

DETR.PD-072/78

TÍTULO
 CONDUTIVIDADE TÉRMICA DE SOLUÇÕES SÓLIDAS DE $(Th,U)O_2$

NOTAS CORRELATAS
 DETR.PD 077/79
 DETR.PD 098/80

OBJETIVO
 Determinar uma expressão geral para a condutividade térmica de soluções sólidas de $(Th,U)O_2$.

LISTA DE DISTRIBUIÇÃO

SUPED	* (1)	Neste trabalho é proposta uma expressão geral para a condutividade térmica de soluções sólidas de $(Th,U)O_2$, com a composição do material variando de 0 a 10% de UO_2 (em moles). Toda a amostragem utilizada, proveniente de diversos autores, é constituída de materiais não irradiados e limitada a uma porosidade máxima de 10%. A expressão geral obtida nos fornece a condutividade térmica em termos da porosidade do material, composição e temperatura. Valores fornecidos por esta expressão comparados aos dados experimentais e a outros modelos disponíveis nos mostra a boa qualidade de ajuste da mesma. É feita também comparação entre a condutividade térmica do UO_2 puro com a do $ThO_2-5\%UO_2$, combustível este de possível interesse para reatores tipo PWR.
ASPC.PD	* (1)	
DETR.PD	(2)	
DIAAC.PD	()	
DIECB.PD	(1)	
DIFNU.PD	()	
DISCO.PD	()	
DITES.PD	()	
LABFRE.PD	()	
LABTEH.PD	()	
AUTOR(ES)	(2)	
SEDOTE.PD	(1)	

RESUMO E CONCLUSÕES

ÍNDICE

1. Introdução	1/15
2. Equação Geral da Condutividade térmica	2/15
Referências	6/15
Figuras	8/15

OUTROS
 DITCO.PD (1)
 * Apenas folha de rosto



Nº. CÓPIAS 09

AUTOR (ES)	VISTO	DATA	APROVAÇÃO	VISTO	DATA
DIAS, M.S.	<i>[Signature]</i>	19/06/80	CHEFE DO LAB. OU GRUPO		
SABIONI, A.C.S.	<i>[Signature]</i>	19/06/80	CHEFE DA DIVISÃO	<i>[Signature]</i>	20/06/80
			CHEFE DO DEPARTAMENTO	<i>[Signature]</i>	16. 80
CLASSIFICAÇÃO	TAREFA: 11.21				

CONDUTIVIDADE TÉRMICA DE SOLUÇÕES SÓLIDAS DE (Th,U)O₂

1. INTRODUÇÃO

Neste trabalho procuramos obter uma expressão geral para a condutividade térmica de soluções sólidas de (Th,U)O₂, contendo até 10% de UO₂ (em moles), uma porosidade máxima de 10% e válida para temperaturas até a fusão do material.

A amostragem utilizada tem a seguinte distribuição:

Material	Número de Amostras	Ref.
ThO ₂	6	[1,2,3,4,5,6]
ThO ₂ -1,0% UO ₂	2	[1,2]
ThO ₂ -1,97% UO ₂	1	[3]
ThO ₂ -3,00% UO ₂	2	[2,7]
ThO ₂ -5,00% UO ₂	2	[1,2]
ThO ₂ -5,03% UO ₂	1	[3]
ThO ₂ -5,87% UO ₂	1	[3]
ThO ₂ -9,82% UO ₂	1	[3]
ThO ₂ -8,87% UO ₂	1	[3]
ThO ₂ -10,0% UO ₂	8	[1,2,5,8,9]

Toda a amostragem é constituída de materiais não-irradiados, provenientes de vários autores.

2. EQUAÇÃO GERAL DA CONDUTIVIDADE TÉRMICA

Na montagem da equação geral da condutividade térmica foram feitas as seguintes considerações abaixo:

Adotamos a equação de Berman et al. [3] para a condutividade da rede, visto que esta equação relaciona a variação da condutividade térmica da solução sólida com a fração molar de UO₂(y) e a temperatura (T). A forma geral desta expressão é:

$$K_r = \frac{1}{A_0 + A_1 y + A_2 y^2 + (B_0 + B_1 y + B_2 y^2) T} \quad (1)$$

Esta equação teve seus coeficientes A_0, A_1, A_2, B_0, B_1 e B_2 determinados, empiricamente, por ajuste aos dados experimentais na faixa de temperaturas entre 200 e 1000°C, sendo esta última temperatura considerada por nós como sendo o valor limite para a condutividade da rede segundo a lei $1/k = A+BT$. A partir desta temperatura a condução da rede é fornecida por extrapolação.

O ajuste foi feito através do Programa GMAR [11], para todas as amostras corrigidas para 95%DT, e os valores obtidos para coeficientes são mostrados na página 4.

Tendo em vista que os valores usados no ajuste de (1) estavam corrigidos para 95%DT, para qualquer outro valor entre 90 e 100 %DT, usaremos o fator de correção.

$$F = 1,114 \left[\frac{1 - P}{1 + \beta P} \right] \quad (2),$$

onde β é usado com valor médio de 1,17, valor este obtido empiricamente.

Conforme é verificado experimentalmente, a condutividade térmica do UO_2 , a altas temperaturas tende a aumentar, principalmente devido à contribuição de natureza eletrônica. [10, 12, 13]

Para tória pura e demais materiais utilizados neste trabalho não foi possível constatar comportamento similar, para a faixa de temperaturas disponíveis.

