

## 세라믹 핵연료의 열팽창 특성 검토

### A Review of the Thermal Expansion of Ceramic Fuels

강권호, 송기찬, 박창제, 류호진, 정인하, 박주환, 이영우, 나상호, 김시형, 양명승, 김형수,  
문홍수

한국원자력연구소  
대전광역시 유성구 덕진동 150

#### 요 약

UO<sub>2</sub> 핵연료, (U, Pu)O<sub>2</sub> 및 모의 사용후핵연료의 격자상수와 열팽창에 관한 자료들을 분석하여 최적의 모델을 제시하였다. 온도에 따른 격자상수를 이용하여 이론밀도를 계산하였고, 열팽창에 관한 모델을 이용하여 온도에 따른 밀도변화의 표준값을 제시하였다. 293 K에서 UO<sub>2</sub>의 격자상수는 0.54703 nm이며, 이때의 이론 밀도는 10.955 g/cc이다.

#### Abstract

Published experimental data relating to the thermal expansion of UO<sub>2</sub>, UO<sub>2+x</sub> and mixed (U, Pu) oxides is reviewed and recommendation put forward for the lattice parameter and the thermal expansion of these materials. The theoretical density at room temperature is calculated using the lattice parameter. The density variation calculated using the thermal expansion model is recommended. The lattice parameter and the theoretical density of UO<sub>2</sub> at 293 K is 0.54703 nm and 10.955 g/cc, respectively.

#### 1. 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 이용하

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

또한 사용후핵연료의 자원 재활용을 위한 건식 재가공 연구 등에도 열물성 데이터가 필요하며, 사용후핵연료의 중간저장을 위한 저장용기설계 및 영구처분을 위한 처분장 설계 등에도 열물성은 필수적인 자료이다.

핵연료의 열팽창은 열전도도와 함께 가장 중요한 물성으로, 피복관과 핵연료 간의 상호 응력, 핵연료와 피복관의 공극 열전도도에 영향을 미치는 물성이다. 특히 세라믹핵연료는 열전도도가 불량하여 반경방향으로 균열이 크게 발생하며, 이에 따른 부피팽창과 반경방향으로의 열팽창은 피복관에 원주방향의 인장 응력을 일으켜 연료봉을 손상시킬 수 있다. 또한 열확산도로 부터 열전도도를 구할 때 필요한 밀도변화를 열팽창자료로 구할 수 있다.

본 연구에서는  $UO_2$ , MOX, Spent PWR Fuel 등과 같은 우라늄 산화물 핵연료의 열팽창에 관해 지금까지 발표된 자료를 종합 분석하여 가장 적합한 모델을 제시하였다.

## 2. 재료의 열팽창 특성

대부분의 고체 재료는 열을 가하면 팽창하고, 냉각시키면 수축한다. 하나의 고체 재료에 대하여 온도의 변화에 따라 길이가 변하는 것을 다음과 같이 표현한다.

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \alpha_l \Delta T \quad (1-a)$$

또는 
$$\alpha_l = \left( \frac{1}{l_0} \right) \left( \frac{\partial l}{\partial T} \right), \quad \alpha_l = \left( \frac{1}{a_0} \right) \left( \frac{\partial a}{\partial T} \right) \quad (1-c)$$

여기서,  $l_0$ 와  $l_f$ 는 온도를  $T_0$ 에서  $T_f$ 로 변화시킬 때 초기 상태의 길이와 변화된 길이를 각각 표시한다. 또한  $a_0$ 와  $a$ 는 초기 격자상수(상온, 293 K)와 온도  $T$ 에서의 격자상수를 나타낸다. 계수  $\alpha_l$ 는 열팽창 선형 계수 (linear coefficient of thermal expansion)라고 하며 이 계수는 어떤 재료가 가열됨으로써 팽창되는 정도를 나타내는 재료 성질이며, 온도의 역수 ( $^{\circ}C^{-1}$  또는  $K^{-1}$ )로 표현되는 단위를 가지고 있다. 평균 열팽창 선형계수는 다음과 같이 정의 된다.

$$\alpha = \left( \frac{1}{a_0} \right) \left( \frac{a_T - a_{298}}{T - 298} \right) \quad (2)$$

물론 가열 또는 냉각시 3차원적 부피 변화가 일어난다. 온도에 따른 부피 변화는 다음 식으로 계산될수 있다.

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \alpha_v \Delta T \quad (3)$$

여기서,  $\Delta V$ 와  $V_0$ 는 각각 변화된 부피와 초기 부피를 나타내고,  $\alpha_v$ 의 값은 체적 계수이다.

