

Gd₂O₃가 첨가된 UO₂에서의 Gd 농도 변화에 따른 열전도도 및 확산 계수의 변화

양재호, 김진식, 강기원, 송근우, 김종현, 정양홍

한국원자력연구소
대전광역시 유성구 덕진동 150

요 약

가연성 흡수 핵연료로 사용되는 Gd₂O₃가 고용된 UO₂ 소결체에서의 Gd 첨가 농도의 변화와 온도 변화에 따른 U과 Gd 두 양이온간의 상호 확산 특성 및 열전도 특성의 변화를 관찰하였다. 열전도 특성은 O/M비가 2.0으로 맞추어진 시편을 laser-flash 방법을 이용하여 진공의 분위기에서 온도별로 측정하였다. 고용된 Gd₂O₃ 농도가 높을수록 열전도는 감소한다. 이는 U과는 다른 질량을 가진 Gd가 U자리로 치환되어 thermal phonon의 진행을 방해하는 역할을 하기 때문이다. 양이온 상호 확산은 열처리된 (UO₂ / 10wt%Gd₂O₃ doped UO₂) 확산쌍의 접합면 부근에서의 양이온 농도 변화로부터 측정하였다. 주어진 일정한 온도와 산소 포텐셜에서 고용된 Gd₂O₃의 농도가 높을수록 양이온간의 상호확산은 빠르게 된다. 이는 UO₂ 격자내에 3+의 원자가를 가지는 Gd 이온의 고용량이 많아질수록 평형 O/M비가 낮아지게 되어 산소 vacancy 혹은 침입형 양이온 결함의 수가 증가되고 이에 따라 양이온 확산에 필요한 활성화에너지가 낮아지게 되기 때문이다.

Abstract

The changes of thermal conductivity and cation inter-diffusion coefficient in Gd-doped UO₂ was investigated. The thermal conductivity was measured by laser-flash method using (U,Gd)O₂. Thermal conductivity is decreased with increasing Gd content in UO₂. This is because that Gd cations in UO₂ act as a scattering site of thermal phonon propagation. The cation inter-diffusion coefficients of U and Gd in UO₂ lattice were obtained using UO₂/10wt%Gd₂O₃ doped UO₂ diffusion couple. The inter-diffusion coefficient is composition dependant and increases with increasing Gd concentration. This result is due to the oxygen vacancies or interstitial cations-type lattice defects creation by Gd cation substitution in UO₂ lattice.

1. 서론

Gd₂O₃가 치환된 UO₂ 핵연료는 원자로심의 주기 초 잉여 반응도를 억제하기 위한 경수로에서의 가연성 흡수제로 오랫동안 사용되고 있다[1,2,3]. 초기에는 첨가되는 Gd₂O₃의 양이 적었으나 노심 운전 주기가 계속 늘어남에 따라 첨가되는 Gd₂O₃의 농도가 점점 높아져서 현재는 약 6~10wt% 정도가 첨가된 핵연료가 사용되고 있다. UO₂에 Gd₂O₃가 첨가되는 경우 서로 다른 특성을 가지는 분말의 혼입으로 인해 순수한 UO₂ 소결체 제조 공정과는 다른 최적화된 소결 공정이 요구된다. 최근의 연구들에 의하면 핵연료의 성능에 직접적으로 관련된 열전도도나 결정립 크기 등이 소결체에서의 Gd와 U 양이온간의 균질도 여부와 큰 관련이 있는 것으로 알려지고 있으며 일반적으로 두 양이온의 균일한 분포가 요구된다. 핵연료의 열전도도가 감소하거나 핵연료 소결체의 미세 조직이 불균질한 경우 내부에서 발생하는 열을 효과적으로 전달하지 못할 뿐만 아니라 연소도 중 변화하는 다양한 환경에 안정적이지 못하여 결국 핵연료의 효율이 떨어지며 수명도 감소하게 된다. 따라서 핵연료 소결체내에서의 이중 양이온간의 균일한 혼합이 중요하며 균질도를 향상시키기 위한 다양한 공정들이 개발되고 있다. 혼합한 분말의 milling, 산화성 분위기에서의 소결, 소결 조제의 첨가 혹은 화학적 방법으로 제조된 분말의 사용 등이 그 예이다. 이러한 공정의 변화는 궁극적으로 소결 전에 이중 분말간의 접촉면적을 늘려 고용에 필요한 확산 거리를 줄이거나 소결 중에 확산이 빨리 일어날 수 있게 도와주기 위한 것이다. 따라서 소결 온도 부근에서의 U과 Gd간의 상호 확산 거동에 대한 연구는 최적화된 가연성 흡수 소결체 제조 공정을 확립하기 위한 중요한 기본 자료이다. 초기에 첨가되는 가연성 흡수제 외에도 원자로 내에서의 연소 중 핵분열 생성물의 일종으로 lanthanide계 원소들이 생성되며 장주기 고연소로 갈수록 그 양은 증가하게 된다. 따라서 국부적으로 발생하는 Gd 핵분열 생성물의 시간에 따른 분포 변화에 대한 정보도 연소 시 핵연료 특성을 이해하는 데에 큰 도움이 되리라 사료된다.

