

۱۶ و ۱۷ شهریور ماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

تهیه پودر U_3O_8 با توزیع ذرات مناسب از محلول اورانیل نیترات جهت تولید سوخت صفحه‌ای

هادی ناظم*، سید کاظم فاطمی، امیر حسین فرهادی، محمد تقی نژاد کرد

سازمان انرژی اتمی، شرکت سوخت راکتورهای هسته‌ای، صندوق پستی: ۸۱۴۶۵-۱۹۵۷

چکیده

در فرآیند تولید سوخت صفحه‌ای مقداری پودر U_3O_8 زیر ۴۵ میکرون تولید می‌شود که از لحاظ اندازه ذره مناسب برای تولید صفحات سوخت نمی‌باشد. در این پژوهش روشی برای بازیابی این پودرها ارائه شده است. ابتدا پودر U_3O_8 در اسید نیتریک حل و به محلول اورانیل نیترات (UNH) تبدیل می‌شود. به محلول اورانیل نیترات محلول آمونیاک اضافه شده تا رسوب آمونیوم دی اورانات (ADU) تشکیل شود. به رسوب حاصل محلول اسید فلوریدریک (HF) افزوده شده تا محلول اورانیل فلوراید (UO_2F_2) تشکیل شود. با افزودن محلول آمونیوم کربنات به UO_2F_2 کریستال‌های آمونیوم اورانیل کربنات (AUC) تشکیل شده و با کلسیناسیون AUC پودر U_3O_8 با ۹۱٪ ذرات بزرگتر از ۴۵ میکرون حاصل شده است.

کلید واژه: سوخت صفحه‌ای، آمونیوم اورانیل کربنات، پودر U_3O_8 زیر ۴۵ میکرون

مقدمه

سوخت صفحه‌ای به عنوان سوخت راکتورهای تحقیقاتی مورد استفاده قرار می‌گیرد. این سوخت مخلوطی از پودر U_3O_8 و آلومینیوم است. برای تولید پودر U_3O_8 ابتدا UF_6 هیدرولیز شده و محلول UO_2F_2 حاصل می‌شود. از محلول UO_2F_2 می‌توان کریستال‌های AUC تولید و با کلسیناسیون آن‌ها پودر U_3O_8 تولید کرد [1]. روش دیگر برای تولید پودر U_3O_8 ، تبدیل محلول UO_2F_2 به کریستال ADU و کلسینه کردن آن است [2]. در روند تهیه صفحات سوخت از پودر U_3O_8 به هر یک از این دوروش، مقداری پودر با اندازه ذرات ریز (زیر ۴۵ میکرون) تولید می‌شود. حد مجاز استفاده از پودرهای زیر ۴۵ میکرون در صفحات سوخت برای پودر U_3O_8 تهیه شده از فرآیند AUC ۲۹٪ و برای فرآیند ADU ۲۰٪ می‌باشد [3]. مابقی این پودرها بلا استفاده بوده و باید به گونه‌ای بازیابی شوند و مجدداً به پودر با اندازه ذره مناسب تبدیل شوند. این پودرها ابتدا بایستی در اسید نیتریک حل و به محلول UNH تبدیل شوند. تولید رسوب AUC از محلول UNH با استفاده از محلول آمونیوم کربنات منجر به تولید پودر U_3O_8 با درصد ذرات زیاد زیر ۴۵ میکرون و ساختار سوزنی شده که برای ساختار کروی U_3O_8 در صفحات سوخت مناسب نمی‌باشد [4]. در این پژوهش با استفاده از روش غیر مستقیم از UNH با غلظت اورانیوم ۵۰ گرم بر لیتر پودر U_3O_8 با ۹۱٪ ذرات بالای ۴۵ میکرون تولید شده است. کلیه فعالیت‌های انجام شده بر روی پودر U_3O_8 طبیعی بوده است.

روش کار

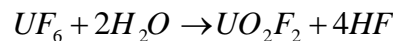
۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

پودرهای زیر ۴۵ میکرون برای بازیابی باید ابتدا در اسید نیتریک حل شده و به محلول اورانیل نیترات (UNH) تبدیل شوند. از محلول UNH مطابق فرآیند زیر می‌توان به طور مستقیم پودر U_3O_8 تهیه نمود.



پودر U_3O_8 تهیه شده به روش بالا از لحاظ مورفولوژی سوزنی شکل است در حالی که مورفولوژی کروی مد نظر است. بنابراین روش فوق مناسب ارزیابی نمی‌شود. نظر به این که پودرهای برگشتی حاوی یون فلئور نیستند و ناخالصی‌های آن در حد مجاز است، فرآیند بازیابی در آزمایشگاه با محلول UNH خالص انجام پذیرفت. فعالیت‌های آزمایشگاهی انجام گرفته برای بازیابی پودرهای زیر ۴۵ میکرون به شرح زیر است:

- ۱- آنالیز محلول UNH: مقدار U و آنالیز ناخالصی در جدول (۱) و (۲) آمده است.
- ۲- تهیه ADU از محلول UNH: ابتدا به محلول UNH محلول آمونیاک زده شد تا رسوب ADU تشکیل شود. پس از تشکیل رسوب محلول شفاف روی رسوب دکانت شد. (روش دکانت).
- ۳- تهیه محلول UO_2F_2 از ADU: پس از تشکیل رسوب ADU به رسوب، محلول HF زده شد تا محلول UO_2F_2 حاصل شود. مطابق واکنش زیر باید مقدار اضافه کردن HF به گونه‌ای باشد که نسبت F/U در محلول UO_2F_2 حفظ شود.



- ۴- تهیه محلول AUC: به محلول UO_2F_2 محلول آمونیوم کربنات زده شد تا رسوب AUC تشکیل شود. در مرحله رسوب گیری AUC سرعت تزریق آمونیوم کربنات، سرعت همزنی و نحوه همزنی بسیار حائز اهمیت هستند. به طوری که نتایج حاصل از همزنی با همزن مغناطیسی بسیار متفاوت از همزنی با نیتروژن است که در ادامه آورده خواهد شد. پس از تشکیل رسوب AUC و فیلتر کردن آن، رسوب AUC در دمای محیط قرار داده شد تا خشک شود و سپس در کوره کلسیناسیون قرار داده شد تا U_3O_8 تشکیل شود. پودر U_3O_8 برای آنالیز SEM و Particle Size به آزمایشگاه فرستاده شد.

جدول ۱- مشخصات محلول UNH

پارامتر	مقدار

۵ و ۶ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

۵۰/۱g/lit	U
۱/۱۶g/cm ³	دانسیتته

جدول ۲- آنالیز ناخالصی محلول UNH

مقدار (ppm)	عنصر
۱>	Cr
۱>	Fe
۱>	K
۱>	Mg
۱/۲	Na
۱>	V
۱>	Cu
۱>	Al

۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد

۱>	Ni
۲/۳	Ca
۱>	Ti
۱>	Mn

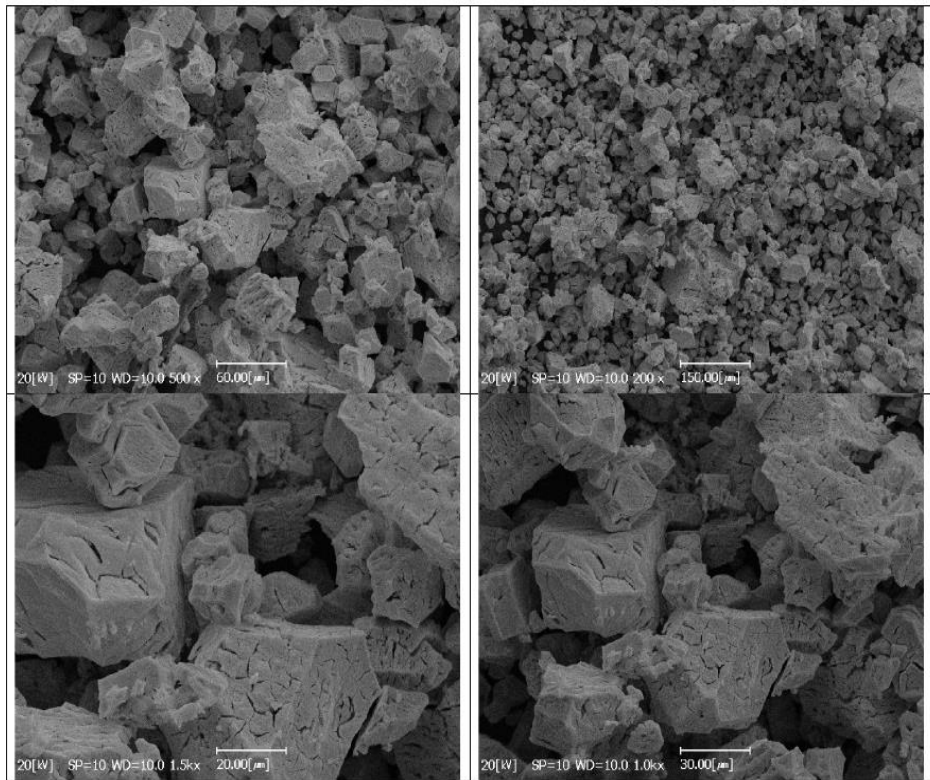
نتایج

فرآیند رسوب گیری AUC با استفاده از گاز نیتروژن انجام شد. گاز نیتروژن در فرآیند رسوب گیری با سرعت بسیار کم به ظرف رسوب گیری تزریق شد. توزیع اندازه ذرات و ساختار پودر U_3O_8 در زیر آمده است. بر اساس نتایج ارائه شده در جدول (۳) میزان پودر زیر ۴۵ میکرون کمتر از ۱۰٪ است. ضمن این که پودر تولیدی در آزمایشگاه از قابلیت ریزش خوبی برخوردار بود. تصاویر SEM گرفته شده از پودر حاکی از آن است که پودر تولید شده ساختار سوزنی ندارد. (شکل ۱).

جدول ۳- توزیع اندازه ذرات پودر U_3O_8 تهیه شده با استفاده از سیستم همزنی با نیتروژن

درصد جرمی	اندازه ذره (میکرومتر)	شماره مش الک
۵۲/۶	۹۰<	+۱۷۰
۳۷/۹	۹۰> >۴۵	+۱۷۰ -۳۲۵
۹/۵	۴۵>	-۳۲۵

۱۶ و ۱۷ اسفندماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد



شکل ۱- ساختار SEM پودر U_3O_8 تهیه شده با استفاده از سیستم همزنی با نیتروژن

تأثیر نحوه همزنی بر توزیع اندازه ذرات

در آزمایشگاه مرحله تشکیل رسوب AUC با همزن مغناطیسی انجام گرفت که نتیجه توزیع اندازه ذرات در جدول (۴) آمده است. همانطور که مشاهده می‌شود با همزنی مغناطیسی درصد ذرات زیر ۴۵ میکرون بیش از ۶۸/۱٪ است. لذا همزنی باید حتماً با گاز نیتروژن و با سرعت خیلی کم انجام شود.

جدول ۴- توزیع اندازه ذرات پودر U_3O_8 تهیه شده با استفاده از سیستم همزنی با همزن مغناطیسی

درصد جرمی	اندازه ذره (میکرومتر)	شماره مش الک
۶/۷	$90 <$	+۱۷۰
۲۵/۲	$90 > 45$	+۱۷۰ -۳۲۵
۶۸/۱	$45 >$	-۳۲۵

با توجه به بررسی‌های آزمایشگاهی به طور کلی روش پیشنهادی برای بازیابی پودرهای زیر ۴۵ میکرون U_3O_8 به شرح است:

۱۶ و ۱۷ شهریور ماه ۱۳۹۴ دانشگاه یزد



بحث و نتیجه گیری

در این روش پودرهای U_3O_8 زیر ۴۵ میکرون ابتدا در اسید نیتریک حل و به UNH تبدیل می‌شوند. با رسوب گیری ADU از محلول UNH و افزودن محلول HF به رسوب ADU محلول اورانیل فلوراید حاصل می‌شود. با استفاده از محلول آمونیوم کربنات و همزدن با گاز نیتروژن با سرعت خیلی کم رسوب AUC تشکیل شده که از کلسینه کردن این رسوب پودر U_3O_8 حاصل می‌شود. نتایج این کار در آزمایشگاه نشان داد از پودرهای زیر ۴۵ میکرون تا ۹۱٪ امکان استحصال پودرهای بالای ۴۵ میکرون U_3O_8 وجود دارد. تنظیم نسبت مولی F/U با توجه به واکنش هیدرولیز از طریق افزایش محلول HF از عوامل موثر تولید U_3O_8 با دانه بندی درشت است. در مرحله تشکیل رسوب AUC نوع همزن و سرعت همزنی در رشد کریستال‌های AUC نقش به سزایی دارند. استفاده از همزن مغناطیسی به جای گاز نیتروژن منجر به تولید ۶۸٪ ذرات زیر ۴۵ میکرون شد.

مراجع

- [1] Gilberto H. Marcondes e Humberto G. RIELIA, "Obtaining U_3O_8 powder for MTR fuel starting from Ammonium Uranyl tricarbonate" National Commission for Nuclear-sp Institute for Research and Nuclear Energy, 1998.
- [2] W.I. Zidan and I.M. Elseaidy, "General Description and Production Lines of the Egyptian Fuel Manufacturing Pilot Plant" Atomic Energy Authority of Egypt, 1989.
- [3] G.H. Marcondes, H.G. Riella and M. Durazzo, "An Alternative Method to Produce U_3O_8 Powder for MTR Fuel Elements", International Nuclear Atlantic Conference, 2011.
- [4] A. Mellah, S. Chegrouche, M. Barkat, "The precipitation of ammonium uranyl carbonate (AUC): Thermodynamic and kinetic investigations", Hydrometallurgy 85 (2007) 163–171.