การพัฒนากระบวนการผลิตเม็ดยูเรเนียมไดออกไซด์โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด

นาย อาคม สันติรณรงค์

วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต
ภาควิชานิวเคลียร์เทคโนโลยี
บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย
พ.ศ.2529

ISBN 974-566-723-4

013408
i 18298175

DEVELOPMENT OF A PRODUCTION PROCESS FOR URANIUM DIOXIDE PELLETS BY POWDER METALLURGY METHOD

Mr.Arkom Santironnarong

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering

Department of Nuclear Technology

Graduate School

Chulalongkorn University

1986

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การพัฒนากระบวนการผลิตเม็ดยูเรเนียมไดออกไซด์โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด

โดย นาย อาคม สันติรณรงค์

ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี

อาจารย์ที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์

หอสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้นับวิทยานิพนธ์ฉบับนี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญามหาบัณฑิต

.....

(รองศาสตราจารย์ ดร.สรชัย พิศาลบุตร)

รักษาการในตำแหน่งรองคณบดีฝ่ายวิชาการ

ปฏิบัติราชการแทนรักษาการในตำแหน่งคณบดีบัณฑิตวิทยาลัย

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

..... ประธานกรรมการ

(รองศาสตราจารย์ ดร.ธัชชัย สุมิตร)

..... กรรมการ

(รองศาสตราจารย์ มนัส สถิรจินดา)

..... กรรมการ

(ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์)

..... กรรมการ

(อาจารย์ ศิริวัฒนา ไทรสมบูรณ์)

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การพัฒนากระบวนการผลิตเม็ดยูเรเนียมไดออกไซด์โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด

ชื่อนิสิต นาย อาคม สันติรณรงค์

อาจารย์ที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์

ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี

ปีการศึกษา 2528

พลสมุดกลาง สถาบันวิทยบริการ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

บทคัดย่อ

ได้ทดลองผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด และผลิตผ่านสารประกอบ แอมโมเนียม ไดยูเรเนต พบว่าเงื่อนไขที่ดีที่สุดในการเตรียมตะกอนของแอมโมเนียม ไดยูเรเนต คือใช้สารละลายยูเรนิลไนเตรตเข้มข้น 120 กรัมยูเรเนียม ต่อลิตร ทำปฏิกิริยาอย่างต่อเนื่องกับสารละลายแอมโมเนียมไฮดรอกไซด์เข้มข้น 27 เปอร์เซ็นต์ โดยน้ำหนัก ควบคุมอุณหภูมิไว้ที่ 50 องศาเซลเซียส และค่าความเป็นกรดเป็นด่างของปฏิกิริยาไว้ที่ 8.0 แล้วนำตะกอนที่ได้ไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 110 องศาเซลเซียส นาน 36 ชั่วโมง นำมาเผาในบรรยากาศที่อุณหภูมิ 350 องศาเซลเซียส นาน 8 ชั่วโมง จะได้ผงยูเรเนียมไตรออกไซด์ นำไปรีดิวซ์ที่อุณหภูมิ 630 องศาเซลเซียส นาน 20 ชั่วโมงในบรรยากาศของไฮโดรเจน/อาร์กอน จะได้ผงยูเรเนียมไดออกไซด์ แล้วนำเอาผงยูเรเนียมไดออกไซด์ที่ได้นี้มาอัดเม็ด โดยใช้ ไนโอเบียมออกไซด์ 0.3 เปอร์เซ็นต์ โดยน้ำหนักเป็นตัวประสาน และใช้กรดสเทียริก 0.2 เปอร์เซ็นต์ โดยน้ำหนัก เป็นตัวหล่อลื่น โดยอัดด้วยแรง 5 ตันต่อตารางเซนติเมตร จากนั้นทำการเผาประสานที่อุณหภูมิ 1200 องศาเซลเซียส ในบรรยากาศของไฮโดรเจน/อาร์กอน/คาร์บอนไดออกไซด์ นาน 20 ชั่วโมง ก็จะได้เม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่มีความหนาแน่น 90.05 เปอร์เซ็นต์ของค่าความหนาแน่นทางทฤษฎีและมีค่าอัตราส่วนของออกซิเจน และยูเรเนียม เท่ากับ 2.03

Thesis Title Development of a Production Process for Uranium Dioxide Pellets by Powder Metallurgy Method

Name Mr.Arkom Santironnarong

Thesis Advisor Assistant Professor Chyagrit Siri-Upathum

Department Nuelear Technology

Academic Year 1985

ABSTRACT

A production process for uranium dioxide fuel pellets by powder metallurgical method via ammonium diuranate was developed. The optimum conditions to produce ammonium diuranate precipitates were found to be : 120 gU/l uranyl nitrate solution reacted continuously with 27 % ammonium hydroxide solution, the final pH was controlled at 8.0 and temperature of 50°C. The precipitates were dried at 110°C for 36 hrs and then calcined in air to produce UO_3 at 350°C. UO_3 was then reduced in Hydrogen/Argon for 20 hrs at 630°C to produce UO_2 powder which was subsequently pressed (after thouroughly mixed with 0.3 % by weight Nb_2O_5 as binder and 0.2 % by weight stearic acid as lubricant) to compact pellets at 5 ton/cm^2. Sintering of the compacted pellets was done at 1200°C for 20 hrs in Hydrogen/Argon and Carbondioxide atmosphere. The sintered UO_2 pellets obtained gave density of 90.05 percent of the theoretical density with O/U ratio of 2.03.

กิตติกรรมประกาศ

ขอกราบขอบพระคุณ ศาสตราจารย์ สุวรรณ์ แสงเพ็ชร์ ที่เป็นผู้ริเริ่มและสนับสนุนการศึกษาวิจัยในเรื่องนี้ ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์ ที่กรุณาให้ความช่วยเหลือแนะนำและแก้ปัญหา ทั้งทางด้านวิชาการและทางด้านการปฏิบัติ จนวิทยานิพนธ์นี้สำเร็จ

ขอขอบพระคุณ ผู้ช่วยศาสตราจารย์ สุวิทย์ ปุณณชัยยะ ที่กรุณาให้ความอนุเคราะห์ในเรื่องเครื่องมือบางส่วน

ขอขอบคุณ คุณพิทักษ์ ทองคง ที่ช่วยเหลือในด้านอุปกรณ์และวิธีการอัดเม็ด

ขอขอบคุณ คุณโสภิษฐ ปทะวานิช คุณ นิภาวรรณ ปรมาธิกุล ที่ช่วยเหลือด้านอุปกรณ์บางส่วน

ขอขอบคุณ คุณบัญชา อุนพานิช ที่ช่วยเหลือในด้านการซ่อมอุปกรณ์บางส่วนที่ชำรุด

ขอขอบคุณ คุณ เรณู ทองเต๋า ที่ช่วยเหลือในด้านการพิมพ์วิทยานิพนธ์

ขอขอบคุณ เพื่อนๆ และเจ้าหน้าที่ ที่มิได้กล่าวออกนาม ณ ที่นี้ที่กรุณาช่วยเหลือ และให้กำลังใจในการทำวิทยานิพนธ์นี้จนสำเร็จ

ขอขอบคุณ บัณฑิตวิทยาลัย ที่ให้ทุนอุดหนุนในการทำวิทยานิพนธ์นี้

และท้ายที่สุดนี้ผู้เขียนขอแสดงความกตัญญูกตเวทิตาคุณต่อ คุณพ่อ และ คุณแม่ ผู้ซึ่งให้ชีวิต ความเมตตา ความอบอุ่น ทั้งกาย และ ใจ และเป็นแสงสว่างในชีวิตของผู้เขียนตลอดมา

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญ

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย ..... ง
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ ..... จ
กิตติกรรมประกาศ ..... ฉ
สารบัญ ..... ช
สารบัญตาราง ..... ญ
สารบัญรูป ..... ฏ
บทที่
1 บทนำ
1.1 ความเป็นมาและความสำคัญของปัญหาในการวิจัย 1
1.2 วัตถุประสงค์ของการวิจัย 4
1.3 ขอบเขตของการวิจัย 4
1.4 ประโยชน์ที่คาดว่าจะได้รับจากการวิจัย 5
2 พื้นฐานของข้อมูล และทฤษฎีที่เกี่ยวข้องกับการวิจัย
2.1 ปฏิกิริยาพิชชันกับกลไกในการให้ความร้อนของเชื้อเพลิงนิวเคลียร์..6
2.2 วัฏจักรของเชื้อเพลิง 7
2.3 ชนิดของเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 10
2.4 สมรรถนะเชิงปฏิบัติที่พึงมีของเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 11
2.5 เรื่องทั่วไปของยูเรเนียมไดออกไซด์ 12
2.6 ความเหมาะสมของ UO_2 ในการนำมาใช้เป็นเชื้อเพลิงนิวเคลียร์..22
2.7 ข้อจำกัดของ UO_2 ในการนำมาใช้เป็นเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 22
2.8 การผลิตเม็ดเชื้อเพลิง UO_2 23
2.9 ขั้นตอนในการผลิตและการขึ้นรูปของเม็ดเชื้อเพลิง UO_2 23
3. อุปกรณ์ที่ใช้ในการวิจัย
3.1 อุปกรณ์ที่ใช้ในการทดลอง 42

สารบัญ(ต่อ)

หน้า

3.1.1 อุปกรณ์ที่ใช้ในการตกตะกอน ADU 42
3.1.2 อุปกรณ์ที่ใช้ในการทำให้แห้งของผง ADU 44
3.1.3 อุปกรณ์ที่ใช้ในการเผาที่อุณหภูมิสูง 44
3.1.4 อุปกรณ์ที่ใช้ในการรีดักชัน 45
3.1.5 อุปกรณ์ที่ใช้ในการอัดเม็ดของผง UO_2 46
3.1.6 อุปกรณ์ที่ใช้ในการเผาประสาน 47
3.1.7 อุปกรณ์ที่ใช้ในการหาความหนาแน่นของผง ADU, UO_3, UO_2 48
3.1.8 อุปกรณ์ที่ใช้ในการหาอัตราส่วนออกซิเจนต่อยูเรเนียมของ UO_{2+x} 49
3.1.9 อุปกรณ์ที่ใช้ในการหาขนาดของอนุภาคของผง ADU, UO_3, UO_2 50
3.1.10 อุปกรณ์ที่ใช้ในการหาความหนาแน่นของเม็ด UO_2 51
3.2 สารเคมีที่ใช้ในการทดลอง 52
4. การทดลองและผลของการทดลอง
4.1 การทดลองเพื่อหาเงื่อนไขที่เหมาะสมของผง UO_2 54
4.1.1 การเตรียมผงของ ADU 54
4.1.2 การเตรียมผงของ UO_3 58
4.1.3 การเตรียมผงของ UO_2 62
4.2 สรุปการหาเงื่อนไขที่เหมาะสมในการผลิตเม็ดเชื้อเพลิง UO_2 68
4.2.1 การหาเงื่อนไขที่เหมาะสมสำหรับการเตรียมตะกอนของ ADU 68
4.2.2 การหาเงื่อนไขที่เหมาะสมสำหรับการเตรียม UO_3 69
4.2.3 เงื่อนไขที่ใช้ในการเตรียมผง UO_2 การอัดเย็น และการเผาประสานให้ได้เม็ดเชื้อเพลิง UO_2 70
4.3 การทดลองในการเตรียมเม็ดยูเรเนียม ไดออกไซด์โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด 70
4.3.1 การเตรียมผงของ ADU 70
4.3.2 การเตรียมผงของ UO_3 71

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญ(ต่อ)

หน้า

4.3.3 การเตรียมผงของ UO_2 71

4.3.4 การอัดเม็ด UO_2 72

4.3.5 การเผาประสานของเม็ด UO_2 72

5 สรุปผลการทดลอง และ ข้อเสนอแนะ

5.1 สรุปผลการเตรียมตะกอนแอมโมเนียม ไดยูเรเนต 76

5.2 สรุปผลการเตรียมเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ 77

5.3 ข้อดีของการผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ โดยวิธีโลหะวิทยาแบบผงอัด จากการเตรียมผ่านสารประกอบแอมโมเนียม ไดยูเรเนต 78