그러나 U과 Gd 양이온간의 상호 확산계수에 대한 연구는 중요성에도 불구하고 거의 이루어지지 않고 있다. 연구가 진행되지 못하는 이유는 UO₂와 Gd₂O₃간의 결정학적인 구조에 큰 차이가 있으며 이로 인해 UO₂와 Gd₂O₃가 전율 고용되지 못하고 중간 조성에서 중간상 화합물을 형성시키기 때문이다[4]. 일정한 stoichiometry를 가지는 중간상 화합물은 농도 구배가 존재하지 않으므로 물질의 이동은 중간상 화합물의 양단 계면에서 일어나는 화합물 생성과 분해 반응에 의해 일어나게 된다. 따라서 중간 조성에서 화합물이 존재하는 UO₂-Gd₂O₃ 계에서의 양이온간의 상호확산 계수를 구하기 위해서는 존재하는 모든 상에 대한 결정학적인 정보와 인접 상간의 생성 및 분해반응에 대한 평형 상수에 대한 정보 등을 가지고 있어야하는 어려움이 따른다.

본 연구에서는 초기에 첨가된 혹은 핵분열 중 생성된 Gd 양이온이 UO₂ 격자 내로 확산되는 속도를 구하기 위해 같은 CaF₂ 구조를 가지는 10wt% Gd₂O₃가 고용된 UO₂ 소결체와 순수한 UO₂ 소결체로 이루어진 pseudo-binary 확산쌍을 제조하여 UO₂ 격자 내에서의 U과 Gd 양이온간의 상호 확산계수를 측정하고자 한다. 이와 함께 UO₂ 격자 내에 치환되는 Gd의 함량이 증가에 따른 열전도도의 변화도 측정하고자 한다.

2. 실험방법

(1) 소결체 제조

열전도도 측정을 위한 소결체는 ADU 공정으로 제조한 UO₂ 분말에 6, 12wt% Gd₂O₃ 분말을 첨가하여 제조하였다. 혼합 분말을 tumbling mixer에서 2시간 혼합 후 ball-milling한 분말을 성형 die에 장입하고 3ton/cm² 압력으로 성형하여 성형체를 제조하였다. 소결은 1730°C에서 수소기체

분위기로 4시간 하였다. Gd의 완전 고용을 위해 소결 후 1650°C에서 수소와 이산화탄소 혼합기체; CO₂/H₂=0.3 ($\Delta G \cong -275\text{KJ/mol}$) 분위기로 20시간 동안 열처리하였고, 소결 밀도는 상대적인 열전도도 비교를 위해 95% 부근으로 맞추었고 이를 위해 pore former를 사용하였다. 만들어진 소결체는 두께 1mm, 지름 10mm의 원판 형태로 가공하여 열확산도를 측정하였다.

U과 Gd의 상호 확산을 측정하기 위한 소결체는 순수 ADU-UO₂ 분말과 10wt% Gd₂O₃가 혼합된 ADU-UO₂ 분말을 이용하였고 소결체 제조공정은 열전도도 측정 시편과 동일하다. 다만 pore former를 사용하지 않았으며 소결 밀도는 98%TD이상의 밀도를 가진다. 소결체로부터 확산쌍의 제조는, 만들어진 두 종류의 소결체의 평면을 경면 연마한 후 연마된 면을 접촉시켜 축 방향으로 약 10Mpsi의 압력을 주어 제조하였다. 이때 온도는 1500°C를 유지하였으며 진공분위기에서 약 30분 동안 유지하였다.

(2) 측정 및 분석

열전도도(κ)는 열확산도(α)와 다음의 관계식을 가진다.

$$\kappa = \alpha C_p \rho \quad (1)$$

여기서 C_p 는 열용량, ρ 는 밀도를 나타낸다. 따라서 열전도도는 열확산도를 측정하고 열용량을 측정하면 알 수 있다. 열용량은 온도에 따른 DSC 곡선을 얻은 후 이를 1차 미분하여 얻었다. 열확산도는 그림 1과 같은 구조를 가진 장치를 이용하여 laser-flash 방법을 통해 측정하였다. Laser가 입사되는 뒤쪽 면의 온도가 최대값으로 포화되는 시간 t 의 1/2을 측정하여 열확산도를 측정하게 된다 (식2). 여기서 L 은 시편의 두께이다.

$$\alpha = \frac{\omega L^2}{\pi^2 t_{1/2}} \quad (2)$$

식 1로 얻어진 열전도도는 같은 종류의 시편이라도 밀도에 따라 다른 값을 가지므로 소결체가 가진 밀도에 따른 값을 보정할 필요가 있다[5]. 밀도 변화에 따른 열전도도의 변화는 다음과 같으며

$$\kappa = \kappa_{TD} \left(1 - \beta \left(1 - \frac{\rho}{\rho_{TD}} \right) \right) \quad (3)$$

본 실험에서는 95%TD로 환산한 열전도도를 나타내었다. 식 3에서 β 는 실험적인 상수값이다.

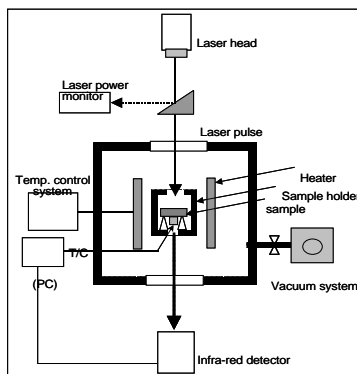


그림 1. 열확산도 측정장치 개략도

확산 거동은 접합면에 수직으로 자른 소결체를 1600°C, 1650°C, 1700°C의 세 온도에서 각각 100시간 동안 열처리한 후 접합면 부근에서의 농도 변화를 EPMA를 이용하여 관찰하였다. 열처리 시 사용한 혼합가스 분위기는 $CO_2/H_2=0.02$ 이다. 농도차이가 존재하는 두 종류 이상의 양이온간에 일어나는 확산은 상호확산계수(D_I) 하나의 매개 변수로 나타낼 수 있다. 이때 양이온간의 상호확산계수는 확산 영역에서의 농도 구배에 따라 다른 값을 가지게 된다. 상호 확산 계수는 Wagner[6]가 제안한 식을 이용하여 계산하였다. 이 식은 EPMA로부터 측정된 확산 거리에 따른 농도 구배 도형만을 이용하여 상호확산 계수를 계산할 수 있는 식으로 Matano interface[7]을 찾아낼 필요가 없는 장점을 가진다. 그러나 이식을 적용하기 위해서는 상호확산 도중 Kirkendall 효과에 의한 void의 형성이 없어야 하며 확산은 하나의 통로로만 이루어진다 가정이 전제된다. Wagner에 의해 유도된 상호 확산 계수의 계산식은 다음과 같다.

$$D_I = \left[\frac{C^*(C^+ - C^-)V_m}{2t(\partial c/\partial x)} \right] \times \left[(1 - Y^*) \int \frac{Y}{V_m} dx + Y^* \int \frac{(1 - Y)}{V_m} dx \right] \quad (4)$$

