

การพัฒนากระบวนการโซล-เจลโดยวิธีอินเทอร์นอดเจเลชัน
เพื่อใช้ในการผลิตเบ็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์ ไมโครสเฟียร์



นางสาวนิภาวรรณ ปรมาศิกุล

วิทยานิพนธ์นี้ เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

ภาควิชาวิศวกรรมเครื่องกลและเทคโนโลยี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย


พ.ศ. 25๕๙

ISBN 974-566-325-5

013199

115988559.

DEVELOPMENT OF A SOL-GEL PROCESS BY INTERNAL
GELATION FOR PRODUCTION OF UO_2 MICROSPHERES



Miss Nipavan Poramatikul

A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of Master of Engineering

Department of Nuclear Technology

Graduate School

Chulalongkorn University

1986

หัวข้อวิทยานิพนธ์

การพัฒนากระบวนการโซล-เจล โดยวิธีอินเทอร์นอล เจล เลชั่น

เพื่อใช้ในการผลิตเมมเบรนเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์ ไมโคร เซฟิเยร์

โดย

นางสาวนิภาวรรณ ปรมาริกุล

ภาควิชา

นิวเคลียร์เทคโนโลยี

อาจารย์ที่ปรึกษา

ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปลัมภ์



บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้บัณฑิตวิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการ
ศึกษาตามหลักสูตรปริญญาวิทยาศาสตรบัณฑิต

.....
(รองศาสตราจารย์ ดร. สรชัย พิศาลบุตร)
รักษาการในตำแหน่งรองคณบดีฝ่ายวิชาการ
ปฏิบัติราชการแทนรักษาการในตำแหน่งคณบดีบัณฑิตวิทยาลัย

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

.....
(ศาสตราจารย์ สุวรรณ แสงเพ็ชร) ประธานกรรมการ

.....
(ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปลัมภ์) กรรมการ

.....
(อาจารย์ ศิริวัฒนา ไทรสมบูรณ์) กรรมการ

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การพัฒนากระบวนการไซล-เจล โดยวิธีอินเทอร์สอล เจลเลชัน
 เพื่อให้ในการผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์ ไมโครสเฟียร์
 ชื่อผู้ผลิต นางสาวนิภาวรรณ ปรมาธิกุล
 อาจารย์ที่ปรึกษา ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุบลัมภ์
 ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี
 ปีการศึกษา 2528



บทคัดย่อ

ได้ศึกษาเทคนิคต่าง ๆ ของกระบวนการไซล-เจล เพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์โดยวิธีอินเทอร์สอล เจลเลชัน ตามกระบวนการนี้หยดบรอตผ่านหลอดรูคืบแล้วเกิดเป็นเจลไมโครสเฟียร์ การทดลองได้รวมถึงการหาเทคนิคในการเตรียมบรอต เจื่อนไซต่าง ๆ เพื่อเพิ่มอัตราเร็วของการหยดบรอตให้ทันกับอายุการเก็บ ศึกษาถึงขนาดของไมโครสเฟียร์ที่ได้จากการหยดอย่างอิสระผ่านหลอดรูคืบขนาดต่าง ๆ การใช้น้ำหนักกดและการใช้ก๊าซดัน หาเงื่อนไขในการล้างไมโครสเฟียร์ การทำให้แห้ง ตลอดจนการเผาประสานเพื่อให้ได้ไมโครสเฟียร์ที่มีความหนาแน่นสูง

จากการทดลองโดยใช้บรอตที่มีความเข้มข้น 1.25 โมลของยูเรเนียมคอลลิดร ผ่านท่อรูคืบขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 0.9, 0.8, 0.7, 0.6, 0.5 และ 0.45 มิลลิเมตร หยดโดยอิสระ ใช้น้ำหนัก 100, 200, 300, 400 และ 500 กรัมกดลงบนกระบอกลดขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 1.5 เซนติเมตร หรือใช้ก๊าซไนโตรเจน 0.2, 0.5, 0.7 และ 0.9 ลิตร/นาที ดันลงในคอลัมน์เส้นผ่าศูนย์กลาง 2.5 เซนติเมตร สูง 2 เมตร บรรจุด้วยโครคลอไรเอทิลีนผสมสเปน-80 ร้อยละ 0.02 ให้ความร้อนแก่คอลัมน์ 2 ช่วงที่ 68-70⁰ เซลเซียส หลังจากล้างทำให้แห้งและเผาประสานในบรรยากาศของอาร์กอนผสม 4 เปอร์เซ็นต์ของก๊าซไฮโดรเจนที่อุณหภูมิ 1200⁰ เซลเซียส ปริมาณคาร์บอนลดลงจากร้อยละ 10 เหลือร้อยละ 0.1 อัตราส่วนของ O/U เท่ากับ 2.0-2.05 ความหนาแน่นอยู่ในช่วงร้อยละ 76-80 ของค่าทฤษฎี ขนาดของเส้นผ่าศูนย์กลางไมโครสเฟียร์อยู่ในช่วง 300-1000 ไมโครเมตร

Thesis Title Development of a Sol-Gel Process by Internal Gelation
for Production of UO_2 Microspheres.
Name Miss Nipavan Poramatikul
Thesis Advisor Assistant Professor Chyagrit Siri-Upathum
Department Nuclear Technology
Academic Year 1985



ABSTRACT

Preparation of UO_2 -microspheres by sol-gel processes were studied. The internal gelation process was selected to produce the microspheres by using the capillary nozzle of various sizes, exerting pressure on syringe both by weight and N_2 -gas pressure for the drop formation. The conditions for increasing the rate of formation and sizes of microspheres were also studied together with washing, drying and sintering of the microspheres.

The optimum condition for microspheres formation were as follows: broth concentration 1.25 mole U/liter, free-forming by capillary of 0.45-0.9 mm. diameter, purging with 0.2-0.9 l/min N_2 -gas, column diameter of 2.5 cm. and 200 cm. height filled with trichloroethylene mixed with 0.02 % Span 80 and heat to 68-70°C gave the microspheres of 300-1000 μm diameter which collected at the bottom of the column. After washing drying and sintering in Ar-4 % H_2 at 1200°C the carbon content of the product were reduced from 10 % to 0.1 % and the ratio of O to U were 2.0-2.05, the maximum density were 80 % Theoretical Density.



กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบพระคุณศาสตราจารย์ สุวรรณ แสงเพชร คุณดาราภานต์ มงคลพันธุ์ (ผู้อำนวยการกองผลิตไอซีไทย สำนักงานพลังงานปรมาณูเพื่อสันติ (พปส) กระทรวงวิทยาศาสตร์เทคโนโลยีและการพลังงาน) ที่กรุณาให้การสนับสนุน ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์ อาจารย์ สุพิชชา จันทร์โยธา ที่กรุณาให้คำปรึกษาแนะนำ คุณปฐม แทยม เกตุ (ผู้อำนวยการกองขจัดกากกัมมันตรังสี สำนักงาน พปส.) ผู้ช่วยศาสตราจารย์ สุวิทย์ ภูผณชัยยะ คุณพิทักษ์ ทองคง คุณแสงว เกิดปฐม คุณวรรธน์ แก้วนิล ที่กรุณาให้ความอนุเคราะห์ในเรื่องเครื่องมือและขอขอบคุณข้าราชการกองผลิตไอซีไทย สำนักงาน พปส. ที่ให้ความอนุเคราะห์จนวิทยานิพนธ์ฉบับนี้สำเร็จลุล่วง

สุดท้ายผู้เขียนขอขอบคุณบัณฑิตวิทยาลัยที่ได้ทุนอุดหนุนงานวิจัยนี้

ศูนย์วิทยทรัพยากร
จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย



สารบัญ

ช

หน้า

บทคัดย่อภาษาไทย	ง
บทคัดย่อภาษาอังกฤษ	จ
กิตติกรรมประกาศ	ฉ
สารบัญ	ช
สารบัญตาราง	ญ
สารบัญรูปประกอบ	ฎ
บทที่	
1. บทนำ	1
1.18 ประวัติความเป็นมา	1
1.2 แนว เหตุผลทฤษฎีที่สำคัญหรือสมมติฐาน	2
1.3 วัตถุประสงค์ของการวิจัย	4
1.4 ขอบ เขตของการวิจัย	4
1.5 ประโยชน์ที่จะได้รับจากการวิจัย	4
2. การศึกษาด้านทฤษฎี	6
2.1 เซรามิก	6
2.2 ขั้นตอนต่าง ๆ ของกระบวนการโซล-เจล	8
2.3 การนำวิธีหาค่ามาใช้เพื่อให้ได้เจล-สเฟียร์-แพค	12
2.3.1 การใช้น้ำหนักกด	12
2.3.2 การใช้ลาร์มินาร์ เบรคคัพของเจท	14
2.3.3 เครื่องมือที่ใช้ในลาร์มินาร์ เจท เบรคคัพ	15
2.3.4 เทอร์บูเลนท์ เบรคคัพ ด้วย 2-ฟลูออไรด์ นอซซิล ..	19
3. กระบวนการโซล-เจลโดยวิธีต่าง ๆ	22
3.1 วอเตอร์ เอ็กซ์แทรกชัน	22
3.1.1 การเตรียมโซล	23
3.1.2 การเตรียมสเฟียร์และเจลเลน	25

บทที่

3.1.3	การทำให้แห้งและเผาประสาน	26
3.1.4	การประยุกต์ใช้กับ UO_2	27
3.2	เอ็กซ์เทอร์นอล เคมีคอล เจเลชัน	35
3.2.1	การเตรียมโซล	35
3.2.2	การทำให้เกิดสเฟียร์และเจเลชัน	36
3.2.3	เอจิงก์ การล้างและการดึงน้ำออก	37
3.2.4	การทำให้แห้ง	38
3.2.5	การเผาและการเผาประสาน	38
3.2.6	การประยุกต์ใช้กับ UO_2	39
3.3	อินเทอร์นอล เคมีคอล เจเลชัน	41
3.3.1	กระบวนการโซล-เจลโดยอินเทอร์นอล เจเลชันที่ KEMA	...	41
3.3.2	กระบวนการโซล-เจลโดยอินเทอร์นอล เจเลชันที่ KFA	...	52
4.	วัสดุและเครื่องมือที่ใช้ในการทดลอง	59
4.1	วัสดุ	59
4.2	เครื่องมือและเครื่องแก้ว	61
5.	การดำเนินการทดลอง	63
5.1	การเตรียมบรอต	63
5.2	การเตรียมไมโครสเฟียร์	65
5.3	การล้างไมโครสเฟียร์	67
5.4	การทำให้แห้ง	68
5.5	การเผาที่อุณหภูมิสูงและเผาประสาน	68
5.6	การวิเคราะห์ความเข้มข้นของยูเรเนียมใน ADUN	69
5.7	การคำนวณหาค่าความหนาแน่นของ UO_2 ไมโครสเฟียร์	73
5.8	การคำนวณเส้นผ่าศูนย์กลางโดยเฉลี่ยของหยดบรอต	75
5.9	การทำอัตราส่วนของ O/U	75

สารบัญ (ต่อ)

หน้า

บทที่

6.	ผลการทดลอง		
6.1	ชั้นเตรียมบรอต	83
6.2	ชั้นเตรียมไมโครสเฟียร์	83
6.3	ชั้นการล้าง	84
6.4	ชั้นทำให้แห้ง	84
6.5	ชั้นเผาประสาน	84
7.	สรุปผลการทดลองและข้อ เสนอแนะ	100
7.1	ชั้นการ เตรียมบรอต	100
7.2	ชั้นการทำไมโครสเฟียร์	100
7.3	ชั้นการล้าง ทำให้แห้งและเผาประสาน	101
7.4	ชั้นการวิเคราะห์ขนาดของไมโครสเฟียร์	101
7.5	ชั้นการวิเคราะห์ปริมาณคาร์บอน	102
7.6	ชั้นการวิเคราะห์อัตราส่วนของ O/U	102
7.7	ชั้นการวิเคราะห์ความหนาแน่นของ UO ₂ ไมโครสเฟียร์	...	102
7.8	การ เปรียบ เทียบผลจากกระบวนการไซล-เจล โดยอินเทอร์นอล- เจล เลชันกับดีไฮเดรชัน	102
7.9	ข้อ เสนอแนะ	103
	เอกสารอ้างอิง	104
	ภาคผนวก	108
	ประวัติผู้เขียน	127

