

## HYPER용 U-TRU-Zr 연료심 열전도도 모델 개선

### The Improvement of The Thermal Conductivity Model for HYPER U-TRU-Zr Fuel

신민재, 이병운, 송태영  
한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

핵연료의 노내성능을 평가하는데 필수적인 것은 핵연료 내의 온도 분포 예측이다. 온도를 정확하게 예측하기 위해서 우선시 되어야 하는 물리적 인자가 열전도도이다. 기존의 U-Pu-Zr 삼원합금 열전도도 모델은 Zr 함량이 10wt% 내외의 기존 고속로용 핵연료에 적합하기 때문에 이 논문에서는 Zr 함량이 높은 HYPER 핵연료심에 사용가능한 새로운 열전도도 모델을 유도하였다. 이를 위해 U, Pu, Zr 각 원소 및 이원합금의 열전도도 모델을 정리, 유추하여 이 열전도도 모델들을 삼원계 합금 열전도도 계산에 적용하였다. 이 삼원계 열전도도 모델은 고속로에서 사용하는 연료의 열전도도 실험값과 비교, 검증하였다.

#### Abstract

The prediction of fuel temperature distribution is always needed to assess the reactor fuel performance. For an accurate prediction of the temperature distribution, thermal conductivity of the fuel should be accurately identified. Because existing models of U-Pu-Zr ternary alloy is suitable for the conventional fast reactor fuels, in this paper, a new model of thermal conductivity of the HYPER fuel has been developed. The new model is derived from the thermal conductivity models for U, Pu, Zr and their binary alloys. These models were applied to the thermal conductivity calculation of the ternary alloy. Additionally, the derived model was compared with the experimental values for fast reactor fuels.

#### 1. 개요

핵연료의 노내성능을 평가하는데 필수적인 것은 핵연료 내의 온도 분포 예측이다. 온도를 정확하

게 예측하기 위해서 우선시 되어야 하는 물리적 인자가 열전도도이다. 열전도도가 나쁘면 연료의 중심 온도가 상승하므로 높은 선출력으로 연소시킬 수 없다. 열전도도는 핵연료 제조시의 미세조직, stoichiometry, 기공률 및 중성자 조사 등 많은 물리적, 핵적, 재료적 변수에 의해 영향을 받기 때문에 여러 가지 핵연료의 다양한 노내 조사 경우에 대해 열전도도를 일률적으로 적용하기란 어렵다.

한국원자력연구소에서는 초우라늄 원소(TRU)의 핵종변환을 위하여 미임계원자로 HYPER 시스템을 연구하고 있다. HYPER에서는 TRU의 핵변환성능을 최대화하기 위해서 우라늄이 소량 포함되고 TRU가 주된 연료인 (~10wt%)U-TRU-(40~60wt%)Zr 합금 연료가 연구되고 있다. 이처럼 Zr의 함량이 높고 우라늄이 적게 포함된 합금연료의 열전도도에 대한 모델이 없기 때문에, HYPER 연료의 성능분석을 위해서는 U-TRU-Zr 삼원합금에 대한 새로운 열전도도 모델이 요구된다.

이 연구에서는 핵종 변환을 위한 HYPER 시스템의 핵연료심 U-TRU-Zr 삼원합금의 열전도도 모델을 개발하였다. TRU를 Pu으로 가정하여 U, Pu, Zr 각 금속의 열전도도와 이원합금의 열전도도 모델을 정리, 유추하고 이것을 삼원계 합금의 열전도도에 적용하여 계산하였다. 그 결과를 U-19Pu-10Zr, U-14.7Pu-10Zr 및 U-16.2Pu-6.2Zr의 열전도도 실험자료와 비교하여 이를 검증하였다.

## 2. 열전도도 모델

### 2.1 U, Pu, Zr의 열전도도 모델

열전도도는 직접 측정하는 것이 아니라 비열, 밀도 그리고 열확산 계수의 상호 관계에 의해 결정할 수 있다. 그 관계를 나타내는 실험식은 다음과 같다.

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

여기서

$\rho$  : 밀도 (Density)

$\alpha$  : 열확산계수 (Thermal Diffusivity)

$C_p$  : 열용량 계수 (Heat Capacity)

우라늄과 지르코늄의 열전도도는 (1)식을 사용해 얻어진 실험값[1,2]을 바탕으로 간단한 모델식 [3]으로 만들어 사용하고 있다. 우라늄과 지르코늄의 열전도도식은 다음과 같다.

$$K_U = 21.73 + 1.591 \times 10^{-2}T + 5.907 \times 10^{-6}T^2 \quad (2)$$

$$(255.4 \leq T \leq 1173.2K)$$

$$K_{Zr} = 8.8527 + 7.0820 \times 10^{-3}T + 2.5329 \times 10^{-6}T^2 + 2.9918 \times 10^3 T^{-1} \quad (3)$$

$$(298 \leq T \leq 2000K)$$

여기서 K는 열전도도(W/mK), T는 절대 온도(K)이다.

플루토늄의 경우에는 온도가 100K 근처인  $\alpha$ -Pu에 대한 열전도도 자료는 있으나 고온 영역에서는 없는 실정이어서 그 이상의 온도 구간에서는 전기전도도와 열전도도의 관계를 나타내는 Wiedemann-Franz-Lorentz 법칙( $k = LT/\rho$ )을 사용하여 열전도도를 나타내었다. 여기서  $\rho$ 는 비저항, L은 로렌츠 상수이다. 플루토늄의 비저항은 문헌 [4]를 참고하였으며, 이 값은 온도의 상승에 따라서 감소하나  $\epsilon$ 상에서는 반대로 증가한다. 따라서  $\epsilon$ 상을 기점으로 두 부분으로 나누어 열전도도를 나타내었다.

$$K = 8 \times 10^{-9} T^2 + 1.86 \times 10^{-5} T + 9.49 \times 10^{-5} \quad (395 \leq T \leq 723K) \quad (4)$$

$$K = 2.14 \times 10^{-5} T + 3.46945 \times 10^{-18} \quad (724 \leq T \leq 913K) \quad (5)$$

이렇게 계산한 Pu의 열전도도는 Pu에 소량의 Al을 첨가한 Pu-1Al의 열전도도와 거의 비슷한 값을 갖는다.

$$K_{Pu-1Al} = 1.213 + 2.018 \times 10^{-2} T + 2.857 \times 10^{-6} T^2 \quad (373 \leq T \leq 873K) \quad (6)$$

아직까지는 Pu에 관한 자료가 없는 상황이라 이 논문에서는 (6)식을 Pu의 열전도도라 가정하고 계산을 하였다. 이에 대해서는 향후 실험을 통한 검증이 필요하다.

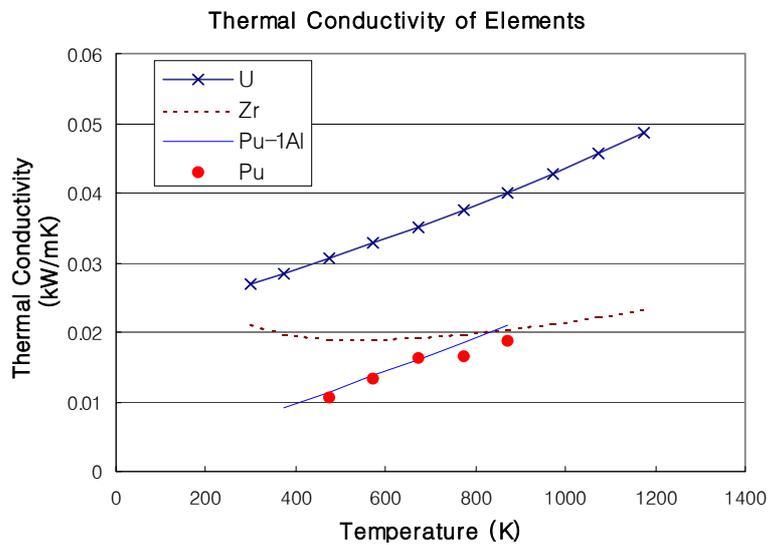


그림1. U, Pu, Zr 및 Pu-1wt%Al의 열전도도

## 2.2 이원합금 열전도도 모델

### 2.2.1 U-Zr 열전도도 모델

기존의 U-Zr 이원합금의 열전도도 식은 다음과 같다.

$$K = A + BT + CT^2 \quad (7)$$

$$A = 17.5 (1 - 2.23 x_{Zr}) / (1 + 1.61 x_{Zr})$$

$$B = 1.54 \times 10^{-2} (1 + 0.06 x_{Zr}) / (1 + 1.61 x_{Zr})$$

$$C = 9.38 \times 10^{-6}$$

여기서

$x_{Zr}$  : Zr의 무게 분율 (wt%)

T : 온도 (K)

이 식은 금속 U의 열전도도와 U의 함량이 50wt%이상인 U-Zr 합금의 실험값을 바탕으로 만들어진 식이기 때문에 그림2에서 보는 바와 같이 Zr이 100wt%의 경우 실험값보다 훨씬 낮아져 Zr 함량이 높은 경우에는 맞지 않음을 알 수 있다.

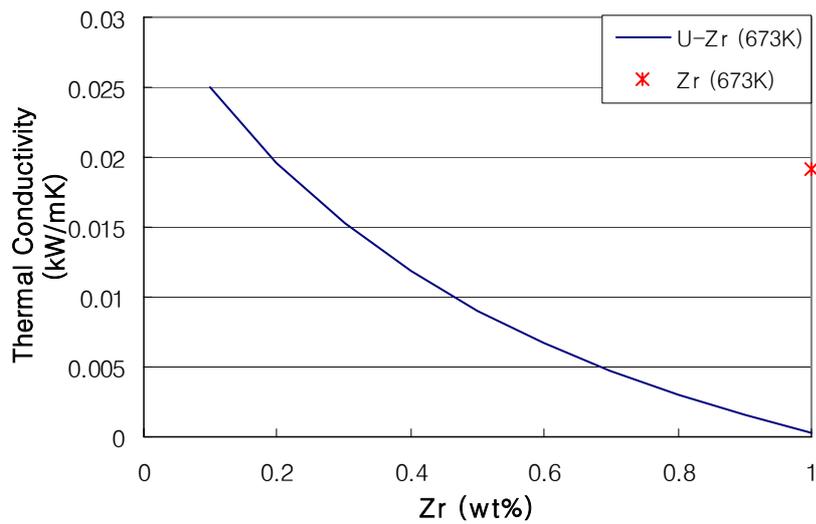


그림2. 기존 U-Zr 열전도도 모델식(7)을 이용한 Zr 함량에 따른 열전도도 변화

그래서 금속 U, Zr과 U-Zr 합금의 열전도도 실험값을 고려하여 모든 Zr 함량에서 사용가능한 새로운 식이 만들어졌다[5].

$$K_{Zr-U} = (1 - \sqrt{1 - x_{Zr}})K_{Zr} + \sqrt{1 - x_{Zr}} \{x_{Zr}k_{c,U} + (1 - x_{Zr})K_U\} \quad (8)$$

여기서

$x_{Zr}$  : Zr의 무게분율 (wt%)

$K_U, K_{Zr}$  : 우라늄과 지르코늄의 열전도도

$k_{c,U}$  : alloying effect를 고려하여 식을 보정한 값

$$k_{c,U} = -102.0 + 200.1x_{Zr} - 109.2x_{Zr}^2 + 9.435 \times 10^{-3}T + 3.459 \times 10^{-5}T^2 - 0.02093x_{Zr}T$$

그림3은 Zr 함량에 따른 U-Zr 합금의 열전도도를 나타내었다. 기존의 실험 자료와 함께  $Zr > 50wt\%$  이상인 U-Zr 합금에 관한 실험자료가 없어 자체적으로 행한 U-55Zr, U-59Zr, U-64Zr의 열전도도와도 비교해보았다. 그 결과 식(8)이 실험값과 상당히 잘 맞음을 알 수 있다.

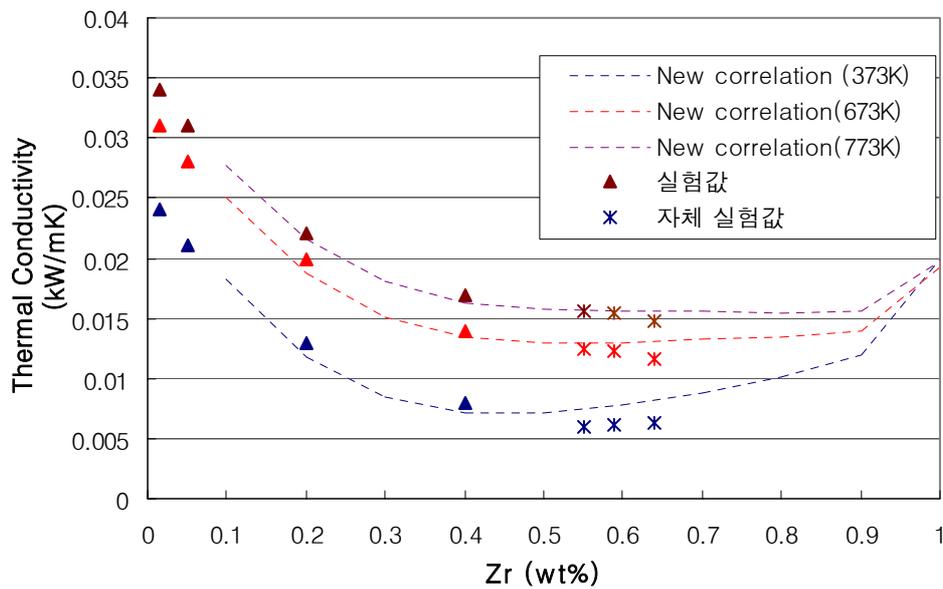


그림3. U-Zr 실험값과 기존 모델식 및 새로운 식 비교

### 2.2.2 U-Pu 열전도도 모델

U-Pu의 경우에는 현재까지는 U-10wt%Pu의 열전도도 실험값[6]만이 있을 뿐이다. 그래서 두 개의 상이 혼합된 경우의 열전도도를 구하는 식으로 Landauer가 제안한[7] 다음 식을 이용하였다.

$$K = \frac{1}{4} [A + (A^2 + 8k_1k_2)^{\frac{1}{2}}] \quad (9)$$

$$A = (3v_1 - 1)k_1 + (3v_2 - 1)k_2$$

여기서

$K_1, K_2$  : 혼합물을 이루는 각 상의 열전도도

$V_1, V_2$  : 각 상의 부피 분율

이 식을 혼합물이 아닌 합금에 적용할 경우에는 열전도도 상한값으로 고려하는 것이 적절하다. 그것은 합금의 경우에는 다른 원소가 첨가됨으로써 순수한 금속보다 열전도도가 낮아지는 alloying effect가 생기기 때문이다.

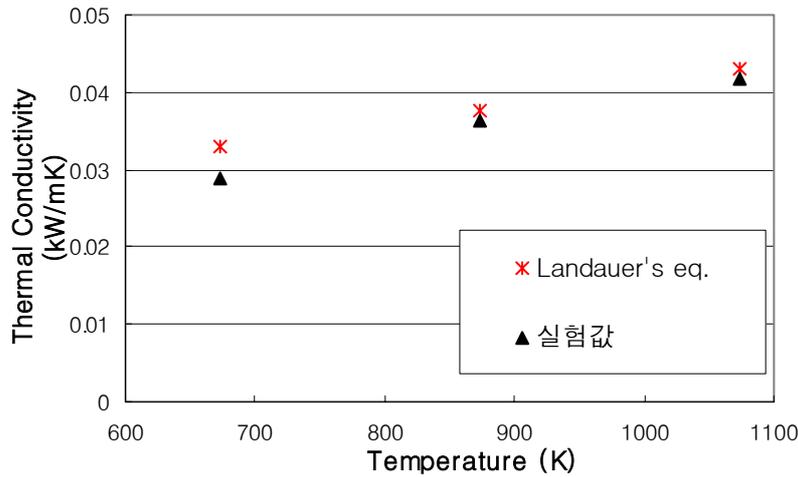


그림4. U-10wt%Pu의 실험값과 Landauer의 식으로 계산한 값 비교

그림4는 U-10wt%Pu의 열전도도를 (9)식으로 계산한 값과 그 실험값을 비교한 것이다. (9)식으로 계산된 열전도도 값이 alloying effect를 고려하지 않아 실험값보다 약간 높게 나올 수 있다.

### 2.2.3 Pu-Zr 열전도도 모델

Pu-Zr 이원합금의 열전도도는 현재까지는 실험 자료가 없는 실정이다. 그래서 상태도 상의  $\delta - Pu$ ,  $\alpha - Zr$ ,  $(\delta - Pu) + (\alpha - Zr)$ ,  $(\epsilon - Pu, \beta - Zr)$  네 가지 영역으로 나누어 열전도도를 나타내었다[5].

#### 1) $\delta - Pu$ Phase

$\delta - Pu$  은 약 40wt% 정도의 지르코늄 고용한도를 갖는다. 비슷한 합금 경향을 갖는 U-Mo 이원합금을 이용하여 Mo함량을 함수로 하여 U-Mo 열전도도식을 나타낸 것과 마찬가지로  $\delta - Pu$  내에 용해되는 지르코늄의 영향도  $\gamma - U$ 과 Mo의 경우와 같다고 가정, Zr 함량에 따라서  $K_{\delta - Pu} / K_U$  비로 열전도도 감소에 관한 식을 나타내었다.

$$K_{\delta - Pu(Zr)} = (1 - \sqrt{1 - x_{Pu}})K_{\delta - Pu} + \sqrt{1 - x_{Pu}}k_{c, Zr} \quad (540 \leq T \leq 870K) \quad (10)$$

여기서

$x_{Pu}$  : 플루토늄의 무게분율 (wt%)

$K_{\delta-Pu}$  : 식(4)로 계산한 플루토늄의 열전도도

$$k_{c,Zr} = 29.469 - 118.811x_{Pu} + 88.893x_{Pu}^2 + 0.0117T + 1.922 \times 10^{-5}T^2 - 0.00716x_{Pu}T$$

## 2) $\alpha - Zr$ Phase

$\alpha - Zr$  도 약 20% 정도의 플루토늄 고용한도를 갖는다. 이 상에서도  $\delta - Pu$  과 같은 방법으로 열전도도 식을 나타내었다.

$$K_{\alpha-Zr(Pu)} = (1 - \sqrt{1 - x_{Zr}})K_{Zr} + \sqrt{1 - x_{Zr}}k_{c,Pu} \quad (11)$$

여기서

$x_{Zr}$  : 지르코늄의 무게분율 (wt%)

$K_{Zr}$  : 식(3)으로 계산한 지르코늄의 열전도도

$$k_{c,Pu} = 30.57 - 82.301x_{Zr} + 71.456x_{Zr}^2 + 0.01895T + 8.111 \times 10^{-6}T^2 - 0.02453x_{Zr}T$$

## 3) $(\delta - Pu) + (\alpha - Zr)$

두 개의 상  $\delta - Pu$  와  $\alpha - Zr$  의 이 존재하는 이 영역의 열전도도는 Landauer가 제시한 식(9)에 의해 계산할 수 있다. 각 상의 무게 분율은 지렛대 법칙을 이용하여 계산하고 부피분율은 아래의 식(12)에 의해 결정된다.

$$v_{\delta-Pu} = \frac{\rho_{\alpha-Zr} x_{\delta-Pu}}{\rho_{\delta-Pu} - (\rho_{\delta-Pu} - \rho_{\alpha-Zr}) x_{\delta-Pu}} \quad (12)$$

여기서

$$v_{\alpha-Zr} = 1 - v_{\delta-Pu}$$

$x$  : 무게 분율

$\rho$  : 밀도

## 4) $(\epsilon - Pu, \beta - Zr)$ Phase

높은 온도 구간에서 나타나는  $(\epsilon - Pu, \beta - Zr)$  상은 U-Zr 열전도도식(8)을 이용하여 873K 이 상의 온도에서 fitting하여 다음과 같은 식으로 나타낸다.

$$K_{\epsilon-Pu, \beta-Zr} = (1 - \sqrt{1 - x_{Zr}})K_{Zr} + \sqrt{1 - x_{Zr}} \{ x_{Zr} k_{c,Pu,Zr} + (1 - x_{Zr}) K_{\epsilon-Pu} \} \quad (13)$$

여기서

$K_{\epsilon-Pu}$  : 식(5)로 계산한 플루토늄의 열전도도

$$k_{c,Pu,Zr} = -98.806 + 147.895x_{Zr} - 26.883x_{Zr}^2 + 0.0512T + 8.699 \times 10^{-6}T^2 - 0.0601x_{Zr}T$$

### 2.3 삼원합금 열전도도 모델

삼원계 합금의 열전도도를 유추하기 위해 그림5와 같이 조성과 열전도도의 관계를 가정해보았다. 삼각형을 I-IV의 네 가지 영역으로 나누면 I, II, III 영역에서는 하나의 원소가 주요 성분이 되며 그 성분의 격자 자리에 불순물 원자가 대체된 고용체로 생각할 수 있다. 선분 BC에 평행한 선분 MN위의 모든 점에서는 전체 불순물의 농도가 일정하며 그 위의 점 K의 위치에 따라 불순물 B와 C의 농도비는 달라진다. 끝점 M에서는 불순물 C의 농도가 0( $a_c = 0$ , 원자분율)이 되어 삼원계가 열전도도  $K_{AB}$ 를 갖는 이원계로 줄어드는 것으로 나타낼 수 있다. 다른 끝 점N에서도 마찬가지이다.

주요성분 A의 격자 자리에 C원자가 대체되면서 발생하는 교란이 B원자에 의한 것보다 더 크다면 열전도도는  $K_{AC}$ 가  $K_{AB}$ 보다 낮을 것이라고 가정할 수 있다. 또한 A의 격자 자리에 B와 C 원자가 모두 대체될 경우에도 이로 인한 교란이 이원계일 때보다 크다면 열전도도는  $K_{ABC}$ 가  $K_{AC}$ 나  $K_{AB}$ 보다 더 낮을 수 있다.

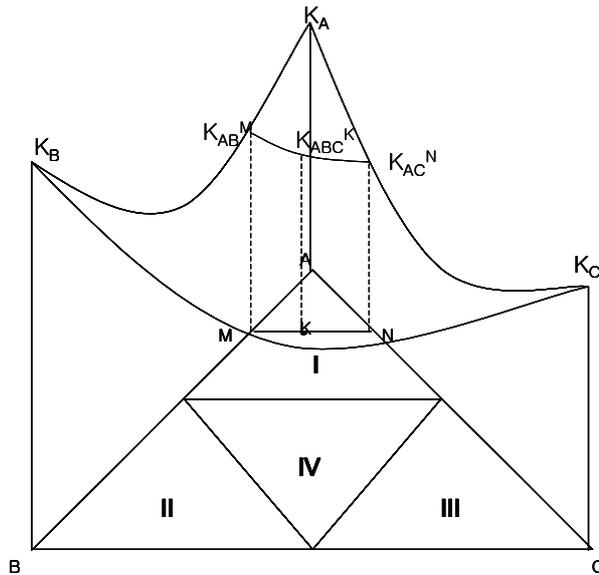


그림5. 삼원계 고용체의 조성 and 열전도도와의 관계

이러한 가정으로 삼원계 열전도도  $K_{ABC}$ 를 이원계 AB와 AC의 열전도도  $K_{AB}$ ,  $K_{AC}$ 와 각각의 부피분율  $v_{AB}$ ,  $v_{AC}$ 을 사용하여 다음 식(14)으로 나타낼 수 있다[8].

$$K_{ABC} = K_{AB}v_{AB}^2 + K_{AC}v_{AC}^2 + 4v_{AB}v_{AC} \frac{K_{AB}K_{AC}}{K_{AB} + K_{AC}} \quad (14)$$

여기서

$$v_{AB} = \frac{a_A a_B}{a_A a_B + a_A a_C + a_B a_C} \quad (15)$$

$$v_{AC} = \frac{a_A a_C}{a_A a_B + a_A a_C + a_B a_C}$$

$$v_{BC} = 1 - v_{AB} - v_{AC}$$

### 3. HYPER 연료에의 적용 및 타당성 검토

대표적인 HYPER 연료의 조성은 60(11.7wt%U-88.3wt%TRU)-40wt%Zr이다. 이는 전형적인 고속로 삼원합금 U-(17~18wt%)TRU-10wt%Zr과는 크게 다르다. 기존의 10wt%Zr 함량의 합금에 대해서는 식(16)의 관계식이 사용된다.

$$K = A + BT + CT^2 \quad (16)$$

$$A = 17.5 \left[ \frac{(1 - 2.23 x_{Zr})}{(1 + 1.61 x_{Zr})} - 2.62 x_{Pu} \right]$$

$$B = 1.54 \times 10^{-2} \left[ \frac{(1 + 0.06 x_{Zr})}{(1 + 1.61 x_{Zr})} + 0.9 x_{Pu} \right]$$

$$C = 9.38 \times 10^{-6} (1 - 2.70 x_{Pu})$$

HYPER 연료의 열전도도는 (16)식을 이용할 경우 열전도도가 음의 값을 나타내기 때문에 사용할 수 없다.

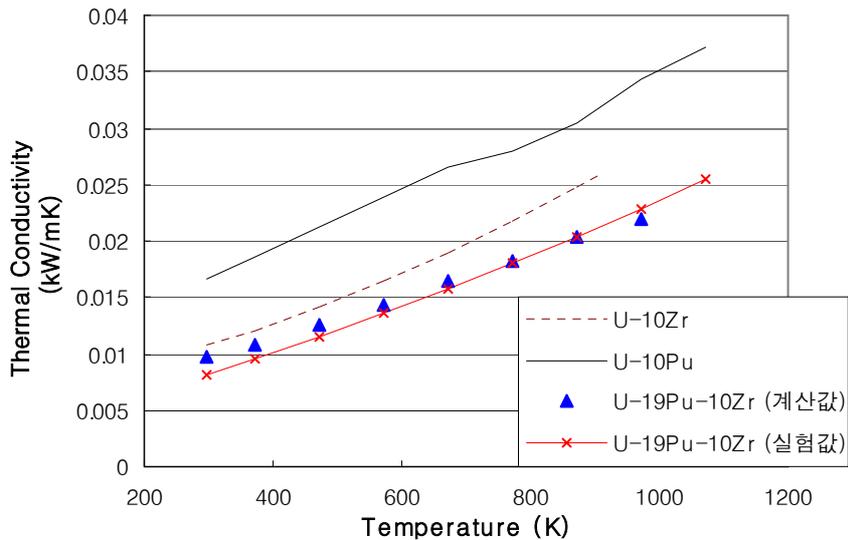


그림6. U-19Pu-10Zr을 이용하여 삼원계 열전도도 모델 검증

그림6은 U-19Pu-10Zr의 열전도도를 (14)식으로 계산하여 기존의 실험식(16)과 비교한 것이다. 이 (14)식을 이용한 값이 실험자료와 상당히 잘 맞는 것을 알 수 있다. 또한 U-10Pu의 열전도도가 673K와 873K에서 각각 0.0289, 0.0364kW/mK로 U-10Zr의 0.0250, 0.0305kW/mK보다 높으며 U-10Zr에 Pu이 첨가된 삼원 합금의 경우 더 낮은 열전도도 값을 갖을 것으로 예상되어 그림 6의 결과가 타당할 것이라 생각된다.

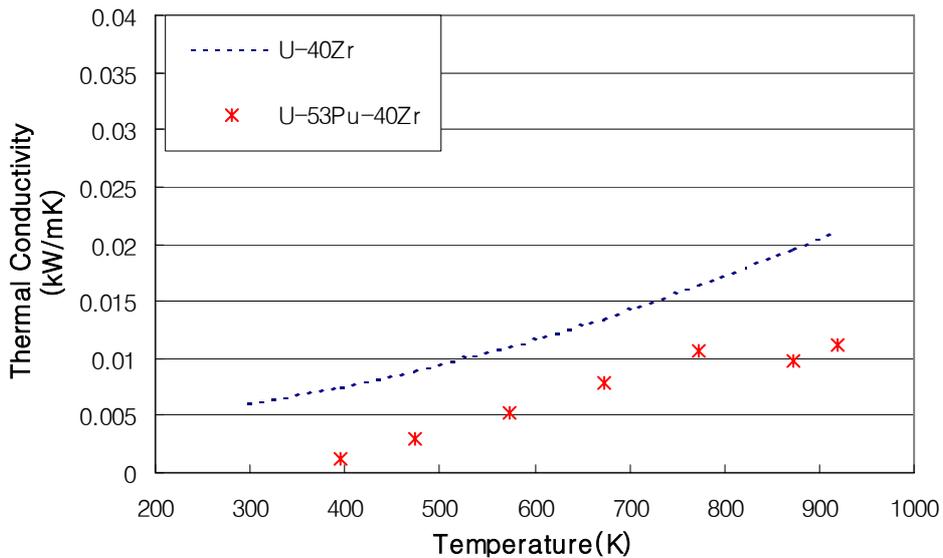


그림7. 60(11.7wt%U-88.3wt%Pu)-40wt%Zr의 열전도도 예상

그림7은 HYPER에 사용되는 핵연료의 열전도도를 (14)식을 사용하여 예상한 결과이다. U-Zr 이원합금에 Pu이 첨가됨에 따라 열전도도가 감소한다는 것은 분명하지만 아직 이에 대한 평가는 이루어지지 않고 있다. 그러나 열전도도를 보수적으로 고려할 경우 타당할 것으로 판단된다.

#### 4. 결론

HYPER용 삼원계 U-TRU-Zr의 열전도도 모델을 단일 원소 및 이원계 합금의 열전도도 모델에 기초하여 개발하였다. 기존의 고속로용 핵연료의 열전도도에 대한 실험값을 새로운 모델을 이용한 계산 결과와 비교하였다. 주요성분이 우라늄인 U-Zr, U-Pu의 열전도도를 이용하여 삼원계 U-TRU-10Zr의 열전도도를 계산하였으며, 그 결과가 실험값과 상당히 잘 일치함을 알 수 있었다. HYPER의 경우는 주요성분이 지르코늄으로 Zr-U, Zr-Pu의 열전도도를 이용하여 삼원계의 열전도도를 예상하였는데 아직까지 관련된 실험자료가 없기 때문에 새로운 모델의 타당성은 향후 실험적인 검증이 필요할 것으로 사료된다.

## 감사의 글

본 연구는 과학기술부의 원자력증장기 연구개발사업의 일환으로 수행되었습니다.

## 참고문헌

- [1]Y.S. Touloukian, et al., Thermophysical properties of matter, vol.1,IFI/Plenum, New York (1970)
- [2]Y. Takahashi, M. Yamawaki and K. Yamamoto, J. Nucl. Mater. 154(1988) 141
- [3]J.K. Fink and L. Leibowita, J. Nucl. Mater. 226 (1995) 44
- [4]V.E. Zinov'yev, Metals at High Temperatures, New York, Hemisphere Publishing Corp., 1990
- [5]M.W. Cappiello, AAA Quarterly Report Jan-Mar 2002, LA-UR-02-2630
- [6]F.G. Foote, Director H.H. Chiswik, et al., Annual Progress report for 1964 Matallurgy Division, ANL-7000, 1965
- [7]R. Landauer, J. Applied Physics. 23 (1952) 779
- [8]Yu.P Zarichnyak, T.A Lisnenko, J. Engineering Physics, 1175(1977)