2003 춘계학술발표회 논문집
한국원자력학회

$(Th,U)O_2$ 핵연료의 핵분열 기체 확산 계수 측정

The Measurement of Diffusion Coefficient of fission gas in $(Th,U)O_2$

[1]김희문, [2]박광헌, [3]김봉구, [4]주용선, [5]김건식, [6]송근우, [7]홍권표, [8]강영환, [9]호광일

[1,2]경희대학교
경기도 용인시 기흥읍 서천1리

[3-8]한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

[9]수원대학교
경기도 화성시 봉담읍 와우리

요 약

고온가열 실험을 통하여 Xe-133의 확산계수값을 구하였다. 실험에 사용한 시편은 단결정 분말의 UO_2, UO_2 소결체 그리고 $(Th,U)O_2$ 소결체를 사용하였다. $(Th,U)O_2$ 소결체는 35%의 ThO_2 와 65%의 UO_2를 혼합하여 만들었으며 모든 시편의 우라늄은 천연 우라늄으로 제작하였다. 기포 또는 조사에 의한 trap 발생을 줄이기 위해 약 300mg의 시편들을 0.1 MWd/t-U의 낮은 연소도로 조사를 하였다. 조사후 고온가열 실험은 온도를 1400℃ 1500℃ 그리고 1600℃의 연속적인 변화를 주어 수행하였다. UO_2 단결정 분말의 확산계수값은 외부자료와 잘 일치하였다. $(Th,U)O_2$ 소결체의 확산계수값은 UO_2의 소결체의 확산계수값보다 10배가 낮은 것으로 나타났다. 그리고 산소포텐샬이 높을수록 UO_2 에서 확산계수의 거동과 같이 확산계수가 증가함을 보여주었다.

Abstract

Post irradiation annealing tests were performed to obtain the Xe-133 diffusion coefficients in uranium dioxide (UO_2) and mixed thorium-uranium dioxide [$(Th,U)O_2$] fuels. Specimens were a single-grained UO_2, a polycrystalline UO_2, and a polycrystalline $(Th,U)O_2$. The $(Th,U)O_2$ specimen was a mixture of 35% ThO_2 and 65% UO_2. Each 300mg specimen was irradiated to a burnup of 0.1 MWd/t-U. Post irradiation annealing tests were performed at 1400^{o}C, 1500^{o}C and 1600^{o}C, continuously. The xenon diffusion coefficients for the near stoichiometric single-grained UO_2 agree well with the data of others. The xenon diffusion coefficients in the polycrystalline $(Th,U)O_2$ are about one order lower than those in the polycrystalline UO_2. The xenon diffusion coefficient in the $(Th,U)O_2$ increases with the increasing oxygen potential of the ambient gas.

1. 서 론

핵분열 기체의 순수 격자 확산계수는 핵분열 기체 방출거동 모형에서 매우 중요한 인자이다. 이 격자

확산 계수는 일반적으로 온도, 연소도 그리고 화학당량변화에 따라 영향을 받는다. 격자 확산계수를 구하려는 실험은 1960년대부터 계속 진행해왔으며 주로 순수 UO_2 또는 여러 첨가물이 함유한 UO_2를 대상으로 확산계수를 구하였다[1,2,3,4,5,6]. 그러나, 그 결과들이 실험방법, 조사조건 및 시편의 형태에 따라 광범위하게 나타나고 있다. Turnbull[4]과 Lewis[7]는 온도에 대한 확산계수에 산화당량 및 낮은온도에서의 기계적인 확산계수항들을 추가하여 세개의 항으로 확산계수를 나타내었다.

시편이 단결정 또는 분말이 아닌 다결정 소결체일 경우, 결정립계에서의 확산효과가 관찰되는데 결정립계에서의 확산계수는 일반적으로 격자확산계수보다 높은것으로 알려져 왔다. 이러한 결정립계에서의 확산계수를 구하기 위해 기존에는 두개의 단결정과 그사이에 하나의 결정립계가 존재하는 구조로 모형설정과 실험을 통하여 그 값을 구하였다. 그러나 소결체 핵연료에 대한 모형으로서는 적용하기에는 부적절하여 최근에 Olander[8] 와 Uffelen[9] 이 적합한 모형을 제시하였다.

그 외에 요즘에는 여러가지 핵연료에 대한 연구개발이 이루어지고 있다. 특히, 경수로 핵연료로서 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 타당성 및 가능성에 대한 연구가 이루어지고 있으며 이에 대한 노내 거동에 대한 자료도 필요하다. 현재까지 $(Th,U)O_2$ 핵연료에 대한 노내거동 자료는 매우 미비하며 기본적인 물성치 즉, 용융점, 열전도도 그리고 엔탈피 등에 관한 자료 정도로 찾아볼 수 있다[10, 11, 12, 13]. 따라서 본 연구에서는 노내거동중 핵분열 기체 방출 연구에 대한 실험적 자료를 제공하고자 $(Th,U)O_2$ 핵연료의 확산계수값을 측정하고 순수 UO_2와의 비교 분석을 하였다.

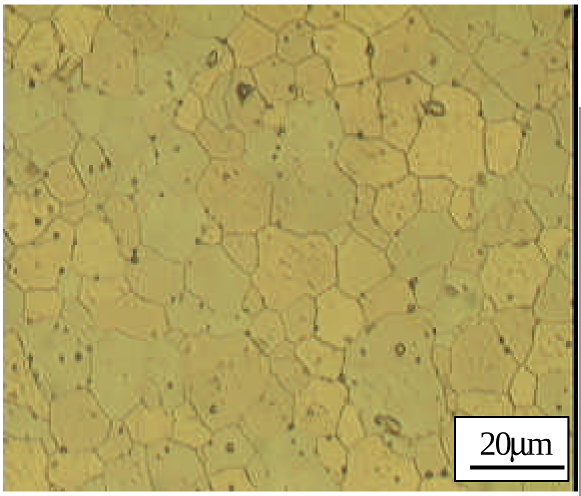
본 연구에서는 조사후 고온가열 시험을 통해 UO_2와 $(Th,U)O_2$ 의 xenon 확산 계수를 구하였고 단결정과 다결정의 확산계수 차이 및 UO_2와 $(Th,U)O_2$의 확산계수 차이를 분석하였다. 고온가열 실험은 여러 온도구간을 변화시켜 각 온도에 대한 확산계수값을 구하고 매 실험마다 산소포텐샬을 달리하여 산화정도에 따른 확산계수의 변화를 관찰하였다.

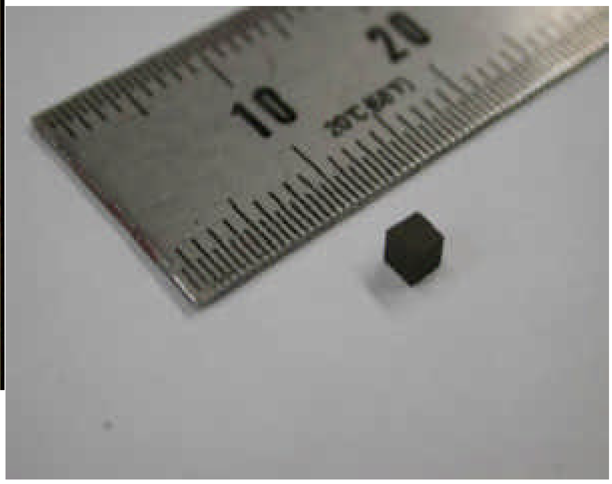
2. 실험 방법

2.1 시편 제작 및 조사

본 연구에 사용한 시편은 UO_2 단결정 분말, UO_2 소결체 조각 그리고 $(Th,U)O_2$ 소결체 조각을 이용하였다. UO_2 단결정 분말의 제조과정은 소결체를 산화와 환원을 반복하여 만들었으며 이전 발표자료에 그 과정을 상세히 나타내었다[14]. UO_2 소결체와 $(Th,U)O_2$ 소결체는 천연 우라늄을 사용하였으며 핵연료 소결체의 모양은 표면적대 체적비 계산의 편의성을 위해 육면체로 제작하여 사용하였다.

특히, $(Th,U)O_2$ 소결체는 ThO_2가 35%이고 UO_2가 65%의 비율로 제작하였으며 제작 공정에 대한 내용은 참고문헌에 언급하였다[15]. 그림-1은 소결체 조각 시편의 조직을 전자현미경으로 나타낸 그림과 육면체로 제작한 시편 모양을 보여주고 있다. 순수 UO_2 소결체 및 $(Th,U)O_2$ 소결체 모두 같은 크기의 육면체로 제작하였으며 밀도와 무게를 측정하고 표면적은 시편의 각변을 치수로 계산하여 유효구에 대한 반경을 계산했다. 그 결과, 유효구(Equivalent sphere)에 대한 반경(a) 약 1mm정도의 값을 얻었다.





35%ThO2X500

그림- 1 (Th,U)O_2의 조직사진(좌) 및 시편의 모양(우)

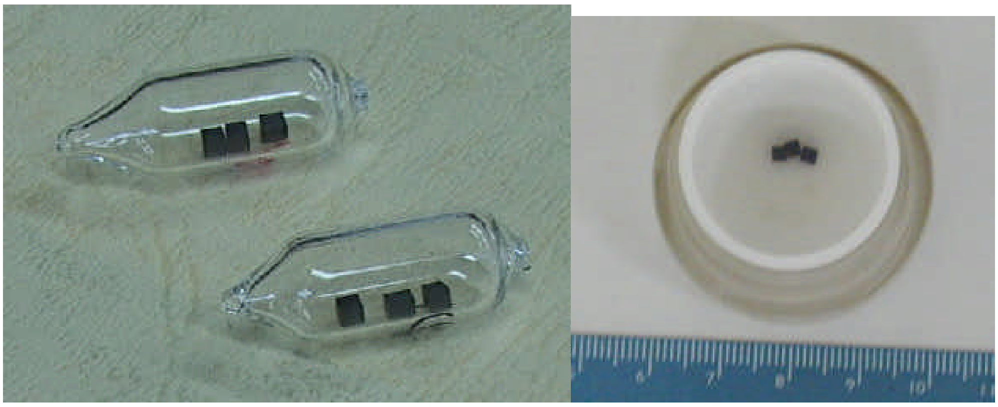


그림- 2 조사를 위한 유리앰플(좌) 및 조사후 가열을 위한 알루미나 도가니에 넣은 시편(우)

그림-2는 조사를 위해 시편을 유리앰플에 넣은 그림과 조사후 가열을 위해 시편을 알루미나 도가니에 넣은 그림이다. 조사시 시편의 핵분열 물질이 누출되지 않도록 하기위해 유리로 밀봉을 하였으며 산화 방지 및 열전달을 좋게 하기 위해 헬륨을 1기압으로 충진하였다. 조사가 끝난 시편들은 고온가열 실험을 하기위해 유리앰플에서 알루미나 도가니로 옮겼고 이것을 가열로에 넣어 고온으로 가열 실험을 하였다.

표-1은 각시편들의 제원과 조사시간을 나타내었다. 모든 시편들은 하나로 원자로에 HTS 조사공에 조사하였으며 (Th,U)O_2 시편의 조사시간은 핵분열 물질인 U-235의 양이 상대적으로 적은 관계로 동일 핵분열 수를 맞추기 위해 조사시간을 30분으로 하였다.

표- 1 각 시편들의 제원

시편	형태	조사시간	밀도	결정립 크기	연소도(MWd/t-U)
단결정 UO_2 (S-1,S-2,S-3)	분말	20 분	95%	23±2 μm	0.1~0.13
다결정 소결체 UO_2 (P-U-1,P-U-2,P-U-3)	3 조각	20 분	97%	8.1±0.5 μm	0.07~0.09
다결정 소결체 $(Th,U)O_2$ (P-Th-1,P-Th-2)	3 조각	30 분	97%	7.5±0.5 μm	0.1

2.2 실험 장비 개요

실험장비는 가열부와 포집부로 크게 나누며 가열부는 알루미나 관 주위의 전기 발열체와 관 내부에 시편을 장착시킬 수 있는 장치와 이송기체의 입출구 및 온도센서장착으로 이루어져 있다. 특히 온도센서를 알루미나 관 적합한 위치에 두어 실시간으로 산소포텐샬 자료를 얻을 수 있게 하였다. 포집부는 활성탄이 들어있는 유리관을 제작하여 핵분열기체가 활성탄을 거쳐나가도록 제작하였으며 이 유리관은 액화질소가 담긴 비이커에 넣어 핵분열 기체를 낮은온도의 고체로서 포집할 수 있도록 하였다. 이 때 비이커 및 유리관의 활성탄 부위는 모두 납상자에 담겨져 있으며 한쪽면에 구멍을 내어 감마 측정기를 두고 가열시간에 따른 감마 핵종의 누적량을 측정하였다. 그림-3은 실험장비의 전체 그림을 보여주고 있으며 상세한 내용은 이전 자료에 나타내었다[ ].

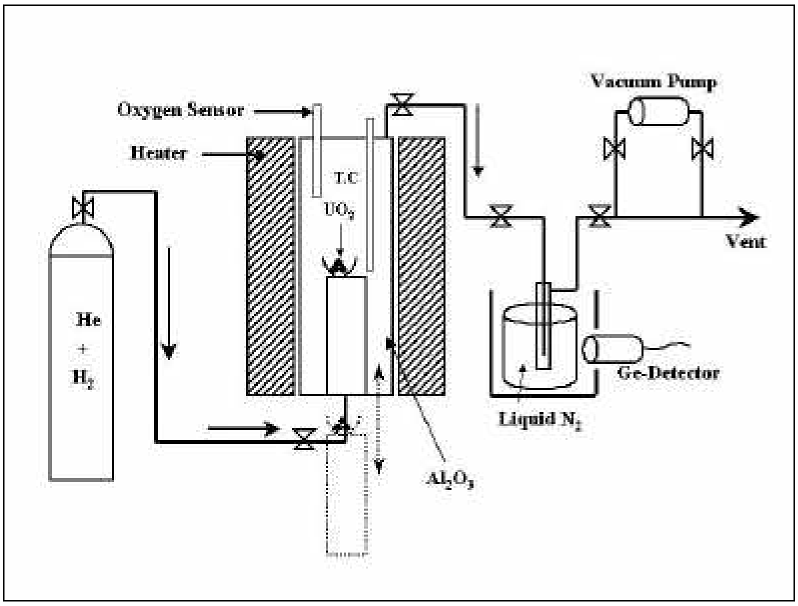


그림- 3 실험장비 설치 개요

2.3 실험 방법

소결체에 대한 실험은 이전 단결정분말의 실험방법과 동일하며 단지 방출비가 작아서 낮은 산소포텐샬의 경우 가열시간을 30시간으로 하였다. 실험동안 시편으로부터 방출된 Xe-133은 감마 측정기로 측정하여 시간에 따른 누적량을 측정하였다. 그리고 고온가열 실험전후, 시편에 대해 감마스캐닝을 3600초 동안 하였다.

확산계수를 구하기 위해 식(1)과 같이 Booth의 모형을 이용하였다[16]. 연속적인 온도변화에 따른 고온가열실험시 식(1)처럼 시간에 따른 방출비 함수로 그 기울기를 이용하여 구하게 되는데 f 에대한 $t^{1/2}$ 의 기울기보다 f^2에 대한 t의 기울기로 나타내면 보다 기울기가 보다 선형적인 값을 나타내므로 정확한 확산계수값을 구할 수 있다.[17,18]

$$f^2 = \frac{36D}{a^2\pi} t \qquad \text{식(1)}$$

식(1)의 기울기를 이용하여 계산하기 위해선 방출비를 구해야 하는데 감마측정으로부터 얻은 감마계수를 방출비로 계산하기 위해서 본 연구에서는 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산하였다.

감마스캔에 의해서 얻은 Xe-133의 파고는 백그라운드의 영향으로 실제적인 방사능량을 구하기가 어렵다. 게다가 실험전후의 Xe-133 파고비교는 때때로 큰 오차를 유발시켜서 다른 방법을 이용할 필요가 있다. 따라서 백그라운드에 영향을 많이 받지 않으면서 파고가 높은 핵종을 찾아야 하고 가급적으로 에너지가 높은 핵종을 찾아본 결과 I-132(668keV,772keV)와 La-140(815keV)을 선택하였다. 두개의 핵종 즉 3개의 파고를 참고선원인 Cs-137(662keV)를 이용하여 방사능량을 알수있으며 이것을 ORIGEN-2 코드를 이용하여 그 방사능량이 나올 수 있는 연소도를 구하였다. 이렇게 해서 연소도를 구하면 이 값을 이용하여 ORIGEN-2를 이용하여 실제 시편내의 존재하는 Xe-133의 방사능량을 알 수 있다. 가열 시간에 따라 누적된 파고들은 동일 포집부내에 참고선원인 Ba-133(81keV-33%)을 이용하여 동일하게 감마측정기로 측정하였다. Ba-133의 감마에너지 또한 Xe-133의 감마에너지와 거의 같아서 에너지에 따른 측정기 효율 검증을 할 필요가 없었다.

이렇게 구한 시간에 따른 누적 방출비는 식(1)의 기울기에 적용하여 확산계수를 구할 수 있었다.

산소포텐샬의 변하에 따른 확산계수의 값의 변화를 알아보기 위해 고온가열 실험시 시편의 산화분위기를 이송기체인 헬륨에 수소의 농도를 다르게 하여 분위기를 변화시켰다. 수소의 농도는 10%, 0.1% 그리고 헬륨자체의 산소 불순물로 해서 3가지 분위기를 조성하여 실험하였다.

3. 결 과

정확한 O/M 비를 구하기 위해 산소센서의 보정 실험을 한 결과, 산소포텐샬값이 약 20 kJ/mol의 오차를 보여주었다. 산소센서를 통하여 세가지 혼합 이송기체에 대한 시편 분위기를 측정한 결과 각각 약 -370kJ/mol (헬륨+수소-10%), -250kJ/mol(헬륨+수소-0.1%) 그리고 -110 kJ/mol(헬륨+산소불순물)이고 온도변화에 따른

산소포텐샬값의 변화는 현저한 차이를 보이지 않았다. 측정된 산소 포텐샬을 이용하여 O/M 비 계산은 Lindemer[19] 가 제시한 식을 이용하여 구하였으며, 그 결과 x값은 각각 0.0005, 0.01 및 0.16 이다.

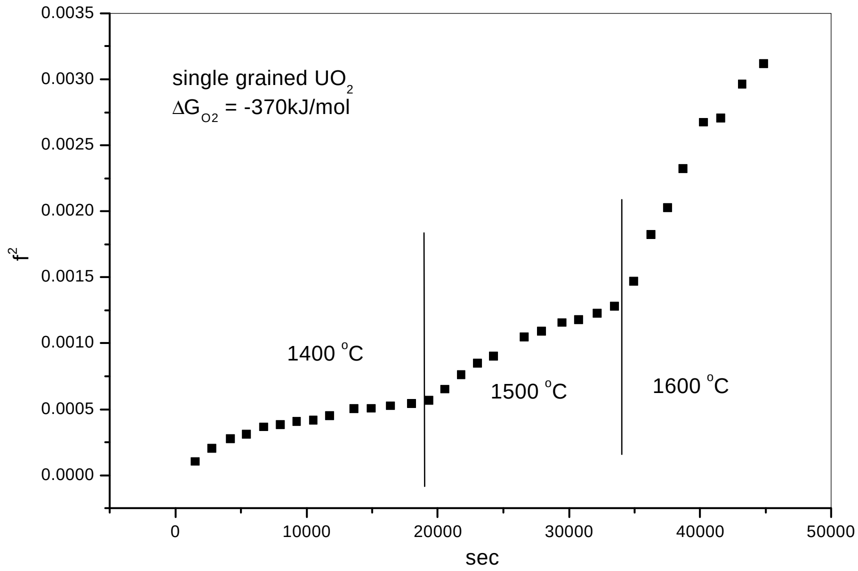


그림- 4 단결정 시편에 대한 시간에 따른 방출비 (S-1)

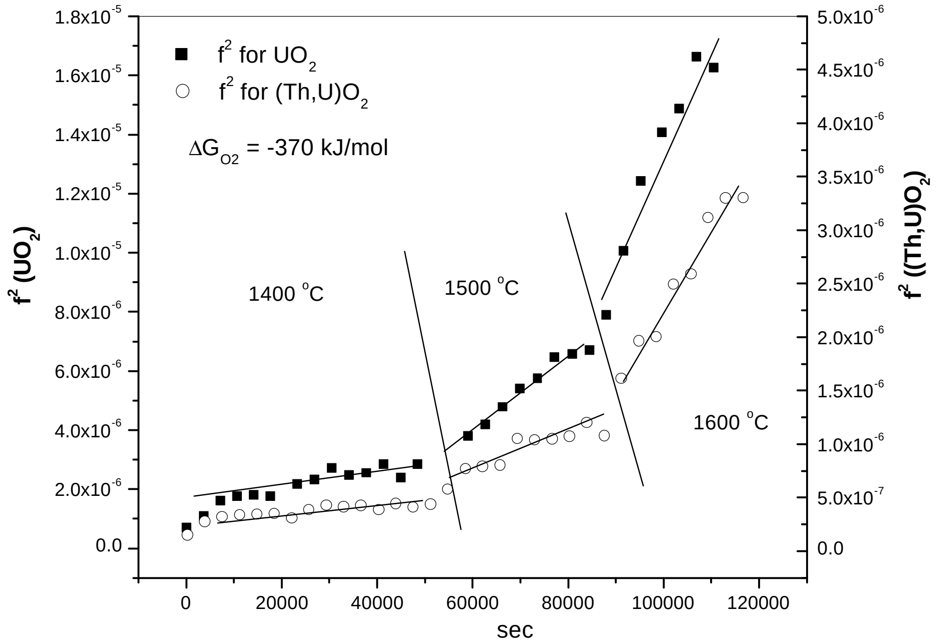


그림- 5 소결체 시편에 때한 시간에 따른 방출비(P-U-1, P-Th-1)

그림-4와 그림-5는 ORIGEN-2 코드를 이용하여 계산된 방출비를 시간에 따라 나타낸 그림이다. 그림-4는 단결정 시편 중 가장 낮은 산소포텐샬에서 실험한 시편(S-1)에 대한 그림이며 그림-5는 같은 산소포텐샬에서의 소결체 시편들의 결과를 나타낸 그림이다. 소결체 시편들의 방출비는 시편이 단결정

분말보다 커서 가열시간을 늘렸지만 방출비는 매우 낮음을 보여주고 있다. 그러나 온도에 따른 방출비 거동 형태가 거의 동일하게 나타남을 알 수 있다. 따라서 각 온도에 대한 기울기를 구하고 이것을 식(1)의 기울기와 비교하여 확산계수값을 표-2에 나타내었다.

표- 2 각 온도 및 산소포텐샬에 따른 확산계수값 결과

시편	산소포텐샬	확산계수(m^2/s)*		
		1400 °C	1500 °C	1600 °C
S-1	-370kJ/mol	$1.89 X10^{-19}$	$5.35 X10^{-19}$	$1.91X10^{-18}$
S-2	-110kJ/mol	$1.1 X10^{-17}$	$3.45 X10^{-17}$	$1.95 X10^{-16}$
P-U-1	-370kJ/mol	$3.27 X10^{-18}$	$1.13 X10^{-17}$	$3.45 X10^{-17}$
P-U-2	-250kJ/mol	$3.58 X10^{-17}$	$8.15 X10^{-17}$	$2.37 X10^{-16}$
P-U-3	-110kJ/mol	$6.32 X10^{-15}$	$1.13 X10^{-14}$	$1.46 X10^{-14}$
P-Th-1	-370kJ/mol	$2.45 X10^{-19}$	$1.7 X10^{-18}$	$6.45 X10^{-18}$
P-Th-2	-250kJ/mol	$5.02 X10^{-18}$	$1.68 X10^{-17}$	$6.03 X10^{-17}$

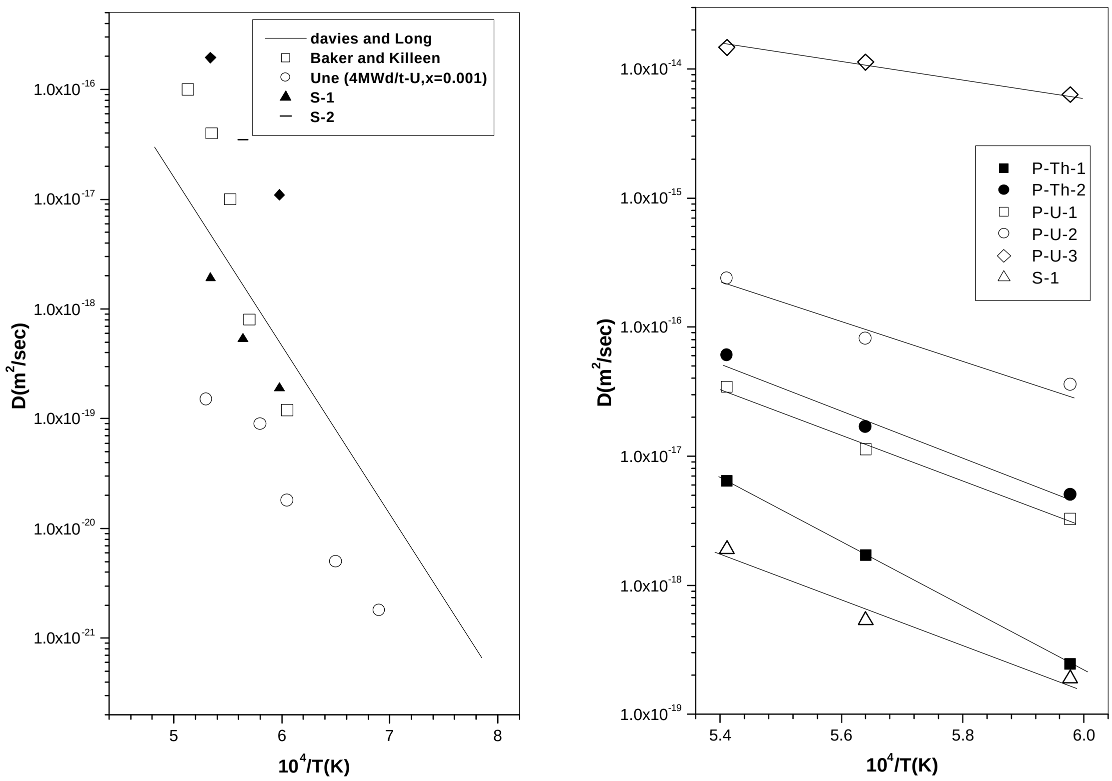
* measured diffusion coefficient contains less than 20% error.

표-2에서 보듯이 같은 산소포텐샬에서 UO_2 단결정 분말의 값이 UO_2 소결체의 값보다 낮고 $(Th,U)O_2$ 소결체의 값은 같은 UO_2 소결체보다 낮은 값을 보이고 있다. 일반적으로 산화가 될수록 확산계수의 값이 증가함을 볼 수 있다.

4. 고 찰

본 실험에서 구한 확산계수값을 다른 자료와 비교하여 그림-6(a)에 나타내었다. 여러 자료들의 값을 볼 때 확산계수값의 범위가 1000배 정도의 범위를 나타내고 있다. 본 실험에서 얻은 S-1 시편에 대한 자료는 Davies and Long[20] 의 자료와 비슷하며 Une[2]의 자료는 10배정도 낮은 값을 보이고 있다. Une의 시편은 소결체를 갈아서 분자체로 쳐서 분말로 만든 시편을 사용하였으며 연소도는 4MWd/t-U 이다. Une는 자신의 자료가 낮은 이유는 연소도에 있다고 언급했다. MacEwan and Stevens[3]는 약 0.4 MWd/T-U 이후에서는 핵분열 기체의 방출이 줄어드는데 이것은 핵분열에 의한 공극집합체(Vacancy cluster)가 형성되는데 이것은 xenon기체의 포집역할을 하므로서 방출하는 기체 원자수를 낮추게 한다. 그러나 본 실험에서의 시편에 대한 연소도는 이보다 낮은 0.1MWd/T-U 이므로 연소도에 의한 방출감소효과는 발생하지 않은 것으로 판단한다. Davies and Long[20] 의 자료도 연소도가 0.8MWd/t-U 임을 볼 때 거의 본 실험의 시편과 같은 조건이라고 볼 수 있다. Turnbull[21]은 1.7×10^{19} ~ 3.2×10^{19} fissions/cm^3 (650~1,220 MWd/t-U)연소도에서 결정립내의 작은 기포가

고르게 형성되는 것을 관찰하였다. 이 연소도 이후에는 핵분열 손상에 의해 기포의 고밀도 형성이 이루어지며 이때 기포의 크기는 조사 여건에 따라 영향을 받는다. 이것은 기체 원자의 확산이 기포에 의한 trap 또는 재분해 현상에 영향을 받는다는 것이다. 이러한 현상에서는 격자 확산계수를 구하기에는 너무 복잡한 거동현상을 나타내므로 구하기가 어렵다.



(a) (b)

그림- 6 UO_2 단결정 분말의 확산계수(a)와 소결체 시편들의 확산계수 비교(b)

S-1에 대한 활성화 에너지는 약 300 kJ/mol이며 Une[2]의 값은 265 kJ/mol 그리고 Davies and Long[20]의 자료는 293 kJ/mol 에 비해볼 때 매우 합리적인 값으로 볼 수 있다. 그러나 S-2에 대한 활성화 에너지는 372kJ/mol이며 S-1의 자료보다 다소 높음을 알 수 있다. 그러나 이것은 측정 오차(~20%)에서 비롯한 것 일 수도 있다. 따라서 산소포텐샬이 높은 즉 화학당량이 높다 할지라도 활성화 에너지는 거의 유사할 것으로 추측한다. 비록 이러한 사실이 명확히 밝혀지지 않았지만 적어도 화학당량이 변할지라도 기본적인 확산의 기구는 변하지 않는다고 판단하며 다만 확산 정도에는 영향을 끼칠 수 있다고 본다.

그림-6(b)는 소결체 시편들의 확산계수값을 보여주고 있다. 이미 언급한 바, 소결체의 유효구에 대한 반경(a)값은 거의 1mm이며 이 값을 근거로 확산계수를 구하였다. 표면적을 계산하기위해 BET 측정을 했지만 오차발생으로 표면적을 단지 육면체 시편의 각 치수를 이용하여 구하였다. 따라서 식(1)에 기울기로 구한

확산계수값은 ‘a’ 값에 매우 큰 영향을 받는다. 따라서 ‘a’ 값의 자승에 따라 확산계수값이 비례적으로 결정된다. 만약 UO_2 소결체에서의 확산계수값이 20배정도가 UO_2 단결정 분말의 값보다 크고 그 차이가 소결체에서의 ‘a’값이 잘못 분석된 것이라면, 확산계수값이 서로 같기 위해선 UO_2 소결체에서의 ‘a’ 값은 ~0.2mm이어야 한다. 그러나 소결체 시편의 확산계수는 결정립계에서의 확산효과 영향이 고려될 필요가 있다.

Olander[8]와 Van Uffelen[9]은 다음과 같이 소결체에서의 핵분열 기체 방출에는 결정립계에서의 확산효과가 영향이 있음을 설명하였다. 소결체 시편은 매우 큰 결정립계의 면적을 가지고 있고 이로 인해 낮은 연소도에서 방출률이 매우 빨리 증가한다. 따라서 ‘a’값에 대한 분석과 결정립계에서의 확산효과를 면밀히 분석할 필요가 있다. 어쨌든, 이러한 효과를 배제하고 UO_2와 $(Th,U)O_2$ 두개의 소결체 시편들에 대한 확산계수의 비교는 실질적으로 또 다른 의미가 있다.

$(Th,U)O_2$ 소결체의 확산계수는 10배정도 UO_2 소결체의 값에 비해 낮다. 그 이유는 아직 밝혀지지는 않았지만 그 감소현상은 확실히 관찰할 수 있었다. $(Th,U)O_2$ 소결체의 활성화 에너지는 약 427kJ/mol이며 활성화에너지가 307 kJ/mol인 UO_2 소결체보다 높으며 이것은 어쩌면 확산기구가 다를 수도 있음을 보여준다. $(Th,U)O_2$ 소결체의 확산계수는 UO_2 소결체와 같이 산소포텐샬에 따라 매우 민감하게 차이를 보여주고 있다.

이것은 토륨의 최대 이온수가 4+ 이므로 초과화학당량상태에서의 xenon기체의 방출비 증가는 $(Th,U)O_2$ 소결체내에 UO_2의 산화정도와 관련이 있다고 볼 수 있다. 따라서 $(Th,U)O_2$ 소결체에서의 확산계수값이 산소포텐샬이 높을수록 증가한다. 그러나, 높은 산소포텐샬에서는 활성화에너지가 감소하는 경향을 볼 수 있다.

Killeen and Turnbull[4] 은 xenon 기체가 우라늄 공극을 통해 이동한다고 보며 기존 확산계수에 우라늄 공극의 농도에 따른 확산계수를 추가하였다. 우라늄 공극의 농도 이론은 Lidiard[22] 와 Sharp[23]의 이론을 적용하였으며 여기에 낮은 온도에서의 기계적인 확산함수를 추가하여 확산계수를 세개의 항으로 나타내었다. 그러나 Matzke[24]는 xenon 확산은 삼중-공극(Tri-vacancies)을 통해 이루어진다고 제안하였다. 이것은 낮은 연소도에서 첨가 UO_2 와 순수 UO_2의 고온 가열 실험에 의한 방출비가 차이가 없음을 보고 xenon 기체가 우라늄 공극이 아닌 우라늄과 두개의 산소 공극 결합체에 의한 확산임을 제안하였다. 어느 이론이 맞든지간에 xenon의 확산은 어쨌든 우라늄 공극과 관련이 있음을 시사하고 있다. UO_2내의 주요 점결함은 산소이온에 의한 Frenkel 점결함 평형을 이루고 있으며 초과 화학당량인 상태에서는 산소의 침입형 구조가 대부분을 이루고 있다. 또한 우라늄 공극은 Schottky 평형이론에 의해 산소 공극과 평형을 이루고 있으며 초과화학당량의 경우 산소의 침입형이 많을수록 산소의 공극이 줄어들고 이로인해 우라늄 공극이 증가하는 현상이 일어나므로 xenon의 확산계수는 증가하게 된다.

그러나 $(Th,U)O_2$ 소결체에서는 토리아가 65%이고 UO_2가 35%이므로 토륨이 양이온 격자에 상당히 위치하므로 초과화학당량상태에서 순수 UO_2 보다 우라늄공극의 농도가 상대적으로 적으며 토륨이온이 공극을 만들기에는 우라늄이온보다 쉽지 않다고 본다. 다시 말해서 Schottky와 Frenkel 평형상수는 혼합물질인 ThO_2 와 UO_2에서 결정된다. $(Th,U)O_2$ 소결체의 확산계수가 10배 낮은 현상은 35%의 ThO_2 의 영향이라고 판단한다.

5. 결 론

xenon의 확산계수를 얻기 위해 UO_2 단결정 분말, UO_2 소결체 그리고 $(Th,U)O_2$ 소결체 3종류의 시편을 사용하였다. $(Th,U)O_2$ 소결체는 35%의 ThO_2와 65%의 UO_2를 혼합하여 만들었으며 모든 시편은 천연 우라늄으로 제작하였다. 하나로 연구용 원자로에 조사를 한 후 고온가열 실험을 하였고 xenon의 방출비는 온도와 산소포텐샬의 변화에 따라 구하였다. UO_2 단결정 분말의 확산계수값은 외부자료와 잘 일치하였다. 그러나 UO_2 소결체와의 비교에서 소결체의 확산계수값이 약 20배정도 높다. 그러나 그이유는 유효구의 반경인 'a' 값의 오차인지 아니면 결정립계의 확산효과인지는 불분명하다. 산소포텐샬이 높을수록 확산계수의 값이 증가함을 확인하였다. $(Th,U)O_2$소결체의 확산계수값은 UO_2의 소결체의 확산계수값보다 10배 낮음을 보였다. 이것은 우라늄의 공극 농도와 밀접한 관련이 있으며 토륨이 $(Th,U)O_2$ 소결체내에서 우라늄 공극의 농도를 줄이는 효과를 가져온 것으로 판단한다. 그리고 산소포텐샬이 높을수록 UO_2 에서 확산계수의 거동과 같이 확산계수가 증가함을 보여주었다.

참 고 문 헌

1. D.R.Olander. ' Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements.' , TID-26711-P1.ERDA (1976)

2. K.Une, I.Tanabe, M.Oguma, J.Nucl.Mater.150(1987) 93

3. J.R.MacEwan,W.H.Stevens, ' Xenon diffusion in UO_2.,J.Nucl.Mater.11 (1964)77

4. J.C.Killeen,J.A.Turnbull, ' An experimental and theoretical treatment of the release of Kr-85 from hyperstoichiometric uranium dioxide.' , Proc. Sym on chemical reactivity of oxide fuel and fission product release, Berkeley, UK(1987)

5. Hj.Matzke, ' Radiation enhanced diffusion in UO_2 and $(U,Pu)O_2$' ,Radiation Effects, 75 (1983)317

6. J.A.Turnbull, C.A. Friskney: J.Nucl.Mat. 107(1982)168

7. B.J.Lewis, B.Szpunar,' Modelling of Fuel Oxidation Behavior in Operating Defective Fuel Rods.' , seminar proceedings on Fission Gas Behavior in Water Reactor Fuels, Cadarache, France (2000) 293

8. D.R.Olander, ' Combined Grain boundary and Lattice Diffusion in Fine-Grained Ceramics.' Advances in Ceramics 17 (1986) 271

9. D.R.Olander, P.Van Uffelen, ' On the role of grain boundary diffusion in fission gas release.' , J.Nucl.Mat. 288 (2001) 137

10. T.Matsui, K.Naito, 'Oxygen potential of UO_{2+x} and $(Th_{1-y}U_y)O_{2+x}$ ', J.Nucl.Mater. 132(1985)212.

11. M.Ugajin, J.Nucl.Mater. 110(1982)140.

12. K.Bakker, E.H.P.Cordfunke, R.J.M.Konings, R.P.C.Schram, 'Critical evaluation of the thermal properties of ThO2 and $Th_{1-y}U_yO_2$ and a survey of the literature data on $Th_{1-y}Pu_yO_2$',J.Nucl.Mater 250 (1997)112

13. J.R.Springer, E.A.Eldridge, M.U.Goodyear, T.R.Wright, J.F.Langedrost, Battelle Memorial Institute Report BMI-X-10210,1967

14. 김희문,박광헌외6명,' 산소포텐샬에 따른 UO_2내 Xe-133 핵종의 확산계수 측정' ,추계원자력학술발표(2002)

15. 강기원,양재호외5명,' $(Th,U)O_2$소결체 : 제조방법 및 열물성' ,추계원자력학술발표(2002)

16. A.H.Booth, ' A Method of Calculating Fission Gas Diffusion from UO_2 Fuel and Its Application to The x-2-f Loop Test.', CRDC-721 (1957)

17. Hj.Matzke, ' Gas release mechanisms in UO_2-A critical review.' , Radiation Effects, 53 (1980) 219-242

18. S.Kashibe, K.Une, ' Effect of additives (Cr_2O_3, Al_2O_3, SiO_2, MgO) on diffusional release of Xe-133 from UO_2 fuels.' , J.Nucl.Mater 254(1998)234-242

19. T.B.Lindemer, T.M.Besmann,' Chemical thermodynamic representation of $UO_{2\pm x}$.' , J.Nucl.Mater. 30(1985)473-488

20. D.Davies and G.Long, AERE Rep.No.6267(1969)

21. R.M.Cornell, J..A.Turnbull, J.Nucl.Mat. 41(1971)87

22. A.B.Lidiard,' Self-diffusion of uranium in UO_2.' ,J.Nucl.Mater 16(1966)106

23. J.V.Sharp, *AERE Report No.6267* (1969)

24. Hj.Matzke, ' Diffusion in Doped UO_2.' , Nuclear applications. 2(1966)131