رفتار تخلخل در قرص سوخت هسته‌ای UO_2

رحیمی، رفیع علی* – عباسیان، احمدرضا – ایروانی، مژگان – محمدی فر، محمد

سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده مواد

چکیده:

این مطالعه اطلاعاتی از نقش تخلخل در قرص سوخت هسته‌ای ارائه می‌دهد که هر فرد متخصصی با دانستن اهمیت آن بتواند با کنترل فرایند تولید سوخت، تخلخل‌های با ویژگی‌های بهینه ایجاد نماید. ابتدا قرص‌های خام تهیه و برای مدت‌های زمانی مختلف نگهداری و تغییرات ناشی از اکسید یا هیدراته شوندگی بررسی گردید. همچنین قرص‌های سوخت هسته‌ای UO_2 با استفاده از افزودنی اکسید کروم در اتمسفرهای مختلف زینتر گردید. نتایج نشان داد با افزایش زمان نگهداری قرص‌های خام، نسبت O/U افزایش ولی مقدار جذب رطوبت کاهش می‌یابد. همچنین زینتر در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- نتایج بهتری از نظر رشد اندازه دانه و مقدار تخلخل و چگالی بدست می‌دهد.

کلمات کلیدی: *قرص سوخت هسته‌ای، تخلخل، جای خالی اتمی، نسبت اورانیوم به اکسیژن، UO_2*

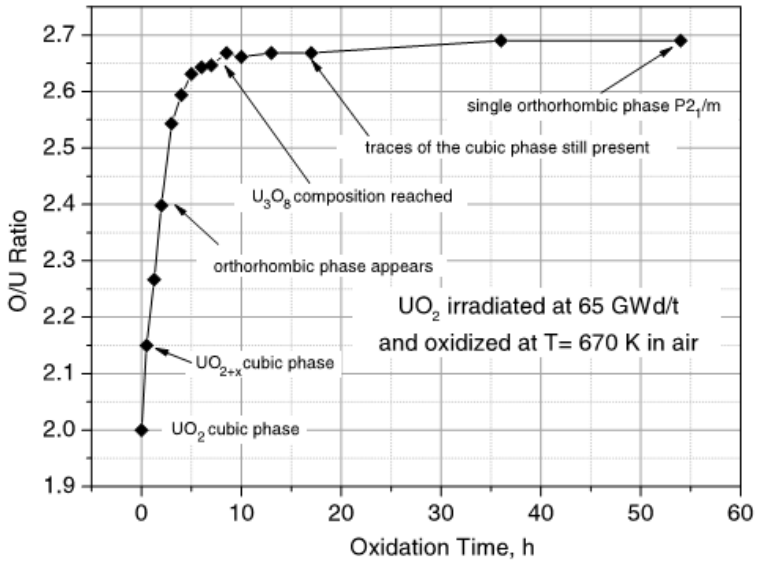
مقدمه :

در قرص‌های سوخت هسته‌ای به دلیل افزایش اکسید یا هیدراته شوندگی قرص خام و تغییرات ابعادی ناشی از زینتر قرص در هنگام کار در راکتور، تخلخل برای قرص‌های سوخت هسته ایجاد مشکل می‌نماید [۴-۱]. از طرف دیگر برای قرارگیری محصولات واکنش‌های شکافت هسته‌ای درون تخلخل وجودش ضروری است. در صورت عدم وجود تخلخل کافی، حجم اضافی محصولات واکنش‌های شکافت هسته‌ای سبب تورم قرص و آن هم به نوبه خود منجر به برهم خوردن انتقال حرارت در راکتور و افزایش شدید تنش روی غلاف زیرکونیومی می‌شود. بنابراین آگاهی از نقش تخلخل در قرص سوخت هسته‌ای برای متخصصین صنعت هسته‌ای و برای کنترل فرایند تولید سوخت ضروری است [۳و۴]. پودر UO_2 در هوا حتی در دمای معمولی به‌آسانی اکسید یا هیدراته می شود. ترکیبات اکسید اورانیوم به صورت UO_3، U_3O_8 و U_4O_9 و غیر استوکیومتری UO_{2+x} نیز گزارش شده است [۶-۵]. میزان اکسید یا هیدراته شوندگی آن بستگی به اندازه ذرات و مساحت سطح در معرض محیط دارد. در صورتی که سطح تماس آن‌ها با محیط مجاور بالا

Archive of SID

www.SID.ir

باشد، عمل هیدراته شدن با شدت بیشتری انجام می‌گیرد. درون قرص خام تخلخل‌های باز به هم پیوسته‌ای وجود دارند که تا عمق آن امتداد دارند. چون قطر این تخلخل‌ها کم و تعدادشان زیاد است مساحت سطح تماس فوق‌العاده بالایی را از قرص در معرض هیدراته شدن یا اکسیداسیون قرار می‌دهند. عمل زینتر و متراکم شدن به میزان زیادی از حجم تخلخل‌های بازی که مستقیماً قرص را در معرض محیط قرار می‌دهند کم می‌کند [۷].



شکل (۱): منحنی اکسیداسیون نمونه در معرض تابش بر حسب تابعی از زمان.

مشکل اکسیدا سیون معمولاً پس از زینتر قرص به دلیل کاهش خیلی شدید مساحت سطح در تماس با محیط مجاور وجود نخواهد داشت. زمانی که پودر اکسید اورانیوم در اتمسفر هیدروژن مثلاً در دمای ۱۶۵۰°C زینتر می شود سرعت اکسید یا هیدراته شوندگی آن به‌قدری کاهش می‌یابد که دیگر قابل اندازه‌گیری نیست. به همین علت می‌توان قرص‌های اکسید اورانیوم زینتر شده را بدون اینکه عمل اکسیداسیونی روی آن‌ها انجام بگیرد به مدت‌های طولانی در هوا و در دمای معمولی نگهداری کرد. با این وجود قرص‌های سوخت هسته‌ای UO_2 زینتر شده نیز کم و بیش دارای تخلخل هستند. این تخلخل‌ها تا حدودی کروی و در اندازه‌های متفاوتی هستند. اگر تخلخل باز قرص‌های UO_2 حتی پس از زینتر بالا با شد، طی نقل و انتقال و انبارداری از محیط رطوبت جذب می‌کنند. رطوبت جذب شده تو سط قرص هنگام استفاده از آن در راکتور موجب شکست غلاف می شود. به همین علت از منظر هیدراته شدن نیاز است تا آنجایی که

www.SID.ir

امکان دارد میزان تخلخل باز قرص زینتر شـــده کم و مقدار چگالی بالا باشـــد [۷]. یکی دیگر از راهکارها برای کاهش تخلخل باز افزایش مدت زمان زینتر قرص اســـت. با افزایش زمان زینتر، قطر میانگین تخلخل افزایش ولی تعداد آن‌ها کاهش پیدا می‌کند. در نتیجه سطح تخلخل‌های بازی که مستقیماً قرص را در معرض محیط قرار می‌دهند کم می شود و شدت هیدراته شدن قرص‌ها کاهش می‌یابد.

تخلخل اولیه قرص زینتر شده سوخت هسته‌ای نقش اساسی در کاهش تغییرات ابعادی قرص در درون راکتور دارد. اگر مقدار تخلخل بالا باشد در اثر حرارت بالایی که در راکتور ایجاد می‌شود، قرص منقبض شده و متراکم می‌شود. همچنین در صورتی که مقدار آن کم باشد فضای کافی برای قرارگیری محصولات شکافت در اختیار نخواهد بود و موجب تورم قرص خواهد شد. تورم قرص کرنش‌هایی را بر روی غلاف ایجاد می‌کند که ممکن است باعث شکست آن و در نتیجه آزاد سازی ماده رادیواکتیو به درون خنک‌کننده شود. از طرف دیگر تراکم قرص نیز باعث ایجاد شکاف‌هایی در ستون قرص سوخت می شود که ممکن است باعث تغییراتی در انتقال حرارت یا شکست غلاف شود [۳-۱]. تخلخل‌های اولیه‌ای که پس از زینتر درون قرص سوخت هسته‌ای باقی می‌مانند در هنگام استفاده از این قرص‌ها درون راکتور در اثر حرارت ایجادی درون شبکه خرد شده و به اندازه‌های کوچک‌تر حتی در اندازه اتمی تبدیل و در شبکه حل می‌شود. درنهایت به دلیل افزایش غلظت اتم‌های گازی حاصل از شکافت هسته‌ای در درون شبکه سوخت، مجدداً تخلخل‌ها با ساختار جدیدی درون قرص جوانه‌زنی و رشد می‌کنند [۱۰-۸].

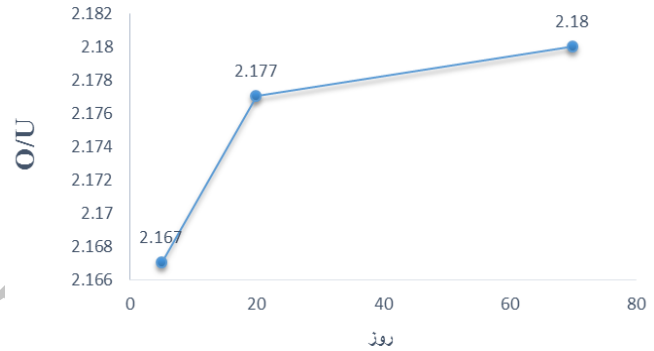
روش کار:

برای بررسی اکسید یا هیدراته شدن قرص UO_2، نمونه‌هایی از آن را به صورت خام برای زمان‌های مختلف در شرایط محیطی نگهداری و سپس میزان جذب رطوبت و تغییرات نسبت اکسیژن به اورانیوم قرص مطابق استاندارد ASTM C 696 و با استفاده از دستگاه آنالیز شیمیایی ICP-OES اندازه‌گیری گردید. همچنین قرص‌های سوخت هسته‌ای UO_2 با استفاده از افزودنی اکسید کروم در اتمسفرهای با نقاط شبنم ۱۰- و ۳۰- و در دمای ۱۷۰۰ °C و در مدت ۶ ساعت زینتر شدند. چگالی و تخلخل نمونه‌ها بر اساس اصل ارشمیدس و با غوطه‌وری در آب و مطابق استاندارد ISO-9278 و تصاویر میکروسکوپ الکترونی با استفاده از SEM تهیه گردید.

نتایج و بحث:

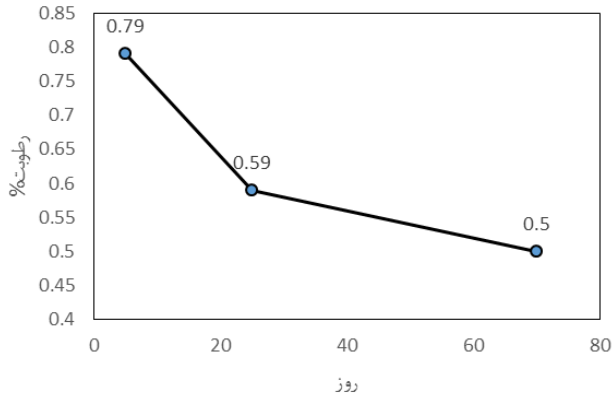
Archive of SID
www.SID.ir

شکل ۲ تغییرات نسبت اکسیژن به اورانیوم و شکل ۳ میزان جذب رطوبت توسط قرص‌های خام را نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشخص است نسبت اکسیژن به اورانیوم نسبت به مدت زمان نگهداری افزایش ولی میزان جذب رطوبت کاهش می‌یابد. این تغییرات برای زمان‌های اولیه نسبت به زمان‌های طولانی‌تر شدیدتر است. از مجموع تخلخل باز و بسته قرص سوخت هسته‌ای هر چه مقدار تخلخل باز کم باشد بهتر است. شکل ۴ تغییرات تخلخل باز و بسته قرص‌های زینتر شده را برای شرایط مختلف اتمسفر و در صدهای مختلف افزودنی نشان می‌دهد. در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- مقدار تخلخل باز دارای کمترین مقدار و با افزایش اکسید کروم تا ۰/۲ ٪ وزنی میزان آن کاهش و پس از آن با افزایش افزودنی میزان آن افزایش می‌یابد. در این اتمسفر مقدار تخلخل بسته تقریباً دارای بیشترین مقدار و افزایش کروم تأثیری بر روی آن ندارد. در اتمسفر زینتر با نقطه شبنم ۳۰- مقدار تخلخل باز بیشتر از اتمسفر قبلی است و افزایش در صد وزنی کروم بر روی این تخلخل تأثیری ندارد. البته مقدار تخلخل بسته آن نیز بیشترین مقدار است که با افزایش کروم به صورت جزئی کاهش می‌یابد. همواره برای هر دو حالت زینتر تخلخل‌های بسته نسبت به تخلخل‌های باز با اختلاف ۴٪ بیشتر بوده‌اند.



شکل (۲): تغییرات نسبت اکسیژن به اورانیوم برای فواصل زمانی مختلف قرص خام UO_2.

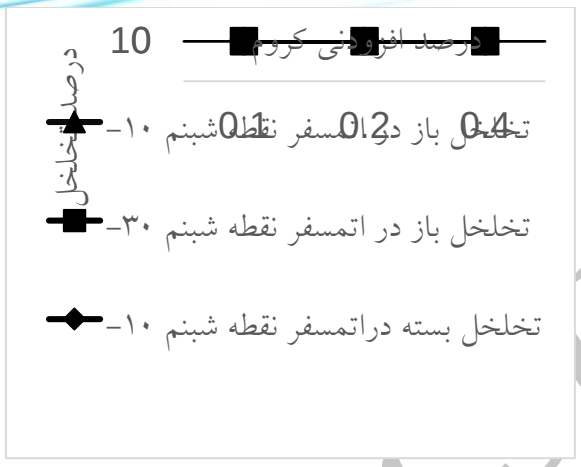
www.SID.ir



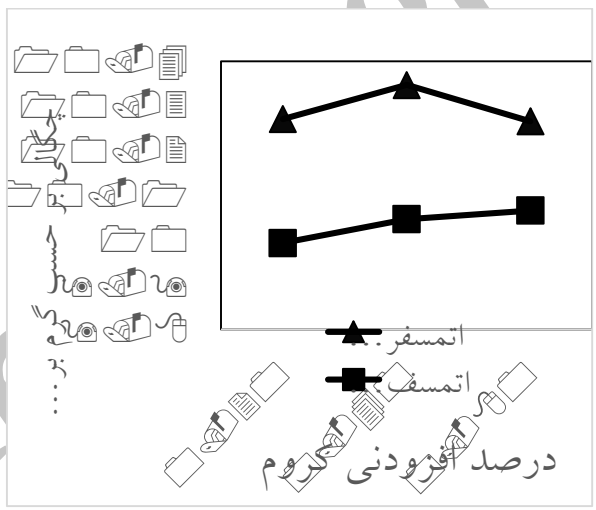
شکل(۳): مقدار تغییرات رطوبت جذب شده برای فواصل زمانی مختلف قرص خام UO_2.

شکل ۵ نشان می‌دهد چگالی قرص زینتر شده در شرایط زینتر در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- بیشتر است. در نقطه شبنم ۱۰- ، با افزایش در صد وزنی کروم تا ۰/۴ چگالی افزایش یافته ولی در مقادیر بیشتر کاهش پیدا می‌کند. در حالی‌که در نقطه شبنم ۳۰- با افزایش درصد وزنی چگالی به‌صورت خطی افزایش می‌یابد. از نمونه با بالاترین چگالی و کمترین تخلخل باز با مقدار افزودنی ۰/۴ در صد افزودنی Cr_2O_3 تصاویر میکروسکوپ الکترونی تهیه و در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌گونه که مشخص است در مقایسه با نمونه بدون افزودنی اندازه دانه‌ها به مقدار زیادی رشد کرده و اندازه خیلی از آن‌ها از ۵۰ میکرون بیشتر است. همچنین تخلخل‌های ریز در حد یک و دو میکرون و همچنین تخلخل‌های بزرگ‌تر در مرزدانه‌ای قابل مشاهده است. نتایج حاصل از زینتر در اتمسفر حاوی بخار آب با نقطه شبنم ۱۰- نشان می‌دهد که قرص‌های با اندازه دانه بالا تخلخل‌های بسته نسبتاً بزرگی را نیز دارد. چون اندازه دانه قرص‌ها بزرگ هست میزان متراکم شوندگی آن در درون راکتور در اثر افزایش دما خیلی ناچیز خواهد بود.

Archive of SID
www.SID.ir

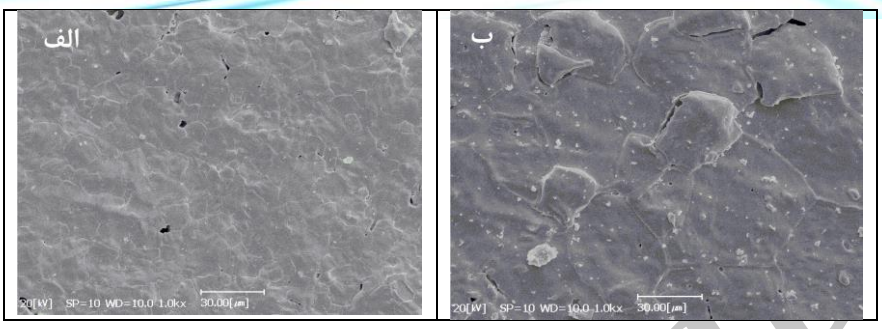


شکل (٤): تغییرات درصد تخلخل‌های باز و بسته را نسبت به مقادیر مختلف افزودنی کروم.



شکل (٥): تغییرات چگالی قرص‌های زینتر شده UO_2 برحسب مقدار افزودنی را نشان می‌دهد.

www.SID.ir



شکل (٦): تصویر میکروسکوپ الکترونی از ریزساختار UO_2 زینتر شده الف) بدون افزودنی ب) حاوی ۰/٤ درصد وزنی افزودنی اکسید کروم

نتیجه‌گیری:

این مطالعه مشخص می‌کند که بهتر است حجم تخلخل‌های قرص سوخت هسته‌ای برای جلوگیری از مشکلات اکسید و هیدراته شوندگی و همچنین تغییرات ابعادی قرص درون راکتور کم باشد ولی برای اینکه به‌عنوان فضایی برای قرار گرفتن محصولات ناشی از واکنش شکافت هسته‌ای است نیز بایستی یک حالت بهینه‌ای در محدوده ۴ الی ۶ درصد درون قرص سوخت هسته‌ای تخلخل داشته باشیم تا از تورم قرص جلوگیری شود. هرچه تعداد تخلخل‌ها کمتر ولی حجمشان بزرگ‌تر باشد، شرایط بهتری برای قرص سوخت هسته‌ای مهیا خواهد شد. چون در غیر این صورت مساحت سطح تماس با محیط بیشتر می‌شود و باعث مسائل اکسید یا هیدراته شوندگی حتی در قرص‌های زینتر شده اگرچه به مقدار کم می‌شود.

در این کار به کمک افزودنی اکسید کروم در مقدار بهینه ۰/۴ درصد وزنی یک ساختار میکروسکوپی درشت‌دانه توأم با تخلخل‌های بزرگ به دست آمد. نمونه‌های زینتر شده در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- نسبت به اتمسفر ۳۰- دارای تخلخل کمتر و چگالی بالاتری برخوردار بودند. همچنین نمونه‌های زینتر شده در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- دارای نسبت تخلخل باز به بسته پایین‌تری بودند. بنابراین شرایط بهینه زینتر در اتمسفر با نقطه شبنم ۱۰- بود.

مراجع:

1. A. R. Massih, K. Forsberg, "Calculation of grain boundary gaseous swelling I UO_2", Journal of Nuclear Materials 377 (2008) 406-408.
2. J. Spino, J. Rest, W. Goll, C. T. Walker, "Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO_2 fuels at high burn up", Journal of Nuclear Materials, 346 (2005) 131-144.
3. L. Bourgeoise, Ph. Dehaudt, C. Lemaignan, J. P. Fredic, "Pore migration in UO_2 and grain growth kinetics", Journal of Nuclear Materials, 295 (2001) 73-82.

Archive of SID
www.SID.ir

4. Yang-Hyun Koo, Byung-Ho Lee, Jin-Sik Cheon, Dong-Seong Sohn, "Pore pressure and swelling in the rim region of LWR high burn up UO_2 fuel", Journal of Nuclear Materials, 295 (2001) 213-220.
5. C. Y. Joung, S. C. Lee, S. H. Kim, H. S. Kim, D. S. Sohn, "Fabrication method for UO_2 pellets with large grains or a single grain by sintering in air", J. Nucl. Mater. 375 (2008), 209-212.
6. J. Y. Colle, J. P. Hiernaut, D. Papaioannou, C. Ronchi, A. Sasahara, "Fission product release in high-burn-up UO_2 oxidized to U_3O_8", J. Nucl. Mater.348 (2006) 229-242.
7. Chubb,"Nuclear fuel pellet design to minimize dimensional Changes", United State Patent NO.4,094,738, France, (1978).
8. V. V. Rondinella and T. Wiss, "The high burn-up structure in nuclear fuel", materials today, 13 [12] (2010) 24-32.
9. P. Blair , "Modelling of fission gas behavior in high burn up nuclear fuel", Doctoral THÈSE No 4084 (2008).
10. Yang-Hyun Koo, Je-Yong Oh, Byung-Ho Lee, Dong-Seong Sohn, "Three-dimensional simulation of threshold porosity for fission gas release in the rim region of LWR UO_2 fuel", Journal of Nuclear Materials 321 (2003) 249–255.

Archive of SID

www.SID.ir