여기서, C^* 는 x 지점에서의 특정 양이온 mol 농도이며 C^+ 와 C^- 는 특정 양이온의 최대와 최소 mol 농도를 나타낸다. V_m 은 molar volume 이며 Y^* 는 양이온 농도와 다음과 같은 관계를 가진다.

$$Y^* = \frac{(C^* - C^-)}{C^+ - C^-} \quad (5)$$

3. 실험결과 및 토론

(1) 열전도도

순수한 UO_2 와 6wt% 및 12wt% Gd_2O_3 가 첨가된 UO_2 소결체의 열확산도를 상온에서부터 1400°C 온도영역에서 측정된 결과를 그림 2에 나타낸다. 그림 3에는 밀도를 95%로 환산한 시편의 온도에 따른 열전도도 변화를 보여준다. 산화물에서의 열전도도는 외부의 열적 자극에 의해 부분적으로 여기된 thermal phonon이 얼마나 빨리 주변으로 전파되는가에 의존하게 된다. Thermal phonon의 전파 속도는 산화물을 구성하는 성분과 격자구조에 의해 결정되게 된다. 그러나 온도 변화라든가 이종원자의 첨가와 같은 요인으로도 열전도도는 변화하게 된다. 일정한 격자구조를 가진 산화물의 열전도도가 저하된다는 것은 격자 구조 내에 thermal phonon의 진행을 방해하는 scattering site가 증가한다는 것을 의미한다. 온도가 높아지면 이온들의 진동폭이 커지며 이로 인해 진행하던 phonon의 back scattering이 증가한다. 이를 phonon-phonon 충돌이라 하며 열전도도는 온도가 증가할수록 저하된다. 이종원소의 격자 내 치환은 치환된 이종 원소가 phonon의 진행을 방해하는 scattering site로 작용하며 이를 phonon-defect 충돌이라 한다. 치환된 이종원자는 모 원자와는 다른 질량과 결합강도를 가지며 원자 반경 차이에 의해 주변에 변형을 가져오므로 정합적인 phonon의 진행을 방해하게 된다[8,9]. 특히 원자의 질량차이가 열전도도에 가장 큰 영향을 주는 요인으로 작용한다. Phonon-phonon 충돌과는 달리 phonon-defect 충돌은 치환량에 의존하며 온도의 증가에는 영향을 받지 않는다. 그림 3에 나타난 열전도도 곡선에서 보면 온도가 증가함에 따라 전체적으로 열전도도가 감소하며 같은 온도에서는 Gd의 고용량이 많을수록 열전도도는 감소한다. 이는 온도 증가에 의한 phonon-phonon 충돌의 증가와 이종 원자인 Gd 치환에 따른

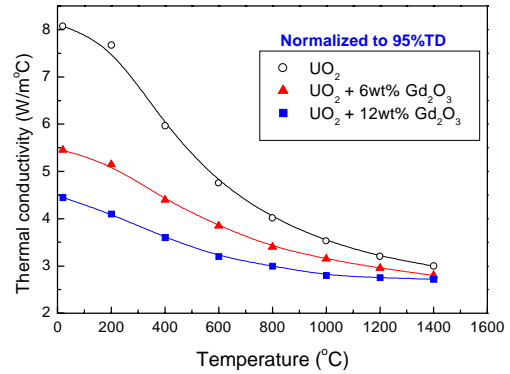
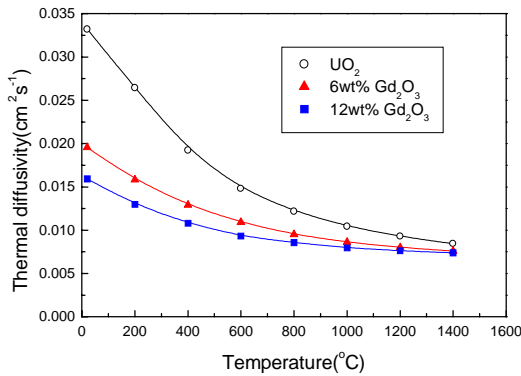


그림 2. Gd 농도 및 온도 변화에 따른 열확산도의 변화

그림 3. Gd 농도 및 온도 변화에 따른 열전도도의 변화

phonon-defect간의 충돌이 증가하기 때문이다. 그러나 저온에서 보이는 Gd 농도에 따른 열전도도의 큰 차이는 온도가 증가할수록 폭이 감소한다. 이는 phono-phonon 충돌은 온도의 증가에 따라 증가하지만 phonon-defect 충돌은 온도에 영향을 받지 않기 때문이다. 즉, 저온에서는 phonon-defect 충돌이 열전도도를 방해하는 주 요인이지만 고온으로 올라갈수록 phono-phonon 충돌이 열전도도의 저하를 지배하는 요인으로 작용하여 열전도도의 차이가 감소하게 된다 [10,11,12].

(2) 양이온 상호 확산

그림 4는 제조된 확산쌍 시편을 CO₂/H₂=0.02 분위기 하에 1600°C, 1650°C, 1700°C에서 각각 100시간 동안 열처리한 시편의 접합면 부근 모양을 광학 현미경을 이용하여 관찰한 사진을 보여 준다. 사진에서 명암이 짙은 쪽이 Gd가 고용된 UO₂ 영역이며 접합면은 화살표로 나타내었다. 거의 완벽한 접합면을 이루고 있으며 접합면부근의 모양이 서로 유사하다. 그러나 1700°C에서 열처리한 시편의 경우 접합면 부근의 UO₂ 결정립계가 뚜렷하게 드러나며 이는 결정립계를 따라 Gd 양이온이 빠르게 확산했음을 나타내준다.

그림 5는 1600°C, 1650°C, 그리고 1700°C에서 각각 100시간 동안 열처리한 확산쌍의 접합면에

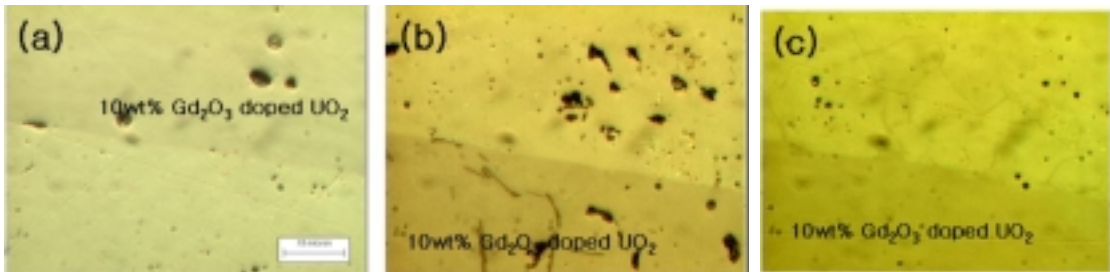


그림 4. 열처리된 확산쌍의 접합면 부근 광학 사진
(a) 1600°C/100시간 (b) 1650°C/100시간 (c) 1700°C/100시간

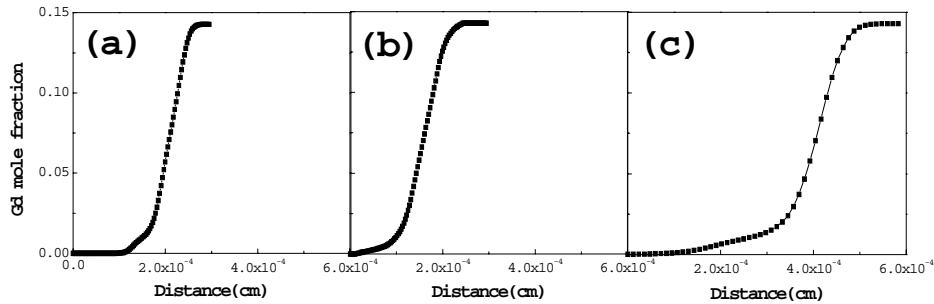


그림 5. 열처리 온도에 따른 접합면 부근에서의 Gd 농도 분포의 변화

서 거리에 따른 Gd 양이온의 농도 변화를 보인다. 그림 6은 그림 5의 농도 변화 곡선을 식(4)에 적용시켜 계산되어진 Gd 농도에 따른 UO_2 격자내에서의 U와 Gd 양이온간의 상호 확산 계수를 보인다. Gd 농도가 상대적으로 높은 농도영역에서 양이온간의 상호 확산 계수가 증가하는 것을 알 수 있다. 이러한 사실은 Gd가 치환된 양이 많을수록 내부에서 양이온들이 이동하기 쉽다는 것을 의미한다. 일반적으로 양이온간의 확산은 defect를 통해 이루어지므로 Gd-rich 영역이 어떤 형태의 defect가 많다는 것을 의미한다. 이처럼 Gd rich 영역이 상대적으로 defect가 많다는 것은 다음과 같이 설명될 수 있다.

그림 7은 주어진 CO_2/H_2 비에 대해 온도의 변화에 따른 평형 ΔG 값의 변화를 나타낸다. 우리가 확산쌍의 열처리 시 사용한 CO_2/H_2 의 비는 0.02 이며 이때의 평형 ΔG 값은 표 1에 나타내었다. 열처리 분위기에서의 평형 ΔG 값은 약 $-400kJ/mol$ 부근의 값을 가진다. 그림 8(a)는 Gd가 고용된 UO_2 에서의 주어진 온도에서 Gd 조성변화에 따른 평형 산소 분압과 평형 O/M비의 관계를 나타낸 그림이다[13]. 그림에서 보면 같은 온도와 평형 산소 분압에서도 Gd의 고용량이 증가함에

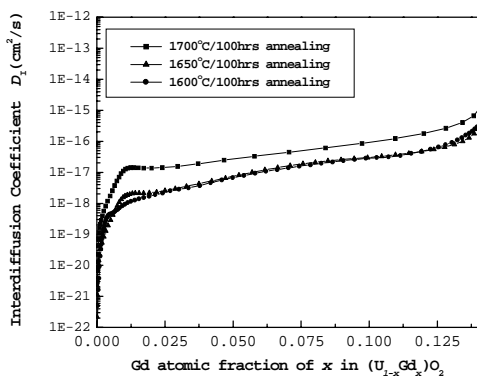


그림 6. Gd 고용도에 따른 UO_2 격자 내에서의 상호 확산 계수의 변화

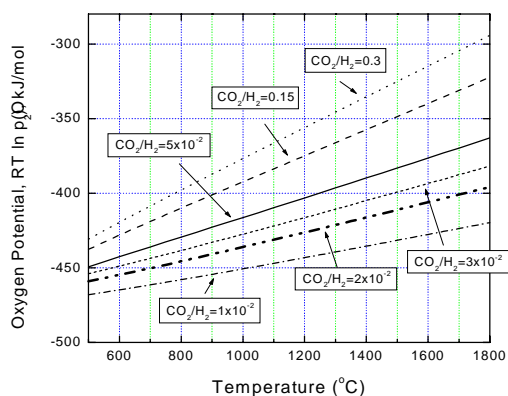


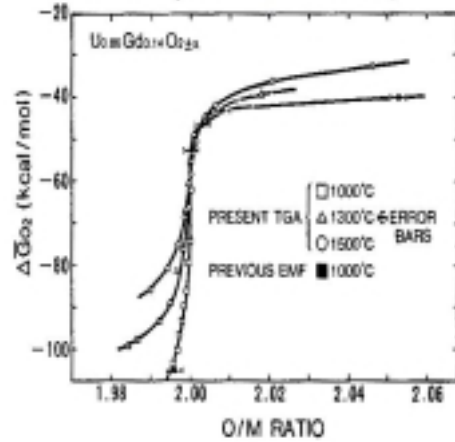
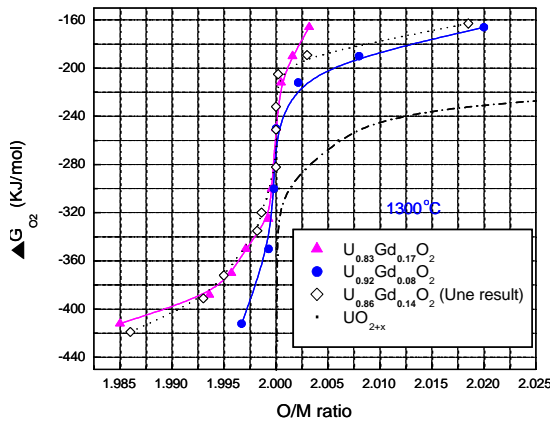
그림 7. 혼합 가스 분위기의 종류와 온도 변화에 따른 평형 산소 분압의 변화

