

YILDIZ TEKNİK ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**UO₂-GD₂O₃ NÜKLEER YAKIT PELETLERİNDE
GADOLİNYUM MİKTARIYLA MİKROYAPI VE YOĞUNLUK
DEĞİŞİMİNİN DÜŞÜK SICAKLIK SİNERLEMESİNDE
İNCELENMESİ**

Metalurji Müh. Ahmet YAYLI

F.B.E. Metalurji Mühendisliği Malzeme Bilim Dalında
hazırlanan

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Tez Danışmanı : Prof.Dr. Müzeyyen MARŞOĞLU

İSTANBUL , 1995

YÜKSEKÖĞRETİM KURULU
MÜHÜRÜ

İÇİNDEKİLER	Sayfa No
TEŞEKKÜR	
TÜRKÇE ÖZET	
İNGİLİZCE ÖZET	
1.0. GİRİŞ	1
1.1. Gadolinyumun Nötronik Özellikleri	3
2.0. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ TİPİ NÜKLEER YAKIT ÜRETİMİ	3
2.1. Fabrikasyon Prosesleri	3
2.1.1. Sol-Gel ve Birlikte Çöktürme	4
2.1.2. Toz Hazırlama	5
2.1.3. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ Peletlerinin Sinterlenmesi	5
2.1.4. $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ Katı Eriyiğin Yapısı	10
2.1.5. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ Peletlerinde Kalite Kontrol	13
3.0. DENEYLER	18
3.1. Tozların Hazırlanması	18
3.2. Tozların Preslenmesi	23
3.3. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ Peletlerinin Düşük Sıcaklık Sinterlemesi	23
3.4. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ Peletlerinde Mikroyapı İncelemeler	28
4.0. SONUÇLAR ve TARTIŞMA	32
KAYNAKLAR	34

TEŞEKKÜR

Bu tez çalışmasının hazırlanmasında başta Sayın hocam Prof. Dr. Müzeyyen MARŞOĞLU'na ve burada isimlerini yazamadığım tüm yardım ve emeği geçenlere teşekkürü bir borç bilirim.

Ahmet YAYLI



ÖZET

Nükleer reaktörlerin verimliliğini arttırmak için nükleer yakıtla beraber yanabilen-soğurucular kullanılmaktadır. Nükleer reaktörlerde yanabilen-soğuruculardan en önemlilerinden birisi gadolinyumdur. Gadolinyum özellikle UO_2 tipi oksit yakıtlarla beraber kullanılmaktadır.

Gadolinyumun çok yüksek nötron soğurabilme ve aynı zamanda nükleer reaktörlerde yanabilme özelliğinden yararlanılmaktadır. $UO_2-Gd_2O_3$ nükleer yakıt peletlerinin hazırlanmasında saf UO_2 peletlerinde olduğu gibi toz metalurjisi teknikleri kullanılmaktadır. Saf UO_2 peletlerinin sinterlenmesi bugünkü seramik nükleer yakıt üretimi teknolojilerinde yüksek sıcaklıkta (indirgen atmosferde) ve düşük sıcaklıkta (kısmen oksitleyici atmosferde) yapılmaktadır. $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde ise bugün yüksek sıcaklıkta sinterleme yapılmaktadır. Bu yüksek lisans çalışmasındaysa $UO_2-Gd_2O_3$ seramik nükleer yakıt peletleri toz metalurjisi teknikleriyle hazırlandıktan sonra % Gd_2O_3 miktarıyla mikroyapı ve yoğunluk değişimleri düşük sıcaklık sinterlemesinde incelenerek sonuçların irdelemesi yapıldı.