원자적 관점에서 열팽창은 원자간 평균 거리의 증가를 나타낸다. (그림 1a 참조) 0 K에서 원자간 평형 거리  $r_0$ 는 위치 에너지의 최소값에 해당한다. 보다 높은 온도( $T_1, T_2, T_3, \dots$ )로 계속적으로 가열시키는 것은 진동 에너지를  $E_1, E_2, E_3, \dots$ 로 높여 주고 있다. 한 원자의 평균 진동 진폭은 각 온도에서의 골 넓이에 해당하며, 평균 원자간 거리는 평균 위치에 의하여 나타나고, 이 평균 위치는 온도의 증가에 따라  $r_0, r_1, r_2, \dots$ 로 증가하고 있다. 열팽창은 온도의 증가에 따라 증가되는 원자 진동 진폭에 의하기보다는 위치 에너지 골의 비대칭적 곡선에 의해 일어난다. 그림 1b에서 보는 것과 같은 대칭적 위치 에너지 곡선에서는 진동 에너지가 증가함에 따라 원자간 거리가 변화가 없으므로, 열팽창은 일어나지 않는다. 원자 결합 에너지가 크면 클수록 이러한 위치 에너지 골은 더욱더 좁아진다. 결과적으로 온도 증가에 따라 원자간 거리의 증가는 보다 낮아져 작은  $\alpha_1$ 의 값을 보여 준다. 따라서 결합에너지가 크면 클수록 녹는점은 높아지고 열팽창은 줄어든다. 일반적으로 열팽창 계수의 값은 온도 증가에 따라 증가하며, 이러한 열팽창 계수는 0 K 근처에서 특히 빠르게 증가한다.

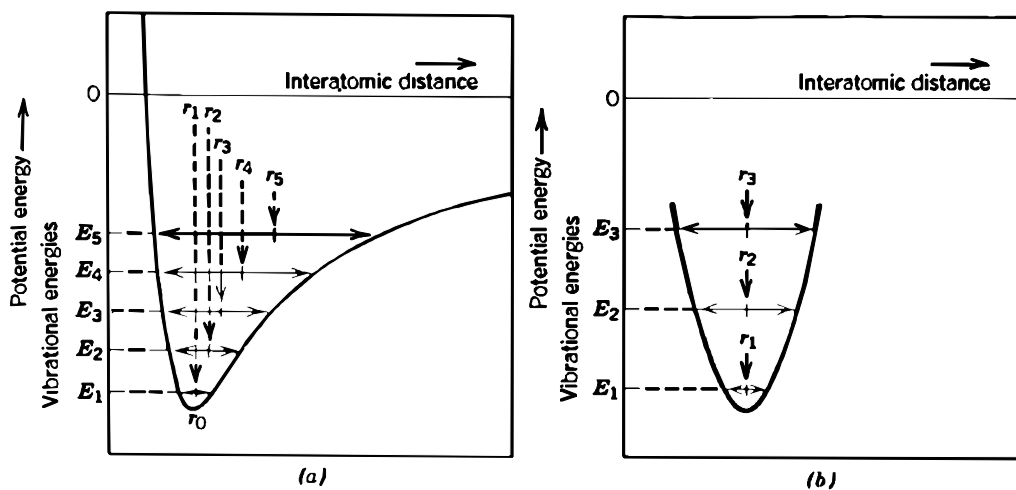


Fig. 1 Potential Energy versus Interatomic Distance

열팽창 연구는 크게 두 가지로 나누어진다. 하나는 macroscopic한 방법으로 시편의 온도에 따른 길이변화를 측정하는 것이며, 다른 하나는 microscopic한 방법으로 중성자나 X-ray를 이용하여 온도상승에 따른 격자 상수 (lattice parameter)를 측정하는 것이다. 이론적으로 격자 열팽창 측정이 길이 변화 측정보다 적은 열팽창 값을 나타낼 것이다. 이는 격자 열팽창은 단지 원자배열의 간격 증가만을 측정하고, thermal vacancy의 형성에 의한 팽창은 고려하지 않기 때문이다. 격자상수를 측정하는 방법은 물질 고유의 열팽창을 측정할 수 있으며, 길이변화를 측정하는 방법은 시편내부의 defect, 불순물 등의 영향이 반영된 열팽창을 측정할 수 있다. Eshelby [1]는 이론적으로, Balluffi와 Simmons [2]는 실험적으로 bulk expansion,  $\Delta l/l$  과 lattice expansion,  $\Delta a/a$ 의 차이를 밝혀냈다. 즉, cubic crystal에서 열적으로 생성된 Schottky defects가 두가지 열팽창의 차이를 일으킨다. 결합 농도는 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$\Delta N/N = 3(\Delta l/l - \Delta a/a) \quad (4)$$

또한 Boltzmann 관계식에 의해 온도의 함수로 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\Delta N/N = \nu B \exp(-W/kT) \quad (5)$$

### 3. 자료 종합 및 분석

본 연구에서  $UO_2$ ,  $UO_{2+x}$ ,  $PuO_2$ ,  $(U,Pu)O_{2+x}$ ,  $(U,Th)O_2$  및 불순물이 포함된 핵연료들의 열팽창에 관해 검토한 자료들은 표1에 나타내었다.

