

The Linear Thermal Expansion Measurements and Estimations for UO_2 and $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ Pellet

Dong-Joo Kim,^{*,**†} Yong-Soo Kim,^{*} and Young-Woo Lee^{**}

^{*}Department of Nuclear Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791, Korea

^{**}Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea

(Received March 8, 2005; Accepted April 14, 2005)

UO_2 및 $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ 소결체의 열팽창 측정 및 평가

김동주^{*,**†} · 김용수^{*} · 이영우^{**}

*한양대학교 원자력공학과

**한국원자력연구소 미래형원자로연료개발부

(2005년 3월 8일 접수; 2005년 4월 14일 승인)

ABSTRACT

The linear thermal expansions of UO_2 and $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ pellet were measured from room temperature to 1400°C as a function of Ce contents (0, 7.63, 14.84, and 21.68 mol%) by using the TMA(Thermo-Mechanical Analysis) method. From the measured data, the linear thermal expansion rate, the coefficient of linear thermal expansion and density variation with temperature were calculated, and the best-fitted temperature-dependent equations were recommended. It was shown that the rate and coefficient of $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ thermal expansion increased and the density decreased with increasing Ce contents.

Key words : Linear thermal expansion, Thermo-mechanical analysis, Uranium dioxide, Mixed oxide fuel

1. 서 론

Ce 및 CeO_2 는 여러 분야에서 다양한 용도로서 사용되고 있는 재료이다. 그러나 원자력재료 분야에서는 그 용도를 크게 두 가지로 고려 할 수 있다.

첫 번째로는 PuO_2 의 활용 및 평가를 위한 모사 재료로써의 용도이다. 원자력발전의 연료로 사용되는 재료는 원자로의 형태에 따라 여러 가지 종류가 있지만, 일반적인 핵연료는 UO_2 소결체가 사용되고 있다. 또한, 사용후 핵연료 처리, 자원의 효율적 이용 등의 개선을 위하여, 좀 더 개량되고 미래지향적인 형태의 핵연료 개발이 이루어지고 있다. 이러한 연구 중 한가지로서, 사용후 핵연료 내에 존재하는 PuO_2 를 UO_2 과 함께 이용하는 혼합 핵연료(Mixed Oxide Fuel, MOX)를 예로 들 수 있으며, 이는 고속증식로(Fast Breeder Reactor, FBR) 및 가압경수로(Pressurized light Water Reactor, PWR)의 연료로써 국내 외적으로 많은 연구가 진행 중이다.¹⁻⁵⁾ 그러나, PuO_2 는 취급이 용이하지 않기 때문에, PuO_2 를 대신하여 여러 가지 모사 실험 수행에 이용 될 수 있는 재료를 찾게 되었으

며, CeO_2 가 그 역할을 하고 있다. Ce는 Pu와 마찬가지로 +3 또는 +4의 원자자를 가지고 산화물(Oxide)을 형성하며, 이산화 우라늄(UO_2) 내에서 대부분이 치환형 고용체를 형성하는 등 여러 가지 고운 화학적 특성이 유사하다고 알려져 있다.⁶⁻¹¹⁾

두 번째 활용은 핵분열 생성물(Fission product)로서 생성되는 Ce 또는 CeO_2 가 UO_2 기지 내에 존재하면서 핵연료에 미치는 영향을 평가하는 데에 있다. 핵분열 시에는 주기율표에 있는 대부분의 원소가 생성된다고 해도 과언이 아닐 정도로 다양한 원소가 생성된다. 그 중에서도 Ce는 CeO_2 의 형태로 존재하며, 핵분열 생성물 중 높은 비율을 차지하는 원소라고 할 수 있고, 핵연료의 성능, 특히 열물성을 감소시키는 요인으로 작용한다.

핵연료에 있어서 열전도도(Thermal conductivity), 열팽창(Thermal expansion), 비열(Specific heat) 등과 같은 열물성은 핵연료의 성능을 좌우하는 가장 중요한 특성이라 할 수 있으며, 이 중 열팽창은 소결체 형태의 핵연료와 금속 피복관 사이의 간격 유지에 변수로 작용하게 된다. 초기에는 핵연료와 피복관 사이에 일정 간격을 갖도록 핵연료봉을 제조하지만, 원자로 운전 중 핵연료 소결체의 팽창으로 인해 이 간격이 영향을 받아 소결체-피복관 상호작용(Pellet-Cladding Interaction : PCI)을 야기 시킨다. 이것은 원자로 운전 및 핵연료의 건전성을 평가하는 중요

[†]Corresponding author : Dong-Joo Kim

E-mail : djkim@kaeri.re.kr

Tel : +82-42-868-8867 Fax : +82-42-868-8868

한 인자로 꼽을 수 있다.

본 연구에서는 (U,Ce)O₂의 열불성에 대한 연구로서, Ce 함량에 따른 열팽창을 TMA(Thermo-Mechanical Analysis) 방법을 이용하여 측정하고, 그 결과를 통해 열팽창률, 열팽창 계수, 밀도, 격자상수 등의 변화를 계산하였다.

2. 실험 방법

분말처리 및 소결체 제조 공정은 혼합-분쇄-성형-소결의 일반적인 공정을 거쳤다. BNFL(British Nuclear Fuels plc.)사의 IDR-UO₂(Integrated Dry-Route)와 Aldrich사의 CeO₂ (99.9%) 분말을 TurbulaTM mixer를 이용하여 1시간 동안 혼합하고, 고르게 섞일 수 있도록 attrition mill을 이용하여 분쇄를 하였다. 분쇄 과정을 거친 분말을 3 ton/cm²의 압력으로, Zn stearate 윤활제를 die wall lubrication 방식으로 이용하여 성형하였다. 그리고 소결은 1750°C, H₂ 분위기에서 4시간 동안 수행되었는데, 처음엔 5°C/min.으로 승온 시키다가 유탈제 물질을 휘발시키기 위해 800°C에서 1시간 동안 유지하고, 다시 4°C/min.의 승온속도로 1750°C까지 가열하여 4시간 동안 유지하였다.¹²⁾

제조된 소결체는 TGA(Thermo-Gravimetric Apparatus)를 이용하여 Ce 함량에 의해 감소하였을 수 있는 O/M 비를 측정하였으나, 1.99~2.00 이내의 near-stoichiometry 상태를 유지하고 있어, 본 실험에서는 O/M 비에 의한 영향을 배제 할 수 있다는 것을 확인하였다. 또한 X-선 회절분석(XRD)을 통해 소결체에서의 Ce 고용 여부를 확인하고, 격자상수, 이론밀도 등을 계산하였다. XRD 측정은 Cu-Kα target을 이용하여 2θ = 10~120°의 범위에서 step-scanning 방법(counting time = 5초, step width = 0.05°)으로 수행하였다. 또한 열팽창 측정은 각 소결체에 대하여 계산된 이론밀도에 대한 소결밀도(수침법에 의해 측정)의 상대치를 비교하여, Ce 함량에 따른 기공률 차이가 적은 시편을 선택하여 사용하였다(Table 1).

TMA(SETARAM, TMA92)를 이용하여 flowing Ar 분위기에서 상온에서 1400°C까지, 그리고 ASTM 권장 측정 방법¹³⁾에 따라 5°C/min.의 승온 속도로 가열하여 열팽창을 측정하였다. TMA의 시편 holder와 probe는 알루미나 재질을 사용하였으며, 측정된 변형을 보정하기 위한 표준

시료도 마찬가지로 알루미나 시편을 이용하였다. 또한, 측정된 열팽창 및 계산된 열팽창계수 등의 결과는 MATPRO²¹⁾의 UO₂ 데이터와 비교함으로써, 측정값 및 장치의 신뢰성을 확인하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1. XRD Peak Pattern 관찰 및 해석

(U,Ce)O₂ 소결체에 대하여 XRD를 이용하여 Ce 함량에 따른 peak pattern(Fig. 1)을 확인하였다. 형석 구조(fluorite structure)를 갖는 UO₂와 CeO₂ 반응은 대부분의 Ce가 UO₂ 기지 내에서 치환형 고용체를 형성한다고 일반적으로 알려져 있는 바와 같이,¹⁵⁾ 본 연구의 XRD 결과에서도 peak의 전체적인 pattern은 그대로 유지되면서, peak의 위치만 약간씩 UO₂에서 CeO₂의 main peak 쪽으로 이동하는 경향

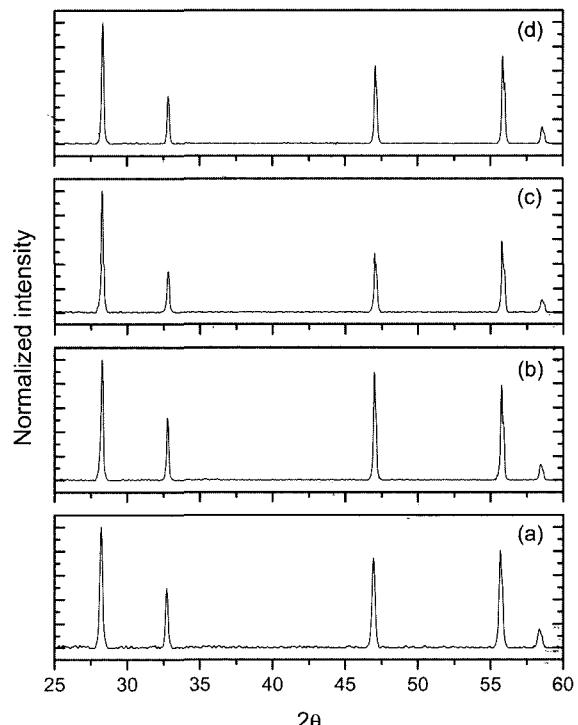


Fig. 1. XRD patterns of the (U_{1-y}Ce_y)O₂ samples with the Ce contents : (a) y=0, (b) 7.63, (c) 14.84, and (d) 21.68 mol%.

Table 1. Sample Compositions and Porosities, the Measured Lattice Parameters, and the Calculated Theoretical Densities of (U_{1-y}Ce_y)O₂ Used for This Experiment

CeO ₂ content		Porosity (%)	Lattice parameter (nm)		Theoretical density (g/cm ³)
wt%	mol%		Measured	Calculated	
0	0	2.613	0.54698	0.54695	10.960
5	7.63	2.009	0.54653	0.54651	10.683
10	14.84	2.136	0.54607	0.54610	10.419
15	21.68	2.826	0.54577	0.54570	10.168

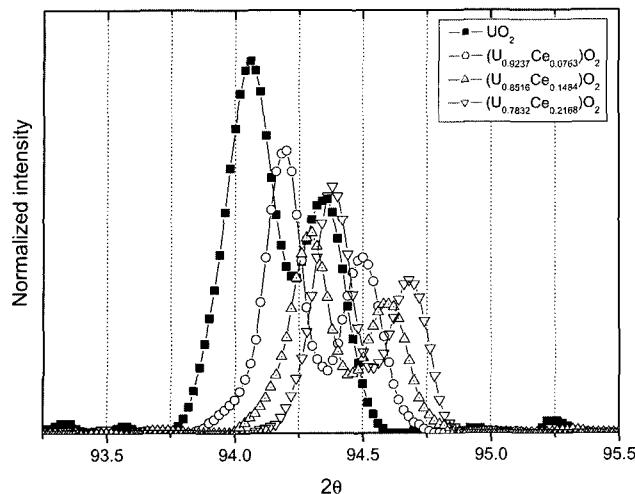


Fig. 2. Extended view of the XRD patterns for UO_2 and $(\text{U},\text{Ce})\text{O}_2$ (near 90 deg.).

을 보였다. 즉, 가장 높은 count intensity를 나타내는 (111)면의 경우, 2θ 값이 UO_2 와 CeO_2 가 각각 28.28° 과 28.55° 을 가지므로, Ce 함량이 증가 할수록 점점 2θ 값이 증가하는 방향($28.28^\circ \rightarrow 28.55^\circ$)으로 peak가 이동하는 경향만 보일 뿐, 이외의 Ce 혹은 CeO_2 를 나타내는 peak는 전혀 관찰되지 않아, 결국 Ce는 UO_2 내에 대부분 고용되었음을 확인하였다. Fig. 2에서는 고각에서 나타나는 (511)면을 서로 비교하여, Ce 함량에 따라 peak가 이동하는 경향을 좀 더 확대하여 확인하였다.

또한 Table 1에 나타낸 바와 같이, XRD peak 결과를 이용하여 Ce 함량에 따른 격자상수(Lattice parameter) 변화를 계산하였으며, 이를 통해 이론 밀도(Theoretical density)를 구하였다. 격자상수 계산은 XRD에 내장된 XPRESS™ 프로그램(X-ray powder research software)을, 그리고 계산 방법 중 Nelson-Riley 방식을 이용하였다. 측정된 격자상수는 Ce 함량 증가에 따라 선형적으로 감소함을 보였는데, 이는 Fig. 3에서 보는 바와 같이 기존 결과^{8,16,17)}와 잘 맞고 있다. 격자상수의 선형적 감소는 앞서 언급한 바와 같이 본 실험에 사용된 함량 범위(0~21.68 mol%)에서는 시료의 O/M비가 near-stoichiometric 상태라는 것을 다시 한 번 보여주는 증거라고 할 수 있다. 측정된 결과를 이용하여, 다음과 같은 격자상수와 Ce 함량 간의 관계식을 식 (1)과 같이 도출하였다. 여기서 격자상수 (a)와 Ce 함량 (Ce)은 각각 nm와 mol% 단위로 나타내었다.

$$a = 0.54695 - 0.00582 \times \left(\frac{Ce}{U+Ce} \right) \quad (0 \leq Ce \leq 21.68 \text{ mol\%}) \quad (1)$$

그리고, 격자상수를 대입하여 다음과 같이 단위격자의 부피 (식 (2))와 질량 (식 (3))을 계산하여 이론밀도를 구

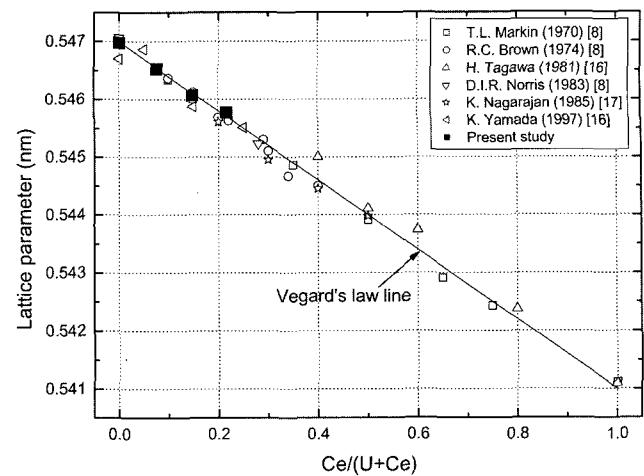


Fig. 3. The measured lattice parameters and literature data of $(\text{U},\text{Ce})\text{O}_2$ as a function of the Ce contents.

하였다.

$$V = (a \times 10^{-7})^3, \quad (2)$$

$$m = \left[\left[(4m_U + 8m_O) \times \frac{M_{\text{UO}_2}}{100} \right] + \left[(4m_{Ce} + 8m_O) \times \frac{M_{\text{CeO}_2}}{100} \right] \right] / N_A \quad (3)$$

여기서 m_U , m_O , m_{Ce} 는 U, O, Ce의 질량으로 각각 238.029, 15.994, 140.12의 값을 사용하였다. 또한 M_{UO_2} , M_{CeO_2} 는 UO_2 , CeO_2 의 몰분율 (mol%)을 나타내며, N_A 는 아보가드로 수(6.023×10^{23})이다. 그 결과는 Table 1과 같으며, Ce 함량 증가에 따라 이론밀도는 선형적으로 감소함(Fig. 4)을 알 수 있다. 즉, 격자상수의 감소에도 불구하고, Ce와 U의 큰 질량 차이로 인해 밀도가 크게 감소함을 확인하였다.

3.2. 선형 열팽창 측정 및 열팽창 계수 계산

TMA를 이용하여, Ce 함량을 변수로 $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ 소결체의 온도에 따른 길이 변화를 측정하였다. Fig. 5는 길이 변화를 $\Delta L/L_{298}$ 로 환산하여, % 단위로 나타낸 선형 열팽창률이다. 재료의 일반적인 열팽창 경향¹⁸⁻²⁰⁾과 마찬가지로, 상대적으로 낮은 밀도($\text{UO}_2 = 10.96 \text{ g/cm}^3$, $\text{CeO}_2 = 7.65 \text{ g/cm}^3$)와 높은 점($\text{UO}_2 = 2827^\circ\text{C}$, $\text{CeO}_2 = 2400^\circ\text{C}$)을 갖는 CeO_2 의 첨가로 인해, Ce 함량 증가에 따라 비례적으로 증가하였으며, UO_2 결과의 경우는 MATPRO²¹⁾ 값과 잘 일치함을 보였다.

Ce 함량을 7.63, 14.84, 21.68 mol%으로 각각 변화시켜 측정한 $(\text{U}_{1-y}\text{Ce}_y)\text{O}_2$ 의 열팽창률(LEX, %)을 cubic polynomial approximation으로 fitting하여 다음과 같이 수식 (4)~(7)으로 표현하였다.

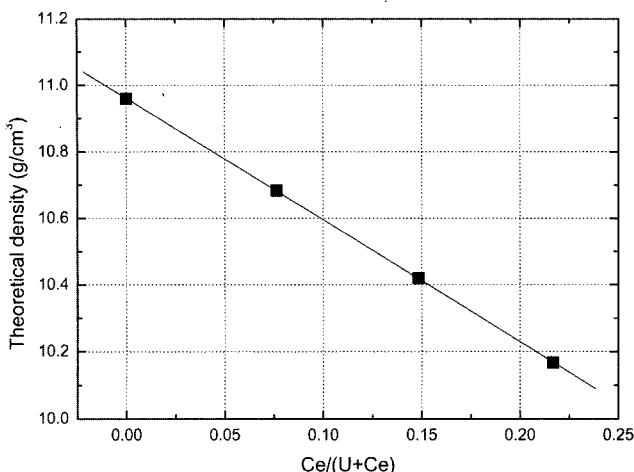


Fig. 4. The calculated theoretical densities of (U,Ce)O₂ as a function of the Ce contents.

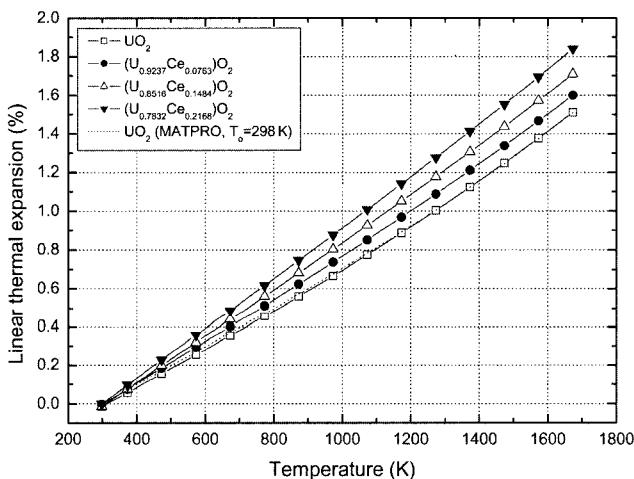


Fig. 5. Measured linear thermal expansion using TMA method for (U_{1-y}Ce_y)O₂ as a function of Ce contents.

$$\text{LEX}[y = 0] = (-0.3045) + (9.78139 \times 10^{-4})T + (-4.25143 \times 10^{-8})T^2 + (6.3739 \times 10^{-11})T^3 \quad (4)$$

$$\text{LEX}[y = 0.0763] = (-0.32599) + (1.09 \times 10^{-3})T + (-4.62482 \times 10^{-8})T^2 + (4.94623 \times 10^{-11})T^3 \quad (5)$$

$$\text{LEX}[y = 0.1484] = (-0.38396) + (1.27 \times 10^{-3})T + (-1.07077 \times 10^{-7})T^2 + (5.7298 \times 10^{-11})T^3 \quad (6)$$

$$\text{LEX}[y = 0.2168] = (-0.39764) + (1.36 \times 10^{-3})T + (-1.04597 \times 10^{-7})T^2 + (5.43329 \times 10^{-11})T^3 \quad (7)$$

여기서 온도(T)는 절대온도이며, 25°C(298 K)를 T₀으로 하였다.

측정된 열팽창을 다음 식²¹⁾ (8)로 계산하여, 순간열팽창계수(Instantaneous coefficient of thermal expansion)와 평균열팽창계수(Mean coefficient of thermal expansion)를 구하였다.

$$\alpha_p(l) = \frac{1}{L_{298}} \left(\frac{dL}{dT} \right)_p \quad (8)$$

Ce 함량 및 온도에 따른 순간열팽창계수는 다음과 같이 cubic polynomial로 표현하였다.

$$\alpha_p[y = 0] = (9.78135 \times 10^{-6}) + (-8.50142 \times 10^{-10})T + (1.91202 \times 10^{-12})T^2 + (4.34913 \times 10^{-20})T^3 \quad (9)$$

$$\alpha_p[y = 0.0763] = (1.08998 \times 10^{-5}) + (-9.24315 \times 10^{-10})T + (1.48315 \times 10^{-12})T^2 + (2.38712 \times 10^{-19})T^3 \quad (10)$$

$$\alpha_p[y = 0.1484] = (1.27 \times 10^{-5}) + (-2.14159 \times 10^{-9})T + (1.71896 \times 10^{-12})T^2 + (2.44813 \times 10^{-22})T^3 \quad (11)$$

$$\alpha_p[y = 0.2168] = (1.36001 \times 10^{-5}) + (-2.09218 \times 10^{-9})T + (1.6302 \times 10^{-12})T^2 + (-5.88593 \times 10^{-20})T^3 \quad (12)$$

그리고 Fig. 6에 나타낸 바와 같이, 평균열팽창계수는 상온에서부터 1000, 1400°C 범위에서 각각 계산하여 비교하였다. UO₂의 경우 1000°C에서 10.290 × 10⁻⁶ /K을 나타내었으며, (U_{1-y}Ce_y)O₂의 경우는 Ce 함량에 따라 11.165 × 10⁻⁶, 12.076 × 10⁻⁶, 13.089 × 10⁻⁶ /K 등 비례적으로 증가하는 경향을 보였다.

측정된 소결체 길이 변화($\Delta L/L_{298}$)를, 아래의 선형열팽창과 밀도 간의 관계식 (13)에 대입하여, Ce 함량 및 온도에 따른 밀도 식을 도출하였다.

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_0} = \frac{1 - (1 + \Delta L/L_o)^3}{(1 + \Delta L/L_o)^3} \quad (13)$$

$$\rho(T)[y = 0] = (11.05016) + (-3.22632 \times 10^{-4})T + (1.57821 \times 10^{-8})T^2 + (-1.84646 \times 10^{-11})T^3 \quad (14)$$

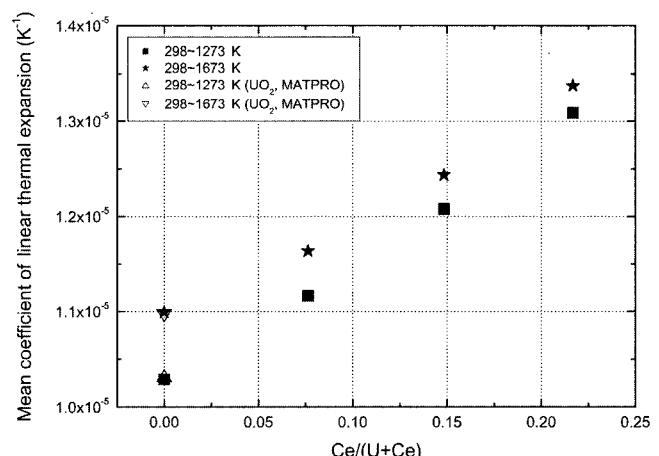


Fig. 6. Mean coefficient of linear thermal expansion of (U_{1-y}Ce_y)O₂ as a function of Ce contents at 1000 and 1400°C. These results were in good agreement with the reference data.