Sendo assim, procurando-se levar em conta tal comportamento para o material utilizado, a altas temperaturas, adotamos expressões empíricas, propostas por Himes [10] para contribuição eletrônica às condutividades térmicas de ThO_2 , ou seja,

$$\frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \cdot \exp\left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T}\right) \quad \text{e} \quad \frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \cdot \exp\left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T}\right),$$

respectivamente e que consideramos variar linearmente entre 0 e 10% de UO_2 , aproximação esta válida para nossos fins. Assim, a contribuição eletrônica à condutividade térmica será:

$$K_e = y \cdot \frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \cdot \exp\left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T}\right) + (1-y) \cdot \frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \cdot \exp\left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T}\right) \quad (3)$$

Portanto, a expressão geral para a condutividade térmica resultante de (1), (2) e (3) será:

$$K = F \cdot K_r + K_e, \text{ ou ainda,}$$

$$K = F \cdot \frac{1}{A_0 + A_1 y + A_2 y^2 + (B_0 + B_1 y + B_2 y^2) T} + y \cdot \frac{C}{T^2} \exp\left(\frac{-E_1}{T}\right) + (1-y) \cdot \frac{C}{T^2} \exp\left(\frac{-E_2}{T}\right) \quad (4)$$

onde os coeficientes têm os seguintes valores:

$$A_0 = 1,53$$

$$A_1 = 31,2$$

$$A_2 = -93$$

$$B_0 = 0,0203$$

$$B_1 = 0,077$$

$$B_2 = -0,55$$

$$E_1 = 1,8 \times 10^4$$

$$E_2 = 3,72 \times 10^4$$

$$C = 8,49 \times 10^7$$

F: Fator de correção da Porosidade;

y: Fração molar de UO_2 ;

T: $^{\circ}K$

K: $W/cm^{\circ}K$

sendo o desvio padrão $\sigma = 4,2 \times 10^{-3} W/cm.^{\circ}K$

Nas Figuras 1,2,3 e 4 estão os valores experimentais da condutividade térmica para 0;3; 5 e 10% de UO_2 , respectivamente, corrigidas para 95%DT, e as respectivas curvas fornecidas por (4).

As Figuras 5,6 e 7 comparam nosso ajuste com aquele proposto por Himes [10], para soluções sólidas com 0;5 e 10% de UO_2 , respectivamente, todas com 95%DT.

A expressão proposta por Himes tem a seguinte forma:

$$K = M\{F[(1-y) \cdot K_1 + y \cdot K_2] + (1-y) \cdot K_{e_1} + y \cdot K_{e_2}\}, \text{ onde}$$

K = condutividade térmica em $W/cm^{\circ}K$;

$$K_1 = \frac{1}{0,861 + 0,0191 \cdot T} \quad : \text{ condução da rede para}$$

ThO_2 , 100%DT;

$$K_2 = \frac{1}{4,84 + 0,0213.T} \quad : \text{ condução da rede para } \text{UO}_2, 100\%DT;$$

$$M = 0,675 + 0,30.\exp(-9,5y) + 0,32.\exp[-2,55(1-y)] \quad : \text{ fator de correção que leva em conta a não linearidade entre condutividade térmica e composição;}$$

$$F = \frac{1 - P}{1 + 0,7.P} \quad : \text{ fator de correção da porosidade;}$$

$$K_{e1} = \frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \exp\left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T}\right) \quad : \text{ componente eletrônica do } \text{ThO}_2;$$

$$K_{e2} = \frac{8,49 \times 10^7}{T^2} \exp\left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T}\right) \quad : \text{ componente eletrônica do } \text{UO}_2;$$

T : °K

Um combustível baseado em tória e de possível interesse para reatores PWR seria ThO_2 -5% UO_2 , com 95% DT.

A condutividade térmica desse material fornecida por (4) é comparada com a do UO_2 proposta por Himes, 95% DT, na Figura 8, entre 200 e 2800°C.

Como se observa, a baixas temperaturas, prevalece a condutividade térmica de ThO_2 -5% UO_2 , enquanto a altas temperaturas a situação se inverte.

Finalmente, abaixo, apresentamos a expressão da integral da condutividade térmica para o ThO_2 -5% UO_2 , entre duas temperaturas T_1 e T_2 ($T_1 < T_2$), expressão essa obtida de (4):

$$I = \int_{T_1}^{T_2} K \, dT = 43,86 \ln \left[\frac{2,86 + 0,0228 T_2}{2,86 + 0,0228 T_1} \right] +$$

$$+ 236 \left[\exp\left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T_2}\right) - \exp\left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T_1}\right) \right] +$$

$$+ 2168 \left[\exp \left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T_2} \right) - \exp \left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T_1} \right) \right],$$

ou aproximadamente

$$I = 43,86 \ln \left(\frac{2,86 + 0,0228 T_2}{2,86 + 0,0228 T_1} \right) +$$

$$+ 236 \cdot \exp \left(\frac{-1,80 \times 10^4}{T_2} \right) + 2168 \cdot \exp \left(\frac{-3,72 \times 10^4}{T_2} \right) \quad (5),$$

onde

I : integral da condutividade em W/cm, e

T : °K

REFERÊNCIAS

- [1] MURABAYASHI, M. et al. - Thermal Conductivity of ThO₂-UO₂ System. Journal of Nuclear Science and Technology, Japan, 6 (3): 128-131, March, 1969.
- [2] MURABAYASHI, M. et al. - Thermal Conductivity of Ceramic Solid Solutions. Journal of Nuclear Science and Technology, Japan, 7 (11): 559-563, November, 1970
- [3] BERMAN, R.M. et al. - Thermal Conductivity of Polycrystalline Thoria and Thoria - Urania Solid Solutions, USA, 1972 (WAPD - TM - 908).
- [4] PETERSON, S. & CURTIS, C.E - Thorium Ceramics Data Manual, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, USA, 1970 (ORNL - 4503, vol. 1)
- [5] TOULOUKIAN, Y.S. et al. (eds) - Thermal Conductivity - Nonmetallic Solids. Thermophysical Properties of Matter, Vol. 2, USA, IFI/PLENUM, 1970.
- [6] ARTHUR, G. - Ceramics - Thermal Conductivity. Nuclear Engineering, England, 6 (59) : 138-142, April, 1961

- [7] JACOBS, D.C. - The In-pile Thermal Conductivity of Selected ThO₂-UO₂ Fuel at Low Depletions, Bettis Atomic Power Laboratory, USA, 1969. (WAPD - TM - 758).
- [8] JACOBS, D.C. - In-Pile and Unirradiated Thermal Conductivity of a Single-Fired ThO₂ - 10^W/oUO₂, USA, 1970. (WAPD-TM-901)
- [9] MARINO, G.P. - Porosity Correction Factor for the Thermal Conductivity of Porous Materials, USA, 1970. (WAPD - TM - 807).
- [10] HIMES, D.A. - Thermal Conductivity Model for (Th,U)O₂ to Melting, in: - Fuels and Materials Performance. Trans. Am. Nucl. Soc., 30:174-175. 1978.
- [11] FELDER, M.R. - A rotina GMAR é uma versão modificada, por Felder, do programa NONLS2 escrito por G.W. Weatley da Union Carbide Corporation, Oak Ridge, Tennessee. Esta versão modificada foi posteriormente modificada por outros autores, sendo usada aquela disponível na DICOT.PD - CDTN.
- [12] YOUNG, R.A. - Model for the electronic contribution to the Thermal and transport properties of ThO₂, UO₂ and PuO₂ in the solid and liquid phases. Journal of Nuclear Materials 87: 283-296, 1979.
- [13] MAC.DONALD, P. & THOMPSON, L.B. (eds). Fuel Thermal Conductivity. (FTHCON). In: - MATPRO - version 09 - A Handbook of Materials Properties for use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior. USA, EG & G Idaho Inc., 1976.

DETR.PD-073/79

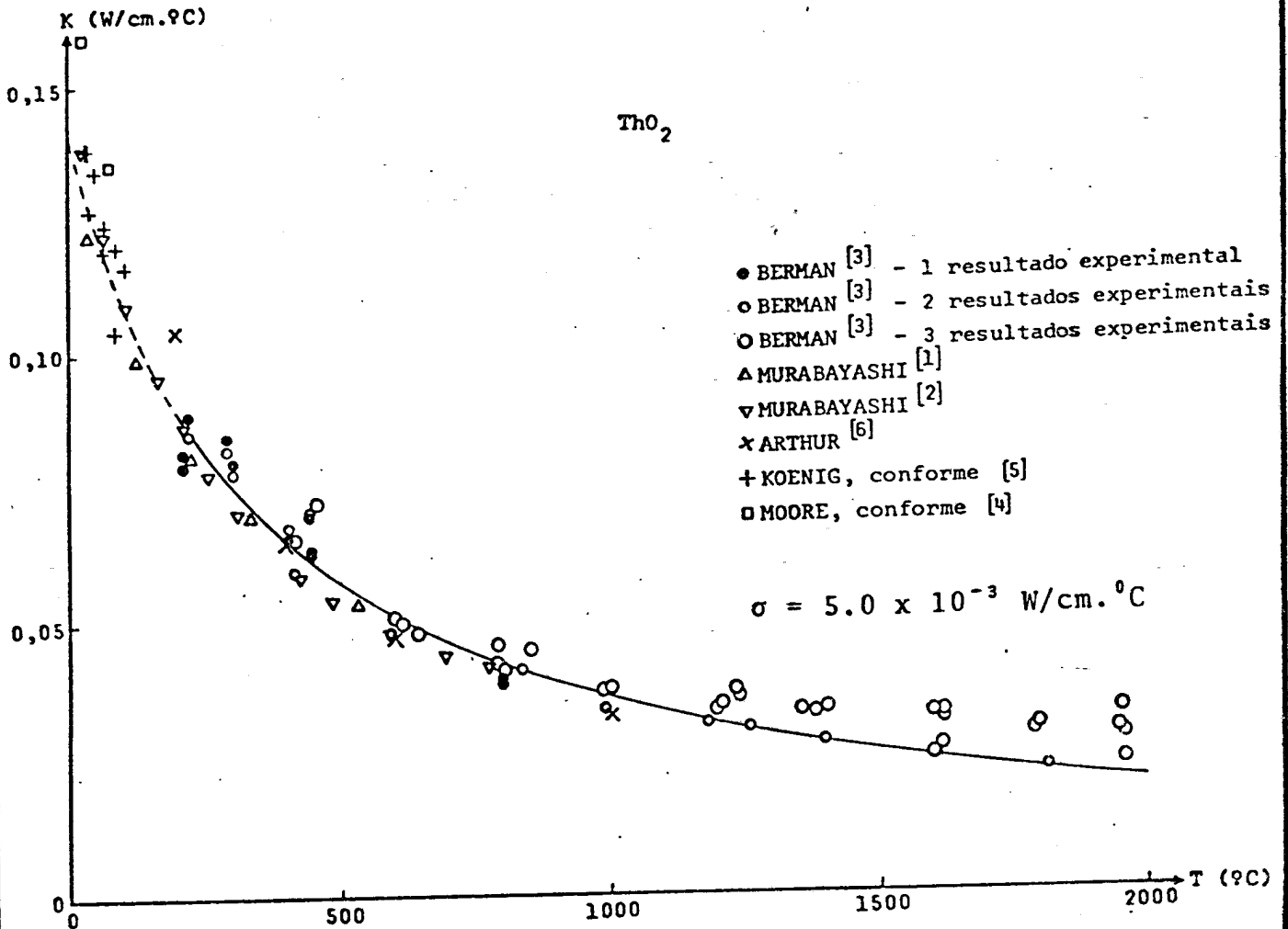


FIGURA 1: Comparação entre o ajuste obtido e os resultados experimentais da condutividade térmica do ThO_2 corrigidos para 95% DT.

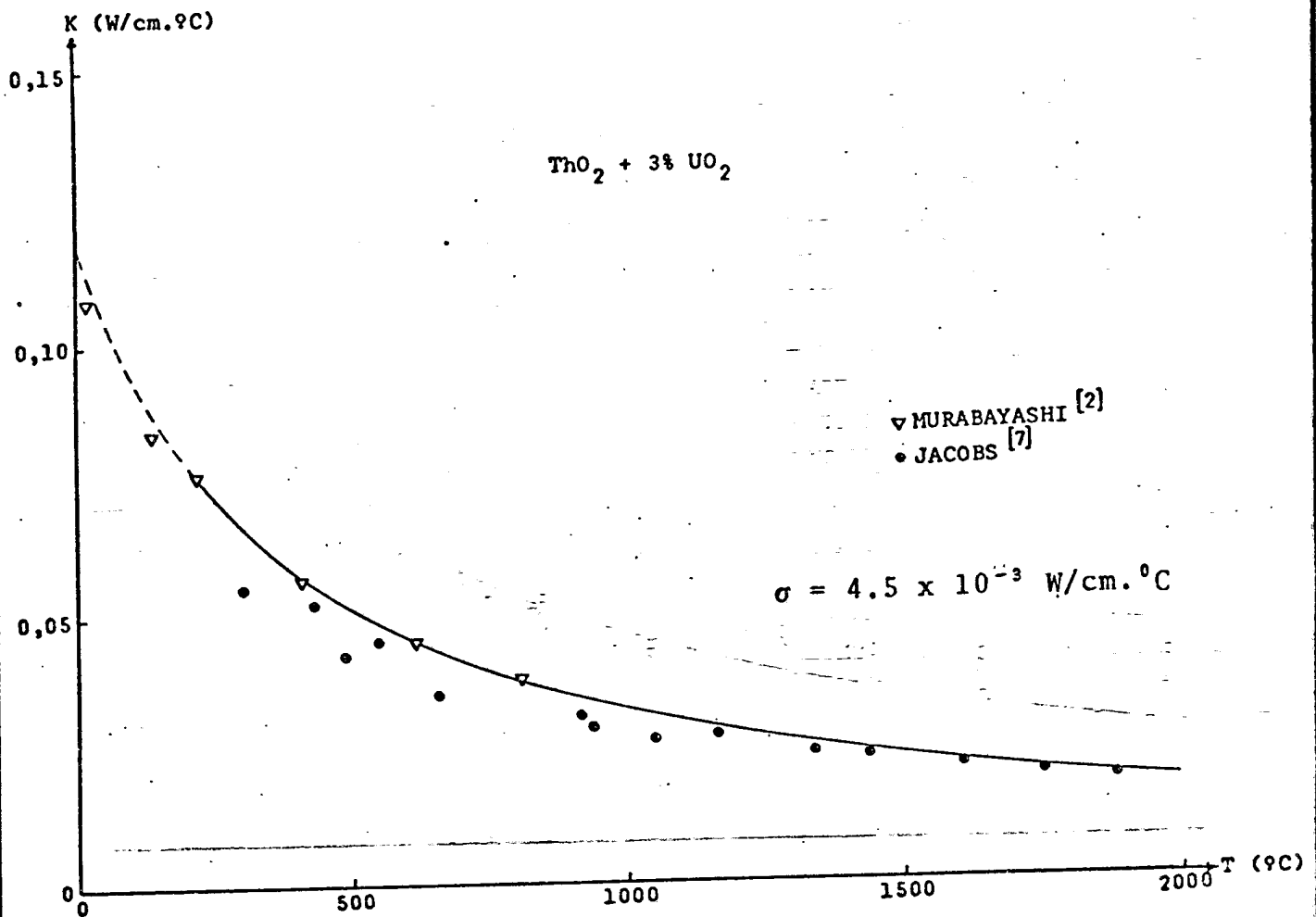


FIGURA 2: Comparação entre o ajuste obtido e os resultados experimentais da condutividade térmica do ThO₂+3% UO₂ corrigidos para 95% DT.

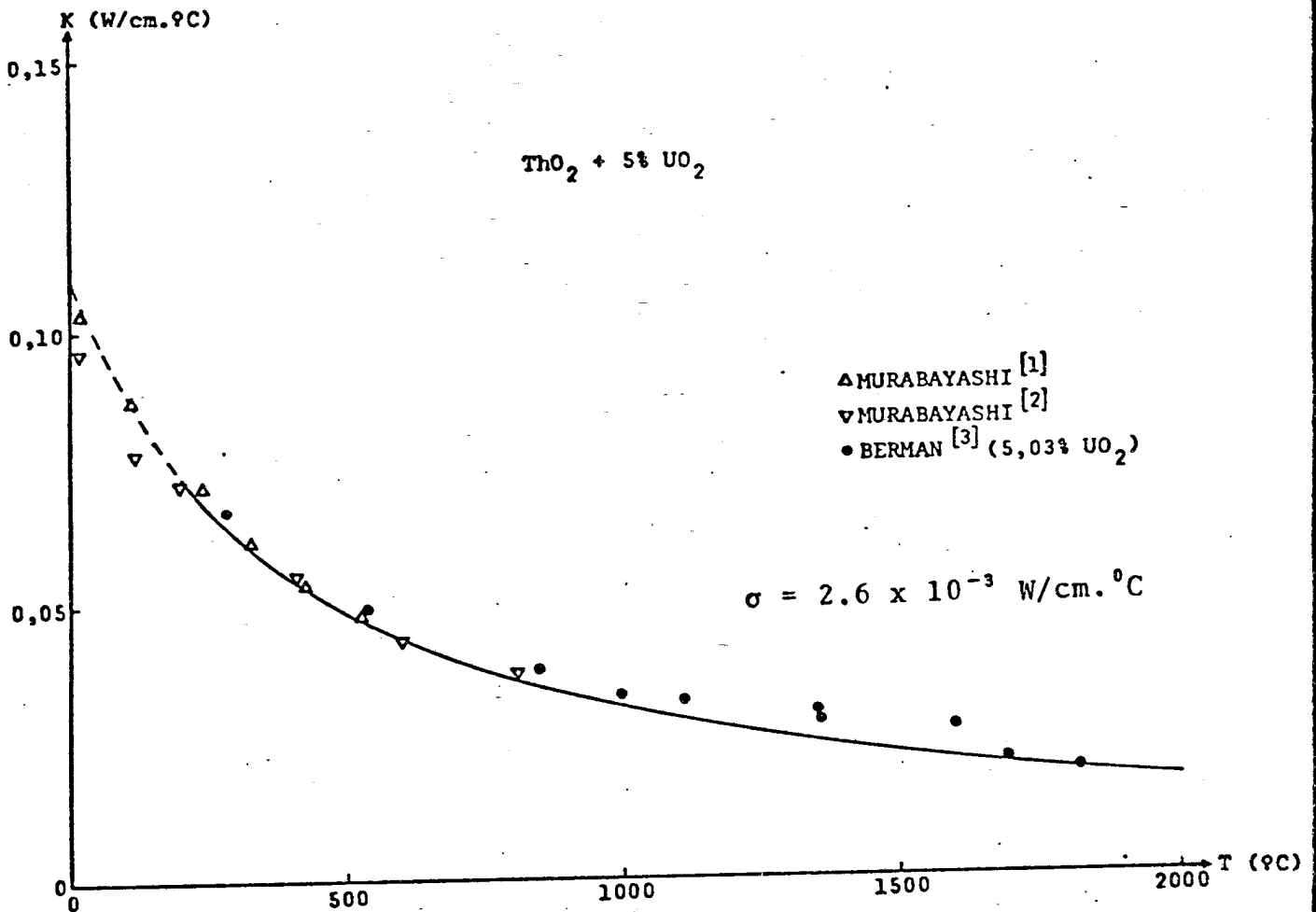


FIGURA 3: Comparação entre o ajuste obtido e os resultados experimentais da condutividade térmica do $\text{ThO}_2 + 5\% \text{UO}_2$ corrigidos para 95% DT.

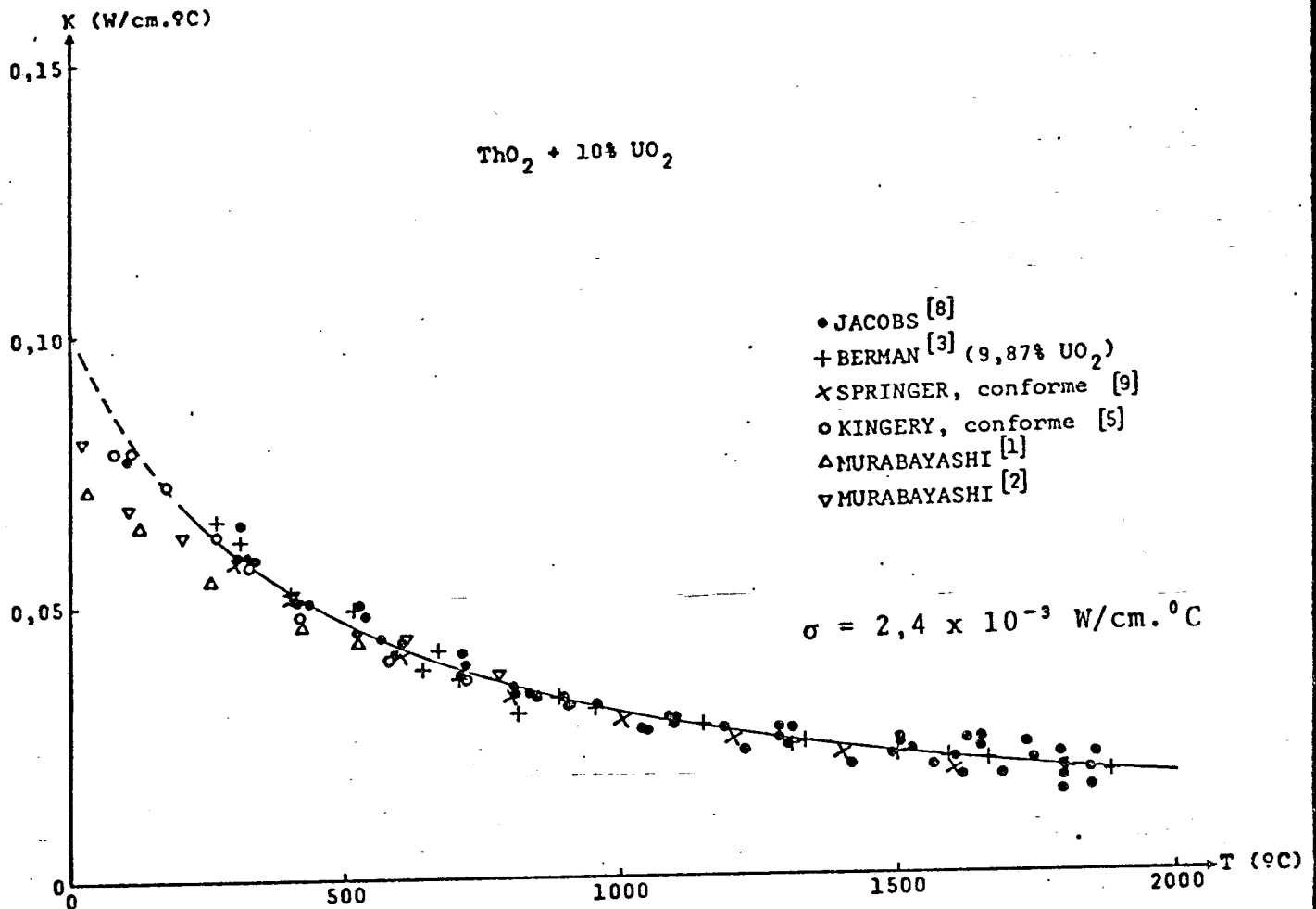


FIGURA 4: Comparação entre o ajuste obtido e os resultados experimentais da condutividade térmica do ThO₂+10%UO₂ corrigidos para 95% DT.

DETR.PD-073/79

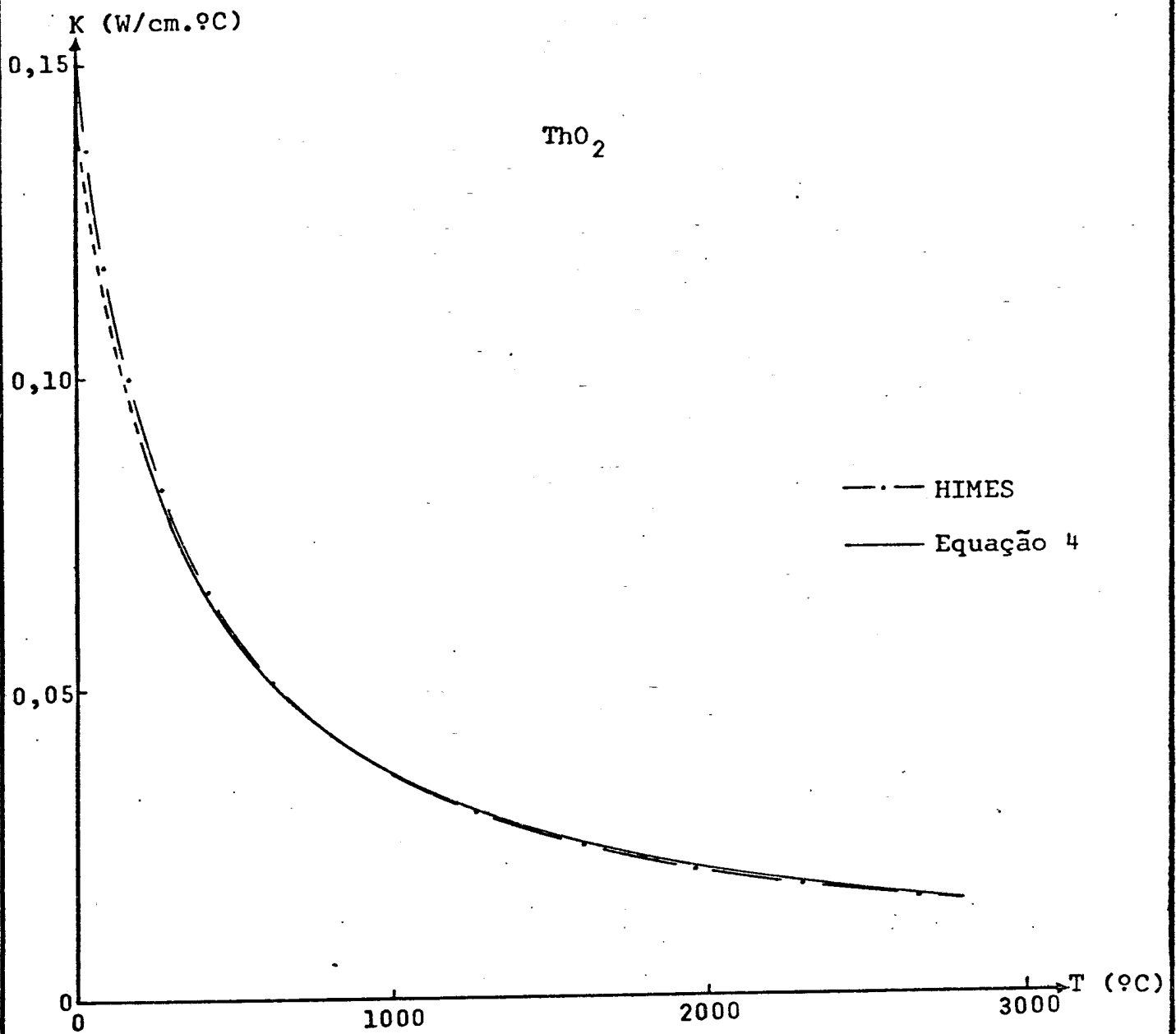


FIGURA 5: Comparação entre o ajuste obtido e o proposto por HIMES [10] para o ThO_2 (95% DT).

