

## Effect of $U_3O_8$ -seed on the grain growth of uranium dioxide

Young Woo Rhee<sup>†</sup>, Dong Joo Kim and Keon Sik Kim

Advanced LWR Fuel Development Team, Korea Atomic Energy Research Institute, Daejeon 305-353, Korea

(Received March 20, 2007)

(Accepted March 30, 2007)

**Abstract** Densification and grain growth have been investigated in 5 wt%  $U_3O_8$  seeded  $UO_2$  and compared with those of the common  $UO_2$  pellet.  $UO_2$  compacts and  $U_3O_8$  seeded  $UO_2$  compacts were sintered at 1300~1700°C for 0 h to 4 h. Density and grain size of the sintered pellets were measured by the water immersion method and the image analyzer, respectively. The seeded pellet has a slightly lower density during the intermediate sintering stage. However, the difference of density between two pellets decreases to about 0.5 %TD with increasing temperature. The grain size of the two pellets is similar until 1600°C but that of the seeded pellet rapidly increases with increasing the sintering temperature.

**Key words** Nuclear fuel, Uranium dioxide, Grain growth, Seed

## $U_3O_8$ 종자가 $UO_2$ 핵연료 소결체의 입자성장에 미치는 영향

이영우<sup>†</sup>, 김동주, 김건식

한국원자력연구원, 경수로연료개발부, 대전, 305-353

(2007년 3월 20일 접수)

(2007년 3월 30일 심사완료)

**요약**  $UO_2$  소결체와  $U_3O_8$  종자를 5 wt% 첨가한  $UO_2$  소결체의 치밀화 과정 및 입자성장 양상을 소결 온도 및 시간을 변수로 하여 분석하였다.  $UO_2$  성형체와 5 wt%  $U_3O_8$  종자 첨가 성형체를 수소분위기에서 1300°C에서 1700°C로 온도를 올려가며 0시간에서 4시간 소결하여 밀도와 입자크기를 측정하였다. 1300°C까지는 종자 첨가에 상관없이 거의 같은 밀도를 가졌지만 온도가 올라가면서 종자 첨가 소결체의 치밀화가 저하되었다가 1700°C 근처에서 거의 비슷한 밀도를 가지게 된다. 입자성장의 경우, 1600°C에서는 종자 입자를 제외하면 기지상의 입자 크기는 거의 비슷하지만 1700°C 이후에서는 종자 첨가  $UO_2$  소결체의 입자성장이 종자가 첨가되지 않을 경우에 비하여 2배 이상 빠르게 진행되었다.

### 1. 서론

고연소도 핵연료의 개발은 원자력 발전의 경제성 증대에 있어서 필수적 요소 중 하나이다. 고연소도 핵연료에서 반드시 해결되어야 할 기술적 문제점은 핵연료-피복관의 상호작용(PCI; Pellet Clad Interaction)과 핵분열 기체 방출의 증대로 인한 봉내압 증가에 의한 핵연료봉 파손 가능성으로 알려져 있다. 핵연료가 원자로 내에서 조사되면 핵분열 반응에서 발생하는 열에 의한 치밀화와 핵분열생성물의 축적에 의한 팽윤(swelling)이 동시에 일어난다. 연소 초기에는 치밀화가 우세하지만 핵연료의 연소도가 증가할수록 핵분열 생성물 양이 많아져 팽윤

현상이 우세하게 됨에 따라 핵연료 부피가 증가하게 된다. 핵연료가 팽창하여 피복관에 응력이 가해지면 피복관은 상당한 변형을 일으킬 수 있다. 이러한 핵연료-피복관의 상호작용(PCI)은 핵연료봉의 노내 건전성에 있어서 제한 요소로 작용한다.

핵분열 생성물은 Mo, Nd, Ru 등의 고상과 Xe, Kr 등의 기체상이 생성되는 것으로 알려져 있다.  $UO_2$  입자 내에서 생성된 Xe, Kr 등의 핵분열 생성 기체는 입계로 확산하고 입계에서 원자수가 일정 수준으로 누적되면 기포(bubble)를 형성한다. 핵분열 생성 기체가 계속 누적되면 기포가 커지고 서로 연결되어 채널을 형성하고 핵분열 생성 기체는 입계를 따라서 빠르게 이동하여 핵연료 소결체 외부로 방출된다[1]. 핵분열 기체 방출의 율속 단계는 핵분열 기체가 연료 입자의 내부에서 입계까지 확산하는 과정이다. 따라서 입자 크기를 크게 하면 핵분열 기체가 입계까지 확산하는데 걸리는 시간이 증가하며

<sup>†</sup>Corresponding author  
Tel: +82-42-868-2815  
Fax: +82-42-861-7340  
E-mail: youngwoo@kaeri.re.kr

로 핵분열 기체 방출을 억제할 수 있다. Turnbull[2] 등은 실험을 통하여 이 가설을 확인하였고 이후 입자성장을 통해서 핵분열 기체 방출을 억제하는 연구가 활발하게 진행되고 있다.

소결체의 입자 크기를 증가시키기 위한 가장 기본적인 방법은 소결온도를 높이거나 소결시간을 늘리는 것이다. 하지만, 실제로 이런 방법을 적용했을 때, 20  $\mu\text{m}$  정도의 입자 크기를 얻으려면 1700°C에서는 40시간 이상 소결해야만 한다 [3].  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  등의 첨가제를 이용하여 격자결함 농도를 증가시키거나 소결 분위기의 산소분압을 높여서 우라늄 이온의 확산을 빠르게 하여 입자성장을 촉진시키려는 연구 또한 많이 진행되었다[4-10]. 또 다른 입자성장 촉진 방법으로는  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자를 첨가함으로써  $\text{UO}_2$  입자의 성장 속도를 증가시키는 방법이 보고되었다[11, 12]. 이 방법은 새로운 성분의 첨가제를 넣어 입자성장을 일으킨 것이 아니므로 노내성능 검사에 대한 부담을 줄일 수 있으므로 실용화에 가장 근접한 것으로 평가되고 있다.

$\text{UO}_2$ 에  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자를 첨가하여 입자크기가 큰  $\text{UO}_2$  소결체를 얻는 제조 공정은 확립되어 있지만  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자의 입자성장 촉진 기구는 아직 완전히 규명되지 않았다. 일반적인 핵연료  $\text{UO}_2$  소결은 수소 기체 분위기에서 이루어지므로  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자는 승온 도중에  $\text{UO}_2$ 로 환원된다. 따라서, 큰 입자가 작은 기지상 내에 존재하여 입자성장의 구동력인 입자간 곡률 차이를 크게 하여 빠른 입자성장을 일으키는 것으로 예상하고 있지만, 실제 입자성장 양상에 따른 실험적 입증과  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자의 입자성장에 미치는 영향에 대한 이해가 필요하다. 따라서 본 연구에서는 일반  $\text{UO}_2$  소결체와  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자를 첨가한 소결체의 치밀화 과정 및 입자성장 양상을 소결온도 및 시간을 변수로 하여 관찰하였다.

## 2. 실험 방법

상용 핵연료  $\text{UO}_2$  소결체를 400°C에서 4시간 산화시킨  $\text{U}_3\text{O}_8$  분말과 ADU(Ammonium diuranate) 공정으로 제조된  $\text{UO}_2$  분말을 사용하였다.  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자는  $\text{U}_3\text{O}_8$  산화 분말을 1300°C, 공기중에서 4시간 열처리한 후 성형 몰드에 넣고 1.5  $\text{ton/cm}^2$ 로 압력을 가해 분리 제조하였다.  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자를 에탄올에서 초음파로 분산시킨 후 종자량이 5 wt%가 되도록 ADU- $\text{UO}_2$  분말을 넣어 혼합한 후 건조하였다. ADU- $\text{UO}_2$  분말과 5 wt% 종자를 첨가한 분말을 일반적인  $\text{UO}_2$  소결체 제조 공정에 따라 3  $\text{ton/cm}^2$  압력으로 성형하여 수소분위기에서 1300°C에서 1700°C까지 소결 조건을 변화하며 소결하였다. 각각의 온도에서의 소결 상태를 관찰하기 위하여 1700°C 이전에서는

소결 온도에 도달하면 급냉하였고, 1700°C에서는 1시간 혹은 4시간 유지하며 소결의 진행과정을 관찰하고자 하였다. 소결체 밀도는 아르키메데스법으로 측정하였다. 미세조직은 소결체 단면을 1  $\mu\text{m}$ -alumina 단계까지 연마하여 80HNO<sub>3</sub>-20H<sub>2</sub>O 용액으로 30초에서 2분간 에칭한 후 광학현미경과 전자현미경으로 관찰하였다. 소결체의 평균 입자크기는 Image analyzer를 이용하여 각 소결 조건마다 300 입자 이상을 측정하여 구하였다.

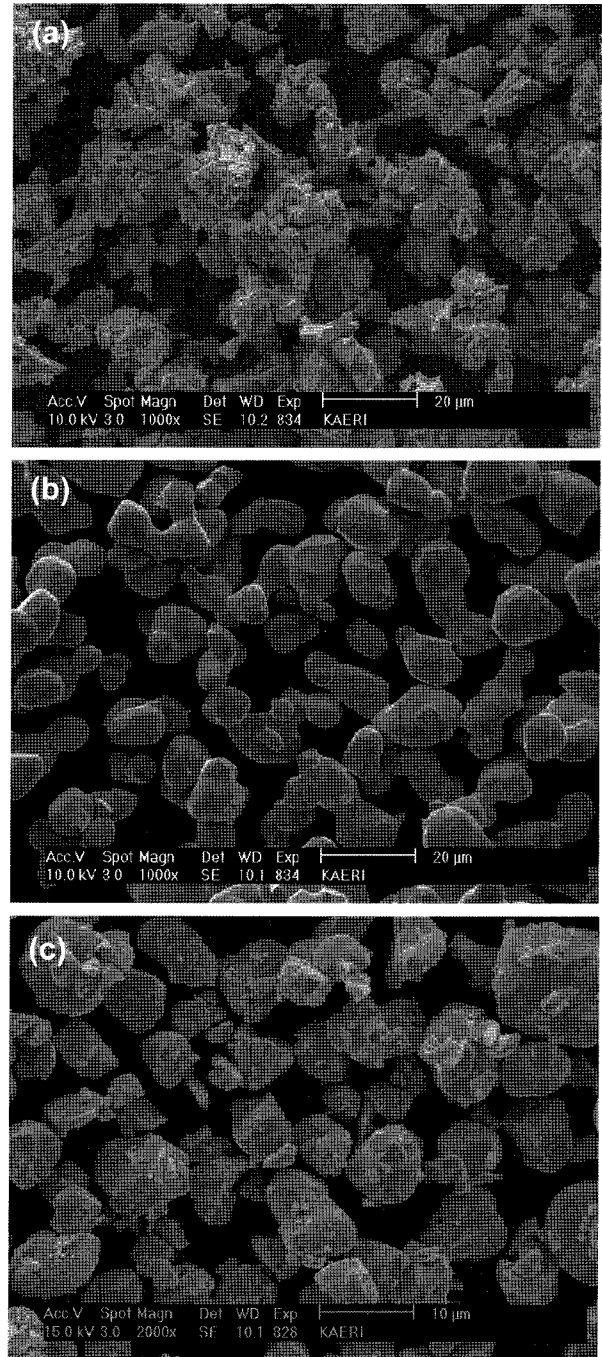


Fig. 1. SEM images of (a) raw  $\text{U}_3\text{O}_8$  powder, (b) as heat-treated  $\text{U}_3\text{O}_8$  seed and (c) separated  $\text{U}_3\text{O}_8$  seed.

### 3. 결과 및 토론

$UO_2$  소결체를  $380\sim 550^\circ C$ , 공기중에서 산화시키면 표면에  $U_3O_8$  층이 형성되고 입계를 따라서 확산한 산소에 의하여 내부 몇몇 층의 입자에까지 입계를 따라  $U_3O_8$  층이 형성된다.  $UO_2$ 가  $U_3O_8$ 으로 산화하면 몰 부피가 약 36% 증가하므로 그 응력으로 인하여 소결체에서는 표면에서부터 입자 단위로 소결체가 떨어져 나온 후 입자 내부로 확산한 산소에 의하여 산화가 일어난 것으로 알려져 있다[13].

Fig. 1(a)는  $400^\circ C$ 에서 4시간 산화시킨  $U_3O_8$  분말의 SEM 사진으로  $U_3O_8$  입자는 각진 형태로 산화 중에 형성된 많은 균열을 지닌 팽콘 형상을 가지며 그 크기는 초기  $UO_2$  소결체의 입자 크기에 의존한다. Fig. 1(b)는 산화 분말을  $1300^\circ C$ , 공기중에서 4시간 열처리한  $U_3O_8$  분말의 SEM 사진이다. 입자간 물질이동이 충분히 일어나 팽콘 형상 입자 내부의 균열이 모두 사라지고 3~4 입자가 뭉친 형태의  $U_3O_8$  종자 덩어리가 형성된 것을 볼 수 있다. 이러한 형태의 분리하지 않은  $U_3O_8$  종자 덩어리를 사용하여 핵연료 소결체를 제조하면 U자형 내부 등에 존재하는 공극으로 인하여 밀도가 매우 낮아질 가능성이 높고 입자 성장에 필요한 충분한 사이트 수를 제공할 수 없다.  $U_3O_8$  종자 덩어리를 성형 몰드에 넣고  $1.5\text{ ton/cm}^2$ 로 압력을 가하면 Fig. 1(b)의 종자 입자간의

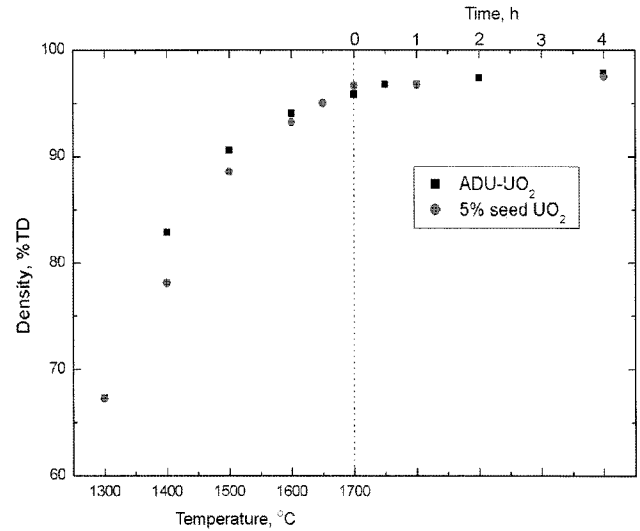


Fig. 2. Variations in relative density for ADU- $UO_2$  and 5 wt% seeded  $UO_2$ .

목(neck) 부분에 응력이 집중되어 부서지면서 종자들이 서로 분리된다. 이와 같은 방법으로 Fig. 1(c)와 같은  $U_3O_8$  종자를 얻을 수 있다. 레이저법으로 측정된 종자의 평균 크기는 약  $6.3\ \mu m$ 이다. 종자의 형상은 다면체 형상이고 균열이 없는 매끈한 표면을 가진 결정으로 분리 중에 발생한 chip과 날카로운 면을 가진 결정들이 혼재되어 있음을 알 수 있다.

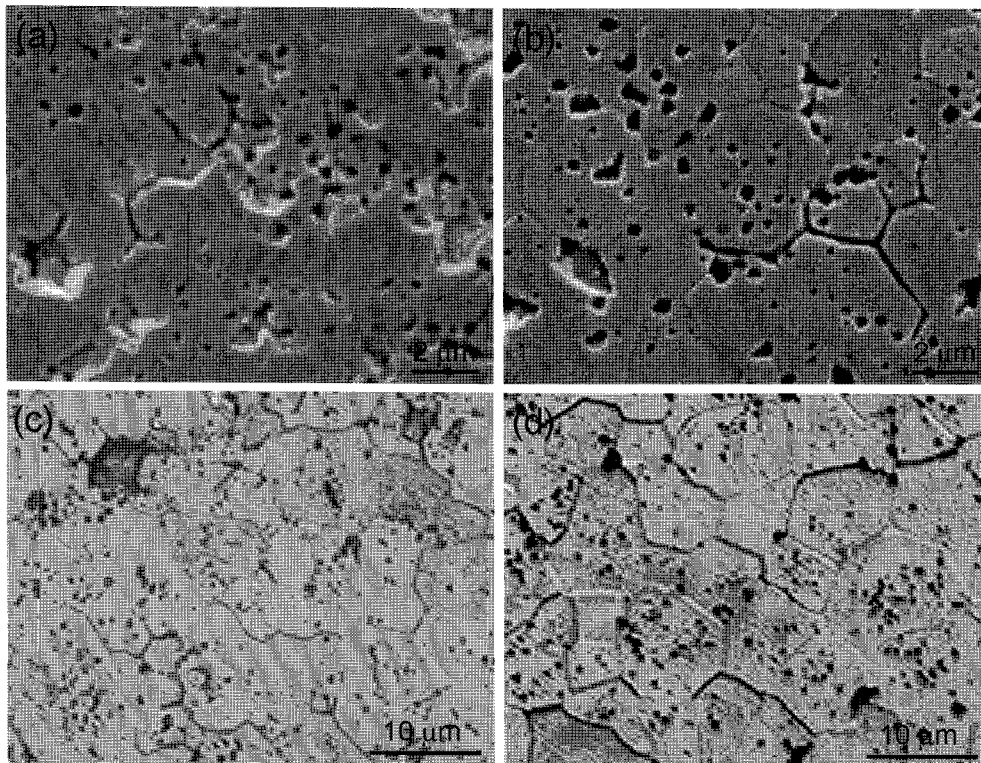


Fig. 3. Microstructures of ADU- $UO_2$  samples sintered at (a)  $1600^\circ C$  for 0 h, (b)  $1700^\circ C$  for 0 h, (c)  $1700^\circ C$  for 1 h and (d)  $1700^\circ C$  for 4 h.

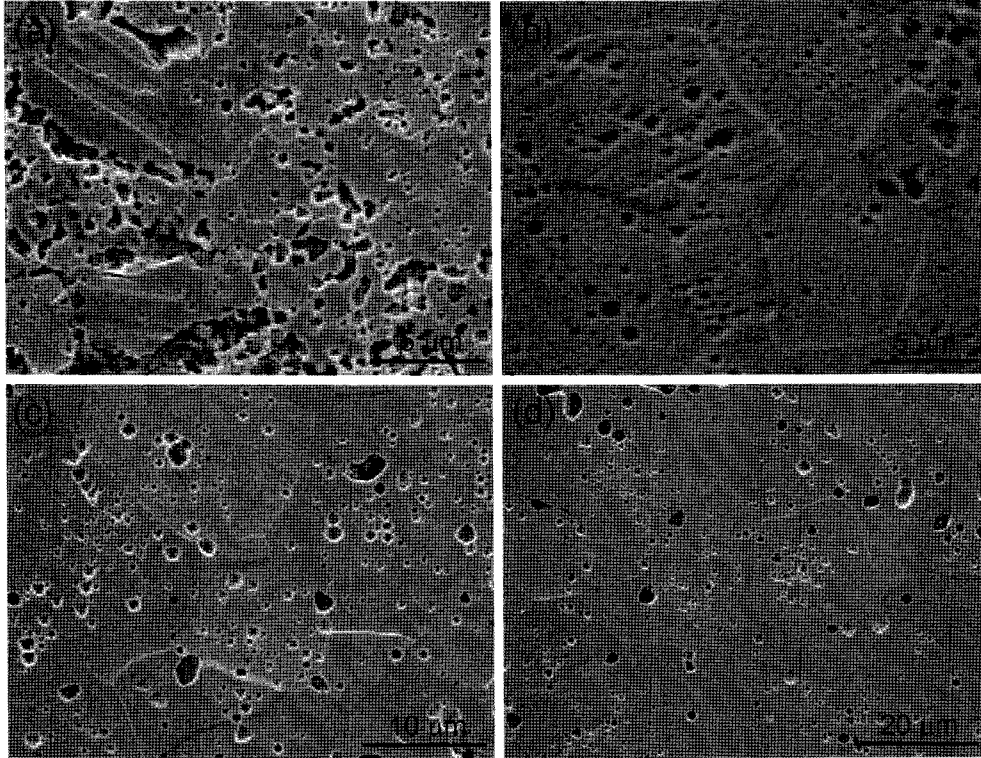


Fig. 4. Microstructures of 5 wt% seeded  $\text{UO}_2$  samples sintered at (a)  $1600^\circ\text{C}$  for 0 h, (b)  $1700^\circ\text{C}$  for 0 h, (c)  $1700^\circ\text{C}$  for 1 h and (d)  $1700^\circ\text{C}$  for 4 h.

소결 온도와 시간에 따른  $\text{UO}_2$  성형체와 종자 첨가 분말 성형체의 소결 밀도를 Fig. 2에 나타내었다. 두 종류 성형체의 성형 밀도는 약 52%TD (Theoretical density)로 거의 비슷하므로 소결 초기 단계인  $1300^\circ\text{C}$ 까지는 종자 첨가 여부에 상관없이 거의 비슷한 약 67%TD의 소결 밀도를 가지는 것으로 보인다. 하지만 소결이 활발히 진행되기 시작하면, 종자 첨가 성형체의 경우 종자와  $\text{UO}_2$  분말사이의 소결성 차이로 인하여 치밀화 속도가 저하된다. 그 차이는  $1400^\circ\text{C}$ 에서의 경우 약 5%TD 정도까지 벌어지고 소결이 진행되면서 줄어들어  $1700^\circ\text{C}$ , 4시간 소결 후에는 0.5%TD 이내로 좁혀지고, 소결 밀도는 두 경우 모두 약 98%TD까지 도달하였다.

Fig. 3은 소결 온도 및 시간에 따른 일반적인  $\text{UO}_2$  소결체의 미세조직 변화로  $1600^\circ\text{C}$ 까지는 sub-micron 크기의 입자가 대부분이지만  $1700^\circ\text{C}$ 가 되면 평균입자크기가  $1.5\ \mu\text{m}$  이상으로 자라고 4시간 소결 후에는 약  $7\ \mu\text{m}$ 까지 성장하였다.  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자를 첨가한 소결체의 경우, Fig. 4에서 보면,  $1600^\circ\text{C}$ 까지는 종자 입자를 제외한 기지상 입자의 경우 sub-micron 크기의 입자가 대부분이다. 특이한 점은 대부분의 종자에서 방향성을 가진 줄무늬가 나타난다는 것이다. 이는  $\text{U}_3\text{O}_8$  종자가 승온 중에 환원되면서 생기는 면결함의 일종으로 생각된다.  $1700^\circ\text{C}$ 가 되면 평균입자크기가  $4.6\ \mu\text{m}$  이상으로 자라고 4시간 소결 후에는 약  $14\ \mu\text{m}$ 까지 빠르게 성장하였다.

Fig. 5(a)는 종자 첨가 성형체를 수소 분위기에서  $1300^\circ\text{C}$ 까지 가열한 후 급냉한 시편의 미세조직으로 미세한 다공성 기지상에 종자 입자가 분포한 것을 확인할 수 있다. 일반적으로 수소 분위기에서 핵연료를 소결하는 경우 약  $600^\circ\text{C}$  이후에는  $\text{UO}_{2+x}$ ,  $\text{U}_3\text{O}_8$  등은 모두  $\text{UO}_2$ 로 환원되는 것으로 알려져 있다 [14]. 따라서 Fig. 5의 종자 입자는 모두 환원되어  $\text{UO}_2$  상으로 존재한다. 하지만 환원된  $\text{UO}_2$  종자에는 많은 면결함과 etch-pit이 존재하는 것을 Fig. 5(b)의 에칭된 종자 사진으로부터 확인할 수 있다. 이들 면결함 간의 간격은 온도가 높아짐에 따라 넓어지고 Fig. 4(a)에서와 같이 소결 온도 부근에서는 sub-grain boundary를 형성하는 것을 볼 수 있다. 종자의 크기에 따라 면결함이 사라지는 온도는 달라지고 종자크기가 큰 경우에는 소결온도까지 사라지지 않기도 한다. 따라서, 입자성장이 급격히 일어나는 영역 부근에서 종자는 2~3개의 큰 입자로 이루어진  $\text{UO}_2$  입자로 존재하는 것으로 생각할 수 있다.

Fig. 6은 소결 온도 및 시간에 따른 평균 입자크기를 나타내는 것으로  $1600^\circ\text{C}$ 에서는 일반적인  $\text{UO}_2$  소결체와 종자 첨가 소결체 모두 sub-micron 크기로 비슷한 입자크기를 가진다. 종자 첨가 소결체의 입자크기가 약간 크게 측정되었지만 이는 기지상보다 10배 이상 큰 종자에 의한 것으로 보이며, Fig. 3과 4에서 보면 기지상 입자 사이에는 크기 차이가 없는 것으로 보인다. 즉,  $1600^\circ\text{C}$

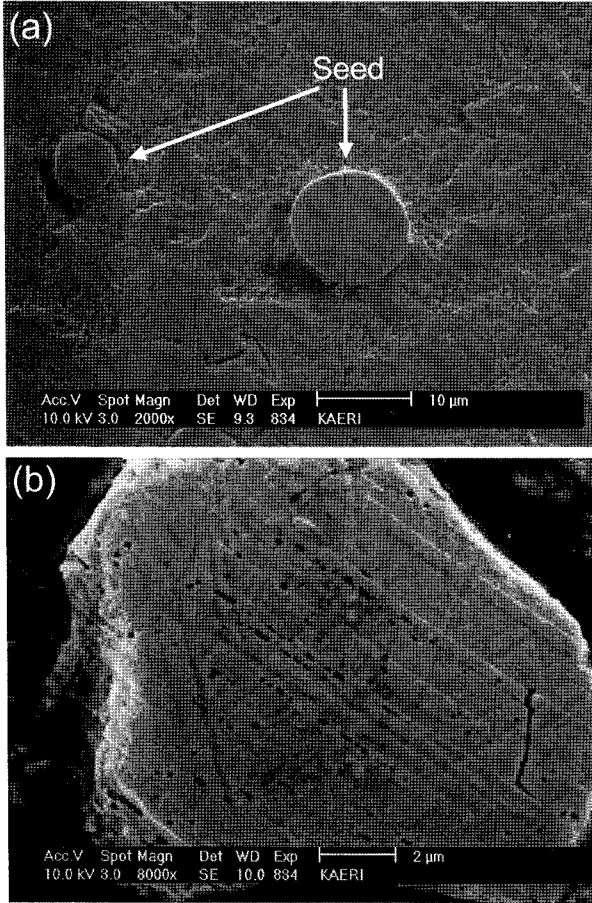


Fig. 5. Microstructures of 5 wt% seeded UO<sub>2</sub> compact heat-treated up to 1300°C; (a) the polished surface of a heat-treated compact and (b) the chemically-etched surface of a seed.

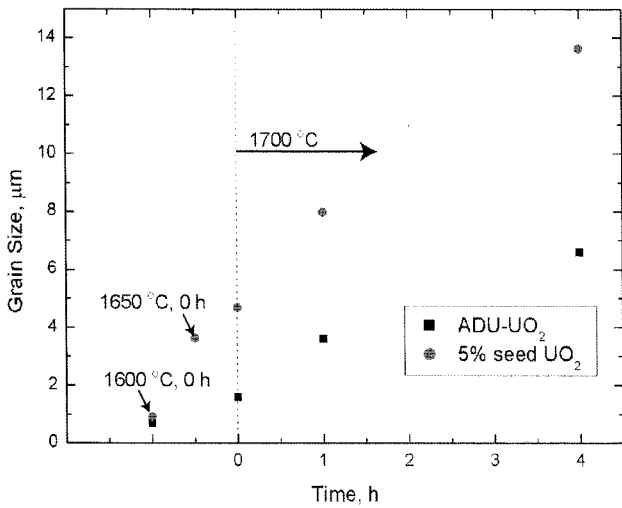


Fig. 6. Variations in average grain size for ADU-UO<sub>2</sub> and 5 wt% seeded UO<sub>2</sub>.

까지는 종자 첨가 여부에 상관없이 동일한 입자성장 양상을 나타내는 것으로 여겨진다. 하지만 1700°C가 되면 입자크기 차이는 매우 크게 벌어진다. 일반적인 UO<sub>2</sub> 소

결체의 1700°C, 0시간 소결 시의 입자크기는 1.6 μm 정도임에 비하여 종자 첨가 UO<sub>2</sub> 소결체의 경우 약 4.5 μm 까지 성장하였다. 특히, 통상적인 UO<sub>2</sub> 소결체 제조 조건인 1700°C, 4시간 소결 후에는 일반 UO<sub>2</sub> 소결체의 경우 입자크기가 약 7 μm 정도인 반면에 종자 첨가 소결체의 경우 약 14 μm까지 입자성장이 일어났다.

일반적으로 다결정체에서의 입자성장은 다음의 식(1)과 같이 표현된다.

$$G^n - G_0^n = kt \tag{1}$$

여기서,  $G$ 와  $G_0$ 는 각각 일정 시간  $t$ 와  $t=0$ 에서의 입자 크기이며  $k$ 는 온도에 관계된 속도 상수이다. 지수  $n$ 은 이상적인 입자 성장에 있어서 이론적으로는 2이지만[15] pore drag[16] 혹은 impurity drag[17] 등이 입자성장에 영향을 미칠 경우에는 3 또는 그 이상의 값을 가진다. 일반적으로 지수  $n$  값을 결정하기 위하여는 log-log plot을 이용한다. 이는  $G \gg G_0$ 인 경우에는  $G_0 \approx 0$ 으로 가정하면 식(1)은  $G^n = kt$ 의 형태가 되므로 log  $G$ 와 log  $t$  그래프의 기울기로부터 지수  $n$  값을 구할 수 있다. 하지만 초기 입자 크기가 너무 크거나 혹은 승온 도중 빠른 입자성장이 일어나면 위의  $G \gg G_0$  가정이 적절하지 못한

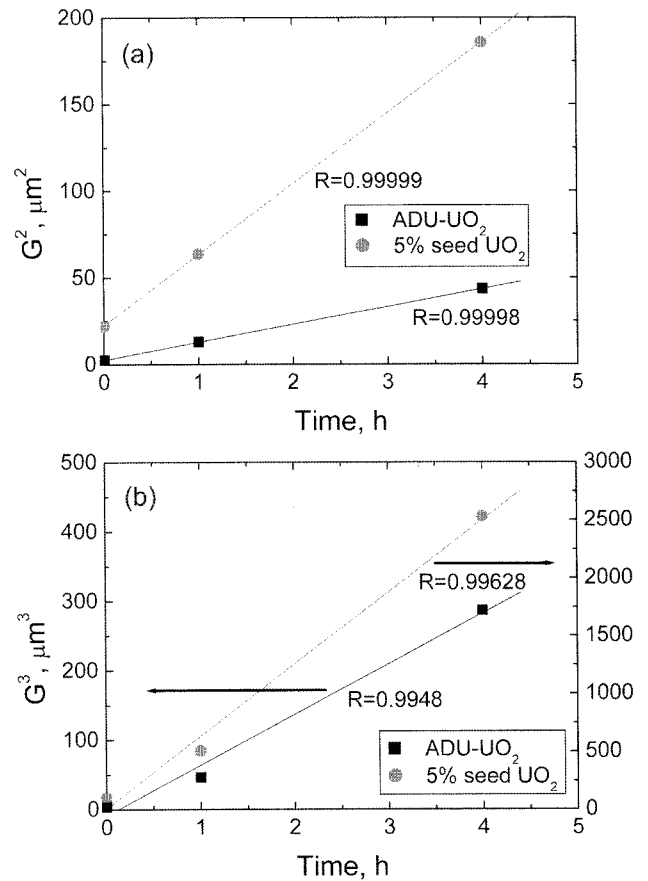


Fig. 7. Plots of  $G^n$  versus  $t$  for ADU-UO<sub>2</sub> and 5 wt% seeded UO<sub>2</sub>; (a)  $n=2$ , (b)  $n=3$ .

경우도 있으므로 log-log plot에서 결정한 지수 값은 적합하지 못한 경우가 많다.

이러한 지수 값을 정확히 결정하기 위하여 Kang[18] 등은 여러가지  $n$  값에 대하여  $G^n - kt$  plot을 한 후 직선에 가까운 것을 지수 값으로 결정하는 방법을 제안하였다. Fig. 7은 1700°C에서 소결한 ADU- $UO_2$  소결체와 5 wt% 종자를 첨가한  $UO_2$  소결체의 등온 입자 성장 결과를 지수 값을 2와 3으로 하여 시간에 대하여 각각 그린 그래프이다. 각각의 그래프에서 직선도는 최소 제곱법으로 선형 적합도를 평가하여 선형 상관 계수(R) 값이 1에 가까운 정도로 판단할 수 있다. Fig. 7에서 볼 수 있듯이 본 논문의 실험 조건 안에서는 지수  $n$ 이 2인 경우에 두 종류의 소결체 모두에서 보다 높은 선형 상관 계수 값을 가지는 것을 알 수 있다. 이는 등온 입자 성장을 시작하는 1700°C까지의 승온 중 두 종류의 소결체 모두 약 이론 밀도의 97% 수준으로 치밀화가 일어나 기공에 의한 입자 성장 방해 혹은 불순물에 의한 입자 성장 방해 효과가 미미하였기 때문으로 생각된다. 지수 값을 2로 결정하면 식 (1)에서  $k$  값은 5 wt% 종자를 첨가한  $UO_2$  소결체의 경우가 약 4배 큰 것으로 계산된다. 즉, 종자를 첨가한 경우의 입자성장 속도가 약 2배 정도 빠른 것으로 보인다.

$U_3O_8$  종자가 첨가되면 입자성장이 촉진되는 이유는 입자 사이의 곡률차이로 지금까지 설명되어 왔다[11, 12]. 즉, 종자를 첨가하지 않은 성형체는  $UO_2$  입자 사이에 치밀화가 일어나고, 그후 입자성장이 일어날 때 기지 내의 입자 크기가 비슷하므로 모든 입자가 균일하게 성장한다. 그러나  $U_3O_8$  종자를 첨가한 경우에는, 첨가된  $U_3O_8$  종자는 하나 또는 두 개의 단결정으로 구성된다. 이러한 입자가 성형체 안에서 일반  $UO_2$  입자에 둘러싸여서 존재할 경우, 소결 초기단계에서는 일반  $UO_2$  입자 사이에 치밀화가 일어나고 소결 중간단계에서 입자성장이 일어날 시점에서는 작은 입자의 기지조직에 단결정  $U_3O_8$  종자가 환원된 큰 크기의 다결정  $UO_2$  입자가 균일하게 분산된 조직을 갖게 된다. 입자성장은 인접한 입자의 곡률 차이, 즉 크기 차이가 클수록 속도가 빨라진다. 따라서 종자에서 형성된 큰 입자가 주위의 작은 입자를 빠르게 포획하면서 입자성장이 일어나게 되고 결국에는 종자에서 비롯하는 큰 입자가 소결체 전체에 균일하게 형성된다는 것이다.

하지만 Fig. 8의 종자 첨가 성형체를 1650°C, 0시간 소결한 시편의 미세조직을 보면 위의 가설에서 조금 벗어난 결과를 확인할 수 있다. 더 빠르게 성장할 것으로 예상하였던 종자입자는 거의 성장하지 못한 반면에 기지 입자들의 크기는 점점 자라고 있는 것을 볼 수 있다. 1700°C가 되면 기지 입자들 중 일부는 종자 입자 크기와 비슷한 크기로 자라게 된다. 따라서 위의 가설 중 종자 입자에서

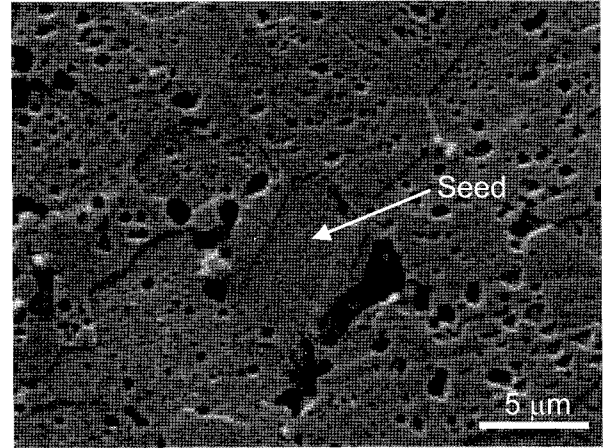


Fig. 8. Microstructures of 5 wt% seeded  $UO_2$  sintered at 1650°C for 0 h.

비롯한 큰 입자가 소결체 전체에 균일하게 형성된다는 부분과는 다른 메커니즘에 의한 입자성장 촉진이 이루어졌을 가능성도 배제할 수는 없을 것으로 여겨진다.

#### 4. 결 론

소결 온도 및 시간에 따른 일반  $UO_2$  소결체와  $U_3O_8$  종자를 5 wt% 첨가한 소결체의 치밀화 과정 및 입자성장 양상을 살펴보았다.  $UO_2$  성형체와 5 wt%  $U_3O_8$  종자 첨가 성형체를 수소분위기에서 1300°C에서 1700°C로 온도를 올려가며 0시간에서 4시간 소결하면 1300°C까지는 종자 첨가에 상관없이 거의 같은 밀도를 가졌지만 온도가 올라가면서 종자 첨가 소결체의 치밀화가 저하되었다가 1700°C 근처에서 거의 비슷한 밀도를 가지게 된다.  $U_3O_8$  종자 5 wt% 첨가 소결체의 입자크기는 1600°C까지는 종자 입자를 제외하면 기지상의 입자 크기는 거의 비슷하지만 1700°C 이후에서는 종자 첨가 소결체의 입자성장이 일반  $UO_2$  소결체에 비하여 2배 이상 빠르게 진행되어 4시간 소결 후에는 2배 정도 큰 입자크기를 얻을 수 있었다.

#### 감사의 글

본 연구는 과학기술부 원자력연구개발 중장기 사업의 지원으로 수행되었음.

#### 참 고 문 헌

- [1] A.H. Booth, "A method of calculating fission gas diffu-

- sion from UO<sub>2</sub> fuel and its application to the X-2-f loop test", Atomic Energy of Canada Limited, AECL-496 (1957).
- [ 2 ] J.A. Turnbull, "The effect of grain size on the swelling and gas release properties of UO<sub>2</sub> during irradiation", J. Nucl. Mater. 50 (1974) 62.
- [ 3 ] K.W. Song, S.H. Kim, B.G. Kim, Y.W. Lee, M.S. Yang and H.S. Park, "Microstructure development during sintering of Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> - doped UO<sub>2</sub> pellets under H<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> atmospheres", J. Kor. Nucl. Soc. 26 (1994) 484.
- [ 4 ] I. Amato, R.L. Colombo and A.P. Balzari, "Grain growth in pure and titania-doped uranium dioxide", J. Nucl. Mater. 18 (1966) 252.
- [ 5 ] J.B. Ainscough, F. Rigby and S.C. Osborn, "The effect of titania on grain growth and densification of sintered UO<sub>2</sub>", J. Nucl. Mater. 52 (1974) 191.
- [ 6 ] H. Matzke, "On uranium self-diffusion in UO<sub>2</sub> and UO<sub>2+x</sub>", J. Nucl. Mater. 30 (1969) 26.
- [ 7 ] H. Assmann, W. Doerr, G. Gradel, G. Maier and M. Peehs, "Doping UO<sub>2</sub> with niobia -- Beneficial or not?", J. Nucl. Mater. 98 (1981) 216.
- [ 8 ] J.B. Ainscough, L.F.A. Raven and P.T. Sawbridge, "Fission gas retentive UO<sub>2</sub> fuels", pp. 53 in Fabrication of Water Reactor Fuel Elements, IAEA-SM-233/16 (1979).
- [ 9 ] K.C. Radford and J.M. Pope, "UO<sub>2</sub> fuel pellet microstructure modification through impurity additions", J. Nucl. Mater. 116 (1983) 305.
- [10] K.W. Lay, "Grain growth in UO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in the presence of a liquid phase", J. Am. Ceram. Soc. 51 (1968) 373.
- [11] K.W. Song, K.S. Kim, K.W. Kang and Y.H. Jung, "Fabrication of large-grained UO<sub>2</sub> pellets by the addition of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> seeds", J. Nucl. Sci. Technol. Supplement 3 (2002) 838.
- [12] K.W. Song, K.S. Kim, K.W. Kang and Y.H. Jung, "Grain size control of UO<sub>2</sub> pellets by adding heat-treated U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> particles to UO<sub>2</sub> powder", J. Nucl. Mater. 317 (2003) 204.
- [13] F. Valdivieso, V. Francon, F. Byasson, M. Pijolat, A. Feugier and V. Peres, "Oxidation behaviour of unirradiated sintered UO<sub>2</sub> pellets and powder at different oxygen partial pressures, above 350°C", J. Nucl. Mater. 354 (2006) 85.
- [14] K.W. Song, K.S. Kim and Y.H. Jung, "Densification behavior of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> powder compacts by dilatometry", J. Nucl. Mater. 279 (2000) 356.
- [15] J.E. Burke and D. Turnbull, "Recrystallization and grain growth", Progress in Metal Physics 3 (1952) 220.
- [16] W.D. Kingery and B. Francois, "Grain growth in porous compacts", J. Am. Ceram. Soc. 48 (1965) 546.
- [17] J.W. Cahn, "The impurity-drag effect in grain boundary motion", Acta Metall. 10 (1962) 789.
- [18] S.J.L. Kang and D.N. Yoon, "Method for analysing the experimental data of ostwald ripening", J. Mater. Sci. Lett. 2 (1983) 291.