สารบัญตาราง

หน้า

ตารางที่

2.1	อัตราเร็วของการเกิดหยดเมื่อพ่นแบบเทอร์บูเลนซ์ ด้วย 2-ฟลูออโรนอซซัล	21
3.1	การกระจายตัวของขนาดของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ที่ได้จาก นอนฟลูอิดิซโคลัมน์	32
6.1	แสดงจำนวนและค่าร้อยละของขนาด เส้นผ่าศูนย์กลางของ ยูเรเนียมไมโครสเฟียร์	85
6.2	แสดงอัตราการไหลของบรอตผ่านท่อรัศมีขนาดต่าง ๆ ...	86
6.3	แสดงข้อมูลอัตราการหยดของบรอตที่เวลาต่าง ๆ ...	88
6.4	แสดงอัตราการไหลของบรอต เมื่อใช้น้ำหนักขนาดต่าง ๆ กัน ...	90
6.5	แสดงสภาวะการล้าง การทำให้แห้ง การเผาประสาน และร้อยละของคาร์บอน	92
6.6	แสดงอัตราส่วนของ O/U	93
6.7	แสดงเส้นผ่าศูนย์กลางของหยดบรอต ไมโครสเฟียร์และจำนวน เท่าของการหดตัว	94
6.8	แสดงค่าความหนาแน่นของไมโครสเฟียร์	95
6.9	แสดงข้อมูลการหาสภาวะที่เหมาะสมในการวิเคราะห์ O/U ...	96

สารบัญรูปประกอบ

รูปที่	หน้า
1.1 แสดงขั้นตอนการทดลอง	5
2.1 แสดงการระเหยของน้ำและแอมโมเนียเมื่อให้ความร้อน	11
2.2 แสดงเครื่องมือลาร์มินาร์เจทเบอร์คัท	16
2.3 แสดงเครื่องมือทำให้เกิดหยดในก๊าซโดยไม่ต้องมีฟลูอิดช่วยพาลงมา ..	16
2.4 เครื่องดีสเพอสโซลหรือบรอก	18
3.1 แสดงไมโครสเฟียร์ที่ได้จากวอดเดอเอ็กซ์แทรกชัน	33
3.2 แสดงแผนผังอย่างง่ายของกระบวนการเอ็กซ์เทอร์นอลเคมีคอลเจเลชัน .	34
3.3 แสดงกระบวนการผลิตอย่างต่อเนื่องของกระบวนการ SNAM	33
3.4 แสดงแผนผังกระบวนการอินเทอร์นอลเคมีคอลเจเลชัน	45
3.5 แสดงเครื่องมือที่ใช้ทำสเฟียร์ของ KFA	53
3.6 แสดงแผนผังกระบวนการโซลเจลของ KFA	56
3.7 แสดงไมโครสเฟียร์ที่ผลิตได้จากกระบวนการโซล-เจลของ KFA ..	57
3.8 แสดง UO_2 ไมโครสเฟียร์ที่ได้จากการเผาที่ 1250° เซลเซียสใน บรรยากาศของ Ar-4 % H_2	58
5.1 แสดงเครื่องมือดีสเพอส	77
5.2 แสดงคอลัมน์ปลายปิดที่พันด้วยลวดความร้อน	78
5.3 แสดงเครื่องควบคุมอุณหภูมิ	78
5.4 แสดงอุปกรณ์ส่งสัญญาณไปยังเครื่องควบคุมอุณหภูมิ	79
5.5 แสดงภาชนะเก็บไมโครสเฟียร์	79
5.6 แสดงการเกิดหยดบรอกจนได้ เจลสเฟียร์ในคอลัมน์บรรจุด้วย ไตรคลอโรเอทอีลิน	80
5.7 แสดงเครื่องมือทำให้แห้งโดยมีไอน้ำผ่าน	81
5.8 แสดงภาชนะใส่ไมโครสเฟียร์ที่จะนำไปเผา	81
5.9 แสดงเครื่องมือเผาสารตัวอย่างในบรรยากาศของ Ar-4 % H_2 ..	82
5.10 แสดงเตาเผาประสานเพื่อเพิ่มความหนาแน่น	82

สารบัญรูปประกอบ (ต่อ)


รูปที่

หน้า

6.1	แสดงความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการไหลของบรอกกับ เส้นผ่าศูนย์กลางของท่อรูตีบ	87
6.2	แสดงอัตราการเกิดหยดที่เวลาต่าง ๆ เมื่อใช้ท่อรูตีบขนาดต่างกัน ..	89
6.3	แสดงความสัมพันธ์ระหว่างอัตราการไหลของบรอกกับน้ำหนักที่ใช้กด ..	91
6.4	แสดงการหาระยะเวลาที่เหมาะสมในการวิเคราะห์อัตราส่วนระหว่างออกซิเจนกับยูเรเนียมโดยการเผา	97
6.5	แสดงภาพไมโครสเฟียร์ที่แตก	98
6.6	แสดงภาพ UO ₂ ไมโครสเฟียร์ที่ได้จากการใช้ก๊าซดัน	98
6.7	แสดง UO ₂ ไมโครสเฟียร์ที่ได้จากการทดลอง	99
8.1	แสดงแผนผังกระบวนการเอช	109
8.2	แสดงพฤติกรรมของ UO ₃ สเฟียร์ระหว่างให้ความร้อนในบรรยากาศของ Ar-4 % H ₂	110
8.3	แสดง UO ₂ และ UC ₂ ไมโครสเฟียร์ที่เตรียมได้จากกระบวนการเอช .	111
9.1	แสดง UO ₂ เพลลเล็ตในบริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อนเป็น 720 วัตต์/เซ็นติเมตร	119
9.2	แสดง Fuse UO ₂ ในบริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อน 700 วัตต์/เซ็นติเมตร	119
9.3	แสดง Electrolytic UO ₂ บริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อน 700 วัตต์/เซ็นติเมตร	119
9.4	แสดง Fuse UO ₂ บริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อน 590 วัตต์/เซ็นติเมตร	120
9.5	แสดง Fuse UO ₂ บริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อน 640 วัตต์/เซ็นติเมตร	120
9.6	แสดง Fuse UO ₂ บริเวณที่มีค่าการเพิ่มความร้อน 780 วัตต์/เซ็นติเมตร	120
9.7	แสดงเชื้อเพลิงแบบ Electrolytic UO ₂ อายริงส์ใน HD-HFR loop	121
9.8	แสดงการเปรียบเทียบเชื้อเพลิง UO ₂ แบบ Fused และแบบโซล-เจล	122

สารบัญรูปประกอบ (ต่อ)

รูปที่	หน้า
9.9 แสดงการเปรียบเทียบเชื้อเพลิง UO_2 แบบ Fused และแบบโซล-เจล ในบริเวณที่มีการเพิ่มความร้อน 750 วัตต์/เซ็นติเมตร	122
9.10 แสดงการเปรียบเทียบเชื้อเพลิง UO_2 แบบ Fused และแบบโซล-เจล ในบริเวณที่มีการเพิ่มความร้อน 915 วัตต์/เซ็นติเมตร	123
9.11 แสดงภาพตัดตามขวางของ UO_2 โซล-เจล	124
9.12 แสดง UO_2 โซล-เจลที่บริเวณผิวของแคลคดิ่ง	124



 ศูนย์วิจัยทรัพยากร
 จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย