บทที่ 3

กระบวนการผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์

3.1 การผลิตเชื้อเพลิงนิวเคลียร์

การผลิตเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ ได้เริ่มต้นมาตั้งแต่ก่อนสมัยสงครามโลกครั้งที่ 2 และได้พัฒนาติดต่อกันมาเป็นลำดับ เชื้อเพลิงยูเรเนียมที่ใช้ในเครื่องปฏิกรณ์นิวเคลียร์ ได้มีการพัฒนาการผลิตในรูปต่าง ๆ ดังนี้ (16)

3.1.1 โลหะยูเรเนียม คือ ยูเรเนียม (U)

3.1.2 ยูเรเนียมเซรามิค ได้แก่ ยูเรเนียม ไดออกไซด์ (UO_2) , ยูเรเนียมคาร์ไบด์ (UC) , ยูเรเนียมไนไตรด์ (UN) , ยูเรเนียม ซิลิไซด์ (USi)

3.1.3 โลหะผสม คือ ยูเรเนียม-อะลูมิเนียมอัลลอยด์ (UAl) , ยูเรเนียม-แมกนีเซียมอัลลอยด์ (UMg) และยูเรเนียม-เซอร์โคเนียม-ไฮโดรเจนอัลลอยด์ (UZrH)

คุณสมบัติของวัสดุที่ใช้ทำเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ คือ ทนต่อความร้อนสูง ทนต่อการสึกกร่อน และมีความแข็งแรงพอสำหรับอุณหภูมิสูง ๆ ประสิทธิภาพการขยายตัวต่ำ ตาราง 3.1 แสดงคุณสมบัติของสารประกอบยูเรเนียม

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ตาราง 3.1 แสดงคุณสมบัติของสารประกอบยูเรเนียม ที่สามารถใช้ทำเป็นเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ได้ [5]

Compound	Structure: Type	Structure: Dimensions, A	Structure: Molecules per struc. cell	Melting point, °C	X-ray density, g/cm³	Uranium content: a/o	Uranium content: w/o	Nuclear properties, 100% density (natural uranium): Macroscopic cross section (2200 m/s neuts), cm²/cm³: Fission	Macroscopic cross section (2200 m/s neuts), cm²/cm³: Absorption	ν fast fission neuts. per thermal neut. absorbed
UO_2	FCC (CaF_2 type)	a = 5.469	4	2880	10.95	33.3	88.15	0.102	0.187	1.34
U_3O_8	Orthorhombic	a = 6.70 b = 11.94 c = 4.14	2	~2000	8.39	27.2	73.61	0.065	0.120	1.34
UC	FCC (NaCl type)	a = 4.961	4	~2300	13.63	50	95.19	0.137	0.252	1.34
U_2C_3	BCC	a = 8.088	8	1775[d]	12.88	40	92.97	0.127	0.233	1.34
UC_2	BC Tet. (CaC_2 type)	a = 3.524 c = 5.999	2	~2400	11.68	33.3	90.83	0.112	0.207	1.34
UN	FCC (NaCl type)	a = 4.880	4	2650	14.32	50	94.44	0.143	0.327	1.08
U_3Si	BC Tet.	a = 6.029 c = 8.697	4	930[e]	15.58	75	96.21	0.159	0.293	1.34-
USi	Orthorhombic	a = 5.66 b = 7.66 c = 3.92	4	~1600	10.40	50	89.44	0.098	0.184	1.32
$aUSi_2$	BC Tet.	a = 3.98 c = 13.74	4	~1600	8.98	33.3	80.91	0.077	0.146	1.30

d - decomposes
e - peritectoid temperature

3.2 กระบวนการผลิตผงยูเรเนียม ไดออกไซด์

กระบวนการผลิตยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ใช้กันในโรงงานอุตสาหกรรม มี 2 กระบวนการ [17] คือ

3.2.1 กระบวนการเคมีแบบแห้ง (Dry chemical process = DC) [17,18]

สารเริ่มต้นที่ใช้ในกระบวนการนี้ คือ ก๊าซยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ (UF_6) ทำปฏิกิริยากับไอน้ำที่อุณหภูมิประมาณ 475° ถึง 600° C [19] ได้ตะกอนยูเรนิล ฟลูออไรด์ (UO_2F_2) ดังสมการ [4] คือ

$$UF_6 + 2H_2O \xrightarrow{475^\circ \text{ ถึง } 600^\circ C} UO_2F_2 + 4\,HF$$

ยูเรนิล ฟลูออไรด์ ที่ได้นำไปรีดิวซ์ด้วยไฮโดรเจน หรือ แครกแอมโมเนีย (cracked ammonia) ที่อุณหภูมิประมาณ 575° ถึง 675° C[19] ได้เป็นผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ดังสมการซึ่งมีอัตราส่วนของออกซิเจนต่อยูเรเนียม (O/U ratio) ประมาณ 2.25

$$UO_2F_2 \xrightarrow[\text{อุณหภูมิ } 575^\circ - 675^\circ C]{H_2 \text{ or cracked } NH_3} UO_2 + 2\,HF$$

3.2.2 กระบวนการเคมีแบบเปียก (Wet chemical process)

วิธีการคือ ตกตะกอนของสารละลายของยูเรเนียมได้เค้กเหลือง (Yellow cake) แล้วเผา และรีดิวซ์เพื่อให้ได้ผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ กระบวนการเคมีแบบเปียก ที่นิยมใช้ผลิตกันมากมี 2 แบบ ซึ่งแบ่งตามชนิดของเค้กเหลือง คือ

3.2.2.1 กระบวนการเอดียู (ADU process , ADU=Ammonium Diuranate , $(NH_4)_2 U_2O_7$)[20] ใช้สารละลายของยูเรเนียมทำปฏิกิริยากับแอมโมเนียมไฮดรอกไซด์ เกิดเป็นตะกอนแอมโมเนียม ไดยูเรเนต การใช้สารละลายยูเรนิล ไนเตรต ($UO_2 (NO_3)_2$) เป็นสารเริ่มต้นจะใช้ความเข้มข้นอยู่ในช่วง 80 ถึง 120 กรัมต่อลิตร ทำปฏิกิริยากับแอมโมเนียมไฮดรอกไซด์เข้มข้น 25 ถึง 28 เปอร์เซ็นต์ที่อุณหภูมิ 50° C ควบคุม pH อยู่ระหว่าง 7.2 ถึง 8.0 ปฏิกิริยาเคมีที่เกิดขึ้น คือ[21]

$$2UO_2(NO_3)_2 + 6\,NH_4OH \longrightarrow (NH_4)_2\,U_2O_7 + 4\,NH_4NO_3 + 3\,H_2O$$

สำหรับกรณีที่ใช้ก๊าซยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ (UF_6) เป็นสารเริ่มต้น[22,23] ขั้นแรกจะต้องทำปฏิกิริยากับน้ำได้สารละลายของยูเรนิล ฟลูออไรด์ก่อน แล้วสารละลายยูเรนิล ฟลูออไรด์ ที่ได้ทำ ปฏิกิริยากับสารละลายแอมโมเนียได้ตะกอนแอมโมเนียม ไดยูเรเนต ดังสมการ[4]

$$UF_6 + 2\,H_2O \longrightarrow UO_2F_2 + 4HF$$

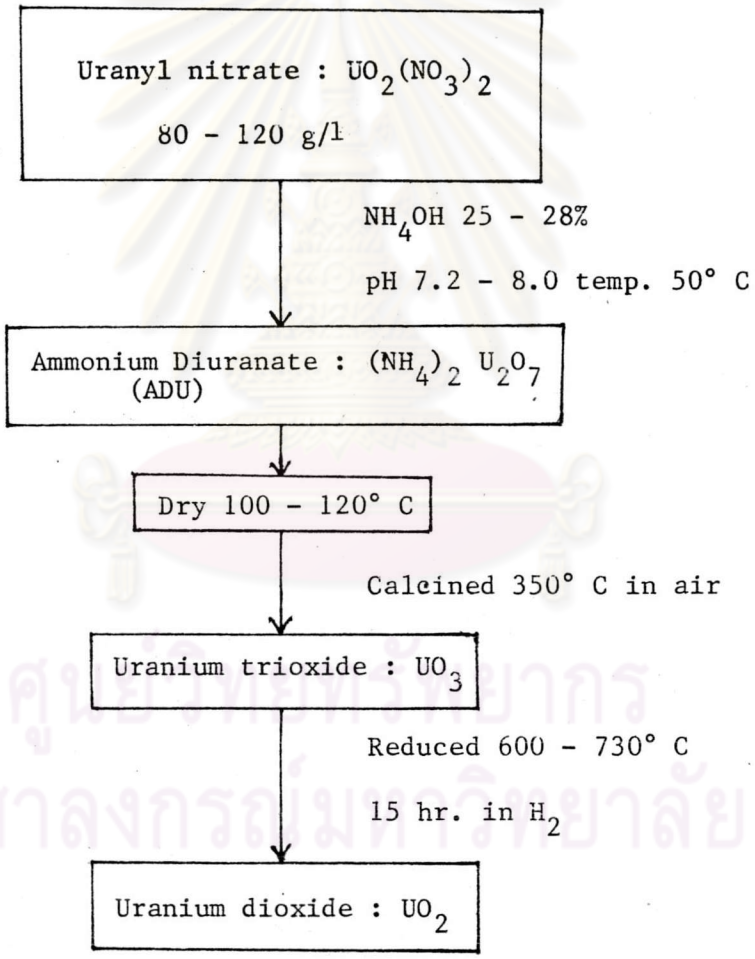
$$2\,UO_2F_2 + 6\,NH_4OH \longrightarrow 4\,NH_4F + (NH_4)_2\,U_2O_7 + 3\,H_2O$$

แอมโมเนียม ไดยูเรเนต ที่ได้นำไปอบที่อุณหภูมิประมาณ 100 ถึง 120° C เผาที่อุณหภูมิ 350° C ได้ยูเรเนียม ไตรออกไซด์ ดังสมการ[21]

$$(NH_4)_2\,U_2O_7 \xrightarrow[\Delta]{350^\circ\,C} 2\,UO_3 + 2\,NH_3 + H_2O$$

จากนั้นรีดิวซ์ด้วยก๊าซไฮโดรเจน ที่อุณหภูมิ 600 ถึง 730° C[20] ได้ยูเรเนียม ไดออกไซด์ ดังสมการ [20] คือ

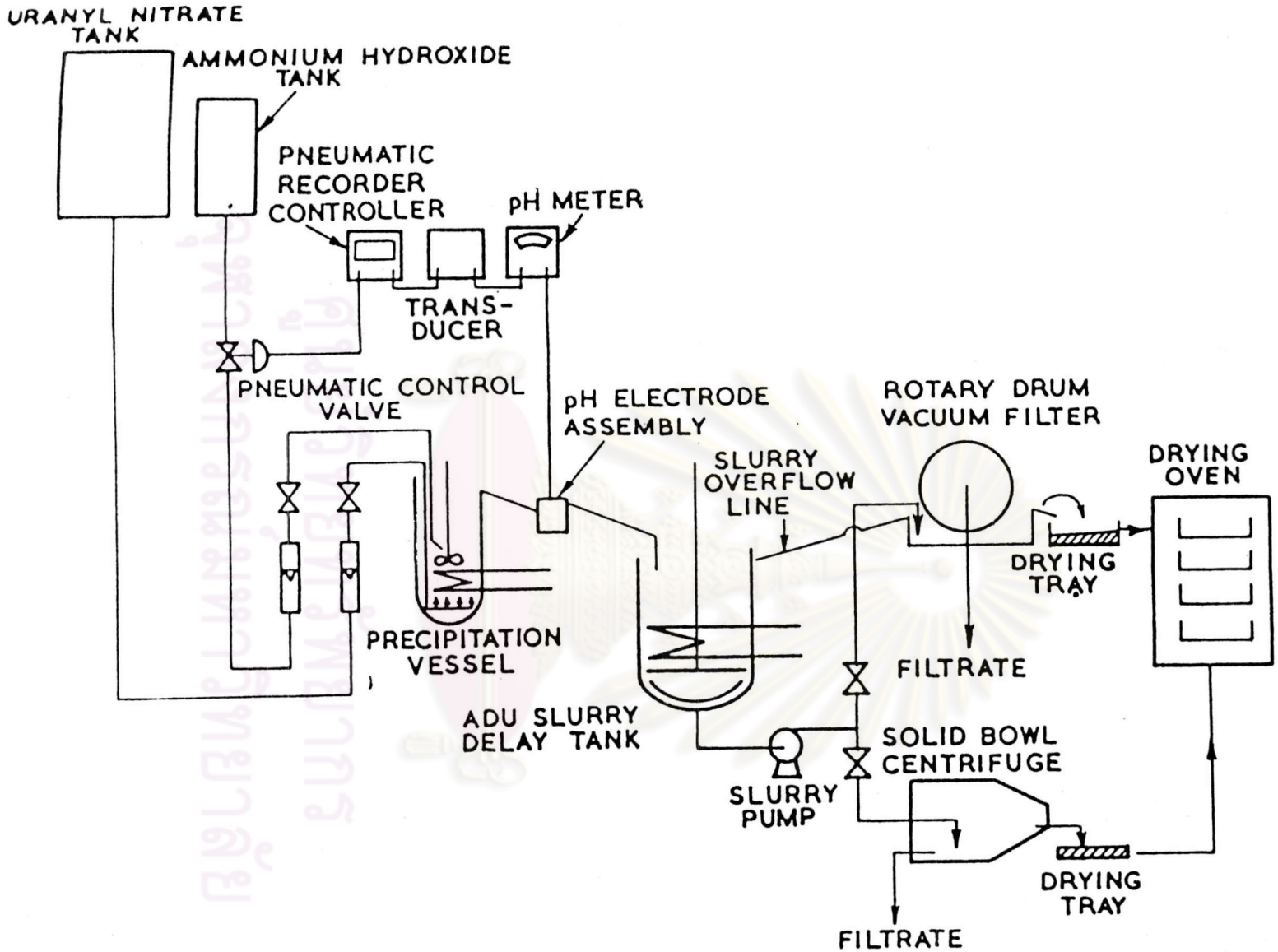
$$UO_3 + H_2 \xrightarrow[\Delta]{600 - 730^\circ\,C} UO_2 + H_2O$$



รูป 3.1 ขั้นตอนการผลิตยูเรเนียม ไดออกไซด์ โดยกระบวนการเอดียู

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

I 17203320



รูป 3.2 แสดงแผนผังเครื่องมือที่ใช้ผลิต โดยกระบวนการเอดียู [20]

3.2.2.2 กระบวนการเอยูซี (AUC process , AUC = Ammonium Uranyl Carbonate , $(NH_4)_4$ [UO_2 $(CO_3)_3$]) กระบวนการเอยูซีได้เริ่มพัฒนาครั้งแรกโดย NUKEM [17,24] (Nuklear - Chemie und - Metellurgie GmbH) ประเทศสหพันธ์สาธารณรัฐเยอรมันนี เมื่อ ค.ศ. 1962 และได้มีการทดลองเพิ่มเติมที่ RBU (Reaktor - Brennellement Union)และที่ KWU (Kraftwerk Union) ปัจจุบันยังทำที่ประเทศสวีเดน แคนาดา และบราซิล กระบวนการเอยูซี สามารถใช้สารเริ่มต้นเป็นได้ทั้งผลึกของยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ และสารละลายของยูเรนิล ไนเตรต (UNH) [24,25] โดยมีขั้นตอนการผลิตดังแสดงในรูป 3.3 และรูป 3.4 สำหรับการใช้ยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์เป็นสารเริ่มต้น สามารถแบ่งขั้นตอนการผลิตได้เป็น 5 ขั้นใหญ่ ๆ คือ [25,26]

ขั้นที่ 1. การระเหย (Evaporation) ยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ โดยใช้ไอน้ำในการต้มระเหยที่ 100° C [14]

ขั้นที่ 2. การตกตะกอน (precipitation) ยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ จะทำปฏิกิริยากับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ และก๊าซแอมโมเนีย โดยมีการเติมน้ำลงไปด้วย ปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นคือ [17,26]

$$UF_6 + 5\ H_2O + 10\ NH_3 + 3\ CO_2 \longrightarrow (NH_4)_4[UO_2(CO_3)_3] + 6\ NH_4F$$

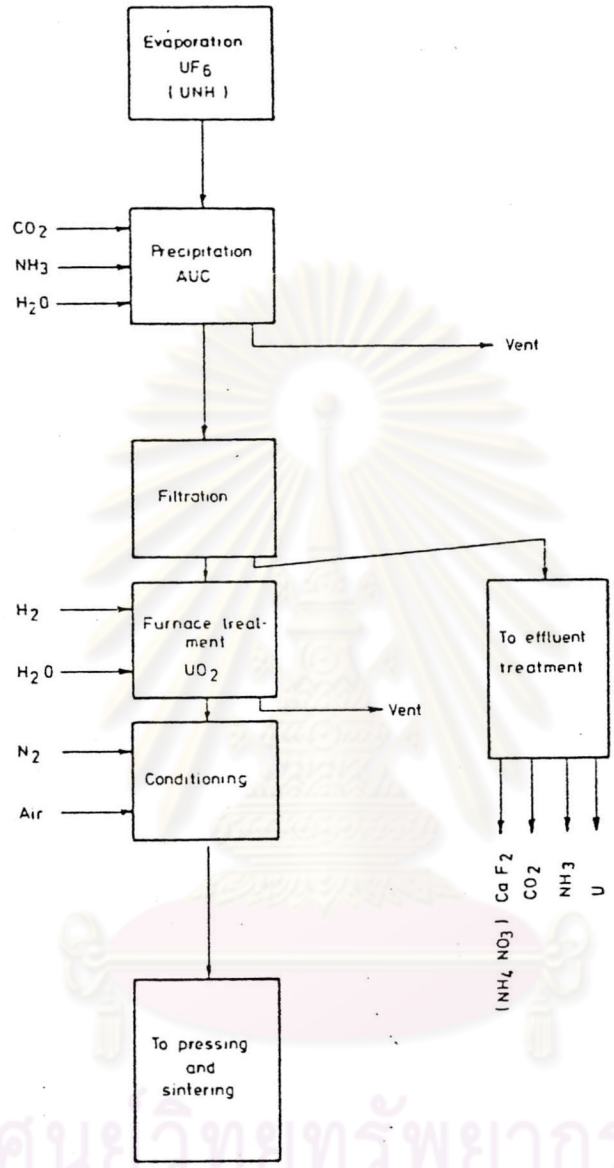
ผลผลิตที่ได้คือ ตะกอนเอยูซี มีลักษณะเป็นผลึกสีเหลือง

ขั้นที่ 3. การกรอง (filtration) ตะกอนเอยูซี เป็นสารประกอบที่ดูดซับสารเจือปน (impurities) ได้น้อย [25] จึงมีความบริสุทธิ์สูง มีขนาดและรูปร่างของตะกอนที่สามารถกรองได้ง่าย ตะกอนที่กรองได้ ล้างด้วยสารละลายแอมโมเนียม คาร์บอเนต และ เมทิลแอลกอฮอล์(methyl alcohol) [26] การล้างจะทำให้ปริมาณของฟลูออรีน (fluorine) ที่ปะปนมาในตะกอนน้อยลง จากนั้นนำตะกอนที่ได้ไปอบที่อุณหภูมิ 80° C จนน้ำหนักคงที่

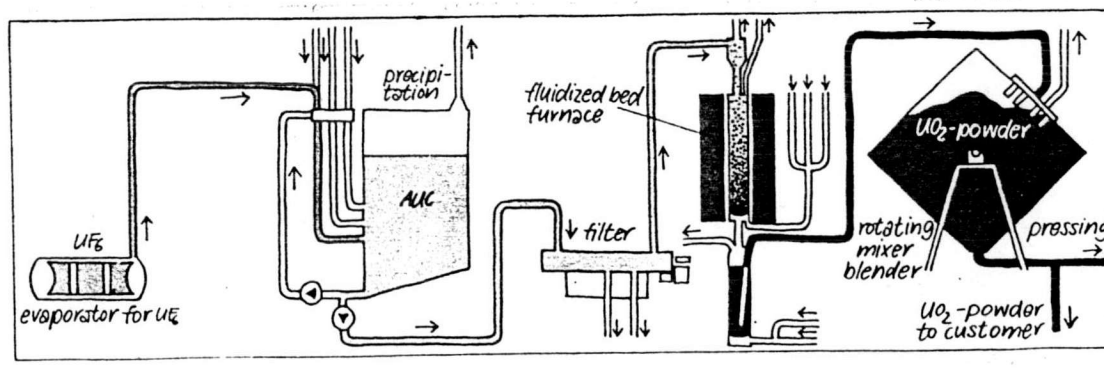
ขั้นที่ 4. การเผาและรีดิวซ์ (Calcination and reduction) นำตะกอนเอยูซี ไปเผาและรีดิวซ์ในบรรยากาศของไฮโดรเจนที่อุณหภูมิ 520° C [23,24] ยูเรเนียมจะถูกรีดิวซ์จาก U^{+6} เป็น U^{+4} ปฏิกิริยาที่เกิดขึ้นคือ [25]

$$(NH_4)_4[UO_2(CO_3)_3] + H_2 \xrightarrow[\Delta]{520^\circ C} UO_2 + 4\ NH_3 + 3\ CO_2 + 3\ H_2O$$

ในการเผาจะทำให้ปริมาณของฟลูออรีนที่ปะปนมาลดลงเหลือประมาณ 60 ppm. การเผาจะทำให้ขนาดของอนุภาคเปลี่ยนแปลงไปไม่มากนักดังแสดงในรูป 3.5 แต่จะมีผลต่อโครงสร้าง



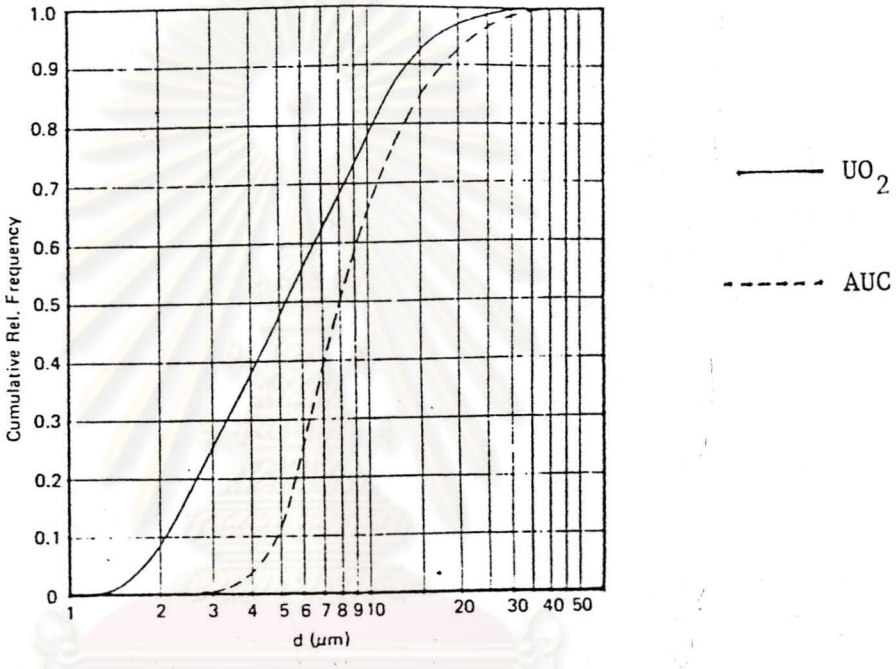
รูป 3.3 แสดงขั้นตอนของกระบวนการเอยูซี (26)



รูป 3.4 แสดงการผลิตผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ โดยกระบวนการเอยูซีที่ RBU (17)

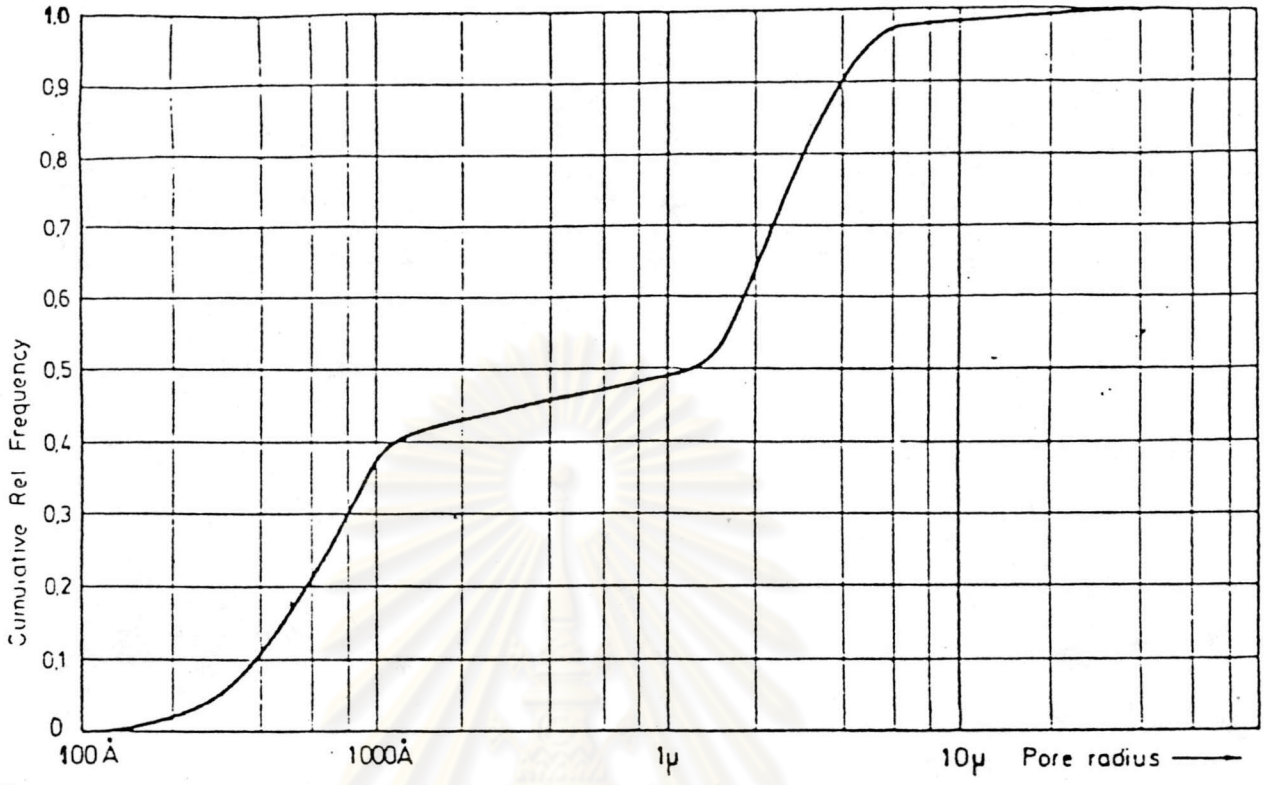
ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

และคุณสมบัติทางกายภาพ คือ มีรูพรุนเกิดขึ้นเนื่องจาก ในการเผาจะมีการสลายตัวของสารและปลดปล่อยก๊าซ จากการศึกษาพบว่าผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ มีการกระจายขนาดของรูพรุน (pore size distribution) ดังแสดงในรูป 3.6 นอกจากนี้ผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ จะมีพื้นที่จำเพาะสูงขึ้น



รูป 3.5 แสดงการกระจายขนาดอนุภาคของตะกอนเอยูซี และ ยูเรเนียม ไดออกไซด์ (27)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

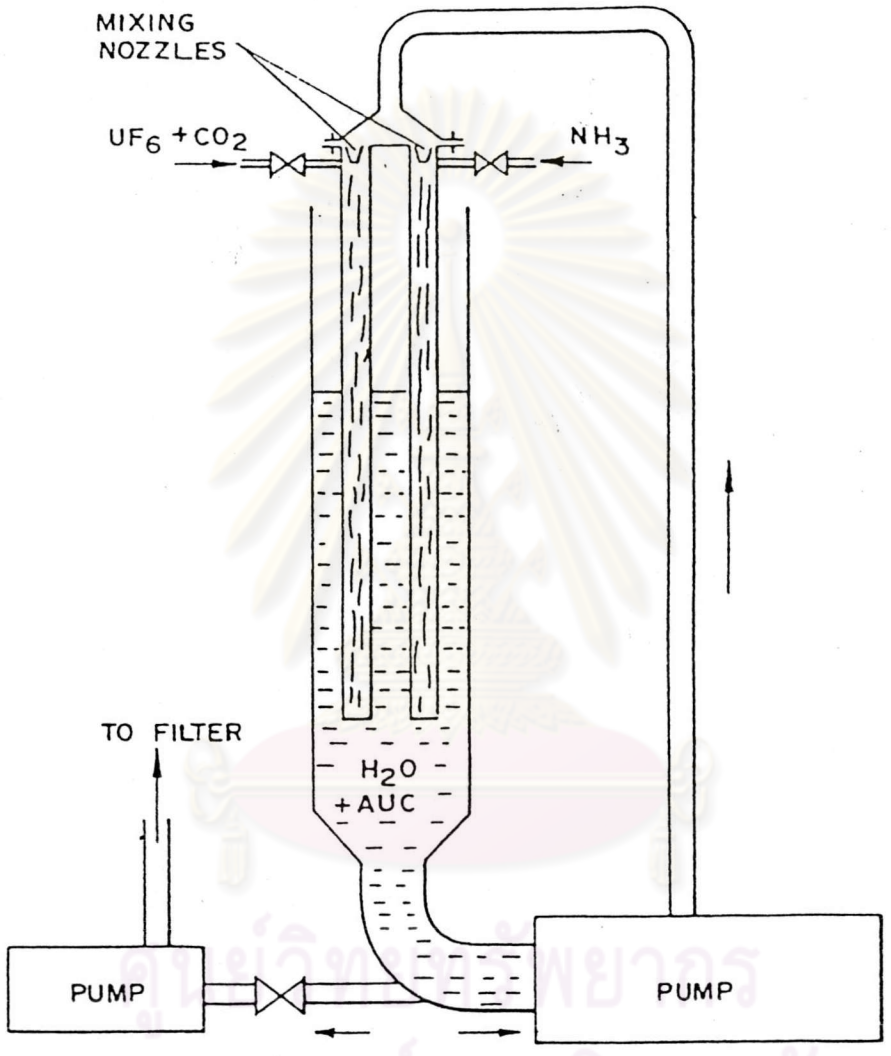


รูป 3.6 แสดงการกระจายของขนาดรูพรุนของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ (27)

ขั้นที่ 5. การทำให้เสถียร (Stabilization) ผงยูเรเนียมที่ได้จะทำให้เสถียรโดยการออกซิไดซ์ ให้อัตราส่วนออกซิเจน ต่อยูเรเนียม มีค่าประมาณ 2.10

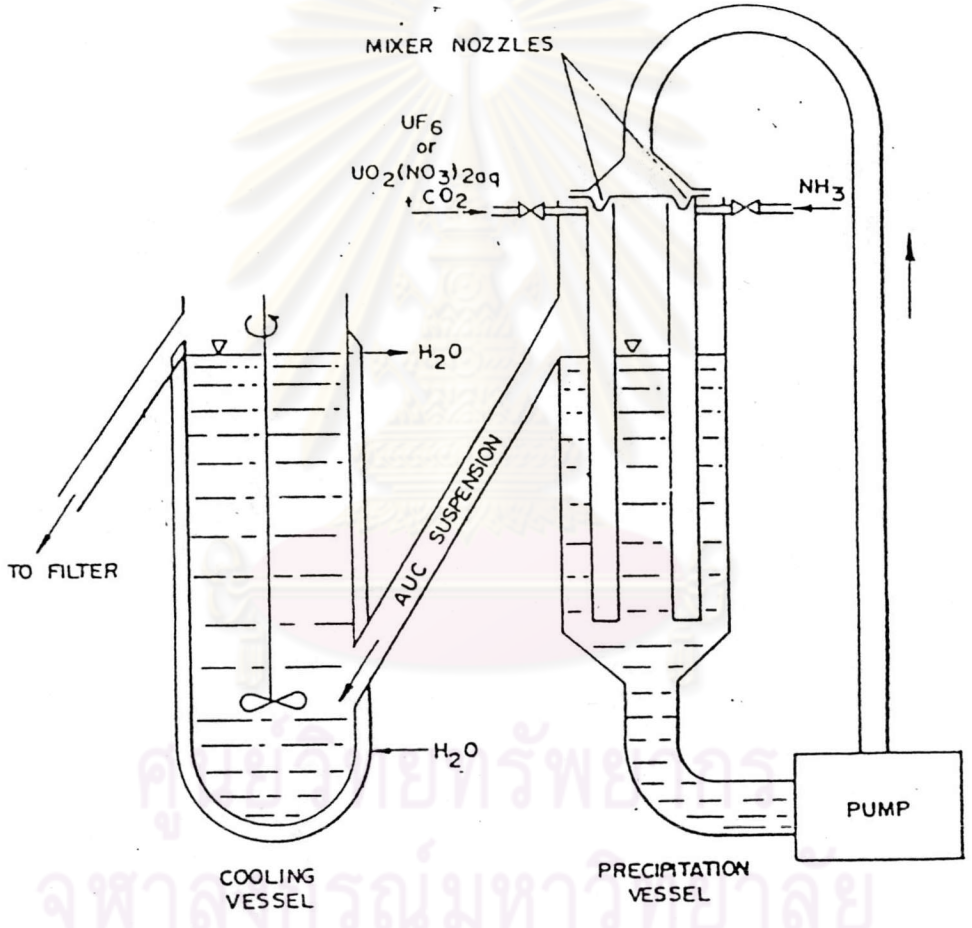
กรณีใช้สารละลาย ยูเรนิล ไนเตรต เป็นสารเริ่มต้นสามารถแบ่งขั้นตอนการผลิตเป็น 4 ขั้น คือ จะเริ่มที่ขั้นการตกตะกอนไม่ต้องมีขั้นการระเหย ตะกอนเอยูซี ที่ได้มีคุณสมบัติเหมือนกับการใช้ยูเรเนียม เฮกซะฟลูออไรด์ เป็นสารเริ่มต้น ปฏิกิริยาการตกตะกอนคือ (25,26)

$$UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O + 6NH_3 + 3CO_2 \longrightarrow (NH_4)_4[UO_2(CO_3)_3] + 2NH_4NO_3 + 3H_2O$$

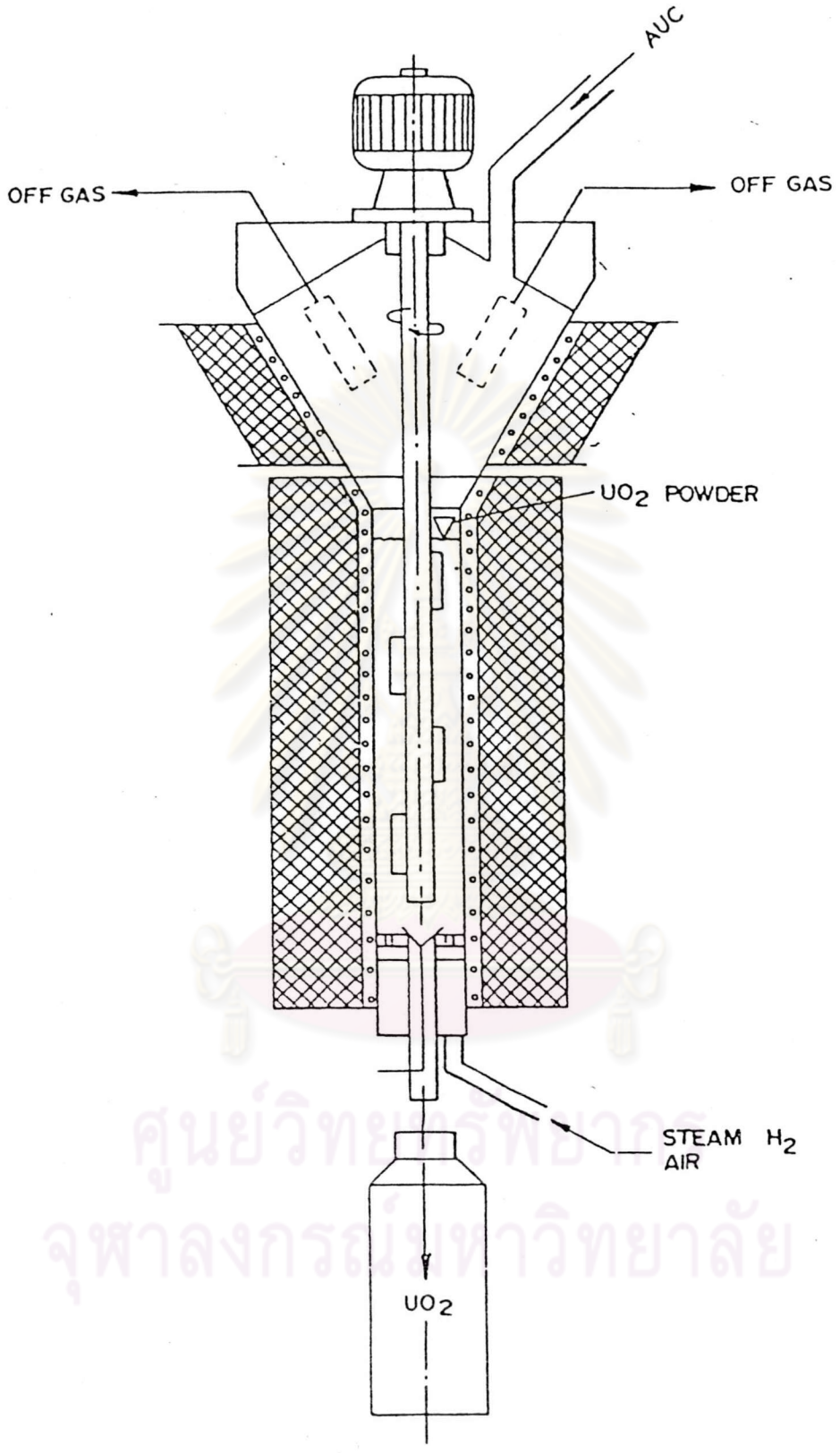


รูป 3.7 แสดงเครื่องมือการตกตะกอนเอยูซี (22)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



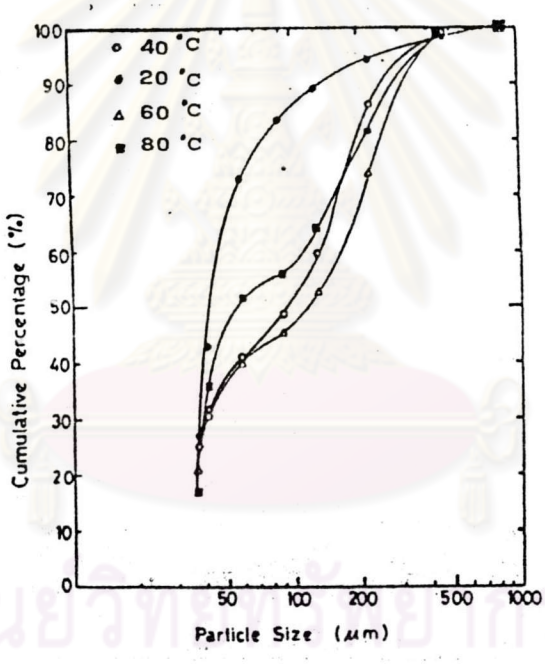
รูป 3.8 แสดงเครื่องมือการตกตะกอนเอยูซี แบบต่อเนื่อง (22)



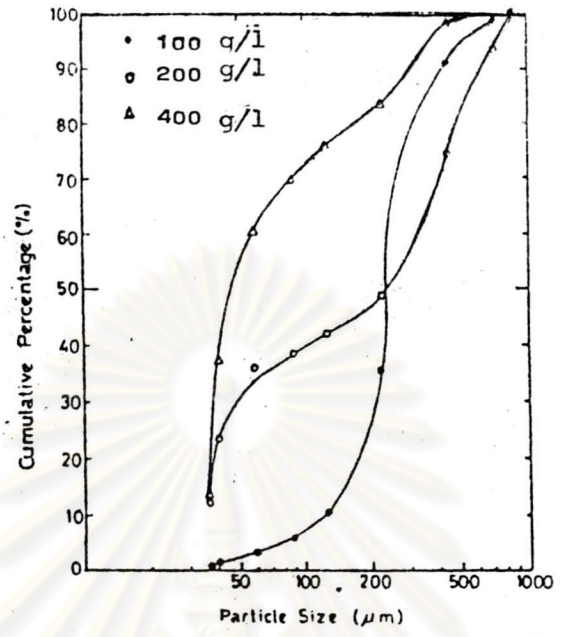
รูป 3.9 แสดงเตาเผาแบบ fluidized bed ในการเผาและรีดิวซ์เอยูซี เป็น ยูเรเนียม ไดออกไซด์ (22)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

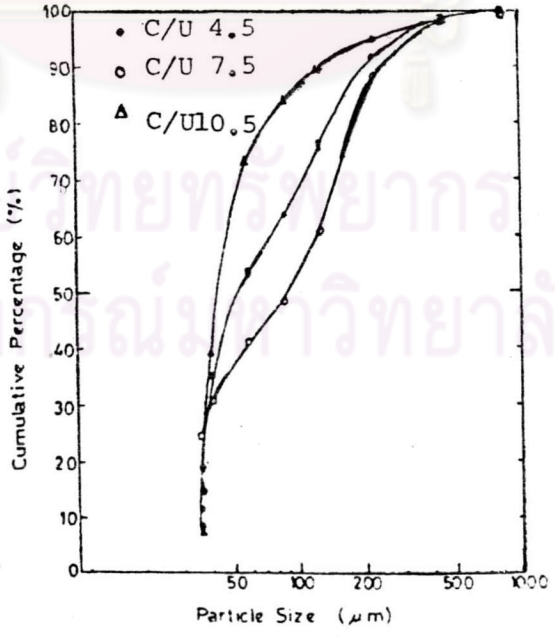
คุณสมบัติของตะกอนเอยูซี คือ [26] จะมีปริมาณฟลูออรีนเจือปนประมาณ 200 ppm. มีปริมาณของน้ำประมาณ 1000 ppm. ปริมาณของเมทิล แอลกอฮอล์ไม่เกิน 2 เปอร์เซ็นต์ ลักษณะของผลึกเป็นแบบโมโนคลินิก (monoclinic) [24] มีความหนาแน่น 2.773 กรัมต่อลูกบาศก์เซนติเมตร ละลายน้ำได้ 5.8 เปอร์เซ็นต์ที่อุณหภูมิ 19° C สลายตัวได้ในน้ำร้อน[9] ขนาดของผลึกขึ้นอยู่กับสภาวะของการตกตะกอน คืออุณหภูมิ ความเข้มข้นของสารละลายยูเรนิลไนเตรต อัตราส่วนของจำนวนโมลของคาร์บอนต่อยูเรเนียมและชนิดของสารละลายของ แอมโมเนียม คาร์บอเนตที่ใช้ในการตกตะกอน ดังแสดงในรูป 3.10 , รูป 3.11 , รูป 3.12 และรูป 3.13



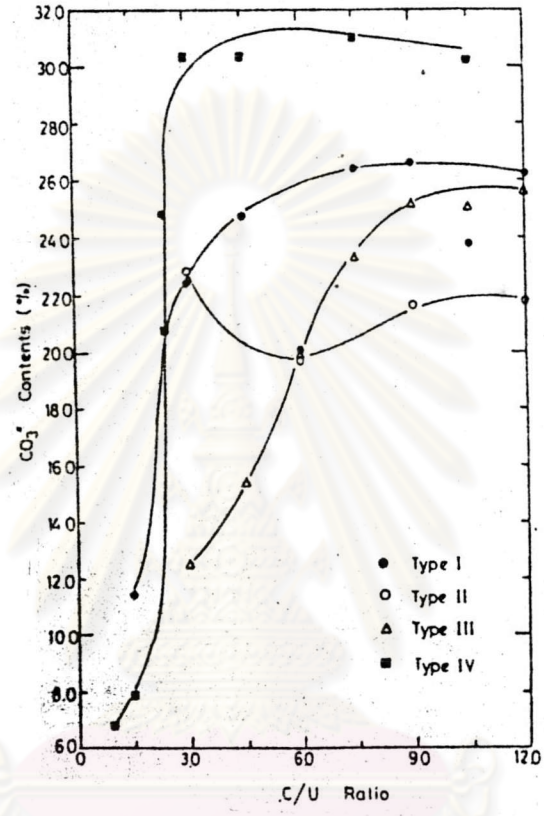
รูป 3.10 ผลของอุณหภูมิในการตกตะกอนที่มีต่อการกระจายขนาดอนุภาคของผงเอยูซี [24]



รูป 3.11 ผลของความเข้มข้นของสารละลาย UNH ที่มีต่อการกระจายขนาดอนุภาคของผง AUC [24]



รูป 3.12 ผลของอัตราส่วนคาร์บอนต่อยูเรเนียม ที่มีต่อกขนาดอนุภาคของผง AUC [24]



รูป 3.13 ผลของชนิดสารละลายแอมโมเนียม คาร์บอเนตที่มีต่อการกระจายขนาดอนุภาคของผง AUC (24)

type 1 คือ 10% $(NH_4)_2 CO_3$ + 10% NH_4OH

type 2 คือ 28% $(NH_4)_2 CO_3$ + 28% NH_4OH

type 3 คือ 25% $(NH_4)_2 CO_3$

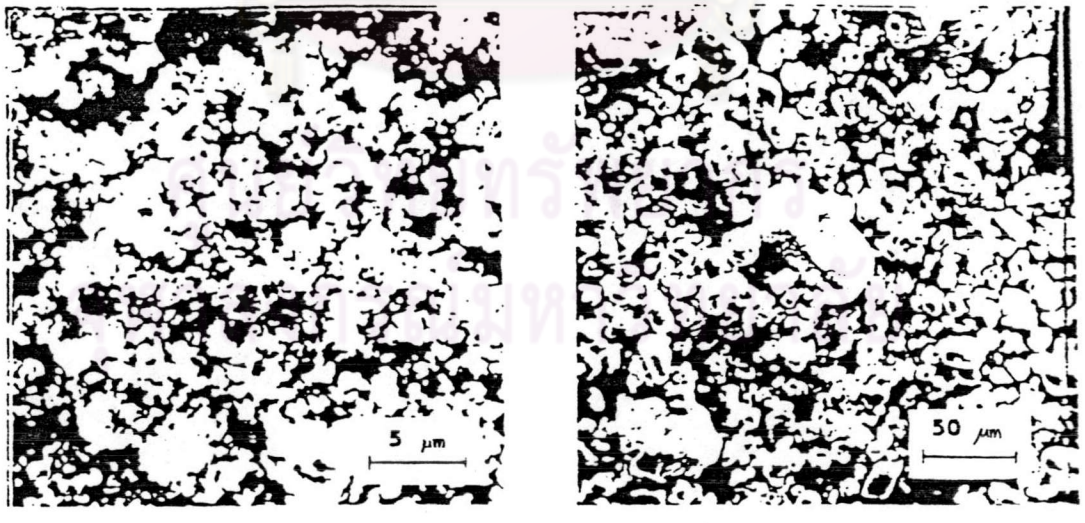
type 4 คือ 25% $(NH_4)_2 CO_3$ + 10% NH_4OH

องค์ประกอบทางเคมีของเอยูซี [27] โดยการวิเคราะห์เมื่อเทียบกับการคำนวณ ดังแสดงในตาราง 3.2

ตาราง 3.2 แสดงองค์ประกอบทางเคมีของแอมโมเนียม ยูเรนิล คาร์บอเนต [28]

องค์ประกอบ	วิธีที่ใช้วิเคราะห์	ค่าที่ได้จากการวิเคราะห์(%)	การคำนวณ(%)
U	TGA (300° C)	45.65 ± 0.05	45.58
C	CHN - Analyzer	6.74	6.89
H	CHN - Analyzer	3.11	3.06
N	CHN - Analyzer	10.61	10.72

คุณสมบัติของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ขึ้นอยู่กับกระบวนการผลิต ผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง และกระบวนการเอดียู มีลักษณะเป็นนอน โฟลเอเบิล (non flowable) มีขนาดละเอียด ส่วนผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี มีคุณสมบัติเป็น ฟรี โฟลอิง (free flowing) มีขนาดใหญ่กว่า รูป 3.14 แสดงลักษณะของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง และกระบวนการเอยูซี



รูป 3.14 แสดงลักษณะของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง และกระบวนการเอยูซี [14]

3.3 การขึ้นรูปเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์

การขึ้นรูปเชื้อเพลิงนิวเคลียร์ สามารถทำได้หลายวิธี สำหรับเชื้อเพลิงแบบเซรามิค นิยมขึ้นรูปโดยวิธีโลหวิทยาแบบผงอัด (powder metallurgy technique) คือขึ้นรูปในลักษณะทรงกระบอกหรือเพลเลท (pellet)

ข้อดีของการขึ้นรูปโดยวิธีโลหวิทยาแบบผงอัด คือ [5]

ก. มีการสูญเสียสารที่จะนำมาขึ้นรูปน้อยมาก ซึ่งเป็นเรื่องสำคัญมากในทางเศรษฐศาสตร์ เพราะวัสดุเชื้อเพลิงมีราคาแพง

ข. ให้ผลิตภัณฑ์ที่มีรูปร่างคงตัวแน่นอน และ handle ได้ง่าย

การอัดเม็ดที่นิยมใช้กันมาก มี 2 วิธี คือ

3.3.1 วิธีแกรนูเลชัน (Granulation) ซึ่งแบ่งออกเป็น 2 แบบ คือ

ก. การทำให้เป็นแกรนูลแบบแห้ง (Dry Granulation)

ข. การทำให้เป็นแกรนูลแบบเปียก (Wet Granulation)

วิธีแกรนูเลชัน ใช้กับผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่มีลักษณะเป็น นอน โฟลเอเบิล ดังนั้นผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง และกระบวนการเอดียู จะขึ้นรูปโดยวิธีนี้ วิธีการคือนำผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้ไปบด (milling) แล้วทำให้เป็นเม็ด (Granulating) โดยผสมกับตัวประสานอินทรีย์ (Organic binder) และสารหล่อลื่น (Lubricant) หรืออาจมีการเติมพอร์ฟอร์เมอร์ (poreformer) ลงไปด้วย แล้วนำไปอัดที่ความดันตามต้องการ สำหรับวิธีนี้ในการเผาประสานจะต้องมีขั้นการกำจัดขี้ผึ้ง(dewaxing) step) ก่อน

ผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอดียู จะอัดที่ความดันประมาณ 40,000 ปอนด์ต่อตารางนิ้ว [23] แล้วเผาประสานที่อุณหภูมิ 1650° C ในบรรยากาศของไฮโดรเจน

3.3.2 การอัดโดยตรง (Direct pelletizing) [12,14,17,26]

การอัดโดยตรงใช้ได้เฉพาะกับผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่มีลักษณะฟรี โฟลอิง ไม่ต้องบดและเติมตัวประสาน หรือสารหล่อลื่นใด ๆ ทั้งสิ้น สามารถนำผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้ไปอัดโดยตรง ซึ่งเป็นวิธีการที่ประหยัด และในการเผาประสานไม่ต้องมีขั้นการกำจัดขี้ผึ้ง ผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี สามารถใช้การอัดวิธีนี้ และให้คุณสมบัติดี มีความแข็งแรง (strength) สูง

ยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่อัดเป็นเม็ดแล้วเรียกว่า กรีน เพลเลท (green pallet)

3.4 <u>การเผาประสาน</u> (Sintering)

ในการเผาประสานเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ จะเผาที่อุณหภูมิสูง เพื่อให้มีคุณสมบัติตามที่ต้องการ คือ [29]

ก. ความหนาแน่นสูง (ประมาณ 95 เปอร์เซ็นต์ของค่าความหนาแน่นตามทฤษฎี)

ข. มีโครงสร้างไมโคร (Microstructure) ที่ดีเพื่อป้องกันการบวม เนื่องจากการเกิดปฏิกิริยาการแตกตัว (fission - induced swelling)

ค. มีสารเจือปนต่ำ โดยเฉพาะปริมาณของฟลูออรีน

ง. มีองค์ประกอบทางเคมีที่เหมาะสม (อัตราส่วนของออกซิเจนและยูเรเนียม) เนื่องจากปริมาณของออกซิเจนในยูเรเนียม ไดออกไซด์ จะไปลดการนำความร้อนทำให้พฤติกรรมของแท่งเชื้อเพลิงเปลี่ยนแปลง และเปลี่ยนแปลงสภาพทางเคมีของผลผลิตฟิชชัน ทำให้เกิดออกซิเดชันของหลอดหุ้มเชื้อเพลิง (clad tube)

การเผาประสาน คือ กระบวนการควบคุมการแพร่กระจาย (diffusion - controlled process) [27] การเผาประสานขึ้นอยู่กับอัตราการแพร่กระจายของอะตอม รวมทั้งการเคลื่อนย้าย ของสสารในวัตถุ การเผาประสานมี 2 แบบ คือ

3.4.1 การเผาประสานแบบรีดิวซ์ (Reducing Sintering) ใช้อุณหภูมิในการเผาประสานสูง ๆ คืออยู่ในช่วง 1600 ถึง 1700° C ในบรรยากาศของไฮโดรเจน

3.4.2 การเผาประสานแบบออกซิไดซ์ (Oxidative sintering) หรือเรียกอีกอย่างว่าการเผาประสานที่อุณหภูมิต่ำ (Low - temperature sintering) เนื่องจากใช้อุณหภูมิในการเผาประสานที่อุณหภูมิต่ำคือ 1000 ถึง 1400° C การเผาจะแบ่งออกเป็น 2 ขั้น คือ ขั้นแรกเผาแบบออกซิไดซ์ ในบรรยากาศของออกซิไดซิงก๊าซ (Oxidizing gas) คือก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ (CO_2) หรือก๊าซผสมของคาร์บอนมอนอกไซด์ (CO) กับก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ จากนั้นในขั้นที่สองจะเป็นการเผาแบบรีดิวซ์ในบรรยากาศของก๊าซไฮโดรเจน เวลาในการคงที่อุณหภูมิสูงสุดที่ใช้ในการเผาประสานขึ้นอยู่กับอุณหภูมิสูงสุดที่เลือกใช้ดังแสดงในรูป 3.3 โดยความหนาแน่นของเม็ดเชื้อเพลิงหลังจากเผาประสานแล้วมีค่าเท่ากับ 94 เปอร์เซ็นต์ของค่าความหนาแน่นตามทฤษฎี

ตาราง 3.3 ความสัมพันธ์ระหว่างเวลาและอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาประสาน

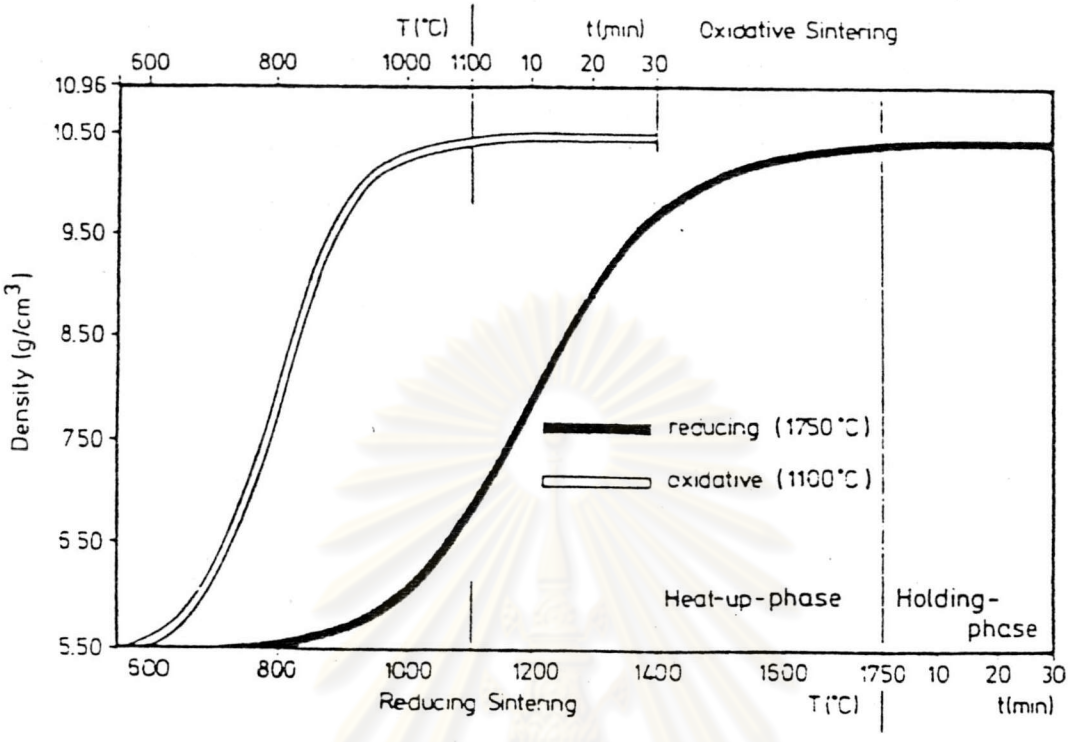
เวลาในการเผาประสาน (นาที)	อุณหภูมิการเผาประสาน (° C)
30	1000
20	1100
10	1200
5	1400

หลักการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ [29] คือ อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาประสานต่ำไม่เกิน 1400° C ก๊าซที่ใช้ในการเผาประสานจะต้องราคาไม่แพงไปกว่าก๊าซที่ใช้ในการเผาประสานแบบรีดิวซ์ และเม็ดยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จะต้องมีคุณสมบัติเช่นเดียวกับที่ได้จากการเผาแบบรีดิวซ์

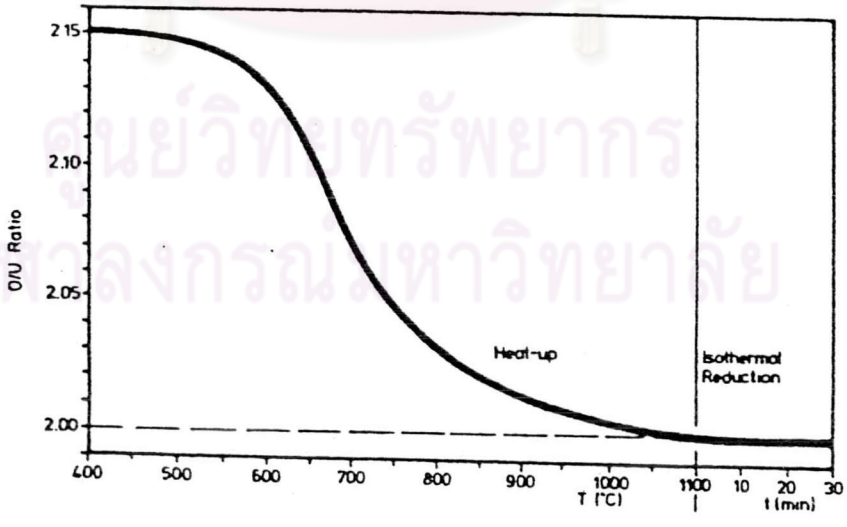
กรีน เพลเลท ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง และกระบวนการเอดียู ซึ่งต้องใช้ตัวประสานอินทรีย์ และสารหล่อลื่นในการขึ้นรูป จึงไม่เหมาะในการเผาประสานที่อุณหภูมิต่ำ เนื่องจากต้องมีขั้นการดีแวกซิงก่อนเผาประสาน ดังนั้นต้องใช้การเผาประสานที่อุณหภูมิสูง คือเผาประสานแบบรีดิวซ์ สำหรับกรีน เพลเลท ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี ขึ้นรูปโดยการอัดโดยตรงจึงสามารถเผาประสานได้ทั้งสองแบบ ในการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ จะใช้อุณหภูมิสูงสุดที่ 1100° C เป็นเวลาประมาณ 30 นาที

รูป 3.15 กราฟแสดงการเปรียบเทียบของการเผาประสานแบบรีดิวซ์ และออกซิไดซ์ของเม็ดยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี โดยมีอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10° C ต่อนาที การเผาประสานแบบรีดิวซ์จะเริ่มที่อุณหภูมิ 800° C และอุณหภูมิสูงสุดที่ 1750° C ให้อัตราส่วนของออกซิเจนต่อยูเรเนียม น้อยกว่าหรือเท่ากับ 2.01 ส่วนการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ จะเริ่มที่อุณหภูมิ600° C อุณหภูมิสูงสุด 1100° C ให้อัตราส่วนของออกซิเจนต่อยูเรเนียมประมาณ 2.1

รูป 3.16 แสดงการรีดิวซ์ซึ่งเป็นขั้นที่สองต่อจากการเผาออกซิไดซ์ ของการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ ซึ่งจะคงที่ที่อุณหภูมิ 1100° C เป็นเวลา 30 นาที โดยมีอัตราการเพิ่มอุณหภูมิ 10° C ต่อนาทีและให้อัตราส่วนของออกซิเจนต่อยูเรเนียมเท่ากับ 2.01

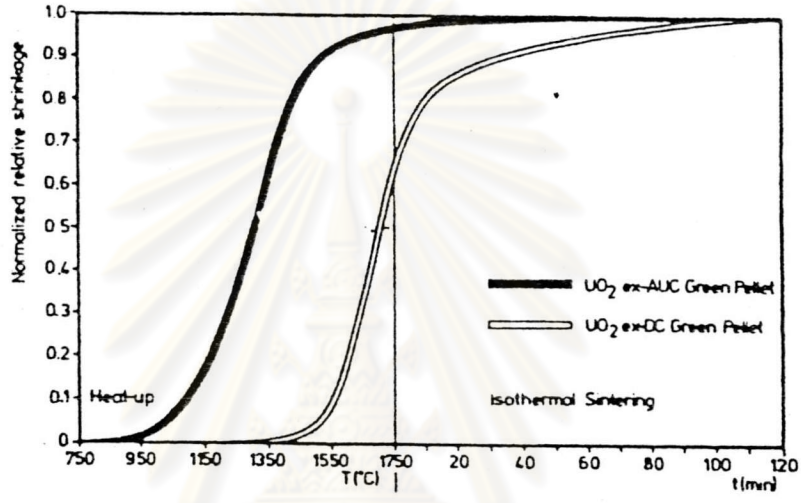


รูป 3.15 กราฟเปรียบเทียบการเผาประสานแบบรีดิวซ์และแบบออกซิไดซ์[14]



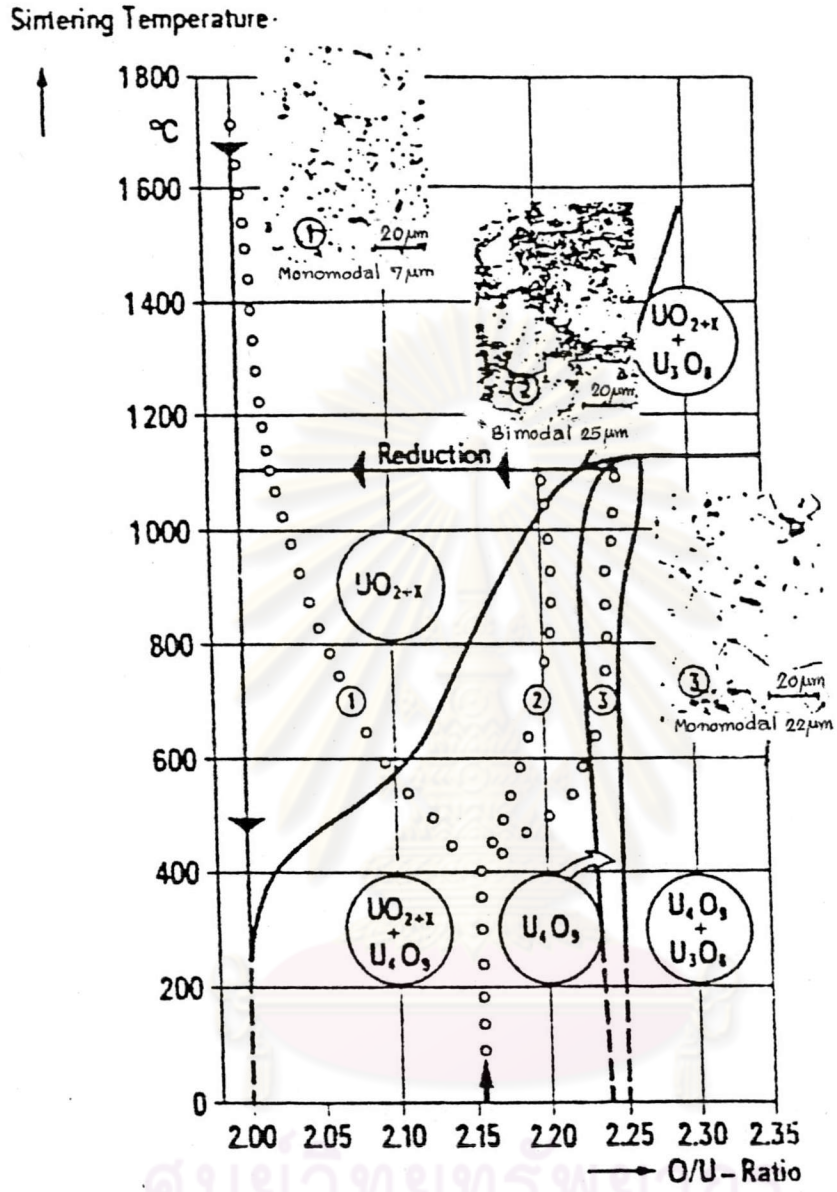
รูป 3.16 แสดงการเผารีดิวซ์ของการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ ในบรรยากาศของไฮโดรเจน [29]

รูป 3.17 กราฟแสดงการเผาแบบรีดิวซ์ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี และกระบวนการเคมีแบบแห้ง จะเห็นว่ายูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี จะเผาประสานได้ดี (good sinterability) กว่า เพราะยูเรเนียม ไดออกไซด์ที่ได้จากกระบวนการเคมีแบบแห้ง เริ่มเผาประสานที่ 1300° C และที่อุณหภูมิ 1750° C จะให้ความหนาแน่นต่ำกว่ายูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี



รูป 3.17 กราฟเปรียบเทียบการเผาประสานแบบรีดิวซ์ของยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี และกระบวนการเคมีแบบแห้ง (29)

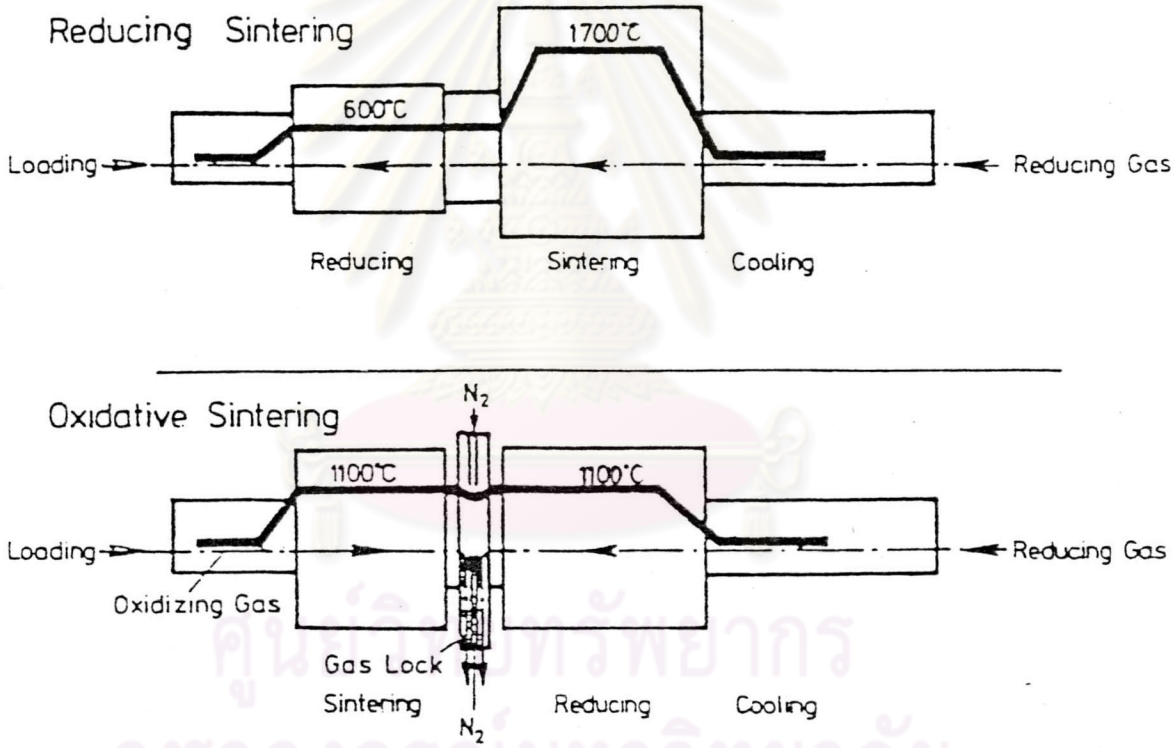
รูป 3.18 แสดงวิธีการเผาประสานที่จะควบคุมโครงสร้างของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ โดยแสดง 3 วิธี คือวิธีที่ 1 เป็นการเผาประสานแบบรีดิวซ์ในบรรยากาศของไฮโดรเจน อุณหภูมิสูงสุดคือ 1650 ถึง 1700° C วิธีที่ 2 และ 3 เป็นการเผาประสานแบบออกซิไดซ์ โดยวิธีที่ 2 เป็นไบโมดัล (bimodal) คือมีการเติม U_3O_8 ลงไปด้วย วิธีที่ 3 เป็นลักษณะโมโนโมดัล (monomodal)



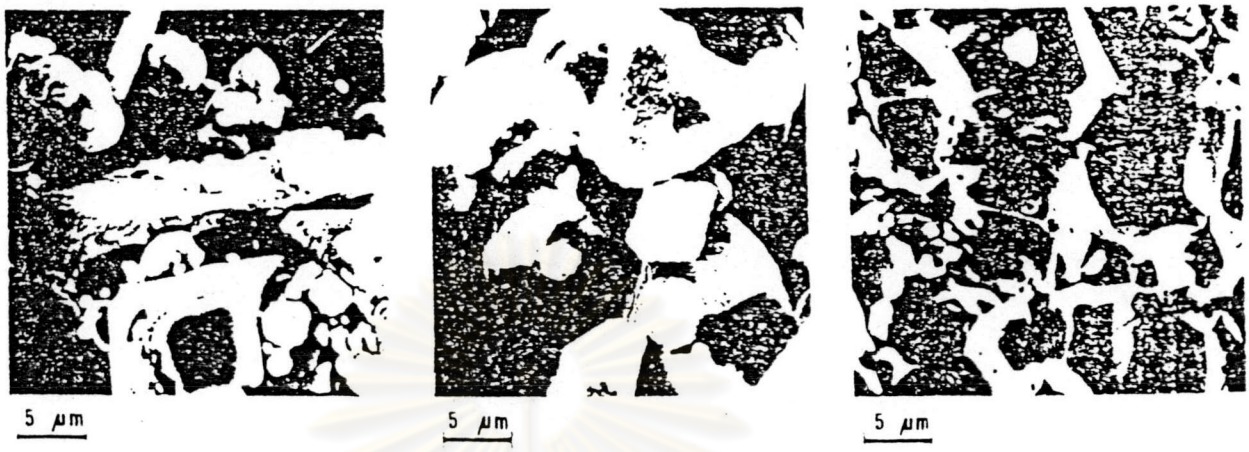
รูป 3.18 แสดงวิธีการเผาประสาน เพื่อใช้ควบคุมโครงสร้างของเม็ดเชื้อเพลิง [13]

เตาเผาที่ใช้ในการเผาประสานแบบรีดิวซ์ แบ่งเป็น 3 ส่วนคือ [29] ส่วนของการรีดิวซ์ (reducing zone) อุณหภูมิประมาณ 600° C ส่วนการเผาประสาน (Sintering zone) อุณหภูมิประมาณ 1700° C และส่วนที่ทำให้เย็น (cooling zone) ก๊าซที่ใช้ในการรีดิวซ์คือ ก๊าซไฮโดรเจน หรือแครกแอมโมเนียม (cracked NH_3) ซึ่งจะผ่านเข้าเตาเผาในทิศสวนทางกับการเคลื่อนที่ของเม็ดเชื้อเพลิง ดังแสดงในรูป 3.19 เตาเผาสำหรับการเผาประสาน

แบบออกซิไดซ์ แบ่งออกเป็น 4 ส่วน คือ ส่วนของการออกซิไดซ์ (oxidizing zone) โดยผ่านออกซิไดซิงก๊าซ ซึ่งให้คาร์บอนไดออกไซด์ เข้าในทิศทางเดียวกับเม็ดเชื้อเพลิง ส่วนที่ 2 เป็นส่วนการเผาประสาน ใช้อุณหภูมิสูงสุดที่ 1100° C ต่อจากส่วนนี้จะเป็นก๊าซล็อค (gas lock) ซึ่งผ่านก๊าซไนโตรเจน เข้ามาเพื่อไล่ก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ออก ส่วนที่ 3 เป็นส่วนการรีดิวซ์จะผ่านรีดิวซิ่งก๊าซ ซึ่งเป็นการผสมของก๊าซไฮโดรเจน 6 เปอร์เซ็นต์ และก๊าซไนโตรเจน 94 เปอร์เซ็นต์ [29] หรือก๊าซไฮโดรเจน 8 เปอร์เซ็นต์ ผสมกับก๊าซไนโตรเจน 92 เปอร์เซ็นต์[14] โดยผ่านเข้าในทิศสวนทางกับการเคลื่อนที่ของเม็ดเชื้อเพลิงและจะปล่อยออกที่ก๊าซล็อคเช่นกัน



รูป 3.19 เปรียบเทียบเตาเผาที่ใช้ในการเผาประสานแบบรีดิวซ์และแบบออกซิไดซ์ [14]



รูป 3.20 แสดงลักษณะของเอยูซี และยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ผลิตโดย KWU ถ่ายด้วยกล้องอิเลคตรอนแบบกวาด (Scanning electron microscope) [17]

3.5 <u>คุณสมบัติของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี</u>

เม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี จะมีความบริสุทธิ์สูง เพราะไม่มีการเติมสารหล่อลื่น หรือตัวประสานเข้ามาปะปนในกระบวนการผลิต ตารางที่ 3.4 แสดงปริมาณของสิ่งเจือปนที่มีอยู่ในผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ และยูเรเนียม ไดออกไซด์เพลเลท

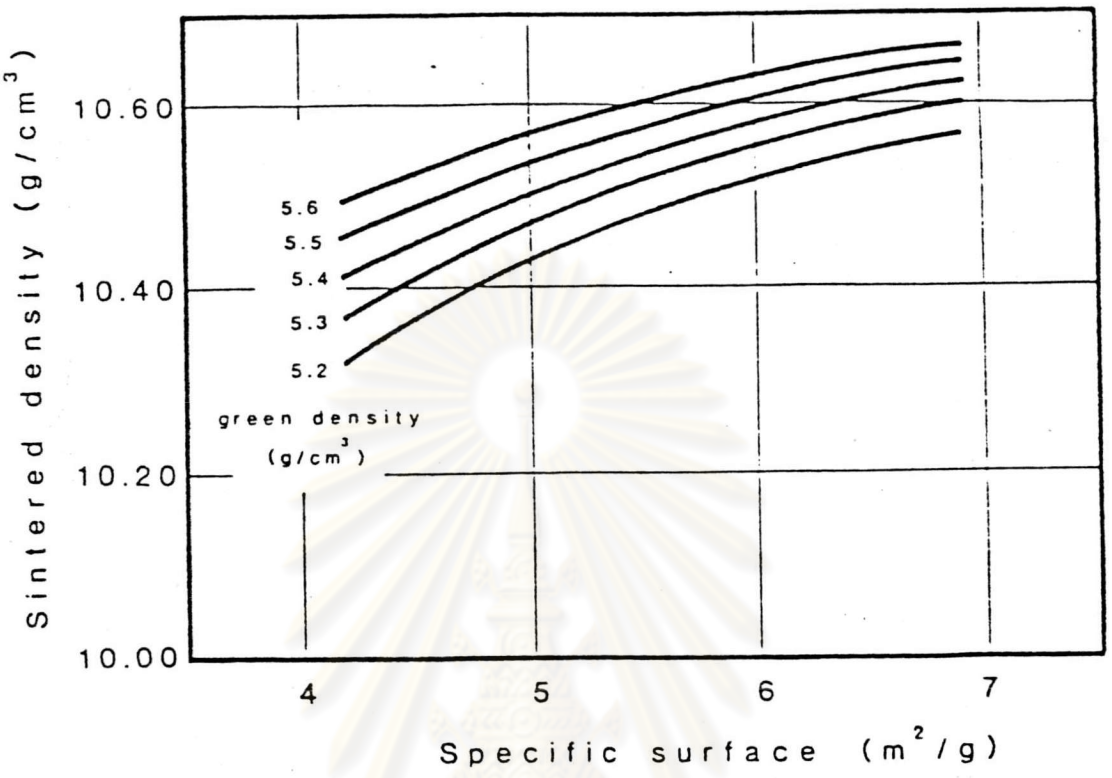
ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

ตาราง 3.4 ปริมาณของสิ่งเจือปนที่มีอยู่ในผงและเพลเลทของยูเรเนียม ไดออกไซด์ (27)

Element	F	H_2O	Total Boron Equivalent	Fe	Si	Ni	N	C	Cl	Ca	O/U Ratio	Ag, Bi, Co, Cu, Mg, Mo, Na, Pb, Sn, V, Zn, Ti, Th, Ta, P, W
UO_2 powder (ppm)	~40	1000	<0.5	10-20	5-10	2-10	5-20	5-20	5	10	2.12 ± 0.5	≤200 ppm
UO_2 pellet	2-6	1-3	<0.5	10-20	6	2-5	4	4	4-5	10	2.01 ± 0.01	<200 ppm

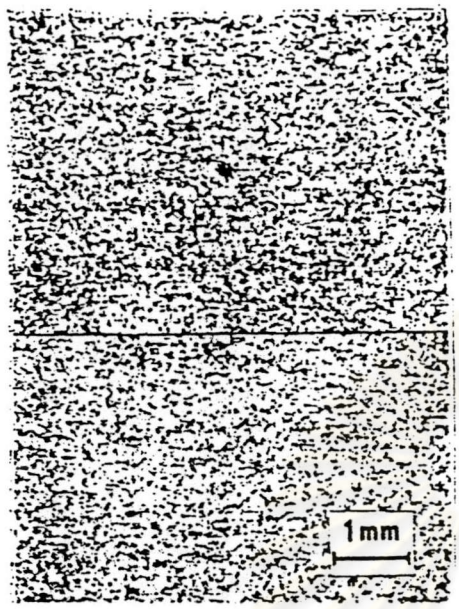
ความหนาแน่นสุดท้ายของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่เผาประสานแล้ว จะขึ้นอยู่กับค่าพื้นที่ผิวจำเพาะของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ และความหนาแน่นของกรีน เพลเลท ดังแสดงในรูป 3.21 นอกจากนี้คุณลักษณะที่สำคัญอีกอย่างคือ ความเป็นรูพรุน (porosity) และโครงสร้างของเม็ดเชื้อเพลิง รูปร่างและการกระจายขนาดของรูพรุนขึ้นอยู่กับกระบวนการที่ใช้ในการผลิต ลักษณะการกระจายของรูพรุนของเม็ดยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่ได้จากกระบวนการเอยูซี เป็นโมโนโมดัล และโครงสร้างของรูพรุนเป็นเนื้อเดียวกัน (Homogeneous pore structure) รูปที่ 3.22 แสดงลักษณะโครงสร้างรูพรุนของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ก) จากเอยูซี ข) จากการขึ้นรูปโดยวิธีแกรนูเลชัน ค) จากเอยูซีโดยมีการเติม U_3O_8 ง) จากเอยูซีซึ่งมีการเติม U_3O_8 และพอร์ฟอร์เมอร์

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



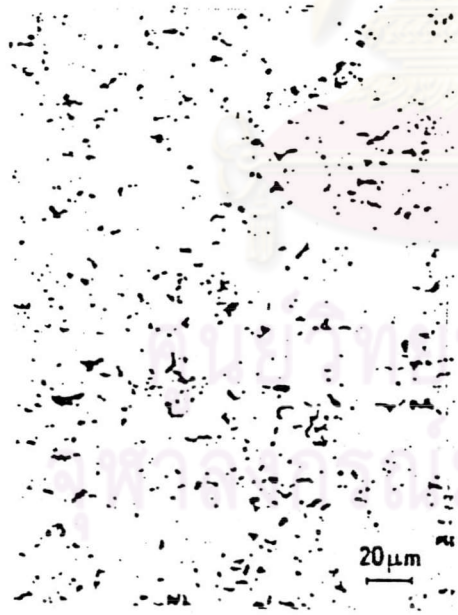
รูป 3.21 แสดงความสัมพันธ์ระหว่างค่าความหนาแน่นของเม็ดเชื้อเพลิง กับพื้นที่ผิวจำเพาะของผงยูเรเนียม ไดออกไซด์ (14)

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

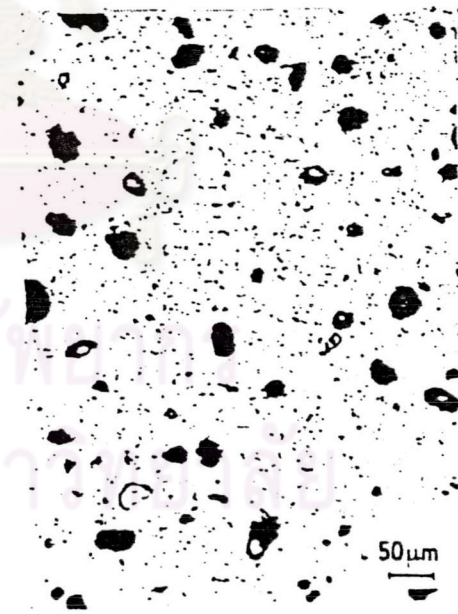


ก) UO_2 ex – AUC

ข) Granulate Structure



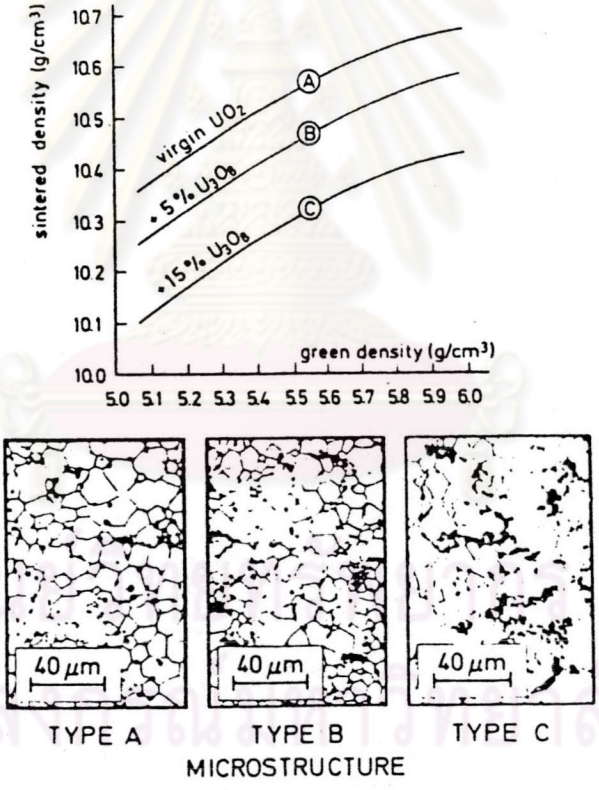
ค) UO_2 ex – AUC + U_3O_8



ง) UO_2 ex – AUC + U_3O_8 + Poreformer

รูป 3.22 แสดงโครงสร้างรูพรุนของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ ที่มีการขึ้นรูปแตกต่างกัน (14)

เม็ดเชื้อเพลิงที่ดี ควรจะมีลักษณะของรูพรุนเป็นมัลติโมดัล (multimodal) และโครงสร้างรูพรุนไม่เป็นเนื้อเดียวกัน (non - homogeneous) ดังนั้น จึงได้มีการปรับปรุงโครงสร้างของรูพรุนโดยการเติม U_3O_8 ลงไป ซึ่งปริมาณของ U_3O_8 ที่เติมลงไป จะมีผลต่อความหนาแน่นของเม็ดเชื้อเพลิง ดังแสดงในรูป 3.23 โดยแสดงการเปรียบเทียบระหว่างเม็ดเชื้อเพลิง ที่ไม่มีการเติม U_3O_8และมีการเติมปริมาณต่าง ๆ ปัจจุบันนี้เม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์ จากกระบวนการเอยูซี ได้มีการนำมาใช้ทำแท่งเชื้อเพลิง สำหรับเตาปฏิกรณ์นิวเคลียร์ชนิด LWR [12] (Light Water Reactor) ซึ่งใช้เซอร์คาลอย (Zircaloy) เป็นตัวห่อหุ้ม (Cladding) เพื่อรักษารูปร่างของแท่งเชื้อเพลิง



รูป 3.23 แสดงความแตกต่างของโครงสร้างและความหนาแน่นของเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ไดออกไซด์ เมื่อมีการเติม U_3O_8 ปริมาณต่างกัน [25]