Table 1. List of reviewed data

Researcher	Material	Method	Temp. K	Remark
Gronvold [3]	$UO_2 \sim U_3O_8$	XRD	293~1219	L.P. of $UO_2$ diminish with increasing oxygen content up to $UO_{2.25}$ a = 0.54704 nm (293 K) a = $10.8 \times 10^{-6} K^{-1}$ (20~946 °C)
Burdick [4]	$UO_2$		300~1533	
Lambertson [5]	$UO_2$		291~1223	
Conway [6]	$UO_2$	Micrometer	1273~2523	
Ferguson [7]	$UO_{2.235}$	XRD	~1300	
Roth [8]	$UO_{2.08}$ , $UO_{2.24}$ $PuO_2$ , $(U, Pu)O_2$ ,	XRD	~1473	

Table 1. List of reviewed data(continued)

Researcher	Material	Method	Temp. K	Remark
Baldock [9]	UO <sub>1.991</sub> , UO <sub>1.984</sub>	XRD	293~2573	a = 0.54704 nm (296 K) α = 10.8×10 <sup>6</sup> K <sup>-1</sup> (20~2300 °C) α = 10.4×10 <sup>6</sup> K <sup>-1</sup> (20~900 °C)
Tokar [10]	PuO <sub>2</sub>	Bulk	298~1693	
Lorenzelli [11]	(U,Pu)O <sub>1.939</sub> (U,Pu)O <sub>1.954</sub> (U,Pu)O <sub>1.992</sub>	Bulk	298~1573	
Albinati [12]	UO <sub>2</sub>	Neutron	293~1733	a = 0.5471 nm (293 K)
Hutchings [13]	UO <sub>2</sub> , ThO <sub>2</sub>	Neutron	293~2930	a = 0.5470 nm (293 K)
Martin [14]	UO <sub>2</sub> , UO <sub>2+x</sub> (U,Pu)O <sub>2</sub> , (U,Pu)O <sub>2+x</sub>	Review	273~3120	Recommended eq. for UO <sub>2</sub> may be employed to describe the thermal expansion in UO <sub>2+x</sub> and (U,Pu)O <sub>2</sub> α=10.38×(1+3.98x)
Harding [15]	UO <sub>2</sub> , UO <sub>2+x</sub> (U,Pu)O <sub>2</sub> , (U,Pu)O <sub>2+x</sub>	Review	273~3120	L.P. of UO <sub>2</sub> : 0.54704 nm at 273 K ρ of UO <sub>2</sub> : 10.963 Mg/m <sup>3</sup> at 273 K α of UO <sub>2+x</sub> : 0.54691-0.0112 x
Momin [16]	UO <sub>2</sub> +F.P. (U,Th)O <sub>2</sub> +F.P.	XRD	291~1223	(UO <sub>2</sub> +F.P.) ⇒ decrease the L.P. (UO <sub>2</sub> +Ln <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ) ⇒ increase the C.T.E ⇒ reduce bonding E (UO <sub>2</sub> +Ln <sub>2</sub> O <sub>3</sub> +ZrO <sub>2</sub> +MO) ⇒ decrease the C.T.E ⇒ increase bonding E a = 0.5469 nm (293 K) α = 10.8×10 <sup>6</sup> K <sup>-1</sup> (25~1327 °C)
Yamashita [17]	ThO <sub>2</sub> , UO <sub>2</sub> , NpO <sub>2</sub> , PuO <sub>2</sub> ,	XRD	~1300	The C.T.E of actinide dioxides are in inverse relation to their MP T.E. of UO <sub>2</sub> is similar to that of PuO <sub>2</sub> a = 0.54699 nm (293 K)
Yamashita [18]	N <sub>y</sub> U <sub>1-y</sub> UO <sub>2</sub>	XRD	~1273	
Fink [19]	UO <sub>2</sub>	Review	~1473	Recommend eq. by Slagle in 1981 Recommend eq. by Martin in 1981
Anthony'samy [20]	U <sub>y</sub> Th <sub>1-y</sub> UO <sub>2</sub>	XRD	~1973	
Tyaggi [21]	ThO <sub>2</sub> , ThO <sub>2</sub> -2%UO <sub>2</sub>	XRD	~1473	
Popov [22]	UO <sub>2</sub> , MOX	Review		Recommend eq. by Martin
Carbajo [23]	UO <sub>2</sub> , UO <sub>2+x</sub> (U,Pu)O <sub>2</sub> , (U,Pu)O <sub>2+x</sub>	Review		Recommend eq. by Martin
Kang [24]	UO <sub>2</sub> , Simulated Spent Fuel	Neutron	293~1273	a = 0.54719 (293 K) α = 10.47×10 <sup>6</sup> K <sup>-1</sup> (298~1273 K)

### 3.1 격자상수

#### 가. $UO_2$ 의 격자상수

$UO_2$ 의 격자상수는 Gronvold [3], Baldoock [9], Albinati [12], Hutchings [13], Momin [16], Yamashita [17] 및 Kang [24] 등에 의해 연구되었다. 표 1에 따르면 293 K에서 격자상수는 각 연구원이 측정한 값을 평균한 결과 0.54703 nm로 나타났다. 각 연구원의 측정결과와 평균 값의 최대 편차는 약 0.02% 정도에 불과할 정도로 꽤 정확한 측정이 이루어진 것으로 나타났다. 따라서 293 K의 온도에서 격자상수는 다음과 같이 추천할 수 있다.

