2002 추계학술발표회 논문집
한국원자력학회

산소포텐샬에 따른 UO_2내 Xe-133 핵종의 확산 계수 측정

The Measurement of Diffusion Coefficient of Xe-133 in Urania with Respect to Oxygen Potentials

김희문, 박광헌, 김봉구*, 주용선*, 김건식*, 송근우*, 홍권표*, 강영환*

경희대학교
경기도 용인시 기흥읍 서천1리

*한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

고온가열 실험을 통하여 Xe-133의 확산계수값을 구하였다. 실험에 사용한 시편은 천연 농축도를 지닌 UO_2를 결정립 크기가 23μm 단결정 분말로 만들었고 시편의 무게는 300mg이다. 산소센서를 설치하여 산소포텐샬을 측정하였고 각 실험을 통하여 세 개의 시편에 대해 O/M 값은 각각 2.0005, 2.16 그리고 2.01이었다. 시간에 따른 방출비는 고온가열 실험전후의 감마스캐닝의 비교로 구하였고 또한 MCNP 코드를 이용하여 정량분석을 통해 감마스캐닝의 결과와 비교하였다. O/M값이 거의 2인 경우 확산계수의 활성화에너지는 약 310 kJ/mol이고 O/M 값이 증가하면 확산계수가 급격히 증가하는 것으로 나타났다(1600°C 온도의경우 300배). 본 결과는 기존 측정자료와 잘 일치하고 있다.

Abstract

The diffusion coefficient of Xe-133 was obtained from an annealing test. The specimens were made from a UO_2 single crystal powder with natural enrichment and weight and grain size were 300mg and 23μm. Oxygen potentials were obtained from oxygen sensor. Then, O/M ratios of three specimens were 2.0005, 2.16 and 2.01, respectively. Released fractions were obtained from both results of gamma scans and quantitative analysis with MCNP code. Activation energy of the diffusion coefficient in near stoichiomeric UO_2 was about 310 kJ/mol. Diffusion coefficient was observed to be higher with O/M ratio(300 times at 1600°C). Comparing with other data, data of near stoichiometric UO_2 are in agreement with them.

1. 서 론

가동중인 원자로내에 핵연료봉은 연소도가 증가할수록 건전성을 저해하는 요소가 증가된다. 그 요소중에서도 핵분열 의해 생성되는 기체의 방출이 큰 요인이다. 핵분열 기체의 방출은 핵연료봉의 온도 상승 및 내압증가의 원인이 되고 이에 따라 부식 또한 가속화되는 현상을 초래한다. 따라서 핵분열 기체의 거동연구가 활발히 진행중이며 특히 핵분열 기체의 확산거동을 잘 파악하는 것이 매우 중요하며 그 인자가 바로 확산 계수라 할 수 있다. 핵분열 기체 확산계수는 온도와 O/M 비(산소 대 금속 비) 그리고 연소도에 따라 영향을 받는다.

현재까지 알려진 확산계수값을 구하는 실험에는 일반적으로 두 가지가 있다. 하나는 모의 조사(In-pile) 시험이고 다른 하나는 조사후 고온가열 시험(Post Irradiation Annealing -PIA)이다. 모의 조사시험이 보다 실용적이고 현실적인 값을 얻는데 비해 PIA는 이론적이고 이상적인 값을 구할 수 있다.

본 연구에서는 보다 신뢰적이고 정확한 순수격자 확산계수값을 구하기 위해 PIA실험을 수행하였으며 핵분열 기체 방출의 측정매체로서 Xe-133($T_{1/2}$=5.27d, 81keV)을 사용하였다. 고온가열실험은 1400 ^{o}C~1600 ^{o}C. 온도 범위에서 수행하였으며 O/M 비 변화에 따른 영향을 알아보기 위해 산소포텐샬값을 변화시켜 실험하였다.

2. 실험 방법

2.1 시편 제작 및 조사

UO_2 소결체를 4시간동안 공기중에 산화시켜 U_3O_8 분말을 만들고 수소 분위기에서 한 시간동안 환원시켜 UO_2 단결정 분말을 만들었다. UO_2 단결정 분말의 결정립 크기를 크게 하기위해 이산화탄소 분위기로 1700 ^{o}C에서 4시간동안 고온가열을 시켰다. 그림-1은 이산화탄소 분위기에서 가열후 만들어진 UO_2 단결정 분말을 보여주고 있다.

이 결정립의 모양은 구형이기보다는 타원체에 가까워보이며 Booth 이론을 적용하기위해 타원체에 따른 유효반경(a)을 구해야 한다. 따라서 유효반경은 표면적 대 체적비를 이용하여 구할 수 있다.

타원체의 결정립은 한개의 장축 반경과 두개의 단축 반경이 있다. 타원체의 구조를 단순히 하기위해 두개의 단축반경은 동일한 것으로 가정하였다. 이런 경우, 표면적 대 체적비를 통한 유효반경은 아래의 식(1)을 통해 구할 수 있다.

$$\frac{3}{R_{eq}} = \frac{4\pi ab}{4/3\pi a^2 b} = \frac{3}{a} \qquad \text{식(1)}$$

여기서 , ‘a’ 는 단축 반경이고 ‘b’ 는 장축 반경이다.

식(1)을 통해, 단축 반경(a)은 곧 구형모형에서의 유효반경과 같음을 알 수 있다.

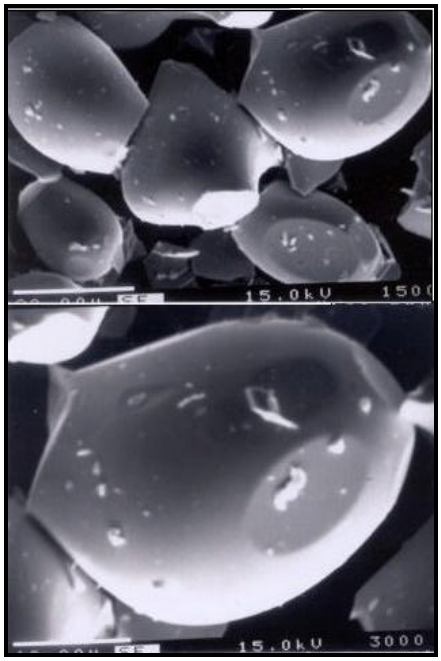


그림-1 UO_2 단결정 (SEM)

그림-1에서 결정립 표면에 붙어있는 작은 조각(2~3μm)들을 볼 수 있다. 이런 작은 조각들은 핵분열 기체 방출에 있어서 초기에 과다방출현상을 일으키지만 본 연구에서는 그 효과 분석은 고려하지 않았다. SEM 사진에서의 단축반경을 고려할 때, 본 시편들의 결정립 직경크기는 23μm±2μm 이다.
조사시 열적 안전성을 고려하여 시편 300mg 을 유리관에 넣어 밀봉하고 이것을 다시 이중 알루미늄 캡슐에 넣어 열중성자속이 $8.17x10^{13}$ neutrons/cm^2-sec 인 HANARO 연구용 원자로에 $2.68x10^{11}$ fissions/g-sec 로 20분간 조사했다. 조사후, 시편은 피폭선량을 낮추기 위해 10~11 일정도 냉각기간을 두었다. 이렇게 만들어진 세개의 시편은 Exp.1, Exp.2 그리고 Exp.3로 구분하였다.

2.2 실험 장치

그림-2는 실험장치의 개요를 나타내었다. 실험장치는 두개의 부분으로 나누어지는데 하나는 고온가열 장치이고 다른 하나는 포집 장치이다. 고온가열 장치에서의 히터부분은 고순도 알루미나 튜브를 사용하였으며 이 주위로 U자 모양의 $MoSi_2$ 발열체가 일렬로 감싸고 있으며 1650 ^oC까지 조절 가능하다. 시편장착은 모터에 의해 자동으로 장착되도록 하였으며 히터의 상부에 O/M비를 측정하기위해 산소센서를 설치하였다.
산소분압을 감지하는 산소센서부위는 Ca-stabilized ZrO_2 재질로 되어 있다.

센서튜브의 안과 밖은 백금액으로 도포되었고 백금선으로 각각 접지하여 센서의 안과밖의 전압차이를 측정하도록 하였다. 이렇게 해서 얻은 전압차이를 이용하여 산소분압을 얻을 수 있다.

포집장치는 Kr, Xe 과 I 과 같은 방출된 핵종을 포집하기 위해 만들어진 장치이다.

포집재인 활성탄을 포집관내에 넣어 방출기체를 포집하였으며 이 포집관은 액체질소로 가득찬 비이커에 넣었고, 포집관과 비이커는 납상자 안에 두어 외부로부터 차폐를 하였다.
액체질소는 기체인 xe-133을 낮은 온도에서 고체로 만드는 냉매재로 사용하였다.

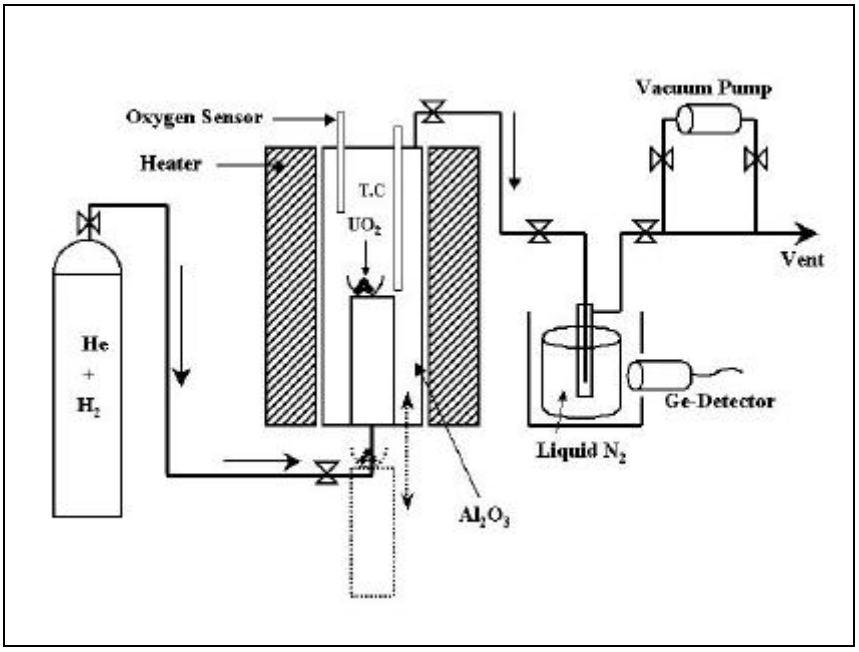


그림-2 실험장비 개요

납상자의 한쪽면에 구멍을 뚫어 Ge-측정기를 끼우고 방출된 감마핵종의 누적량을 5분간격으로 측정하였다.
헬륨기체를 장치내에 흘려 방출된 핵분열 기체를 포집장치까지 운송하게끔 하였으며 시편의 산화당량에 따른 변화를 알아보기 위해 헬륨기체에 수소를 여러 비율로 섞었다. 실험동안 헬륨기체의 유량은 분당 약 200ml 로 고정하였다.

2.3 고온가열 시험

냉각기간이 지난 후, 시편은 알루미나 도가니에 옮겨졌다. 고온가열 실험전, 감마스캐닝을 하기위해 시편을 측정기로부터 1m 거리를 두고 3600초 동안 측정하였다. Exp.1, Exp.2 와 Exp.3에 대한 고온가열 실험시간은 각각 12시간, 6.5 시간, 1.5 시간이었다. 그림-3에서 보듯이 Exp.1 과 Exp.2에 대한 고온 가열 실험에서는 온도를 1400 °C, 1500 °C and 1600 °C 로 변화시켰고 Exp.3 실험은 단지 1600 °C에서만 수행하였다.
실험동안 시편으로부터 방출된 Xe-133 은 포집부로 이동하여 누적되었다. 그래서 감마 측정기로 매 5분 간격으로 측정하여 시간에 따른 누적량을 측정하였다. 그리고 고온가열 실험후, 시편에 대해 다시 한번 감마스캐닝을 하였다.

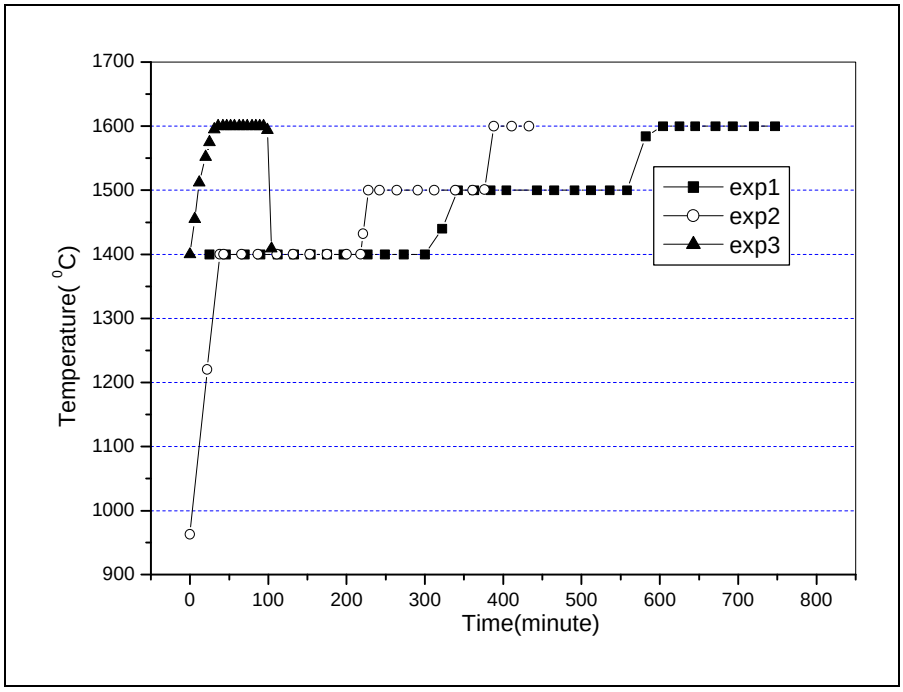


그림-3 고온가열 실험의 온도분포 (Exp.1,Exp.2,Exp.3)

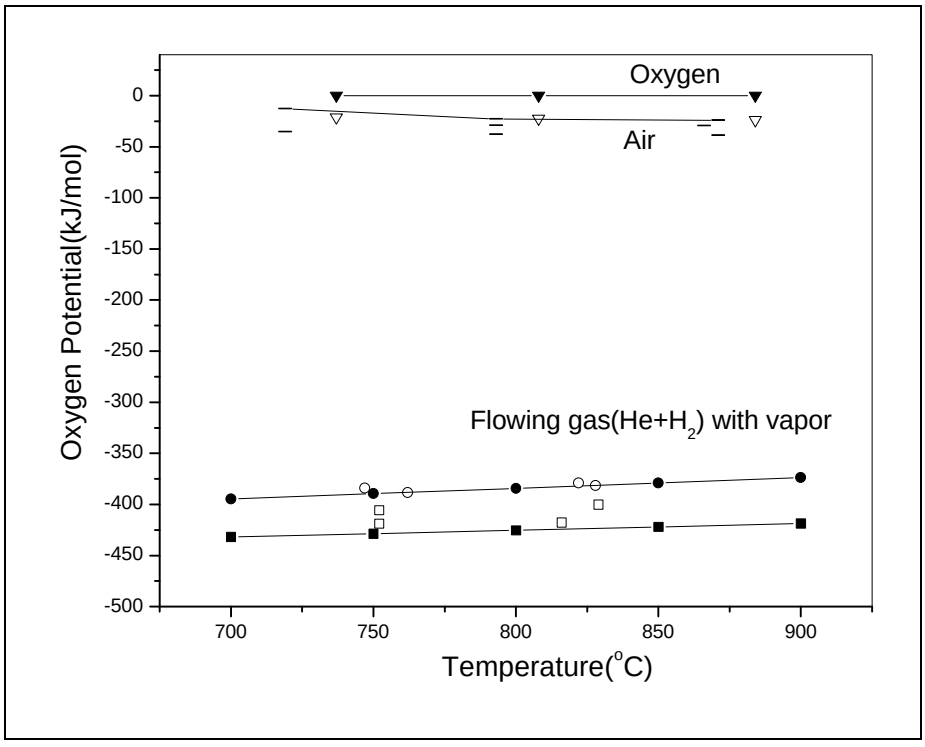


그림-4 여러기체를 이용한 산소센서 보정 비교

3. 결 과

정확한 O/M 비를 구하기 위해 산소센서의 보정 실험을 한 결과, 그림-4와 같이 약 20 kJ/mol의 오차를

보여주고 있다.
산소센서를 통하여 Exp.1, Exp.2 그리고 Exp.3의 산소포텐샬 값은 각각 약 -370kJ/mol, -110 kJ/mol 그리고 -210kJ/mol 이고 온도변화에 따른 산소포텐샬값의 변화는 현저한 차이를 보이지 않았다. O/M 비 계산은 산소포텐샬값으로부터 Lindemer[1] 가 제시한 식을 이용하여 구하였으며, 그 결과 Exp.1,Exp.2 및 Exp.3에 대한 UO_{2+x} 의 x값은 각각 0.0005, 0.16 및 0.01 이다.

실험으로부터 구한 방출비를 이용하여 확산계수값을 구하기 위해서는 식(2)처럼 Booth의 온도종속에 대한 방출식을 이용하였다.

$$f_i = 1 - \frac{6}{\pi^2}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n^2}e^{-n^2\pi^2\left(\sum_{k=1}^{i} D_k \Delta t_k\right)/a^2} \qquad \text{식(2)}$$

여기서 '*a*' 는 본 실험에서의 결정립 반경이고 f 와 D 는 각시구간에 대한 방출비와 확산계수값이다.
식(2)는 단일 온도 및 방출비가 0.3 이하일 경우 다음과 같이 단순화 할 수 있다.

$$f = \frac{6}{a}\sqrt{\frac{D}{\pi}}\sqrt{t} \qquad \text{식(3)}$$

그러나 초기 초과방출 현상으로 인해, 실험으로 얻은 방출비를 식(2)에 적용하여 직접적으로 확산계수값을 구할 수 없다. 단일온도 실험일 경우, 식(3)에서 보듯이 방출비에 대한 시간의 1/2승 그래프의 기울기는 일차 선형을 나타내므로 시간에 따라 얻은 방출비들을 이용하여 기울기를 구해서 식(3)의 기울기와 비교하여 확산계수값을 구할 수 있다.
그러나 Exp.1과 Exp.2와 같이 여러 온도변화에 대한 실험에 대해 Matzke[2]는 실험으로 얻은 방출비들은 방출비 제곱에 대한 시간 그래프에서 각 온도구간에 대해 보다 직선형태의 기울기를 얻을 수 있으며 이 기울기는 식(3)의 기울기의 제곱 즉, $36(D/\pi a^2)$과 같음을 설명하였다. 그리하여, 각 온도에 대한 확산계수값은 기울기를 이용하여 구할 수 있다.

위에서 언급한 내용으로 볼때, 실험을 통해 시간에 따른 방출비를 정확히 구하는 것이 중요하다. 본 연구에서는 시간에 따른 방출비를 구하는 두 가지 방법을 제시하였다. 첫번째는 감마스캐닝의 결과를 이용하여 구하는 것이고 두번째는 참고선원과 MCNP 코드를 이용하여 정량분석을 통해 구하는 것이다.
첫번째로, 방출비를 구하기 위해 고온가열 실험 전후의 감마스캐닝 결과의 차이를 구해야 한다.
두 감마스캐닝으로부터 얻은 Xe-133 감마계수를 식(4)를 이용하여 총 방출비를 구할 수 있다.[3].

$$f = 1 - \frac{C_a}{C_b}\exp(\lambda \Delta t) \qquad \text{식(4)}$$

여기서, f 는 총 방출된 비이고, C 는 감마스캐닝으로 부터 얻은 순 계수이다. 아래첨자 a 와 b는 실험후 실험전을 뜻한다. λ는 붕괴상수이고 Δt 는 두 감마스캐닝사이의 시간차이를 나타낸다.
식.(4) 는 두 감마스캐닝이 동일 측정시간일 경우 사용할 수 있다. 감마스캐닝의 결과, Exp.1 에 대한 Xe-133 의 총 방출비는 약 12% 였다. 그러나, Exp.2 와Exp.3에 대한 감마스캐닝 결과는 측정의 문제가 발생하여 적용을 하지 않았다. 총 방출비와 감마계수의 비교를 통해 시간에 따른 방출비는 비례적으로 구하였다.

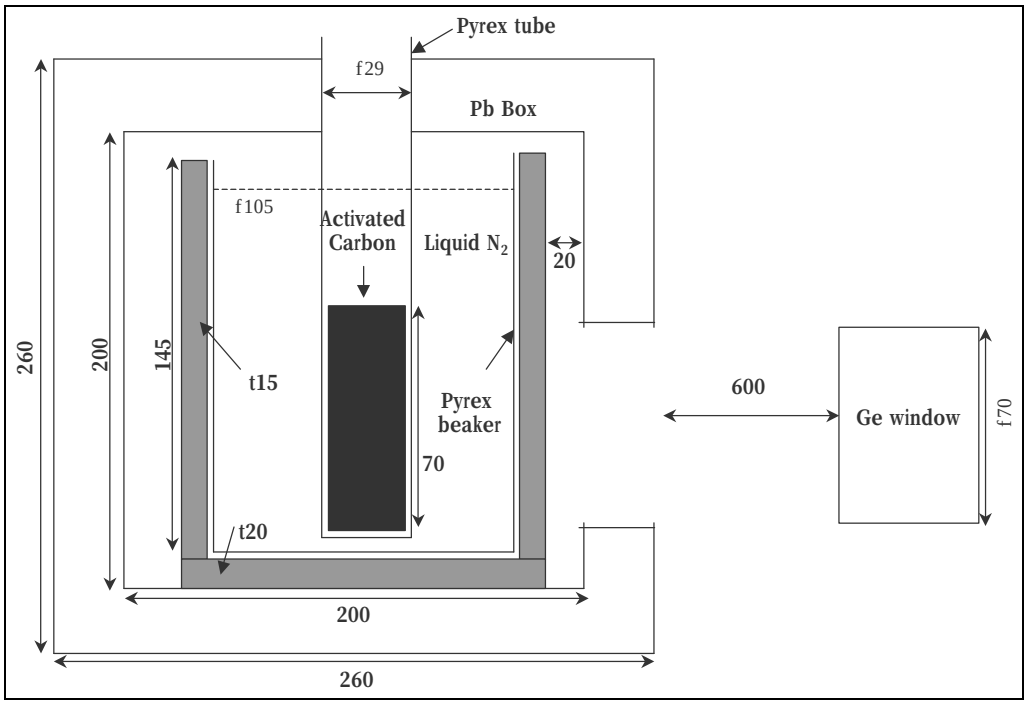
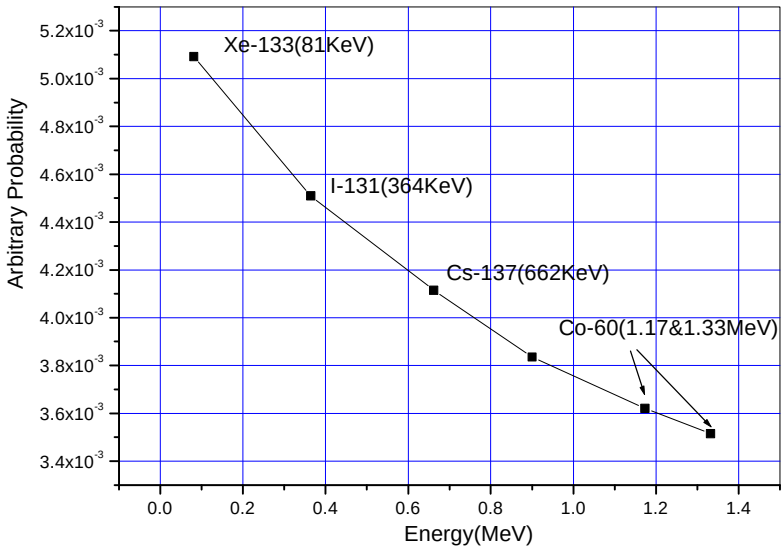