DETR. PD-073/79

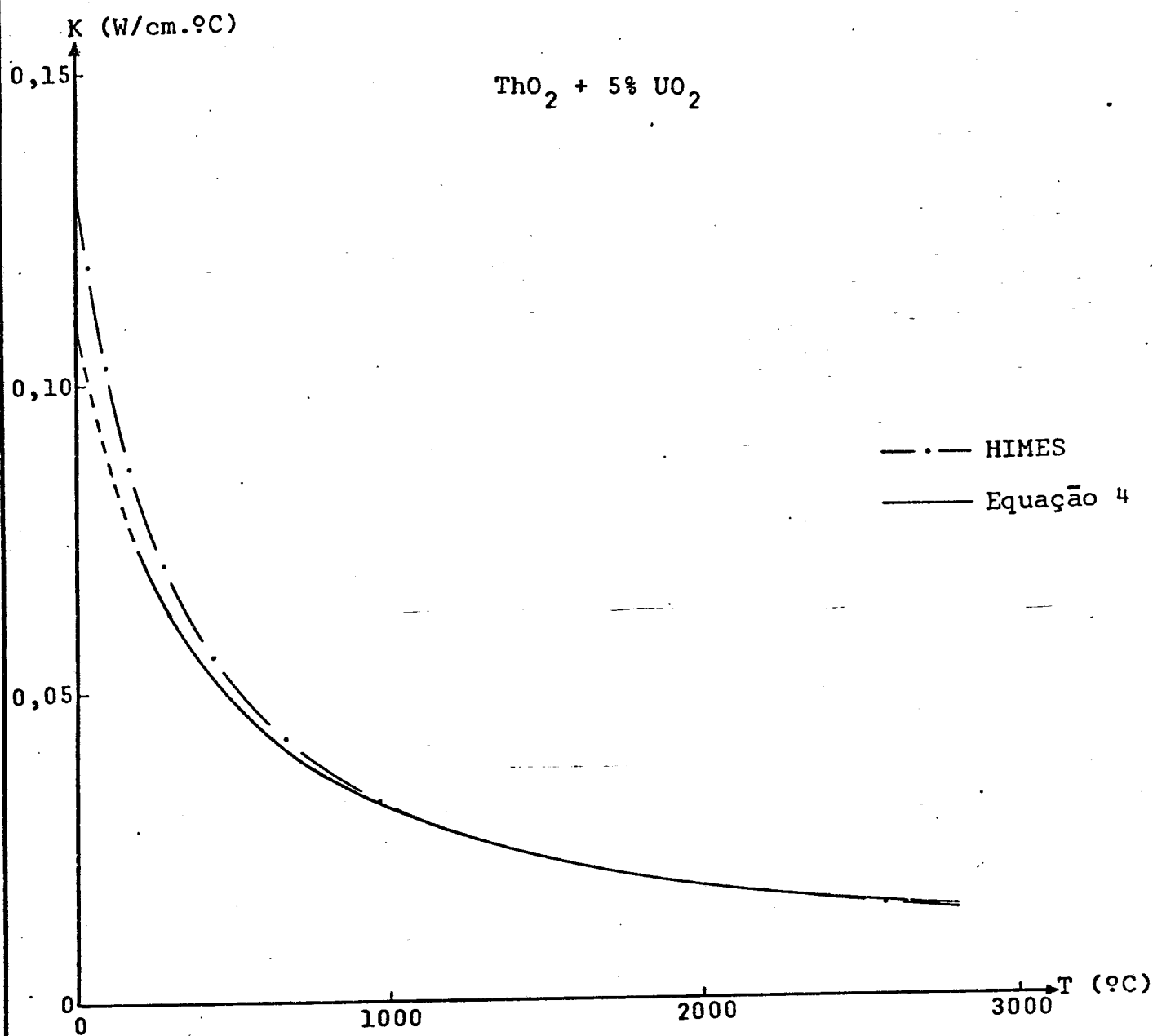


FIGURA 6: Comparação entre o ajuste obtido e o proposto por HIMES [10] para o $\text{ThO}_2 + 5\% \text{UO}_2$ (95% DT).