$$\text{Lattice Parameter of } UO_2 \text{ at } 293 : 0.54703 \text{ nm} \quad (R-1)$$

그림 2는 온도에 따른 격자상수의 변화를 나타낸 것이다. 약 1700 K까지는 여러 연구결과가 비슷하게 나타났으나 그 이상의 온도에서는 Hutchings의 데이터와 Gronvold의 데이터가 차이를 보이는 것으로 나타났다. 이처럼 상온에서 거의 유사한 결과를 보였으나 고온의 영역에서 상이함을 나타내는 것은 pyrometer를 이용한 온도 측정의 부정확 때문으로 생각된다. 각 연구원들의 데이터를 종합하여 fitting한 결과 온도에 따른 격자상수의 변화는 다음 식으로 추천할 수 있다.

$$a_{UO_2} = 0.54476 + 7.85795 \times 10^{-6} T - 2.682 \times 10^{-9} T^2 + 9.6918 \times 10^{-13} T^3 \pm 4.9892 \times 10^{-4} \quad (R-2)$$

#### 나. $UO_{2+x}$ 의 격자상수

$UO_{2+x}$ 의 격자상수는 Gronvold [3], Ferguson [7] 및 Roth [8] 등에 의해 연구되었다. 그림 3은 온도에 따른  $UO_{2+x}$ 의 격자상수 변화를 나타낸 것이다. Gronvold [3]의 실험결과에서 O/U 비가 증가할수록 격자상수는 줄어드는 것으로 나타났으나, Roth 등 [9]의 결과에 의하면  $UO_{2.24}$ 와  $UO_{2.08}$ 의 차이는 거의 없는 것으로 나타났다. Gronvold [3]가 측정한  $UO_{2.25}$ 와 Ferguson과 Street [7]가 측정한  $UO_{2.235}$ 를 제외한 대부분  $UO_{2+x}$ 의 격자상수는  $UO_2$ 와 비교해서 약간 작게 나타났다. 293 K에서  $UO_{2+x}$ 의 격자 상수를 다음과 같이 Harding 등 [15]의 식을 이용하여 추천할 수 있다.

$$a_{UO_{2+x}} = 0.54691 - 0.0112 x, \text{ nm}, \quad x \leq 0.25 \quad (R-3)$$

여기서  $x$ 는 stoichiometric과의 차이를 나타낸다.

$UO_{2.05} \sim UO_{2.20}$ 의 온도에 따른 격자상수 변화는 다음과 같이 하나의 식을 추천할 수 있다.

$$a_{UO_{2+x}} = 0.54528 + 5.0442 \times 10^{-6} T + 3.799 \times 10^{-10} T^2 - 3.24184 \times 10^{-15} T^3 \pm 3.105 \times 10^{-4} \quad (R-4)$$

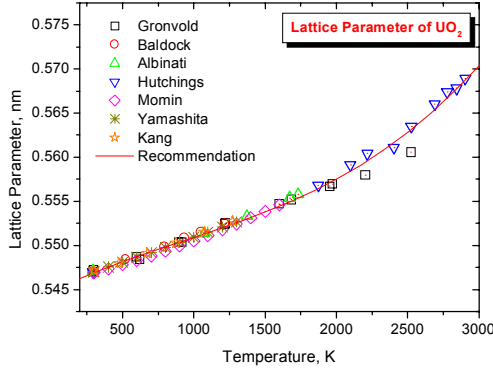


Fig. 2. Lattice parameters of  $UO_2$  as a function of temperature.

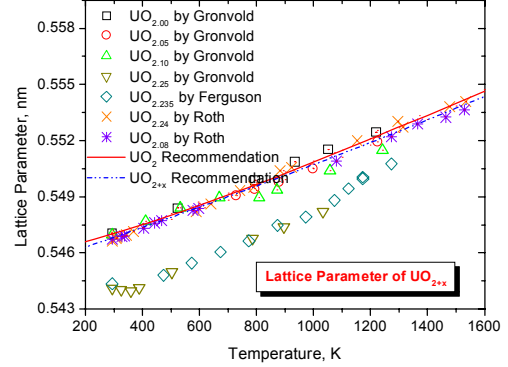


Fig. 3. Lattice parameters of  $UO_{2+x}$  as a function of temperature.

다. 혼합 핵연료의 격자상수

MOX의 격자상수는 Roth 등 [8]와 Yamashita 등 [17]에 의해 연구되었다. 그림 4는 Roth 등 [8]이 측정한 273 K에서 혼합핵연료의 격자상수를 Pu의 농도를 변수로 하여 그린 것이다.  $PuO_2$ 는  $UO_2$ 에 전 범위에 걸쳐서 완전 고용되며, Vegard 법칙을 잘 따르는 것으로 나타났다. Pu의 농도에 따른 혼합핵연료의 격자상수는 다음의 식으로 추천할 수 있다.

$$a = 0.54662 - 7.469 \times 10^{-5} c \pm 1.75414 \times 10^{-4}, \text{ nm} \quad (R-5)$$

여기서  $c$ 는 Pu의 wt%, 마지막 항은 표준편차를 나타낸다.

그림 5는 온도에 따른  $PuO_2$ 의 격자상수를 나타낸 것이다.  $PuO_2$ 의 온도에 따른 격자상수는 Yamashita 등 [17]이 구한 식을 추천하여 다음식으로 나타낼 수 있다.

$$a = 0.5381 + 4.452 \times 10^{-6} T + 0.7184 \times 10^{-9} T^2 + 0.199 \times 10^{-13} T^3 \pm 3.7 \times 10^{-5} \quad (R-6)$$

라. 모의 사용후핵연료의 격자상수

Kang 등 [24]은 중성자회절을 이용하여 모의 사용후핵연료의 격자상수를 측정하였다. 그림 6은 상온에서 연소도에 따른 격자상수의 변화를 나타낸 것이다. 자료가 충분하지 않고, Une [25]등과 Cobo [26]등의 자료는 산화상태가 명확하지 않으나, Lucuta [27]

등의 자료는 Stoichiometry 조건이 명시되어 있다. 따라서 본 연구에서는 Lucuta 등의 자료를 이용하여 연소도에 따른 격자상수 변화를 다음의 식으로 추천한다.

$$a = 0.54706 - 1.08482 \times 10^{-4} B + 3.56457 \times 10^{-6} B^2 \pm 1.0356 \times 10^{-5} \quad (R-7)$$

여기서 B는 연소도(at%)를 나타낸다.

그림 7은 Kang 등이 구한 온도에 따른 연소도 2.0 at%의 모의 사용후핵연료의 격자상수 변화를 나타낸 것이다. 온도에 따른 격자상수에 대한 자료가 부족하여 Kang 등이 제시한 값을 본 연구에서 추천한다.

$$a = 0.54578 + 2.45728 \times 10^{-6} T + 3.96164 \times 10^{-9} T^2 - 1.34114 \times 10^{-12} T^3 \quad (R-8)$$

