

중성자 회절에 의한 산화우라늄 핵연료 분말의 결정크기 측정

류호진 · 강권호 · 문재선 · 송기찬 · 최용남*

한국원자력연구소 전식공정핵연료기술개발부, *한국원자력연구소 하나로이용기술개발부

Crystallite Size Measurement of Uranium Oxide Fuel Powders by Neutron Diffraction

Ho Jin Ryu, Kwon Ho Kang, Je Sun Moon, Kee Chan Song and Yong Nam Choi*

Dry Process Fuel Technology Development Division, *HANARO Utilization Technology Development Division,

Korea Atomic Energy Research Institute 150, Deokjin-dong, Yuseong-gu, Daejeon 305-353, Korea

(Received 20 July 2003 ; Accepted form 2 September 2003)

Abstract The nano-scale crystallite sizes of uranium oxide powders in simulated spent fuel were measured by the neutron diffraction line broadening method in order to analyze the sintering behavior of the dry process fuel. The mixed UO₂ and fission product powders were dry-milled in an attritor for 30, 60, and 120 min. The diffraction patterns of the powders were obtained by using the high resolution powder diffractometer in the HANARO research reactor. Diffraction line broadening due to crystallite size was measured using various techniques such as the Stokes' deconvolution, profile fitting methods using Cauchy function, Gaussian function, and Voigt function, and the Warren-Averbach method. The non-uniform strain, stacking fault and twin probability were measured using the information from the diffraction pattern. The realistic crystallite size could be obtained after separation of the contribution from the non-uniform strain, stacking fault and twin.

Keywords : Nuclear fuel, Neutron diffraction, Line broadening, Crystallite size, Warren-Averbach method

1. 서 론

건식공정 핵연료(dry process fuel)는 농축우라늄을 원료로 하는 가압경수로에서 연소된 후 방출된 사용 후 핵연료(spent fuel) 내에 잔존하는 소량의 핵분열 성 물질을 천연우라늄을 원료로 하는 가압증수로에서 재활용하기 위해 개발된 미래형 핵연료이다¹⁾. 건식공정 핵연료는 핵연료 자원을 절약함과 동시에 누적되는 사용후 핵연료량을 감소시킬 수 있다는 장점이 있으며, 습식 재처리와는 달리 제조 공정 중 플루토늄과 같은 핵적 민감 물질을 분리하는 공정을 포함하고 있지 않아 우수한 핵화산저항성을 지니고 있는 핵연료 기술이다. 건식공정 핵연료는 사용후 핵연료를 재가공하게 되므로 사용후 핵연료에 존재하는 대부분의 핵분열 생성물(fission product)들을 함유하게 되며 이로써 모든 제조공정은 핵분열 생성물의 높

은 방사능을 차폐하기 위하여 차폐된 시설 내에서 원격 작업을 통해 이루어지게 된다. 건식공정 핵연료의 제조공정 및 물성을 충분히 연구하기 위하여 실제 사용 후 핵연료와 조성이 거의 유사하도록 방사성이 없는 안정한 동위원소를 산화우라늄 분말에 첨가하여 소결하는 모의 건식공정 핵연료가 사용되고 있다. 모의 건식공정 핵연료는 약 3 wt%의 핵분열 생성물을 대표하는 10에서 15가지 원소들을 함유하고 있으며, 그 원소들 중 많은 양을 차지하는 것으로는 Zr, Mo, Nd, Ru, Ce 등이 있다.

실제 사용 후 핵연료 내에 존재하는 핵분열 생성물들은 매우 균일하게 분포하고 있으므로 이를 모사하기 위해서는 첨가 원소들을 산화우라늄 분말 중에 미세하고 균일하게 분포시키는 것이 중요하다. 이를 위해서 건식공정 핵연료의 제조공정에서는 attritor를 이용한 기계적 분쇄법을 사용하여 첨가 원소들을 균

일하게 분산시킴과 동시에 산화우라늄 분말의 분쇄를 수행하여 소결성을 향상시키고 있다. 다른 세라믹 분말과 마찬가지로 모의 전식공정 핵연료 분말도 기계적 분쇄가 진행됨에 따라 결정 크기(crystallite size)는 분말의 계속적인 파괴로 인하여 감소하게 된다. 분말 내의 결정 크기는 소결 거동과 같은 제조공정에 영향을 주게 되므로 전식공정 핵연료의 기계적 분쇄 시간을 변화시켰을 때 산화 우라늄 분말 내의 결정 크기의 변화를 측정하는 것이 중요하다.

분말의 입자 크기(particle size)를 측정하기 위해서는 주사 전자현미경(SEM)으로 직접 관측하는 방법과 레이저 광 산란을 이용한 입자크기분석기(particle size analyzer)를 이용하는 방법과, BET 법을 이용하여 비표면적으로부터 계산하는 방법이 있다. 그러나 분말의 결정 크기는 이러한 방법들에 의해 측정될 수 없으며 투과 전자현미경(TEM)으로 직접 관측하거나 회절법을 이용하여야 측정될 수 있다. 투과 전자현미경으로 관측하는 방법은 측정된 샘플에 대해서는 신뢰성이 큰 반면에 관측될 수 있는 샘플의 양이 극히 미량이기 때문에 통계적인 대표성을 갖기에 어려운 단점이 있다. X선 회절이나 중성자 회절에 의한 결정 크기 측정법은 Sherrer에 의해 이론적으로 제안된 이후 많은 실험을 통해 확립된 방법으로 다량의 샘플에 대해 통계적으로 대표성을 갖는 결정 크기를 측정할 수 있는 장점이 있다²⁾. 그러나 회절법에 의하여 측정된 결정크기는 회절 장치의 종류, 결정 내부의 변형, 적층결함이나 쌍정과 같은 결함농도, 전위 밀도 등에 의해 영향을 받기 때문에 실험결과를 해석하는 데 있어서 신뢰성있는 절차를 따르지 않으면 의미없는 값을 얻게 된다.

본 연구에서는 기계적 분쇄 시간에 따른 전식공정 핵연료의 결정 크기의 변화를 측정하는데 있어서 중성자 회절법을 이용하여 신뢰성 있는 결정 크기를 측정할 수 있는 절차를 확립하고자 하였다.

2. 실험 방법

본 연구에서 모의 전식공정 핵연료를 제조하기 위해 대상으로 삼은 사용후 핵연료는 방출 연소도가 27,300 MWd/tU이었으며, 사용후 핵연료 내의 핵분열 생성물 원소의 함량은 ORIGEN-2 (Oak Ridge Isotope Generation and Depletion) 전산코드를 사용

하여 계산되었다³⁾. 핵분열 생성물 원소를 모사하기 위하여 해당 원소의 안정한 동위 원소로 구성된 산화물 분말을 계산된 함량에 맞도록 청량하여 천연 산화우라늄에 첨가하였다. 혼합된 분말은 대기 분위기의 수직형 attritor 내에서 200 rpm의 회전속도와 4:1의 볼 대 분말 무게비의 조건으로 30분, 60분, 120분간 기계적으로 전식 분쇄되었다. 이때 사용된 볼은 직경 3 mm의 지르코니아 볼이었다. 분쇄된 분말은 실린더형 펠렛으로 압분된 후 한국원자력연구소 내에 있는 HANARO 연구로의 중성자 회절 장치에 원통형 바나듐 용기(직경 8 mm, 높이 40 mm)를 사용하여 한 시편 당 약 15 g씩 장입되었다. 본 실험에서 사용된 중성자 범의 파장은 0.18348 nm였으며, 단색화 결정은 Ge(331)을 사용하였고, 회절신호는 5° 간격으로 설치된 32개의 He-3 비례검출기를 사용하였다. 20 간격은 0.05°씩 진행하였으며 각각의 각도에서 정지상태로 약 100초 동안 중성자 신호를 검출하며 20°에서 155°까지 회절 도형을 측정하였다. 표준 시편으로는 결정립 크기가 10 μm 이상이 되도록 소결된 모의 전식 공정 핵연료를 이용하여 회절도형을 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

Fig. 1은 120분간 전식 분쇄된 모의 전식공정 핵연료의 분말을 투과 전자현미경으로 관찰한 것으로



Fig. 1. A transmission electron micrograph showing the UO_2 particles.

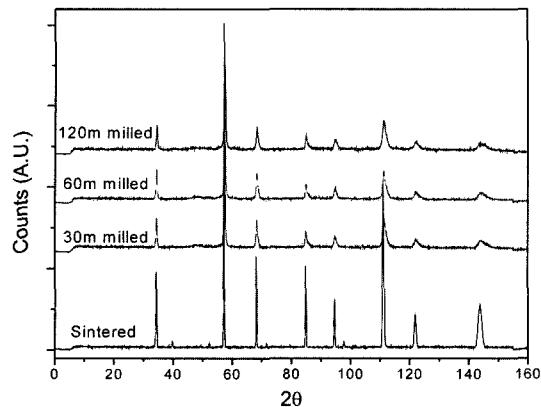


Fig. 2. Neutron diffraction patterns of simulated dry process fuel of sintered pellet and milled powders with varying milling time from 30 min to 120 min.

평균 55 nm 정도의 UO_2 입자들이 서로 응집되어 있는 현상을 보여주고 있다. 회절 도형에서 나타나는 회절선풍의 증가가 결정 크기와 관계가 있다는 것으로 이론적으로 제안한 Sherrer에 의하면 100 nm 이하의 결정크기는 아래의 식과 같이 빔의 파장(λ), 회절선풍(β), 회절각(θ)의 관계에 의해 구할 수 있다²⁾.

$$D = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (1)$$

이때 회절선풍으로 반가폭(full width at half maximum, FWHM)이 사용되면 K 는 약 0.9가 되고, 적분폭(integral breadth)이 사용되면 K 는 1이 된다.

Fig. 2는 중성자 회절에 의해 얻어진 모의 건식 공정 핵연료의 회절 도형을 나타낸 것으로 소결체와 기계적 분쇄된 분말의 회절선풍을 비교하면 기계적 분쇄 시간이 증가함에 따라 회절선풍이 증가함을 알 수 있다. 회절선풍에서 반가폭을 측정하여 비교하여 보면 아래의 식과 같이 반가폭과 회절각의 관계를 나타내는 Caglioti 관계식을 따라 반가폭이 변화하는 것을 알 수 있다⁴⁾.

$$FWHM^2 = U \tan^2 \theta + V \tan \theta + W \quad (2)$$

Stokes는 관찰된 회절선풍이 결정크기나 불균일 변형 등 미세구조에 의한선풍 증가분, $g(x)$ 와 장치에 의한선풍 증가분, $f(x)$ 가 수학적인 convolution 관계로 결합되어 있음을 아래와 같은식으로 나타내었다.

$$h(x) = g(x) * f(x) = \int_{-\infty}^{\infty} g(y)f(x-y)dy \quad (3)$$

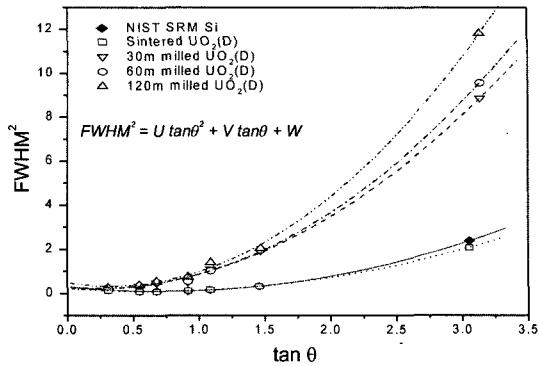


Fig. 3. Line broadening of milled powders and reference materials fitted with Caglioti relation. ($FWHM^2 = U \tan^2 \theta + V \tan \theta + W$).

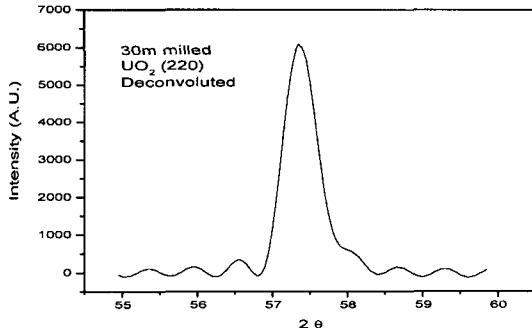


Fig. 4. Microstructural broadening of (220) peak of 30 min milled dry process powder deconvoluted by Stoke's method.

따라서 Fourier deconvolution 법을 사용하면 측정된 회절선풍으로부터 장치에 의한선풍 증가분을 제거하고 순수하게 미세조직만에 의한선풍 증가분을 얻을 수 있는데 이를 Stokes' deconvolution 법이라 한다⁵⁾. Stokes deconvolution법이 수학적으로는 정밀한 면이 있으나 이웃한 회절선이 중첩된다든지 미세구조에 의한선풍 증가분이 장치에 의한선풍 증가분보다 적을 때에는 오히려 오차가 커지게 되는 단점이 있다.

Fig. 4는 30분간 기계적 분쇄된 모의 건식공정 핵연료의 (220) 회절선을 FOURYA라는 전산 코드를 이용하여 Stokes' deconvolution법으로 미세구조에 의한 회절선풍 증가분만을 추출한 결과이다⁶⁾. 도형의 꼬리부분에 나타나는 물결은 deconvolution 시 회절선 도형의 절단에 의해 나타나는 결과로서 Stokes deconvolution법은 도형의 절단을 어떤 기준으로 수행하였느냐에 따라 변화되는 회절선풍을 나타내게 된

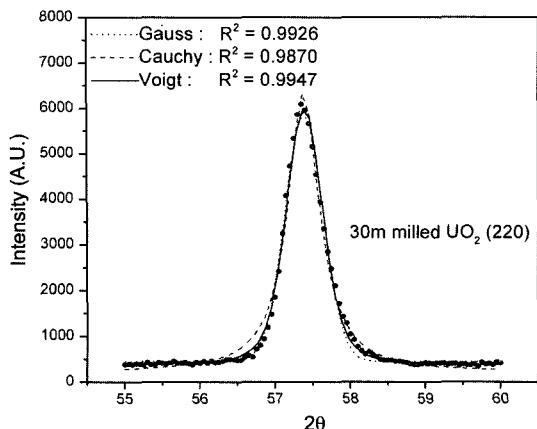


Fig. 5. (220) peak of 30 min milled dry process powder fitted by Gaussian, Cauchy, and Voigt function.

다. 따라서 본 연구에서는 수학적 해석절차와 무관하게 안정적이며, 신뢰성 있는 회절선풋을 얻을 수 있는 절차를 확립하기 위하여 Stokes' deconvolution 대신 회절도형을 수학적인 함수로 fitting하여 계산하는 방법을 택하게 되었다.

회절도형을 모사하는 함수로는 Gaussian 함수와 Cauchy(Lorentzian) 함수가 많이 사용되고 있다. 본 연구에서는 Gaussian 함수와 Cauchy 함수 외에도 Gaussian 함수와 Cauchy 함수의 convolution으로 표현되는 Voigt 함수를 사용하여 이 함수들 중 가장 회절도형을 정확히 모사하는 함수를 선택하고자 하였다.

Fig. 5는 30분간 기계적 분쇄된 모의 전식공정 핵연료의 (220) 회절선을 Gaussian 함수와 Cauchy 함수, 그리고 Voigt 함수를 사용하여 fitting 한 결과이다. ORIGIN 6.1을 이용하여 비선형 최소 자승법에 의한 fitting을 수행한 결과 Voigt 함수가 가장 높은 상관관계 계수를 보여 회절선과 가장 근사된 fitting 결과를 나타내는 것을 알 수 있었다. Gaussian 함수는 도형의 꼭지 부분이 넓고 뿌리 부분이 좁은 반면에 Cauchy 함수는 도형의 꼭지 부분이 좁은 대신 뿌리 부분이 넓게 fitting 되었으며 Voigt 함수는 Gaussian 함수와 Cauchy 함수의 사이로 fitting 되는 결과를 나타내었다. 따라서 본 연구에서는 표준 시편과 기계적 분쇄된 모의 전식공정 핵연료의 회절도형의 회절선을 근사하는 함수로 Voigt 함수를 사용하였다. Voigt 함수는 수학적으로는 Gaussian 함수와 Cauchy 함수의 convolution이기 때문에 하나의 Voigt

함수의 적분폭은 그를 구성하는 Gaussian 함수의 적분폭과 Cauchy함수의 적분폭의 관계식으로 나타낼 수 있다. 따라서 세부적으로 표준 시편과 기계적 분쇄된 분말에 대한 회절선을 fitting 한 후 각각의 회절도형에 해당하는 Voigt 함수의 Gaussian 적분폭과 Cauchy 적분폭의 관계식을 이용하면 장치에 의한 회절선 적분폭의 증가를 배제하고 미세구조에만 의한 회절선 적분폭을 추출해 낼 수 있다⁷⁾.

미세구조에만 의한 회절선 적분폭을 얻은 후에는 결정크기에 의한 적분폭 증가분과 불균일 변형에 의한 적분폭 증가분을 분리하는 작업을 거쳐야 한다. Williamson과 Hall은 convolution된 Cauchy 함수들의 적분폭 관계식을 이용하여 아래 식과 같이 결정크기에 의한 적분폭과 불균일 변형에 의한 적분폭을 분리하였다⁸⁾.

$$\beta_{\text{microstructure}} = \beta_{\text{size}} + \beta_{\text{strain}} \quad (4)$$

Cauchy 함수 대신 Gaussian 함수가 사용된다면 위의 관계식은 아래의 관계식으로 변화된다.

$$\beta_{\text{microstructure}}^2 = \beta_{\text{size}}^2 + \beta_{\text{strain}}^2 \quad (5)$$

위의 관계식에 Scherrer식을 대입하게 되면 회절각에 따른 적분폭의 변화를 하나의 도표로 나타낼 수 있으며 그 도표의 기울기와 절편값을 통해 결정크기에 의한 회절선 적분폭과 불균일 변형에 의한 회절선 적분폭을 분리할 수 있다. 이와 같은 도표를 Williamson-Hall 도표라 한다. Fig. 6은 120분간 기계적 분쇄된 모의 전식공정 핵연료 분말의 미세구조에 의한 적분폭을 Gaussian 함수를 사용하여 나타낸 Williamson-Hall 도표이다. 이와 같이 Williamson-Hall 도표를 통해 결정크기를 구하는 방법을 단순화된 회절선풋(simplified line broadening)법이라 하며 여러 가지 함수 관계(Cauchy-Cauchy, Cauchy-Gaussian, Gaussian-Gaussian)를 사용하였을 때 이 방법에 의해 구한 결정 크기가 Table 1에 정리되어 있다.

장치에 의한 회절선풋의 증가를 분리해 낼 때와 마찬가지로 결정크기와 불균일 변형 효과를 분리할 때에도 회절 도형을 근사하는 함수를 Gaussian이나 Cauchy 함수보다는 Voigt 함수를 사용할 때 더욱 정밀하게 회절선의 적분폭을 구할 수 있다. 결정크기에 의한 회절선 적분폭은 Cauchy 함수의 성질을 가지고 있으며, 불균일 변형에 의한 회절선 적분폭은

