# ساخت قرص‌های سوخت توریم–اورانیوم به روش اشباع سازی

**محسن نجفی: سید محمد قریشی: سید جواد احمدی: نیلوفر محسنی**

۱ – اصفهان، دانشگاه صنعتی اصفهان، دانشکده مهندسی شیمی

۲– تهران، سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته ای

## چکیده

*اشباع سازی فرآیندی است که برای تولید قرص‌های توریم به همراه سوخت محرک اورانیوم ۲۳۳ مورد استفاده قرار می‌گیرد. در فرآیند جاری نیاز به یک سیستم تحت حفاظ است اما در این فرآیند قرص‌های خام متخلخل توریم اکسید با چگالی کم در شرایط غیر حفاظ‌دار ساخته می‌شوند. سپس تحت شرایط حفاظ‌دار در محلول ۱.۵ مولار اورانیل نیترات اشباع شده و در دمای $C^{\circ}$ ۵۰۰ خشک شده و درنهایت سینتر می‌گردند. آزمون های XRD, SEM, XRF, ICP, TG برای مشخص شدن مقدار ویژگی‌ها مورد استفاده قرار گرفته است. در این فرایند قرص هایی با چگالی تئوری بالای ۹۴ درصد ساخته شد. درصد وزنی اورانیوم در این قرص ها ۲/۰۳ بود. تصاویر SEM نشان دادند که ماده افزودنی اکسید منیزیم ساختار مستحکم تری در قرص ها ایجاد می کند.*

***کلمات کلیدی:*** *قرص سوخت، توریم اکسید، اورانیوم اکسید، اشباع سازی، چرخه سوخت هسته‌ای*

## ۱- مقدمه

هم‌اکنون انرژی برق هسته‌ای به‌عنوان منبع مهمی از انرژی الکتریسیته به اثبات رسیده و در حال حاضر حدود ۲۵ تا ۳۰ درصد برق دنیا از طریق نیروگاه‌های اتمی تأمین می‌شود[۱]. چالش جدیدی که در صنایع هسته‌ای به وجود آمده است، انتخاب سوخت‌های نوین برای راکتور هسته‌ای است. انتخاب سوخت توریم به‌عنوان سوختی با منابع گسترده در کره زمین و با زنجیره شکافت بی‌خطرتری نسبت به اورانیوم در همین راستا صورت گرفته است. این سوخت به دلیل عدم شکافت پذیری نیاز به یک سوخت محرک دارد. استفاده از پلوتونیم به‌عنوان سوخت محرک در ابتدا بسیار رایج بود. اما به دلیل مخاطرات زیاد این ایزوتوپ و همچنین دختر هسته‌های آن، پس از مدتی کنار گذاشته شد. از آنجا که پس از پرتودهی توریوم با نوترون، اورانیوم ۲۳۳ در آن تولید می شود، می توان در سیکل بسته از ترکیب توریوم و اورانیوم ۲۳۳ به عنوان سوخت استفاده کرد. اورانیوم ۲۳۳ از نظر بازدهی نوترونی بهترین گزینه در میان مواد شکافت پذیر است. [۲و۱]. کاربرد سوخت مخلوط توریوم –اورانیوم در راکتور های $LWR$[1]، HWR[2] و HTGR[3] به‌طور گسترده‌ای مورد بررسی قرار گرفته است. اما با این وجود هنوز راکتورهای توریومی تجاری سازی نشده اند [۳].

به همراه $^{233}U$مقداری $^{232}U$نیز پس از پرتودهی تولید می شود که نیمه عمر ۱.۹ سال دارد و ساتع کننده گامای شدید بوده که به معنی نیاز به حفاظ در تمام مراحل تولید سوخت است[٤]. $^{212}Bi$و $^{208}Ti$ *از ساتع کننده های گامای پر انرژی* حدود$mev$ ۰.۷-۱.۸و $mev$ ۲.٦ هستند *که در این زنجیره تولید می شوند* [۵]. وجود این مخاطرات در کار با اورانیوم ۲۳۳ ، سبب شد تا روش اشباع سازی برای کاهش میزان خطرات کار با این ماده در طول فرآیند، پیشنهاد شود.

در فرآیند اشباع سازی قرص‌های خام و یا پیش سینتر شده ی دی اکسید توریوم با چگالی کمتر از ۷۵٪ تئوری و در پروسه‌ای بدون حفاظ ساخته می‌شوند. سپس در محلول ۱ تا ۳ مولار اورانیل نیترات قرار می‌گیرد. استفاده از ماده ی خطرناک $^{233}U$در فرایند اولیه ی تولید قرص حذف می‌شود و تنها محدود به قسمتی از فرآیند می‌گردد. تکنیک اشباع سازی بسیاری از حفاظ گذاری و اتاقک‌های کنترل را از مدار تولید حذف می‌کند و هزینه‌ها را به‌شدت کاهش می‌دهد[٦]. علاوه بر این اشباع سازی بسیاری پس‌ماندهای رسوبی و شستشوها را که تحت حفاظ صورت می‌گیرد حذف کرده فاضلاب اکتیو خطرناک را کاهش می‌دهد[۷و۸].

## ۲- روش کار

[1] Light water reactor
[2] Heavy water reactor
[3] High temperature gas cooled reactor

برای تولید قرص خام پودر توریم اکسید را در قالب ریخته و تحت فشار قرار می‌دهیم. ویژگی‌های پودر مورد استفاده در جدول ۱ آورده شده است. همچنین میزان ناخالصی‌های پودر در جدول ۲ مشخص شده است. یکی از افزودنی‌های به کار گرفته در این پروژه $MgO$ است. مقدار این افزودنی ۵۰۰$ppm$ است و برای ایجاد ساختار همگن و ایجاد کلوخه‌های هم‌اندازه به پودر اضافه می‌شود[۹]. دو افزودنی دیگر به‌عنوان چسب در این فرآیند مورد استفاده قرار گرفت. این دو افزودنی $PEG$ (پلی‌اتیلن گلوکز) و دکسترین[4] است که به میزان ۲٪ وزنی از هرکدام به‌صورت جدا استفاده گردیده است. پودر و افزودنی‌ها در بال میل به مدت ۲ ساعت با سرعت ۴۰ دور در دقیقه مخلوط شدند و سپس در قالب ریخته شده و تحت فشار قرار گرفتند. قرص‌ها در سه فشار ۲۰۰،۲۵۰،۳۰۰ مگا پاسگال تولید شدند. قطر قرص‌ها ۱۳ میلی‌متر و ارتفاع بر اساس مقدار پودر از ۳/۷ تا ۵/۶ میلی‌متر متغیر بودند. پس از تولید قرص‌های خام آن‌ها را برای پیش سینترینگ در کوره احیایی به مدت یک ساعت در دمای $^{\circ}C$ ۱۱۰۰ قرار دادیم. اگر پیش سینترینگ بروی قرص انجام نشود، در هنگام اشباع سازی قرص در داخل محلول اسیدی حل شده و از بین می‌رود. شرایط کوره در این مرحله مشابه سینتر نهایی است اما در دما $^{\circ}C$ ۱۱۰۰ انجام می‌شود.

جدول ۱ مشخصات پودر اکسید توریم

| نام پودر | چگالی $gr/cm^3$ | سطح ویژه $m^2/gr$ | حجم حفرات $cc/gr$ | سایز حفرات nm | اندازه ذرات nm |
|---|---|---|---|---|---|
| اکسید توریم | ۱/۱ | ۲۴ | ۰/۰۷۸ | ۳/۶۳ | ۰/۷ |

جدول ۲ ناخالصی های پودر اکسید

| عنصر | ppm |
|---|---|
| Mg | ۵۰۰ |
| Si | ۱۰۰۰ |

قرص‌ها پس از سینتر اولیه وارد مرحله اشباع سازی شدند. قرص‌ها در محلول ۱.۵ مولار اورانیل نیترات به مدت یک ساعت قرار داده شدند. قرص‌ها در دمای $^{\circ}C$ ۵۰۰ و به مدت یک ساعت در داخل کوره خشک شده و پس از سرد شدن خارج گردیدند. قرص‌ها تغییر چگالی نداده و قرص‌های شامل $PEG$ و قرص‌های بدون افزودنی نیز به‌طور کامل سالم باقی ماندند. اما قرص‌هایی که در آن‌ها از دکسترین استفاده شده بود پس از قرار گرفتن در داخل محلول اورانیل نیترات تخریب شدند. این مسئله به دلیل عدم کلوخه سازی درست در حین پیش سینترینگ به علت وجود دکسترین در داخل پودر است. قرص‌های اشباع‌شده برای سینتر نهایی در داخل کوره احیایی با دمای $^{\circ}C$ ۱۷۰۰ به مدت ۱ ساعت باقی ماندند. نرخ دمایی کوره $^{\circ}C/h$ ۳۰۰ است و افزایش این نرخ سبب تخریب

[4] Dextrin

قرص و ایجاد شکستگی و شکاف عمیق در آن می‌گردد. فضای داخل کوره نیز شرایط احیایی دارد و از گاز آرگون به همراه ۱۰٪ گاز هیدروژن برای ایجاد این شرایط استفاده می‌کند.

## ۳- نتایج

آزمون گرماوزنی (TG) برای ترکیب پودر اکسید توریم و پلی‌اتیلن گلوکز، گرفته شد. این پودر در دمای $^{\circ}C$ ۱۶۰ تغییر وزن می‌دهد. این تغییر وزن به دلیل تبخیر پلیمر به‌کاررفته در پودر است. باید توجه کرد که این آزمون قبل از قرص سازی صورت می‌گیرد. در هنگام سینتر کردن قرص خام باید در دمای ثابت $^{\circ}C$ ۱۶۰ به مدت ۳۰ دقیقه قرص را نگه داشت تا بخارهای پلیمر به‌آرامی از داخل قرص خارج شوند و قرص در دمای بالا تخریب نشود. چگالی قرص‌های سینتر شده نهایی در جدول ۳ مشاهده می‌شود. نمونه‌های پیش سینتر شده در دمای $^{\circ}C$ ۱۱۰۰، چگالی ۶۰/۷۵٪ تئوری را دارند و قرص‌های سینتر شده نهایی در دمای $^{\circ}C$ ۱۷۰۰ دارای چگالی ۹۳/۷٪ تئوری هستند. این نتایج برای قرص های سوخت توریمی و برای قرار گرفتن در داخل رآکتورهای هسته ای مناسب هستند.

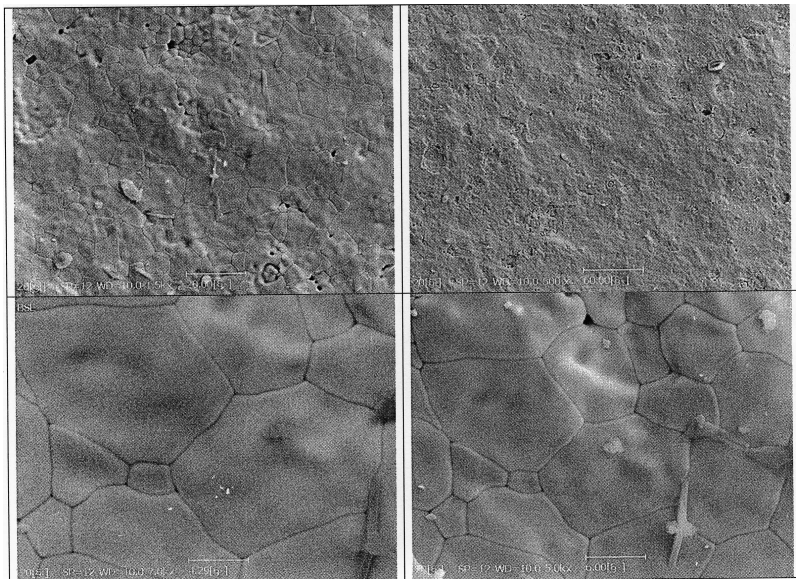
جدول ۳ چگالی قرص نهایی

| نمونه | وزن gr | ارتفاع اولیه(mm) | قطر اولیه(mm) | چگالی اولیه | %TD اولیه | چگالی ثانویه | %TD ثانویه | درصد تغییر |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| ۱ | ٤/۰۸۷ | ٥/۲ | ۱۳ | ٥/۹۲ | ٥۹/۲ | ۹/۳۹ | ۹۳/۹ | ٥۹ |
| ۲ | ٤/۰٥ | ٥/۲ | ۱۳ | ٥/۸۷ | ٥۸/۷ | ۹/٥۸ | ۹٥/۸ | ٦٥ |
| ۳ | ۳/۹۸۹ | ٥/٦ | ۱۳ | ٥/۳ | ٥۳ | ۸/۹٦ | ۸۹/٦ | ٦۸ |
| ٤ | ٤/۰٤۱ | ٥/۳ | ۱۳ | ٥/۷٤ | ٥۷/٤ | ۹/٤٥ | ۹٤/٥ | ٦٥ |
| ٥ | ۳/۹۲ | ۳/۷ | ۱۳ | ٥/۹٤ | ٥۹/٤ | ۹/۷۳ | ۹۷/۳ | ٦٥ |
| ٦ | ۳/۹۳ | ٥/۲ | ۱۳ | ٥/۷ | ٥۷ | ۹/٦۷ | ۹٦/۷ | ٦۸ |
| ۷ | ۳/٦۳ | ٤/۷ | ۱۳ | ٥/۸۲ | ٥۸/۲ | ۹/٥٥ | ۹٥/٥ | ٦٤ |
| ۸ | ٤ | ٥/۳ | ۱۳ | ٥/٦۸ | ٥٦/۸ | ۹/۳٥ | ۹۳/٥ | ٦٦ |

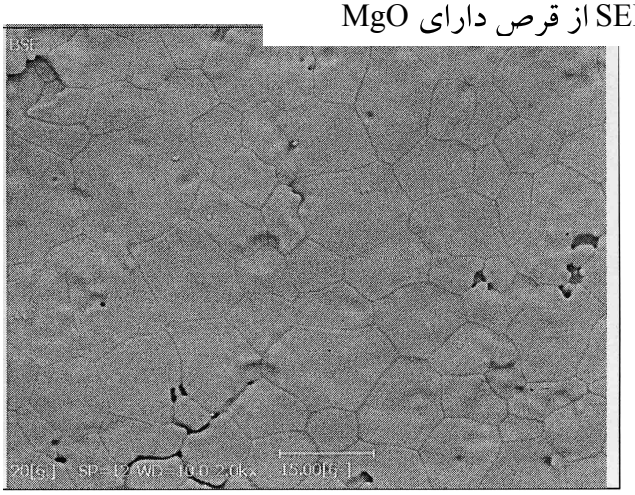
میزان تخلخل برای قرص های توریم-اورانیوم ۱٦/۳۱۱٪ بدست آمد. آزمون پلاسمای القایی برای اندازه‌گیری میزان درصد وزنی هر عنصر به کار گرفته شد. نتایج این آزمون نشان می دهد که مقدار پودر حل‌شده در اسید $112/98 mg/l$ بوده و مقدار اورانیوم نیز $0/98 mg/l$ است درنتیجه مقدار نهایی۷/٥٪ جرمی اورانیوم در

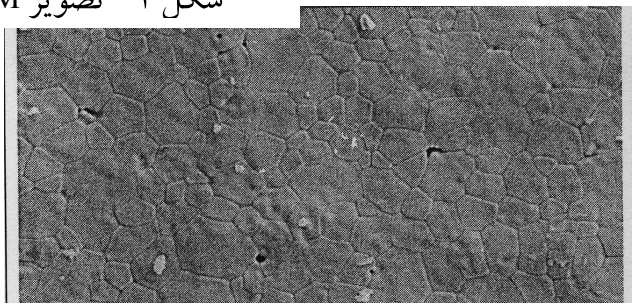
قرص بدست آمد. آزمون تیتراسیون اورانیوم نیز به روی قرص های اشباع شده صورت گرفت. درصد اورانیوم در نمونه اشباع‌شده ۸/۶٪ به دست آمد که به نتیجه آزمون پلاسمای جفت شده القایی بسیار نزدیک است.

نتایج آزمون *SEM* برای نمونه‌های دارای پلی‌اتیلن گلوکز، اکسید منیزیم و نمونه بدون افزودنی در شکل ۱ ۲ و ۳ آورده شده است. تصویر شکل ۱ تأثیر اکسید منیزیم را در قرص نشان می‌دهد. کلوخه‌هایی یکدست و چندضلعی، حفرات گرد و بسته و همچنین سطحی همگن و بدون ترک نشان از بهبود فرآیند با اضافه نمودن این افزودنی به پودر است. در شکل ۲ نیز تصویر نمونه بدون افزودنی آورده شده که دارای سطحی یکدست با حفرات بزرگ است. شکل ۳ ساختار قرص دارای افزودنی *PEG* را نشان می دهد. در بعضی از نواحی دانه‌ها به‌درستی کلوخه نشده و ترک‌های میکروسکپی دارد. این ترک‌ها برای قرص سوخت هسته‌ای نامناسب است و سبب تخریب در داخل رآکتور می‌شود. دلیل وجود این ترک‌های میکروسکپی پلیمر اضافه‌شده به پودر است. همچنین نتایج آزمون *EDS* در شکل ٤ آورده شده است. پراکندگی عنصر توریم در سمت چپ و پراکندگی عنصر اورانیوم در سمت راست قابل مشاهده است. نتایج حاکی از پراکندگی مناسب هر دو عنصر است که به معنی انجام شدن فرآیند اشباع سازی به‌صورت کاملاً یکدست و صحیح است.

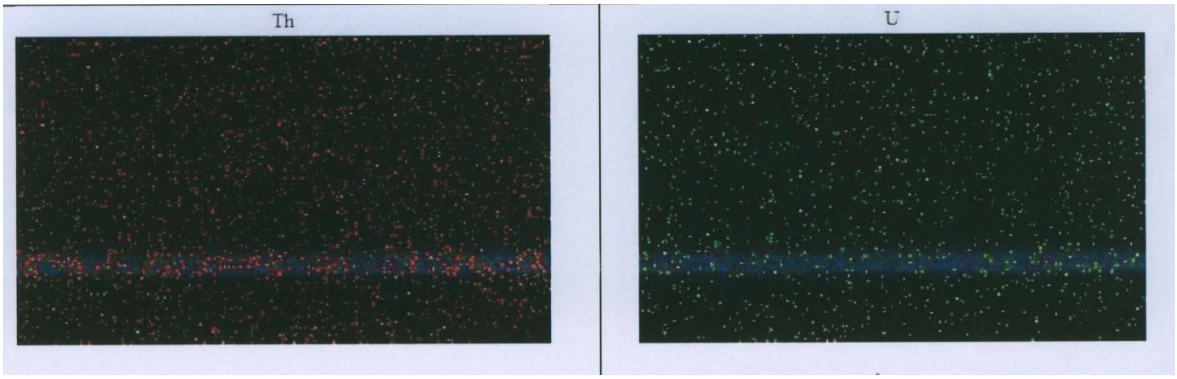


شکل ۱ تصویر SEM از قرص دارای MgO





شکل ۲ تصویر SEM از قرص بدون افزودنی




شکل ۴ تصویر پراکندگی اورانیوم و توریم

**٤- بحث و نتیجه گیری**

میزان چگالی قرص نهایی که با فرآیند اشباع سازی ساخته شده است، برای سوخت هسته‌ای مناسب است. این چگالی عدد ۹۵٪ تئوری را به‌صورت میانگین نشان می‌دهد، که برای سوخت عددی مناسب است. وجود سطحی مناسب و با تخلخل های گرد و یکدست در قرص های با افزودنی اکسید منیزیم، نشان تأثیر مثبت این ماده در فرآیند سینترینگ است. پراکندگی یکدست اورانیوم در داخل قرص نیز نشان می دهد که روش اشباع سازی برای تولید قرص های توریم اورانیوم بسیار مناسب است و سبب تجمع سوخت محرک نمی شود. نتایج حاصل نشان می‌دهد که روش اشباع سازی می‌تواند جایگزینی مناسب برای فرآیند سابق(فرآیند پودر) باشد.

## ۵- مراجع

[۱] گزارش نهایی فاز مطالعاتی پروژه"تولید دانش فنی ساخت قرص های توریومی "، سید جواد احمدی، نیلوفر محسنی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته ای، ۱۳۹۲.

[2]"Comparison of thorium and uranium fuel cycles", *natural nuclear laboratoty* ,uk,2012.

[3] H.S. Kamath, 14th Annual Conference of Indian Nuclear Society, IGCAR, Kalpakkam, Dec17-19, 2003.

[4]J. BELLE and R. M. BERMAN "Thorium dioxide: properties and nonnuclear application" Naval Reactors Mice United States Department of Energy,1984.

[5] R. E. Brooksbank, J. R. Parrott, E. L.Youngblood, W. T. McDuffee, "International Congres of the Societe Francaise de Radioprotection", Versailles, France, May 28-31, 1974.

[6]Kutty T.R.G. and Arun Kumar " Development and Microstructural Characterization of ThO2-UO2 Fuels" ,BARC newsletter, pp,7-9, 2010.

[7] R. Lee Harvey, "Method of Fabricating Nuclear Fuel", United States Patent No. 4110159, 1978.

[8] A. Feraday Melville, "Preparation of Mixed Oxide Nuclear Fue" United States Patent 40201311975, 1975.

[9] Hirata. K., Moriya, K.. and Waseda, Y. "High Temperature Thermal Expansion of ThO2-MgO and Y,O, by X-ray Diffraction", J. Mat. S i ,1977.