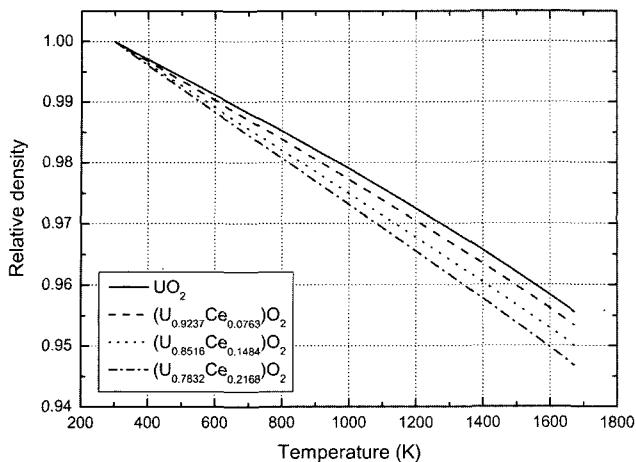


Fig. 7. Relative density variation with temperature of $(U_{1-y}Ce_y)O_2$ as a function of Ce contents.

$$\rho(T)[y = 0.0763] = (10.78779) + (-3.51866 \times 10^{-4})T + (1.89979 \times 10^{-8})T^2 + (-1.41041 \times 10^{-11})T^3 \quad (15)$$

$$\rho(T)[y = 0.1484] = (10.53949) + (-4.00595 \times 10^{-4})T + (3.95914 \times 10^{-8})T^2 + (-1.6587 \times 10^{-11})T^3 \quad (16)$$

$$\rho(T)[y = 0.2168] = (10.28983) + (-4.19046 \times 10^{-4})T + (3.93252 \times 10^{-8})T^2 + (-1.53539 \times 10^{-11})T^3 \quad (17)$$

Fig. 7은 Ce 함량에 따른 비교를 용이하게 하기 위하여, 상온에서의 밀도를 1로 하는 상대밀도로 나타내었다. 이 때, 상온에서의 밀도는 XRD를 이용하여 측정한 이론밀도를 반영하였다. 그 결과, 온도 증가에 따라 생기는 밀도 감소량이, Ce 함량이 높을수록 비례적으로 커짐을 확인하였다.

4. 결 론

UO_2 및 $(U_{1-y}Ce_y)O_2$ 소결체의 선형열팽창을 TMA(Thermo-Mechanical Analysis) 방법을 이용하여 상온~ 1400°C 온도 범위에서 Ce 함량을 변수로 하여 측정하고, 이를 이용하여 열팽창률, 열팽창 계수, 밀도 변화 등을 계산하고 그 변화를 관찰하였다. 계산된 결과는 각각 3차 다항식 형태의 Ce 함량 및 온도에 따른 관계식으로 계산하고 제시하였다.

특히, 평균열팽창계수는 1000°C 에서 UO_2 의 경우 $10.290 \times 10^{-6} / \text{K}$ 을 나타내었으며, $(U_{1-y}Ce_y)O_2$ 의 경우는 Ce 함량에 따라 11.165×10^{-6} , 12.076×10^{-6} , $13.089 \times 10^{-6} / \text{K}$ 등 비례적으로 증가하는 경향을 보였다.

감사의 글

본 연구는 과학기술부 및 한국과학기술기획평가원의 지원을 받아 2005년도 원자력연구개발사업을 통해 수행되었음.

REFERENCES

- W. Stach, "Advanced Mixed Oxide Fuel Assemblies with Higher Plutonium Content for Light Water Reactors," IAEA-SM-358, International Symposium on MOX Fuel Cycle Technologies for Medium and Long-Term Deployment, Vienna (Austria) 17-21 May (1999).
- E. Zimmer, C. Ganguly, J. Borchardt, and H. Langen, "SGMP - an Advanced Method for Fabrication of UO_2 and MOX Fuel Pellets," *J. Nucl. Mater.*, **152** [2-3] 169-77 (1988).
- R. Guldner and H. Schmidt, "Optimization of Process Parameters for the Sintering of MOX Fuel," *J. Nucl. Mater.*, **178** [2-3] 152-57 (1991).
- G. S. Chang and J. M. Ryskamp, "Depletion Analysis of Mixed-Oxide Fuel Pins in Light Water Reactors and the Test Reactor," *Nucl. Tech.*, **129** [3] 326-37 (2000).
- E. J. Lahoda, "Costs for Manufacturing Thorium-Uranium Dioxide Fuels for Light Water Reactors," *Nucl. Tech.*, **147** [1] 102-12 (2004).
- Y. W. Lee, et al., "Development of Fabrication Technology for Advanced Nuclear Fuel for the Future," *Korea Atomic Energy Research Institute*, KAERI/RR-1371/93 (1993).
- R. E. Woodley, "Oxygen Potentials of Plutonia and Urania-plutonia Solid Solutions," *J. Nucl. Mater.*, **96** [1-2] 5-14 (1981).
- D. I. R. Norris and P. Kay, "Oxygen Potential and Lattice Parameter Measurements in $(U, Ce)O_{2-x}$," *J. Nucl. Mater.*, **116** [2-3] 184-94 (1983).
- H. P. Nawada, et al., "Oxidation and Phase Behaviour Studies of the U-Ce-O System," *J. Nucl. Mater.*, **139** [1] 19-26 (1986).
- M. Beauvy, "Nonideality of the Solid Solution in $(U, Pu)O_2$ Nuclear Fuels," *J. Nucl. Mater.*, **188** 232-38 (1992).
- O. T. Sørensen, "Thermodynamic Studies of the Phase Relationships of Nonstoichiometric Cerium Oxides at Higher Temperatures," *J. Solid State Chem.*, **18** [3] 217-33 (1976).
- D. J. Kim, S. H. Na, Y. K. Kim, Y. W. Lee, and Y. S. Kim, "Effect of the UO_2 Powder Characteristic Changes by Dynamic Milling on the Density(in Korean)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **41** [8] 588-92 (2004).
- ASTM Designation, "Standard Test Method for Linear Thermal Expansion of Solid Materials by Thermomechanical Analysis," E831-03.
- J. Belle, "Uranium Dioxide : Properties and Nuclear Applications," Naval Reactors, Division of Reactor Development, United States Atomic Energy Commission, 1961.
- T. Fujino, "Thermodynamics of Fluorite Type Solid Solutions Containing Plutonium, Lanthanide Elements or Alkaline Earth Metals in Uranium Dioxide Host Lattices," *J. Nucl. Mater.*, **154** 14-24 (1988).
- K. Yamada, S. Yamanaka, T. Nakagawa, M. Uno, and M. Katsura, "Study of the Thermodynamic Properties of $(U, Ce)O_2$," *J. Nucl. Mater.*, **247** 289-92 (1997).
- K. Nagarajan, et al., "Oxygen Potential Studies on Hypostoichiometric Uranium-Cerium Mixed Oxide," *J. Nucl. Mater.*, **130** 242-49 (1985).

18. C. K. Lee, B. H. Lee, and S. K. Chun, "Study on Thermal Expansion of SiO₂-Al₂O₃ System(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **17** [3] 141-44 (1980).
19. T. K. Kang and K. L. Weisskopf, "Thermal Expansion Behavior of Cordierite-SiC Whisker Ceramic Composites(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **24** [5] 411-16 (1987).
20. B. S. Kim, D. Y. Lee, H. K. Kim, and J. W. Jang, "The Decision on the Thermal Expansion Coefficient of the Glass Infiltrated in all Ceramic Crown(*in Korean*)," *J. Kor. Ceram. Soc.*, **40** [1] 93-7 (2003).
21. J. K. Fink, Thermal Expansion of Solid Uranium Dioxide, <http://www.insc.anl.gov/matprop/>, MATPRO (1999).