

سوخت دی اکسید اورانیوم با ساختار میکروسکوپی بهینه

سید پینام اخوان طباطبائی^{۱*}، منوچهر روشن ضمیر^۲، حسن صبوچی^۲، نوید کدخدایی^۲

۱- دانشگاه شهید بهشتی- دانشکده مهندسی هسته‌ای

۲- شرکت سوخت اتمی راکتورهای ایران (FMP)

چکیده

قرص‌های سینتر شده دی اکسید اورانیوم مهمترین نوع سوخت هسته‌ای هستند که در راکتورهای آب سبک و سنگین مورد استفاده قرار می‌گیرند. از جمله مواردی که موثر بر بازده این قرصها در راکتورهای هسته‌ای است، ساختار میکروسکوپی آنها مشتمل بر توزیع و اندازه تخلخلها و دانه‌ها است که باید در حین فرایند ساخت کنترل و بهینه شوند. در بهینه سازی ساختار میکروسکوپی قرصها سعی بر این است که میزان تراکم و تورم سوخت در راکتور، آهنگ خروج گازهای حاصل از شکافت، مقدار رطوبت باقی مانده در قرص و برهمکنش سوخت و غلاف (PCI) به حداقل برسد. برای کنترل ساختار میکروسکوپی می‌توان از روشهایی مانند تغییر دما و زمان سینترینگ، استفاده از اتمسفر کنترل شده در حین سینترینگ و اضافه کردن مواد افزودنی به پودر دی اکسید اورانیوم کمک گرفت.

واژه‌های کلیدی: سوخت هسته‌ای، دی اکسید اورانیوم، ساختار میکروسکوپی، توزیع تخلخل، اندازه دانه

۱- مقدمه

گسترش بهره‌برداری از انرژی هسته‌ای به عنوان یکی از منابع تولید انرژی پاک در عصر کنونی اهمیت فراوان یافته است به طوری که تولید برق با این روش که در سال ۱۹۶۰ میلادی حدود ۱ درصد کل جهانی بود، در سال ۲۰۰۶ میلادی به حدود ۱۵ درصد افزایش پیدا کرده است [۱]. با توجه به این رویکرد جهانی، یکی از موارد با اهمیت در صنعت هسته‌ای، تولید سوخت هسته‌ای است. در حال حاضر دی اکسید اورانیوم مهم‌ترین نوع سوخت است که در راکتورهای آبی (آب تحت فشار^۱ و آب جوشان^۲) از آن استفاده می‌شود [۲]. قابلیت نگهداری پاره‌های شکافت به علت وجود تخلخل در ساختار، عدم تغییر فاز تا نقطه ذوب بالا ($2880^{\circ}\text{C} - 2670^{\circ}\text{C}$)، پایین بودن سطح مقطع جذب نوترونهای حرارتی در اکسیژن و همسانگرد بودن ساختار قرص‌های سینتر شده دی اکسید اورانیوم از عمده دلایل استفاده از آن به عنوان سوخت راکتور است [۳ و ۴]. قرص‌های سینتر شده دی اکسید اورانیوم طی فرآیندی شامل خرد کردن پودر UO_2 ، گرانولاسیون، مخلوط کردن، پرس سرد و سینترینگ در اتمسفر H_2 و در دمای بالا (حدود 1700°C) تولید می‌شوند [۴ و ۵]. از جمله موارد موثر بر کارایی قرصهای سینتر شده UO_2 در راکتورهای هسته‌ای، ساختار میکروسکوپی آنها است که باید در حین فرایند ساخت کنترل و بهینه شود [۶]. ساختار میکروسکوپی قرص‌های دی اکسید اورانیوم مشتمل بر توزیع و اندازه تخلخلها و دانه‌ها بایستی به گونه‌ای باشد که باعث کاهش میزان

1- Pressurized Water Reactor (P^{WR})

2- Boiling Water Reactor (BWR)

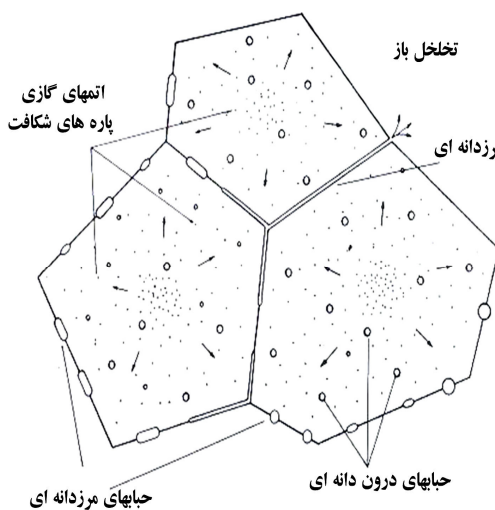
تراکم و تورم^{۱۷} سوخت [۷و۸]، آهنگ خروج گازهای حاصل از شکافت از قرص [۹]، مقدار رطوبت باقی مانده در قرص [۱۰ و ۱۱] و برهمکنش سوخت و غلاف^{۱۸} شود [۱۲].

۲- ساختار و توزیع اندازه تخلخلها

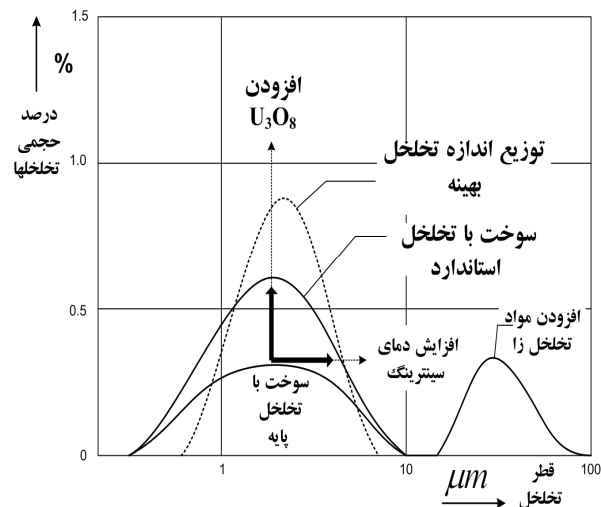
۱-۲- اهمیت بهینه سازی و ساختار بهینه

مقدار تراکم و تورم سوخت مورد مصرف در راکتورهای هسته‌ای به طور گسترده وابسته به دانسیته و مقدار تخلخلهای سوخت اکسیدی است [۷].

تحقیقات آسمن و همکاران در سال ۱۹۸۰ نشان می‌دهد که تخلخلهای ایده‌آل برای سوخت با حدود ۹۵٪ دانسیته تئوری، تخلخلهای تک مدی با اندازه متوسط بین ۲ تا $3 \mu m$ می‌باشد [۱۳]. در ادامه این تحقیقات رادفورد و پپ در سال ۱۹۸۳ نشان دادند که حفره‌های با اندازه تقریبی ریزتر از $2 \mu m$ که درون دانه‌های ریزتر از حدود $6 \mu m$ قرار دارند در حین تابش دهی سوخت از بین می‌روند و باعث تراکم سوخت می‌شوند ولی اگر این حفره‌ها در یک ساختار دانه‌ای درشت قرار داشته باشند تقریباً پایدار باقی می‌مانند [۱۴]. شکل (۱) توزیع اندازه تخلخلهای ایده‌آل برای سوخت دی اکسید اورانیوم را که تحت سوزشهای بالا قرار خواهد گرفت نشان می‌دهد.



شکل ۲- نحوه خروج گازها از قرص UO_2 [۱۵]



شکل ۱- توزیع اندازه تخلخلهای ایده‌آل برای سوخت UO_2

رسم مجدد [۷]

تخلخلهای باز موجود در قرصهای سینتر شده دی اکسید اورانیوم، علاوه بر تأثیری که روی تراکم و تورم سوخت می‌گذارند باعث جذب و باقی ماندن رطوبت در قرص می‌شوند [۱۰ و ۱۱]. این رطوبت باقی مانده باعث هیدرید شدن غلاف زیرکونیومی خواهد شد [۱۲]. اثر منفی دیگری که تخلخلهای باز دارند، این است

که سبب می‌شوند تا گازهای حاصل از شکافت به طور مداوم از سوخت خارج شوند [۷]. شکل (۲) چگونگی خروج گازهای حاصل از شکافت را از قرص UO_2 به طور شماتیک نشان می‌دهد. طبق مدل معرفی شده توسط هرینگ و همکاران در سال ۱۹۸۳ اتمهای گازی پاره‌های شکافت موجود در دانه‌های دی اکسید اورانیوم با نفوذ به سمت یکدیگر تشکیل حبابهای ریز درون دانه‌ای را می‌دهند؛ این حبابها با نفوذ به طرف مرزدانه‌ها در امتداد آنها تشکیل حبابهای بزرگتری را داده که از بهم پیوسته شدن این حبابها، تونلهایی به طرف تخلخلهای باز بوجود آمده و از این طریق گازهای حاصل از شکافت می‌توانند از قرص خارج شوند [۱۵]. از این رو بایستی مقدار تخلخلهای باز قرص تا حد امکان کاهش یابد.

۲-۲- روشهای بهینه سازی ساختار و توزیع اندازه تخلخلها

خواص فیزیکی پودر به دست آمده از روش AUC به گونه‌ای است که بدون هیچ گونه ماده افزودنی، قرص سینتر شده دارای تخلخلهای پایه نزدیک به اندازه بهینه ۲ تا $3 \mu m$ می‌باشد [۱۶]. اضافه کردن U_3O_8 به عنوان تخلخل‌ساز به پودر باعث افزایش مقدار تخلخل‌های با اندازه مطلوب می‌شود و به این ترتیب می‌توان بدون تغییر توزیع اندازه تخلخلها، مقدار دانسیته قرص را کنترل کرد [۷ و ۱۷]. با افزایش دما و زمان سینترینگ می‌توان اندازه تخلخل‌ها را افزایش داد ولی این روش کنترل از نظر اقتصادی مقرون به صرفه نیست [۱۸].

از دیگر روشهای کنترل اندازه و توزیع تخلخل‌ها، اضافه کردن مواد تجزیه پذیر نظیر کربنات آمونیوم، استات آمونیوم [۱۹] و ذرات اپوکسی [۲۰] است. این مواد معمولاً باعث تشکیل گروه دومی از تخلخلها می‌شوند که دارای اندازه‌هایی به مراتب بزرگتر از تخلخل‌های پایه هستند [۷ و ۱۳]. شکل ۲ نمایی از چگونگی تأثیر روشهای ذکر شده را روی توزیع اندازه تخلخل‌ها نشان می‌دهد. ملاحظه می‌شود که با ترکیب مناسبی از این روشها می‌توان به تخلخل‌های با اندازه و توزیع مناسب در قرص سینتر شده UO_2 دست یافت.

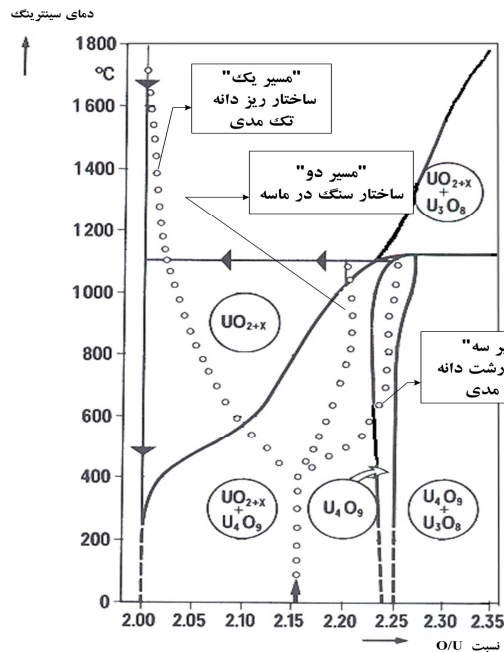
با افزایش درصد دانسیته تئوری، مقدار تخلخل‌های باز کاهش پیدا می‌کند. برای کاهش دادن درصد تخلخلهای باز به یک مقدار قابل قبول باید به درصد دانسیته تئوری بالای ۹۵ رسید [۱۸]. تحقیقات سونگ و همکاران در سال ۲۰۰۰ م. نشان می‌دهد که با افزودن ۵ تا ۱۰ درصد وزنی از پودر دی اکسید اورانیوم آسیاب شده در آسیابهای گلوله‌ای به پودر UO_2 حاصل از فرآیند AUC ، می‌توان باعث کاهش درصد تخلخل‌های باز در یک درصد دانسیته تئوری معین شد [۲۱].

۳- ساختار و توزیع اندازه دانه‌ها

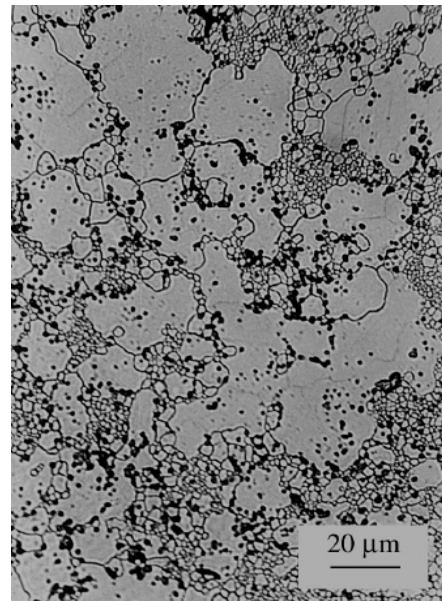
۳-۱- اهمیت بهینه سازی و ساختار بهینه

ساختار دانه‌ای قرص تأثیر کمی بر تراکم و تورم سوخت دارد ولی تأثیر آن بخصوص روی خروج گازهای حاصل از شکافت و خواص مکانیکی سوخت چشمگیر است [۶]. با افزایش اندازه دانه‌ها، خروج گازهای حاصل از شکافت کاهش پیدا می‌کند [۱۵]، همچنین مقاومت به خزش قرص در دماهای بالا زیاد

می‌شود [۱۲] ولی اثر منفی افزایش اندازه دانه‌ها کم شدن مقدار پلاستیسیته قرص است [۱۳ و ۴]. بنابراین ساختار بهینه‌ای که برای دانه‌ها پیشنهاد شده است مخلوطی از دانه‌های ریز و درشت معروف به ساختار سنگ در ماسه^{۱۹} است [۷]. شکل ۳ یک نمونه از این ساختار را برای قرص سینتر شده UO_2 نشان می‌دهد.



شکل ۴- نمودار فازی اورانیوم-اکسیژن
رسم مجدد [۷]



شکل ۳- نمونه از ساختار سنگ در ماسه برای قرص UO_2 [۲۲]

۳-۲- روشهای بهینه سازی ساختار و توزیع اندازه دانه‌ها

به طور معمول افزایش دما و زمان سینترینگ باعث افزایش اندازه دانه‌های قرص سینتر شده می‌شود [۲۳] ولی همانطور که گفته شد این روش سینترینگ از نظر اقتصادی مقرون به صرفه نیست. تحقیقات زیادی در مورد تأثیر مواد افزودنی از قبیل U_3O_8 [۲۴]، TiO_2 [۲۵]، $AlOOH$ [۲۶] و ... روی اندازه دانه‌ها صورت گرفته که هر کدام از این مواد طی مکانیزم تقریباً ثابتی [۲۴] باعث افزایش اندازه دانه می‌شوند. از بین این مواد افزودنی، U_3O_8 دارای این مزیت است که می‌توان برای تهیه آن از قرص‌های UO_2 معیوب در فرآیند تولید استفاده کرد [۲۷].

مهمترین روشی که با استفاده از آن می‌توان ساختار دانه‌ای قرص را تغییر داد، سینتر کردن قرص در اتمسفر کنترل شده است. در این روش با کنترل فشار جزئی اکسیژن در اتمسفر کوره و در نتیجه کنترل شدن سرعت نفوذ اتمها، طبق نمودار فازی اورانیوم - اکسیژن (شکل ۵) می‌توان به ساختار دانه‌ای مناسب دست یافت [۵ و ۷].

۴- نتیجه‌گیری

- ۱- جدول (۱) خلاصه تأثیرات ساختار میکروسکوپی قرص‌های سیتر شده UO_2 را روی کارایی آنها در راکتور نشان می‌دهد. با توجه به این تأثیرات، بهینه‌سازی ساختار میکروسکوپی ضروری است.
- ۲- بهینه ساختار تخلخلها برای قرص‌های سیتر شده دی اکسید اورانیوم عبارت است از تخلخلهای تک مدی با اندازه متوسط بین ۲ تا $3\ \mu m$ و حداقل مقدار تخلخل باز.
- ۳- بهترین روش بهینه‌سازی ساختار تخلخلها اضافه کردن مواد افزودنی به خصوص U_3O_8 به پودر UO_2 است.
- ۴- بهینه ساختار دانه‌ای برای قرص‌های سیتر شده دی اکسید اورانیوم عبارت است از مخلوطی از دانه‌های ریز و درشت که به ساختار سنگ در ماسه معروف است.
- ۵- بهترین روش بهینه‌سازی ساختار دانه‌ای، سیتر کردن قرص در اتمسفر کنترل شده است.

جدول ۱- تأثیرات ساختار میکروسکوپی قرص‌های سیتر شده UO_2 روی کارایی آنها در راکتور

مؤثر روی			
پارامتر قابل کنترل	تراکم و تورم سوخت	خروج گازهای حاصل از شکافت	اندرکنش سوخت و غلاف
مقدار تخلخل	✓		✓
نوع تخلخل باز / بسته		✓	✓
توزیع اندازه تخلخلها	✓		✓
اندازه متوسط دانه ها		✓	✓
توزیع اندازه دانه ها		✓	✓

منابع و مراجع

[1] "Nuclear Power Worldwide: Status and Outlook", A Report from the IAEA, Vienna, 2007

[2] P. D. Wilson, "The Nuclear Fuel Cycle: From Ore to Wastes", Oxford University Press, 1996

[3] J. Bell, "Uranium dioxide: properties and nuclear applications", USDOE, Washington, DC, 1984

[۴] رضا خزانه، منوچهر روشن‌ضمیر، "سوخت هسته‌ای با تکیه بر استفاده از آن در راکتورهای آب تحت فشار"، سازمان انرژی اتمی ایران، تهران، ۱۳۷۶

[۵] منوچهر روشن‌ضمیر، "سیترینگ قرص‌های دی اکسید اورانیوم در درجه حرارت پایین و زمان کوتاه یا فرایند NIKUSI"، انرژی هسته‌ای، شماره ۱۹، صفحات ۴۲-۳۴، ۱۳۷۶

- [6] "Quality assurance and control in the manufacture of metal-clad UO_2 reactor fuels" IAEA technical report, Vienna, 1976
- [7] H. Assman, W. Doerr, M. Peehs, "Oxide fuels with controlled microstructure", J. American ceramic society, Vol.67, No.9, P. 631-636, 1984
- [8] M. C. Paraschiv, A. Paraschiv and V. V. Grecu, "On the nuclear oxide fuel densification, swelling and thermal re-sintering", J. Nuc. Mat. 302, P. 109-124, 2002
- [9] D. R. Olander and P. Van Uffelen, "On the role of grain boundary diffusion in fission gas release", J. Nuc. Mat. 288, P. 137-147, 2001
- [10] Salwick, Preston, "The specification and quality control of UO_2 fuel pellet microstructure to ensure density stability and low moisture content", IAEA proceeding on Nuclear fuel quality assurance, P. 207-221, 1976
- [11] D. R. Olander, D. Sherman and M. Balooch, "Retention and release of water by sintered uranium dioxide", J. Nuc. Mat. 107, P. 31-45, 1982
- [12] F. Garzorolli, R. Van Jan and H. Stehle, "The main causes of fuel element failure in water cooled power reactors", IAEA atomic energy review, Vol. 17, P.1-128, 1979
- [13] H. Assman and Stehle, "Oxide fuels for light water reactors – a standardized industrial product", Energy and ceramics, Oxford, P. 893-912, 1980
- [14] K. C. Radeord and J. M. Pope, " UO_2 fuel pellet microstructure modification through impurity additions", J. Nuc. Mat. 116, P. 305-313, 1983
- [15] W. Hering, "The KWU fission gas release model for LWR fuel rods", J. Nuc. Mat. 114, P. 41-49, 1983
- [16] C. S. Choi, J. H. Park, E. H. Kim, H. S. Shin and I. S. Chang, "The influence of AUC powder characteristics on UO_2 pellets", J. Nuc. Mat. 153, P. 148-155, 1988
- [17] Kun Woo Song, Keon Sik Kim, Young Min Kim and Youn Ho Jung, "Sintering of mixed UO_2 and U_3O_8 powder compacts", J. Nuc. Mat. 277, P. 123-129, 2000
- [18] N.G. Miller, "Pore structure and sintering of UO_2 ", Meeting on characterization of uranium dioxide, Oake Ridge. Tennessee, P. 139-145, 1961
- [19] Tadao Yato, Hiroshi Nakata, " UO_2 pellet fabrication process", United States patent No. 4.985.183, 1991
- [20] Eugene Joseph kosiancic, "Method of making porous nuclear fuel", United states patent No. 4.016.226, 1977
- [21] Kun Woo Song, Keon Sik Kim, Young Min Kim, Ki Won Kang and Youn Ho Jung, "Reduction of the open porosity of UO_2 pellets through pore structure control", J. Nuc. Mat. 279, P. 253-258, 2000
- [22] B. Ayaz, A. Bilge, "The possible usage of ex-ADU uranium dioxide fuel pellets with low-temperature sintering", J. Nuc. Mat. 280, P. 45-50, 2000
- [23] Y. Tadao, H. Sadaaki, T. Hiroshi, "Method of controlling the crystal grain size of uranium dioxide pellet", United states patent No. 4.873.031, 1989
- [24] Kun Woo Song, Keon Sik Kim, Ki Won Kang and Youn Ho Jung, "Grain size control of UO_2 pellets by adding heat-treated U_3O_8 particles to UO_2 powder", J. Nuc. Mat. 317, P. 204-211, 2003
- [25] J. B. Ainscough, F. Rigby and S. C. Osborn, "The effect of titania on grain growth and densification of sintered UO_2 ", J. Nuc. Mat 52, P. 191-203, 1974
- [26] Ho-sik Yoo, Shin-young Lee, Seung-jae Lee and Kun-woo Song, "Effect of $AlOOH$ on the microstructure of UO_2 pellets", J. Nuc. Mat 281, P. 191-194, 2000
- [27] K.W. Song, K.S. Kim and K.W. Kang, "Method of manufacturing large grained uranium dioxide fuel pellets containing U_3O_8 ", United states patent No. 6.251.309 B1, 2001