

《해 설》

二酸化우라늄 핵연료의 原子爐內 照射舉動

李 炳 暉

韓國科學技術院

李 基 淳

韓國에너지研究所

(1986. 7. 23 접수)

1. 머 리 말

原子爐의 경제성은 가동율에 크게 의존되므로 핵연료의 안전성에 달려있다고 보아도 지나친 말은 아니다. 1985년 6월말을 기준으로 가동, 건설 및 발주가 완료된 3만 KW급 이상의 원자력 발전로는 총 537基로 발전용량은 약 4억 1천 5백만 KW에 달하고 있는데¹⁾ 이는 우리나라의 최대 수력발전소인 수봉발전소 용량의 690배에 해당된다. 이와같은 원자력발전의 成長은 광범위한 핵연료의 照射舉動 연구결과로 개발된 효율성높고 안정성있는 핵연료의 뒷바침이 없다면 이루어 지지 못했을 것이다.

UO₂ 핵연료는 금속우라늄 핵연료의 결점인 照射成長²⁻⁴⁾이 일어나지 않으며 강한 活性을 갖는 UC와는 달리 高溫水에 대한 내식성이 양호하고 공기중에서 안정하므로 제조가공이 비교적 간단할뿐 아니라 용점*도 2,800°C 정도로 높아⁵⁻¹⁰⁾ 가스냉각로(GCR), 고온가스조(HTR) 등을 제외한 대부분의 발전로에서 핵연료로 사용되고 있다. 그러나 UO₂는 공유결합물인 UC와 달리 이온결합 산화물로 熱傳導度가 낮아 높은 출력밀도가 요구되는 發電爐에서는 연료의 중심온도가 높아질 뿐만 아니라 연료내의 급격한 온도구배로 인한 균열(crack)이 생기며 그외에도 高密化(densification), 스웰링(swelling), 핵분열생성가스의 유출등이 일어나는데, 이와 같은 爐內 照射舉動은 원자로의 가동조건에도 영향을 받지만 핵연료의 제조가공조건에도 크게 영향을 받는다. 원자력발전은 다른 발전방식에 비하여 投資費

가 높아 원자력발전이 경제적으로 우위를 계속 유지하기 위해서는 建設費의 절감도 중요하지만 가동율을 향상시키기 위한 연료의 개량도 중요하므로 燃料交替週期를 18개월로 연장시키려는 長週期化연구, 연소도를 5만 MWD/T-U 이상으로 높이려는 高燃焼연구 뿐만 아니라, 원자력발전비용의 증가에 따라 요구되는 負荷 추종 운전에 전될 수 있는 耐PCI(연료-피복관 상호작용) 核燃料의 개발이 강력하게 요구되어 핵연료의 원자로내 照射舉動이 여러모로 연구되고 있다.

우리나라는 현재 가동 및 건설중인 원자력발전소가 9基에 달하고 있으며 이에 필요한 UO₂ 핵연료의 國產化를 위한 연구가 활발히 진행되고 있어 핵연료의 원자로내 照射舉動은 많은 관심의 대상이 되고 있다. 따라서 본 解説에서는 UO₂ 핵연료를 원자로에서 照射할 때 일어나는 핵분열생성물의 분포, 핵분열생성가스의 유출, 스웰링(swelling), 고밀화(densification), 조직변화 등 제반 照射舉動 및 舉動解析에 제언된 주요 機構에 관하여 記述하고자 한다.

2. 核分裂生成物 分布

UO₂ 핵연료가 핵분열하게 되면 여러核種을 생성하게 되는데 생성량은 그림 1에서 보는바와 같이 분열핵종, 예를들면, ²³⁵U, ²³⁹Pu에 따라 다르며, 중성자에너지에 따라서도 다른데 ²³⁹Pu가 ²³⁵U에 비하여 高質量원소를 더 많이 생성하며 중성자의 에너지가 높을수록 高質量元素가 더 많이 생성되고 있다¹¹⁾. 그러나 핵분열생성물의 대부분은 연쇄 β-붕괴가 일어나므로 실제로 사용

* UO₂의 용점은 O/U율, 미량의 불순물에 의해서도 영향을 받으므로 연구자에 따라 2,760±30°C⁵⁾, 2,800±100°C⁶⁾, 2,840°C⁷⁾, 2,860±15°C⁸⁾, 2,860±45°C⁹⁾, 2,865±15°C¹⁰⁾ 등으로 발표되고 있으나 핵설계에서는 보통 2,800°C 前後로 보고 있다.

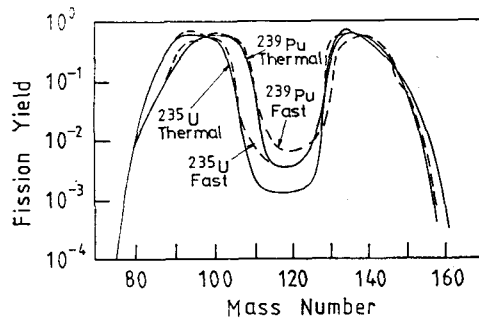


그림 1. ^{235}U 및 ^{239}Pu 의 熱中性子 및 高速中性子에 의한 핵分裂 收率¹¹⁾.

핵연료에 잔유하는 핵분열생성물의 양은 그림 1과 같지는 않으며 照射기간 및 照射後 경과 시간에 따라 다르다. UO_2 핵연료를 發電爐에서 33,000 MWD/T-U 연소시킨 직후 주요 핵분열생성물의 生成量은 표 1과 같다¹²⁾. 한편 UO_2 핵연료가 핵분열하면 그와 동시에 우라늄에 결합되었던 산소도 방출하게 되는데 이때 방출된 산소의 일부는 핵분열 생성물과 반응하여 산화물을 만들고 나머지는 UO_2 를 U_3O_8 로 산화시키므로 연소도 증가에 따라 우라늄의 산화도가 증가된다. 그 결과 그림 2와 같이 연소도 증가에 따라 핵연료의 融點이 낮아지며^{13,14)}, 동시에 핵분열생성가스의 bubble형성 등에 의해 그림 3과 같이 熱傳導度가 크게 낮아진다¹⁵⁾.

핵분열생성물은 산화물의 生成自由에너지에 따라 酸化物 또는 金屬介在物(metallic inclusion)로 UO_2 에 固溶 또는 析出되며 그외에 일부는 가스상태로 존

표 1. UO_2 핵燃料를 加壓輕水爐(PWR)에서 33,000 MWD/T-U燃焼시킨 직후의 主要 핵分裂生成物의 生成量¹²⁾

元 素	生 成 量 (wt ppm)	元 素	生 成 量 (wt ppm)
^3H	0.072	Pm	101
Kr	370	Sm	809
Xe	5420	Eu	185
Rb	331	Gd	110
Cs	2,720	Zr	3,647
Sr	887	Mo	3,434
Ba	1,397	Tc	837
Y	466	Ru	2,270
La	1,260	Rh	379
Ce	2,706	Pa	1,310
Pr	1,193	Te	565
Nd	3,870	I	269
計	34,536.07 wt ppm		

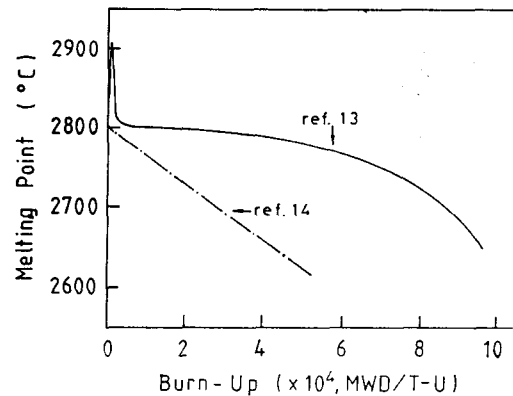


그림 2. 燃焼度에 따른 UO_2 核燃料의 融點.

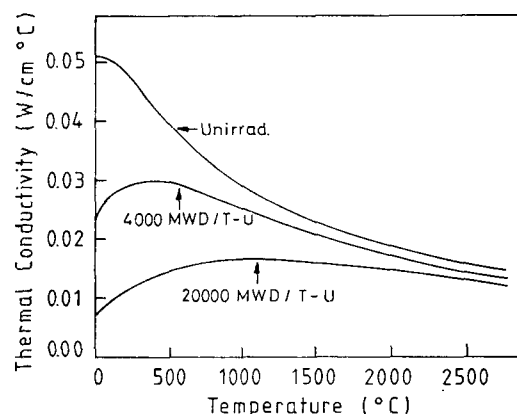


그림 3. 4,000 MWD/T-U 및 20,000 MWD/T-U 燃焼시킨 UO_2 核燃料의 溫度에 따른 熱傳導度¹⁵⁾.

제하는데, 연료내의 심한 온도구배로 인하여 일부의 핵분열 생성물의 再配置가 일어나서 연료내에는 산소의 활성화구배(oxygen potential profile)가 생기게 된다¹⁶⁾. 특히 Cs와 I는 현재 PWR 핵연료에서 가장 큰 문제점으로 되어 있는 PCI에 의한 응력부식파괴(stress corrosion cracking)¹⁷⁻²²⁾ 뿐만 아니라 원자로²³⁾ 및 사용핵연료저장폴²⁴⁾에서 파손 핵연료로 부터 유출되는 放射能과 깊은 관계가 있으므로 연료내의 再分布舉動은 대단히 중요하다. Cs은 산소의 potential에 따라 Cs_2O , CsUO_4 또는 金屬 Cs로^{21,25)}, I는 UI_4 , UI_3 , UI 또는 元素 I로 존재하는데^{26,27)}, Cs 및 I는 비등점이 각각 670°C 및 184°C 로 화합물로 존재하지 않는 金屬 Cs나 元素 I는 원자로 가동중에는 대부분이 가스상태로 존재하고 있다. Cs와 I는 연료내에서는 거의 CsI 화합물을 형성하지 않고 확산되어 再分布하는데 PWR의 정상가동 조건에서는 선출력(linear heat rate)이 200~250W/cm정도로 낮으므로¹⁵⁾ 확산이 활발치 못하여 그

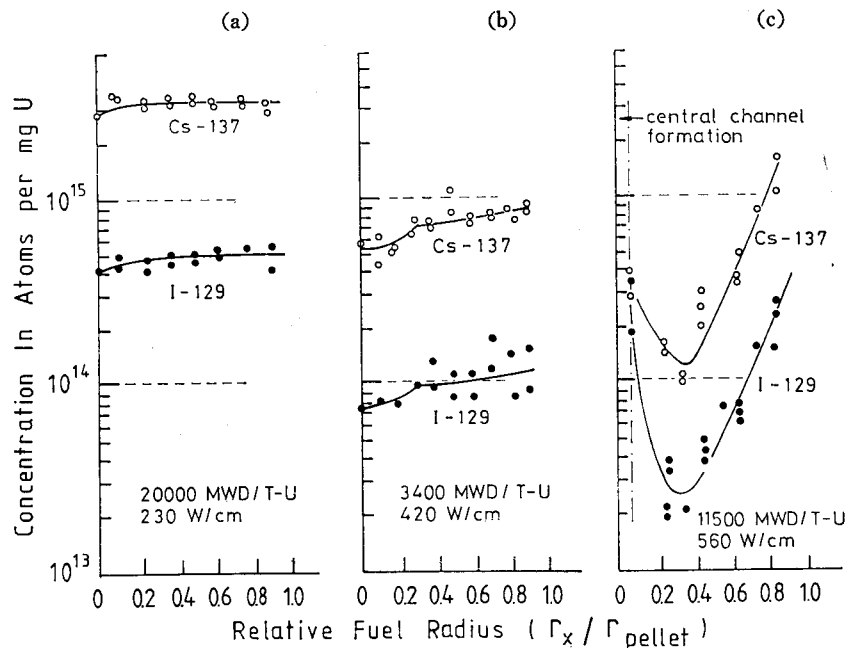


그림 4. 線出力에 따른 Cesium 및 Iodine의 UO_2 核燃料素子內의 分布¹²⁾.

그림 4(a)에서 보는바와 같이 再分布가 크게 일어나지 않으나 선출력이 증가하면 온도가 상승하여 확산이 활발해지므로 再分布가 크게 일어나 그림 4 (b), (c)에서 보는바와 같이 徑方向에 따라 심한 농도구배가 생긴다. Cs와 I 은 우선 연료 표면까지 확산한 후에 표면에서 이탈되어 가스상태로 유출되는데, 유출량은 선출력 및 연소도 증가에 따라 증가하나 微量만이 유출되고있다. Cs와 I 은 친화력이 강하므로 연료와 피복관 사이의 gap으로 유출되면 CsI 화합물을 만들어 피복관이나 연료 표면에 固着되는데^{25,28)}, 그중 일부는 放射線에 의해 再分解되어 피복관으로 침투하여 들어가므로 피복관의 응력부식파괴의 원인이 되기도 한다²⁹⁾.

그의 주요 핵분열생성물의 分布舉動은 다음과 같다.

(1) Ru, Tc, Rh, Pd 등 귀금속은 UO_2 에 용해되지 않고 金屬介在物로 결정립계 및 연료의 중심 void 등에 존재하는데 移動도가 낮다.

(2) Ba, Sr 은 BaO , SrO 또는 $BaZrO_3$, $SrZrO_3$ 등 산화물로서 존재하며 UO_2 에 용해되지 않고 析出物로서 柱狀結晶粒(columnar grain)과 等方結晶粒(equiaxed grain)의 界面 및 연료의 중심 void에 주로 존재하는데 移動도가 아주 낮다.

(3) Mo 은 금속 또는 MoO_2 산화물로서 UO_2 에 용해되거나 또는 金屬介在物로서 존재하는데 移動도가 낮다.

(4) Zr 은 ZrO_2 또는 $BaZrO_3$, $SrZrO_3$ 등 산화물로 존

재하는데 移動도가 아주 낮다.

(5) Rb, Te 는 대부분 원자로내에서 가스상태로 존재하여 bubble을 형성하되 移動도가 크므로 연료의 중심 void, 결정립계 또는 균열로 연결된 matrix 內 bubble로서 확산하여 균일하게 분포한다.

(6) Xe, Kr 은 실온에서 가스상태로 존재하는데 移動도가 커서 많은량이 연료로부터 유출한다.

3. 核分裂生成가스 유출

핵연료로부터 핵분열생성가스의 유출은 연료봉의 內壓을 증가시켜서 경우에 따라서는 피복관에 큰 hoop stress를 주게 되므로 연료봉을 팽창시켜 연료봉의 손상원인이 될 수 있다. 따라서 핵연료의 照射舉動 가운데 가장 연구가 많이 수행되고 있는 분야중의 하나이다. 우라늄 및 플루토늄이 핵분열하면 室溫 이하에서도 가스상태로 존재하는 여러 종류의 Xe 및 Kr 등 원소가 생성되는데 반감기가 짧은 동위원소는 원자가 동중에서 붕괴되어 固體生成物이 되고 비교적 반감기가 긴 동위원소만이 가스상태로 존재한다. Xe 및 Kr 은 UO_2 에 용해되지 않으므로 온도가 낮으면 UO_2 matrix에 侵入型가스原子로 존재하고 확산이 일어날 정도로 온도가 상승하면 결정립계로 확산하든지 또는 matrix에서 bubble을 형성하는데 핵분열생성가스의 bubble형성에는 2 내지 4개의 가스원자가 결합하여 작은 cluster

를 형성하고 여기에 다른 가스원자가 흡수되어 bubble를 만드는 homogeneous nucleation³¹⁾과 가스원자들이 void 등 결함에 trapping 되어 bubble를 만드는 heterogeneous nucleation³²⁾등이 있다.

핵분열생성가스의 유출량 측정 방법에는 핵분열생성가스가 유출되지 않도록 低温에서 照射하거나 또는 Xe, Kr 등 放射線가스를 粒子加速器로 침투시킨 후 高温에서 소둔하여 유출량을 측정하는 照射後焼鈍(post-irradiation annealing) 방법^{33,34)}, 원자로 가동중에 유출되는 양을 carrier gas를 이용하여 직접 측정하는 爐内測定方法(in-pile test)³⁵⁾ 및 照射한 후 핵연료봉을 천공하여 유출량을 측정하는 천공방법(puncture test)등이 있는데 照射後焼鈍方法은 측정이 간단한 이점이 있는 반면 핵분열생성가스의 生成과 流出이 同一한 조건에서 일어나지 않는 결점이 있다. 이에 反하여 carrier gas를 이용한 爐内 측정법은 핵분열생성가스의 生成조건과 同一한 조건에서 유출량을 측정하는 이점이 있다. 한편 연료봉 천공방법은 연료봉의 축방향 연소도 및 온도가 균일하지 않으므로 연료봉의 평균 연소도 및 평균온도에서의 핵분열생성가스의 유출량에 관한 자료가 얻어지므로 照射試驗條件을 엄격히 조절하지 않으면 정확한 자료를 얻을 수 없다. 핵분열생성가스의 流出은 저온에서는 일정하지만 700°C 이상의 고온에서는 온도, 결정립 크기, 연소도 등에 영향을 받는데 온도가 높을수록, 결정립이 작을수록 그리고 高燃焼일수록 流出率이 증가하는데 다음과 같은 流出機構가 제안되고 있다.

3.1. Recoil 및 knockout 유출 model

그림 5에서 보는바와 같이 핵분열생성가스는 recoil에 의해 또는 knockout에 의해 핵연료에서 유출될 수 있다. 핵분열생성가스는 生成시에 약 80MeV의 에너지를 보유하게 되는데 이 에너지에 의해 UO_2 matrix에서 10 μm 의 飛程을 갖을 수 있다. 또한 표 2에서 보는바와 같이 핵분열생성가스는 1次 knockout에 의해서 ~200Å, 高次 knockout에 의해서는 ~40Å의 飛程을 갖을 수 있다³⁶⁾. 따라서 연료표면에서 10 μm 내에서 生成된 핵분열생성가스는 recoil에 의해 또 표면에서 ~200

표 2. 핵분열생성물에 의한 U原子的 knockout數 및 에너지³⁶⁾

粒 子	生成數	平均에너지 (KeV)	飛程거리 (Å)
核分裂生成物	1	800,000	100,000
1次 knockout	28	100	220
高次 knockout	21,000	0.2	44

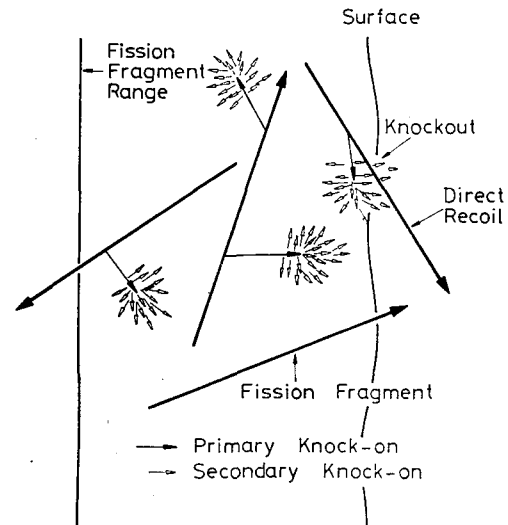


그림 5. Recoil 및 knockout에 의한 핵분열생성가스의 流出.

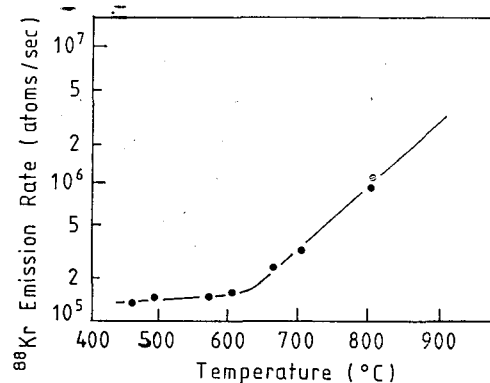
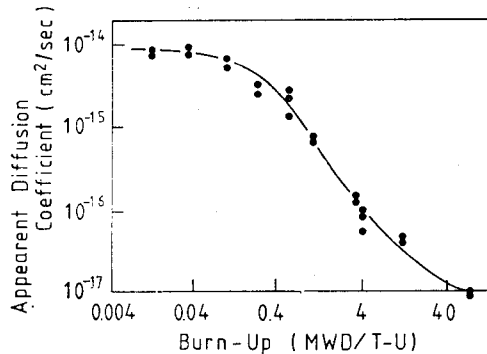


그림 6. 單結晶 UO_2 을 2×10^{12} fissions/cc·sec의 出力密度로 照射하는 경우 正常狀態에서의 ^{88}Kr 의 流出率³⁷⁾.

Å 및 ~40Å내에 존재하는 핵분열생성가스는 1次 및 高次 knockout에 의해 연료로부터 유출할 수 있다. 그림 6에서 보는바와 같이 625°C 이하의 저온에서 핵분열생성가스의 유출이 온도에 의존되지 않고 거의 일정한 현상³⁷⁾이나 또는 체적에 대한 표면적의 비율이 클수록 유출율이 증가하는 현상은 이 流出機構에 의해 잘 설명된다.

3.2. 等價球(equivalent sphere) 확산 model

온도가 700°C 이상으로 상승하면 핵분열생성가스의 유출은 그림 6에서 보는바와 같이 온도에 크게 의존하는데 이는 확산 model에 의해 잘 설명된다. 等價球 확산 model에서는 결정립을 상응되는 等價球로 보고,



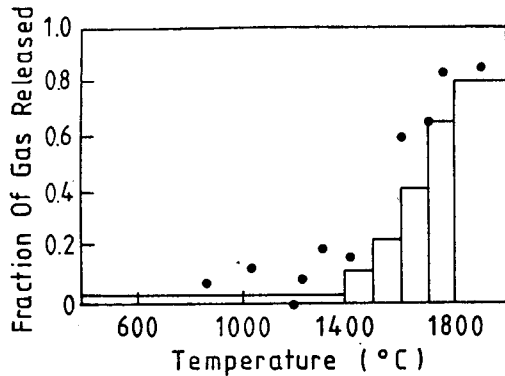


그림 9. 溫度에 따른 核分裂生成가스의 流出分率⁶¹⁾.

open bubble이 되므로 핵분열생성가스가 유출된다^{57,58)}. 轉位線도 이동시에는 결정립제와 마찬가지로 작은 bubble을 sweeping시킨다⁵⁹⁾.

3.5. 稼動中인 原子爐에서의 유출

稼動中인 원자로의 핵연료에서 유출되는 핵분열생성가스의 유출량은 simple lattice model과 trapping 확산 model을 이용한 等價球 확산 model로서 예측할 수 있다. 그러나 가장 보편적으로 핵분열생성가스의 유출량을 추정하는 방법은 핵분열생성기체의 유출율이 연소도에 무관하다고 보고 燃料體를 온도에 따라 圓柱殼으로 구분하여 각 온도에서의 유출율을 주어 계산하는 방법으로, Cox⁶⁰⁾는 1,400°C 이하에서는 30%, 1,400~1,800°C에서는 50%, 1,800°C 이상에서는 98%가 유출된다고 보는데 반하여 Notley⁶¹⁾는 그림 9에서 보는바와 같이 1,400°C 이하에서는 1%, 1,400~1,800°C 구간은 100°C 간격으로 세분하여 10~65%까지, 1,800°C 이상에서는 80%가 유출된다고 보고하고 있다. 그러나 실제로 稼動中인 原子爐에서 핵분열생성가스의 유출량을 측정하여 보면 핵분열생성가스는 연속적으로 유출하지 않고 原子爐가 start-up 또는 shutdown될때 주로 流出되고 있다⁶²⁻⁶⁴⁾. 이것은 UO₂ 핵연료는 1,400°C 이상의 고온에서는 延性이 증가하여 균열이 잘 일어나지 않으나 原子爐가 start-up 또는 shutdown 될 때는 燃料體가 저온상태에 있으므로 작은 熱應力으로도 bubble의 집결로 취약해진 결정립계가 파괴되므로 이때 결정립계에 집결된 핵분열생성가스가 순간적으로 流出되기 때문이다.

4. 스웰링(Swelling)

핵연료는 연소도에 따라 핵분열생성물이 축적되어 이러나는 스웰링과 5장에서 後述하는 바와 같은 燒結

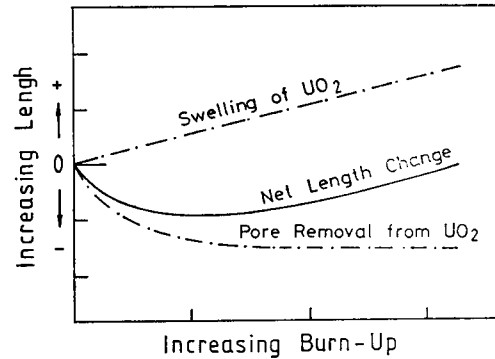


그림 10. 스웰링과 高密度化의 중첩에 의한 核燃料의 體積變化.

氣孔의 수축 및 소멸에 의한 체적감소가 동시에 일어나므로 핵연료의 爐內 체적증가는 그림 10에서 보는바와 같이 그 차에 의해 결정된다. 핵연료의 체적증가는 연료와 피복관사이의 간격을 감소시키므로 피복관에 hoop stress를 주게되어 피복관의 파손 원인이 될 수도 있는데 특히 핵연료를 高燃焼시키는 고속증식로(FBR)에서는 크게 문제가 되고 있다. 핵연료의 스웰링은 주로 기체상 핵분열생성물 및 고체상 핵분열생성물에 의해 일어난다.

4.1. 氣體狀 핵분열생성물

핵분열생성가스의 주성분은 Xe과 Kr인데, 前述(3장)한 바와 같이 Xe 및 Kr은 UO₂ matrix에 용해도가 적으므로 거의 용해되지 못하고 연소도증가에 따라 포화되어 결정립계로 확산되어 유출되거나 또는 서로 집결하여 matrix에서 bubble을 형성하여 존재한다. Matrix에 형성된 bubble은 기체원자의 확산에 의해 성장하거나⁶⁵⁾ 또는 bubble 내면에서의 matrix 원자의 확산⁶⁶⁾ 혹은 응력구배⁶⁷⁻⁶⁹⁾ 등에 의해 이동하면서 다른 가스나 또는 작은 bubble을 흡수하여 성장한다. 스웰링은 핵분열생성가스가 원자상태로 UO₂ matrix에 존재할 때 보다는 bubble을 형성할때 크게 일어나며 bubble의 내압과 표면장력의 관계로부터 큰 bubble을 형성할수록 스웰링은 더 크게 일어난다⁷⁰⁾.

4.2. 固體狀 핵분열생성물

고체상 핵분열생성물은 연소도에 따라 직선적으로 축적량이 증가하는데 화학적 상태 즉 U, O 및 핵분열생성물간의 화학적 potential에 따라 金屬介在物 또는 酸化合物로 존재한다. Anselin⁷¹⁾에 의하면 고체상 핵분열생성물의 체적은 핵분열이 일어난 U의 체적보다 약 32%나 증가하지만 핵연료에서는 온도구배에 따른 핵분열생성물의 이동과 화학적 potential의 차이로 인하

여 위치에 따라 스웰링되는 양이 다르다. 실제로 스웰링량은 핵분열이 일어난 U체적의 15 내지 45% 범위 내에 있다.⁷²⁾

4.3. Knock-on에 의한 스웰링

고속중성자로 피복관재료인 스테인레스鋼⁷³⁻⁷⁸⁾이나 핵융합로 제 I 벽 유망재료인 Mo⁷⁹⁻⁸¹⁾은 중성자의 照射를 받으면 knock-on에 의해 다수의 vacancy를 생성하는데 이들은 서로 집결하여 void를 만드므로 재료를 크게 팽창시킨다. 핵연료에서도 핵분열시에 생성되는 核分裂片은 전술한 바와 같이 약 80MeV의 에너지를 보유하므로 U원자 1개가 핵분열하면 UO₂ matrix에 10⁴개의 vacancy가 생성되어⁸²⁾ void를 만들 가능성이 크므로 스웰링의 원인이 될 수 있다. 그러나 핵연료에서는 핵분열생성물이 void에 trapping될 뿐 아니라 void와 핵분열생성가스의 bubble과의 구별도 어려우므로 void생성에 의한 스웰링은 고려치 않고 있다.

5. 高密化(Densification)

UO₂ 핵연료는 보통 10 μ m 이하의 분말을 압분하여 수소의 환원성분위기에서 單結晶 밀도의 약 95%가 되도록 소결하므로 연료소결체내에는 약 5%의 氣孔(pore)이 존재한다. 이러한 氣孔들은 핵분열가스의 trapping 장소가 되므로 bubble형성을 억제하여 스웰링을 낮추는 동시에 氣孔이 연료의 중심부로 이동하여 중심에 void를 만드므로 연료의 중심온도를 낮추는 효과도 있다. 그러나 그 반면에 氣孔의 수축 및 소멸에 의한 高密化는 연료를 수축시키므로 연료와 피복관 사이의 간격이 증가되어 gap의 열전도율이 낮아지며 연료의 길이가 감소되어 피복관의 collapse 현상을 유발시킨다⁸³⁾. 원자로내 연료의 高密化現象은 1970년 Bini 등⁸⁴⁾에 의해 관찰되었으나 照射에 따른 작은 기공의 소멸현상은 그전에도 많이 보고되었다^{48, 85-87)}. 그러나 爐內 高密化가 문제된 것은 1972년 PWR형인 미국의 Ginna 爐 스위스의 Beznaut 爐 등에서 非加壓核燃料棒이 collapse된 이후였으며 그후 핵연료의 밀도를 이론 밀도(theoretical density)의 95%까지 증가시키고 연료봉의 내압을 2.5 내지 3.5 MPa 정도로 가압함으로써 정상상태의 운전에서는 핵연료고밀화로 인한 collapse 문제는 해결되었다. 高密化는 보통 밀도변화, 연료 stack의 치수변화, 氣孔의 수축 및 소멸등으로 평가하는데 소결밀도, 결정립의 크기, 氣孔의 크기와 분포등에 의해 크게 영향을 받는다^{80, 89)}. 그림 11, 12는 소결 밀도 및 결정립이 高密化에 미치는 영향인데 소결밀도가 높을수록, 결정립이 클수록 高密化가 적게 일어남

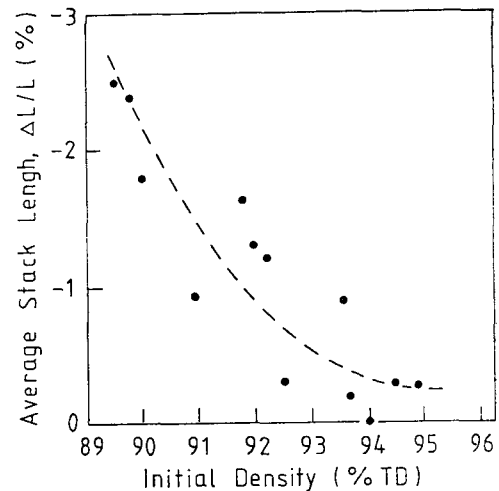


그림 11. UO₂ 核燃料의 燒結密度에 따른 爐內 高密化⁹⁰⁾; 發電爐에서 平均 200W/cm, 最大 270 W/cm의 線出力으로 12,000 MWD/T-U 燃燒後 爐外에서 γ -scanning으로 연료 stack을 測定.

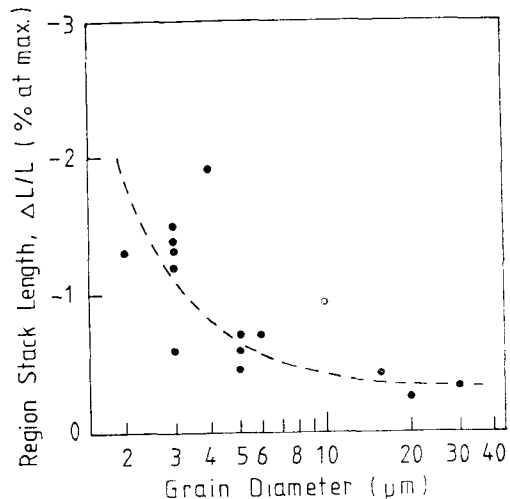


그림 12. 結晶粒 크기에 따른 爐內 最大 高密化⁹⁰⁾; 發電爐內에서 中性子 檢出器로 연료 stack을 測定, 燃燒中 平均 및 最大 線出力은 各各 200 W/cm 및 270 W/cm.

을 보여주고 있다.⁹⁰⁾

그림 13은 Halden 爐에서 照射試驗한 결과로 연소도에 따른 연료 stack의 수축율을 표시한 것으로 소결온도가 높을수록 照射에 안정함을 보여주고 있으며, 高密度의 연료는 4,000~5,000 MWD/T-U의 연소도에서 최고로 수축하는데 反하여 低密度의 연료는 15,000 MWD/T-U의 고연소도까지 연소도 증가에 따라 수축

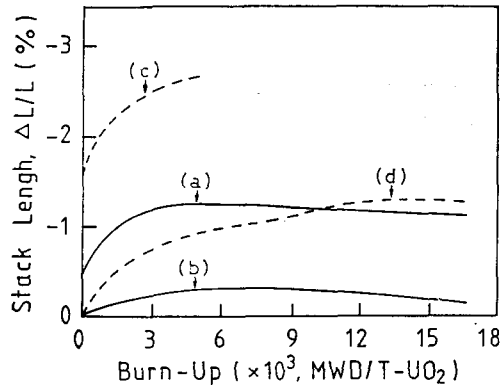


그림 13. 燃焼度 및 焼結條件에 따른 UO_2 核燃料의 收縮率⁹¹⁾; (a) 92% TD(燒結溫度 1,400°C), (b) 92% TD(燒結溫度 1,600°C), (c) 87% TD(燒結溫度 1,400°C), (d) 87% TD(燒結溫度 1,600°C).

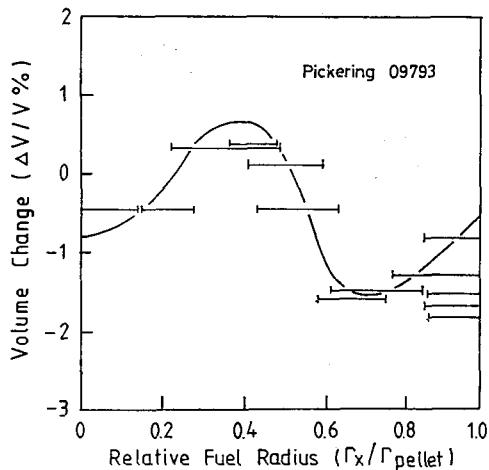


그림 14. CANDU爐에서 照射시킨 UO_2 核燃料의 徑方向의 體積變化⁹²⁾.

率이 증가한다⁹¹⁾. 이와같은 결과는 低燃焼度에서는 소결온도가 高燃焼度에서는 소결밀도가 고밀화에 크게 영향을 미치는 것을 의미한다. 핵연료의 고밀화는 照射溫度에도 크게 영향을 받는데 핵연료는 연소시 徑方向으로 온도구배가 생겨 그림 14에서와 같이 徑方向으로 체적의 변화가 일어나 고밀화의 差가 생긴다⁹²⁾. 爐內 高密化 현상은 연료체의 소결과정에서 일어나는 熱的 高密化 현상과는 별개의 機構에 의해 일어나는 것으로 400°C 정도의 저온에서도 일어난다⁹³⁾ 다음과 같은 高密化 機構가 제안되고 있다.

5.1. Stehle-Assmann model⁹⁴⁻⁹⁶⁾

高密化는 氣孔의 수축 및 소멸에 의해 일어난다고 보고 氣孔의 수축 및 소멸 과정을 정량적으로 기술하

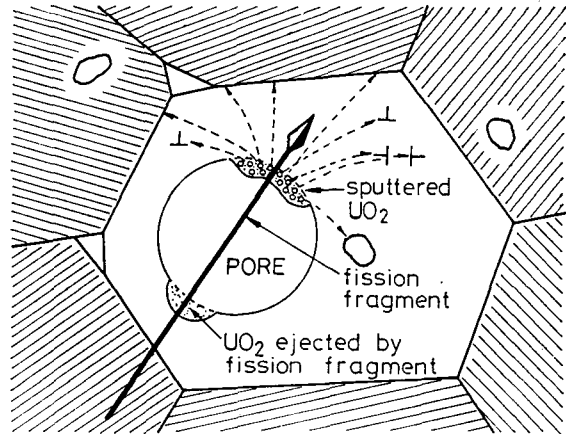


그림 15. 核分裂片의 충돌에 의한 氣孔의 收縮機構.

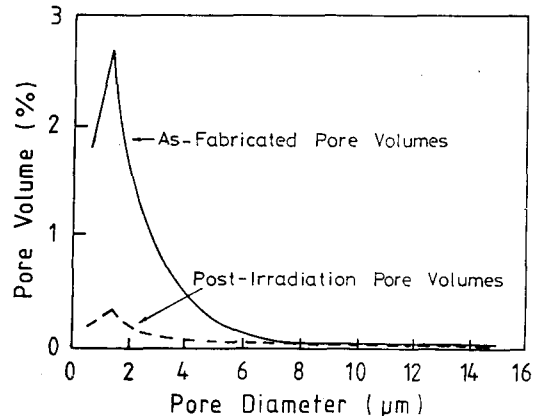


그림 16. 照射에 따른 氣孔의 消滅⁹⁰⁾; 큰 氣孔은 照射에 안정하나 작은 氣孔은 照射에 의해 급히 消滅하는 것을 보여주고 있다.

고 있으며 核分裂片의 충돌에 의해 순간적으로 소멸하는 극히 작은 氣孔과 수 차례의 충돌에 의해 서서히 수축하는 큰 氣孔으로 나누어 생각하고 있다. 즉 1개의 핵분열에 의해 핵연료는 열량론적으로 $10^{-15}cm^3$ 정도가 용해되는데 核分裂片의 飛程을 $6\mu m$ 으로 보면 그 軌跡의 직경은 약 $0.01\mu m$ 으로 이와같은 크기의 작은 氣孔은 核分裂片의 충돌에 의해 matrix중에 원자상태로 분해되어 소멸하므로 高密化가 일어난다. 한편 큰 氣孔은 核分裂片이 기공을 통과할때 약 $5 \times 10^{-10}cm^3$ 의 UO_2 분자가 氣孔의 일방측에서 타방측 표면에 그림 15와 같이 sputtering되므로 타방측 표면에서는 약 1%의 과포화 vacancy 농도를 갖는 새로운 체적이 생기는데 이 체적내에 있는 과포화 vacancy는 결정립계로 확산되어 소멸되므로 高密化가 일어난다. 이 model에서는 氣孔의 수축에 대하여 750°C 이상에서는 vacancy의 생성이 주요 지배기구(controlling mechanism)가 되므로

高密化는 연소율에만 의존하고 기공의 크기, 결정립의 크기 등 미세조직 및 온도에는 영향을 받지 않는다. 반면에 750°C 이하에서는 vacancy 확산이 고밀화에 주요 지배기구가 되므로 高密化는 온도 및 결정립의 크기에 영향을 받는다. 기공의 반경 감소율은 기공의 직徑에 역비례하므로 그림 16에서 보는바와 같이 작은 기공이 큰 기공에 비하여 더 빨리 소멸된다⁸⁰⁾.

5.2. Marlowe model^{97, 98)}

照射中の 확산계수(D_i)와照射시간(t_i)의 곱($D_i \times t_i$)이 재소결(resintering)시의 확산계수(D_s)와 재소결시간(t_s)의 곱($D_s \times t_s$)과 같으면 동일한 高密化가 일어난다는 실험결과를 기초로 하여 爐內 高密化도 재소결시의 高密化와 같이 vacancy가 결정립계로 확산하여 유출되므로 일어난다고 보고 있다. 그러므로 결정립이 크면 vacancy가 matrix중의 기공에 포획되는 확률이 증가하여 vacancy의 확산이 억제되므로 高密化는 감소하게 된다. 이러한 관점에서 Marlowe는 照射中の 결정립성장은 照射시간의 3승근에 비례한다고 보고, 연료의 소결과정에서 결정립 성장이 일어나는 마지막 소결단계에서는 高密化가 기공의 이동으로 일어난다고 보는 Coble⁹⁹⁾의 熱活性化焼結機構를 인용하여 vacancy의 열 확산계수(thermal diffusion coefficient)를 조사유도 확산계수(irradiation induced diffusion coefficient)로 바꾸고 照射中の 結晶粒성장을 고려한 高密化機構를 제안하였다. 따라서 Marlowe model에서는 高密化는 vacancy의 확산계수에 크게 의존되므로 vacancy의 농도 즉 燃燒率과 照射시간에 영향을 받는다.

5.3. Rolstad model¹⁰⁰⁾

Stehle 및 Marlowe model이 高密化機構에 관한 model인데 반하여 Rolstad model은 실험결과를 분석하여서 소결밀도와 소결온도만으로 고밀화의 정도를 예측할 수 있게 만든 model이다. Rolstad는 Halden 爐에서 수행된 일련의 고밀화 실험에서 5,000 MWD/T-U 연소시 高密化는 최고에 도달한다는 결론을 얻어, 연료의 축방향수축율을 소결온도와 소결밀도만의 함수로 표시한 식(1)과 연소도만의 함수로 표시한 식(2)을 만들었다.

$$\Delta L/L = 22.2 \{ (100 - SD) / (Ts - 1,180) \} \quad (1)$$

$$\Delta L/L = 3 - 0.93 \exp(-BU) - 2.07 \exp(-35BU) \quad (2)$$

여기서 L 는 照射前의 연료봉의 길이, ΔL 는 照射後의 연료봉의 길이 변화, SD 는 이론밀도로 표시한 연료의 소결밀도이며, Ts 는 연료체의 소결온도(°C), BU 는 10^3 MWD/T-U로 표시한 연소도인데, 식(1)에서 얻은 값만큼 식(2)의 지수곡선을 이동시키므로서 高密化의 정

도를 예측할 수 있다. Rolstad model은 高密化를 소결온도와 소결밀도만의 함수로 표시한 간단한 model이므로 특별한 목적으로 설계된 연료에서는 반듯이 일치하지는 않으나 일반연료에 대해서는 1,300~1,700°C의 소결온도범위와 85% TD이상의 소결밀도를 갖는 연료에 대해서는 축방향수축율을 상당히 합당하게 예측하여 준다.

5.4. NRC model

미국원자력위원회(NRC)는 爐內 고밀화분제가 발생한 직후 모든 연료는 연소개시와 더불어 고밀화가 일어나 96.5% TD 까지 밀도가 증가되며 徑方向으로는 등방적으로, 축方向으로는 비등방적으로 수축한다는 model⁸³⁾을 발표하였다. 그후 Halden Project의 실험결과를 토대로 하여 1,700°C에서 24시간 동안 爐外 再燒結을 할때 고밀화율이 4%이하인 연료는 2,000 MWD/T-U, 4% 이상인 연료는 500 MWD/T-U 이상으로 연소하는 경우에 재소결시 도달하는 최고밀도까지 高密化가 일어난다는 新 model¹⁰¹⁾을 발표하였다.

6. 組織變化

酸化物핵연료는 열전도도가 나뉘므로 연료내에 온도구배가 생겨 선출력 및 연소도등 照射條件에 따라 균열 발생, 等軸結晶成長(equiaxed grain growth), 柱狀結晶成長(columnar grain growth), 기공의 이동에 의한 중심 void 생성 및 중심부 熔解등 조직변화가 일어난다. 그림 17은 CANDU형 핵연료를 200 W/cm, 440 W/cm, 690 W/cm 및 910 W/cm의 線出力으로 照射시킨 경우의 斷面組織의 변화로, 선출력이 200 W/cm에서는 등축결정성장등 미세조직변화는 일어나지 않고 다만 徑方向의 균열만이 일어났으며 440 W/cm의 선출력에서는 연료체 중심에서 부터 0.12r(r 은 연료체의 반경)의 구역내에서 등축결정성장이 일어났다. 한편 선출력이 690 및 910 W/cm로 증가하면 등축결정성장구역이 0.64r, 0.73r로 확장될 뿐만 아니라 주상결정도 생성되었다. 그외에도 910 W/cm의 線出力에서는 중심부의 용해가 일어났다.

6.1. 균열생성

핵연료는 照射시 온도구배로 인하여 열응력이 생기므로 균열이 발생하는데 낮은 線出力에서는 그림 17(a)에서 보는바와 같이 徑方向으로만, 높은 線出力에서는 그림 12(b), (c), (d)에서 보는바와 같이 徑方向과 圓周方向으로 균열이 발생한다. CANDU형 핵연료 소자의 경우 중심온도가 800°C 정도면 약 150°C의 중심과 표면의 온도차에 의해 균열이 발생하는데 비하여

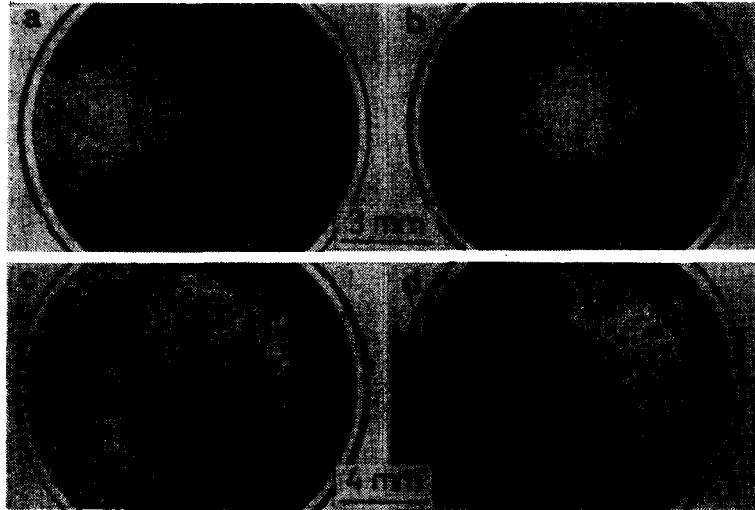


그림 17. 선출력에 따른 UO_2 핵燃料 燒結體의 断面組織⁵¹⁾; (a) 天然 UO_2 核燃料로 發電爐에서 200 W/cm의 선出力으로 2,900 MWD/T-U 照射, (b) 天然 UO_2 核燃料로 發電爐에서 440 W/cm의 선出力으로 6,300 MWD/T-U 照射, (c) 3.0% 濃縮 UO_2 核燃料로 材料試驗爐에서 690 W/cm의 선出力으로 8,300 MWD/T-U 照射, (d) 3.6% 濃縮 UO_2 核燃料로 材料試驗爐에서 910 W/cm의 선出力으로 8,300 MWD/T-U 照射.

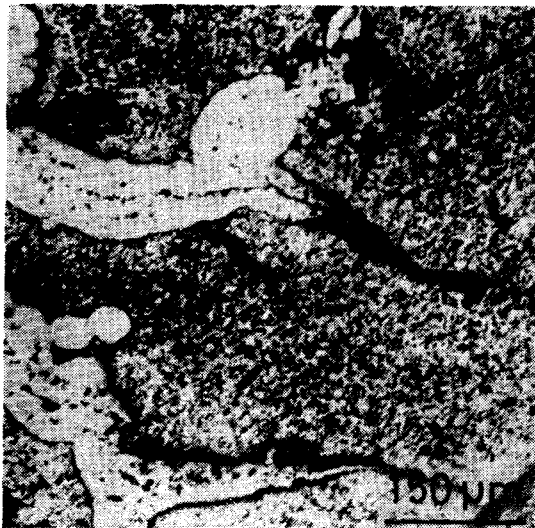


그림 18. 加壓輕水爐(PWR)에서 破損된 UO_2 核燃料의 微細組織¹⁰³⁾; 흰 부분이 冷却水에 의해 UO_2 가 U_3O_8 로 酸化되어서 균열이 치유된 것을 보여주고 있다.

중심온도가 300°C 정도로 낮으면 중심과 표면의 온도차가 약 80°C 만 되어도 균열이 발생하므로 연료온도가 낮을수록 작은 온도차에 의해서도 균열이 발생한다⁵¹⁾. 연료 표면의 균열은 주로 최초 출력증가시에 일어나지만, 연료중심부의 균열은 $1,500^\circ\text{C}$ 이상의 온도에서는 균열이 치유되므로¹⁰²⁾ 최종 출력정지시에 생성된 것만이 잔류된다. 한편 破損 핵연료봉내의 핵연료는 냉각수에 의해 UO_2 보다 체적이 큰 U_3O_8 로 산화가 일

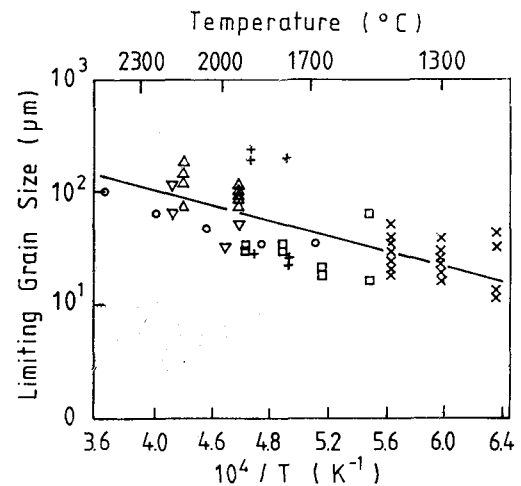


그림 19. 溫度에 따른 非照射 UO_2 核燃料의 限界 結晶粒成長.

○: MacEwan¹⁰⁴⁾ ×: Ainscough¹⁰⁵⁾
 △: Hausner¹¹¹⁾ ▽: Hausner¹¹²⁾
 □: Stehle¹¹³⁾ +: Ainscough¹¹⁴⁾

어나므로 그림 18에서 보는바와 같이 균열의 일부가 치유된다¹⁰³⁾.

6.2. 等軸結晶成長

등축결정성장은 결정립제를 통한 원자의 확산에 의해 일어나는 현상으로 비록 최대출력밀도때의 온도이지만 주상결정성장과 더불어 照射溫度의 측정척도에도 이용되고 있다¹⁰⁴⁾. 爐外에서 再燒結시험 결과에 의하면 등축결정성장 개시온도는 보통 $1,500^\circ\text{C}$ 전후로

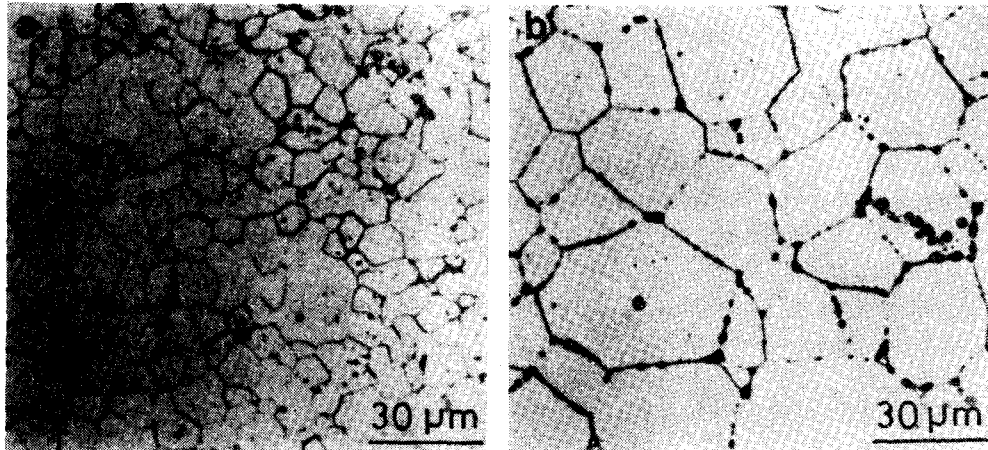


그림 20. 照射에 따른 UO_2 核燃料의 組織變化⁵¹⁾; (a) 非照射材의 組織, (b) 500 KW/cm의 線出力으로 8,300 MWD/T-U 燃焼시킨 組織으로 等軸結晶成長과 結晶粒界의 bubble集結을 보여주고 있다.

보고되고 있으나, 장시간 燒鈍시에는 $1,300^\circ\text{C}$ 정도의 낮은 온도에서도 결정립성장이 일어나고 있으며 결정립성장 속도는 보통 소둔시간의 자승근¹⁰⁶⁾ 또는 삼승근^{107,108)}으로 표시되고 있다. 금속의 결정립성장 연구에 의하면 氣孔 및 介在物의 안정한 배열에 의해 결정립성장은 한계크기(limiting size)가 있는데¹⁰⁹⁾, UO_2 핵연료에서도 그림 19에서 보는바와 같이 결정립 성장은 한계크기를 갖는데 온도에 크게 영향을 받는다^{105,110~114)}. 등축결정성장은 결정립계의 이동에 의해 일어나므로 성장속도는 기공, 불순물, O/U率 등에 의해 영향을 받는데 $0.1\mu\text{m}$ 이상의 氣孔이나 介在物은 결정립계의 이동을 방해하므로 성장속도를 억제하고, O/U率이 2 이상이 되면 과잉의 酸素가 格子間原子가 되어 확산이 촉진되므로 저온에서도 결정립성장이 일어난다. 특히 照射中에는 핵분열생성가스의 bubble 및 고체 핵분열생성물의 析出物등에 영향을 받아 연소도가 증가할수록 결정립성장 속도가 늦어진다^{105,115)}. 그림 20은 照射前後의 UO_2 핵연료조직으로 照射溫度 $1,550^\circ\text{C}$ 에서 등축결정성장이 일어난 것을 보여주고 있다.

6.3. 柱狀結晶成長

주상결정은 爐外에서 재소결할때는 일어나지 않으며 높은 출력밀도로 照射시킨 연료에서만 일어나는 현상으로 小柱狀結晶과 大柱狀結晶으로 구분하는데 氣孔내의 UO_2 증발과 응고기구에 의해 일어난다^{116,117)}. 연료체의 온도가 $1,700^\circ\text{C}$ 이상이고, 徑方向의 온도구배가 $200^\circ\text{C}/\text{mm}$ 이상이면 燒結氣孔은 lens型으로 되면서 연료중심부쪽에 접한 氣孔表面에서는 UO_2 분자가 증발되고 연료표면쪽에 접한 면에서는 UO_2 분자가 응축되는 과정을 통하여 氣孔이 중심부쪽으로 이동하면서 小

柱狀結晶을 만든다^{117,118)}. 한편 大柱狀結晶은 보다 고온에서 小柱狀結晶의 성장으로 생긴다고 알려져 있는데¹¹⁹⁾, CANDU형 핵연료에서는 선출력이 600 W/cm 이상이면 그림 17(c), (d)에서 보는바와 같은 주상결정성장이 일어난다. 주상결정은 氣孔의 이동 軌跡에 의해 생성되므로 氣孔이 함유되지 않아서 밀도가 이론밀도의 약 99%정도로 高密化되며, 중심으로 이동한 氣孔은 서로 집결하여 연료중심에 void를 만든다. 따라서 低密度연료체 일수록 연료중심에 큰 void를 만든다. CANDU형 핵연료에서는 선출력이 690 W/cm 정도면 중심부에 void가 생성된다.

7. 맺 음 말

핵연료의 照射舉動은 원자로의 가동율에 큰 영향을 주므로 근래에 우리나라에서도 이에 관하여 많은 관심들을 갖고 있다. 따라서 이에 도움이 되고자 핵연료의 원자로내 照射舉動과 그 解析機構에 관하여 이해하기 쉽도록 平而하게 記述하여 보았다. 새로운 핵연료를 開發하거나 또는 既存핵연료를 改良하기 위해서는 各 各 그 目的에 맞는 照射試驗을 하여 爐內 조사거동을 분석하고 평가하여야 하는데 현재는 주로 負荷追從(load following) 運轉에 안전성을 갖는 耐 PCI 연료 개발과 濃縮度를 증가하여 高燃焼시키므로써 연료의 交替週期를 長週期化 할 수 있는 高燃焼度핵연료 개발에 관한 照射試驗이 광범위하게 수행되고 있다. 그 외에도 照射試驗用으로 제조한 핵연료봉을 發電爐用 핵연료 집합체에 장전하여 照射試驗을 하거나 또는 試驗

用 핵연료집합체를 제작하여 Fugen爐와 같은 시험용 발전소에서 照射試驗하여 性能을 평가하는 경우도 있다.

한편 많은 시험비용이 소요됨에도 불구하고 여러나라에서 發電爐에서 사용한 核燃料集合體를 照射後試驗하여 爐內 健全性을 평가 할 뿐만 아니라 損傷원인을 규명하여 發電爐의 가동을 향상과 핵연료의 性能改良에 필요한 자료를 얻고 있는데, 현재 우리나라는 發電爐 핵연료의 照射後試驗施設을 보유하고 있을 뿐만 아니라 試驗技術 및 照射學動의 분석평가 能力도 보유하고 있다. 따라서 우리도 外國의 경우와 같이 相關기관의 協力으로 發電爐核燃料의 健全性평가를 위한 照射後試驗이 광범위하게 수행되어야 할 것이다.

참 고 문 헌

- World List of Nuclear Power Plants, Nuclear News, Amer. Nucl. Soc. 28(10), 93 (1985)
- B.A. Loomis, Phil Mag., 18, 539 (1968)
- J.A.L. Robertson, Irradiation Effects In Nuclear Fuels, An AEC Monograph, Gordon and Breach Science Publ. (1969), p. 28.
- S.N. Buckley, TID-8540 (1964)
- L.G. Wisnyi and S.W. Pijanowski, KAPL-1702 (1957)
- J.A.L. Robertson, AECL-1529 (1962)
- W.L. Lyon, GEAP-4878 (1965)
- J. Belle, A/CONF/P/2404 (1958)
- T.C. Ehlert and J.L. Margrav, J. Amer. Ceram. Soc., 41, 330 (1958)1
- R.E. Letta et al., J. Nucl. Mater., 35, 195(1970)
- J.H. Davies and F.T. Ewart, ibid., 41, 143 (1971)
- M. Peehs, R. Manzel, W. Schweighofer, W. Haas, E. Haas and R. Wuertz, ibid., 97, 157 (1981)
- J.A. Christensen, HW-69234 (1962)
- J.A. Christensen, R.J. Allio and A. Biancheria, WCAP-6063
- 森島淳好, 栗山實, 原山泰雄, 白鳥徹雄, 泉文男, 藤田操, JAERI-M-4881 (1972), WAPD-TM-757, p. 12. (1969)에서 引用
- D.R. Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, ERDA(USA) (1976), p. 181
- Katsumi Une, J. Nucl. Mater., 87, 207 (1979)
- P. Bouffloux, J. Van Vliet, P. Deramaix and Lipens, ibid., 87, 251 (1979)
- W.J. Penn, R.K. Lo and J.C. Wood, Nucl. Technol., 34, 249 (1977)
- J.T.A. Roberts, E. Smith, N. Fuhrman and D. Cubicciotti, Nucl. Technol., 35, 131 (1977)
- Th. M. Besmann and T.B. Lindemer, ibid., 40, 297 (1978)
- F. Garzarolli, R. Manzel, M. Peehs and H. Stehle, Kerntechnik, 20, 27 (1978)
- E. E. Schuster, A. Kerstin and K.H. Neeb, in: Proc. Symp. Reaktortagung, Mannheim (1977), p. 817.
- M. Peehs, W. Petri, H.P. Fuchs and F. Schlemmer, in: Proc. Symp. NEA Seminar on Storage of Spent Fuel, Madrid (1978), p. 223.
- D. Cubicciotti, J. Nucl. Mater., 78, 96 (1978).
- S. Yajima, K. Shiba and M. Handa, Bull. Chem. Soc. Japan, 38, 273 (1965)
- M. Handa, ibid., 39, 321 (1966).
- J. Basin, J. Jouan and N. Vignesoul, Trans. Amer. Nucl. Soc., 20, 235 (1975).
- D. Cubicciotti and J.H. Davies, Nucl. Sci. Eng., 60, 314 (1976).
- S. Katcoff, Nucleonics, 18, 201 (1960).
- B.L. Eyre and R. Bullough, J. Nucl. Mater., 26, 249 (1968).
- J.A. Turnbull, ibid., 38, 203 (1971).
- Hj. Matzke and F. Springer, Rad. Effects, 2, 11 (1969).
- W. Miekeley and F.W. Felix, J. Nucl. Mater., 42, 297 (1972).
- R.M. Carroll et al., Nucl. Sci. Eng., 38, 143 (1969).
- G. Nilsson, J. Nucl. Mater., 20, 215 (1966).
- R.M. Carroll and O. Sisman, Nucl. Sci. Eng., 21 147 (1965).
- R. Solhier, Nucl. Appl., 2, 138 (1966).
- A.H. Booth, CRDC-721 (1957).
- A.H. Booth and G.T. Rymer, AECL-692 (1958).
- J.R. MacEwan and W.H. Stevens, J. Nucl. Mater., 11, 77(1964).
- R.M. Carroll, O. Sisman and R.B. Perez, Nucl. Sci. Eng., 32, 430 (1968).

43. R.M. Carroll and O. Sisman, Nucl. Appl., 2, 142 (1966).
44. T.S. Ellman, C.H. Fox and L.D. Mears, J.Nucl. Mater., 30, 89 (1959).
45. H.J. Matzke, *ibid.*, 30, 107 (1969).
46. A.M. Ross, *ibid.*, 30, 134 (1969).
47. H. Blank and H.J. Matzke, Rad. Effects, 17, 57 (1973).
48. A.R. Whapham, Nucl. Appl., 2, 123 (1966).
49. R.M. Cornell and G.H. Bannister, Proc. Brit. Ceram. Soc., 7, 355 (1967).
50. J.A. Turnbull, J. Nucl. Mater., 16, 327 (1965).
51. I.J. Hastings, AECL-MISC-249 (1982).
52. L.C. Michels, R.J. Makens and R.B. Poeppel, Trans. Amer. Nucl. Soc., 14, 581 (1971).
53. F.A. Nichols and H.R. Warner, in Fast Reactor Fuel Element and Technology, New Orleans, Apr. 13-15, 1971, R. Farmakes(ed), p.267, ANS, Hinsdale, 111, (1971).
54. M.V. Speight, Nucl. Sci. Eng., 37, 180 (1969).
55. R.M. Cornell, M.V. Speight and B.C. Masters, J. Nucl. Mater., 30, 169 (1969).
56. M.V. Speight and G.W. Greenwood, Phil Mag., 9, 683 (1964).
57. R.D. MacDonald, J. Nucl. Mater., 22, 109 (1967).
58. R.G. Bellamy and J.B. Rich, *ibid.*, 33, 64 (1969).
59. M.V. Speight and G.W. Greenwood, *ibid.*, 16, 327 (1965).
60. C.M. Cox and F.J. Homan, Nucl. Appl. Technol., 9, 317 (1970).
61. M.J.F. Notley, Nucl. Appl. Tech., 9, 195 (1970).
62. M.J.F. Notley and J.R. MacEwan, Nucl. Appl., 2, 117 (1966).
63. M.J.F. Notley, *ibid.*, 3, 334 (1967).
64. R. Souhier and M.J.F. Notley, *ibid.*, 5, 296 (1968).
65. E.F. Koenig, Trans. ANS, 9, 378 (1966).
66. G.W. Greenwood and M.V. Speight, J. Nucl. Mater., 10, 140 (1963).
67. S.H. Leiden and F.A. Nichols, Trans. ANS 13, 129 (1970).
68. A.J. Manley, J. Nucl. Mater., 26, 249 (1968).
69. R.S. Barnes, *ibid.*, 11, 135 (1964).
70. F.A. Nichols, WAPD-TM-570 (1966).
71. F. Anselin, GEAP-5583 (1969).
72. D.R. Olander, in ref. 16, p.195.
73. C. Cawthorene and E. Fulton, Nature, 216, 576 (1967).
74. D.I.R. Norris, Rad. Effects, 14, 1 (1972).
75. J.J. Holmes, Trans. Amer. Nucl. Soc., 12, 117 (1969).
76. 井瀧後幸, 原子力工業(日本), 30(2), 32 (1984).
77. 李基淳, 大韓金屬學會誌, 24, 170 (1986).
78. S.D. Harkness and Che-Yu Li, Metall. Trans., 2, 1457 (1971).
79. J.L. Brimhall and B. Mastel, Rad. Effects, 3, 203 (1970).
80. V.K. Sikka and J. Moteff, J. Nucl. Mater., 56, 325 (1974).
81. A.D. Bailsford and R. Bullough, *ibid.*, 44, 121 (1972).
82. R.S. Nelson, *ibid.*, 25, 227 (1968).
83. Regulatory Staff, US Atomic Energy Commission, WASH-1236 (1972)
84. A.C. Bini, G. Cosoli, G. Filacchioni, M. Lauchi, A. Nobili, U. Rocca and P.L. Rotoloni, Proc. Fast Reactor Fuel & Fuel Elements, Sep.28-30. (1970).
85. A.M. Ross, J. Nucl. Mater., 30, 134 (1969).
86. R.G. Bellamy and J.R. Rich, *ibid.*, 33, 64 (1969).
87. J.A. Turnbull and R.M. Cornell, *ibid.*, 36, 161 (1969).
88. J.A. Turnbull and R.M. Cornell, *ibid.*, 37, 355 (1970).
89. M.D. Freshley, D.W. Brite, J.L. Daniel and P.E. Hart, *ibid.*, 62, 138 (1976).
90. W. Chubb, A.C. Hott, B.M. Argall and G.R. Klip, Nucl. Technol., 26, 486 (1975).
91. H. Devold and T.C. Rowland, Enlarged HPG Meeting, No. 6/3/HPR-195.
92. I.J. Hastings, M.J.F. Notley and D.H. Rose, J. Nucl. Mater., 75, 301 (1978).
93. M.O. Marlowe, Amer. Ceram. Soc. Bulletin, 51, 388 (1972).
94. H. Stehle and H. Assmann, J. Nucl. Mater., 52, 303 (1974).
95. H. Assmann and H. Stehle, Reactoragung, Karlsruhe, 409 (1973).
96. H. Stehle and H. Assmann, J. Nucl. Mater., 61,

- 326 (1976).
97. M.O. Marlowe, NEDO-12440 (1973).
98. M.O. Marlowe, Trans. ANS, 17, 166 (1974).
99. R.L. Coble, J. Appl. Phys., 32, 787 (1962).
100. E. Rolstad, et al., Enlarged HPG Meeting, No 1/5/HPR-188 (1974).
101. Regulatory Staff, US Atomic Energy Commission, Regulatory Guide, 1126 (1977).
102. A.S. Bain, AECL-1827 (1963).
103. 柴田俊一, 嵯峨根俊光 編, 美浜1號爐の燃料破損に関する研究報告書, 京都大學, 原子力研究所 (1980).
104. J.R. MacEwan and J. Hayashi, "Grain Growth in UO_2 III, Some Factors Influencing Equiaxed Grain Growth", Proc. Brit. Ceram. Soc., 7, 245 (1967).
105. J.B. Ainscough, B.W. Oldfield and J.O. Ware, J. Nucl. Mater., 49, 117 (1973/74).
106. J.E. Burke, Trans. AIME, 180, 73 (1949).
107. W.D. Kingery and B. Francois, J. Amer. Ceram. Soc., 48, 546 (1965).
108. R.N. Singh, J. Nucl. Mater., 64, 174 (1977).
109. C. Zener, quoted by C.S. Smith, in: Trans. AIME., 175, 15 (1948).
110. J.R. MacEwan, AECL-1184 (1961).
111. H. Hausner, GEAP-4315 (1963).
112. H. Hausner, GEAP-4689 (1963).
113. H. Stehle, quoted by J.B. Ainscough et al., in: J. Nucl. Mater., 49, 117 (1973/74).
114. J.B. Ainscough and B.W. Oldfield, quoted by J. B. Ainscough et al., in: J. Nucl. Mater., 49, 117 (1973/74).
115. J.A. Turnbull and M.O. Tucker, Phil. Mag. 30, 47, (1974).
116. F.A. Nichols, J. Nucl. Mater., 23, 214 (1967).
117. J.R. MacEwan and V.B. Lawson, J. Amer. Ceram. Soc., 45, 42 (1962).
118. D.R. Olander, in ref. 16, p. 265.
119. 韓弼淳 編譯, 核燃料工學, 韓國에너지研究所, p. 304 (1986).