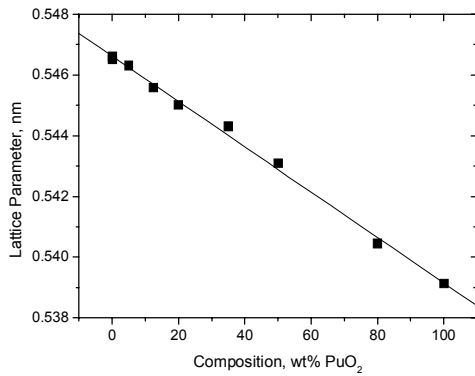


Fig. 4. Lattice parameters of PuO<sub>2</sub> as a function of contents of Pu

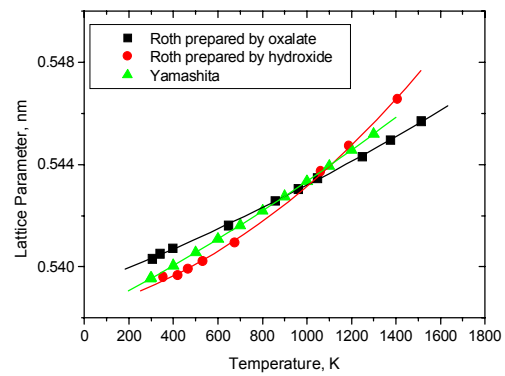


Fig. 5. Lattice parameters of PuO<sub>2</sub> as a function of temperature

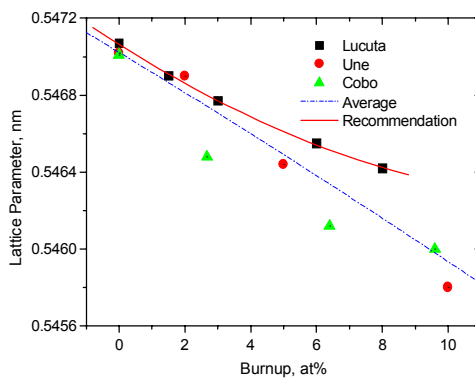


Fig. 6. Lattice parameters of SIMFUEL as a function of burnup

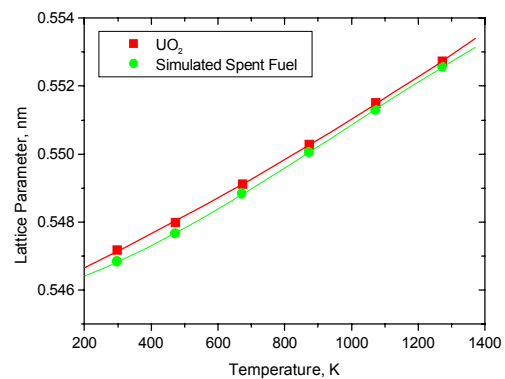


Fig. 7. Lattice parameters of SIMFUEL as a function of temperature



### 3.2 열팽창

#### 가. $UO_2$ 의 열팽창

$UO_2$ 의 열팽창에 관한 연구는 Gronvold [3], Burdick [4], Lambertson [5], Conway [6], Baldock [9], Albinati [12], Hutchings [13], Yamashita [17], Kang [24] 등에 의해 수행되었다. 그림 8은  $UO_2$ 의 열팽창을 나타낸 것이다. Martin [14]은 기존의 자료들을 검토하여 최적의 식을 제시하였다. 그는 923 K 이하의 온도범위와 그 이상의 온도범위로 나누어 열팽창식을 제시하였다. 또한 격자상수를 이용하여 구한 열팽창과 길이변화를 측정 한 열팽창간의 차이의 원인이 되는 Schottky defects의 영향은 2523 K까지는 무시할 수 있다고 하였다. Harding [15], Popov [22], Fink [19] 및 Carbajo [23] 등도 여러 열물성을 검토한 보고서등을 통해 Martin의 모델을 추천하였다. 본 연구에서는 온도구간을 나누지 않고 하나의 식으로 열팽창에 관한 모델을 다음과 같이 추천한다.

$$dL/L_0, \% = -0.35735 + 0.00123T - 2.89486 \times 10^{-7}T^2 + 1.29937 \times 10^{-10}T^3 \pm 0.07611 \quad (R-9)$$

#### 나. $UO_{2+x}$ 의 열팽창

$UO_{2+x}$ 의 열팽창에 관한 연구는 Gronvold [3], Ferguson [7] 및 Roth [8] 등에 의해 연구가 수행되었다. Martin [14]은  $UO_{2+x}$ 의 데이터가  $UO_2$ 의 오차 범위 안에 있기 때문에  $UO_2$ 의 열팽창 모델식을 1520 K 까지의 온도범위에서  $x$ 가 0.0~0.13 및 0.235~0.25 범위의  $UO_{2+x}$ 의 열팽창에도 적용할 수 있다고 발표했다. 본 연구에서는 다음과 같이  $UO_{2+x}$ 의 열팽창에 관한 모델식을 추천한다.

$$dL/L_0, \% = -0.1064 + 1.1005 \times 10^{-4}T + 1.1042 \times 10^{-6}T^2 - 3.7096 \times 10^{-10}T^3 \pm 0.07047 \quad (R-10)$$

그림 9는  $UO_{2+x}$ 의 열팽창을 나타낸 것이다. Martin의  $UO_2$ 에 관한 열팽창식과 본 연구에서 제시한  $UO_2$ 에 관한 모델식 및  $UO_{2+x}$ 의 모델식이 매우 유사한 값을 나타내고 있다.

#### 다. 혼합 핵연료의 열팽창

혼합 핵연료의 열팽창 연구는 Roth [8], Tokar [10], Lorenzelli [11], Yamashita [17] 등에 의해 수행되었다. 그림 11은  $PuO_2$ 의 열팽창을 나타낸 것이다.  $PuO_{2-x}$ 의 열팽창이  $PuO_2$ 보다 크게 나타났다. 그림 12는 (U, Pu) $O_2$ 의 열팽창을 나타낸 것이다. Martin [14]은 Pu의 농도가 25%까지의 혼합 핵연료에도  $UO_2$ 의 열팽창 모델과 같은 모델이 2300 K 까지의 범위에서 적용될 수 있다고 발표했다. 그는 Hypostoichiometric 혼합 핵연료의 경우 293~1273 K의 온도 범위에서 다음의 식을 제시하였다.

$$a = 10.38 (1 + 3.98 x)$$

$$(R-11)$$

여기서  $x$ 는 stoichiometric과의 차이를 나타낸다.

본 연구에서는  $\text{PuO}_2$ 의 열팽창 식을 다음과 같이 추천한다.

$$dL/L_0, \% = -0.2094 + 6.1586 \times 10^{-4} T + 3.5083 \times 10^{-7} T^2 - 4.9195 \times 10^{-11} T^3 \pm 0.01924 \quad (R-12)$$

