



เอกสารอ้างอิง

1. IAEA, Symposium on Sol-Gel Processes for Ceramic Nuclear Fuel
International Atomic Energy Agency, Vienna, 1968.
2. IAEA, Sol-Gel Process for Fuel Fabrication IAEA 161 International
Atomic Energy Agency, Vienna, 1974.
3. Nelson, R.L., Parkinson, N., and Kent, W.C.L. "U.K. Development
Toward Remote Fabrication of Breeder Reactor Fuel" Nuclear
Technology 53(1981) : 196-203.
4. Hermans, M.E.A. et al. "Sol-Gel Fuel Studies". Symposium on
Sol-Gel Processes for Ceramic Nuclear Fuel. International
Atomic Energy Agency, Vienna, 1968.
5. Beaty, R.L., Norman, R.E., and Notz, K.J., Gel-Sphere-Pac Fuel for
Thermal Reactors-Assessment of Fabrication Technology and
Irradiation Performance Oak Ridge National Laboratory,
Oak Ridge, Tennessee 37830, ORNL 5469, 1979.
6. Lawrence, H. Van Vlack in Ceramic Phase and Their Properties
Element of Material Science, Department of Chemical and
Metallurgical Engineering University of Michigan,
pp. 106-135, Addison-Wesley Publishing Company,
Massachusetts, 1960.
7. Kingler, W.D., Bowen, H.K. in Introduction to Ceramic 2nd ed.
pp. 1-23, Wiley-Interscience Publication, John Wiley &
Sons, New York, 1975.
8. United Nation, Proceeding of the Second United Nations International
Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy Vol. 6,
9. Peterson, S. & Wymer, R.G., Uranium and Its Compound Chemistry
in Nuclear Technology, Addison-Wesley, 1963

10. Cordfunke, E.H.P. The Oxides of Uranium The Chemistry of Uranium in Nuclear Technology, pp. 63-93, Elsevier Publishing Company, Amsterdam, 1968.
11. Forthmann et al. "Investigation on the Preparation of UO_2 Microspheres by Internal Gelation of UO_2 Sol and from a Uranium (VI) Solution" Symposium on Sol-Gel Processes and Reactor Fuel Cycles, Gatlinburg, Tennessee 1970.
12. Breschi, R. et al. "Changes of Microstructures in Uranium Oxides During the Sintering Process" presented at The 10th Congress of the Societa Italiana di Microscopia Electronica-Rosa Marina di Ostuni, pp. 317-322, 1975.
13. Suzuki, H. "The Initial-Stage Sintering of Sol-Gel Urania" Journal of Nuclear Science and Technology 11(5), (1974): 208-215.
14. Suzuki, H. "A New Aspect of Grain Growth of Sol-Gel Urania" Journal of Nuclear Science and Technology 11(4), (1974): 146-152.
15. Haas, P.A., "Water Extraction Gelation" in Preparation of Ceramic Fuel Spheres by Gel Processes Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, ORNL 5469, 1979.
16. Haas, P.A., Kitts, F.G. and Beutler, H. "Preparation of Reactor Fuels by Sol-Gel Processes" Chemical Engineering Progress Symposium Series 63(80):16-27, 1967.
17. Mc.Bridge, J.P., Mc.Corkle, K.H. "The CUSP Process for Preparing Concentrated Crystalline Urania Sols by Solvent Extraction" Nuclear Technology 13(1972):148-158.

18. Spence, R.D. "External Chemical Gelation" Preparation of Ceramic Fuel Spheres by Gel Processes Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee 37830, ORNL 5469, 1979.
19. Facehini, A. "The SNAM Process for the Preparation of Ceramic Nuclear Fuel Microspheres Continuous Production Technique" Energy Nucl (Milan) 17(1970):225-33.
20. Begovich J.M. "Internal Chemical Gelation". Preparation of Ceramic Fuel Spheres by Gel Processes Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee 37830, ORNL 5469, 1979.
21. Kaniij J.B.W., Noothout A.J, and Votooek O., "The KEMA U(VI) Process for Production of UO_2 Microspheres" Sol-Gel Processes for Fuel Fabrication IAEA-161, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1974.
22. Cordfunke E.H.P., "The System $UO_2(NO_3)_2-UO_3-H_2O$ " Journal of Inorganic Nuclear Chemistry 34,(1972):531-534.
23. Davies W. and Gray W. "A Rapid and Specific Volumetric Method for the Precise Determination of Uranium using Ferrous Sulphate as Reductant" United Kingdom Atomic Energy Authority TRG Report 713 (D).
24. Clement and Rodden, Selected Measured Methods for Pu and U in the Nuclear Fuel Cycle, Office of Information Series, U.S. Atomic Energy Commission, p-71, 1972.
25. Ralph J. Jones, Gravimetric Determination of Uranium in Product Materials Selected Measurement Methods for Plutonium and Uranium in the Nuclear Fuel Recycle, p-91, Division of Technical Information U.S. AEC, 1963.

26. Hamburg F.W., Van der Kley N. et al., "The Development of Vibrocompacted Fuel Elements with UO_2 Fuel Prepared by The Sol-Gel Process and by Electrodeposition" Reactor Centrum Nederland, Nederland RCN-71-031, 1971.
27. สุพิชชา คชเสนี, "การพัฒนากระบวนการโซล-เจล เพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมชนิดเซรามิก" วิทยานิพนธ์ปริญญาโทชั้นตรี ภาควิชานิวเคลียร์เทคโนโลยี บัณฑิตวิทยาลัย, จุฬาฯ 2525.
28. กรรศิกา ศิริเสนา "การผลิตและพัฒนาเชื้อเพลิงนิวเคลียร์" วันสถาปนากระทรวงวิทยาศาสตร์เทคโนโลยีและการพลังงาน โรงพิมพ์สถาบันวิจัยวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี, 2524.



ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ภาคผนวก ก

(กระบวนการไฮโดรไลซิส หรือ กระบวนการเฮช)(4)

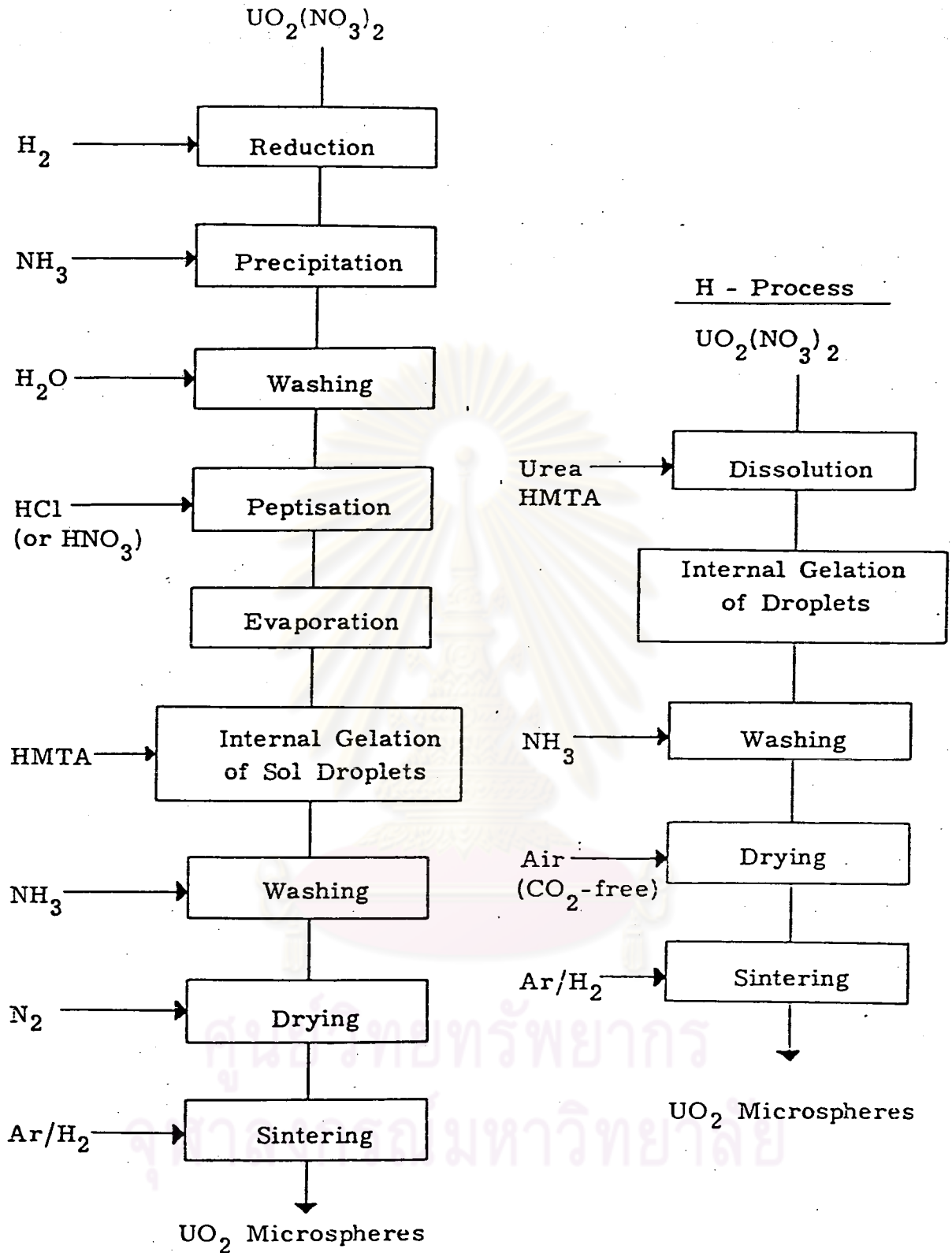
[Hydrolysis Process (H-Process)]



กระบวนการไฮโดรไลซิสเป็นวิธีง่าย ๆ ในการเตรียม UO_2 ไมโครสเฟียร์จากสารละลายยูเรเนียม (VI) เข้มข้นที่มีความเสถียรในอากาศ ทำให้เกิด UO_3 เจลสเฟียร์ได้โดยตรงจากวิธีอินเทอร์นอลเจเลชัน เมื่อนำเจลสเฟียร์ไปล้าง ทำให้แห้งและเผาประสานในบรรยากาศที่เป็นตัวรีดิวซิงแล้วจะได้ยูเรเนียมไมโครสเฟียร์ความหนาแน่นสูงและมีเส้นผ่าศูนย์กลาง 100-900 ไมโครเมตร แผนผังของกระบวนการนี้เปรียบเทียบกับกระบวนการโซล-เจล อยู่ในรูปที่ 8.1

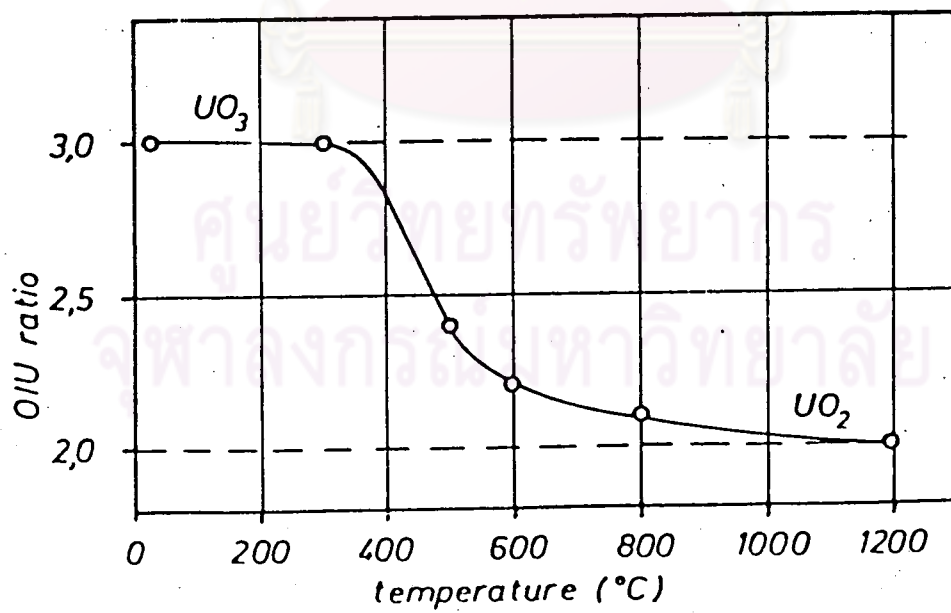
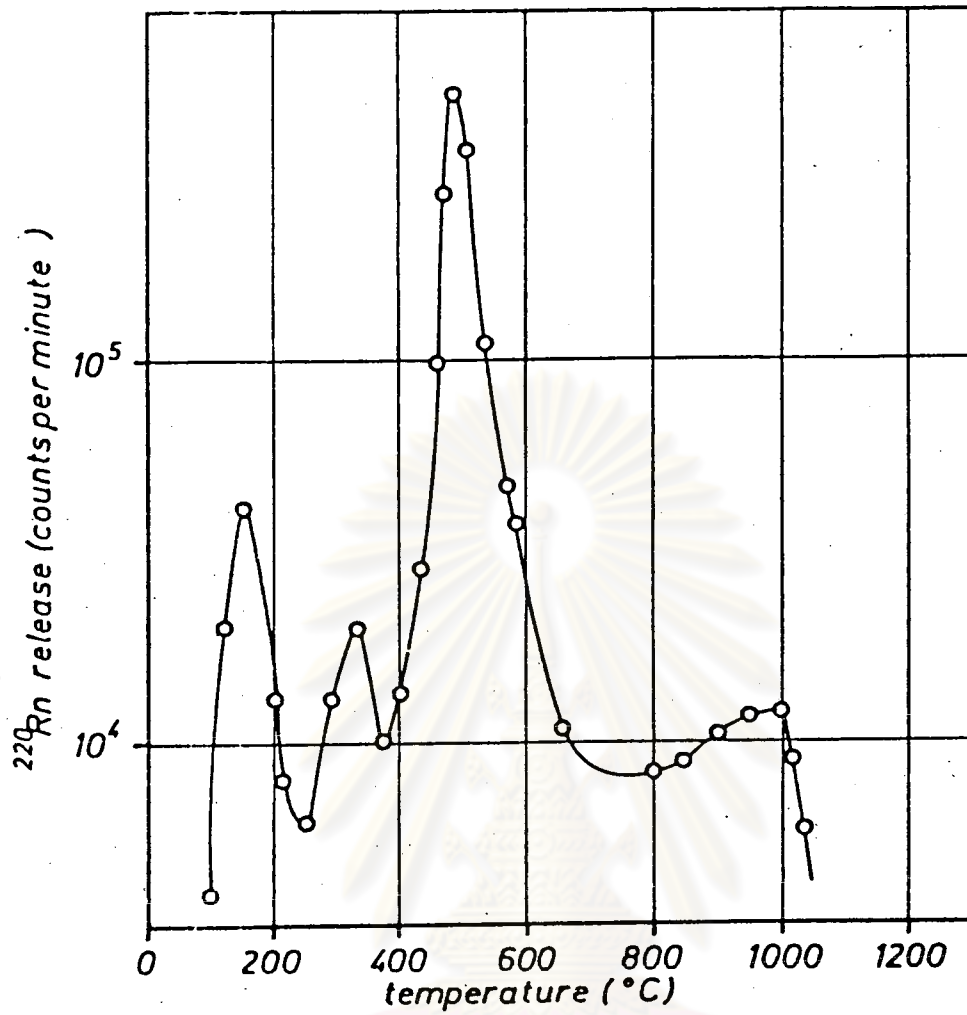
8.1 เคมีของกระบวนการ

รากฐานของกระบวนการไฮโดรไลซิส คือการถูกไฮโดรไลซ์ของหยดของสารละลาย $UO_2(NO_3)_2$ -ยูเรีย เข้มข้นอย่างสม่ำเสมอหลังจากเติม HMTA แล้ว ยูเรียที่เติมลงไปจะไปลดการไฮโดรไลซ์ของสารละลาย $UO_2(NO_3)_2$ ที่เจือจางและเป็นตัวที่ทำให้เกิดการตกตะกอนของสารละลาย $UO_2(NO_3)_2$ เจือจาง สารละลายที่ใช้ในกระบวนการเฮชนี้ เตรียมจากสารละลายเข้มข้นของ $UO_2(NO_3)_2$ -ยูเรีย ด้วยอัตราส่วนของยูเรียต่อยูเรเนียม = 2 และความเข้มข้นของยูเรเนียมเป็น 500 กรัมU/ลิตร เติม HMTA ที่เป็นของแข็ง คนให้เข้ากันและรักษาอุณหภูมิของสารละลายให้อยู่ในช่วง $5-10^{\circ}$ เซลเซียส จะได้สารละลายที่มีสีเหลืองอมส้ม, มีความหนืด 60-80 cP และไม่ค่อยเสถียร ที่อุณหภูมิสูงกว่า 30° เซลเซียส ความหนืดของสารละลายนี้จะเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็ว ระหว่างที่เกิดปฏิกิริยานำไฟฟ้าของสารละลายเพิ่มขึ้น เช่นเดียวกับความหนืด แต่ pH ไม่เปลี่ยนแปลง เชื่อว่าปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นเป็นไฮโดรลิติคอล โพลีเมอไรเซชัน Hydrolytical polymerization) ของยูเรียที่สแตบิลไลซ์ (Stabilized) $[UO_2(UO_3)_2]^{2+}$ หรือ $[UO_2OH(UO_3)_2]$ เกิดเป็นยูเรเนียม ไดรออกไซด์ไฮเดรต หลังจากล้าง UO_3 ไฮเดรต ด้วยแอมโมเนียเข้มข้นแล้วจะกลายเป็น $UO_2(OH)_2 \cdot NH_3$

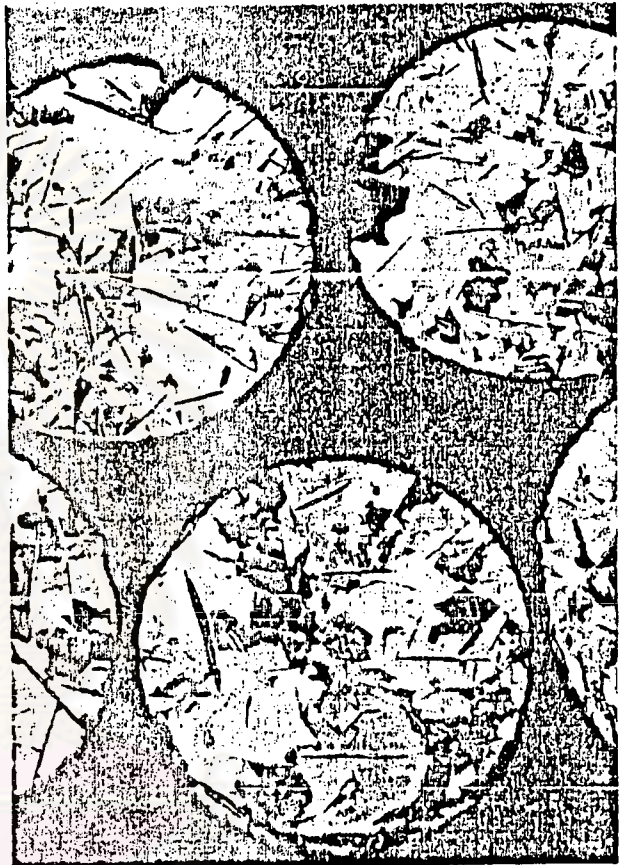
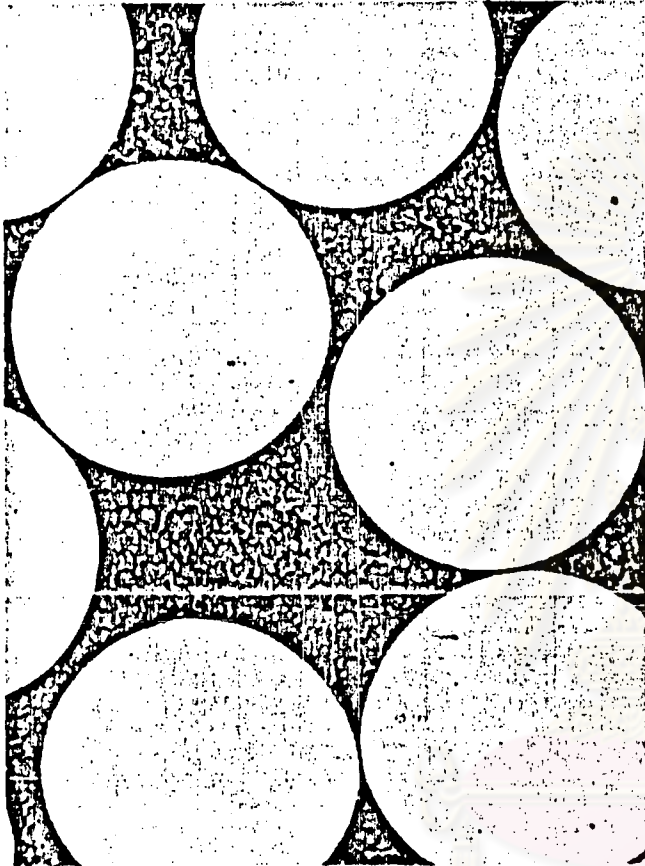


รูปที่ 8.1 แผนผังกระบวนการเอชเปรียบเทียบกับกระบวนการ

การโซล-เจลของ KFA(11)



รูปที่ 8.2 พฤติกรรมของ UO_3 สเปียร์ระหว่างให้ความร้อนในบรรยากาศของ $\text{Ar}-4\% \text{H}_2$ (11)



UO_2
750 ไมโครเมตร

UC_2
1000 ไมโครเมตร

รูปที่ 8.3 UO_2 และ UC_2 ไมโครสเฟียร์ที่เตรียมได้จากกระบวนการเอช (50X)(11)

8.2 การเตรียม UO_2 ไมโครสเฟียร์

สารละลายเข้มข้นของ $UO_2(NO_3)_2$ (350 กรัม U/ลิตร) ยูเรียและ HMTA ถูกทำให้เป็นหยดจากนอชซิลเย็นลงไปในน้ำมันพาราฟินที่มีอุณหภูมิ 90° เซลเซียส เครื่องมือที่ใช้ทำให้ไมโครสเฟียร์พัฒนาจากเครื่องมือที่ใช้ในวิธีอินเทอร์นอลเจเลชัน UO_2 โชลโดยไม่ต้องเปลี่ยนแปลง เพราะว่ามันแข็งตัวได้อย่างรวดเร็ว ไม่ต้องใช้ของเหลวต้น UO_3 ที่ได้เป็นสีเหลืองแก่และทึบแสง

การล้างไมโครสเฟียร์ใช้ไฮโดรคลอริก อีเทอร์เพื่อไล่น้ำมันพาราฟินออกจากผิวของ UO_3 การล้างครั้งที่ 2 ใช้สารละลายแอมโมเนียเข้มข้นเป็นเวลาหลายชั่วโมง เพื่อไล่นิเตรตและยูเรีย กระบวนการเหล่านี้ควรทำในบรรยากาศที่ไม่มี CO_2 เพื่อป้องกันไม่ให้เกิดสารประกอบเชิงซ้อนของยูเรเนียม (VI) คาร์โบเนต ซึ่งเป็นสารที่เสถียร หลังจากทำไมโครสเฟียร์ให้แห้งที่อุณหภูมิ 60° เซลเซียส ในบรรยากาศที่ไม่มีคาร์บอนไดออกไซด์แล้วนำไปเผาโดยควบคุมอัตราการเพิ่มอุณหภูมิจนถึง 1300° เซลเซียส ในก๊าซอาร์กอนผสมไฮโดรเจน 4 เปอร์เซ็นต์และเผาประสานที่อุณหภูมินี้เป็นเวลา 5 ชั่วโมง

พฤติกรรมของ UO_3 สเฟียร์ขณะที่เผาในก๊าซอาร์กอนผสมไฮโดรเจน 4 เปอร์เซ็นต์ทราบได้จากการวัดปริมาณ Rn^{220} ที่ UO_3 ปล่อยออกมาพร้อมกับ Th^{228} ที่เป็นตัวติดตามและหาอัตราส่วนระหว่าง O/U เป็นองค์ประกอบของอุณหภูมิ (ดังรูปที่ 8.2) 2 พีค (peak) แรกที่อุณหภูมิ 150° เซลเซียสและ 350° เซลเซียส เกิดจากน้ำและแอมโมเนียที่ถูกปล่อยออกมา พีคที่อยู่ระหว่าง 400 และ 600° เซลเซียส เป็นสารที่ถูกรีดิวซ์เป็น UO_2 การเผาประสานเริ่มที่อุณหภูมิ 1000° เซลเซียส

8.3 คุณสมบัติของไมโครสเฟียร์

ไมโครสเฟียร์ที่มีเส้นผ่าศูนย์กลาง 300 ถึง 900 ไมโครเมตร คุณสมบัติของสเฟียร์ที่แสดงในรูปที่ 8.3 ซึ่งได้จากการเตรียมในห้องทดลอง (lab scale) เป็นดังนี้

ชนิดของสาร	UO_2
เส้นผ่าศูนย์กลาง	750 ± 50 ไมโครเมตร

ความหนาแน่น	10.89 กรัม/ลูกบาศก์เซนติเมตร
ความเป็นรูปพรุน	0.7 เปอร์เซนต์
อัตราส่วนของO:U	2.001

ความหนาแน่นที่สูงของสเฟียร์เป็นผลมาจากการรีดิวิซ์ที่อุณหภูมิต่ำ (500-600° เซลเซียส) ซึ่งทำให้ได้ UO_2 พร้อมกับการเผาประสานที่ดี หลังจากเผา UO_3 สเฟียร์ที่อุณหภูมิ 800° เซลเซียส ในอากาศแล้วจะได้ U_3O_8 ที่ไม่แตกเลยและเมื่อเผาประสานจนถึง 1300° เซลเซียส ในก๊าซอาร์กอนผสมไฮโดรเจน 4 เปอร์เซนต์ จะได้ UO_2 สเฟียร์

เอช-โพรเซส นี้สามารถนำไปใช้ในการเตรียม UC_2 ได้ โดยการเติมคาร์บอนแบลค (Carbon black) ลงในสารละลายยูเรเนียม (VI) ในปริมาณที่คำนวณจาก U_3O_8 จะได้สเฟียร์ของ UO_3/C เมื่อนำไปเผาในบรรยากาศของอาร์กอนที่ 1000° เซลเซียส และในผงแกรไฟต์ที่ 2300° เซลเซียส จะได้ UC_2 สเฟียร์ที่มีความหนาแน่นสูง (รูปที่ 8.3) และมีอัตราส่วนของ C/U ตามที่คำนวณไว้

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



ภาคผนวก ข.

การพัฒนาเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์แบบไวบ्रोคอมแพคต์ที่เตรียมโดยกระบวนการโซล-เจล และอิเล็กโทรดโพสิชัน (The Development of Vibrocompacted Fuel Elements with UO_2 Fuel Prepared by the Sol-Gel Process and by Electrodeposition) (26)

การนำ UO_2 ที่เตรียมได้จากปฏิกิริยาอิเล็กโทรดโพสิชันไม่ทำให้เกิดปัญหาเมื่อนำไปใช้เป็นเชื้อเพลิงในแท่งเชื้อเพลิง แต่กระบวนการนี้มีข้อจำกัดคือ ไม่สามารถเตรียมเชื้อเพลิงที่มีพลูโตเนียมผสมและการทำดีโพสิชันของพลูโตเนียมจะทำได้เพียง 2-3 เปอร์เซ็นต์เท่านั้น นอกจากนี้ผลิตภัณฑ์ที่ได้อาจมีคลอไรด์ปนอยู่ในปริมาณมากถึง 100 ส่วนในล้านส่วน (100 ppm) หลังจากเตรียมเชื้อเพลิงโดยวิธีนี้เสร็จนำไปให้ความร้อนแล้วทดลองนำไปฉายนิวตรอน (irradiate) แสดงให้เห็นว่าเชื้อเพลิงทำปฏิกิริยากับแคลดดิ้ง (cladding)

เมื่อมีการศึกษาเกี่ยวกับกระบวนการโซล-เจล พบว่า กระบวนการโซล-เจล มีคุณลักษณะพิเศษคือ ทำให้เกิดสเฟียร์ที่มีความหนาแน่นสูง มีสิ่งเจือปนที่ไม่ต้องการในปริมาณต่ำ โดยเฉพาะคาร์บอนไนโตรเจนและไฮโดรเจน และที่สำคัญก็คือ เชื้อเพลิงที่เตรียมจากกระบวนการนี้ไม่ทำปฏิกิริยากับแคลดดิ้ง

RGN ได้ทำการทดลองนำเชื้อเพลิงที่เตรียมจากกระบวนการโซล-เจลไปฉายนิวตรอนถึงผลทางด้านโลหวิทยา (Metallography) และฟิชชันก๊าซที่หลุดจากแท่งเชื้อเพลิง (Fission Gas Release) ดังรายละเอียดที่จะกล่าวต่อไป

9.1 รายละเอียดการเตรียมเม็ดเชื้อเพลิงโดยกระบวนการโซล-เจล

การเตรียมเชื้อเพลิงใช้หลักการของกระบวนการ KEMA U(VI) คือการทำให้สารเนื้อเดียวตกตะกอนอย่างรวดเร็ว โดยให้มีขนาดผลึกเล็ก ซึ่งสารแบบนี้จะสามารถนำไปเผาประสานได้ง่าย กระบวนการนี้อาศัยองค์ประกอบร่วมกัน 2 อย่างคือ เทคนิคของอินเทอร์นอล เจเลชัน และการใช้สารละลายยูเรเนียม (VI) ในเตรทที่มีความเข้มข้นสูงแต่มีปริมาณไอออนต่ำ (anion deficient) เหตุที่เลือกใช้สารละลายที่มีไอออนต่ำเนื่องจากสามารถทำให้มีความ

เข้มข้นสูงกว่าสารละลายที่มีอัตราส่วนในปริมาณอิมคว (saturated stoichiometric solution) และยังสามารถเติมสารที่เกิดฟิชชันได้ (fissionable) และสารพวกเฟอร์ไรท์ เช่น พลูโตเนียม ทอเรียม หรือยูโรเนียมปนไปกับ UO_2 ได้

สารละลายที่มีอัตราส่วนค่าและมีความเข้มข้นของยูเรเนียม 3 โมลาร์ อัตราส่วนของไนเตรตต่อยูเรเนียมเท่ากับ 1.5 ถึง 1.6 สามารถเตรียมได้ง่ายด้วยกระบวนการสกัดกรดไนตริกออกจากของเหลวและของเหลวที่ใช้สกัดคือ เอมีนปฐมภูมิ (primary amine) หรืออาจเตรียมจากการละลาย U_3O_8 หรือ UO_2 ลงในกรดไนตริกตามปริมาณที่คำนวณได้

จากกระบวนการอินเทอร์นอลเจเลชัน นำสารละลายยูเรเนียม (VI) ในเครทไปผสมกับ HMTA และยูเรีย โดยทำให้อยู่ในสภาพที่เย็น นำสารละลายผสมไปคิสเพอส์ในอากาศ เป็นหยดลงในสารอินทรีย์ที่ร้อน และสารผสมจะเปลี่ยนเป็นของแข็งภายในเวลา 2-3 วินาที

การกำจัดสารอินทรีย์ HMTA ยูเรียและแอมโมเนียมไนเตรท ทำได้โดยการล้าง 2 ขั้นตอนคือ ล้างด้วยอีโตรีเลียมอีเทอร์ แล้วตามด้วยแอมโมเนีย หลังจากล้างแล้วนำไปทำให้แห้งในอากาศที่อุณหภูมิ $70-80^{\circ}$ เซลเซียส สารที่ได้จากขั้นตอนนี้มีสีเหลือง ส่วนประกอบคือ $UO_3 \cdot \frac{1}{3} NH_3 \cdot \frac{5}{3} H_2O$ วัดด้วยเครื่อง x-ray diffraction สเปียร์ที่ได้มีความพรุน 70 เปอร์เซ็นต์ นำสเปียร์ไปรีดิวซ์และเผาประสานเพื่อให้ได้ UO_2 ที่มีความหนาแน่นสูง อุณหภูมิที่ใช้ 1200° เซลเซียส เวลาที่ใช้ในการเผาทั้งหมด 33 ชั่วโมง กรณีที่ต้องการใช้เวลาในการเผาประสานสั้น ๆ จะต้องใช้อุณหภูมิสูง โดยนำสารสีเหลืองที่ได้จากการทำให้แห้งไปเผาในอากาศที่อุณหภูมิ 450° เซลเซียสเพื่อไล่สารระเหยได้ออกไปก่อน อัตราการเพิ่มอุณหภูมิในช่วงนี้เท่ากับ $200-300^{\circ}$ เซลเซียสต่อชั่วโมง ผลที่ได้คือ ส่วนผสมของ $\alpha UO_{2.9}$ (สีดำ) และ βUO_3 (สีส้ม) สารนี้สามารถนำไปรีดิวซ์และเผาประสานในเตาเผาซึ่งมีบรรยากาศเป็นตัวรีดิวซ์ให้มียุณหภูมิสูงถึง 1600° เซลเซียส อัตราการเพิ่มอุณหภูมิเท่ากับ $20-30^{\circ}$ เซลเซียส สเปียร์ที่ได้จากวิธีนี้เป็นเม็ดที่ดีถึง 98 เปอร์เซ็นต์ แดกเพียง 2 เปอร์เซ็นต์ และใช้เวลาในการเผาเพียง 6 ชั่วโมงเท่านั้น สเปียร์ที่ได้มีผิวเรียบ ความหนาแน่นวัดโดยการแทนที่น้ำได้ 98.5 เปอร์เซ็นต์ของค่าทฤษฎี นอกจากนี้ยังมีปริมาณคาร์บอนและคลอรีนต่ำกว่า 10 ส่วนในล้านส่วน (10 ppm)

9.2 การผลิต UO_2 สเฟียร์ขนาดต่าง ๆ

UO_2 สเฟียร์ความหนาแน่นสูงสำหรับไวบร-คอมแพค (vibro-compaction) มี 3 ขนาดคือ ขนาดใหญ่เส้นผ่าศูนย์กลาง 800-1000 ไมโครเมตร ขนาดกลาง 80-100 ไมโครเมตรและขนาดเล็ก 45 ไมโครเมตร สำหรับขนาดใหญ่ทำได้โดยให้สารละลายผสมหยดโดยอิสระผ่านท่อรูตีบ (หรืออาจใช้แรงดันเล็กน้อย) ลงในสารผสมระหว่างพาราฟินกับ เทตระคลอโรเอทิลีนที่มีอุณหภูมิ 90-95^o เซลเซียสและมีเซอร์แฟคแทนท์ผสมอยู่ด้วย UO_2 ที่ได้จากวิธีนี้มีคุณภาพดี ค่าความเบี่ยงเบนมาตรฐานเนื่องจากการกระจายตัวของขนาดเท่ากับ 1.07 เส้นผ่าศูนย์กลาง 400-1000 ไมโครเมตร สเฟียร์ขนาดกลางได้จากการดีสเพอส์ผ่าน นอซซ์ลงในโดเบเน พี ที 12 (Dobane PT 12) อุณหภูมิ 90-95^o เซลเซียส เส้นผ่าศูนย์กลางของสเฟียร์ 300 ไมโครเมตร ความเบี่ยงเบนมาตรฐานของการกระจายตัวของขนาด เท่ากับ 1.4 ขนาดเล็กใช้วิธีเดียวกับขนาดกลาง