그림-5 MCNP 계산을 위한 포집부의 구조

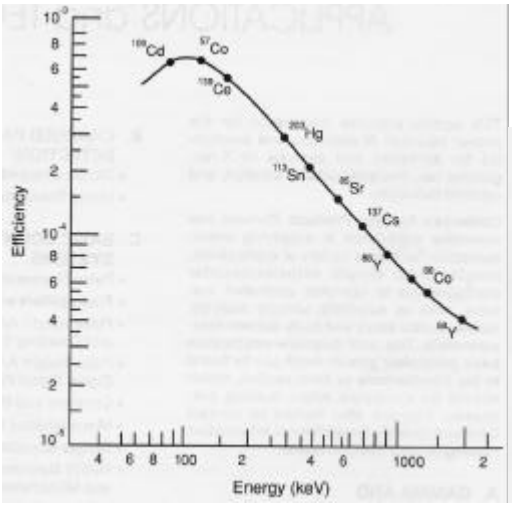
두번째로, 정량분석으로 방출비를 구하기위해, 방출비의 분모항 및 분자항을 독립적으로 계수를 통해 방사능량으로 정량화하는 것이다.
우선, 방출비의 분모항을 정량화 하기위해, 참고선원인 Cs-137(65μCi-662KeV) 을 감마스캐닝의 동일구조로 측정하고 그리고 MCNP 코드로 묘사하여 계산하였고, 방출비의 분자항을 정량화 하기 위해, 동일 포집장치에 참고선원을 넣어 Xe-133과 같이 측정하고 MCNP 코드로 묘사하여 계산하였다. 포집장치에 참고선원을 이용할 때 너무 감마방사능량이 강해서 그림-5와 같이 감마 측정기를 납상자로부터 60cm정도 거리를 두어 측정하였고 MCNP 코드에서도 동일한 구조로 계산하였다.

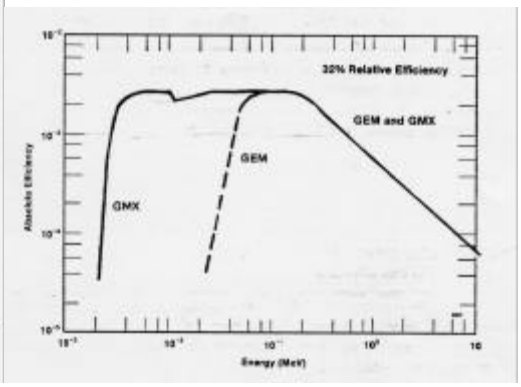
MCNP 코드로부터 정량화 계산을 하기위해 측정기의 절대효율을 참고선원(Cs-137)의 측정 결과와 비교하여 분자항과 분모항의 각 구조에 대해서 각각의 절대효율을 구하였다. 그러나 이 효율은 감마 에너지에 따라 다르다. 그래서 감마 에너지에 따른 차이를 알아보기 위해 Cs-137 과 Xe-133 의 에너지에 따른 효율차이를 비교해보았다. 그림-6(a)는 MCNP 계산으로 구한 에너지에 대한 임의 계수확률을 나타낸 그림이다. 그 외의

그림은 감마측정기 회사들의 자료를 비교하여 나타낸 그림이다.(그림-.6(b)[4] (c)[5].)



(a)





(b) **(c)**

그림-6 감마 에너지에 따른 측정기 효율

각 그림에서의 Cs-137 과Xe-133의 에너지에 따른 효율차이를 비교한 결과, 측정기의 종류와 측정구조에 따른 차이로 다소 값이 상이한 것을 알 수 있으나 일반적인 에너지에 따른 경향은 다소 일치하는 것으로 보인다. MCNP 코드 계산결과, Xe-133의 효율이 Cs-137의 효율보다 약 1.237 배 높음을 알 수 있었고 두 핵종간의 효율 보정을 통해, Xe-133 에너지에 대한 방출비의 분모항과 분자항의 계산에서 각 효율이 약 27% 과 34% 임을 알았다. 그래서, MCNP 코드와 측정기 효율을 이용하여 시간에 따른 방출비를 구할 수 있다.

Exp.1 실험에서 감마스캐닝에 의한 방출비 계산과 MCNP 코드에 의한 방출비 계산 결과를 그림-7에 나타내어 비교하였으며 두 결과가 <1% 오차내에서 잘 일치함을 알 수 있다.

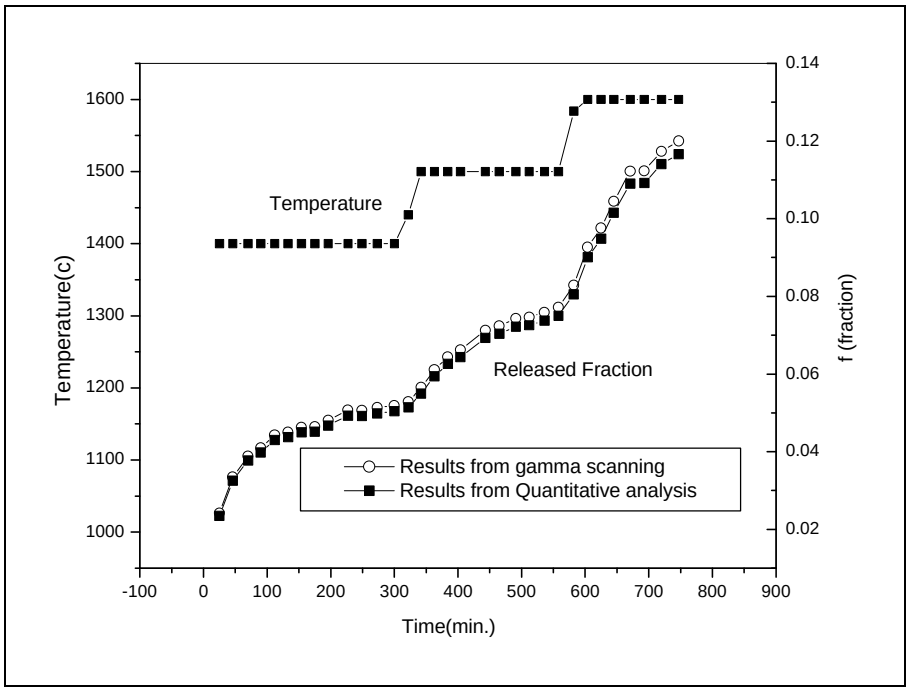


그림-7 감마스캐닝의 결과와 MCNP 계산에 따른 방출비 비교(Exp.1)

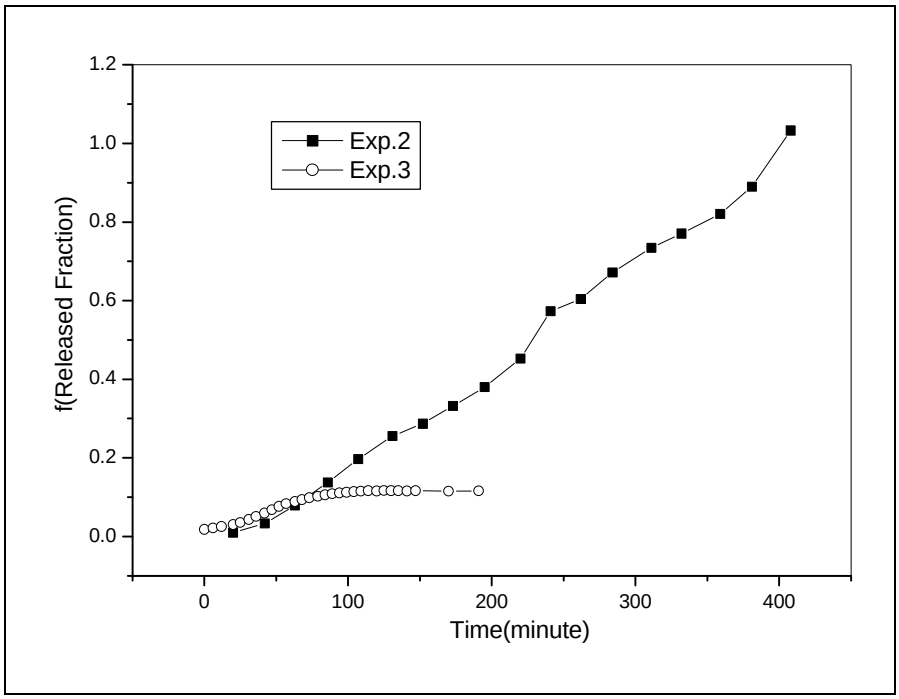


그림-8 MCNP 계산에 따른 방출비 (Exp.2,3)

그러나, Exp.2 과 Exp.3 실험에서는 감마스캐닝의 문제로인해 MCNP 코드 계산으로 방출비를 구하였고 그림-8에 그 결과를 나타내었다. 표-1은 시간에 따른 방출비를 이용하여 계산한 각 온도에 대한 확산계수값과

활성화 에너지 및 pre-exponential factor를 나타내었다.

표-1 각실험에 따른 확산계수값과 활성화에너지 비교

	Diffusion coefficient (m^2/s)			D_0	Q (kJ/mol)
	1400℃	1500℃	1600℃		
Exp.1	7.95×10^{-19}	2.35×10^{-18}	8.71×10^{-18}	4.0×10^{-9}(±9.6%)	310 (±8.8%)
Exp.2	1.97×10^{-16}	5.53×10^{-16}	2.9×10^{-15}	1.38×10^{-5}(±35%)	348 (±17%)
Exp.3			5.5×10^{-17}		

4. 고 찰

PIA 실험에서 시편을 조사하기 전에 유효반경(a)을 알기 위해 시편에 대한 SEM 이나 BET 측정 등으로 물성치 측정을 해야 한다. 그러나 시편이 단결정일 경우 유효반경은 단결정을 구로 가정하여 단결정의 크기를 측정하므로서 간단하게 얻을 수 있다. 일반적으로 확산계수의 활성화 에너지를 구하기 위해 단일온도 PIA 실험을 여러 관심온도에 대해 반복적으로 수행해야 한다.
Mazke[6)]와 Kashibe[7)]는 한번의 PIA 실험에 여러 온도를 변화시는 방법을 수행했고 그 결과, 유용한 결과를 제시했다. 또한, 후자의 방법은 전자의 방법보다 실험시간을 단축시키는 이점이 있다.

매트릭스내의 순수 확산계수를 구하기 위해서는, 낮은 연소도로 시편을 조사해야 한다. 그 이유는 일정 연소도 이상이면 기포의 발생으로 기체원자가 확산하는데 있어서 trap 될 수 있기 때문이다.
Turnbull[8)]은 $1.7\times10^{19}\sim3.2\times10^{19}$ fissions/cm^3 연소도에서 결정립내의 작은 기포가 고르게 형성되는 것을 알았다. 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.

시편의 조사와 PIA 실험을 하기 위해선, 핵분열 기체중 장반감기 핵종이 감마 측정용으로 필요하다. Iodine 이나 caesium 계열의 핵종들은 기화성이므로 시편으로 방출되어 포집되기전에 장비의 내벽에 흡착된다.
Krypton 이나 xenon 계열의 핵종들은, 거의 대부분이 반감기가 짧으나, PIA 실험에서는 그중에서도 감마 핵종인 Xe-133 과 Kr-85 가 일반적으로 쓰인다., 그러나 Kr-85 은 감마선을 방출하는 비율(branch ratio)이 1% 이하이므로 Xe-133이 보다 선호적으로 사용된다.
본 실험에서는, Kr-85 핵종이 생성되지 않았다. 그래서 비록 Xe-133이 장반감기 및 고에너지가 아님에도 불구하고 추적자로서 적합하다고 판단하여 선택하였다.

본 연구에서는 물성치 측정에 오차를 줄이기 위해 시편을 단결정으로 하였고, PIA 실험은 한번에 여러 온도를 변화시키는 방법으로 수행하였다. 결정립의 크기 측정시 오차는 약 ±2μm(9%) 이고 이것을 확산계수값의 오차분석에 적용하였다. 이때 다른 실험오차는 고려하지 않았다. 그래서, 구해진 확산계수값은 < 20% 오차 이내에서 유효하다고 본다.

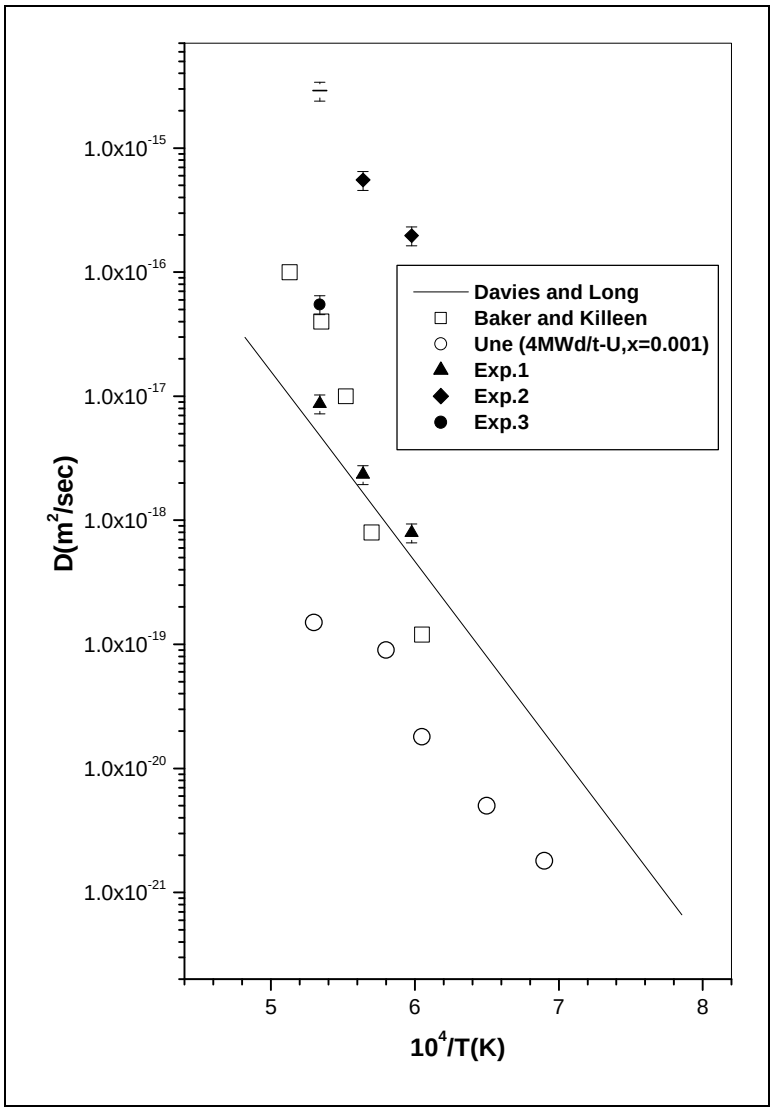


그림-9 본 실험결과와 국외자료와의 비교

본 실험에서의 결과들을 다른 자료와 비교하여 보았다. Davies and Long,[9] 의 식과 Une,및 Baker and Killeen[10] 의 자료를 본 연구의 자료와 함께 그림-9에 나타내었다. Une 는 산소 포텐샬에 따른 고온가열시험을 통해 확산계수를 구하였으며 1400도에서의 값은 다른 자료에 비해 10배~100배정도 값이 낮다. 이것은 어느 정도 연소도의 효과에 의한 것이라 볼 수 있다. 그 이유는 Davies과 Long 의 자료는 연소도가 0.8 MWd/t-U이고 본 연구에서의 자료는 연소도가 0.12 MWd/t-U 이다.

Baker and Killeen의 자료는 38,000 MWd/t-U의 pellet 시편을 사용하였으며 1500 °C이하에서는 결정립계의 기포형성에 의해 방출량이 적은반면 그 이상의 온도에서는 결정립계의 기포가 연결이되면서 방출량이

많아짐을 관찰하였다. 따라서 그들 자료의 활성화 에너지 값이 다른 자료에 비해 크다는 것을 보여 주었다.

O/M 비 변화에 대해 확산계수값은 주목할 만큼 변화를 보였다. Exp.1 실험은 거의 순수 화학당량(near stoichiomeric)의 UO_2 임을 알 수 있었고 Exp.2 실험의 확산계수값이 1600 °C에서 Exp.1의 확산계수값보다 약 300 배 정도높은 값을 보였다. Exp.3 의 확산계수값은 Exp.1 과 Exp.2 자료사이에 위치하므로서 유용한 결과를 보여 주고 있다.

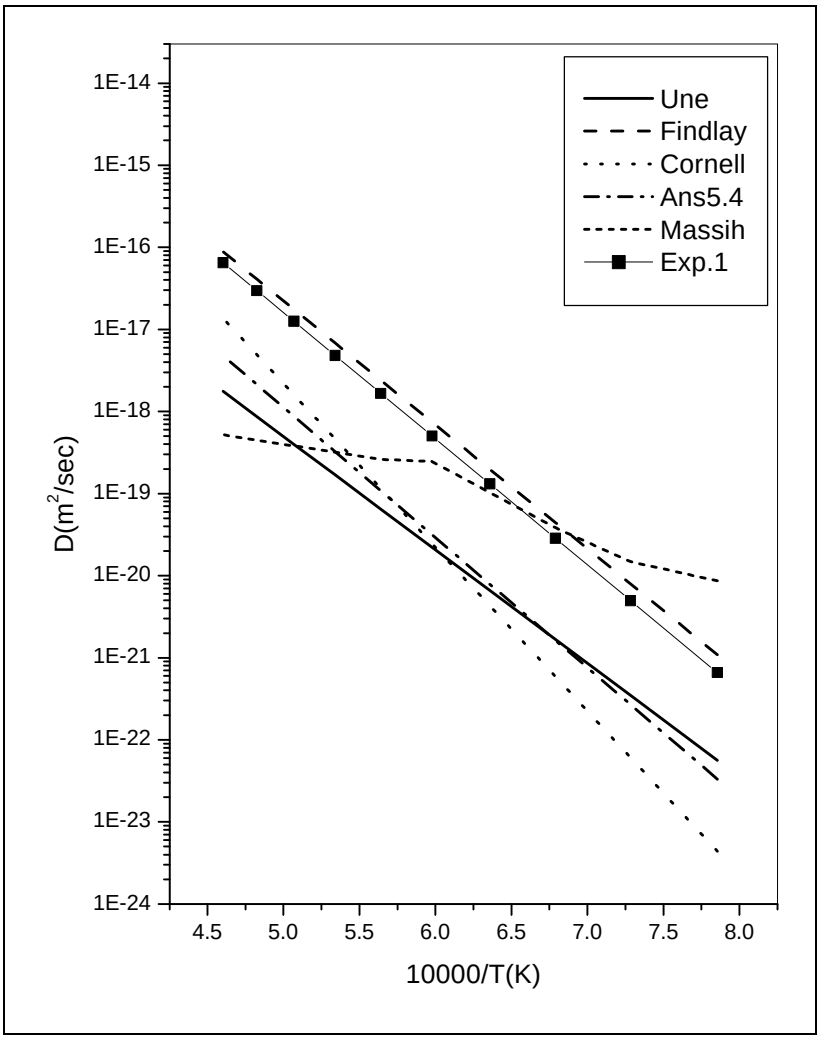


그림-10 최근 핵연료거동 코드에 사용되고 있는 확산계수와의 비교

Xenon 확산에 대해서 Matzke 는 3중 중성 공극 집합체를 통한 확산기구를 제시하였다. 그는 첨가물이 함유된 UO_2 시편과 순수 UO_2 시편을 이용한 고온가열실험에서 Xe 확산에 차이가 없음이 관찰되었기 때문이다. 이것은 바로 xenon 이 우라늄 공극에 따라 확산이 되는 것이 아님을 의미한다. 그러나, Killeen과 Turnbull은 xenon 이 우라늄 공극에 따라 확산된다고 가정하였고 Lidiard[11]의 우라늄 공극농도의 식을 그들의 모형에 이용하기도 했다. 어쨌든, 두 확산 기구는 우라늄의 공극 농도와 관련이 있다. UO_2 시편의 산화 분위기에서는 외부산소의 침입형 원자가 격자에 형성되므로 Frenkel 평형에 따라 산소 공극이 줄어들게 되며 이런현상은 Schottky 평형에 의해 우라늄 공극의 수가 늘게 된다. 그러므로 초과 화학당량(hyper-stoichiometric)의 UO_2

상태에서는 확산계수값이 보다 커지는 이유가 된다.

최근에는, 많은 확산계수가 핵분열 기체 방출 모형에 적용되고 있다. 특히 Findlay[12]의 자료는 ELESIM 코드에 적용되었으며 Cornell[13]의 자료는 FRAPCON-2의 FASTGRASS[14] 모형에 적용되었다.
그러나, 단지 온도영향 자체의 확산계수만으로는 고 연소에서 그 거동을 해석하기에는 무리가 있다. 그래서, ANS 5.4 모형[15] 에서 제시한 확산계수는 연소도 보강인자를 적용하였고 FRAPCON-3 에 적용된 Massih 모형[16] 에서는 온구를 세구간으로 나누어 각각 확산계수값을 달리 표현하였다. FEMAXI-IV 코드는 Turnbull이 제시한 세가지 항으로 구성된 확산계수를 적용하였다. 그림-10은 핵연료 성능코드에 적용된 각 확산계수값을 나타내었고 본 연구의 Exp.1 의 자료가 유효한 값을 보여주고 있다.

5. 결 론

UO_2 격자내의 순수 확산계수를 얻기 위해 PIA 실험방법이 효과적이다. 실험을 위해 고온가열 및 포집장치를 설계 제작하였으며 산소센서는 보정 후 유용한 결과를 보여주었다.
MCNP 코드로 정량분석을 통해 핵분열 기체의 시간에 따른 방출비를 구할 수 있다.
Exp.1, Exp.2, Exp.3의 세개 시편은 각각 300mg씩 천연 UO_2로 제작하였으며 23 μm 의 크기를 가지는 단결정 분말로 제작하였다. 조사후 시편의 핵분열 생성 기체를 고려할 때 Xe-133 핵종을 감마추적자로 선택하였다.
조사된 시편으로 PIA 실험을 수행하여 O/M 비에 따라 확산계수값을 구하였다. 단결정 크기의 측정 오차를 고려해볼 때 확산계수값은 20%이내의 오차범위를 가지고 있다. 각 온도에 대한 확산계수값을 이용하여 활성화 에너지 및 pre-exponential factor 를 구하였다.
각 시편 Exp.1, Exp.2 그리고 Exp.3에 대한 UO_{2+x}의 x값은 0.0005, 0.16 그리고 0.01 이다. Exp.1 은 거의 순수 화학당량의 UO_2 이고 활성화 에너지값은 310 kJ/mol 이다. 다른 자료와 비교해 볼 때 Exp.1의 자료가 잘 일치함을 알 수 있으며 핵연료 성능 코드에 적용 가능함을 보여 주었다. 일부 다른 자료는 본 자료와 차이를 보이지만 이것은 연소도 조건이 다르기 때문이다.
1600 ^oC 에서 초과 화학당량인 Exp.2 의 확산계수값이 Exp.1의 값보다 약 300 배 높은 값을 보여주고 있으며 이것은 양이온(cation) 공극의 농도 때문이다.

참 고 문 헌

1. T.B.Lindemer, T.M.Besmann,' Chemical thermodynamic representation of $UO_{2\pm x}$.' , J.Nucl.Mater. 30(1985)473-488
2. Hj.Matzke,' Gas release mechanisms in UO_2-A critical review.' , Radiation Effects, 53 (1980)219-242
3. M.A.Mansouri,dissertation of U.C.Berkeley (1995)
4. Canberra product catalog (twelve edition)
5 EG&G ORTEC product catalog
6 Hj.Matzke,' Radiation enhanced diffusion in UO_2 and U,Pu)O_2' ,Radiation Effects, 75(1983)317
7. S.Kashibe, K.Une,' Effect of additives(Cr_2O_3, Al_2O_3, SiO_2, MgO) on diffusional release ofXe-133 from UO_2 fuels.' ,J.Nucl.Mater 254(1998)234-242

8. R.M.Cornell, J..A.Turnbull, J.Nucl.Mat. 41(1971)87
9. D.Davies and G.Long, AERE Rep.No.6267(1969)
10. C.Baker, J.C.Killeen, Proc. Int. Conf. On Materials for Nuclear Reactor Core Applications, Bristol UK,(1987) BNES, 153p.
11. A.B.Lidiard,' Self-diffusion of uranium in UO2.' J.Nucl.Mater 16(1966)106
12. J.R.Findlay, BNES Conference Chemical Nuclear Data,Canterbury, U.K.(1971)
13. R.M.Cornell,' The growth of fission gas bubble in irradiated uranium dioxide.' , Phil.Mag. 19(1969)539
14. J.Rest, A.W.Cronenberg, J.Nicl.Mater.150(1987) 203
15. ' Background and derivation of ANS 5.4 standard fission product release model.' ,NUREG/CR-2507(1982)
16. K.Forsberg, A.R.Massih,' Diffusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel UO_2.' ,J.Nucl.Mater 135(1985)140