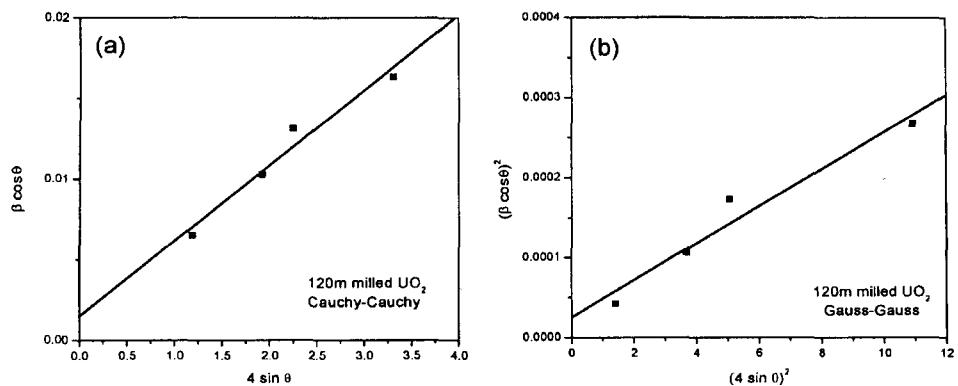


Fig. 6. Hall-Williamson plot of dry process powders milled for 120 min using (a) a Cauchy-Cauchy relation and (b) a Gaussian-Gaussian relation.

Table 1. The crystallite size of dry process powders according to various methods

Methods	Milling time		
	30 min	60 min	120 min
Simplified Line Breadth Cauchy-Cauchy	368.2 nm	313.6 nm	123.7 nm
Simplified Line Breadth Cauchy-Gaussian	144.9 nm	126.9 nm	59.2 nm
Simplified Line Breadth Gaussian-Gaussian	56.5 nm	53.1 nm	36.4 nm
Warren-Averbach using Voigt fitting	D _{eff} D _{SF} D _{SF-twin}	28.5 nm 41.5 nm 61.7 nm	21.3 nm 31.6 nm 39.6 nm

Gaussian 함수의 성질을 가지고 있다고 가정하여 분리하는 경우가 많았으나 최근의 결과에 의하면 결정 크기에 의한 적분폭과 불균일 변형에 의한 적분폭 모두 Gaussian 함수와 Cauchy 함수의 성질을 동시에 가지고 있다는 것이 보고되고 있기 때문이다⁹⁾.

한편 Warren과 Averbach는 Fourier 계수를 이용하여 결정크기에 의한 회절선풋의 증가와 불균일 변형에 의한 회절선풋의 증가를 분리하는 방법을 제시한 바 있으며 이 방법은 회절선 도형의 함수를 근사하지 않기 때문에 이론적으로는 매우 정밀한 방법으로 알려져 있으며 평균 결정 크기 뿐만 아니라 결정 크기의 분포까지도 얻을 수 있다¹⁰⁾. 그러나 복잡한 계산 과정으로 거쳐야 하며 해가 도형으로부터 얻어지게 되는 단점이 있다.

Balzar는 Warren-Averbach 법의 정밀성과 도형 근사법의 편리성을 동시에 활용하기 위하여 Voigt 함수로 미세구조에 의한 회절선 적분폭을 근사한 후 원래 측정 데이터가 아닌 fitting된 함수에 대한 Warren-Averbach 방식의 분석을 수행함으로써 안정적이고 신뢰성 있는 해를 얻을 수 있었다⁹⁾.

본 연구에서는 Balzar가 제작한 BREADTH라는 전산 코드를 이용하여 모의 전식공정 핵연료 분말의 미세구조에 의해 발생한 회절선풋의 증가에 대하여 근사된 Voigt 함수의 Warren-Averbach 분석을 수행하였다¹¹⁾. Warren-Averbach 분석에서 결정 크기의 분포는 Fourier 계수의 이차 미분식으로부터 얻어지며 본 연구에서는 Fig. 7과 같이 기계적 분쇄 시간

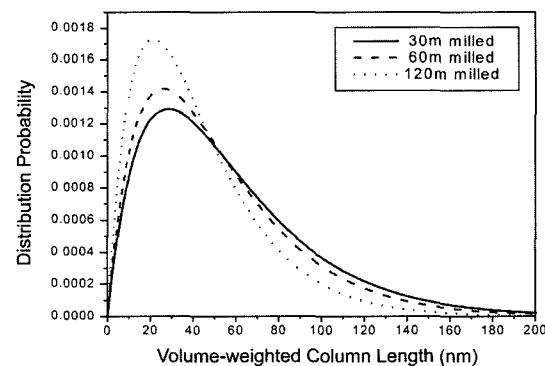


Fig. 7. Volume-weighted column length distribution of attrition milled dry process powders.

이 증가할수록 결정 크기의 분포가 미세한 쪽으로 이동해가는 양상을 관찰할 수 있었다¹²⁾.

Balzar의 방식에 의해 얻을 수 있는 결정크기 값은 한 회절선에 대하여 표준 시편의 적분폭과 측정 시편의 적분폭 도형만 있으면 쉽게 구할 수 있으며 매우 정밀도와 재현성이 높은 방식이다. 그러나 이러한 방식에 의해 얻은 결정 크기는 그 안에 존재하는 적층결합이나 쌍정 등을 고려하지 않은 것으로 이들을 추가적으로 고려하는 것이 필요하다.

본 연구에서는 Balzar의 해석 방식에 추가적으로 적층결합 및 쌍정을 고려하는 관계식을 추가하여 실제 결정크기를 구함과 동시에 적층결합 및 쌍정의 높도까지도 구하고자 하였다. 지금까지의 방법으로 구한 결정크기를 유효 결정크기(D_{eff})라 할 때 적층결합과 쌍정이 존재하는 것을 고려하면 실제 결정크기(D_{true})는 아래의 식과 같이 나타낼 수 있다.

$$\frac{1}{D_{eff}} = \frac{1}{D_{true}} + \frac{1}{4} \cdot \frac{3\alpha + 2\beta}{2d_{111}} \quad (6)$$

적층결합 농도(α)은 표준 시편과 기계적 분쇄된 시편의 회절선의 이동을 측정하면 아래의 관계식에 의해 구할 수 있으며 본 연구에서는 약 0.01로 계산되었다¹³⁾.

$$\alpha^{(111)} = \left[\frac{2\pi^2}{45\sqrt{3}} \right] \frac{\Delta(2\theta')}{\tan\theta^{(111)}} \quad (7)$$

쌍정 농도는 (β) 회절선의 비대칭도를 측정하여 구할 수 있으며 아래의 식과 같이 회절선 도형의 최대 점 각도와 회절선 도형의 무게중심의 차이로부터 계산된다¹⁴⁾. 본 연구에서는 약 0.01로 계산되었다.

$$\Delta G.G. (2\theta')_{III} = 11 \cdot \beta \tan \theta_{III} \quad (8)$$

Table 1은 본 연구에서 수행된 여러 방법에 의해 구한 모의 건식공정 혼연료 분말의 결정크기를 정리한 결과이다. Williamson-Hall 도형을 이용한 단순화된 회절선풍법에 의한 결정크기는 어떤 함수 관계식을 사용하였는가에 따라 크게 다른 결과를 보여주고 있다. 특히 기존 회절 장치에 많이 채택되는 Cauchy-Gaussian 관계식이 Warren-Averbach법을 이용한 결과와 크게 다르다는 점에 주의해야 할 것이다. 또한 적층결합이나 쌍정을 고려하지 않은 유효 결정크기는 실제 결정크기에 비해 작은 값을 나타내는 경향

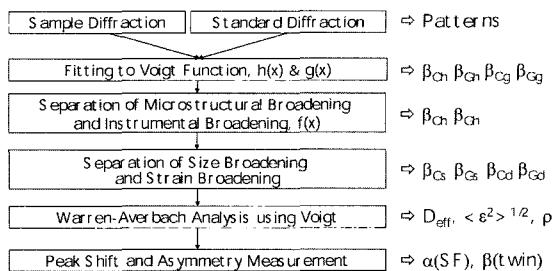


Fig. 8. The flow chart for the measurement of crystallite size of mechanically milled dry process fuel powders by neutron diffraction.

이 있다. 따라서 적층결합이나 쌍정을 고려하지 않으면 결정크기를 과소평가하게 되는 과오를 범할 수 있으며 변형이 심한 금속 분말 시편의 경우 더욱 그 영향이 크게 될 것으로 판단된다. 적층결합과 쌍정을 고려한 모의 전식공정 헥연료 분말의 결정크기는 기계적 분쇄 시간이 30분에서 120분으로 증가함에 따라 61.7 nm에서 39.6 nm로 감소하였다. 구형 분말의 직경이 회절 도형으로부터 결정학적으로 부피 평균하여 구한 결정 크기보다 4/3배 만큼 크게 된다는 사실을 감안하면 이 결과는 Fig. 1의 투과 전자현미경에서 얻은 평균 입도와 잘 일치하는 결과를 보여주는 것이다.

Fig. 8은 본 연구에서 확립한 회절법에 의한 결정크기 측정 절차의 순서도이다. 표준 시편과 측정 시편의 회절도형을 얻은 후 Voigt 함수 근사에 의해 장치에 의한 선폭 증가 효과를 배제한 후, 또 다시 Voigt 함수 근사를 통해 결정크기에 의한 선폭 증가 효과와 불균일 변형에 의한 선폭 증가 효과를 분리하게 된다. 이 과정에서 구한 결정크기에 의한 선폭 증가 효과에서 또 다시 적층결합에 의한 효과와 쌍정에 의한 효과를 제거하면 순수하게 결정크기만에 의한 선폭 증가 효과를 구할 수 있게 된다. 이 방식에 의하면 분말의 회절실험을 통해 통계적으로 신뢰성있는 미세구조 데이터를 재현성이 있게 측정할 수 있게 될 것으로 기대된다.

4. 결 론

전식공정 혼연료 내의 산화 우라늄 분말의 기계적
분쇄 후 결정크기를 중성자 회절법에서 나타나는 회
절선폭의 증가를 관찰함으로써 수십 나노미터 범위

에서 측정할 수 있었다. 중성자 회절에서 얻은 회절선 도형은 Gaussian 함수나 Cauchy 함수보다는 Voigt 함수를 사용하여 근사할 때 가장 일치도가 높았다. Voigt 함수를 이용하여 Warren-Averbach 분석을 수행한 결과 모의 전식공정 핵연료 분말의 결정 크기는 기계적 분쇄 시간이 30분에서 120분으로 증가함에 따라 61.7 nm에서 39.6 nm로 감소하였으며 결정 크기 분포도 기계적 분쇄 시간이 증가함에 따라 폭이 좁아지는 계산 결과를 나타내었다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발 중장기계획 사업의 일환으로 수행되었음.

참고 문헌

1. K.W. Song, Y.H. Kim, B.G. Kim, J.W. Lee, H.S. Kim, M.S. Yang and H.S. Park, *J. Kor. Nuc. Soc.* **28** (1996) 366.
2. P. Scherrer: *Nachr. Gott.* **2** (1918) 98.
3. A.G. Croff: *Nuclear Tech.* **62** (1983) 335.
4. G. Caglioti, A. Paoletti and F.P. Ricci: *Nucl. Instrum. Methods*, **3** (1958) 223.
5. A.P. Stokes: *Proc. Phys. Soc. London*, **61** (1948) 382.
6. R.W. Cheary and A. Coelho: *FOURYR*, *Version 4.2* (1996).
7. J.I. Langford: *J. Appl. Cryst.* **11** (1978) 10.
8. G.K. Williamson and W.H. Hall: *Acta Met.*, **1** (1953) 22.
9. D. Balzar: *J. Appl. Cryst.* **25** (1992) 559.
10. B.E. Warren and B.L. Averbach: *J. Appl. Phys.*, **21** (1950) 595.
11. D. Balzar: *J. Appl. Cryst.* **28** (1995) 244.