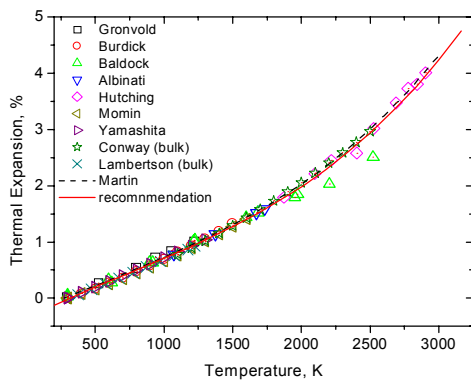


Fig. 8. Thermal expansion of  $\text{UO}_2$  as a function of temperature

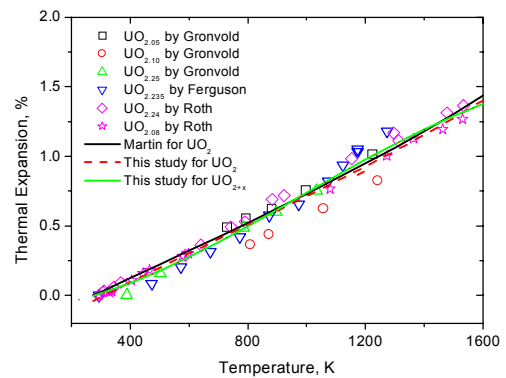


Fig. 9. Thermal expansion of  $\text{UO}_{2+x}$  as a function of temperature

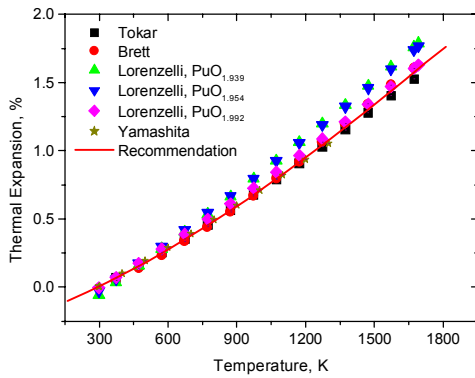


Fig. 10. Thermal expansion of  $\text{PuO}_2$  as a function of temperature

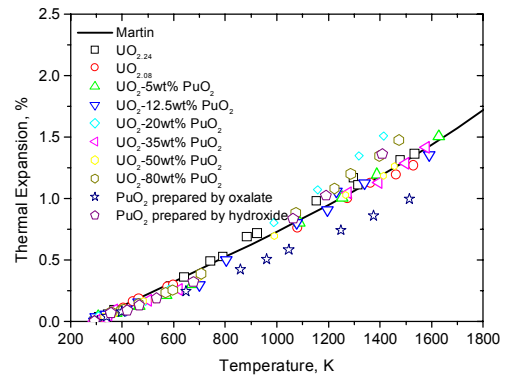


Fig. 11. Thermal expansion of  $(\text{U, Pu})\text{O}_2$  as a function of temperature

라. 모의 사용후핵연료의 열팽창

모의 사용후핵연료의 열팽창 관련 연구는 Kang [24]등에 의해 수행되었다. 그림 12는 모의 사용후핵연료의 열팽창을 나타낸 것이다. 500 K 이하의 저온 영역에서는  $UO_2$ 와 거의 비슷한 열팽창을 보이나 온도가 증가할 수록 모의 사용후핵연료의 열팽창이 더 크게 나타났다. 이는  $UO_2$ 내에 고용된 원소들로 인해 결합력이 줄어들었기 때문으로 생각된다. 모의 사용후핵연료의 열팽창은 다음의 식으로 나타낼 수 있다.

$$dL/L_0, \% = -0.193 + 4.494 \times 10^{-4}T + 7.245 \times 10^{-7}T^2 - 2.453 \times 10^{-10}T^3 \pm 0.0045 \quad (R-13)$$

### 3.3 밀도변화

293 K에서 이론 밀도는 293 K에서의 격자상수 0.54703 nm를 이용하여 다음과 같이 추천한다.

$$\rho_{293} = 10.955 \text{ kg/m}^3 \quad (R-14)$$

그림 13은 격자상수를 이용하여 온도변화에 따른 이론 밀도 변화를 나타낸 것이다.  $UO_2$ 와  $UO_{2+x}$ 는 매우 유사한 밀도 변화를 나타내고 있다. 온도에 따른 이론밀도 변화는 다음과 같이 온도의 함수로 나타낼 수 있다.

for  $UO_2$

$$\rho_T = 11.09092 - 4.69672 \times 10^{-4}T + 1.59223 \times 10^{-7}T^2 - 5.49055 \times 10^{-11}T^3 \pm 1.40474 \times 10^{-4} \quad (R-15)$$

for  $UO_{2+x}$

$$\rho_T = 11.06106 - 3.06967 \times 10^{-4}T - 1.74435 \times 10^{-7}T^2 + 9.73995 \times 10^{-11}T^3 \pm 1.0213 \times 10^{-7} \quad (R-16)$$

for  $PuO_2$

$$\rho_T = 11.76418 - 2.91434 \times 10^{-4}T - 4.32419 \times 10^{-8}T^2 + 8.13469 \times 10^{-13}T^3 \pm 7.76034 \times 10^{-6} \quad (R-17)$$

## 4. 결 론

$UO_2$  핵연료,  $(U, Pu)O_2$  및 모의 사용후핵연료의 열팽창에 관한 자료들을 분석하여 다음과 같은 결과를 얻었다.

1. 293 K에서  $UO_2$ 의 격자상수는 0.54703 nm이며, 이때의 이론 밀도는 10.955 g/cc이다.