5.4 ข้อเสนอแนะ 78

บรรณานุกรม 80

ภาคผนวก ก. การหาความหนาแน่นของผง ADU, UO_3, UO_2 83

ภาคผนวก ข. การหาอัตราส่วนของ O/U ใน UO_{2+x} 86

ภาคผนวก ค. การหาขนาดของอนุภาคของผง ADU, UO_3, UO_2 88

ภาคผนวก ง. การหาความหนาแน่นของเม็ด UO_2 (ก่อนและหลังเผาประสาน) .. 91

ภาคผนวก จ. กราฟแสดงการกระจายของขนาดอนุภาคของ ADU, UO_3, UO_2 92

ประวัติผู้เขียน 116

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญตาราง

หน้า

ตารางที่

2.1 แสดงสีของ UO_2 13

2.2 แสดงความหนาแน่นของ UO_2 14

2.3 แสดงความสัมพันธ์ระหว่างพื้นที่ผิวกับความหนาแน่นของ UO_2 หลังการเผาประสาน 16

2.4 แสดงความสัมพันธ์ระหว่างสัมประสิทธิ์การขยายตัวของ UO_2 ที่อุณหภูมิต่างๆ 19

2.5 แสดงเสถียรภาพทางเคมีของ UO_2 21

2.6 แสดงผลของค่า pH ต่อการตกตะกอน ADU 26

2.7 แสดงผลของอุณหภูมิต่อการตกตะกอน ADU 26

2.8 แสดงคุณสมบัติของ UO_3 27

2.9 แสดงการเปลี่ยนแปลงพื้นที่ผิวในระหว่างการรีดิวซ์ของ UO_3 28

4.1 แสดงลักษณะสมบัติของผง ADU ที่ได้จากการทดลอง 57

4.2 แสดงลักษณะสมบัติของผง UO_3 ที่ได้จากการทดลอง 60

4.3 แสดงลักษณะสมบัติของผง UO_2 ที่ได้จากการทดลอง 65

4.4 แสดงลักษณะสมบัติของผง ADU, UO_3, UO_2 เม็ด UO_2 ก่อนและหลังเผาประสาน 74

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

สารบัญรูป

หน้า

รูปที่

2.1. แสดงวัฏจักรของเชื้อเพลิง 8

2.2. แสดงโครงผลึกของ UO_2 13

2.3. แสดงความสัมพันธ์ของพื้นที่ผิวของ UO_2 กับอุณหภูมิของการรีดิวซ์ 15

2.4. แสดงผลของการบดที่มีต่อการกระจายของขนาดของอนุภาคของ UO_2 16

2.5. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างสภาพการนำความร้อนกับอุณหภูมิที่ความหนาแน่นต่างๆ.. 17

2.6. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างสภาพนำความร้อนกับอัตราส่วน O/U ของ UO_2 18

2.7. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างขนาดของอนุภาคกับอัตราส่วน O/U ของ UO_2 20

2.8. แผนภาพแสดงการเตรียมผง UO_2 24

2.9. แผนภาพแสดงการเตรียมผง ADU 24

2.10. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างความหนาแน่นของ UO_2 กับอุณหภูมิของการรีดิวซ์ 29

2.11. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างพื้นที่ผิวของ UO_2 กับ อุณหภูมิของการรีดิวซ์ 30

2.12. แสดงความสัมพันธ์ของขนาดอนุภาคของ UO_2 กับอุณหภูมิของการรีดิวซ์ 31

2.13. แสดงการเปลี่ยนรูปของโพรงและการหดตัวระหว่างการเผาประสาน 32

2.14. แสดงกลไกของการเผาประสาน 34

2.15. แสดงผลของนาดของอนุภาคที่มีต่อความหนาแน่นหลังการเผาประสาน 35

2.16. แสดงความสัมพันธ์ระหว่างความหนาแน่นของ UO_2 หลังเผาประสานกับ - อุณหภูมิของการเผาประสาน 38

2.17. แสดง Streaming potential ที่ flow rate ต่างๆของ KCl 40

2.18. แสดง Sinterability ที่ Streaming potential ต่างๆ 40

2.19. แสดงลักษณะของเม็ด UO_2 ที่ใช้เป็นเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ 41

3.1 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการตกตะกอนของ ADU 43

3.2. แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการทำให้แห้งของผง ADU 44

3.3 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการเผาที่อุณหภูมิสูง 45

3.4 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการรีดักชัน 46

สารบัญรูป (ต่อ)

หน้า

3.5 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการอัดเม็ดของผง UO_2 47
3.6 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการเผาประสาน 48
3.7 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการหาความหนาแน่นของผง ADU,UO_3,UO_2 49
3.8 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการหา O/U ของ UO_{2+x} 50
3.9 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการหาขนาดของอนุภาคของผง ADU,UO_3,UO_2 51
3.10 แสดงอุปกรณ์ที่ใช้ในการหาความหนาแน่นของเม็ด UO_2 52
3.11 แสดงสารเคมีต่างๆ ที่ใช้ในการทดลอง 53
4.1 แสดงสีของผง ADU,UO_3,UO_2 ที่เตรียมได้จากเงื่อนไขต่างๆ 68
4.2 แสดงขั้นตอนการเตรียม และลักษณะสีของผง ADU,UO_3,UO_2 เม็ด UO_2 ก่อนและหลังเผาประสาน 75

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย