

핵연료의 열전도도 특성 연구

-우라늄 산화물 핵연료-

Thermal Conductivity Characteristics of Nuclear Fuel

-Uranium Oxide Fuel-

KAERI
2004. 8.

건설공정핵연료기술개발부
한국원자력연구소

제 출 문

한국원자력연구소장 귀하

본 보고서를 핵연료 열물성 종합 데이터베이스 구축 과제와 관련하여 “핵연료의 열전도도 특성 연구 -우라늄 산화물 핵연료-”의 기술보고서로 제출합니다.

제 목: 핵연료의 열전도도 특성 연구 -우라늄 산화물 핵연료-
Thermal Conductivity Characteristics of Nuclear Fuel
-Uranium Oxide Fuel-

2004년 8월

주저자 : 강권호 (건설공정핵연료기술개발부)

공동저자 : 박창제, 류호진, 송기찬, 박주환, 정인하, 양명승, 문홍수, 김형수 (건설공정핵연료기술개발부)

이영우, 나상호, 김시형 (미래형 원자로 연료 개발부)

요 약 문

UO₂ 핵연료의 열전도 기구와 열전도도에 미치는 변수들에 관해 연구하였으며, UO₂ 핵연료, (U, Pu)O₂ 및 모의 사용후핵연료의 열전도도에 관한 자료들을 종합 분석하여 가장 적합한 모델을 제시하였다.

UO₂ 핵연료의 열전달 기구는 저온에서 포논에 의해 열전달이 이루어지며 이는 온도가 증가할수록 포논의 산개가 증가하여 열전도도는 감소한다. 그러나 고온에서는 polaron에 의한 열전달이 증가하여 열전도도는 증가하는 것으로 나타났다.

UO₂ 핵연료의 열전도도 모델은 포논에 의한 열전달을 나타내는 hyperbolic 항과 polaron에 의한 exponential 항으로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$k = \frac{C_1}{C_2 + C_3 t + C_4 t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)}$$

여기서 $t = T/1000$ 을 나타낸다.

Abstract

Mechanism and variable affecting on the thermal conductivity of UO_2 are studied and published experimental data relating to the thermal conductivity of UO_2 , UO_{2+x} and mixed (U, Pu) oxides are reviewed and recommendation put forward for the thermal conductivity of these materials.

Heat in UO_2 is transferred by phonon and heat transfer rate is decreased with increasing temperature in the low temperature region. However, heat in UO_2 is transferred by polaron and heat transfer rate is increased with increasing temperature in the high temperature region.

The model of the thermal conductivity of UO_2 consists of hyperbolic term by phonon and exponential term by polaron as follow:

$$k = \frac{C_1}{C_2 + C_3t + C_4t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)}$$

where $t = T/1000$.

목 차

요 약 문	i
Abstract	ii
목 차	iii
그림목차	iv
표목차	v
제 1 장 서 론	1
제 2 장 열전도도 개요	2
제 3 장 열전도도 모델	4
제 4 장 산화물 핵연료의 열전도도 제안	10
제 5 장 결 론	15
참고문헌	16
부 록 1 산화물 핵연료의 열전도도 분석 자료	18
부 록 2 산화물 핵연료의 열전도도	21

그림 목차

Fig. 1	Thermal conductivity of UO_2 -----	12
Fig. 2	Thermal conductivity of UO_{2+x} with the temperature -----	13
Fig. 3	Thermal conductivity of UO_{2+x} with the deviation from stoichiometry -----	13
Fig. 4	Thermal conductivities of MOX with deviation from stoichiometry	14
Fig. 5	Thermal conductivities of SIMFUEL with different burnups ----	14

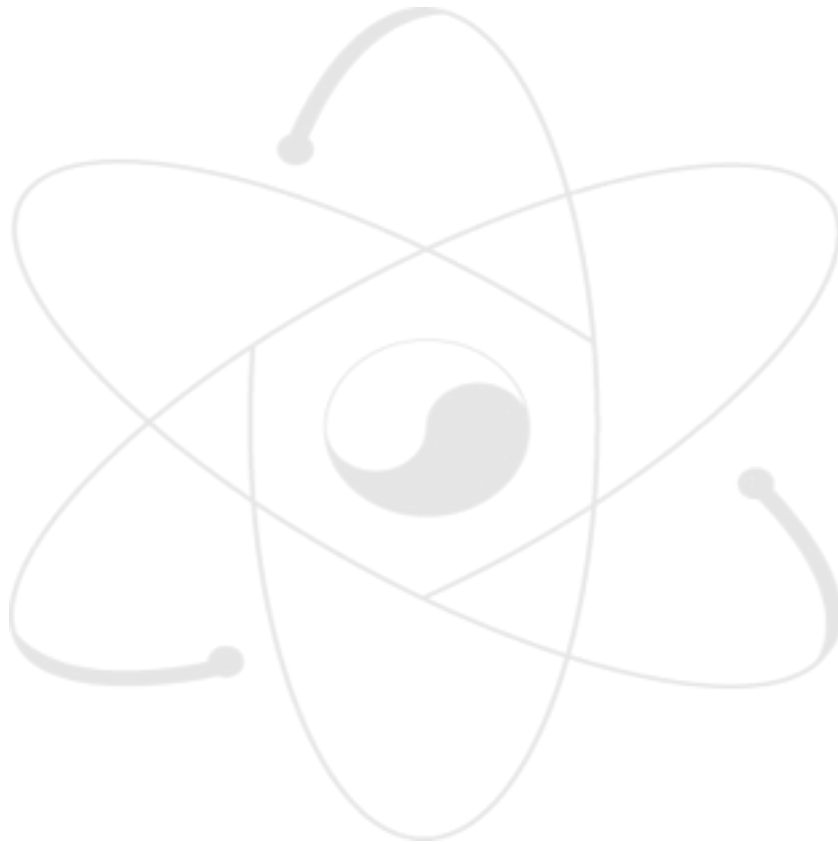


표 목 차

Table 1 Constants used in the thermal conductivity correlation ----- 15



제 1 장 서 론

최근의 핵연료 연구는 초고연소도, 고성능핵연료로 발전해가고 있으며, 이런 핵연료는 고온에서 장기간 PCMI와 핵분열 기체에 의한 stress를 받는다. 따라서 핵연료를 실용화하기 전에 물성 특성, 조사거동 및 노내 건전성 검증 등의 성능평가가 필수적이며, 실험적 방법 및 해석적 방법을 이용하여 이를 확인하게 된다.

핵연료 성능평가 코드를 이용하여 핵연료의 성능을 해석적으로 평가하기 위해서는 열물성에 관한 입력자료 및 모델이 필요하므로, 핵연료 개발에는 핵연료의 열물성 연구가 필수적으로 수반되어야 한다.

핵연료의 열물성 중 열전도도는 노내에서 중성자 조사로 인한 핵분열 에너지를 냉각재로 전달하는 능력을 나타내는 척도이다. 또한 핵연료의 온도 구배를 계산 할 때 꼭 필요한 주요 자료이다. UO_2 핵연료는 원자로에서 냉각재로 사용하는 물과 공존성이 양호하고 용점도 3000 K 이상으로 높고 고온에서 상변태가 일어나지 않아 안정성이 좋고, 높은 출력 밀도에서도 연소 시킬 수 있어 가장 널리 사용되고 있으나, 열전도도가 낮아 핵연료의 중심 온도는 약 2000 K 까지 상승하여, 핵연료 내에서 단위 길이 당 온도 구배가 큰 단점이 있다. 따라서 핵연료의 설계, 원자로의 운전 조건 등 건전성 확인을 위해서는 꼭 필요한 자료이다.

UO_2 핵연료의 열전도 기구와 열전도도에 미치는 변수들에 관해 연구하였으며, UO_2 핵연료, $(U, Pu)O_2$ 및 모의 사용후핵연료의 열전도도에 관한 자료들을 종합 분석하여 가장 적합한 모델을 제시하였다. 또한 부록에는 본 연구에서 제시한 모델을 이용하여 계산한 온도에 따른 열전도도를 표로 나타내었다.

제 2 장 열전도도 개요

1. 열전도도의 정의

열전도는 에너지 평형을 위해 높은 온도에서 낮은 온도로 열에너지의 이동을 의미한다.

열전도율은 열을 전달할 수 있는 능력을 특징짓는 재료의 성질을 의미한다.

$$\frac{Q}{A} = q = -k \frac{\partial T}{\partial x}, \text{ w/m}^2 \quad 1$$

여기서 $Q(w)$ 는 열전달량, $A(m^2)$ 는 단면적, $q(w/m^2)$ 는 단위면적당 열전달량, $k(w/m-K)$ 는 열전도도, $T(K)$ 는 온도 $x(m)$ 는 거리를 나타낸다.

2. 열전도 기구

열에너지는 고체 내에서 격자진동파(phonon)와 자유전자의 운동에너지 형태로 전달된다.

$$k = k_l + k_e \quad 2$$

여기서, k_l 과 k_e 는 각각 격자 진동 열전도도와 전자 열전도도를 나타낸다. 포논 또는 격자파와 관련된 열에너지는 포논의 이동 방향으로 이동된다. 포논에 의한 열전도는 온도 구배가 있는 물체 내에서 높은 온도 지역에서 낮은 온도 지역으로 포논의 움직임으로 이루어진다.

전자 열전도도는 자유전자의 이동에 의해 이루어진다. 열적 평형 상태의 재료가 외부로부터 열을 받게 되면 자유 전자들은 열에너지를 얻어 운동이 활발해지고 이는 운동에너지로 나타난다. 높은 운동에너지를 갖는 자유전자가 낮은 온도 영역으로 이동하면서 열을 전달한다. 이 과정에서 전자는 포논 또는 다른 결정 결함과 충돌하여 일부 에너지를 원자들 자신에게 전달시키게 된다(진동 에너지 전달). k_e 는 자유 전자의 농도가 증가할수록 열전달과정에 참여하는 전자가 많기 때문에 커진다.

3. 금속의 열전도

고순도 금속에서는 열전달에 미치는 전자 기구의 효과가 포논 기구보다 훨씬 효과적이다. 왜냐하면, 전자는 포논만큼 쉽게 산개되지 않을 뿐만 아니라 높은 속도를 가지고 있기 때문이다. 더욱이 금속은 열전도에 참여하는 비교적 많은 자유 전자를 가

지고 있기 때문에 매우 좋은 열전도체이다.

순수한 금속은 자유 전자에 의하여 전기 전도와 열전도가 이루어지므로, 두 가지 전도율은 Wiedemann-Franz 법칙에 의하여 다음 관계가 성립하여야 한다고 이론적으로 제시되고 있다.

$$L = \frac{k}{\sigma T}$$

3

여기서, σ 는 전기 전도도, T 는 절대온도, L 은 상수이다. L 의 이론적인 값 $2.44 \times 10^{-8} \Omega \cdot \text{W}/(\text{K})^2$ 은, 열에너지가 자유 전자에 의하여 이동되는 경우, 모든 금속에 대하여 똑같은 값을 갖고 온도에 무관하여야만 한다.

불순물이 첨가된 합금 금속은 열전도도가 감소한다. 그 이유는 불순물 첨가시 전기 전도율이 감소하는 것과 같이, 고용체에서 불순물 원자들은 산란 중심체로 작용하여 전자 운동의 효율을 떨어뜨리기 때문이다. 스테인리스강은 합금되어 있는 원소들의 농도가 높기 때문에 비교적 전기전도와 열전달에 대하여 저항성이 크다.

4. 세라믹의 열전도도

비금속 재료는 자유 전자가 적기 때문에 열 절연체이다. 그러므로 포논들은 열전도에 주도적인 역할을 한다. 즉, k_e 의 값은 k_l 보다 훨씬 작은 값을 나타낸다. 포논은 자유전자만큼 열에너지를 잘 전달하지 못한다. 왜냐하면, 격자 결합에 의한 포논의 산개는 자유 전자의 경우보다 쉽게 일어나기 때문이다.

즉, 상온에서의 열전도율은 대략적으로 2~20 W/m-K 범위에 걸쳐 있다. 유리 및 다른 비정질 세라믹은 결정질 세라믹보다 전도율이 낮는데, 이는 원자 구조가 매우 불규칙적이고 무질서하게 배열되어 있으면 격자 진동의 산개가 온도의 증가에 따라 보다 많이 일어나기 때문이다.

격자 진동의 산개는 온도가 높아질수록 많이 발생한다. 그러므로 대부분 세라믹 재료의 열전도율은 온도가 올라감에 따라 감소한다. 적외선 복사열의 상당량이 투명한 세라믹 재료를 통하여 전달될 수 있기 때문에 전도율은 보다 높은 온도에서 증가하기 시작한다. 이러한 과정에 대한 효율은 온도 증가에 따라 커진다.

세라믹 재료 내에 존재하는 기공은 열전도에 큰 영향을 미친다. 기공 분율의 증가는 대부분의 경우에 열전도율을 감소시킨다. 실제적으로 열 절연에 이용되는 많은 세라믹들은 다공성으로 되어 있다. 소공(pore)을 통한 열전도는 보통 느리게 진행되며 비효율적이다. 보통 내부에 존재해 있는 소공들은 공기를 포함하고 있으며, 공기는 매우 낮은 열전도율, 즉 약 0.02W/m-K을 가지고 있다. 더욱이 소공안에서 일어날 수 있는 기체 모임은 비교적 비효율적으로 발생한다.

제 3 장 열전도도 모델

1. UO₂ 핵연료의 열전도도

이산화우라늄은 열전도도는 1900 K 까지는 온도증가에 따라 감소하다가 그 이상의 온도에서는 상승하는 것으로 알려져 있다. 낮은 온도에서는 일반 세라믹재료와 같이 포논에 의해 주로 열전달이 이루어지며 온도 증가에 따라 격자 결함이 증가하고 이 결함에 의한 포논의 산개가 증가하기 때문에 열전도도가 감소한다. 그러나 고온에서는 valence band의 전자가 열에너지를 얻어 conduction band로 전이되고 이 전자에 의해 열전달이 이루어지기 때문에 열전도도가 증가한다. 따라서 UO₂의 열전도도는 포논에 의한 열전달을 나타내는 Hyperbolic 항과 Polaron에 의한 Exponential 항으로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$k = \frac{1}{A + BT} + \frac{C}{T^2} \exp\left(-\frac{D}{T}\right) \quad (\text{W/mK}) \quad 4$$

UO₂ 핵연료의 열전도도를 나타내는 모델은 여러 과학자들에 의해 발표되었다.

가. Harding and Martin [30]

$$k = \frac{1}{0.0375 + 2.165 \times 10^{-4} T} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} e^{\left(-\frac{16361}{T}\right)} \quad 5$$

여기서 첫째항은 포논에 의한 열전달, 둘째항은 small polaron에 의한 열전달을 나타내는 것이다.

나. Washington [19]

$$k = \frac{1}{0.035 + 2.25 \times 10^{-4} T} + 83.0 \times 10^{-12} T^3 \quad 6$$

여기서 첫째항은 포논에 의한 열전달, 둘째항은 고온에서 열복사에 의한 열전달을 의미한다.

다. Brandt and Neuer [22]

$$k = \frac{1}{0.0439 + 2.16 \times 10^{-4} T} + 11.2 \times 10^{-2} T e^{\left(-\frac{1.18}{k_B T}\right)} - 4.18 \times 10^5 e^{\left(-\frac{3.29}{k_B T}\right)} \quad 7$$

여기서 k_B 는 Boltzmann 상수(8.6144×10^{-5} eV K⁻¹)를 나타낸다. 첫째항은 포논에 의한 열전달, 둘째항은 전자전도에 의한 열전달, 셋째항은 고온에서 dislocation에 의한 열전달 감소를 나타내는 것이다.

라. Ainscough [17]

$$k = 9.851 - 8.803 \times 10^{-3} T + 3.301 \times 10^{-6} T^2 - 3.727 \times 10^{-10} T^3 \quad 8$$

마. Killeen [23]

$$\kappa = (0.0375 + 2.165 * 10^{-4} T)^{-1} + 3.861 * 10^{-3} T e^{\left(-\frac{1.07}{k_B T}\right)} \quad 9$$

바. MATPRO model [20]

$$k = \frac{1}{0.04378 + 2.294 * 10^{-4} T} + 1.429 * 10^{-2} e^{1.867 * 10^{-3} T}, \quad 10$$

사 Fink et al. [38]

For $T \leq 2670$ K

$$k = \frac{1}{0.06834 + 1.6693 \times 10^{-4} T + 3.1886 \times 10^{-8} T^2} + 0.12783 T e^{\left(-\frac{1.1608}{k_B T}\right)} \quad 11$$

For $T \geq 2670$ K

$$\kappa = 4.1486 - 2.2673 \chi 10^{-4} T \quad 12$$

2. Irradiated UO₂ 의 열전도도

일반적으로 조사된 UO₂ 연료의 열전도도는 다음 변수의 영향을 받는다.

- solid fission products - dissolved and precipitated
- pores and fission-gas bubbles
- deviation from stoichiometry
- radiation damage
- circumferential cracks

이들의 영향을 기초로 하여 열전도도를 나타내면 다음과 같다.

$$K = K_{1d} K_{1p} K_{2p} K_{3x} K_{4r} K_0$$

여기서

K_0 : unirradiated UO₂ 열전도도

$K_{1d}(\beta)$: the effect of the dissolved fission products

K_{1p} : the effect of precipitated solid fission products

K_{2p} : the modified Maxwell factor for the effect of the pore and fission-gas bubbles

$K_{3x} = 1$: no deviation from stoichiometry under NOC

K_{4r} : the effect of radiation damage

가. Olander model[50]

Olander에 의하면 ionic solid의 열전도는 phonon으로 구성된 고체로 생각하고 다음 식을 유도하였다.

$$K_s = \frac{1 + \left(\frac{1}{C_{v0}}\right)\left(\frac{dH_{ex}}{dT}\right)}{A + BT} \quad 13$$

H_{ex} : Energy expended in forming the equilibrium number of point defects at temperature T, (in Joules)

C_{v0} : Constant value of the heat capacity at temperature below 2100 K (Joules/K)

T : Temperature, $A=10.8$ cm-deg/W, $B=0.022$ cm/W for fully dense UO_2 .

나. Lucuta model (FRAPCON code에서 이용)[35]

FRAPCON code에서 산화 우라늄의 열전도도는 Lucuta model을 사용하였다.

$$K = K_0 \cdot FD \cdot FP \cdot FM \cdot FR$$

FD : Effect of dissolved fission products
 FP : Effect of precipitation fission product
 FM : Effect of porosity
 FR : Effect of radiation

여기서

K_0 : Conductivity of unirradiated urania(W/m-K)

$$K_0 = \frac{1}{C_1 + C_2 T} + \frac{C_3}{T^2} \exp \frac{C_4}{T} \quad 14$$

여기서 $C_1 = 0.0375$, $C_2 = 2.165 \cdot 10^9$, $C_3 = 4.715 \cdot 10^9$, $C_4 = 16361$

1) FD : Effect of dissolved fission products

$$FD = \frac{1}{BC^{3.265}} + \frac{C_2}{\sqrt{B}} \sqrt{T} \arctan \frac{1}{\frac{1}{BC^{3.265}} + \frac{C_2}{\sqrt{B}} \sqrt{T}} \quad 15$$

$C_1 = 1.09$, $C_2 = 0.0643$, B : the burnup in atoms %, T : K

2) FP : Effect of precipitation fission products

$$FP = 1 + \frac{C_1 B}{C_2 - C_1 B} \frac{1}{1 + \exp - \frac{T - C_3}{C_4}} \quad 16$$

여기서 $C_1 = 0.019$, $C_2 = 3$, $C_3 = 1200$, $C_4 = 100$

3) FM : Effect of porosity

$$FM = \frac{1-P}{1+(s-1)P} \quad 17$$

P : the porosity, s : the shape factor (it is 1.5 for spherical pores)

4) FR : Effect of radiation

$$FR = \frac{C_1}{1 + \exp\left(\frac{T-C_2}{C_3}\right)} \quad 18$$

$C_1 = 0.2$, $C_2 = 900$, $C_3 = 80$, T in K

다. Harding and Martin's model[28]

이들은 Washington[19], Brant and Neuer[22], Ainscough[17] 및 Killeen[23]식을 기초로 하여 pore를 포함하여 modeling을 한 것이다.

$$\kappa = \kappa_0 (1 - P_1)(1 - P_2 - P_3)^{2.5}(1 - P_4 - P_5)^{3.5} \quad 19$$

P_1 = large spherical pores (greater than $5\mu\text{m}$)

P_2 = small spherical manufacturing pores (less than $5\mu\text{m}$)

P_3 = small spherical intragranular gas bubbles or pores

P_4 = lenticular grain face bubbles or pores

그들이 정리한 열전도식은 다음과 같다.

$$\kappa = (0.0375 + 2.165 \times 10^{-4})^{-1} + \frac{4.715 \times 10^9}{T^2} \exp\left(\frac{-16361}{T}\right) \quad 20$$

여기서 $\kappa = Wm^{-1}K^{-1}$, T : K, % uncertainty = $-3.9 + 0.0061 T$

3. 기공의 영향

열전도도에 미치는 기공의 영향은 기공의 농도, 분포, 모양, 위치 등에 따라 광범위하게 나타난다. 따라서 일반적으로 열전도도를 표현할 때는 이론밀도의 95%를 기준으로 표현한다.

1) Schulz equation

- Closed porosity

$$\begin{aligned}\kappa &= \kappa_0 (1 - P)^\chi \\ \chi &= \frac{1 - \cos^2 \alpha}{1 - F} + \frac{\cos^2 \alpha}{2F}\end{aligned}\quad 21$$

- Open porosity

$$(1 - P)(\kappa_0 - \kappa) \left(\frac{2(1 - \cos^2 \alpha)}{\kappa_0 + \kappa} + \frac{\cos^2 \alpha}{\kappa} \right) = P(2 - \cos^2 \alpha) \quad 22$$

2) Loeb equation

$$\begin{aligned}\kappa &= \kappa_0 (1 - \alpha P) \\ \alpha &= 2.5 \quad \text{for fractional porosity values less than 0.1}\end{aligned}\quad 23$$

3) Maxwell-Eucken equation

$$\kappa = \kappa_0 \frac{1 - P}{1 + \beta P} \quad 24$$

$$\beta = \beta_0 + \beta_1 T$$

$$\beta_0 = 6.5 \quad \beta_1 = -0.00649 \quad \text{for MATPRO}$$

$$\beta = 2 \quad \text{for fractional porosity values higher than 0.1}$$

4) Harding equation

$$\kappa = \kappa_0 (1 - P)^{2.5} \quad 25$$

제 4 장 산화물 핵연료의 열전도도 제안

가. 열전도도의 기본 모델

본 연구에서 열전도도 모델을 확립하기 위해 분석한 자료를 표 1에 나타내었다. 지금까지 발표된 대부분의 세라믹핵연료의 열전도도 모델이 포논의 영향과 폴라론의 영향을 고려한 모델을 채택하였다. 본 연구에서도 열전도도 모델의 기본형으로 Fink[38]가 제시한 한 가지 모델을 이용하여 UO_2 , UO_{2+x} , MOX 및 사용후핵연료의 열전도도를 표현하였다.

$$k = \frac{C_1}{C_2 + C_3t + C_4t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)} \quad 26$$

여기서 $t = T/1000$ 을 나타낸다.

나. UO_2 의 열전도도 모델

UO_2 의 열전도도는 Fink[38]가 제시한 모델을 본 연구에서도 추천한다. 즉,

$$k = \frac{115.8}{7.5408 + 17.69t + 3.614t^2} + \frac{7411.2}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{-16.35}{t}\right)}, \quad T < \text{M.P.} \quad 27$$

그림 1은 본 연구에서 검토한 UO_2 의 열전도도와 추천한 열전도도를 같이 나타낸 것이다. 온도의 상승에 따라 열전도도는 감소하였으며, 약 2000 K 이상에서는 전자의 영향으로 열전도도가 감소하는 것으로 나타났다. 대부분 500 - 1500 K의 온도 범위에서는 잘 일치하는 것으로 나타났으나, Killeen의 데이터는 2000 K 이상의 온도에서도 계속 감소하는 것으로 나타났다.

다. UO_{2+x} 의 열전도도 모델

UO_{2+x} 의 열전도도는 Ronchi[40]와 Lucuta[36]가 제시한 모델을 종합한 Carbajo [43]의 모델을 본 연구에서도 추천한다. 즉, 1773 K 이하의 온도에서

$$k = \frac{1}{(0.0257 + 3.336x) + (0.2206 - 0.685x)t} + \frac{7411.2}{t^{5/2}} e^{\left(-\frac{16.35}{t}\right)}, \quad 28$$

여기서 x 는 deviation from stoichiometry를 나타낸다.

그림 2는 본 연구에서 추천한 온도에 따른 UO_{2+x} 의 데이터를 나타낸 것이다. x 의 증가에 따라서는 열전도도가 감소하는 것으로 나타났으며, 그 차이는 저온에서 크게 나타났으나 온도가 증가할수록 그 차이는 줄어드는 것으로 나타났다. 그림 3은 x 에 따른 열전도도의 변화를 나타낸 것이며, 다음의 식으로 표현 할 수 있다.

$$k = 6.544 - 97.123x + 576.459x^2 \text{ at } 273K$$

$$k = 4.866 - 58.096x + 320.295x^2 \text{ at } 500K$$

$$k = 3.104 - 25.354x + 133.184x^2 \text{ at } 1000K$$

$$k = 2.277 - 13.893x + 80.007x^2 \text{ at } 1500K$$

$$k = 1.963 - 10.480x + 65.816x^2 \text{ at } 1800K$$

여기서 x 는 deviation from stoichiometry를 나타낸다.

라. MOX(3-15% Pu)의 열전도도 모델

MOX의 열전도도는 UO_2 와 같이 온도의 증가에 따라 2000 K까지 감소하다가 그 이상의 온도에서는 증가하는 것으로 나타났다. 또한 MOX의 열전도도가 UO_2 보다 약간 낮게 나타났으나, Pu의 농도에 관계없이 일정한 것으로 나타났다. Ronchi[40]와 Duriez[46]가 제시한 모델을 종합한 Popov [43]의 모델을 본 연구에서도 추천한다. 즉,

$$k = \frac{1}{(0.035 + 2.85x) + (0.286 - 0.715x)t} + \frac{7411.2}{t^{5/2}} e^{\left(-\frac{16.35}{t}\right)}, \quad 700 < T < M.P. \quad 29$$

여기서 x 는 deviation from stoichiometry를 나타낸다.

그림 4는 온도 변화에 따른 $(U,Pu)O_{2+x}$ 의 열전도도를 나타낸다. UO_2 의 경우과 같이 x 의 증가에 따라 열전도도가 감소하는 것으로 나타났다.

마. SIMFUEL의 열전도도 모델

SIMFUEL의 열전도도에 관해서는 1773 K 이하의 온도범위에서 Lucuta[36]가 제시한 모델을 본 연구에서도 추천한다. 즉,

- 3 at% burnup

$$k = \frac{1}{0.1362 + 0.212t}, \quad T < 1773 \text{ K} \quad 30$$

- 8 at% burnup

$$k = \frac{1}{0.1858 + 0.205t}, \quad T < 1773 \text{ K} \quad 31$$

그림 5는 본 연구에서 추천한 온도에 따른 모의 핵연료의 열전도도를 나타낸 것이다. 연소도가 증가할수록 열전도도는 감소하는 것으로 나타났으며, 그 차이는 저온에서 크게 나타났으나 온도가 증가할수록 그 차이는 줄어드는 것으로 나타났다.

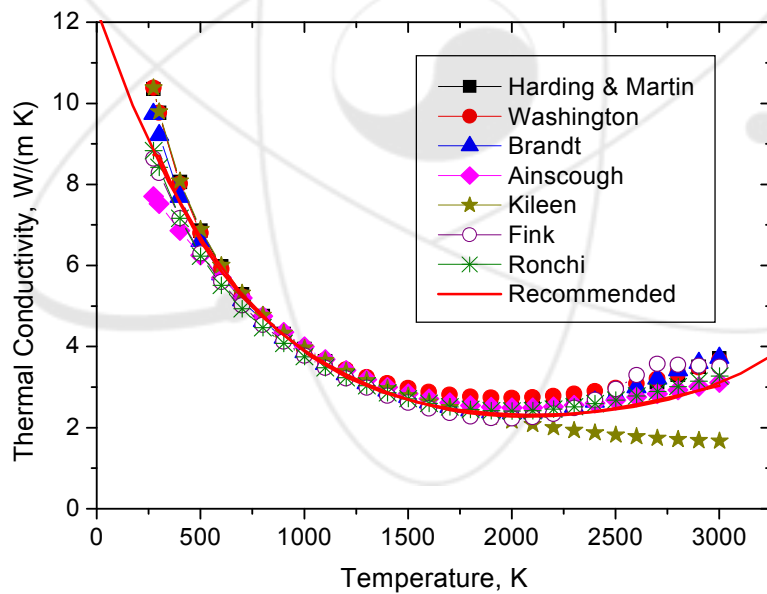


Fig. 1. Thermal conductivity of UO₂

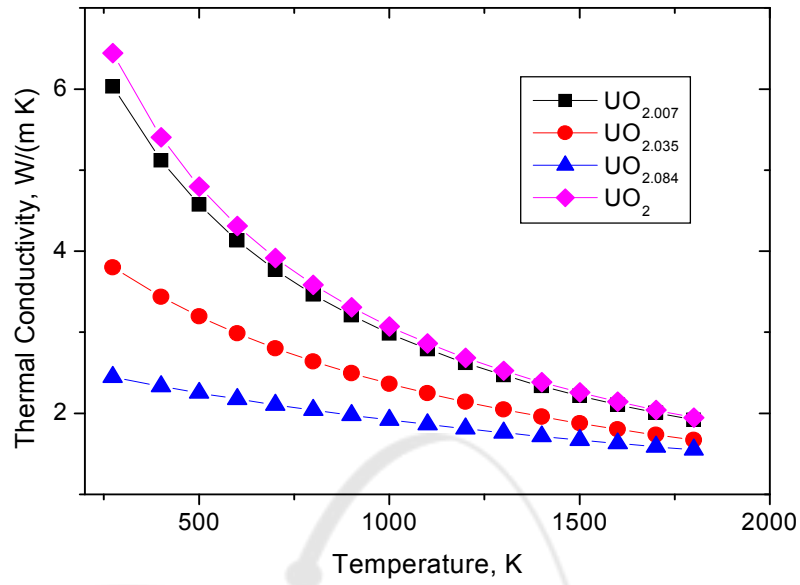


Fig. 2. Thermal conductivity of UO_{2+x} with the temperature

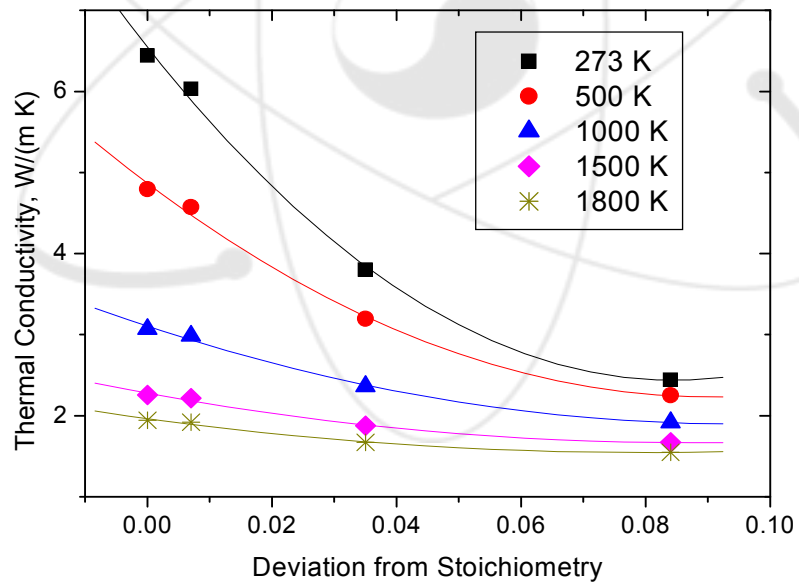


Fig. 3. Thermal conductivity of UO_{2+x} with the deviation from stoichiometry

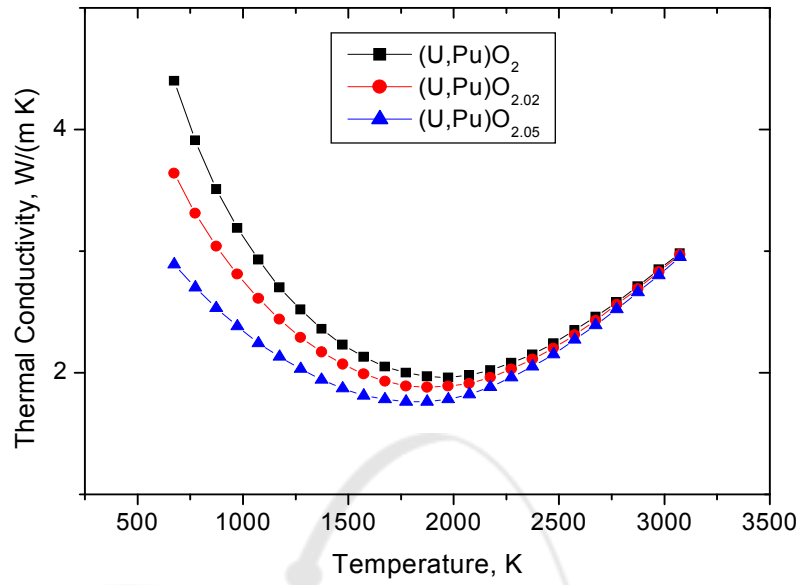


Fig. 4 Thermal conductivities of MOX with deviation from stoichiometry

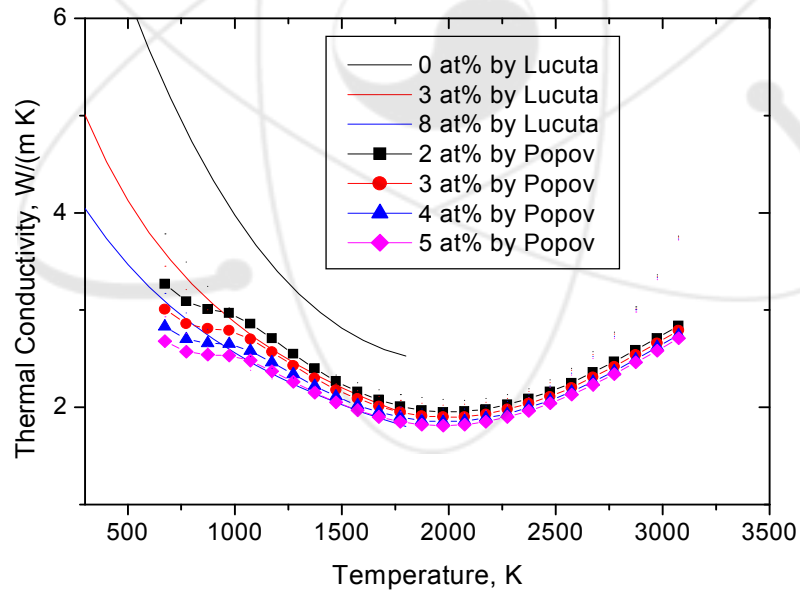


Fig. 5 Thermal conductivities of SIMFUEL with different burnups

제 5 장 결 론

1. UO_2 핵연료의 열전도 기구와 열전도도에 미치는 변수들에 관해 연구하였으며, UO_2 핵연료, $(U, Pu)O_2$ 및 모의 사용후핵연료의 열전도도에 관한 자료들을 종합 분석하여 가장 적합한 모델을 제시하였다.
2. UO_2 핵연료의 열전달 기구는 저온에서 포논에 의해 열전달이 이루어지며 이는 온도가 증가할수록 포논의 산개가 증가하여 열전도도는 감소한다. 그러나 고온에서는 polaron에 의한 열전달이 증가하여 열전도도는 증가하는 것으로 나타났다.
3. UO_2 핵연료의 열전도도 모델은 포논에 의한 열전달을 나타내는 hyperbolic 항과 polaron에 의한 exponential 항으로 다음과 같이 나타낼 수 있으며 각 핵연료에 대한 상수 값은 표에 나타내었다.

$$k = \frac{C_1}{C_2 + C_3 t + C_4 t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)}$$

여기서 $t = T/1000$ 을 나타낸다.

Table 1. Constants used in the thermal conductivity correlation

Const.	UO_2	$UO_{2.007}$	$UO_{2.036}$	$UO_{2.084}$	MOX(3-15% Pu)	SIMFUEL
temp.	< 3100	< 1773			< 3100	
C_1	115.8	1	1	1	1.1579	302.27
C_2	7.5408	0.1022	0.2031	0.3669	$2.85x+0.035$	$C_2^* = C_2(1+0.011B)$
C_3	0.0177	0.233×10^{-3}	0.22×10^{-3}	0.155×10^{-3}	$(-7.15x+2.86) \times 10^{-4}$	8.741×10^7
$C_4 \times 10^{-6}$	3.6142	0	0	0	0	548.68
$C_5 \times 10^{11}$	2.3434	0	0	0	2.3434	18531.1
C_6	-16350	0	0	0	-16350	

참고문헌

1. Russel W. Dayton and Clyde R. Tipton. BMI-1324(1959)
2. Russel W. Dayton and Clyde R. Tipton. BMI-1448(1960)
3. Russel W. Dayton and Clyde R. Tipton. BMI-1489(1960)
4. J. E. May, R. L. Stoute and J. A. L. Robertson AECL-1641(1962)
5. J. A. L. Robertson AECL-1529(1962)
6. R. C. Daniel and I. Cohen WAPD-246(1963)
7. T. G. Godfrey, W. Fulkerson, T. G. Kollie ORNL-3556(1964)
8. IAEA technical report no. 59(1965)
9. J. R. MacEwan, R. E. Stoute and M. J. F. Notley J. Nucl. Mater. 21(1965)109
10. Torazi Nishijima and Toshiyuki Kawada J. Am. Cer. Soc. 48(1965)31
11. M. F. Lyons, D. H. Copin and H. Hausner GEAP-5100-1(1966)
12. D. H. Coplin, H. Hausner, M. F. Lyons and B. Weldenbaum
GEAP-5100-6(1967)
13. W. E. Baily, E. A. Aitken, R. R. Asamoto and C. N. Craig AIEM symposium
(1967)293
14. F. J. Hetzler, T. E. Lannin, K. J. Perry and E. L. Zebroski GEAP-4879(1967)
15. J. R. MacEwan, R. E. Stoute J. Am. Ceram. Soc. 52, 3(1969)160
16. H. E. Schmidt and F. Calgara Int. Thermal Conductivity Proceeding (1970) 566
17. J.B. Ainscough, Springfields Nuclear Power Development Lab., unpublished
work(1972) as referenced by Martin in J. Nucl. Mater. 110(1982)73
18. L. A. Goldsmith and J. A. M. Douglas J. Nucl. Mater. 47(1973)31
19. A.B.G. Washington, TRG report 2236(D), 1973
20. C. Ronchi and C. Sari J. Nucl. Mater. 50(1974)91
21. MATPRO - *A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of
Light Water Reactor Fuel Rod Behaviour*, TREE-NUREG-1005, EG&G Idaho,
Inc. (1976)
22. R. Brant and G. Neuer, J. Non-equilib. Thermodyn. 1, 3(1976)
23. J. G. Killeen, Berkeley Nuclear Lab. unpublished work(1980) as referenced by
Martin in J. Nucl. Mater. 110(1982)73
24. S. Fukushima, T. Onmichi, A. Maeda and H. Watanabe J. Nucl. Mater.
102(1981)30
25. S. Fukushima, T. Onmichi, A. Maeda and H. Watanabe J. Nucl. Mater.
105(1982)201
26. J. K. Fink Int. J. Thermophys. 3(1982)165
27. S. Fukushima, T. Onmichi, A. Maeda and H. Watanabe J. Nucl. Mater.
114(1983)312

28. D. G. Martin J. Nucl. Mater. 110(1982)73
29. H. E. Schmidt and J. Richter Int. Oxide fuel symposium thermal conductivity Proceeding (1983)
30. J. H. Harding and D. G. Martin J. Nucl. Mater. 166(1989)223
31. R. O. A. Hall, D. G. Martin and M. J. Mortimer J. Nucl. Mater. 173(1990)130
32. J. Philipponneau J. Nucl. Mater. 188(1992)194
33. P. G. Lucuta, Hj. Matzke, R. A. Verall and P. G. Klemens Int. symposium thermal conductivity (1993)
34. P. G. Lucuta, Hj. Matzke and R. A. Verall J. Nucl. Mater. 217(1994)279
35. K. Bakler, H. Kwast and E. H. P. Cordfunke J. Nucl. Mater. 223(1995)135
36. P. G. Lucuta, Hj. Matzke and R. A. Verall J. Nucl. Mater. 223(1995)51
37. P. G. Lucuta, Hj. Matzke and I. J. Hastings J. Nucl. Mater. 232(1996)166
38. J.K. Fink and M.C. Petri, ANL, RE-97/2, February (1997)
39. G. J. Hyland and C. Ronchi J. Applied Physics 15(1999)776
40. C. Ronchi and M. Sheindin and M. Musella J. Applied Physics 15(1999)776
41. C. G. S. Pillai and P. Raj J. Nucl. Mater. 277(2000)116
42. Masaki Inoue J. Nucl. Mater. 282(2000)186
43. S. G. Popov, J. J. Carbajo, V. K. Ivanov and G. L. Yodar ORNL/TM-2000/351(2000)
44. Mujid S. Kazimi and S. M. Oggianu MIT-NFC-TR-021(2000), J. Nucl. Mater. 299(2001)181
45. Masaki Inoue, Kazuyuki Abe and Isamu Sato J. Nucl. Mater. 281(2000)117
46. C. Duriez, J. Alessandri, T. Gervais, Y. Philipponneau, J. Nucl. Mater. 277 (2000) 143
47. K. Minato, T. Shiratoni, M. Amaya J. Nucl. Mater. 288(2001)57
48. Ken. Kurosaki, Ryo Ohshima J. Nucl. Mater. 294(2001)193
49. Mutsumi Hirai, Masaki Amaya J. Nucl. Mater. 300(2002)57
50. D.R. Olander, TID-26711-P1 (1977)

부 록 1 : 산화물 핵연료의 열전도도 자료 분석

	Researcher	Material	Method	Temp. K	Remark
1	Russel (1959)	UO ₂	review	563 ~ 673	BMI-1324
2	Russel (1959)	UO ₂	review	323 ~ 1273	BMI-1448
3	Russel (1960)	UO ₂	review	473 ~ 1673	BMI-1489
4	May (1962)	UO ₂		273 ~ 1473	AECL-1641
5	Robertson (1962)	UO ₂ -Y ₂ O ₃		623 ~ 3073	
6	Daniel (1963)	UO ₂		373 ~ 1673	Comparison of Compacted particles, Poly crystal and Single crystal
7	Godfrey (1964)	UO ₂	heat flow	216 ~ 1373	The slope of 1/κ-T is 0.0223 cm/W
8	IAEA TR. No.59 (1965)	UO ₂ and irradiated UO ₂	heat flow	273 ~ 1573	Up to 1300°C $\kappa = \frac{1}{5.33 + 0.0235 T}$ T : °C
9	MacEvan (1965)	UO ₂		273 ~ 1773	
10	Torazi (1965)	UO ₂ and Al ₂ O ₃	heat flow		$\kappa = \kappa_{phonon} + \kappa_{photon}$
11	Lyons (1966)	UO ₂		273 ~ 2773	Decided $\int_0^T \kappa dt$ with temp.
12	Coplin (1967)	UO ₂		273 ~ 2993	$\int_{T_s, T_r} \kappa dt = \frac{Q}{A} D \Delta M$
13	Baily (1967)	(0.2 Pu-0.8U)			$\kappa = 0.0110 + \frac{1}{T(0.4848 - 0.4465 D)}$
14	Hetzler (1967)	UO _{1.97} -UO _{2.01} (0.2Pu-0.8U) _{1.98} ~ (0.2Pu-0.8U) _{2.05}		1073~2173	1673 K까지는 감소, 그 이상에서는 0.02 W/cm 로 일정

	Researcher	Material	Method	Temp. K	Remark
15	Macewan (1969)	ThO ₂		300 ~ 1200	activation energy 3.55±0.2 eV
16	Schmidt (1970)	(0.2 Pu-0.8U)	heat- flux	1073~ 2473	
17	Ainscough (1972)	UO ₂	-	-	모델 제시, 저온에서 비교적 잘 일치
18	Goldsmith (1972)	UO ₂	laser- flash	670 ~ 1270	mean-phonon scattering = 6.3 * 10 ⁻¹⁹ m ²
19	A.B.G. Washington	UO ₂	-	-	-
20	Ronchi (1974)	UO ₂		2500 ~	2.4 ≤ λ(Tm) ≤ 3.5 W/m K
21	MATPRO	UO ₂	CODE	-	물성 관련 코드
22	Brant (1976)	UO ₂	model	-	
23	Killeen (1980)	UO ₂	model	-	referenced by Martin in J. Nucl. Mater 110(1982) 73
24	Fukushima (1981)	(U,Y)O ₂	"	700 ~ 2000	
25	Fukushima (1981)	(U,Gd)O ₂	"	700 ~ 2000	
26	Fink (1981)	UO ₂	review	~ 6000	
27	Fukushima (1982)	(U,R)O ₂ R=Nd, Sm, Eu	"	700 ~ 2000	
28	Martin (1982)	UO ₂ , (U,Pu) ₂			review
29	Schimit (1983)	Irrediated - UO ₂	longitudinal flow		Am, Pu, Cm, Np 의 영향
30	Harding (1989)	UO ₂		773 ~ 3120	
31	Hall (1990)	UO ₂ sphere-pac	radial heat flow	376 ~ 1173	
32	Philipponneau (1992)	(U, Pu)O _{2-x}	"		$\lambda = \left(\frac{1}{A+BT} + CT^3 \right) \alpha$ $A = 1.528 \sqrt{x + 0.0093T}$ $- 0.1055 + 0.44 \text{mW}^{-1}\text{K}$ $B = 2.89 * 10^{-4} \text{mW}^{-1}$ $C = 76.4 * 10^{-12} \text{mW}^{-1}\text{K}^4$

	Researcher	Material	Method	Temp. K	Remark
33	Lucuta (1993)	UO _{2+x} SIMFUEL	coulometric titration	873 ~ 1500	
34	Lucuta (1994)	UO ₂			review modeling
35	Bakker (1995)	UO ₂ fuel rod	FEM		pore의 영향조사
36	Lucuta (1995)	UO ₂ SIMFUEL	DSC	673 ~1673	DSC로 enthalpy 측정후 계산
37	Lucuta (1996)	SIMFUEL			review modelling
38	Fink (1997)	UO ₂ , UO _{2+x}	review	-	
39	Hyland (1998)	UO ₂		2000 ~ 3120	
40	Ronchi	UO ₂ , UO _{2+x}	Laser- Flash	~ 3000	
41	Pillai (1999)	ThO ₂	XRD	300 ~1200	
42	Masaki (2000)	(U,Pu)O ₂ fuel			T R - M O X 와 FR-MOX비교
43	Popov (2000)	UO ₂ , (U,Pu) ₂			review
44	Kazimi (2000)	UO ₂ , (U,Pu) ₂			review
45	Masaki (2000)	(U,M)O ₂ M= Gd, Sr, La	laser- flash	300 ~ 1400	oxidation 효과
46	Duriez (2000)	(U, Pu)O _{2-x}	laser- flash	700 - 2300	Pu : 3-15 wt% O/M : 2.00-1.95
47	Minato (2001)	UO ₂ , (U,Gd)O ₂	"	750 ~ 2000	열전도도는 조사 후 감소
48	Kurosaki (2001)	(U,Ce)O ₂	laser flash	200 ~1500	
49	Mutsumi (2002)	(U,Gd)O ₂	laser- flash	298 ~ 2000	
50	Olander (1977)	UO ₂ , UO _{2+x} MOX	Text	-	

부 록 2 : 산화물 핵연료의 열전도도

1. UO_{2+x} 의 열전도도

temp	UO2	UO2.007	UO2.035	UO2.084
273	7.68622	6.03104	3.79997	2.4437
300	7.49713	5.11771	3.43525	2.33155
400	6.83411	4.57247	3.19387	2.25023
500	6.22816	4.13223	2.98418	2.17439
600	5.67706	3.76932	2.80034	2.10349
700	5.17855	3.465	2.63783	2.03707
800	4.73042	3.20616	2.49314	1.97472
900	4.33041	2.98329	2.36351	1.91608
1000	3.9763	2.7894	2.24669	1.86081
1100	3.66585	2.61917	2.14087	1.80865
1200	3.39681	2.46853	2.04457	1.75932
1300	3.16697	2.33427	1.95656	1.71262
1400	2.97407	2.21386	1.87582	1.66834
1500	2.81589	2.10526	1.80148	1.62628
1600	2.69018	2.00682	1.7328	1.58629
1700	2.59471	1.91718	1.66917	1.54823
1800	2.52725			
1900	2.48556			
2000	2.4674			
2100	2.47054			
2200	2.49273			
2300	2.53175			
2400	2.58536			
2500	2.65131			
2600	2.72738			
2700	2.81134			
2800	2.90093			
2900	2.99393			
3000	3.0881			

2. MOX의 열전도도

Temp., K	(U,Pu) ₂	(U,Pu) _{2.02}	(U,Pu) _{2.05}
673	4.40	3.64	2.89
773	3.91	3.31	2.70
873	3.51	3.04	2.53
973	3.19	2.81	2.38
1073	2.93	2.61	2.24
1173	2.70	2.44	2.13
1273	2.52	2.29	2.03
1373	2.36	2.17	1.94
1473	2.23	2.07	1.87
1573	2.13	1.99	1.81
1673	2.05	1.93	1.78
1773	2.00	1.89	1.76
1873	1.97	1.88	1.76
1973	1.96	1.89	1.78
2073	1.98	1.91	1.82
2173	2.02	1.96	1.88
2273	2.08	2.03	1.96
2373	2.15	2.11	2.05
2473	2.24	2.20	2.15
2573	2.35	2.31	2.27
2673	2.46	2.43	2.39
2773	2.58	2.56	2.52
2873	2.71	2.69	2.66
2973	2.85	2.83	2.80
3073	2.98	2.97	2.95

3. SIMFUEL의 열전도도

temp	UO2	3at%	8at%
273	7.68622	5.15262	4.13625
300	7.49713	5.00501	4.04367
400	6.83411	4.52489	3.73413
500	6.22816	4.12882	3.46861
600	5.67706	3.79651	3.23834
700	5.17855	3.5137	3.03674
800	4.73042	3.27011	2.85878
900	4.33041	3.0581	2.70051
1000	3.9763	2.87191	2.55885
1100	3.66585	2.70709	2.43132
1200	3.39681	2.56016	2.31589
1300	3.16697	2.42836	2.21092
1400	2.97407	2.30947	2.11506
1500	2.81589	2.20167	2.02716
1600	2.69018	2.10349	1.94628
1700	2.59471	2.01369	1.87161
1800	2.52725	1.93125	1.80245

서 지 정 보 양 식					
수행기관 보고서번호	위탁기관 보고서번호	표준보고서번호	INIS 주제코드		
KAERI/TR-2813/2004					
제목 / 부제	핵연료의 열전도도 특성연구-우라늄 산화물 핵연료-				
연구책임자 및 부서명	강권호 ((건설 공정 핵연료기술 개발부)				
연구자 및 부서명	박창제, 류호진, 송기찬, 박주환, 정인하, 양명승, 문홍수, 김형수 (건설 공정 핵연료 기술 개발부)이영우, 나상호, 김시형(미래형 원자로 연료 개발부)				
발행지	대전	발행기관	한국원자력연구소	발행일	2004. 8.
페이지	p. 30	도표	유(○), 무()	크기	
참고사항					
비밀여부	공개(○), 대외비(), ___급비밀	보고서 종류	기술 보고서		
연구위탁기관		계약번호			
초록	<p> UO_2 핵연료의 열전도 기구와 열전도도에 미치는 변수들에 관해 연구하였으며, UO_2 핵연료, $(U, Pu)O_2$ 및 모의 사용후핵연료의 열전도도에 관한 자료들을 종합 분석하여 가장 적합한 모델을 제시하였다. </p> <p> UO_2 핵연료의 열전달 기구는 저온에서 포논에 의해 열전달이 이루어지며 이는 온도가 증가할수록 포논의 산개가 증가하여 열전도도는 감소한다. 그러나 고온에서는 polaron에 의한 열전달이 증가하여 열전도도는 증가하는 것으로 나타났다. </p> <p> UO_2 핵연료의 열전도도 모델은 포논에 의한 열전달을 나타내는 hyperbolic 항과 polaron에 의한 exponential 항으로 다음과 같이 나타낼 수 있다. </p> $k = \frac{C_1}{C_2 + C_3t + C_4t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)}$ <p> 여기서 $t = T/1000$을 나타낸다. </p>				
주제명	우라늄산화물핵연료, 열전도도, 기구				

BIBLIOGRAPHIC INFORMATION SHEET					
Performing Org. Report No.		Sponsoring Org. Report No.		Standard Report No.	INIS Subject No.
KAERI/TR-2813/2004					
Title/Subtitle					
Thermal Conductivity Characteristics of Nuclear Fuel-Uranium Oxide Fuel-					
Project Manager and Dept.		Kweon Ho Kang (Dry-processed Nuclear Fuel Technology Development Division)			
Researcher and Dept.					
C.J. Park, H.J. Ryu, K.C. Song, J.H. Park, I.H. Jung, M.S. Yang, H.S. Moon. H.S. Kim(Dry-processed Nuclear Fuel Technology Development Division) Y.W. Lee, S. H. Na, S.H. Kim(Division of Nuclear Fuel Development for Advanced Reactor)					
Pub. Place	Taejeon	Pub. Org.	KAERI	Pub. Date	2004. 8
Page	p. 30	Fig. and Tab.	Yes(○), No()	Size	
Note					
Classified	Open(○), Outside(), __Class		Report Type	Technical Report	
Sponsoring Org.			Contract No.		
Abstract					
<p>Mechanism and variable affecting on the thermal conductivity of UO₂ are studied and published experimental data relating to the thermal conductivity of UO₂, UO_{2+x} and mixed (U, Pu) oxides are reviewed and recommendation put forward for the thermal conductivity of these materials. Heat in UO₂ is transferred by phonon and heat transfer rate is decreased with increasing temperature in the low temperature region. However, heat in UO₂ is transferred by polaron and heat transfer rate is increased with increasing temperature in the high temperature region. The model of the thermal conductivity of UO₂ consists of hyperbolic term by phonon and exponential term by polaron as follow:</p> $k = \frac{C_1}{C_2 + C_3 t + C_4 t^2} + \frac{C_5}{t^{5/2}} e^{\left(\frac{C_6}{t}\right)}$ <p>where t = T/1000.</p>					
Subject Key Words					
Thermal conductivity, Uranium Oxide Fuel, Mechanism					