2.  $UO_{2+x}$ 의 격자상수는  $x \leq 0.25$ 의 범위에서  $\alpha_{UO_{2+x}} = 0.54691 - 0.0112x$  (nm)로 나타낼 수 있으며 이를 이용하여 이론밀도를 구할 수 있다.
3. 온도에 따른 격자상수와 이를 이용한 이론밀도변화등을 제시하였다.
4. 열팽창 모델에 대해 온도의 함수로 나타내었다.
5. 이상의 결과는 핵연료의 성능평가에 활용될 수 있을 것으로 생각된다.

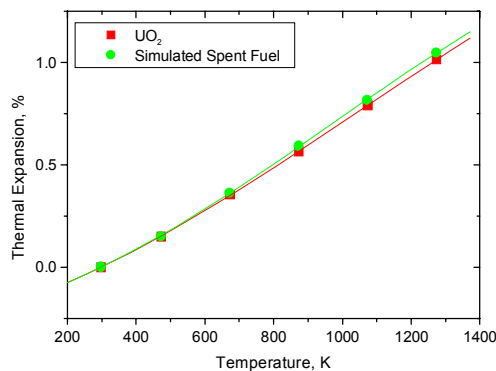


Fig. 12. Thermal expansions of simulated fuel and  $UO_2$  as a function of temperature.

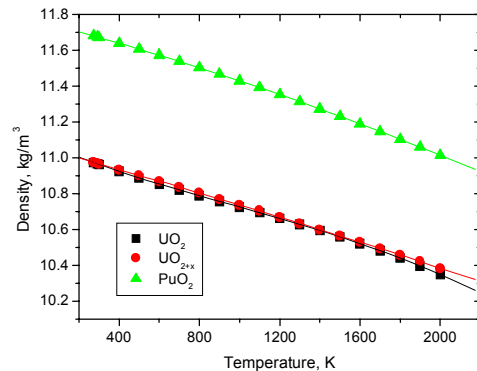


Fig. 13. Density variation of  $UO_2$ ,  $UO_{2+x}$  and  $PuO_2$  as a function of temperature

#### 참고문헌

1. J. D. Eshelby, J. App. Phys. 31 (1954) 2284
2. R. W. Balluffi and R. O. Simmons, J. App. Phys. 31 (1960) 2284
3. F. Gronvold, J. Inorganic and Nuclear Chemistry, 1 (1955) 357
4. Burdick and Parker, J. Am. Ceram. Soc. 39 (1956) 181
5. W. A. Lambertson and J. H. Handwerk, USAEC Report, ANL-5053 (1956)
6. J.B. Conway and R.M. Fined, Trans. Am. Nucl. Soc. 6 (1963) 153.
7. I.F. Ferguson and R.S. Street, Harwell memo AERE M 1192 (1963).
8. J. Roth, M.E. Hubert, J.R. Cherry and C.S. Caldwell. Trans. Am. Nucl. Soc. 10 (1967) 457.
9. P.J. Baldock, W.E. Spindler and T.W. Baker, J. Nucl. Mater. 18 (1966) 305
10. M. Tokar, A.W. Nutt and T.E. Keenan. Nucl. Technol. 17 (1973) 147.

11. R. Lorenzelli and M. El Sayed Ali, *J. Nucl. Mater.* 68 (1977) 100.
12. A. Albinati, *Acta Cryst. A* 36 (1981) 265
13. M.T. Hutchings, *J. Chem. Soc, Faraday Trans. 2*, 83, (1987) 1083
14. D.G. Martin, *J. Nucl. Mater.* 152 (1988) 94
15. J.H. Harding, D.G. Martin and P.E. Potter, UKAEA Report EUR-12402 (1981)
16. A.C. Momim, E.B. Mirza and M.D. Mathews, *J. Nucl. Mater.* 185 (1991) 308
17. T. Yamashita, N. Nitani, T. Tsuji and H. Inagaki, *J. Nucl. Mater.* 245 (1997) 72
18. T. Yamashita, N. Nitani, T. Tsuji and T. Kato, *J. Nucl. Mater.* 247 (1997) 90
19. J.K. Fink, *J. Nucl. Mater.* 279 (2000) 1
20. S. Anthonysamy, G. Panneerselvam, Santanu Bera, S.V. Narasimhan, P.R. and Vasudeva Rao, *J. Nucl. Mater.* 281 (2000) 15
21. A.K. Tyagi and M.D. Mathews, *J. Nucl. Mater.* 278 (2000) 123
22. Popov
23. Juan J. Carbajo, Gradyon L. Yoder, Sergey G. Popov and Victor K. Ivanov, *J. Nucl. Mater.* 299 (2001) 181
24. K.H. Kang, H.J. Ryu, K.C. Song and M.S. Yang, *J. Nucl. Mater.* 301 (2002) 242
25. K. Une, Y. Tominaga and S. Kashibe, *J. Nucl. Sci. Tech.* 28(5) (1991) 409.
26. J. Cobos, D. Papaioannou, J. Spino and M. Coquerelle, *J. Alloy Comp.* 271 (1998) 610
27. P.G. Lucuta, R.A. Verrall, H.J. Matzke and B.J. Palmer, *J. Nucl. Mater.* 178 (1991) 48