DETR.PD-073/79

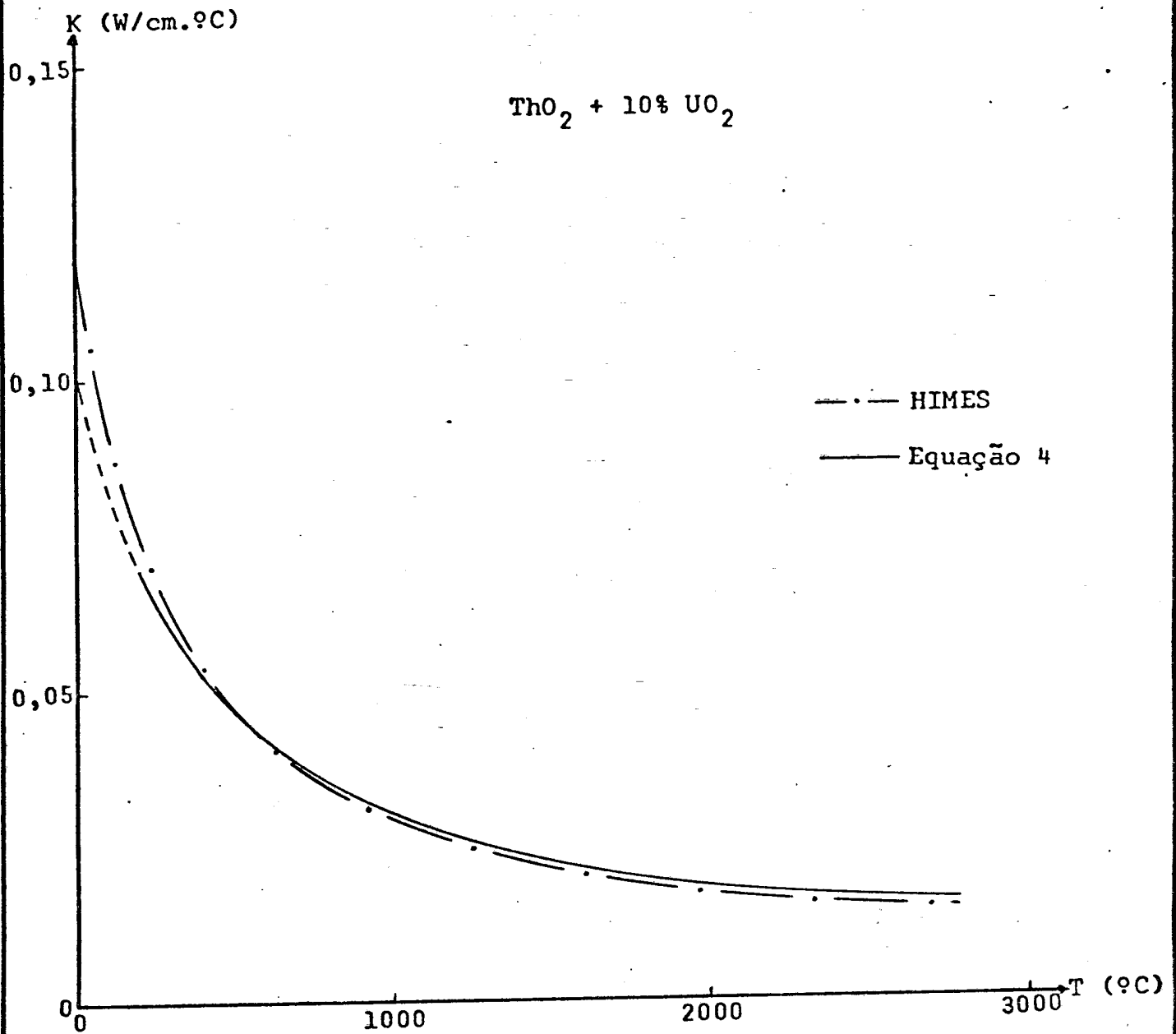


FIGURA 7: Comparação entre o ajuste obtido e o proposto por HIMES [10] para o ThO₂ + 10% UO₂ (95% DT).

DETR.PD-073/79

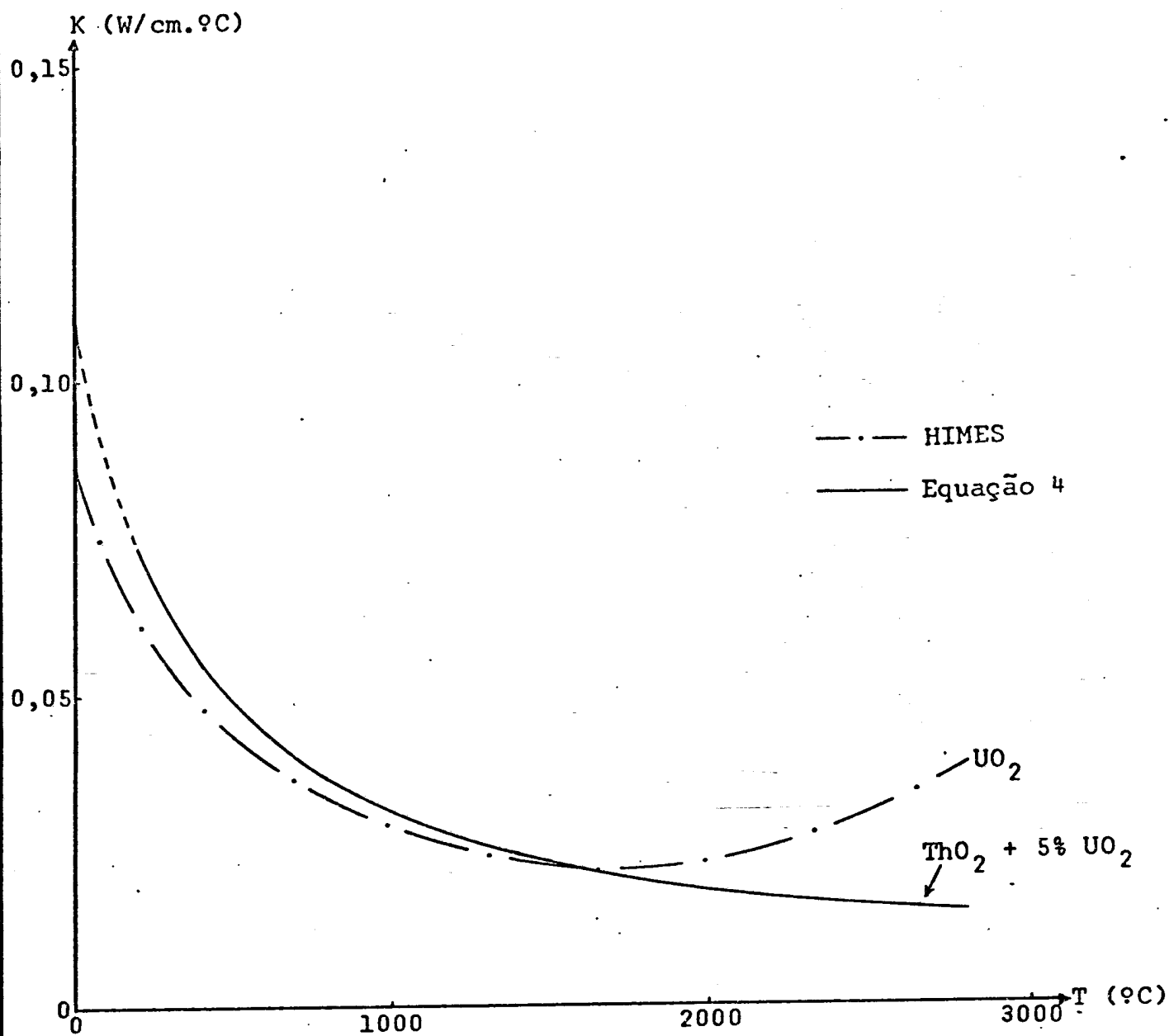


FIGURA 8: Comparação entre as condutividades térmicas do $\text{ThO}_2 + 5\% \text{UO}_2$ (95% DT) e do UO_2 (95% DT).