9.3 การทำไวบร-คอมแพค (Vibro-Compaction)

ทำไวบร-คอมแพคชันด้วยเครื่องเขย่าแบบอิเล็กโทรไดนามิก (electrodynamic shaker) ด้วยความถี่ 5-5000 รอบต่อวินาที เขย่าในแนวแกนตั้งเป็นสัญญาณรูปไซน์ ใช้ โซล-เจลสเฟียร์ 3 ขนาดคือ ระหว่าง 840-1000 ไมโครเมตร 62 เพอร์เซ็นต์ ขนาด 88-100 ไมโครเมตร 19 เพอร์เซ็นต์ และขนาดต่ำกว่า 44 ไมโครเมตร 19 เพอร์เซ็นต์ เมื่อผสมกันเสร็จแล้วมีความหนาแน่น 85-89 เพอร์เซ็นต์ของค่าทฤษฎี

เชื้อเพลิงที่เตรียมจากกระบวนการอิเล็กโทรไลติก (electrolytic deposition) เตรียมโดยใช้สารผสมยูเทคติก Eutectic ของ Li Cl-KCl ที่ 2.6 โวลต์ ความหนาแน่นของกระแสไฟฟ้าโดยเฉลี่ย 0.06 แอมแปร์ต่อตารางเซนติเมตร ใช้ไพโรไลติกโคท แกรไฟต์ (pyrolytically coated graphite) เป็นอิเล็กโทรด แผ่นแอโนด (anode) 2 แผ่นล้อมรอบด้วยแคโทด (cathode) ที่มีรูปร่างคล้ายนิ้วมือ หลอมส่วนผสมของ Li Cl-KCl ที่ 500^o เซลเซียส เติม UO_2 แล้วละลายด้วยกรดเกลือและก๊าซออกซิเจนไปทำให้แห้ง โดยผ่านก๊าซคลอรีน 5 ชั่วโมงพร้อมกับผ่านอาร์กอน เสร็จแล้วนำแคโทดไปแช่ให้เย็นในน้ำเย็น เก็บ UO_2 ที่ติดอยู่บนแท่งแกรไฟต์นำไปล้างและทำให้แห้ง UO_2 ที่ได้นี้จะมี Cl, K ปนอยู่สูง คือมี

CL 400-600 ppm เมื่อนำไปเผาที่ 1700° เซลเซียสในบรรยากาศของก๊าซเฉื่อยจะลดลงเหลือ 100 ppm Li กับ K จะลดลง 2 ถึง 3 เท่า นำไปทำไวโบร-คอมแพคด้วยความถี่ 5-5000 รอบต่อวินาที โดยเขย่าในแกนตั้งได้เชื้อเพลิงที่มีความหนาแน่น 85-87 เปอร์เซนต์ของค่าทฤษฎี

สำหรับเชื้อเพลิงแบบฟิวส์ออกไซด์ ได้จากการนำ UO_2 เพลเลท เส้นผ่าศูนย์กลาง 60 มิลลิเมตรที่ได้จากกระบวนการออโตครูซิเบิล (autocrucible process) ไปให้ความร้อนโดยใช้การเหนี่ยวนำในบรรยากาศของก๊าซอาร์กอน ใช้ UO_2 ขนาด 1400-3360 ไมโครเมตร 50 ส่วน 840-1410 ไมโครเมตร 13 ส่วน 250-500 ไมโครเมตร 12 ส่วน และ 37-88 ไมโครเมตร 23 ส่วน ได้เชื้อเพลิงที่มีความหนาแน่น 87-89 ของค่าทฤษฎี

9.4 การทดลองทำโพส-อิเรดิเอชัน (Post-irradiation Experiment)

9.4.1 เมทาลโลกราฟี (Metallography)

รูปตัดตามขวางของเชื้อเพลิงแบบเพลเลท อิเล็กโทรไลติกและฟิวส์ UO_2 ที่นำไปอบนิวตรอนในบริเวณ P-1 แสดงในรูป 9.1 ถึง 9.3 UO_2 ที่เตรียมโดยไวโบร-คอมแพคมีการนำความร้อนน้อยกว่าแบบเพลเลท

แม้ว่าการนำความร้อนของเชื้อเพลิงแบบฟิวส์ และอิเล็กโทรไลติก UO_2 จะพิจารณาจากตำแหน่งของการขยายตัวของเกรน (grain growth boundary) เชื้อเพลิงแบบฟิวส์ UO_2 ทำให้เกิด UO_2 ที่มีขนาดใหญ่กว่า จุดหลอมต่ำกว่าและเกิดการตกผลึกใหม่เมื่อนำไปอบรังสีในเครื่องปฏิกรณ์แบบความดันที่บริเวณที่มีอัตราการเพิ่มความร้อนและเบิร์นอัพ (burn-up) ต่าง ๆ กัน (รูป 9.4 และ 9.6) อิเล็กโทรไลติก UO_2 อบรังสีบริเวณที่มีค่าเบิร์นอัพ 16 MWd/kg UO_2 แสดงในรูป 9.7 (a) เปรียบเทียบกับฟิวส์ UO_2 ในรูป 9.6 เชื้อเพลิงแบบอิเล็กโทรไลติกเกิดปฏิกิริยาเคมีกับแคลดดิ้งได้มาก (รูป 9.7 b) รูป 9.7 c, d, e, f แสดงให้เห็นว่ามี U, Zr Cs และ Cl อยู่ที่บริเวณด้านในของแคลดดิ้ง

การทำมาโครกราฟของเชื้อเพลิงแบบฟิวส์และโซล-เจล ที่นำไปอบรังสีในช่วงระยะเวลาสั้น ๆ แสดงในรูป 9.8, 9.9 และ 9.10 ซึ่งสามารถคาดคะเนได้ว่าการ

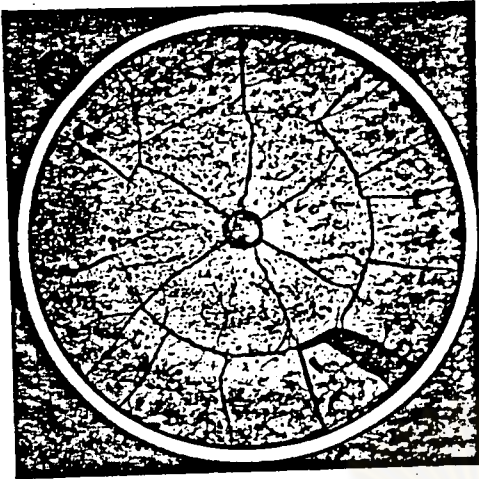
ขยายตัวของขนาด มีการหลอมตัวของสารเกิดขึ้นที่บริเวณที่มีอัตราการเพิ่มความร้อนสูงกว่า บริเวณนี้ UO_2 ไสล-เจล ที่นำไปอบที่บริเวณ $3.7 \text{ MWd/kg } UO_2$ ในเครื่องปฏิกรณ์แบบ ความดัน มีการนำความร้อนที่คิดว่าเป็นเวลาสั้น ๆ รูป 9.11) ซึ่งสามารถ อธิบายได้จากความหนาแน่นที่สูงกว่า และเวลาที่อบนานกว่า รูป 9.12 แสดงให้เห็นว่า เกิดปฏิกิริยาระหว่าง เชื้อเพลิงกับแคลคดิ่ง

9.4.2 การปลดปล่อยก๊าซที่เกิดจากปฏิกิริยาฟิชชัน (Fission Gas Release)

การเกิดฟิชชันก๊าซที่ปล่อยออกมาเมื่ออบเป็นเวลานาน ๆ แปรผันไปจาก 20-26 เปอร์เซ็นต์ ขึ้นกับอัตราการเพิ่มอุณหภูมิของแท่งเชื้อเพลิง สำหรับเชื้อเพลิงแบบ เพลลที่อบบริเวณ P-1 มีฟิชชันก๊าซที่ปล่อยออกมาจากเชื้อเพลิงประมาณ 9 เปอร์เซ็นต์ บริเวณที่มีการขยายตัวของเกรน มีฟิชชันก๊าซออกมา 100 เปอร์เซ็นต์ และ 4 เปอร์เซ็นต์ ในบริเวณที่มีอุณหภูมิต่ำ รวมแล้วมีฟิชชันก๊าซออกมา 30-38 เปอร์เซ็นต์สำหรับเชื้อเพลิงที่ บรรจุโดยไวโบร-คอมแพคชัน สำหรับ UO_2 ไสล-เจลบริเวณช่วงกลาง ๆ ยังคงมีไนโตรเจน อยู่ในปริมาณสูง ประมาณ 0.2 เปอร์เซ็นต์ ไนโตรเจนอยู่ 10 เปอร์เซ็นต์ ปลดปล่อยออกมาจากเชื้อเพลิงที่อบรังสีในเครื่องปฏิกรณ์แบบความดัน

จากผลการทดลองนี้พอสรุปได้ว่า UO_2 ที่เตรียมโดยกระบวนการอิเล็กโทรไลติกมีปัญหาเกี่ยวกับปฏิกิริยาเคมีระหว่างเชื้อเพลิงกับแคลคดิ่ง ส่วนเชื้อเพลิงที่เตรียมจาก กระบวนการไฮล-เจล ไม่มีปัญหาเรื่องปฏิกิริยาเคมี ปัญหาเรื่องก๊าซไนโตรเจนที่ปล่อยออกจาก เชื้อเพลิงสามารถแก้ได้โดยการควบคุมกระบวนการขึ้นรูปให้ดีขึ้น



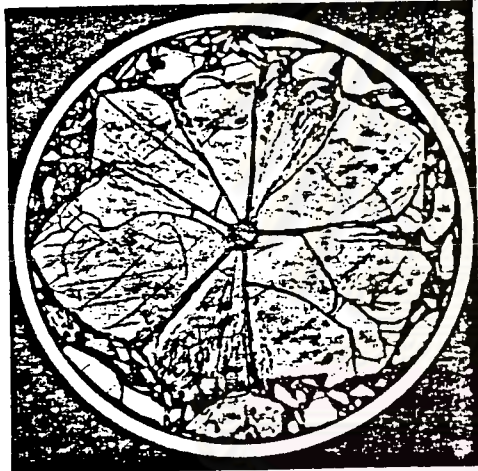
รูปที่ ๙.๑ UO₂ pellet (5X)

Heat rating : 720 W/cm

Fuel surface: 470°C

Burn-up : 1.2 MWd/kg UO₂

(26)

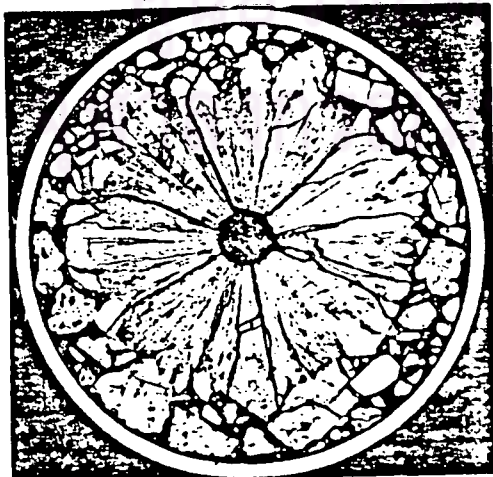
รูปที่ ๙.๒ Fused UO₂ (5X)

Heat rating : 700 W/cm

Fuel Surface: 410°C

Burn-up : 1.2 MWd/kg UO₂

(26)

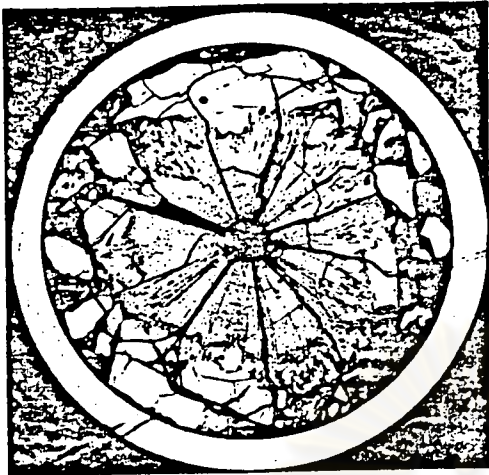
รูปที่ ๙.๓ Electrolytical UO₂ (5X)

Heat rating : 700 W/cm

Fuel Surface: 410°C

Burn-up : 1.2 MWd/kg UO₂

(26)

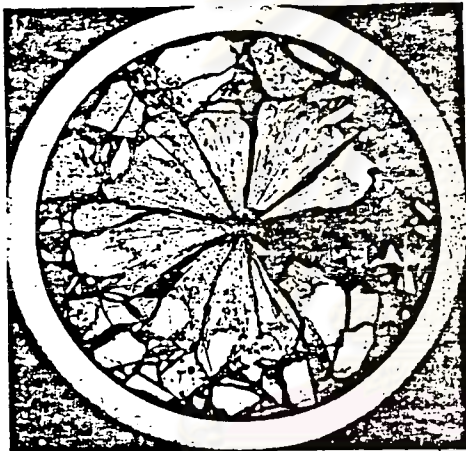
รูปที่ 9.4 Fused UO_2 (5X)

Heat rating : 590 W/cm

Fuel surface: 590°C

Burn-up : 4.9 MWd/kg UO_2

(26)

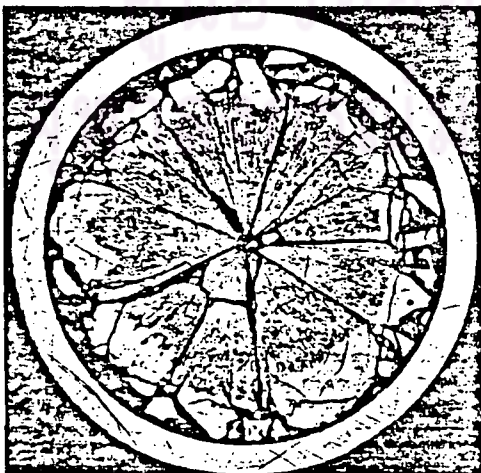
รูปที่ 9.5 Fused UO_2 (5X)

Heat rating : 640 W/cm

Fuel surface: 620°C

Burn-up : 5.4 MWd/kg UO_2

(26)

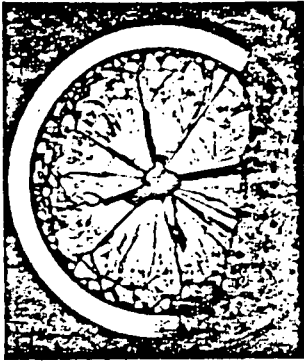
รูปที่ 9.6 Fused UO_2 (5X)

Heat rating : 780 W/cm

Fuel surface: 665°C

Burn-up : 16 MWd/kg UO_2

(26)



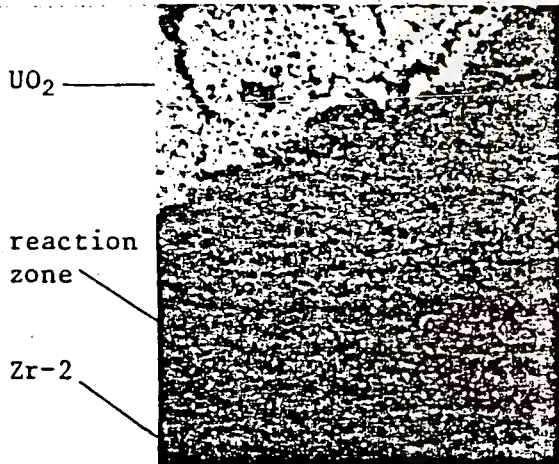
a) Electrolytic UO_2 (3.3X)

Heat rating : 780 W/cm

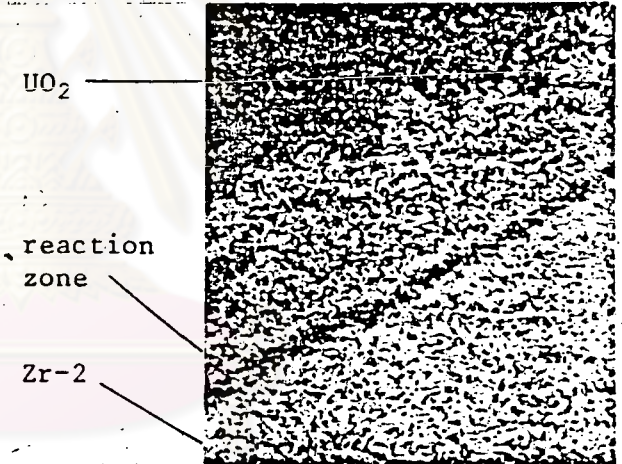
Fuel surface: $665^{\circ}C$

Burn-up : 16 MWd/kg UO_2

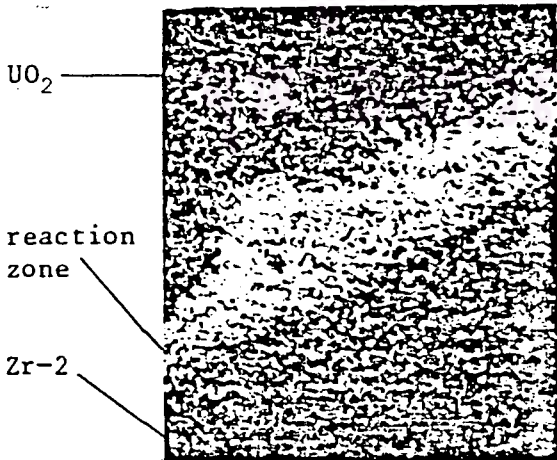
b) แสดงการเกิดปฏิกิริยาระหว่างเชื้อเพลิงและ เซอร์คาลอยด์ แคลคดิ่ง



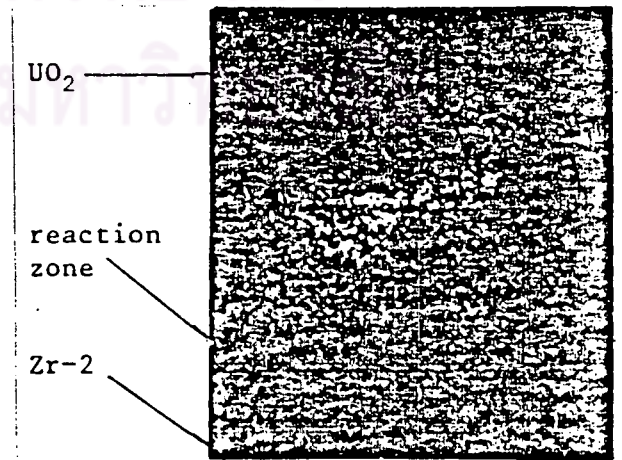
c) Uranium, $U-M_{\alpha 1}$



d) Zirconium, $Zr-L_{\alpha 1}$



e) Cesium, $Cs-L_{\alpha 1}$

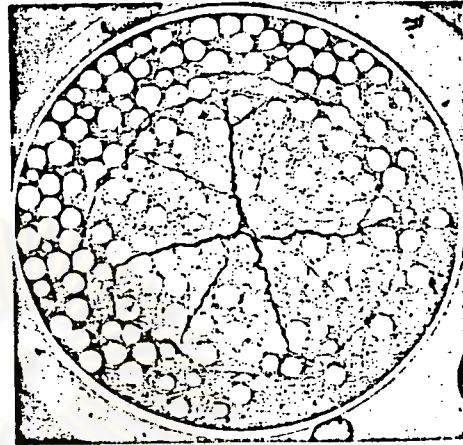


f) Chlorine, $Cl-K_{\alpha}$

รูปที่ 9.7 Electrolytic UO_2 ที่อบรังสีใน HD-HFR 100p c, d, e, f เป็นภาพ ไมโครสแกนของบริเวณที่เกิดปฏิกิริยา (26)

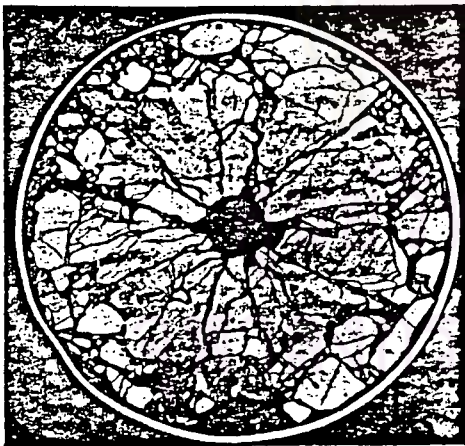


Fused Oxide

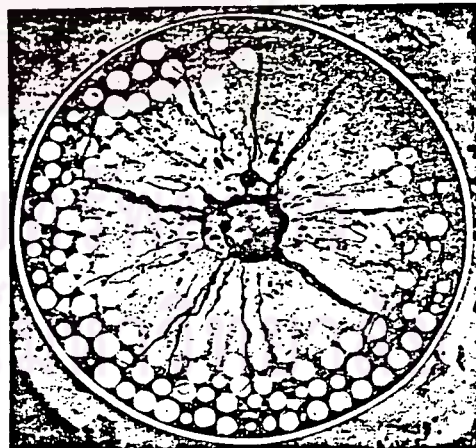
Sol-Gel UO_2

รูปที่ ๙.๘ Heating rate : 600 W/cm
Surface temp : 420°C *

(26)

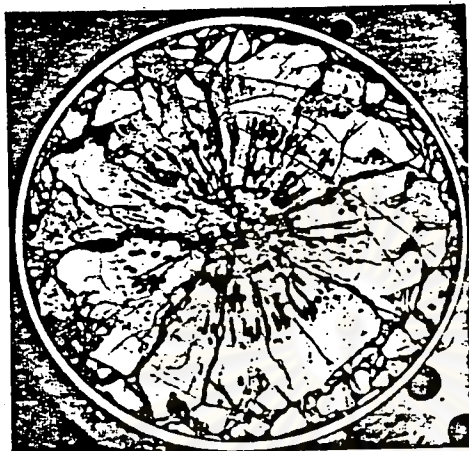


Fused Oxide

Sol-Gel UO_2

รูปที่ ๙.๙ Heating rate : 750 W/cm (26)
Surface temp : 500°C *

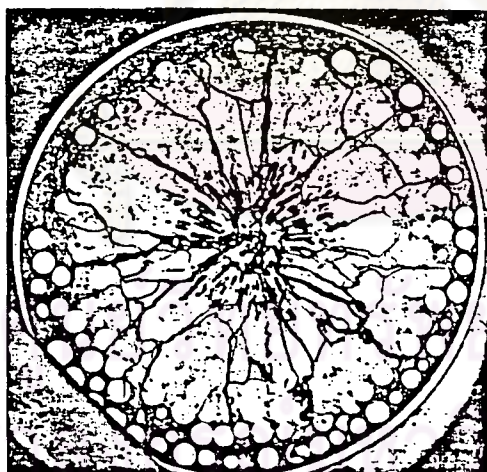
* อายรังสีในสวิง-อิน (Swing-in) เป็นเวลา 30 นาที)



Fused Oxide

Heating rate : 915 W/cm

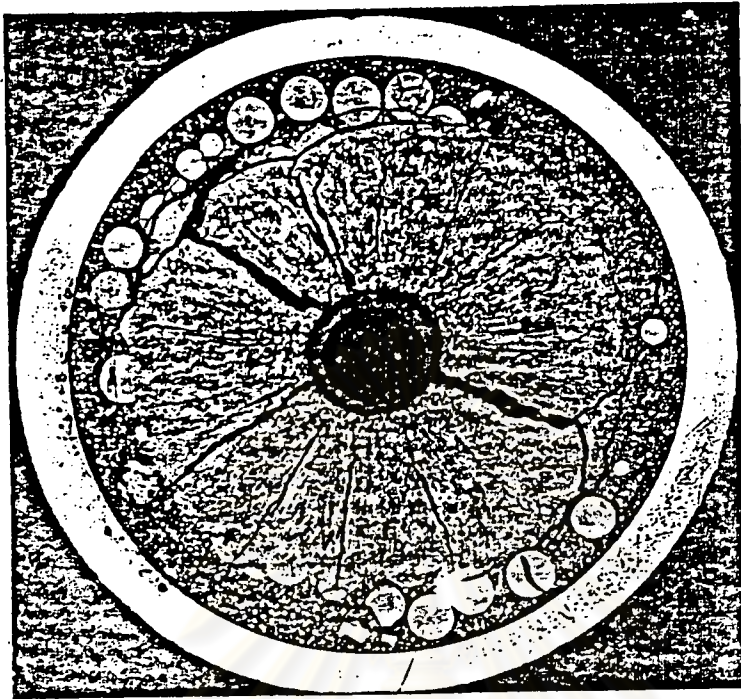
Surface temp : 590°C

Sol-Gel UO_2

Heating rate : 915 W/cm

Surface temp : 500°C

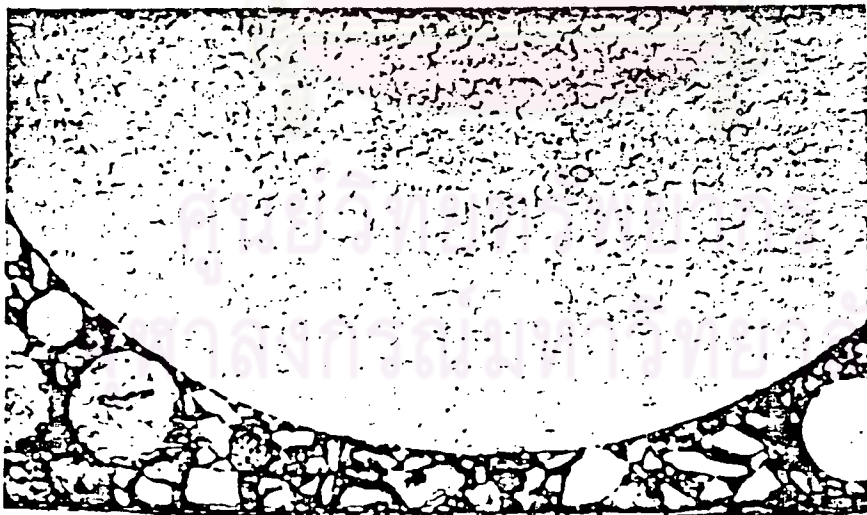
รูปที่ 9.10 อามนิวตรอน 30 นาที ในสริง-อินยูนิต (26)



รูปที่ ๑.๑๑ รูปตัดตามขวางของ UO_2 โซล-เจล (8X)

Heating rate 730 W/cm, Fuel Surface temp $640^{\circ}C$,

Burn up 3.7 MWd/kg UO_2 (26)



รูปที่ ๑.๑๒ โซล-เจล UO_2 ที่ผิวของแคลดดิ้ง (200X)

ไม่เกิดปฏิกิริยาระหว่าง UO_2 กับ Zircaloy Cladding (26)

ภาคผนวก ค.

ประเภทของ เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ (28)

เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ที่ใช้ในโรงไฟฟ้านิวเคลียร์ (เครื่องปฏิกรณ์นิวเคลียร์ที่ผลิตไฟฟ้า) ต่างจาก เชื้อเพลิงฟอสซิล เช่น ถ่านหินและน้ำมัน ในข้อที่ว่าเชื้อเพลิงประเภทนี้ก่อนนำมาใช้ จะต้องผ่านกรรมวิธีหลายขั้นตอนเพื่อให้อยู่ในสภาพและรูปแบบที่เหมาะสมเสียก่อน เช่น ต้องทำให้มีความเข้มข้นของตัวเชื้อเพลิงหรือที่เรียกว่า วัสดุแตกตัวได้ (Fissile material) สูง ทำให้เป็นสารประกอบที่สามารถทนต่ออุณหภูมิสูง ถ่ายเทความร้อนที่ดีและไม่เปลี่ยนสภาพทางฟิสิกส์ เมื่ออยู่ในสนามของรังสีนิวตรอนมีเปลือกห่อหุ้ม (cladding) ที่เหมาะสม ซึ่งคุณสมบัติทั้งหมดนี้ถูกจำกัดโดยประเภทของเครื่องปฏิกรณ์นิวเคลียร์ที่ใช้ นอกจากนี้เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ยังมีสมบัติพิเศษที่ต่างจากเชื้อเพลิงอื่น คือ หลังการใช้งานแล้ว สามารถสกัดส่วนที่เหลือออกมา ยังสามารถผลิตเชื้อเพลิงชนิดใหม่ได้อีกด้วย

วัตถุดิบที่มีในธรรมชาติที่ใช้เป็นเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ชนิดแตกตัวได้ มีชนิดเดียวคือ ยูเรเนียม-235 ซึ่งมีอยู่เพียง 0.7 เปอร์เซ็นต์ของยูเรเนียมธรรมชาติ ส่วนยูเรเนียม-238 และโทเรียม-232 นั้น เป็นวัตถุดิบกำเนิด (Fertile material) เมื่อถูกนิวตรอนแล้วจะถูกเปลี่ยนไปเป็นพลูโตเนียม-239 และยูเรเนียม-233 ซึ่งเป็นวัสดุแตกตัวได้ ใช้เป็นเชื้อเพลิงใหม่ได้

เราอาจจำแนกเชื้อเพลิงนิวเคลียร์จากธรรมชาติตามรูปสารประกอบทางเคมีได้เป็น 4 ประเภทดังนี้

10.1 เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ประเภทโลหะ (Metallic type element) เนื่องจากโลหะยูเรเนียมทำปฏิกิริยากับน้ำที่อุณหภูมิสูงได้ ดังนั้นเครื่องปฏิกรณ์นิวเคลียร์ที่ใช้น้ำเป็นตัวระบายความร้อน จึงไม่ใช้เชื้อเพลิงประเภทนี้เพื่อเป็นการป้องกันชั้นหนึ่งในกรณีเกิดการเสื่อมสภาพของเปลือกห่อหุ้ม (cladding failure) ในปัจจุบันมีโรงไฟฟ้านิวเคลียร์แบบแมกน็อกซ์ (Magnox) ที่ใช้เชื้อเพลิงประเภทนี้ โดยบรรจุแท่งโลหะยูเรเนียมในท่อโลหะผสมแมกนีเซียมออกไซด์

10.2 เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ประเภทออกไซด์ (Oxide type element) เชื้อเพลิงประเภทนี้อาจเตรียมได้จากการอัด (pressing) แล้วเผา (Sintering) ผงยูเรเนียมออกไซด์ (UO_2) ให้เป็นเม็ดที่เรียกว่าเพลเลต (pellet) แล้วบรรจุเม็ดเชื้อเพลิงเหล่านี้ในท่อโลหะผสมของเซอร์โคเนียมหรือเหล็กโรสนิม นอกจากนี้ยังอาจเตรียมได้จากการอัดเย็น (cold-compacting) ผงออกไซด์ที่มีความหนาแน่นสูงในท่อโลหะผสมแบบเดียวกันอีกด้วย เนื่องจากยูเรเนียมออกไซด์ไม่มีปฏิกิริยากับน้ำ แม้จะอยู่ภายใต้ความดันและอุณหภูมิสูง เชื้อเพลิงประเภทนี้จึงใช้ได้ดีในเครื่องปฏิกรณ์แบบ Boiling Water, Pressurized Water และเครื่องปฏิกรณ์แบบ Candu

10.3 เชื้อเพลิงนิวเคลียร์ประเภทคาร์ไบด์ (Carbide type element) ยูเรเนียมคาร์ไบด์ทำปฏิกิริยากับน้ำให้ยูเรเนียมออกไซด์ ไฮโดรเจน และมีเทน ดังนั้นจึงไม่มีการใช้เชื้อเพลิงประเภทนี้ในเครื่องปฏิกรณ์นิวเคลียร์ แบบที่ใช้น้ำเป็นตัวระบายความร้อนด้วยเหตุผลเดียวกันกับในกรณีเชื้อเพลิงประเภทโลหะ เครื่องปฏิกรณ์ประเภท (liquid-metal reactor) ซึ่งกำลังเป็นที่สนใจเนื่องจากอาจผลิตเชื้อเพลิงใหม่ได้ (Breeder) ใช้เม็ดเชื้อเพลิงคาร์ไบด์บรรจุในท่อเหล็กกล้า (Steel) สำหรับในเครื่องปฏิกรณ์แบบ high-temperature gas-cooled นั้นเชื้อเพลิงที่ใช้เป็นสารประกอบประเภทไดคาร์ไบด์ (UC_2) โดยมีแกรไฟต์เป็นเปลือกหุ้มเชื้อเพลิงที่ใช้ใน pebble-bed reactor ซึ่งเป็น high-temperature gas-cooled reactor ประเภทหนึ่งที่พัฒนาขึ้นในประเทศสหพันธรัฐเยอรมัน ก็อาศัยหลักการแบบเดียวกันเพียงแต่ว่าเชื้อเพลิงมีลักษณะเป็นรูปทรงกลมขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 4-6 เซนติเมตร

10.4 เชื้อเพลิงประเภทเซอร์เมต (Cermet type element) เชื้อเพลิงประเภทนี้ประกอบขึ้นจากโลหะผสมของยูเรเนียมกับบอลูมิเนียม เหล็กกล้า หรือเซอร์โคเนียมมีลักษณะเป็นแผ่น (plate) บรรจุในท่อบอลูมิเนียม เหล็กกล้า หรือเซอร์โคเนียม ความเข้มข้นของยูเรเนียม -235 สูงกว่าปกติในธรรมชาติมาก ใช้เฉพาะใน material testing และ swimming pool reactor ไม่พบว่ามีการใช้ในโรงไฟฟ้านิวเคลียร์

ประวัติผู้เขียน

นางสาวนิภาวรรณ ปรมาธิกุล สำเร็จวิทยาศาสตร์บัณฑิต สาขาเคมี จากคณะ

วิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยศรีนครินทรวิโรฒ วิทยาเขตประสานมิตร พ.ศ. 2524 รับราชการ

ตำแหน่งนักผลิตไอโซโทป 4 กองผลิตไอโซโทป สำนักงานพลังงานปรมาณูเพื่อสันติ กระทรวง

วิทยาศาสตร์เทคโนโลยีและการพลังงาน



ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย