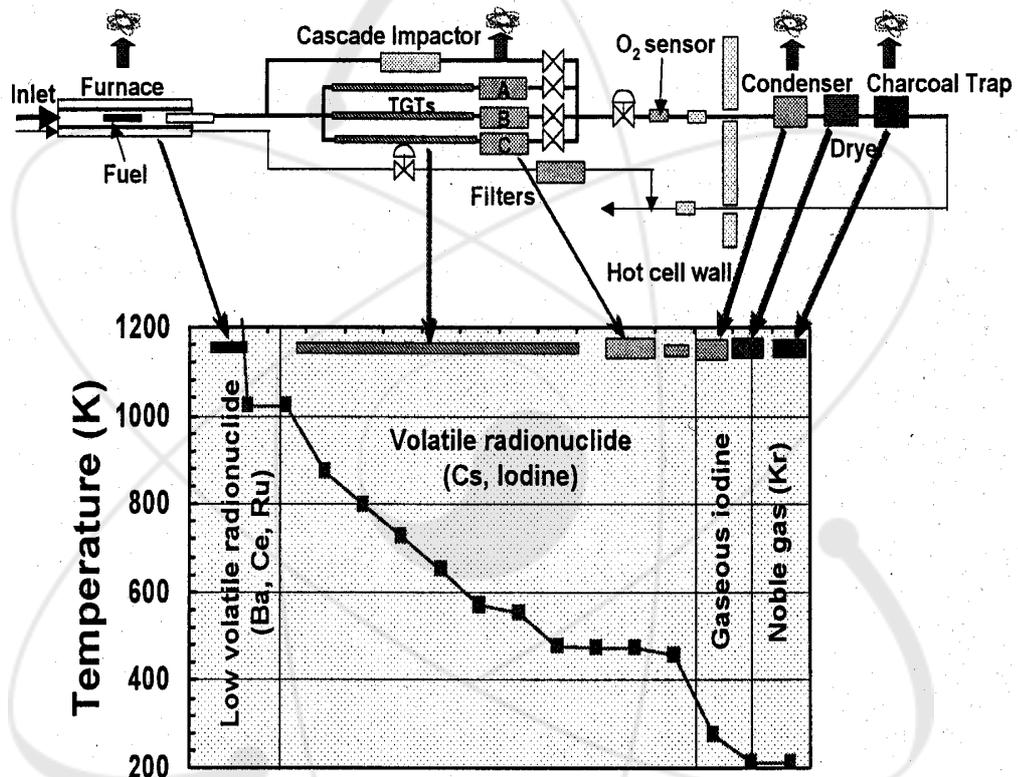


Fig. 4-6. Temperature distribution in apparatus for VEGA-1 and 2 tests.

#### 나. 휘발성 핵분열생성물 및 방사성 기체 포집장치

TGT 및 cascade impactor, 필터박스는 핫셀 내부에 위치하지만 불활성기체 및 요오드 포집장치는 핫셀 부근에 위치한 격납공간에 설치되어 있다.

핵연료를 가열하게 되면 방사성물질이 방출되는데, 포집계통 내의 각 부분의 온도를 서로 다르게 유지함으로써 휘발성, 준휘발성과 비휘발성의 방사성물질을 구분하여 포집할 수 있도록 하였다. 준휘발성, 비휘발성의 방사성물질은 유도로 출구 근처에 있는 고온의 배관부인 TGT에 침착시켜 포집한다. 이 부분의 배관온도는 휘발성의 방사성물질이 침착하지 않도록 하기 위하여 실험 중에는 750 °C 이상 되도록 유지하여 준다. 대표적인 휘발성 방사성물질인 요오드화 세슘(CsI)의 융점은 620 °C 정도이고, 이들은 융점근처에서는 미립자 상태로 되어 배관벽에 침착되어 버리기 때문에 융점보다 고온인 700 °C를 유지시키면 거의 대부분의 요오드화세슘은 기체상태로 된다. 기체상태로 된 휘발성 방사성물질은 750 °C ~ 200 °C로 제어되고 있는 열구배관의 후단에 있는 방사성 미립자 포집계에서 제거된다[67]. 또한 방사성 요오드는 0°C를 유지하고 있는 활성탄층에서 포집되고 건조기를 거친후 -70 °C이하(Fluorine 화합물을 이용하여 냉각함)로 냉각된 활성탄 층에서 불활성 기체인 Kr이 포집된다. 건조기 내부와 저온 활성탄 층가 사이에 Ge semiconductor detector를 설치하여 방출되는 감마선을 연속으로 측정한다.

이 장치는 일부의 제어용 기기를 제외하고는 좁은 핫셀내에 설치되며, 좁은 공간에서 3,000 °C에서 -70 °C 까지의 온도를 제어하지 않으면 안되기 때문에 대단히 어려운 실험이다. 또 승압하는 경우에 방사성 물질이 외부로 누출되지 않도록 설계하는 것도 대단히 어려운 일이었으며 따라서 장치의 설계에서 완성까지 약 3년의 시간이 걸렸다. 장치 완성 후에도 실제 사용후핵연료를 사용하여 실험하기 전에 비방사성 요오드화 세슘 미립자를 사용하여 실험을 수행, 장치의 성능을 확인하였다. 일단 실험장치를 핫셀내에 설치한 후에는 장치의 수리 및 근접 작업을 수행하기가 매우 어렵기 때문에 본 실험을 수행하기 전에 충분히 여유를 가지고 되도록 많은 부분을 점검하고 조정하였다.

## 2. 사용후핵연료 특성 및 시험 조건

테스트 시편의 최대 크기는 길이 6 cm, 직경 14.3 cm로서 핵연료봉이 있는 경우와 없는 경우의 두 가지 시편을 모두 사용하며, 시편의 사용 최대 무게는 약 100 g 이다. VEGA 시험에서 다루는 사용후핵연료는 PWR, BWR 및 MOX 핵연료로서 연소도는

26 ~ 61 GWd/tU 범위로 설정하였다. I-131과 같은 단반감기 핵종의 방출 거동을 평가하기 위해서는 핵연료 시편을 NSRR 혹은 JRR-3에서 제조사하여 사용하였다. 앞서 언급한 바와 같이, VEGA 테스트 조건은 최대 온도 3,000℃, 압력 0.1 ~ 1.0 MPa이며, 핵분열생성물의 방출특성 및 화학적 거동 변화에 미치는 공급 기체의 영향을 평가하기 위하여 He, H<sub>2</sub> 및 공기, 스팀등을 단독 또는 혼합기체를 공급하며 이때 공급 유량은 5 L/min로서 ORNL의 HI-VI 테스트(1 ~ 3 L/min)보다 더 높은 조건에서 시험하였다. 아울러 핵분열생성물의 방출 거동에 영향을 미치는 제어봉 재질(Ag, In, Cd 및 Boron) 및 연소도의 영향도 동시에 평가할 예정이다.

연소도 47 GWd/tU인 가압경수로형 사용후핵연료를 이용하여 1999년 9월부터 2001년 5월까지 VEGA-1 ~ VEGA-4 테스트를 수행하였으며, 시험 조건을 Table 4-1에 정리하였다.

Table 4-1. Test conditions of VEGA program

시험 항목	VEGA-1	VEGA-2	VEGA-3	VEGA-4
시험 일시	1999.9	2000.4	2000.10	2001.5
핵연료 시편	PWR 사용후핵연료 - 연소도 : 47,000 MWD/MTU - 냉각기간 : 6 ~ 6.5년 - 사용후핵연료 : 동일 Rod내 핵연료 약 10 g			
시험 조건				
-최대온도(K)	2,773	2,773	3,123	2,773
-압력(MPa)	0.1	1.0	0.1	1.0
-유량(ℓ/min)	1.0 <sub>STD</sub>	6.0 <sub>STD</sub>	1.0 <sub>STD</sub>	?
-분위기	He	He	He	Steam
온도 이력	- 2,000 K까지 1K/s 속도로 가열 - 2,000 K : 20분간 유지 - 2,300 K : 20분간 유지 - 2,773 K : 10분 유지(VEGA-1) - 2,773 K : 20분 유지(VEGA-2)		- 2,300 K : 1K/s 속도로 가열 - 2,300 K : 20분 - 2,773 K : 20분 - 3,123 K : 10분	
시험 목적	-기준 데이터 수집 -시설 성능시험	-고압조건에서 방출특성 시험	-고온조건에서 방출특성 시험	-산화분위기 시험 (ThO <sub>2</sub> 사용)

### 3. 방사능 측정 및 화학분석 항목

VEGA 테스트에서 수행하는 주요 분석 항목은 핫셀에서의 on-line 측정 및 조사후 시험으로 크게 구분되며, 이를 Table 4-2에 정리하였다.

Table 4-2. Items of radioactivity measurement and chemical analysis in VEGA tests

측정 항목	측정 대상
핫셀내에서 측정	
○ On-line 감마선측정(Germanium SSD) - 핵연료 및 필터 - 활성탄 포집장치 - 저온 활성탄 포집장치	Cs-137, I-131, Ba-140 등 I-131 Kr-85, Xe-133
○ On-line 산소/수소 농도 : 에어로졸 필터후	산소/수소
○ TGT와 필터에 포집된 부착물	Cs-137, I-131
○ Off-line 측정 : 도가니, 유도로 출구파이프, TGT	Cs-137, I-131, Ba-140
○ 질산용액 이용 파이프, 필터 용해	Sr
○ Off-line α-선 측정	악티나이드 원소
○ OGA (Quadruple Mass Spec.)	Noble gas
조사후 시험 항목	
○ Metallography, SEM/EPMA	핵연료
○ SEM/EPMA, SIMA	TGT, 필터
○ ICP-AES	용액내 Sr

### 제 3 절 시험 결과 및 분석

#### 1. 비방사성 CsI를 이용한 VEGA 시험장치 예비 테스트

조사된 핵연료 시편을 이용한 VEGA 시험 장치 테스트를 하기 전에 비방사성 CsI를 이용하여 본 장치의 성능 시험을 수행하였다. 이를 위하여 여러 위치(TGT와 에어로졸 제거용 필터박스전, 필터박스후, 응축기 전)에 SUS 316 coupons을 설치하고 아울러 TGT내부에 4개의 튜브를 장전하여 CsI의 침적(deposition)특성과 에어로졸 필터의 제거 성능을 살펴보았다. 온도 변화이력은 초당 1℃의 속도로 전기로를 가열하고 1,500℃에서 30분간 일정 온도를 유지한 후 거의 같은 속도로 냉각시켰으며, 60분이 경과한 후 핵연료로부터의 거리에 따른 CsI의 침적정도를 측정하였으며, 이때 coupons에 침적된 세슘과 요오드의 양은 이온 측정기와 액체 크로마토그래피를 이용하여 각각의 양을 구하였다.

침적정도를 보면, Fig. 4-7 에 나타낸 바와 같이 TGT(750℃ ~ 250℃ 온도범위)의 하단부분에서 크게 증가하다가(최대 40 mg/cm<sup>2</sup>) 필터에서는 약 100배정도(약

0.4 mg/cm<sup>2</sup>) 감소하였다. 즉 필터 제거 효율은 약 98%였으며, 세습과 요오드의 침적량은 TGT와 필터사이에 설치된 두개 튜브에서 거의 동일하게 나타났다[67]. 이상과 같이 CsI는 대부분 휘발하여 이동하고 초기 화학적 형태인 CsI로 침적되는 것으로 나타났다. 그러나 응축기 전단의 총 침적량중 세습과 요오드의 양이 각각 다르게 나타났는데, 이는 미량의 CsI가 습윤 분위기하에서 (수분이 불순물로 존재할 가능성이 있음) 용해됨으로서 필터에 포집되지 않은 기체상의 요오드(I<sub>2</sub>)가 발생하여 저온 응축기 전에서 모두 응축됨을 알 수 있었다. 이상의 결과로부터 유량이 높지 않을 경우 유도로 출구 파이프에 상대적으로 많은 양의 CsI가 침적될 것으로 판단되며, 에어로졸 형태의 핵분열생성물은 응축기까지는 이동되지 않을 것으로 판단하였다. 그러나 유도로 출구 파이프 부근에서 침적된 핵종을 감마 스펙트로메터로 연속 측정하는 것은 설계상 어렵게 되어 있기 때문에 향후 이러한 측정 시스템을 설치하고자 한다.

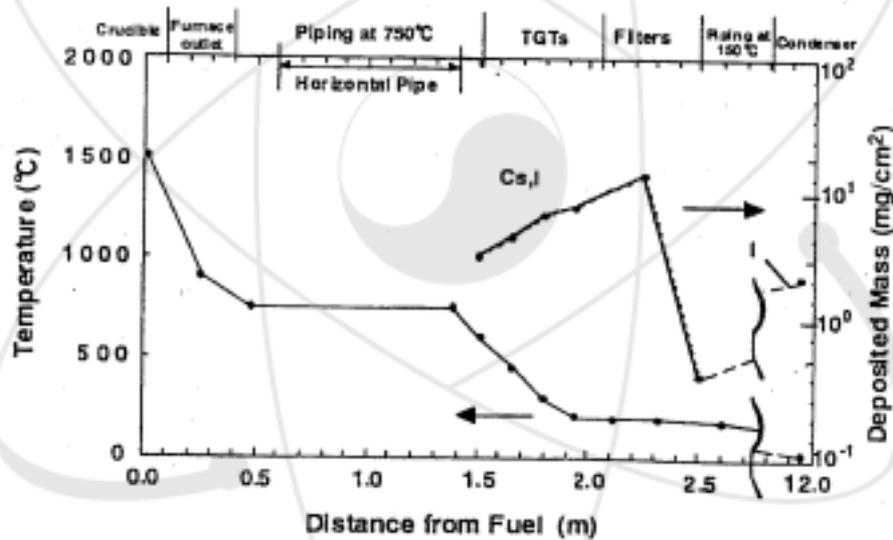


Fig. 4-7. Deposit mass and temperature at 60 min.

## 2. 조사된 핵연료를 이용한 VEGA 시험 결과

VEGA-1 ~ VEGA-4 시험 조건 및 핵종별 방출율을 Table 4-3에 정리하였다.

Table 4-3. Main results of fission product release rate in VEGA tests

시험 항목	VEGA-1	VEGA-2	VEGA-3	VEGA-4
시험 조건				
-최대온도(K)	2,773	2,773	3,123	2,773
-압 력(MPa)	0.1	1.0	0.1	1.0
-유량(ℓ/min)	1.0 <sub>STD</sub>	6.0 <sub>STD</sub>	1.0 <sub>STD</sub>	?
-분위기	He	He	He	Steam
온도 이력	- 2,000 K까지 1K/s 속도로 가열 - 2,000 K : 20분간 유지 - 2,300 K : 20분간 유지 - 2,773 K : 10분 유지(VEGA-1) - 2,773 K : 20분 유지(VEGA-2)		- 2,300 K : 1K/s 속도로 가열 - 2,300 K : 20분 - 2,773 K : 20분 - 3,123 K : 10분	
주요 핵종 방출율	- Cs : 85% - Eu : 0%	- Cs : 61% - Eu : 0%	- Cs : 99.7% - Eu : 0%	- Cs : 99.9% - Eu : 0%

### 가. 핵분열 생성물의 방출 특성에 미치는 압력의 영향 : VEGA-1,2 테스트

지금까지 세계 여러 나라에서 고온조건에서 조사된 핵연료로부터 핵분열생성물 방출 속도를 얻기 위한 시험은 장치 제작 및 운전의 어려움으로 인하여 상압에서 주로 수행하였고 이 결과를 이용하여 모델식에 필요한 상관식을 설정하고 고압조건에서의 선원항 계산 모델에 이를 동시에 적용하였다. 그러나 VEGA-1 및 2 테스트에서는 핵분열생성물의 방출거동에 미치는 압력의 영향 및 핵분열 생성물 방출 메커니즘을 분석하였다[68].

먼저 예비 실험으로서 가열후의 Fig. 4-2의 각 장치별로 감마선 세기 및 Kr-85 포집 정도를 여러 개의 감마선 측정기를 이용하여 구하였으며 필터에 포집된 세슘의 감마선 세기가 증가함에 따라 Kr-85의 감마선 세기도 동시에 증가하기 시작하였다.

VEGA-1, 2 테스트에서 시간에 따른 핵분열생성물의 방출 특성을 감마선 측정장치를 이용하여 연속으로 측정할 경우 피크 에너지 선명도(resolution)가 충분하지 않았는데 이는 고주파 유도로로부터 발생된 전기 파장의 영향 때문이다[68]. 따라서 시험후 튜브 및 필터 등에 침적된 핵분열생성물을 off-line으로 측정하여 **총괄 방출율**

(total fractional release)을 구하였다.

Fig. 4-8은 감마선 측정장치를 이용하여 시간에 따른 온도 변화 및 Cs 방출을 변화를 도식한 결과로서, 두 테스트가 비슷한 온도 이력을 거치고 있지만(단 최대 온도에서 온도유지 시간이 VEGA-2 테스트가 10분정도 더 길게 시험함) VEGA-1 테스트에서의 Cs 방출율보다 노내 압력이 1.0 MPa로 더 높은 VEGA-2 테스트에서 더 낮게 나타났다. 감마 에너지 피크를 이용하여 구한 Cs의 방출율(fractional release)은 85% (VEGA-1), 61%(VEGA-2)로 나타났는데, 시험중 Eu의 감마 에너지 세기는 거의 변함이 없었으므로 본 계산시 Eu은 전혀 방출되지 않는 것으로 가정하였다.

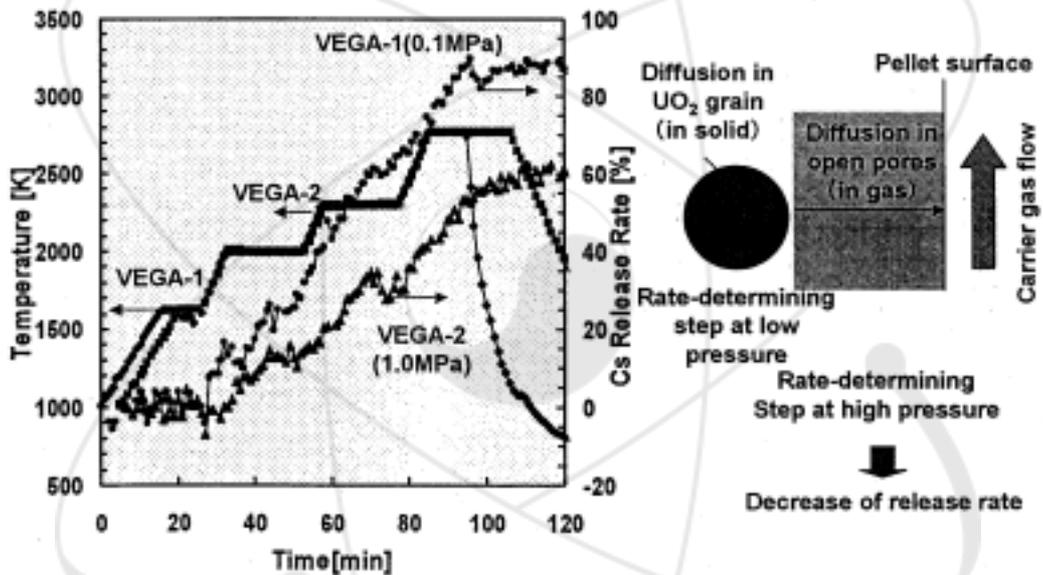


Fig. 4-8. Fuel temperature and Cs fractional releases measured in VEGA-1 and 2 tests.

이상과 같이 압력이 증가함에 따라 세슘의 방출율은 더 낮게 나타났는데, Booth 모델을 기본으로 한 방출속도 상수( $k$ , 1/min)와 확산 계수( $D$ ,  $m^2/s$ )를 도입하여 두 개의 시험 결과를 정성적으로 분석하고 다른 시험 데이터와 비교하였다. 방출속도 상수는 inventory와 비교하여 분당 방출된 분율이며[10], 확산계수는 Fick의 법칙을 바탕으로  $UO_2$  grain에서의 확산이 속도 율속단계(rate-determining step)로 가정하고 설정한 상수이다[69]. 그리고 미국 ORNL 시험 결과와 비교하기 위하여  $D$ 를 구하기 위하여 사용한  $UO_2$  grain 크기는  $6 \mu m$ 로 ORNL에서 사용한 값을 동일하게 하였다[10]. Fig. 4-9와 4-10은 온도 변화에 따른 방출속도 상수 및 확산계수의 변화를 도식한 결과인데, VEGA-2 테스트로부터 구한 상수들은 VEGA-1 테스트의 상수보다 약 1/4 정도 낮은 값을 보이고 있고 온도 변화에 따라 Arrhenius 법칙에 따르고 있음을 알 수 있다. 미국 ORNL에서 제시한 모델인 CORSOR-M[33], CORSOR-O 및 ORNL-Booth 모델[10] 결과와 비교하여 보면 전체적으로 온도 변화에 따른 속도상수 변화 기울기가 ORNL 모델보다도 VEGA 테스트 결과가 더 완만한 것으로 나타났다. 이러한 결과에 대한 해석을 보면, VEGA 테스트에서는 핵연료봉이 없이  $UO_2$  시편 자체만으로 시험하였기 때문에 상대적으로 낮은 온도에서 상수값이 ORNL 모델값 보다 높지만 ORNL 시험에서는 핵연료봉이 포함된 시편을 사용하였기 때문에 상대적으로 온도가 증가할수록 핵연료와 연료봉과의 용융반응에 의하여 핵연료 matrix에 영향을 미쳐 산화속도가 크게 증가하기 때문으로 해석하였다.

압력 변화에 따른 세슘의 방출속도의 차이를 보다 면밀히 분석하기 위하여 시험후 각 장치에 침적된 핵분열생성물의 양을 비교하였다. Fig. 4-11은 VEGA-1 및 2 테스트후 각 장치에 침적된 여러 종류의 핵분열생성물 분포를 off-line으로 측정된 결과이며, Fig. 4-12는 온도 변화에 따라 TGT에 침적되는 세슘 피크를 상호 비교한 결과이다.

VEGA-1 테스트의 경우 800K 부근에서 TGT에 상당량의 세슘이 응축되었으며 TGT-A, B, C에 모두 비슷한 양이 응축되었지만, VEGA-2 테스트의 경우는 상대적으로 적은 양이 응축되었다. 이러한 현상은 VEGA-2 테스트로부터 세슘 방출량이 VEGA-1 테스트때 보다 낮고 또한 헬륨 유량도 더 높기 때문으로 해석하였다. 아울러 여러 종류 세슘 화합물의 온도에 따른 증기압을 고려하여 볼 때 800K에서 응축량이 많은 것으로 보아 이 온도에서 휘발도가 높지 않은 CsI 형태로 응축된 것으로 판단되며, Cs-134와 Cs-137의 분포 특성은 비슷하게 나타났다.

TGT 등의 각 장치에 침적 또는 포집된 Cs-137의 정량적인 분포를 측정하기 위하여 질산용액에 각 장치를 넣고 용해시킨 후 감마선 측정을 수행한 결과, VEGA-1 테

스트의 경우는 TGT나 필터보다는 각 장치의 연결 부위 등 불특정 영역에 많은 양이 침적되었지만 VEGA-2 테스트의 경우는 TGT와 필터에 많은 양이 응축되어 있는 것으로 나타났다. 이러한 결과는 VEGA-1 테스트로부터 세습 방출량이 상대적으로 많고 유량도 낮기 때문에 불특정 부분에 침적/응축된 것으로 판단된다.

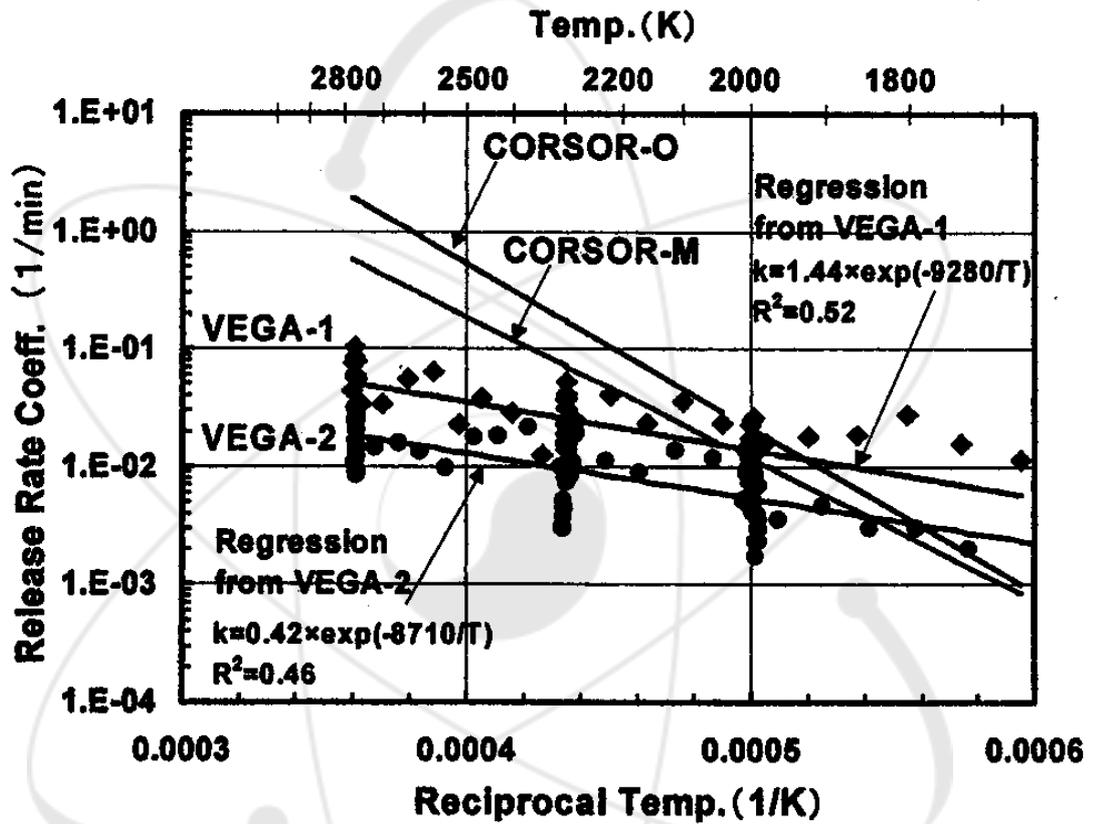


Fig. 4-9. Comparison of release rate coefficients for Cs between VEGA-1 and VEGA-2 tests.

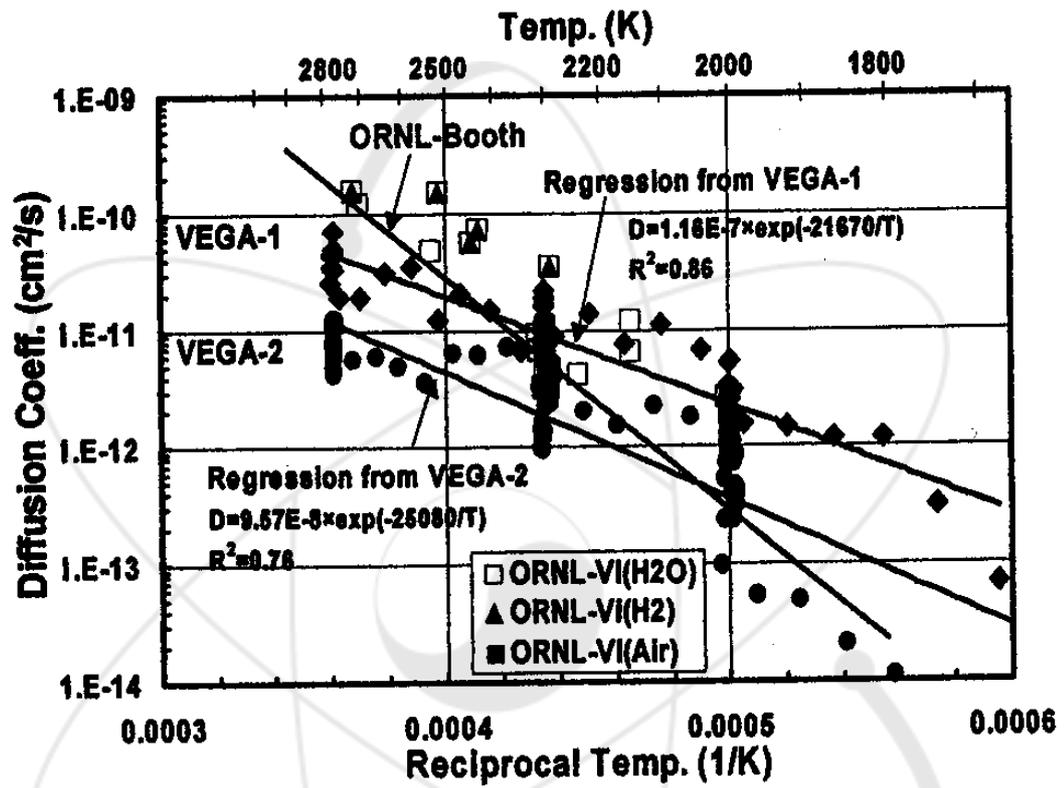


Fig. 4-10. Comparison of diffusion coefficients for Cs between VEGA-1 and VEGA-2 tests.

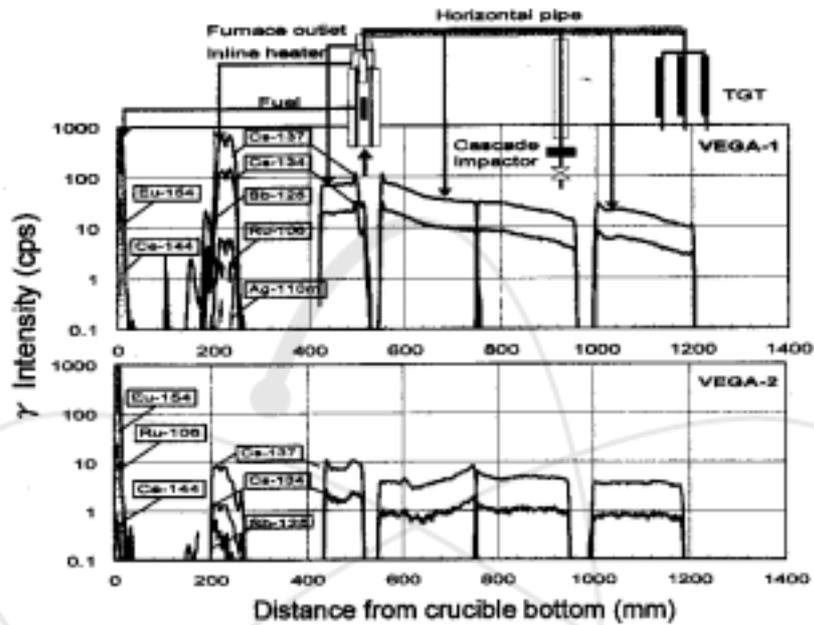


Fig. 9 Distribution of  $\gamma$ -ray intensity in VEGA-1 and -2 apparatus

Fig. 4-11. Distribution of  $\gamma$ -ray intensity in VEGA-1 and -2 apparatus.

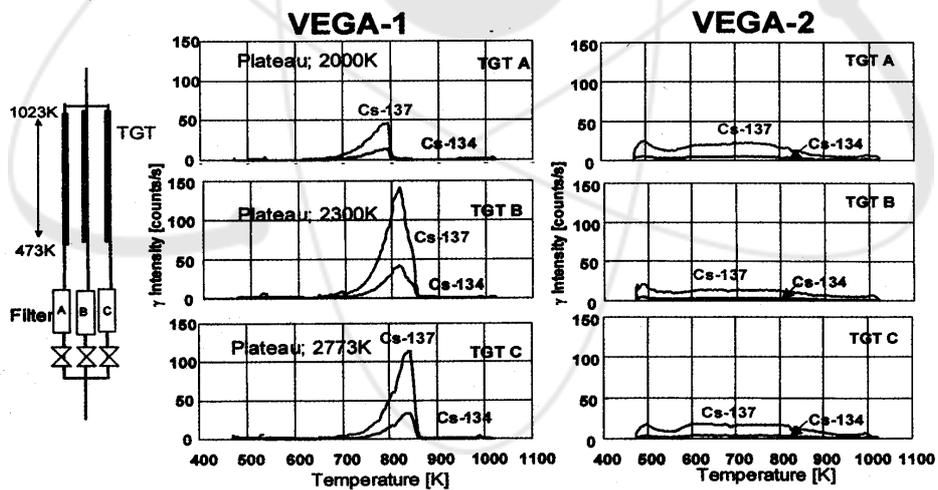
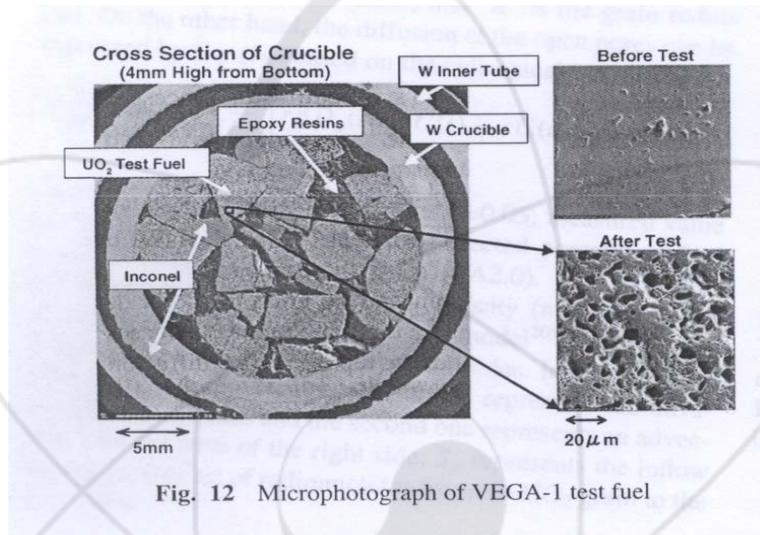


Fig. 10 Comparison of Cs deposition onto TGTs between VEGA-1 and -2 tests

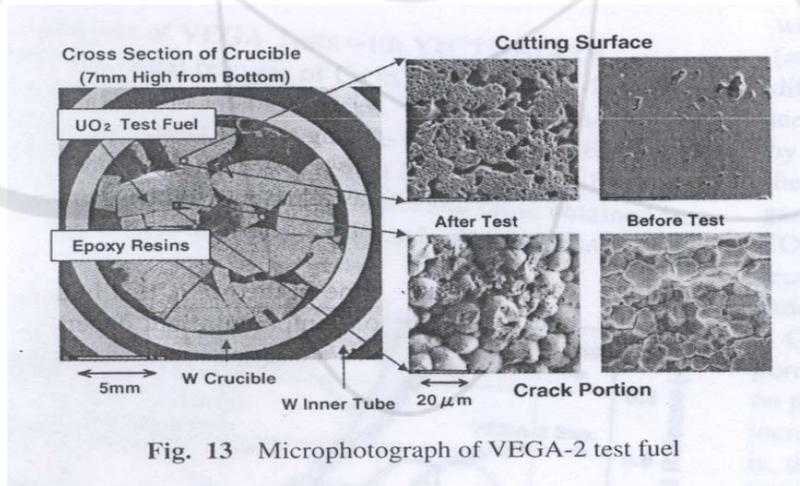
Fig. 4-12. Comparison of Cs deposition onto TGTs between VEGA-1 and VEGA-2.

시험이 완료된 후 도가니에 에폭시 수지를 첨가하여 핵연료의 미세 조직검사를 수행

하였는데, Fig. 13의 A(VEGA-1)의 사진을 보면  $UO_2$  grain내  $1\mu m$ 보다 적은 구멍과 입계(grain boundary)부근에  $10\mu m$ 보다 더 큰 구멍이 많이 생성됨으로서 핵분열기체 bubble의 연결 역할을 하여 핵분열생성물 방출속도가 증가한 것으로 보이며, VEGA-2 테스트이 경우는 grain이 ployhedral 형태에서 구형 형태로 바뀌어 있는 것으로 확인하였다. 그러나 미세 조직 시험결과만으로는 압력 증가에 따른 핵분열생성물 방출속도가 감소한 현상을 설명하기는 부족한 것으로 판단된다.



(A : VEGA-1 테스트)



(B : VEGA-2 테스트)

Fig. 4-13. Microphotography of VEGA-1, 2 test fuels.

### 3. VICTORIA 2.0 코드 모델에 의한 VEGA 테스트 시험 결과 분석

#### 가. 모델 개요

미국에서 핵분열생성물 방출특성을 해석하기 위하여 개발한 VICTORIA 코드 2.0을 이용하여 압력영향에 따른 VEGA 테스트 시험 결과를 해석하였다[70]. 본 코드는 2 단계 확산모델로서  $UO_2$  grain내에서 원자의 확산과 기공내에서의 기체 확산으로 나누어 모델링하였으며 그 개념도는 Fig. 4-14와 같다.

먼저 grain에서의 확산계수(D)와 기공에서의 확산계수( $D_g$ )를 온도와 압력의 함수로 표현하면 아래의 식 (1)과 같다.

$$D \propto \exp(-b/T), \quad D_g \propto \frac{T^{1.5}}{P} \quad (1)$$

여기서 b는 활성화 온도(K), T는 핵연료 온도(K), P는 압력(Pa)으로서  $D_g$  구하는 식은 이상기체 법칙으로 유도하였다.

VICTORIA 2.0 코드에서 grain내 임의 핵종 (i)의 확산은 아래의 식과 같이 구형으로 가정하였다.

$$\frac{\partial}{\partial t} C(i) = \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left[ r^2 D(i) \frac{\partial}{\partial r} C(i) \right], \quad (2)$$

여기서 C는 임의 핵종의 농도( $kg\text{-mol}/m^3$ )이고 r은 반경방향 거리이다. D 값은 미국 ORNL에서 개발한 ORNL-Booth 모델로부터 구하였다.

또한 기공에서 확산은 아래 식을 이용하였으며 실린더 형태의 축으로 가정하였다.

$$a \frac{\partial}{\partial t} C(i) = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left[ r \beta D_g(i) \frac{\partial}{\partial r} C(i) - r C(i) u \right] + S_p(i) \quad (3)$$

여기서 a는 핵연료의 총 기공율(제조된 핵연료의 측정값, 0.05 사용),  $\beta$ 는 핵연료내 상호연결된 기공율(interconnected porosity)로서 0.0001(VICTORIA 2.0 코드의 기본 값)으로 하였고, u는 반경방향 선속도(m/sec),  $D_g$ 는 Chapman-Enskog 모델로부터 구하였다.  $S_p$ 는  $UO_2$  grain으로부터 기공으로의 핵종의 inflow 속도( $kg\text{-mol}/m^3/s$ )을 의미한다[71].

Fig. 15는 Cs의 방출속도 데이터를 기준으로 하여 VEGA-1, 2 테스트 결과와 VICTORIA 2.0 코드 결과를 상호·비교한 그림이다. 그림에서 보는 바와 같이 ORNL-Booth 모델을 사용할 경우 VEGA-1, 2 테스트 계산 결과는 동일하게 나타났고 실험값보다 높은 값을 나타내었다. 아울러 VEGA-1, 2 테스트 결과로부터 구한 아

래의 확산계수 상관식을 사용하면 계산한 결과, VEGA-1 테스트 결과는 어느 정도 일치하지만 VEGA-2 결과와는 큰 차이를 보였다. 이상으로부터 VICTORIA 2,0 코드는 VEGA-2의 실험결과를 이론적으로 계산하기 힘든 것으로 판단된다.

$$D = 1.16 \times 10^{-7} \exp\left[-\frac{21,670}{T}\right], \text{ (VEGA-1 at 0.1 MPa, } R^2=0.86)$$

$$D = 9.57 \times 10^{-8} \exp\left[-\frac{25,080}{T}\right], \text{ (VEGA-2 at 1.0 MPa, } R^2=0.76)$$

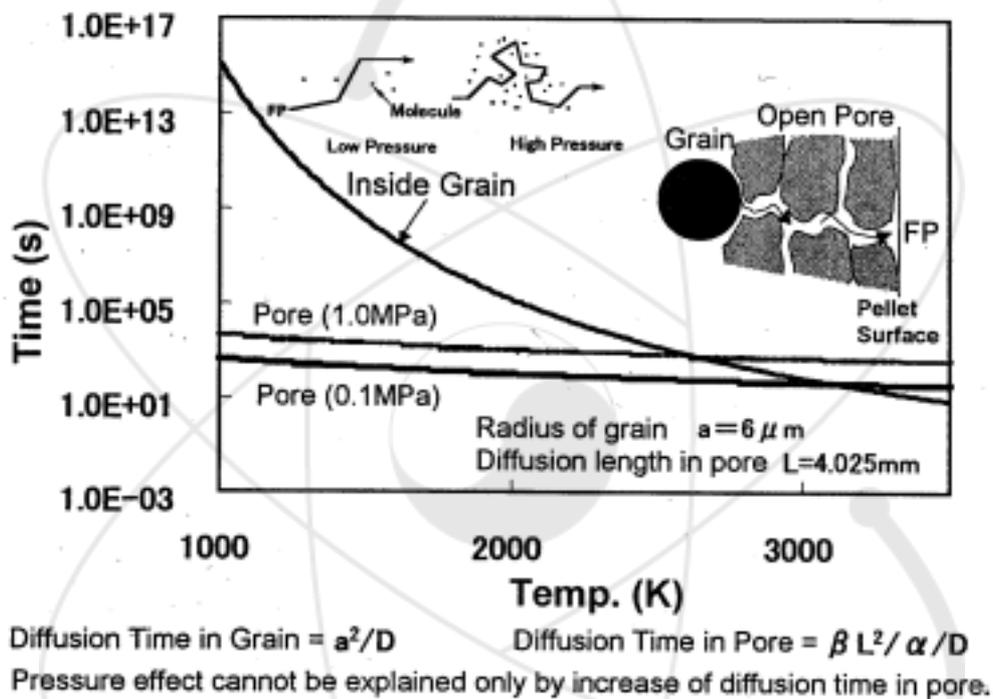


Fig. 4-14. Decrease of gaseous diffusion in open pores at elevated pressure.

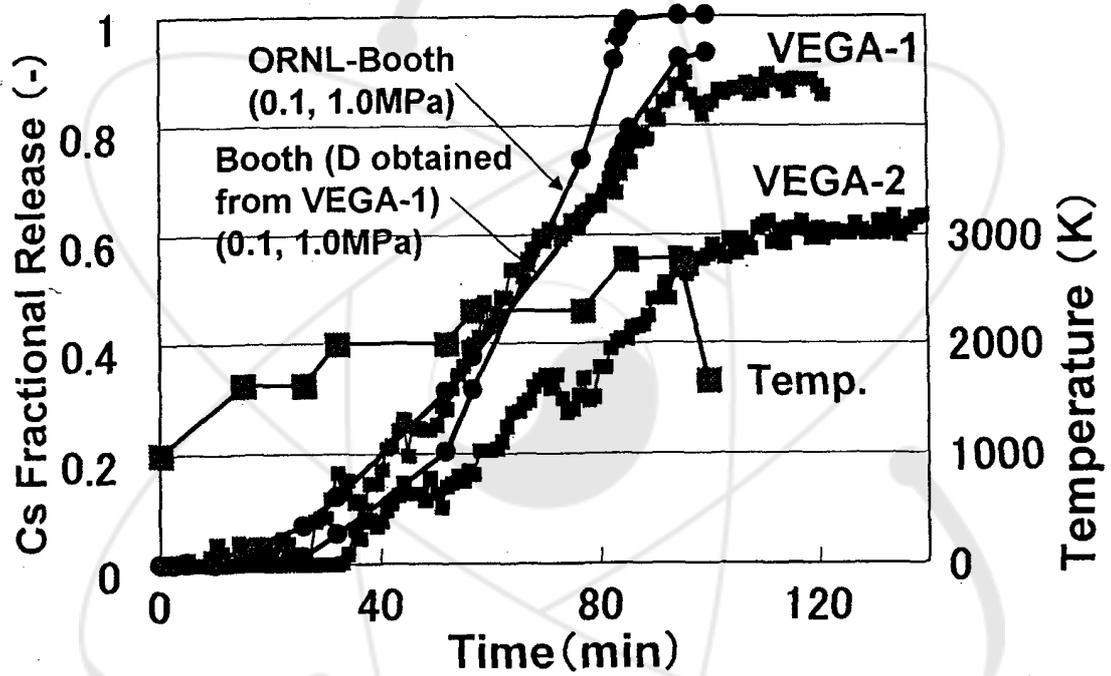


Fig. 4-15. Comparison of Cs release between VICTORIA 2.0 and VEGA tests.

나. VEGA 테스트 결과 예측을 위한 모델링

위에서 언급한 바와 같이 VICTORIA 2.0 코드를 사용할 경우 압력변화에 따른 핵분열생성물 방출 거동(VEGA-2 테스트)을 정밀하게 예측하기 어려운 것으로 나타났으므로 이러한 원인을 상세히 분석하고 핵분열생성물의 방출 거동에 미치는 압력의 영향을 평가할 수 있는 모델을 제시하였다(Fig. 4-16, 4-17 참조).

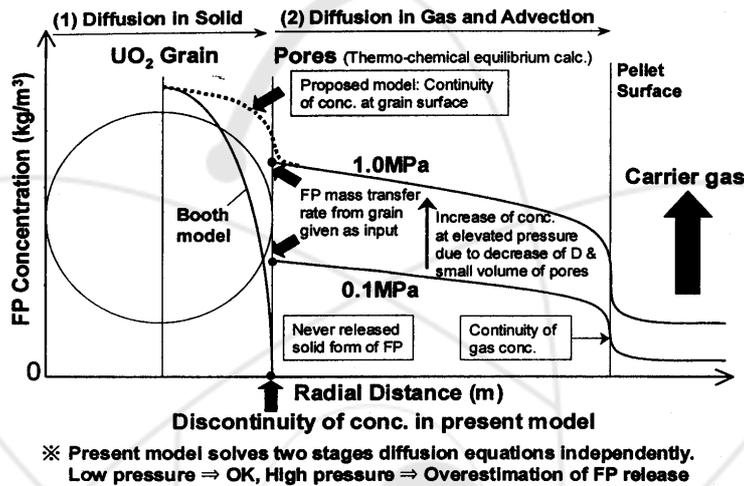


Fig. 18 FP release model in VICTORIA2.0

Fig. 4-16. Fission product release model in VICTORIA 2.0.

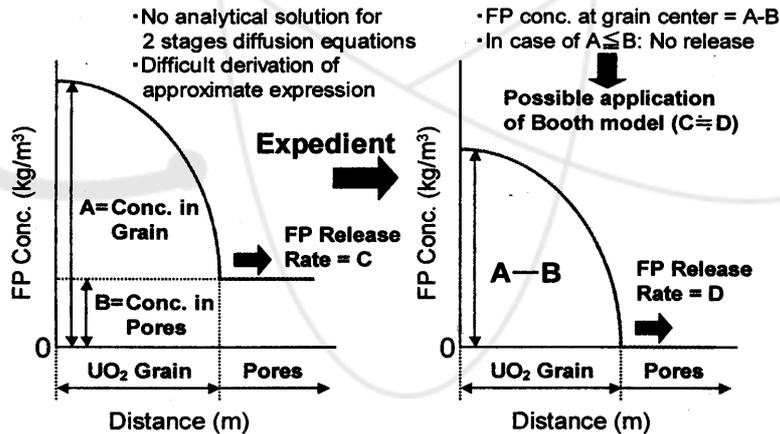


Fig. 19 Expedient for FP release rate calculation in case of FP concentration at UO<sub>2</sub> grain surface ≠ 0

Fig. 4-17. Expedient for fission product release rate calculation in case of FP concentration at UO<sub>2</sub> grain surface ≠ 0.

모델 설정시 주요 특성을 보면 다음과 같다.

- 확산현상에 미치는 압력의 영향을 평가하기 위하여 다음과 같이 고려하였다. Grain내 확산시간(diffusion time)은 압력에 무관하며, 2,600 K이하에서 매우 큰 값을 가진다. 그러나 기공내에서 확산시간은 충돌이론에 의하여 압력이 증가함에 따라 커지게 된다.
- Booth 모델에서는 grain 표면에서 핵분열생성물의 농도는 항상 “영”으로 가정하고 있으며 따라서 grain내의 농도 분포는 초기에 일정하여 압력의 영향을 고려할 수 없다.
- Open 기공에서 핵분열생성물 농도에 미치는 압력의 영향을 보면, 압력이 증가함에 따라 기체의 밀도가 증가하며 따라서 확산속도는 감소하게 된다(Pore volume < Grain Volume). 기공에서 핵분열생성물 농도는 압력증가에 따라 높아지며 대부분 압력에 비례관계를 갖는다. 그 예로서 1.0 MPa에서 open 기공에서의 Cs의 농도는 0.1 MPa보다 10배 이상 높다(Fig. 4-18 참조)

Fig. 4-19는 이상의 모델링을 통하여 구한 예비 계산 결과이며, 지속적인 보완이 요구됨을 알 수 있다.

## Concentration of Cs in UO<sub>2</sub> Grain and Pore (VICTORIA2.0 Calc.)

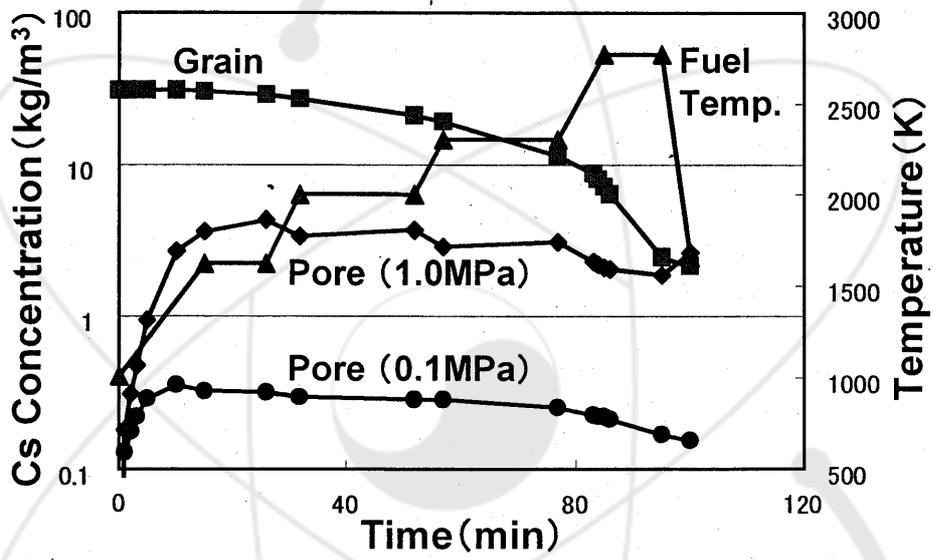


Fig. 4-18. Comparison of Cs in UO<sub>2</sub> grain and open pores.

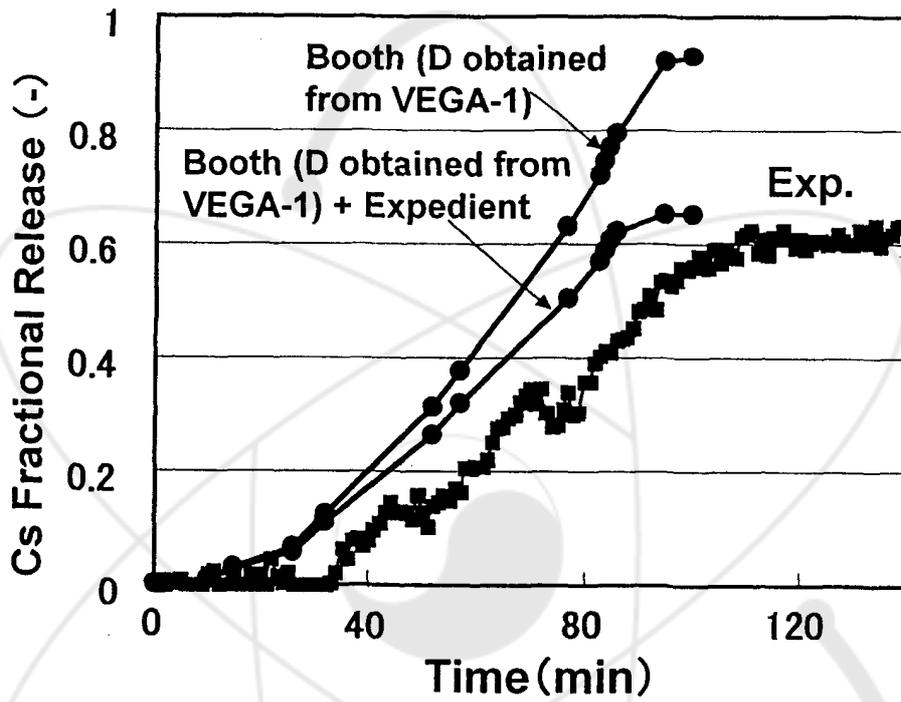


Fig. 4-19. Cs release calculation with expedient for elevated pressure VEGA-2.

#### 4. 핵분열 생성물의 방출 특성에 미치는 온도의 영향 : VEGA-1,3 테스트

온도가 증가함에 따라 핵분열생성물의 방출속도는 Arrhenius 법칙에 따르면 증가하는 것이 일반적인 현상이다. Table 4-1에 나타난 바와 같이 VEGA-1(2,773 K) 및 VEGA-3(3,123 K) 테스트의 온도이력에 따른 핵분열생성물의 방출 특성을 비교·평가하였는데, 시간에 따른 Cs의 방출 이력을 Fig. 4-20에 도식하였다. 두 테스트에서 세슘 방출율은 99.8%(VEGA-3), 85%(VEGA-1)이었으며, 시험이 완료된 후 off-line 측정으로 구한 총괄 방출율을 Table 4-4에 종합 정리하였다[72]. 앞서 언급한 바와 같이 온도가 증가함에 따라 방출율이 높아졌으며 온도에 따른 방출속도를 정량화한 결과, 다음과 같이 온도-방출속도 상관식을 얻어내었고 이러한 상관식은 모델 식에 입력자료로 활용된다. 그러나 사용후핵연료의 특성별로 상관식이 다르게 나타날 수 있으므로 이를 일반화하기 위해서는 보다 많은 데이터가 생산되어야 한다.

$$k = 1.45 \times \exp\left[-\frac{9.29 \times 10^3}{T}\right], \quad (\text{VEGA-1, } 1,623 \text{ K} \leq T \leq 2,773 \text{ K})$$

$$k = 0.25 \times \exp\left[-\frac{5.75 \times 10^3}{T}\right], \quad (\text{VEGA-3, } 1,623 \text{ K} \leq T \leq 3,100 \text{ K})$$

Table 4-4. Preliminary data on fractional release estimated from intensity change of  $\gamma$ -peaks obtained by off-line measurement

Nuclide	$\gamma$ -ray Energy (keV)	VEGA-1		VEGA-2		VEGA-3		VEGA-4		VI-3*
		Released (%)	Error (%)	Released (%)						
Cs-134	605	85	0.1	62	0.3	99.5	0.08	98.9	0.4	99.9
Cs-137	662	86	0.1	61	0.2	99.5	0.03	93.4	0.13	
Ru-106	622	0.05	7.2	0	8.5	0	19.0	52	18.7	5
Ce-144	696	0	53.8	0	17.2					<0.2
Eu-154	724	0	4.4	0	5.0	0	0	0	7.1	<0.01
	1275	0	3.0	0	2.0	0	0	0	3.8	

\* ORNL 테스트 VI-3 : 2,700K (20분), 스팀 분위기

Fig. 4-22는 VEGA-1, 2, 3, 4 테스트 결과를 종합정리하여 온도에 따른 방출 속도 상수 변화를 도식한 결과이다.

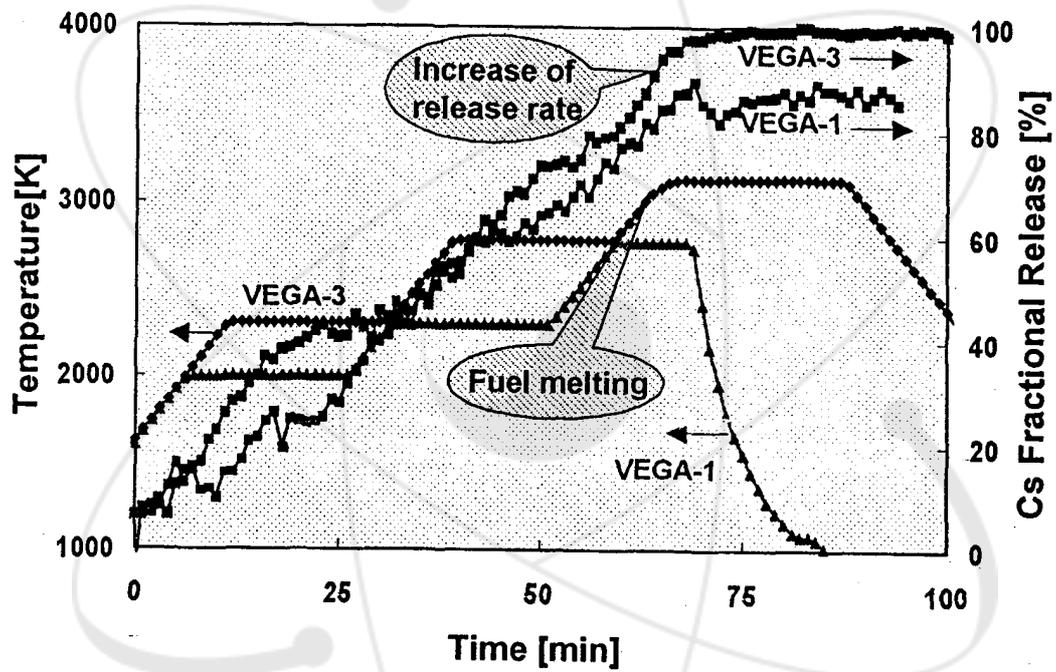


Fig. 4-20. Fractional release of Cs and fuel temperature histories of VEGA-1 and VEGA-3 tests.

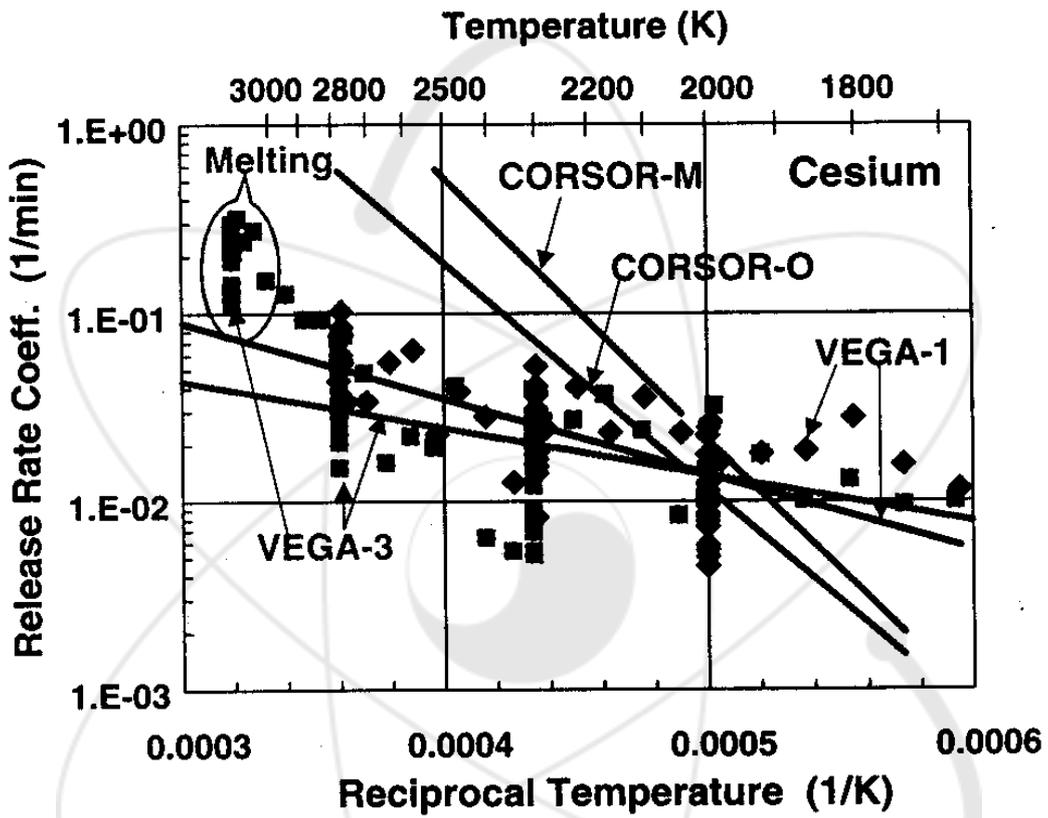


Fig. 4-21. Comparison of release rate coefficient of Cs between VEGA-1 and -3 tests.

#### 제 4 절 향후 수행 계획

지금까지 수행한 VEGA 테스트에서는 사용후핵연료로부터 온도 및 압력 변화에 따른 반감기가 어느 정도 긴 감마 핵종들의 방출 특성을 평가하였는데, 향후에는 다음과 같은 시험 내용을 수행할 예정이다.

- 사용후핵연료를 재조사하여 단반감기 핵종 및 비휘발성, 핵분열 생성물, 악티나이드 원소들의 방출 특성 평가
- 고연소도  $UO_2$  및 조사된 MOX 핵연료를 핵분열생성물 방출 특성 : 온도, 압력, 기체 분위기 변화에 따른 영향



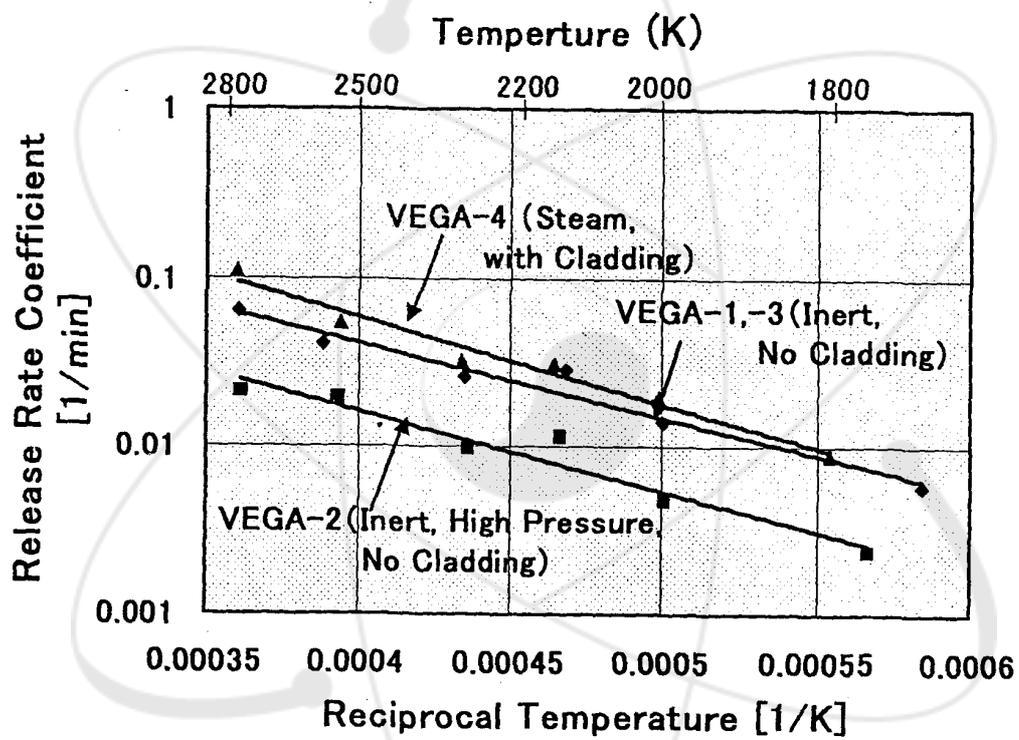
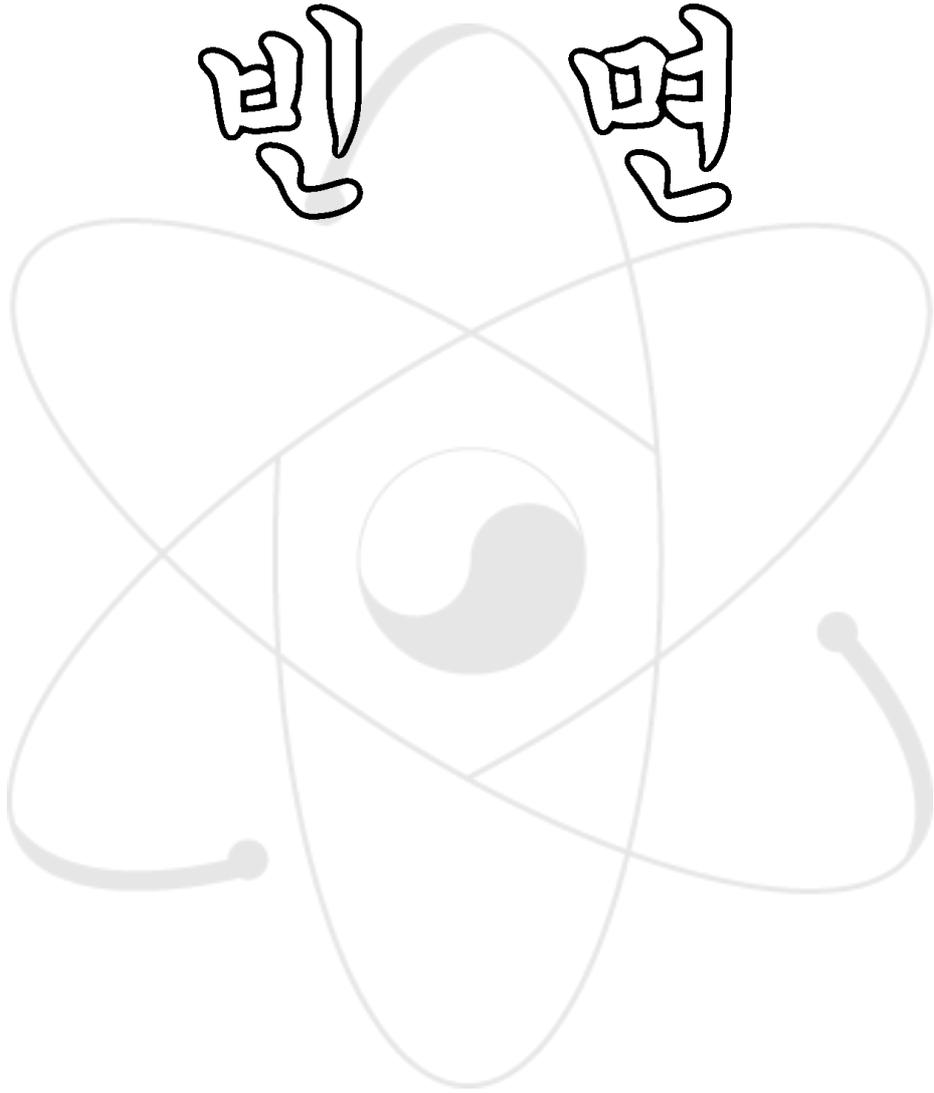


Fig. 4-22. Comparison of Cs release rate coefficient in all VEGA tests.

심명



## 제 5 장 영국 AEA 연구 동향

### 제 1 절 개 요

영국 AEA가 핵분열생성물의 방출과 이동 특성 분석을 위하여 최근에 개발한 코드(CSNI-SOAR)는 핵연료의 산화가 핵분열생성물의 방출에 미치는 영향을 충분히 설명하지 못하는 것으로 파악되어 핵분열생성물 방출모델들을 개선하기 위해서는 더 많은 실험 자료가 필요하다는 사실을 확인하였다. 따라서 고온의 산화분위기 하에서 주요 핵분열생성물에 관한 방출자료를 확보하여 핵분열생성물의 방출거동 및 이동경로를 규명하고자 하였다. 모델 개선을 위한 실험 데이터를 얻기 위하여 650℃~1,400℃ 온도범위, 공기 분위기에서 주요 핵분열생성물(Kr, Ru, I, Cs)의 방출동특성을 측정하는 16회 실험을 수행하였으며, 주로 요오드(Iodine)의 방출거동에 초점을 맞추었다. 각 실험에 사용한  $UO_2$ 는 냉각기간이 3년으로 직접  $^{131}I$ 의 방출율을 측정하는 것이 불가능하였으며 따라서  $^{129}I$ 의 방출율 측정으로부터 간접적으로 추정하였다. 자료의 데이터베이스를 구축하기 위하여 1) 핵분열생성물의 방출분율 및 방출 메카니즘, 2) Fault sequence 중 온도 변화의 영향, 3) 수증기 분압의 영향등을 평가하였고, 연구의 효율성을 증진시키기 위하여 핵분열생성물 방출모델 FPREM(Task B2)의 개발도 수행하였다.

### 제 2 절 시험장치 및 방법

#### 1. 시험 장치

Fig. 5-1은 실험장치의 개략도이며, 공기분위기 하에서 1,173K까지 가열할 수 있고 차폐성능이 우수한 single zone 형태 SiC Resistance 가열로를 사용하였다.

핵연료 시료는 1992년 10월 Hinkly Point 'B' AGR로부터 방출된 평균 연소도 26,000 MWD/MTU의 사용후핵연료로서, 시료의 무게는 대략 2~3g( $UO_2$ ) 범위로 가열 실험 전후의 무게를 측정하였다(100 $\mu$ g resolution, A200S 모델의 Sartorius

balance). 시료는 Ar/4%H<sub>2</sub> 분위기 하에서 약 0.2Ksec<sup>-1</sup>의 비율로 가열되며, 기체 유량은 0.25 L/분을 유지하였다.

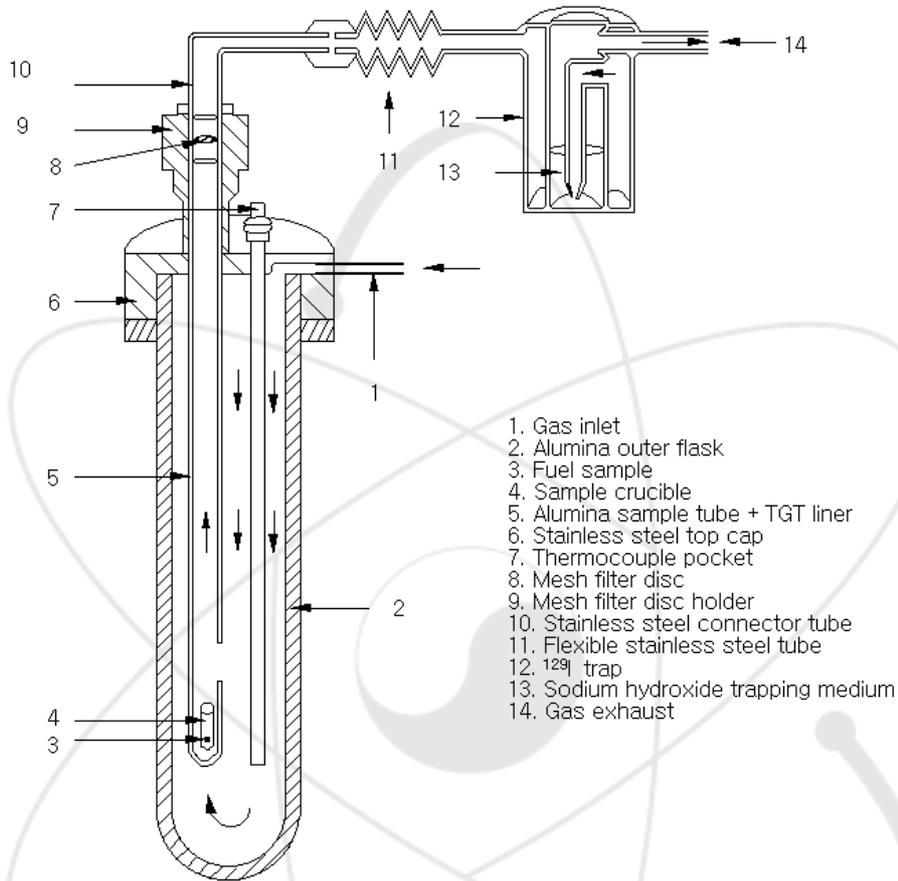


Fig. 5-1. Schematic diagram of oxidation apparatus and iodine trap.

핵연료 시료는 외경 15.6mm, 길이 25.4mm인 알루미나 도가니 내에 담고, 도가니는 외경 26mm, 길이 340mm인 한쪽 끝이 막힌 알루미나 관 내부 바닥에 놓는다. 알루미나 관에는 끝이 막힌 부분으로부터 대략 30mm쯤 되는 지점에 원주방향으로 2개의 구멍이 뚫려있다. 이는 핵연료 시료가 놓여있는 위치로 기체가 유입되고 열구배관(TGT)으로 올라가 TGT에 응축될 수 있도록 하기 위해서이다. 시료를 가열한 후에는 알루미나 관의 막힌 부분을 깨뜨려 TGT를 분리해 낸 후 분석하였다. 도가니 역시 알루미나 관으로부터 꺼내어 무게를 측정하였다. 외부지름이 5.5 mm이고 길이가 같은 또 다른 알루미나 관은 Pt/Pt 13%Rh thermocouple 설치를 위해 사용하였다.

핵연료 시료로부터 방출되는 휘발성 핵분열생성물들은 TGT 표면에 응축된다. 전기로 내의 온도변화에 따라 핵연료 시료로부터 방출되는 원소 또는 화합물의 종류가 달라져 이들을 분리하여 분석하는 것이 가능하지만 본 실험에서는 이러한 작업을 생략하고 오로지 TGT 내의 총 방사능 값을 측정하였다. TGT의 하류 쪽에는 TGT에 응축되지 않고 남아 있는 휘발성 핵분열생성물들을 포집하기 위하여 두 개의 필터를 설치하였다. 첫 번째 필터는 Bekipore ST7AL3 스테인레스 스틸 망으로 된 디스크 형태이며, “O” 링을 사용하여 밀봉하고 TGT 하류 쪽에 설치하였다. 두 번째는 Pyrex 재질 반응기에 약 50ml의 NaOH+Na<sup>127</sup>I의 수용액을 채워 요오드를 포집한다. 요오드 포집장치 전후에는 지름 6mm, 길이가 100mm인 스테인레스 스틸 배관을 연결하였다. 본 실험에서는 첫 번째와 두 번째 정지 기간 후에 전기로를 실온으로 냉각시키고 필터와 TGT를 교환하였다.

장치로부터 방출되는 배기가스를 기체 취급 장비로 통과시켜 방출되는 Kr-85를 연속적으로 검출한다. 기체 취급장비 내에서 배기가스는 DMI-2 Photomultiplier 튜브 어셈블리와 연결된 Nuclear Enterprise NE802 scintillator flow cell을 통과하게 된다.

## 2. 시험 조건

전체 실험은 다음과 같이 13회의 핵분열생성물 방출 실험으로 구성된다.

- 650 ~ 900 °C 온도범위 : 9회 실험(UK funded programme)
- 1,000 °C : 2회 실험
- 1,200 °C : 1회 실험
- 1,400 °C : 1회 실험

650 °C ~ 900 °C 온도범위에서 실험은 주로 공기분위기 하에서 90분, 7시간 및 40 시간동안 특정 온도에서 등온상태를 유지하면서 수행하였다. 시험 과정중 시간에 따라 필터에 포집된 <sup>129</sup>I의 방사능을 연속으로 측정할 수 없었기 때문에( $\beta$ -선 방출 핵종으로 반감기가 길어 에너지가 낮기 때문) <sup>131</sup>I의 방사능을 추정할 수 없었다. 이를 보완하기 위하여 부분적인 반복 프로그램을 실행하였다. 처음 승온과정에서는 불활성 또는 환원분위기 상태를 유지하였으며 2번째 및 3번째 승온과정에서는 공기분위기 상태를 유지하였다. 감온과정은 모두 공기분위기 하에서 진행되었다.

900 °C ~ 1,400 °C 온도범위에서 실험들은 특정 온도에서 90분간 등온상태를 유지하면서 수행되었으며 <sup>85</sup>Kr, <sup>106</sup>Ru, <sup>129</sup>I 및 <sup>137</sup>Cs의 방출 분율과 산화 전후 핵연료 시료의 질량변화를 측정하였다.

### 3. 분석 절차

#### 가. TGT (Thermal Gradient Tube)

TGT는 금(고온의 실험용에는 백금)으로 만든 박막으로 핵연료 시료가 놓여지는 알루미늄 re-entrant 튜브에 연결되어 있다. 실험 후 알루미늄 관으로부터 TGT를 분리하여 화학분석을 수행하였다. TGT를 왕수(aqua regia)에 용해시키기 전에  $\text{NH}_4\text{OH}$ 와  $\text{H}_2\text{O}_2$  용액에 먼저 침출시키고, 용해액과 침출액에 대하여 각각 감마선 분석을 수행하였다.  $^{129}\text{I}$  분석은 암모니아 용액을 사용하여 ICP-MS(Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)를 이용하여 수행하였으며, 용액들의 높은 방사능과 실험실내 취급상 문제로 인하여  $^{129}\text{I}$ 에 대한 분석 수행 이전에 용액으로부터  $^{106}\text{Ru}$ 와  $^{134,137}\text{Cs}$ 를 제거하여야 한다. ICP-MS를 이용하여 측정된 단위부피당  $^{129}\text{I}$ 의 질량 값은 궁극적으로  $^{129}\text{I}$  표준용액을 이용하여 구한 단위 질량당 방사능 값을 사용하여 절대 방사능으로 전환하고 이를 이용하여 요오드 방출율을 계산하였다.

#### 나. 필터 디스크(Stainless steel filter discs)

반복실험을 600, 750, 900°C 온도에서 3회씩 수행하였다.  $^{129}\text{I}$ 를 분석하기 위하여 90분 및 7시간 산화 후 필터 디스크와 연결 배관을 분리하여 화학분석을 수행하였다. 실험 종료 후에는 TGT, 필터 및 포집장치 모두에 대해 화학분석을 수행하였다. 필터 디스크는 NaOH 용액에 침출시켜 방사능을 감소시킨 후 그 침출액을 ICP-MS를 이용하여 분석하였다. 그 후 필터 디스크(Bekipore ST7AL3)를 다시  $\text{HNO}_3:\text{HCl}$ 의 용액 내에서 용해시킨 후 감마선 분석으로 방사능을 측정하였다.

#### 다. 요오드 포집용액

요오드 포집용액의 방사능은 매우 낮기 때문에 직접 ICP-MS에 의해 분석한다.

#### 라. 요오드 포집장치 입구 및 출구배관

요오드 포집장치 입구 및 출구배관 내부는 NaOH 용액으로 세척하고 세척액을 희석하여 ICP-MS를 이용하여 분석하였다. 고온 프로그램에서는 입구 측 배관에 대해서만 요오드 분석을 수행하였다.

#### 마. Kr의 방출량 결정

온도 1,400°C, 공기 분위기 하에서 핵연료를 90분 동안 산화시키는 과정에서  $^{85}\text{Kr}$ 에 대한 방출율을 얻었으며, 이때  $^{85}\text{Kr}$ 은 완전히 방출되었다고 가정하였다.  $\beta$

scintillation counter에 의하여 온라인 상으로 측정된 누적 counts를  $^{85}\text{Kr}$ 의 질량에 대해 표준화하고, 이후 실험에서 보정인자로 사용하였다.

#### 바. 실험적 불확실성

실험과정에서의 나타날 수 있는 불확실성은 다음과 같다.

- 온도의 측정은  $\pm 10\text{K}$ 의 오차 범위를 가진다.
- 통상적인 감마선 분석에 대한 불확실성은  $\pm 10\%$ 을 초과하지 않는다. 그러나, 본 실험에서는 낮은 감마 방사능을 측정하기 때문에 오차는  $\pm 10\%$ 를 초과할 것으로 생각된다.
- ICP-MS 기술을 이용한 요오드 검출한계는 용액 내에서  $1\text{ ng/ml}$ ( $0.2\text{Bq}$  이하)이다.  $10\text{ ng/ml}$  이상의 요오드를 포함하고 있는 용액을 분석하는 경우 분석치의 오차 범위는 20%정도이다. 요오드 방출율이 0.23% 이상인 경우에는  $10\text{ ng/ml}$  이상의 요오드를 포함하는 것으로 판명되어 오차범위는 20%정도일 것으로 생각되나, 요오드 방출율이 0.23% 이하인 경우에는 20%를 초과할 것으로 생각된다.

### 제 3 절 시험 결과 및 분석

#### 1. 초기 시험자료

9회 실험조건을 Table 5-1a에 나타내고, 핵분열생성물에 의한 무게손실을 보정하지 않은 무게 감량 데이터를 Table 5-2a에 나타내었다. 반복 실험에 의해 수행된 실험 자료를 Table 5-1b와 Table 5-2b에 정리하였고, 고온 프로그램 자료는 Table 5-1c와 Table 5-2c에 나타내었다. Table 5-2a와 5-2b로부터  $900^\circ\text{C}$  이하에서 수행된 모든 실험에서  $\text{UO}_2$ 의 상당량이 실험 시작 후 90분 이내에  $\text{U}_3\text{O}_8$ 로 전환됨을 분말의 무게 측정으로부터 알 수 있었다.

측정에 의한 핵분열생성물 재고량과 FISPIN에 의한 핵분열생성물의 재고량을 Table 5-3에 나타내었고  $\nu$ -spectroscopy 측정과 관련된 오차를 Table 5-4에 나타내었다.

Table 5-1a Summary of experimental conditions in main programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Temp °C	Atmosphere		Duration
			Ramp	Test	
NFB02#1/1	2.9261	650	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#1/2	3.0472	650	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	7 hr
NFB02#1/3	3.0482	650	Air	Air	40 hr
NFB02#2/1	2.7903	750	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#2/2	2.9032	750	Air	Air	7 hr
NFB02#2/3	2.9035	750	Air	Air	40 hr
NFB02#3/1	2.8697	900	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#3/2	2.9660	900	Air	Air	7 hr
NFB02#3/3	2.9768	900	Air	Air	40 hr

Table 5-1b. Summary of experimental conditions in partial repeat programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Temp °C	Atmosphere		Duration
			Ramp	Test	
NFB02#10/1	2.8712	650	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#10/2	Not measured	650	Air	Air	7 hr
NFB02#10/3	Not measured	650	Air	Air	40 hr
NFB02#20/1	2.8708	750	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#20/2	Not measured	750	Air	Air	7 hr
NFB02#20/3	Not measured	750	Air	Air	40 hr
NFB02#30/1	3.1275	900	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
NFB02#30/2	Not measured	900	Air	Air	7 hr
NFB02#30/3	Not measured	900	Air	Air	40 hr

Table 5-1c Summary of experimental conditions in High temperature programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Temp °C	Atmosphere		Duration
			Ramp	Test	
CP/022#1/1	2.8108	1,000	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
CP/022#1/2	2.8917	1,000	Ar/4%H <sub>2</sub>	Ar/4%H <sub>2</sub> +H <sub>2</sub> O	90 min
CP/022#1/3	2.0635	1,250	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min
CP/022#1/4	2.0323	1,250	Ar/4%H <sub>2</sub>	Air	90 min

Table 5-2a. Gravimetric data in main programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Mass after* g(UO <sub>2</sub> )	Cumulative weight change g(UO <sub>2</sub> )	Observations
NFB02#1/1	2.9261	3.0472	0.1211	
NFB02#1/2	3.0472	3.0482	0.1221	
NFB02#1/3	3.0482	3.0440	0.1179	Fine particulate in filter disc mesh.
NFB02#2/1	2.7903	2.9032	0.1129	
NFB02#2/2	2.9032	2.9035	0.1132	
NFB02#2/3	2.9035	2.9065	0.1162	Fine particulate in filter disc mesh.
NFB02#3/1	2.8697	2.9660	0.0963	
NFB02#3/2	2.9660	2.9768	0.1071	
NFB02#3/3	2.9768	2.9768	0.1071	Fine particulate in filter disc mesh.

\* uncorrected for fission product loss

Table 5-2b. Gravimetric data in partial repeat programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Mass after* g(UO <sub>2</sub> )	Cumulative weight change g(UO <sub>2</sub> )	Observations
NFB02#10/1	2.8712	Not measured	-	
NFB02#10/2	Not measured	Not measured	-	
NFB02#10/3	Not measured	2.9892	0.1180	
NFB02#20/1	2.8708	Not measured	-	
NFB02#20/2	Not measured	Not measured	-	
NFB02#20/3	Not measured	2.9860	0.1152	
NFB02#30/1	3.1275	Not measured	-	
NFB02#30/2	Not measured	Not measured	-	
NFB02#30/3	Not measured	3.2413	0.1138	

\* uncorrected for fission product loss

Table 5-2c. Gravimetric data in high temperature programme

Sample	Mass before g(UO <sub>2</sub> )	Mass after* g(UO <sub>2</sub> )	Observations
CP/022#1/1	2.8108	2.8708	Black deposit in centre of mesh disc.
CP/022#1/2	2.8917	2.8960	
CP/022#1/3	2.0635	2.1131	
CP/022#1/4	2.0323	Not measured	Black deposit in centre of mesh disc.

Table 5-3. Initial fission product inventory

Radionuclide	Measured inventory Bqg <sup>-1</sup> (U)	FISPIN inventory* Bqg <sup>-1</sup> (U)
<sup>106</sup> Ru	1.16E+10	1.11E+10
<sup>125</sup> Sb	1.58E+08	2.05E+08
<sup>129</sup> I	NM	8.54E+02
<sup>134</sup> Cs	2.70E+09	4.60E+09
<sup>137</sup> Cs	2.97E+09	2.99E+09
<sup>144</sup> Ce	2.61E+10	1.60E+10
<sup>154</sup> Eu	9.16E+07	3.06E+08
<sup>155</sup> Eu	9.61E+07	2.23E+08
<sup>241</sup> Am	4.36E+07	5.67E+07
<sup>242</sup> Cm	1.70E+09	1.66E+09
<sup>244</sup> Cm	1.36E+07	9.62E+07

NM = Not Measured.

\*Figures scaled prorata from 27GWdtU<sup>-1</sup> calculations

Table 5-4. Errors associated with gamma spectroscopy analysis

Activity Level	Nuclide (%error)					
	<sup>106</sup> Ru	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>154</sup> Eu	<sup>155</sup> Eu	<sup>241</sup> Am
1.00E+08	8.6	6.2	6.6			
1.00E+07	9.3	6.3	6.4			
1.00E+06	10	6.5	6.5			
1.00E+05	12	6.2	6.4	6.6	10	9
1.00E+04	14	6.3	6.4	7.5	12.5	11
1.00E+03	31	6.2	6.5	8	18	10
1.00E+02		8	7			12
1.00E+01		12	8.4			
1.00E+00		12	12.5			

These values are the combination of counting and processing errors.

## 2. Particulate에 의한 오염영향 보정

열구배관이나 필터에 침적된  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  및  $^{137}\text{Cs}$  등의 방사능 정도를 측정하였다. 이때 열구배관의 내면이나 필터표면에서  $^{154,155}\text{Eu}$ 와  $^{241}\text{Am}$  등에 의한 방사능도 검출되었는데 이는 주로 핵연료로부터 산화 분위기를 유지하기 위하여 흘려보내는 가스 내에 부유하고 있던  $^{154,155}\text{Eu}$ 와  $^{241}\text{Am}$  입자들이 열구배관의 내면이나 필터표면에 들러붙었기 때문이다. 이 입자들에 의한 영향을 보정하기 위하여 MDA(Maximum Detectable Activity)정도의  $^{154}\text{Eu}$ 를 포함하고 있는  $^{106}\text{Ru}$ 와  $^{137}\text{Cs}$ 에 대한 방사능 양을 계산한 후  $^{106}\text{Ru}$ 와  $^{137}\text{Cs}$ 의 방사능 총량에서 이들의 양을 보정하였다.

요오드에 대해서는 이와 유사한 보정 작업을 할 필요가 없다. 왜냐하면 ICP-MS 분석에 앞서 용액으로부터 핵연료 미립자를 포함한 모든 주요한 방사선원을 제거하였기 때문이다. 따라서 요오드 방출량 결정에 있어서 핵연료 미립자 오염에 의한 영향을 받게 되는 경우는 요오드가 열구배관이나 필터 등의 화학적 처리 과정 중에 핵연료로부터 침출되어 나오는 경우에만 가능하다.

## 3. 핵연료생성물의 예상 방출량

방출되는 Cs과 Ru의 예상 방출량을 최대, 최소 백분율로 표시하여 Table 5-5에 나타내었다. 요오드 예상 방출량은 Table 5-6a, b 및 5-7에 나타내었다. Table 5-5부터 5-7에 나타낸 예상 방출량 자료는 실험이 계속되는 동안 감소해 가는 inventory를 고려하지 않은 것이다.

## 4. 시험결과 분석

본 실험의 주요목적은 고온의 산화상태(공기 분위기)에서  $\text{UO}_2$  핵연료로부터 방출되는 주요 핵분열 생성물의 방출율을 측정하고 방출 메카니즘을 규명하는 것이다.  $^{129}\text{I}$ 에 대한 정량적인 방출율 자료를 얻는 실험은 상당히 어려웠으며 얻어낸 방출율 자료의 타당성을 입증하기 위해서도 많은 노력이 요구되었다.

여러 운전 조건에서 시간에 따른  $^{85}\text{Kr}$  방출량과 누적 방출량을 측정하였으며 대표적인 결과를 Fig. 5-2 ~ Fig. 5-4에 나타내었다.

Table 5-7과 Fig. 5-5에서 볼 수 있듯이 요오드 방출율은 일반적인 포물선 형태를 나타내고 있으며,  $650\sim 900^\circ\text{C}$  온도범위에서 7시간 산화하는 동안  $0.03\sim 0.08\% \text{ hr}^{-1}$ 의 방출율을 보였다. 최대 요오드 방출율은  $1,450^\circ\text{C}$ 에서 90분 동안 가열한 실험에서 나타

났으며 이때 방출율은  $\sim 40\%hr^{-1}$ 이었다. 그러나  $1,000^{\circ}C$ ,  $H_2/H_2O$  분위기 하에서 측정  
한 요요드 방출율은 약 1%로서  $1,000^{\circ}C$ , 공기 분위기 하에서 측정한 방출율(20%)보다  
훨씬 낮았다.

Table 5-5. Summary of release present data

Experiment		$^{106}Ru$ Max	$^{106}Ru$ Min	$^{137}Cs$ Max	$^{137}Cs$ Min
#1/1	% Release	2.57E-02	1.87E-02	1.39E-02	6.89E-03
#1/2	% Release	1.68E-01	1.57E-01	8.52E-03	3.05E-04
#1/3	% Release	4.67E-01	4.35E-01	1.66E-02	8.75E-04
#10 (sum)	% Release	5.94E-01	5.66E-01	6.47E-03	7.26E-05
#2/1	% Release	6.79E-02	5.76E-02	1.30E-01	1.16E-01
#2/2	% Release	3.74E-01	3.11E-01	3.87E-01	3.24E-01
#2/3	% Release	8.93E-01	8.20E-01	4.60E-01	3.71E-01
#20 (sum)	% Release	1.06E+00	9.19E-01	2.27E+00	2.14E+00
#3/1	% Release	6.71E-01	3.12E-01	1.01E+01	8.99E+00
#3/2	% Release	1.42E+00	1.03E+00	5.41E+00	4.99E+00
#3/3	% Release	6.01E+00	5.18E+00	2.69E+00	2.14E+00
#30 (sum)	% Release	4.64E+00	3.22E+00	1.66E+01	1.52E+01
CP/022 #1	% Release	1.64E-01	8.18E-02	5.30E+00	4.90E+00
CP/022 #2	% Release	1.33E-04	0.00E+00	5.67E-03	4.88E-03
CP/022 #3	% Release	3.06E+00	2.56E+00	9.47E+00	8.97E+00
CP/022 #4	% Release	9.56E+00	7.93E+00	4.35E+01	4.11E+01

Table 5-6a. Iodine release results in partial repeat programme

650°C (#10)		750°C (#20)		900°C (#30)	
Component	% Release	Component	% Release	Component	% Release
TGT	0.10	TGT	0.07	TGT	0.34
Disc 1	0.29	Disc 1	0.39	Disc 1	0.26
Pipe 1	0.29	Pipe 1	5.62	Pipe 1	25.80
Disc 2	0.42	Disc 2	0.03	Disc 2	0.74
Pipe 2	0.51	Pipe 2	3.50	Pipe 2	18.77
Disc 3	0.29	Disc 3	0.13	Disc 3	0.18
Pipe 3	0.90	Pipe 3	2.27	Pipe 3	3.18
Iodine trap A	0.03				
Iodine trap B	0.03	Iodine trap	0.39	Iodine trap	0.80
Outlet pipe	0.03	Outlet pipe	0.10	Outlet pipe	0.13
Total	2.89		12.50		50.20

Table 5-6b. Iodine release results in high temperature programme

1,000°C (#1) air		1,000°C (#2) Ar/4% $H_2$ + $H_2O$		1,250°C (#3) air		1,250°C (#4) air	
Component	Release %	Component	Release %	Component	Release %	Component	Release %
Iodine trap	0.46	Iodine trap	0.44	Iodine trap	1.87	Iodine trap	0.75
Inlet pipe	21.10	Inlet pipe	0.33	Inlet pipe	19.10	Inlet pipe	53.90
Sum	21.56		0.77	1	20.97		54.65

Table 5-7. Iodine release results in partial repeat programme

Component	650°C (#10)		750°C (#20)		900°C (#30)	
	$\Sigma$ Release	Release rate	$\Sigma$ Release	Release rate	$\Sigma$ Release	Release rate
	%	% $hr^{-1}$	%	% $hr^{-1}$	%	% $hr^{-1}$
Disc 1 + Pipe 1	0.58	0.39	6.01	4.01	26.06	17.37
Disc 2 + Pipe 2	0.93	0.13	3.53	0.50	19.51	2.79
Disc 3 + Pipe 3	1.18	0.03	2.40	0.06	3.36	0.08

It should be noted that the cumulative releases and release rates given above, are for those components changed during experiments #10, #20 and #30. There is a small additional contribution to the cumulative values due to iodine captured on the TGTs, traps and pipes, which were only analysed at the completion of each experiment.

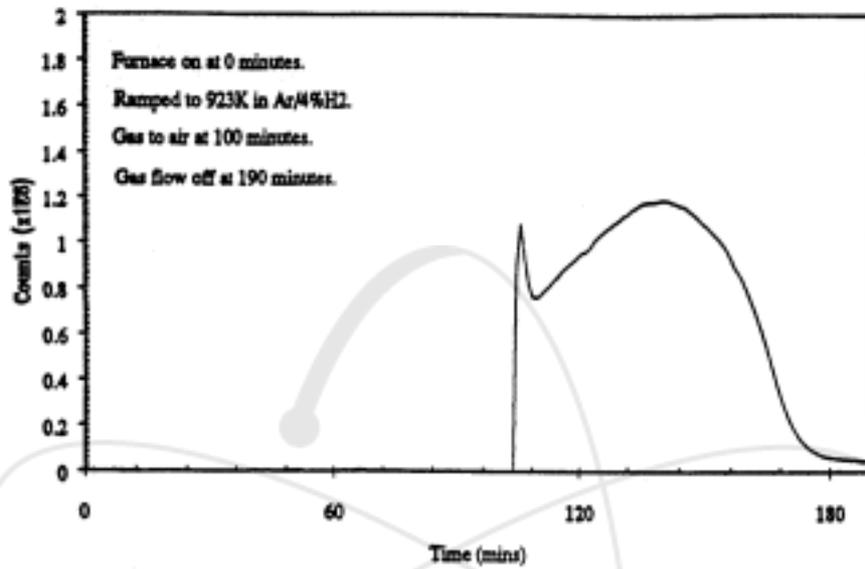


Fig. 5-2a  $^{85}\text{Kr}$  release profile for RPC/NFB/02 #1/1. Heated in  $\text{Ar}/4\%\text{H}_2$  to  $650^\circ\text{C}$  and then in air for 90 minutes.

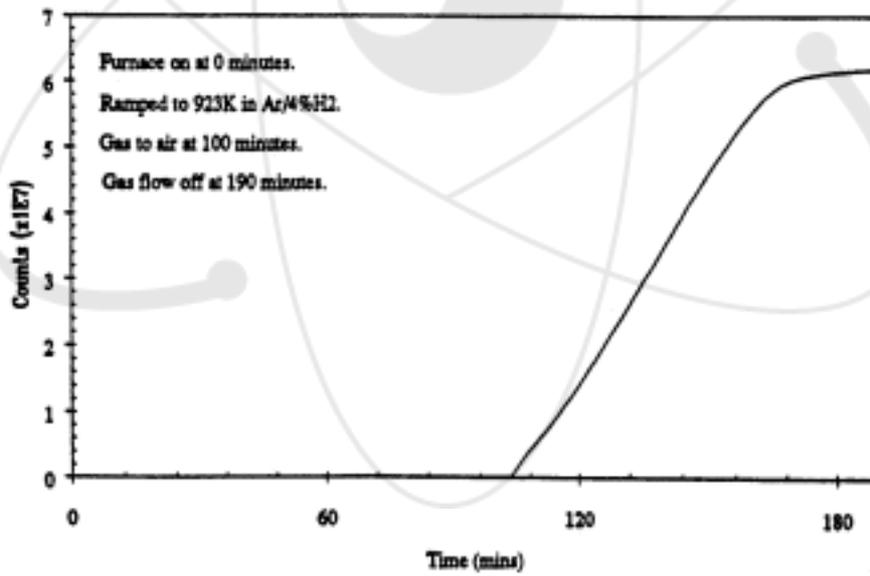


Fig. 5-2b  $^{85}\text{Kr}$  cumulative release profile for RPC/NFB/02 #1/1. Heated in  $\text{Ar}/4\%\text{H}_2$  to  $650^\circ\text{C}$  and then in air for 90 minutes.

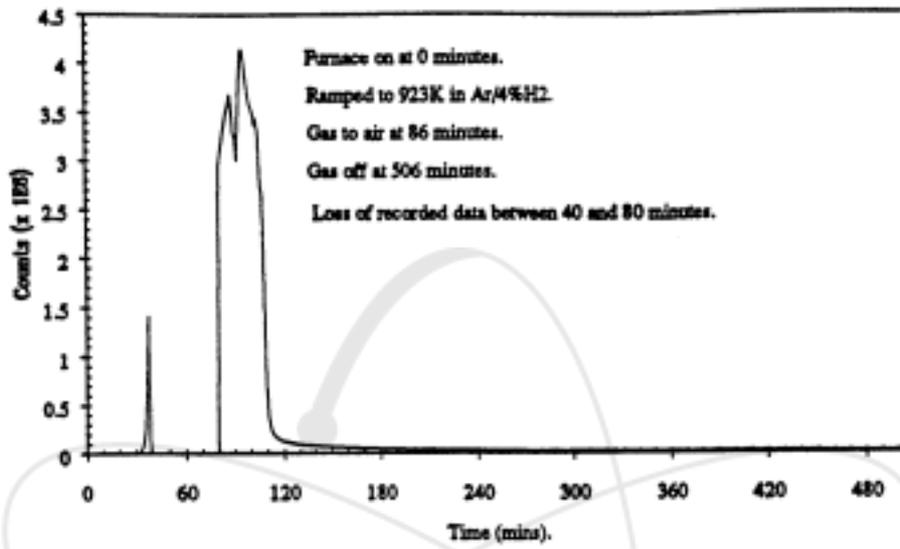


Fig. 5-3a  $^{85}\text{Kr}$  release profile for RPC/NFB/02 #1/2. Heated in  $\text{Ar}/4\%\text{H}_2$  to  $650^\circ\text{C}$  and then in air for 7 hours.

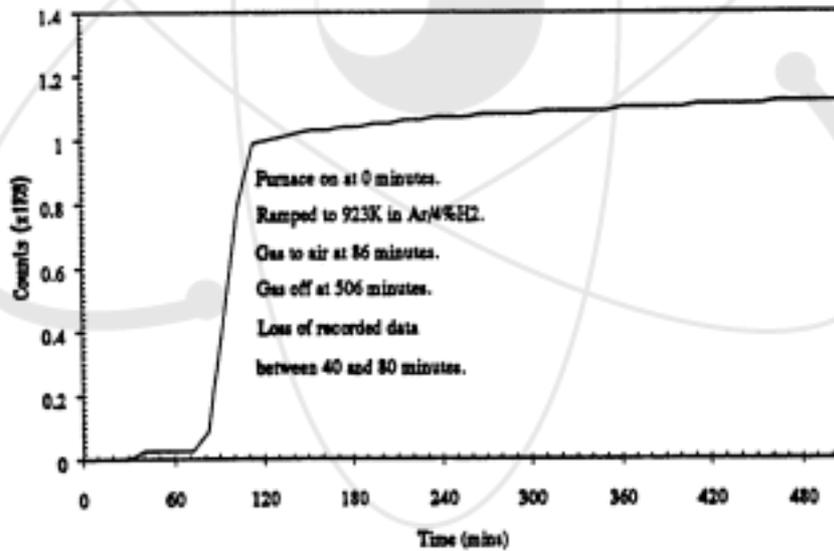


Fig. 5-3b  $^{85}\text{Kr}$  cumulative release profile for RPC/NFB/02 #1/2. Heated in  $\text{Ar}/4\%\text{H}_2$  to  $650^\circ\text{C}$  and then in air for 7 hours.

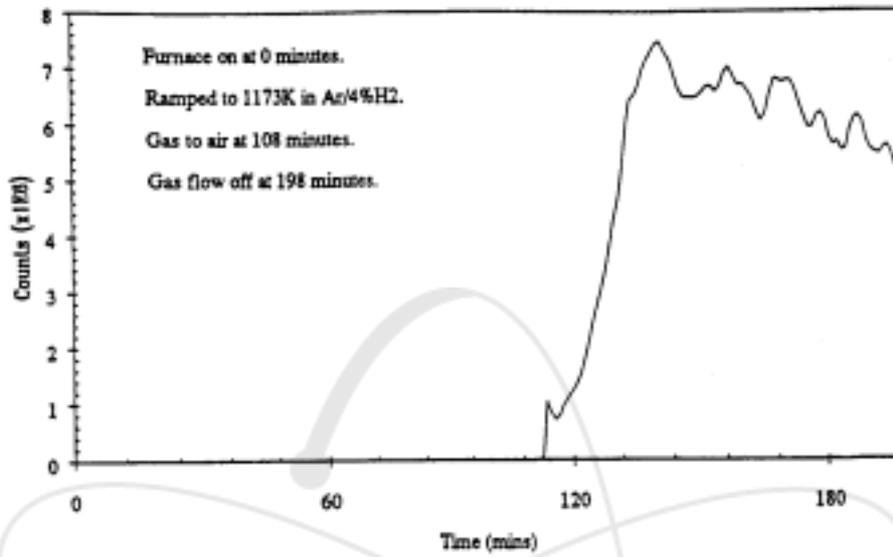


Fig. 5-4a  $^{85}\text{Kr}$  release profile for RPC/NFB/02 #3/1. Heated in Ar/4% $\text{H}_2$  to 750°C and then in air for 90 minutes.

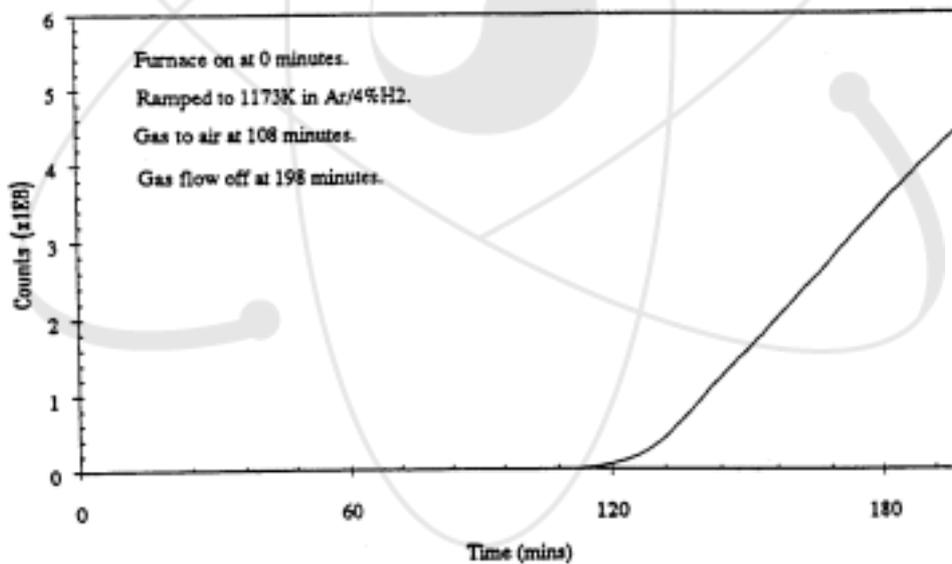


Fig. 5-4b  $^{85}\text{Kr}$  cumulative release profile for RPC/NFB/02 #3/1. Heated in Ar/4% $\text{H}_2$  to 750°C and then in air for 90 minutes.

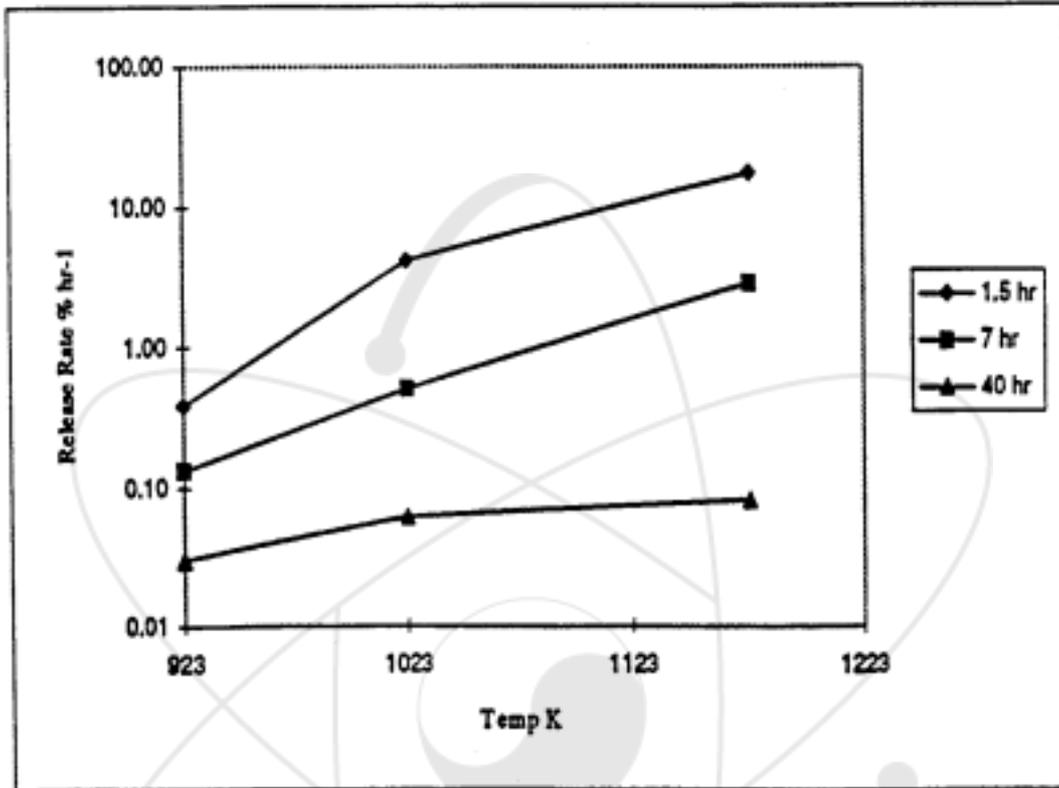


Fig. 5-5. Summary of iodine release rates(650°C ~ 950°C : air tests).

요오드는 동일한 실험조건 하에서 Kr보다 상당히 낮은 방출율을 보였다. Kr의 경우는 산화상태 유지를 위한 기체 종류(공기 또는 H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O)에 크게 영향을 받지 않았다.

Cs에 대한 방출율은 기존의 Mason과 Williamson에 의해 보고된 방출율과 유사하였다. Cs의 최대방출은 산화분위기, 1,450°C에서 90분간 수행한 경우 약 40%였으며, 750°C 이하의 온도에서는 Cs의 방출율이 대체적으로 1~2%로 낮게 나타났다. 또한 1,000°C, H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 분위기에서 측정된 Cs의 방출율은 약 0.005%로서 같은 온도, 공기분위기에서 측정된 방출율(4~5%)보다 상당히 낮았다. 이와 같은 분위기에 따른 Cs 방출율의 차이는 주로 핵연료의 산화에 의한 영향으로서 원자로 압력용기 손상사고와 같이 공기의 유입이 있는 중대사고시 결과를 예측하는 중요한 자료가 된다. Mason등이 UO<sub>2</sub>가 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>로 산화되는 동안 UO<sub>2</sub>로부터 방출되는 Cs의 방출율을 계산한 방법은

UK AGR Radiation Physics Manual에 수록되어 있다. 만일 본 프로그램에서 얻어낸 Cs에 대한 방출율 자료를 Mason과 Williamson이 제시한 방출율 계산 방법에 반영한다면 Cs의 방출율에 관한 조금 더 개선된 방법이 제시될 수 있을 것이다.

본 실험에서 Cs은 주로 열구배관과 필터에서 침적되는 것으로 관측되었는데 이는 Cs의 최대침적 피크가 300°C 이상에서 관측되었던 이전의 다른 연구결과와 일치하였다. Cs의 높은 온도에서의 침적되는 특성은 요오드의 특성과 대조를 이룬다. 요오드는 대부분이 장치의 저온부에서 침적, 관측되었는데 이는 요오드가 주로 원소형태로 이동하고 있다는 사실을 암시하고 있다.

Ru의 방출율은 RuO<sub>3</sub>와 RuO<sub>4</sub>의 형성 여부에 따라 달라진다. U-Ru-O system의 열역학적 평가에 따르면, 강한 산화분위기, 900°C 이하의 온도에서는 RuO<sub>4</sub> 형태가 우세하고 1,000°C 이상의 온도에서는 RuO<sub>3</sub> 형태로 주로 존재한다. Ru이 휘발성이 되기 위해서는 반드시 산화물 형태로 존재하여야 하는 데, 이는 1,000°C, H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O분위기 하에서 수행된 실험에서 Ru이 전혀 방출되지 않았다는 결과로부터 확인되었다. <sup>106</sup>Ru 방출율은 시간에 따라 감소하였으며 이는 기존의 실험에서 확인된 일반적인 경향과 일치하였다.<sup>16)</sup> Ru은 동일한 조건하에서의 다른 휘발성 방사성 핵종에 비하여 방출율이 일반적으로 낮은 경향을 나타내고 있으며 이는 Ru이 핵연료 grain 내로부터 이동하여 방출되는 것이 아니라 입계 (핵연료 matrix의 산화에 의해 상당한 영향을 받고 있는 영역)로부터 점진적으로 방출된다는 사실을 암시하고 있다.

<sup>85</sup>Kr의 방출에 대해서는 650°C에서 수행된 실험을 제외하고는 이전 시험 결과와 유사하였으며, 650°C에서 높은 방출을 보이고 있는 것은 두 번째 승온과정(#1/2)이 공기분위기가 아닌 Ar/4%H<sub>2</sub> 분위기에서 수행되었기 때문이다. 즉 Ar/4%H<sub>2</sub> 분위기로 인하여 UO<sub>2+x</sub>로부터 UO<sub>2</sub>로 재환원되고 그 결과 <sup>85</sup>Kr 방출이 급격하게 증가한 것이다. 일반적으로 Kr은 950°C에서 48시간만에 완전히 방출됨을 알 수 있었다.

핵분열생성물의 방출율은 Fig. 5-6에서 보이는 바와 같이 900°C ~ 1,250°C 온도범위에서 감소함을 보이고 있는데 이런 현상은 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>의 생성량과 연관이 있다. 600~950°C 온도범위의 산화분위기에서 핵연료는 거의 전부가 90분 이내에 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>로 산화된다. 1,450°C에서 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>로의 낮은 산화율은 온도의 증가에 따른 핵분열생성물의 확산속도의 증가에 의해 상쇄되기 때문으로 판단된다.

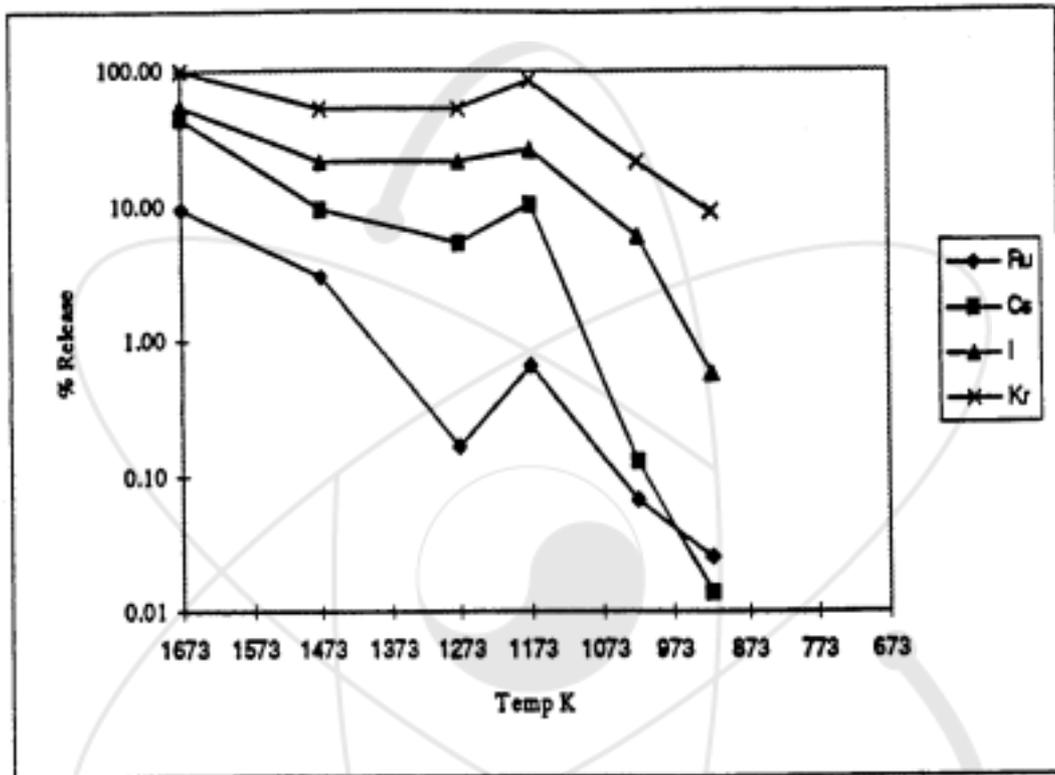


Fig. 5-6. Graphical summary of fission product releases: 90 minutes-air tests.

### 제 3 절 시험결과 요약

본 실험의 주요목적은 고온의 산화상태(공기 분위기)에서  $UO_2$  핵연료로부터 방출되는 주요 핵분열 생성물의 방출율을 측정하고 방출 메카니즘을 규명하는 것이다. 시험결과를 요약하면 다음과 같다.

- $^{85}Kr$ 은  $950^\circ C$ 에서 48시간만에 완전히 방출되었다.
- 총 16회의 실험을  $650^\circ C \sim 1,450^\circ C$  온도범위에서 수행하였다. 15회 실험은 공기를 사용한 산화분위기에서 수행하였으며 1회의 실험은 산소 포텐셜 효과를 보기 위하여  $H_2/H_2O$  분위기 하에서 수행하였다.
- 요오드 방출 메카니즘은 포물선 형태에 가까움을 알 수 있었으며, 7~48시간 산화하는 동안 모든 온도범위에서  $0.03 \sim 0.08\% \text{ hr}^{-1}$  ( $5 \times 10^{-4} \sim 1.33 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1}$ )의 방출율을 보였다. 요오드의 피크 방출율은  $1,450^\circ C$ 에서 90분 동안 가열한 실험에서 나타났으며 이때 방출율은  $\sim 40\% \text{ hr}^{-1}$ 이었다.
- 요오드는 대부분 필터 하우징과 요오드 포집장치 사이의 배관에 침적되었다(표면 온도  $< 423K$ ).
- 요오드는 동일한 실험조건 하에서  $Kr$ 과 비교하여 상당히 낮은 방출율을 보였다.
- $Cs$ 의 최대방출율은 산화분위기,  $1,450^\circ C$ 에서 90분간 수행한 경우로 약 40%였으며,  $750^\circ C$  이하 온도에서  $Cs$  방출율은 1~2%로 낮게 나타났다.  $1,000^\circ C$ ,  $H_2/H_2O$  분위기에서 측정된  $Cs$ 의 방출율은 약 0.005%로서 같은 온도, 공기분위기에서 측정된 방출율(4~5%)보다 상당히 낮았다.
- $Ru$ 이 휘발하기 위해서는 반드시 산화물 형태로 존재하여야 하며,  $1,000^\circ C$ ,  $H_2/H_2O$  분위기 하에서  $Ru$ 은 전혀 방출되지 않았다.

## 제 6 장 시험 결과 종합 분석

고온조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 및 핵분열성 물질의 방출특성을 분석하기 위하여 원자로 사고시 조건을 중심으로 각국에서 수행중인 시험 결과를 종합 정리하였으며, 이를 바탕으로 원자로 사고시 조건에서 핵종 방출시험과 비교하여 상대적으로 시험결과가 많지 않은 사용후핵연료의 건식 재가공시 제조조건에서 핵분열기체 및 핵분열생성물의 방출특성을 평가하였다.

원자로 사고시 조건에서 핵분열생성물 방출특성 연구는 원자로의 위험도 및 사고가 미치는 영향을 보다 정확하게 평가하기 위해서는 LOCA 선원항(Source term, 환경 중에 방출되는 방사성물질의 종류와 양)을 정확하게 예측하기 위한 전산 코드개발을 주 목적으로 하고 있으며, 따라서 원자로 사고시의 조건인 고온 스팀분위기에서 핵연료로부터 방출되는 방사성물질의 종류와 양을 실험적으로 정확하게 구하여야 한다. 핵분열생성물 방출 거동과 관련된 다른 연구분야로서 사용후핵연료의 건식 재활용 공정을 들 수 있는 데, 그 예로서 사용후핵연료 건식 재가공시 핵연료의 분말화/소결 공정과 같은 고온조건에서의 핵분열생성물의 방출거동 특성 분석, 사용후핵연료 고온 용융(Pyrochemical)공정으로부터 방출되는 핵분열기체 또는 핵분열생성물 방출거동 특성분석 분야를 들 수 있다.

앞서 언급한 원자로 사고시 핵종 방출거동 특성평가 분야에서는 주로 고온 스팀분위기에서 핵연료의 산화 등에 의한 핵분열생성물의 방출 특성을 규명하기 위하여 많은 데이터가 생산되고 있지만, 사용후핵연료 건식 재가공분야에서는 스팀 분위기가 아닌 건조조건에서 방출 거동을 분석하기 때문에 핵분열생성물의 종류 및 특성에 따라 원자로 사고시 조건에서 방출 특성과 달라지게 되며, 이를 위하여 핫셀을 이용한 다양한 조건에서의 실험 데이터의 확보가 필수적이다.

핵분열생성물의 방출에 관한 최초의 연구는 미국의 ORNL을 시작으로 하여 프랑스 CEA, 영국의 AEA, 캐나다의 AECL에서 각각 수행되었으며 최근 일본 JAERI에서도 관련 프로젝트를 수행하고 있는 데, 각 국에서 수행중인 핵분열생성물 방출거동 시험 특성을 Table 1-1에 수록하였다. 그러나 각 나라에서 사용한 사용후핵연료의 특성 및 기체 분위기가 서로 상이하므로 주요 핵분열생성물의 방출율을 상호비교하기 다소 어려운 점은 있다.

지금까지의 시험결과를 종합적으로 살펴보면, 핵분열생성물 방출에 영향이 가장

큰 변수는 온도이며, 그 이외 핵연료 산화 정도, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다.

먼저 핵연료의 산화에 따른 영향을 보면 산화에 의한  $UO_2$  모체내 핵분열 기체의 확산도는 증가하는 것으로 나타났으며 산화와 방출 동특성 상관관계를 정립하기 위한 실험을 주로 수행하였다. 그러나 지르칼로이 핵연료봉이 핵연료 산화의 방호막으로 작용하는 원자로내에서는 기하학적인 특성으로 인하여 핵분열생성물 방출 거동이 달라진다. 미국 ORNL에서 수행한 테스트 결과를 보면, Kr-85와 Cs-137의 온도 변화에 따른 확산계수 변화와 모델식과 실험 데이터와의 차이점을 해석한 결과, 확산 모델이 휘발성 핵분열생성물의 방출거동을 잘 예측하였고,  $UO_2$  모체내 grain에서의 확산에 의한 영향이 지배적인 것으로 나타났다. 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. 반면에  $UO_2$ 와 원자로 재료와의 화학적 반응에 의하여  $UO_2$  용융온도보다 낮은 온도에서도 핵연료 용융이 일어날 수 있으며 이는 노심 구성을 변화시켜 핵분열생성물의 방출에 상당한 영향을 미치는 것으로 알려져 있다. 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 측정된 결과, 400°C ~ 700°C 사이의 온도 범위에서는 산화/환원분위기에 관계없이 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 시

험은 부족한 실정이다. 그 예로서 미국 ORNL에서 수행한 HI-2와 HI-3 테스트 결과를 보면, 산화분위기에서 Kr-85 핵분열기체의 방출속도는 증가하였는 데, 본 시험은 20~60분 정도 수행되었기 때문에 핵연료 자체의 광범위한 산화에 의한 영향은 파악하지 못하였다. 즉 시편인 핵연료봉에 구멍을 뚫어 공기분위기에서 산화가 일어나게 하였으며 장기간 가열하여 핵연료 자체가 산화가 일어날 경우는 다른 현상이 일어날 것이다.

입계 inventory(grain boundary inventory)는 핵분열기체의 방출과 관련하여 mechanistic 모델링시 매우 중요하며 해석 코드로는 FASTGRASS, FEMAXI-IV 및 VICTORIA 등을 들 수 있다. 핵연료를 급격하게 가열할 경우 입계내 핵분열 기체의 방출은 핵연료의 팽창에 영향을 미치며 이와 같이 입계 inventory 측정 시험은 큰 의미를 가지고 있다. 캐나다에서는 공기중에서  $UO_2$ 를 산화시킬 경우 입계내 핵분열기체의 방출에 관한 시험을 수행한 적이 있으며 핵분열 기체는 약  $500^{\circ}C$ 의 상대적으로 낮은 온도에서도 방출되어  $UO_2$  모체로부터 분리되는 것으로 나타났다.

사용후핵연료 건식 재가공의 관점에서 보면 수소 분위기 및 공기-스팀 분위기(건조공기 분위기에서 데이터는 많지 않음)에서 온도 범위별 주요 핵분열생성물의 방출율을 비교하였으며 이를 Table 6-1, 6-2에 이를 각각 정리하였다. 아울러 사용후핵연료 건식 재가공(DUPIC 공정) 제조조건으로 설정된  $500^{\circ}C \sim 1800^{\circ}C$ , 공기 및 수소기체 분위기에서 방출가능한 주요 핵분열생성물의 방출율을 각 나라에서 얻은 데이터를 기초로 하여 Table 6-3에 상호 비교하였다.

종합적으로 보면, 사용후핵연료 건식 재가공조건에서 고려하여야 할 주요 관심대상 핵분열생성물은 Kr-85, I-129, Cs-134/Cs-137, Ru-106, Ce-144, Sb-125, Eu-154/Eu-155, Zr-95 등을 들 수 있다. 아울러 사용후핵연료 건식 재가공조건은 원자로 사고시의 온도보다도 훨씬 낮아 다양한 핵분열생성물이 방출되지는 않을 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 6-1. Comparison of released percent of main fission products in hydrogen atmosphere

시험기관 (시험명)	사용후핵연료 특성			시험조건 온도 (°C)	주요 핵종 방출분율 (Released % of inventory)									
	연소도 (MWD/MTU)	냉각 기간(년)	시료 형태		<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)	42,000	10	Seg.(20cm)	1,700	31	33	-*	31	0	0	0.2	0.8	0	0
	42,000	10	Seg.(20cm)	2,450	100	70	-	99.9	0	0	18	57	0	0
프랑스 (HEVA)	36,000 (Reirradiation)	10	Seg.(20g UO <sub>2</sub> )	2,100	15	30	-	30	0	0	0	5	0	0
캐나다 (HOX)	28,000	20	Fragment (5 g)	1,400	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
영국 (AEAT)	26,000	7	Fragment (2 g)	1,000	-	<0.5	0	<0.05	0	0	0	0	0	0
일본 (VEGA)	47,000	6	Seg.(10 g UO <sub>2</sub> )	2,500	100	-	0	85	0.05	0	0	0	0	0

(주) \* : No data

Table 6-2. Comparison of released percent of main fission products in air (including steam) atmosphere

시험기관 (시험명)	사용후핵연료 특성			시험조건 온도 (°C)	주요 핵종 방출분율 (Released % of inventory)									
	연소도 (MWD/MTU)	냉각 기간(년)	시료 형태		<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)	1,620	39	23	-*	41	0	0	0	0	0	0
	40,300	10	Seg.(20cm)	2,000	69	42	-	71	<3	0	52	0.05	0	0
프랑스 (HEVA)	36,000 (Reirradiation)	10	Seg.(20g UO <sub>2</sub> )	1,800	65	62	-	66	-	-	-	-	-	-
캐나다 (HOX)	28,000	20	Fragment (5 g)	1,400	100	-	0	96	-	0	0	0	0	0
영국 (AEAT)	26,000	7	Fragment (2 g)	1,250	100	20	-	43	9.5	-	-	-	-	-
일본 (VEGA)	47,000	6.5	Seg.(10 g UO <sub>2</sub> )	2,500	100	-	0	93	52(?)	0	-	0	0	0

(주) \* : No data

Table 6-3. Comparison of released percent of various fission products under DUPIC fuel fabrication condition

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.(10 g UO <sub>2</sub> )	2,500	스팀	-	-	0	94	52	0	-	0	0	0
한국 (DUPIC)	27,000	15	분말/ 소결체	700/ 1,750	공기/ 수소	100	-	0	0/99	-	0	0/40	0	0	0
	35,000	13	분말/ 소결체	700/ 1,750	공기/ 수소	100	-	0	0/99	-	0	-	0	0	0

(주) \* : No data

## 참 고 문 헌

- [1] J.W. Hickman, PRA Procedures Guide; A Guide to the Performance of Probabilistic Risk Assessment for Nuclear Power Plants, NUREG/CR-2300, 1983.
- [2] R.A. Lorenz, Status of Validation of the CORSOR Computer Code for the Accident Source Term Reassessment Study, ORNL/TM-8842, April, 1985.
- [3] G. Ducros, P.P. Malgouyres, M. Kissane, et al., Fission Product Release under Severe Accidental Conditions; General Presentation of the Program and Synthesis of VERCOS 1 to 6 Results, NUREG/CP-0169, p. 505-518, 1999.
- [4] 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).
- [5] 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.
- [6] B. Andre, G. Ducros, J.P. Leveque, et al., Fission Product Release at Severe Light Water Reactor Accident Conditions, Nuclear Tech., 114, 23, 1996.
- [7] H.J.T. Ellingham, J. Soc. Chem. Ind., 63, 125, 1944
- [8] 박 광현, 핵연료 제조 및 품질관리 기술개발-핵연료내 핵분열생성물의 형태 및 거동연구, KAERI/CM-062/95, 한국원자력연구소, 1995.
- [9] P.E. Potter, Chemical Aspects of the Behavior of Water Reactor Fuel, in Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling, Applied Science Publishers, 1983.
- [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] Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connor, T. Kunkel, 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.

- [12] T. Nakamura, A. Hidaka, et al., Research Program(VEGA) on the Fission Product Release from Irradiated Fue, JAERI-Tech-99-036, 1999.
- [13] 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.
- [14] M. Schwarz, B. Clement, A.V. Jones, Applicability of PHEBUS FP Results to Severe Accident Safety Evaluation and Management Measures, Nuclear Engineering and Design, 209, 173, 2001.
- [15] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-1, NUREG/CR-2928(ORNL/TM-8500), ORNL, 1982.
- [16] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-2, NUREG/CR-3171(ORNL/TM-8667), ORNL, 1984.
- [17] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-3, NUREG/CR-3335(ORNL/TM-8793), ORNL, 1984.
- [18] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-4, NUREG/CR-3600(ORNL/TM-9001), ORNL, 1984.
- [19] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-5, NUREG/CR-4037(ORNL/TM-9437), ORNL, 1985.
- [20] M. F. Osborne, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test HI-6, NUREG/CR-4043(ORNL/TM-9443), ORNL, 1985.
- [21] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-1, NUREG/CR-5339(ORNL/TM-11104), ORNL, 1989.
- [22] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-2, NUREG/CR-5340(ORNL/TM-11105), ORNL, 1989.
- [23] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-3, NUREG/CR-5480(ORNL/TM-11399), ORNL, 1990.

- [24] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-4, NUREG/CR-5481(ORNL/TM-11400), ORNL, 1991.
- [25] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-5, NUREG/CR-5668(ORNL/TM-11743), ORNL, 1991.
- [26] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Preliminary Results from ORNL Fission Product Release Test VI-6, ORNL/NRC/LTR-91/19, ORNL, 1991.
- [27] M. F. Osborne, J.L. Collins, R.A. Lorenz, et al., Data Summary Report for Fission Product Release Test VI-7, NUREG/CR-6318(ORNL/TM-12937), ORNL, 1995.
- [28] M. F. Osborne, J.L. Collins and R.A. Lorenz, Highlights Report for Fission Product Release Tests at Simulated LWR Fuel, ORNL/NRC/LTR-85/1, 1995.
- [29] M. F. Osborne, H. Albrecht, R.A. Lorenz and J.L. Collins, Fission Product Release from Commercial vs Simulated Fuels in LWR Accident Studies, Presented at the 1990 Annual Meeting of the American Nuclear Society, Nashville, TN, 10-14, 1990.
- [30] J. L. Collins, et al., Observed Behavior of Cesium, Iodine and Tellurium in the ORNL Fission Product Release Program, NUREG/CR-3930 (ORNL/TM-9316), ORNL, 1985.
- [31] J. L. Collins, M.F. Osborne and R.A. Lorenz, The Influence of Environment on Release Behavior and Chemical Forms of Fission Products Released under LWR Accident Conditions, Proceeding of Workshop on Chemical Reactivity of Oxide Fuel and Fission product release, Berkeley, Gloucestershire, England, April, 1987.
- [32] R.P. Wichner and R.A. Lorenz, Technical bases for Estimating Fission Product Behavior during LWR Accidents, NUREG-0772, 1981.
- [33] M.R. Kuhlman, D.J. Lehmick and R.O. Meyer, CORSOR User's Manual, NUREG/CR-4173, 1985.
- [34] R.A. Lorenz, Status for validation of the CORSOR Computer Code for the Accident Source Term Reassessment Study, in Review of the Status of Validation of the Computer Codes Used in the Severe Accident Source Term Reassessment Study, ORNL/TM-8842, 1985.

- [35] K.S. Norwood, An Assessment of Thermal Gradient Tube Results from the HI Series of Fission Product release Tests, NUREG/CR-4105 (ORNL/TM-9506), ORNL, 1985.
- [36] S.K. Wisbey, Preliminary Studies of the Morphology of Thermal Gradient Tube Deposits for Fission Product Release Tests, NUREG/CR-4778 (ORNL/TM-10273), ORNL, 1988.
- [37] A.G. Croff, ORIGEN 2-A Revised and Updated Version of the Oak Ridge Isotope Generation and Depletion Code, ORNL-5621, ORNL, 1980.
- [38] E. C. Beahm, W. E. Shockly, C. F. Weber, S. J. Wisbey, and Y.-M. Wang, Chemistry and Transport of Iodine in Containment, NUREG/CR-4697 (ORNL/TM-10135), October 1986.
- [39] E. C. Beahm, C. F. Weber, T. S. Kress, and G. W. Parker, Iodine Chemical Forms in LWR Severe Accidents, NUREG/CR-5732 (ORNL/TM-11861), 1992.
- [40] J. L. Collins, M. F. Osborne, and R. A. Lorenz, Fission Product Tellurium Release Behavior Under Severe Light Water Reactor Accident Conditions, Nucl. Tech., 77(1), 18-31, 1987.
- [41] J. C. Achard and L. Albert, Compt. Rend. Acad. Sci. Paris, Series C262: 1066 (1966).
- [42] R. A. Lorenz, J. L. Collins, A. P. Malinauskas, O. L. Kirkland, and R. L. Towns, Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel, NUREG/CR-0722(ORNL/NUREG/TM-287/R2), 1980.
- [43] F. C. Iglesias, C. E. L. Hunt, F. Garisto, and D. S. Cox, Ruthenium Release Kinetics from Uranium Oxides, in Proceedings of the ICHMT Conference on Fission Product Transport Processes in Reactor Accidents, Dubrovnik, Yugoslavia, May 22-26, 1989, 187-196, Hemisphere, NY, 1990.
- [44] H. Matzke, Gas Release Mechanism in  $UO_2$ -A Critical Review, Rad. Eff., 53, 219, 1980.
- [45] A. H. Booth, A Method for Calculating Fission Gas Diffusion from  $UO_2$  Fuel and Its Application to the X-2-f Loop, AECL-469, 1957.
- [46] T. S. Kress, et al., *Fission Product Transport Process in Reactor Accident*, Ed. J.T. Rogers, Hemisphere, NY, 1990.
- [47] R. R. Hobbins, et al., Fission Product Release from Fuel under Severe Accident Conditions, Nucl. Tech., 101, 270, 1993.

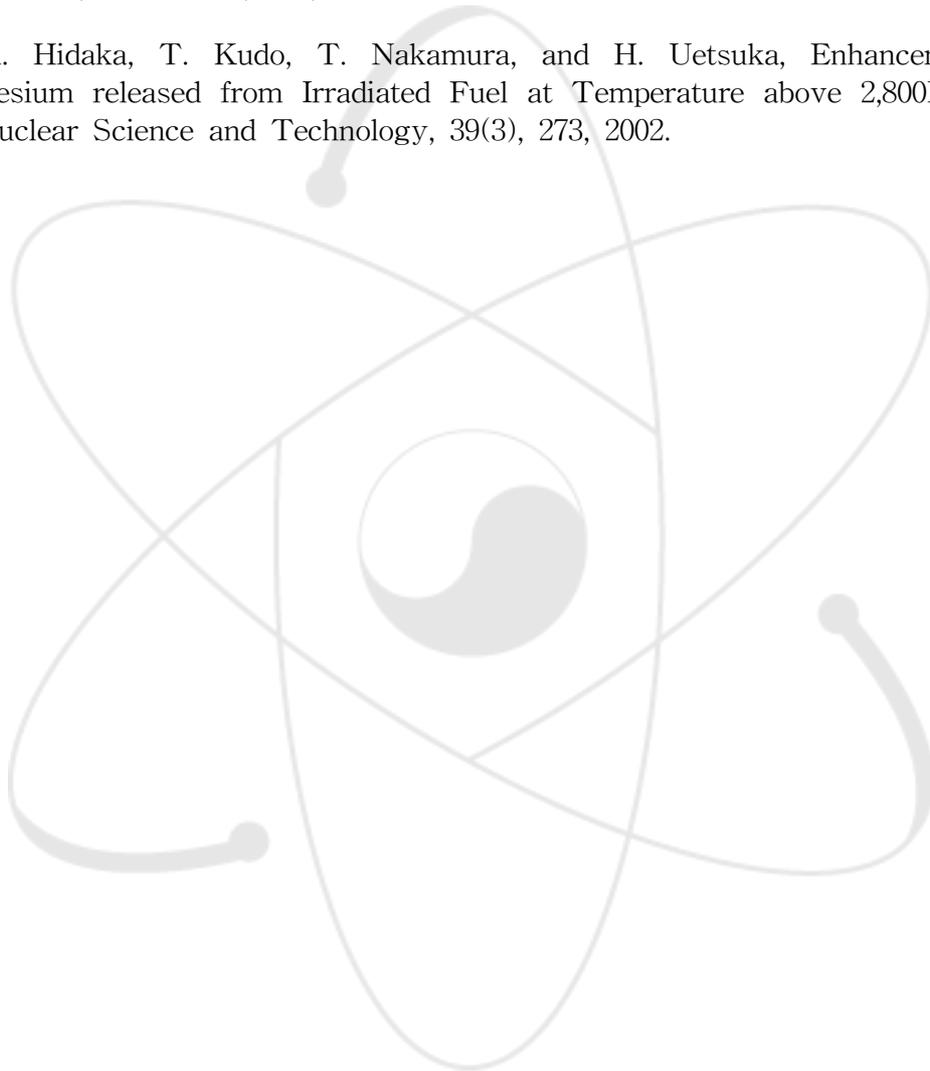
- [48] R. A. Lorenz, et al., Fission Product Release from Highly Irradiated LWR Fuel, NUREG/CR-0722(ORNL/NUREG/TM-287/82), ORNL, 1980.
- [49] J. L. Collins, et al., Kundsens Cell-Mass Spectrometer Studies of Cesium-Uranium Interactions, ORNL/NUREG/TM-24, ORNL, 1976.
- [50] T. M. Besmann, T.B. Lindemer, Chemical Thermodynamics of the System Cs-U-Zr-H-I-O in the Light Water Reactor Fuel-Cladding Gap, Nucl. Tech.m 40, 297, 1978.
- [51] 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.
- [52] 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.
- [53] C.E.L. Hunt, F.C. Iglesias, D.S. Cox, N.A. Keller and R.D. Barrand, R.F. O'Connor, J.R. Mitchell, G.W. Wood, R. Mikuch, Fission Product Grain-Boundary Inventory, AECL-10036, 1989.
- [54] C.E.L. Hunt, D.S. Cox, Z. Liu, N.A. Keller and R.D. Barrand, R.F. O'Connor, Ruthenium Release in Air, Proceeding of the 12th Annual Conference of the Canadian Nuclear Society, Saskatchewan, Canada, June, 1991.
- [55] C.E.L. Hunt, D.S. Cox, Z. Liu, N.A. Keller and R.D. Barrand, R.F. O'Connor, F.C. Iglesias, Xenon and Ruthenium Release from  $UO_2$  in Air, ANS International Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, Oregon, USA, July, 1991.
- [56] Z. Liu, D.S. Cox, et al., Fission Product Releases and Morphologies of Powders Produced by the OREOX Process : Report on the HOX1 Experiment, RC-1375, DUPIC-AR-FT-06, 1995.
- [57] Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connell, C.A. Buchanan, D.H. Rose and L.W. Dickson, The Final Report on the HOX3 Experiment : Pressing and Sintering CANDU Pellets from Spent PWR Powders Produced by the OREOX Process, RC-1864, DUPIC-AE-024, 1999.
- [58] D.S. Cox and R.F. O'Connor, Measurement of Oxidation/Reduction Kinetics to 2,100°C Using Non-contact Solid-State Electrolytes, Solid State Ionics, 53-56, 238-254, 1992.
- [59] Z. Liu, D.S. Cox and N.A. Keller, Normalization in Calculation of Fission Product Release Percentage, Memorandum to C.E.L. Hunt, March 15,

FEB-91-110, 1991.

- [60] P.J. Hayward, P. Taylor, I.M. George and D.W. Owen, Material Selection for Ceramic-Form Filters to Trap Gas-Phase Cesium at High Temperatures, AECL Report, RC-1611, DUPIC-AE-014, 1996.
- [61] P.J. Hayward, P. Taylor, I.M. George and F.J. Hughes, Preliminary Tests on Clay-based Ceramic-Form Filters for High Temperature Gas-Phase Cesium Abatement, AECL Report, RC-1488, DUPIC-AE-005, 1996.
- [62] P.H. Elder, D.S. Cox, L.W. Dickson and R.V. Murphy, New Post-Irradiation Examination Techniques at Chalk River laboratories : Gamma Tomography and Grain-Boundary Inventory Measurements on Irradiated Fuel, Presented at the IAEA Technical Committee Meeting on "Recent Developments on Post-Irradiation Techniques for Water Reactor Fuel, Cadarache, France, October, 1994.
- [63] D.S. Cox, Z. Liu, P.H. Elder, C.E.L. Hunter and V.I. Arimescu, Fission Product Release Kinetics from CANDU and LWR Fuel during High Temperature Steam Oxidation Experiments, IAEA Tech. Committee Meeting on Fission Gas Release and Fuel Rod Chemistry Related to Extended Burnup, Pembroke, Ontario, Canada, April, 1992.
- [64] D.S. Cox, Z. Liu, R.S. Dickson and P.H. Elder, Fission Product Release during Post-Test Annealing of High-Burnup CANDU Fuel, Third Int'l Conference on CANDU Fuel, Pembroke, Ontario, Canada, October, 1992.
- [65] Z. Liu, D.S. Cox, R.S. Dickson and P.H. Elder, A Summary of CRL Fission Product Release Measurements from  $UO_2$  Samples during Post-Irradiation Annealing(1986-1992), COG Report, COG-92-377, May, 1993.
- [66] Z. Liu, D.D. Semeniuk, R.F. O'Connor, D.H. Rose and P.H. Elder, Report on the HOX2 Experiment : Morphologies of Powders Produced from Spent LWR Fuels Using the OREOX Process, AECL Report, RC-1530, DUPIC-AE-008, March, 1997.
- [67] A. Hidaka, T. Kudo, T. Nakamura, et al., Current Status of VEGA Program and a Preliminary Tests with Cesium Iodide, JAERI-Research 99-066, 1999.
- [68] A. Hidaka, T. Kudo, T. Nakamura, and H. Uetsuka, Decrease of Cesium Release from Irradiated  $UO_2$  Fuel in Helium Atmosphere under Elevated Pressure of 1.0 MPa at Temperature up to 2,773K, J. of Nuclear Science and Technology, 39(7), 759, 2002.
- [69] A. H. Booth, A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from  $UO_2$

Fuel and its Application to the X-2-f Loop Test, Chalk River report, CRDC-721, 1957.

- [70] N.E. Bixler, VICTORIA 2.0, A Mechanical Model for Radionuclide Behavior in a Nuclear reactor Coolant System under Severe Accident Conditions, NUREG/CR-6131, 1998.
- [71] R.B. Bird, W.E Stewart, E.N. Lightfoot, Transport Phenomena, John Wiley & Sons, New York, NY, 1960.
- [72] A. Hidaka, T. Kudo, T. Nakamura, and H. Uetsuka, Enhancement of Cesium released from Irradiated Fuel at Temperature above 2,800K, J. of Nuclear Science and Technology, 39(3), 273, 2002.



서 지 정 보 양 식

<b>수행기관보고서번호</b>	위탁기관보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드
KAERI/AR-676/2003			
<b>제목 / 부제</b>	<b>고온조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열 생성물 방출거동 분석</b>		
<b>주 저 자</b>	박 근일 (건설공정 핵연료 기술개발부)		
<b>연구자 및 부서명</b>	김 중호, 이 정원, 김 수성, 김 응기, 이 재원, 조 광훈, 이 도연, 이 영순, 정 정환, 양 명승(건설공정 핵연료 기술개발부)		
<b>출 판 지</b>	대 전	<b>발행기관</b>	한국원자력연구소
<b>페이지</b>	183 p.	<b>도 표</b>	있음(○), 없음( )
<b>발행년</b>	2003		
<b>크 기</b>	A4		
<b>참고사항</b>			
<b>비밀여부</b>	공개(○), 대외비( ), — 급비밀	<b>보고서종류</b>	기술현황분석보고서
<b>연구위탁기관</b>			<b>계약 번호</b>
<b>초록 (15-20줄내외)</b>	<p>고온 공정조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물의 방출 거동에 관한 시험은 미국의 ORNL(HI/VI 테스트)을 중심으로 프랑스 CEA(HEVA/CERCOS 테스트), 영국의 AEA, 캐나다의 CRNL(HOX 테스트)에서 각각 수행되었으며 최근 일본 JAERI에서도 관련 프로그램을 수행하고 있다. 사용후핵연료로부터 핵분열생성물의 방출 거동에 가장 큰 영향을 미치는 인자는 온도이며, 그 이외에 핵연료 산화 정도, 연소도, 전처리 조건 등을 들 수 있다. 특히 산화(스팀, 공기) 또는 환원 분위기(수소)에 따라 핵분열 생성물 방출속도 및 이동 거동은 핵분열생성물의 화학적 형태에 따라 달라지게 된다. 연소도의 영향을 보면, 핵분열생성물의 방출속도는 주로 입계내에서의 확산에 의존하며 확산은 주로 온도 함수이기 때문에 연소도가 증가함에 따라 방출속도는 증가하였다. 그러나 50,000 MWD/ MTU 이상의 고연소도 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 방출속도에 대한 시험데이터는 많이 확보되지 않은 상태이다.</p> <p>본 기술현황 분석 보고서에서는 고온인 건식 재가공 핵연료 제조 조건에서 사용후핵연료로부터 핵분열생성물 및 핵분열성 물질의 방출특성을 분석하기 위하여 원자로 사고시 조건을 중심으로 각국에서 수행중인 시험 결과를 종합 정리하였다. 이를 바탕으로 원자로 사고시 조건에서 핵종 방출시험과 비교하여 상대적으로 시험결과가 많지 않은 국내 사용후핵연료의 건식 재가공시 제조조건에서 방출 가능한 핵분열기체 및 핵분열생성물의 거동을 예비분석하였다.</p>		
<b>주제명키워드 (10단어내외)</b>	사용후핵연료, 고온공정, 핵분열생성물, 미국(HI/VI), 캐나다(HOX), 일본(VEGA), 영국(AEA), 건식 재가공, 방출속도		

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No. INIS Subject Code	
KAERI/AR-676/2003					
Title / Subtitle					
<b>A Status of Art-Report on the Fission Products Behaviors Released from Spent Fuel at High Temperature Conditions</b>					
Main Author		Geun Il Park(Dry Process Fuel Tech. Development Div.)			
Researcher and Department		J.H. Kim,, J.W. Lee, S.S. Kim, W.K.Kim, J.W. Lee, K.H. Cho, D.Y. Lee, Y.S. Lee, J.W. Jeong, M.S. Yang (Dry Process Fuel Tech. Development Div.)			
Publication Place	Daejeon	Publisher	KAERI	Publication Date	2003
Page	183 p.	Ill. & Tab.	Yes(○), No ( )	Size	A4
Note					
Classified	Open(○), Restricted( ), __ Class Document		Report Type	Art Report	
Sponsoring Org.			Contract No.		
Abstract(15-20 Lines)					
<p>The experiments on the fission products release behavior from spent fuel at high temperature assuming reactor accident conditions have been carried out at Oak Ridge Nation Laboratory of USA in HI/VI tests, CEA of France in HEVA/VERCOS tests, AEA of England and CRNL of Canada in HOX test. The VEGA program to study the fission product release behavior from LWR irradiated fuel was recently initiated at JAERI. The key parameter affecting the fission product(FP) release behavior is temperature. In addition, other parameters such as fuel oxidation, burnup, pre-transient conditions are found to affect the FP releases considerably in the earlier tests. The atmosphere conditions such as oxidizing atmosphere (steam or air) or reducing atmosphere (hydrogen) can cause significant change of FPs release and transport behavior due to chemical forms of the reactive FPs which is dependent on the oxidation potential. The effect of fuel burnup on the Kr-85 or Cs-137 release showed that the release rates of these radionuclides increased with the increase of burnup, meaning that release rates are dominated by the atomic diffusions in the grains and they are primarily a function of temperature. However, the data on FPs release behavior using higher burnups above 50,000 MWD/MTU are not so many reported up to now.</p> <p>This report summarizes the test results of FPs release behavior in reactor accident conditions produced from other countries mentioned above. This review and analysis on earlier studies would be useful for predicting the release characteristics of FPs from domestic spent fuel. The release rates of fission gas or FPs from spent fuel at high temperature conditions during fabrication process of dry recycling fuel were also analyzed using many data obtained from earlier tests.</p>					
Subject Keywords (About 10 words)		Spent fuel, High temperature process, Fission product, USA(HI/VI), Canada(HOX), Japan(VEGA), England (AEA) Dry recycling process, Release rate			