표 1. CO₂/H₂=0.02 혼합가스 분위기에서의 평형 산소 분압

CO ₂ /H ₂ =0.02	1600°C	1650°C	1700°C
ΔG(kJ/mol)	-406	-404	-401

따라 평형 O/M 비는 hypo-stoichiometry 쪽으로 이동하며 이러한 경향은 평형 산소 분압이 낮을 수록 더 크게되는 것을 알 수 있다. 그림 8(b)는 조성이 일정할 경우 온도 변화에 따른 평형 산소 분압과 평형 O/M비의 관계를 나타낸 것이다[14]. 이 경우에는 온도의 증가에 따라 같은 산소 분압에서 평형 O/M비가 감소하게 되며 또한 산소 분압이 낮을수록 차이가 크게 된다. 이러한 Gd 농도에 따른 평형 O/M비의 변화는 같은 열처리 분위기라 하더라도 확산쌍에서의 평형 O/M비는 위치에 따라서 많은 차이가 난다는 것을 알려 준다. 즉, 그림 9에 개략적으로 나타낸 바와 같이 확산이 일어나 Gd의 농도가 접합면 부근에서 농도 변화가 존재한다면 이 농도 구배 곡선의 기울기와는 반대의 값을 가진 O/M 비 구배가 자동적으로 형성된다. 따라서 그림 6에 구해진 Gd 농도의 증가에 따른 확산 계수의 증가는 Gd 농도 구배에 따라 변화하는 평형 O/M비의 변화와 밀접한 관계를 가지는 것으로 보인다.

Matzke[15]등은 Pu 이 치환된 UO₂에서의 Pu의 확산계수의 산소 분압에 따른 변화를 관찰하였다. 그들에 결과는 그림 10에 요약하여 나타내었다. 그림에서 보면 특정한 산소 분압을 중심으로



산소분압이 증가하거나 감소하는 경우 확산 계수는 증가하는 것을 알 수 있다. Matzke등은 이와 같은 산소 분압에 따른 확산 계수의 변화를 평형 O/M비의 변화에 따른 격자내의 defect수의 증가로 설명하였다. 즉, 산소 분압이 낮아 O/M비가 2보다 많이 작아지는 경우에는 산소 vacancy 혹은 양이온 interstitial 들이 증가하게 되어 defect cluster들의 ring type change interaction등의 증가로 확산 속도가 빨라지며 산소 분압이 증가하여 O/M비가 2보다 크게 증가하게 되면 양이온 vacancy를 통한 물질 확산이 빠르게 되어 확산 속도가 증가하는 것으로 보고하고 있다. Gd가 치환된 본 실험의 결과도 위와 같이 설명할 수 있다. Gd가 치환되는 경우에는 Gd가 3+가이므로 4+로도 존재할 수 있는 Pu가 치환된 경우보다는 같은 산소 분압에서 평형 O/M비가 더 적을 것으로 예상된다. 또한 실험에서 사용된 열처리 가스 분위기는 Gd의 고용도에 따른 평형 O/M비의 변화

가 크게 일어나는 영역이다. 따라서 그림 9에 나타난 바와 같이 Gd의 농도 증가에 따라 O/M비가 감소하는 것은 침입형 양이온 혹은 산소 공공의 수가 증가한다는 것을 의미하게 된다. 이와 같은 defect의 증가로 Gd 양이온의 농도가 증가할수록 상호 확산 계수는 증가하는 것으로 보인다.

그림 11은 특정 조성에서 온도에 따른 양이온 상호 확산 계수의 변화를 보인다. 온도의 증가에 따라 상호 확산 계수가 증가하며 이는 열에너지의 도움으로 원자들의 이동도가 증가하며 열진동에 의한 격자상수의 증가에 의해 원자 이동에 필요한 에너지 장벽의 높이가 감소하기 때문인 것으로 생각된다. 온도에 따른 Gd와 U의 양이온 확산계수의 변화는 다른 연구 결과[16]들과 함께 그림 11에 점선으로 나타내었다. Gd와 U의 상호 확산은 Pu가 치환된 UO_2 에서의 Pu의 lattice 확산 계수와 유사한 값을 가지며 기울기 또한 다른 연구 결과들과 유사한 값을 가지므로 구해진 상호 확산 계수가 의미있는 값을 가지는 것을 알 수 있다. 특정 조성에서의 온도에 따른 상호 확산계수

표 2. 특정 조성에서의 U, Gd 상호 확산 계수

조성	$(U_{0.9}Gd_{0.1})O_2$	$(U_{0.95}Gd_{0.05})O_2$
상호 확산 계수(D_I)	$2.27 \times 10^{-7} \exp(-1.56 \times 10^5/RT)$	$2.47 \times 10^{-6} \exp(-1.82 \times 10^5/RT)$

로부터 구해진 특정 조성에서의 온도에 대한 상호 확산 계수는 표 2에 나타내었다.

4. 결론

Gd가 치환된 UO_2 에서의 Gd 농도와 온도 변화에 따른 열전도도의 변화와 양이온 상호 확산 계수를 측정하였다. Gd 치환량이 증가할수록 UO_2 의 열전도도는 감소한다. 이는 질량이 차이 나는 Gd의 치환에 의해 phonon-defect의 충돌이 일어나기 때문이다. 10wt%Gd₂O₃가 고용된 UO_2 와 순수 UO_2 로 구성된 확산쌍으로부터 UO_2 격자내에서의 U와 Gd 양이온간의 상호 확산계수를 측정하였다. UO_2 격자내에 고용된 Gd의 농도가 증가할수록 상호 확산계수는 증가하며 이는 Gd 치환에 따른 농도변화에 따라 확산층 내에서의 평형 O/M비가 변화하며 따라서 UO_2 격자내에 산소 vacancy 혹은 침입형 양이온 결함이 증가하기 때문인 것으로 보인다. 특정 조성에서의 온도에 따른 상호 확산 계수도 함께 구하였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력 연구개발 사업의 일환으로 수행되었음

참고 문헌

1. 송근우, 유효식, '중성자 흡수재의 가공과 특성', 요업기술 11 (1996) 335-366
2. S.M. Ho et al., J. Nuclear Technology, 73 (1986) 350
3. H.H. Davis et al., Mater. Sci. Res., 11 (1974) 515
4. R.J. Beals, J.H. Handwerk, and B.J. Wrona, J. Am. Ceram. Soc., 52 (1969) 50

5. Loeb, A.L. (1954) *J. Am. Ceram. Soc.*, 37, 96-99
6. C. Wagner, *Acta Metall.*, 17 (1969) 99
7. C. Matano, *Jap. J. Phys.*, 8 (1933) 109
8. Klemens, P.G. (1955) *Proc. Phys. Soc.*, A68, 1113-1128
9. Klemens, P.G. (1960) *Phys. Rev.*, 119, 507-509
10. Amaya, M. & Hirai, M. (1997) *J. Nucl. Mater.*, 246, 158-164
11. Amaya, M., Hirai, M., Kubo, T., & Korei, Y. (1996) *J. Nucl. Mater.*, 231, 29-33
12. Lucuta, P.G., Matzke, H.J. & Verrall, R.A. (1995) *J. Nucl. Mater.*, 223, 51-60
13. K.S. Kim, et al., KAERI experimental result
14. K. Une & M. Oguma, *J. Nucl. Mat.*, 115(1983) 84
15. D. Glasser-leme & H.J. Matzke, *Solid State Ionics*, 12 (1984) 217
16. B.R.T. Frost, *Materials Science and Technology*, Vol. 10a, Nuclear Materials part. 1., VCH Publishers Inc, (1994) 150