%0-10 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinin düşük sıcaklıkta $1150^\circ C$ 'de CO_2 atmosferinde sinterlemesi yapılarak yoğunluk ve mikroyapısal değişikliklerin Gd_2O_3 miktarıyla olan ilişkileri araştırıldı. Gd_2O_3 miktarı arttıkça yoğunluklar hızla düşmeye başladı. Bunun yanında düşük sıcaklık sinterlemesiyle elde edilen $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde mikroyapı incelemelerinde UO_2 alanlarının toplam alana olan oransal değerlerindeki düşüş Gd_2O_3 miktarının artış oranından çok daha fazla oldu.

Literatürdeki çalışmalarda $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinin $1200^\circ C$ 'nin üzerinde oluşmaya başladığı belirtilmektedir (Yuda et al. 1991). Bu Yüksek Lisans Tezi çalışmasında da yapılan incelemelerde düşük sıcaklık sinterlemesiyle elde edilen $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde katı eriyik oluşumu gerçekleşmemiştir. Ancak aynı oranlarda Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinin yüksek sıcaklık sinterlemesinde ise hem katı eriyik oluştu hem de yoğunluklar $>95\%$ teorik yoğunlukların üzerinde gerçekleşti. Bu nedenle $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde düşük sıcaklık sinterlemesinde istenilen yoğunluklara erişebilmek için ancak %2'nin altındaki Gd_2O_3 oranlarında gerçekleştirilebileceği görüldü.

ABSTRACT

In order to increase the productivity of a nuclear reactor burnable neutron absorbers are being used. The most important burnable neutron absorber is gadolinium. Gadolinium is used especially with the UO_2 type ceramic fuels. In these applications gadolinium is preferred because it has a large neutron absorption cross section and it is a very good burnable material in nuclear reactors.

The preparation technology of $\text{UO}_2 - \text{Gd}_2\text{O}_3$ pellets is powder metallurgy techniques which is the routine process for the preparation of the pure UO_2 pellets. Currently the sintering of the pure UO_2 pellets are carried out either at high temperature under a reducing atmosphere or relatively lower temperature under a partially oxidizing atmosphere. Commercially $\text{UO}_2 - \text{Gd}_2\text{O}_3$ pellets are sintered only at high temperatures. In this thesis $\text{UO}_2 - \text{Gd}_2\text{O}_3$ nuclear fuel pellets are obtained using the powder metallurgy techniques and low - temperature sintering method is applied, then microstructures and density variations with respect to % Gd_2O_3 is studied, the results are discussed.

UO_2 pellets with Gd_2O_3 content of 0-10% are sintered under CO_2 atmosphere at 1150°C (low temp. sintering) and changes in microstructures and densities depending on Gd content are investigated. Increasing Gd_2O_3 content caused a rapid decrease of density. Microstructure studies showed that decrease in the ratio UO_2 area to the total area was higher than the increase of Gd_2O_3 area. It is acited in literature that $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ solid solution starts forming over temperatures 1200°C (Yuda et. al.). In this study there was no formation of solid solution at low temperature sintered $\text{UO}_2 - \text{Gd}_2\text{O}_3$ pellets. The pellets with the same ratio Gd_2O_3 content were subjected to high temperature sintering for comparison solid solutions were formaed and densities of high temperature sintered pellets reached values of $>95\%$ theoretical density. Therefore to reach the desired densities using low temperature sintering it was seen that using powders with Gd_2O_3 content lower than 2% was necessary.

1.0. GİRİŞ

Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı (UAEA) programlarında nükleer yakıt fiyatlarının, yanmış yakıt atıklarının azaltılması, yakıtın yanma oranının ve ömrünün artırılması en önemli noktalar olarak ele alınmıştır WREBUS (1992).

Yakıtlardaki yanma oranlarının artırılmasıyla nükleer enerji üretim oranları artmakta dolayısıyla üreticinin toplam elektrik kapasitesi artmaktadır. Kısaca yanabilir soğurucuların nükleer yakıtlarla birlikte kullanımıyla nükleer yakıtların kontrollü yakılması neticesinde daha verimli yakıt ekonomisi elde edilmektedir.

Sıvı nötron soğurucularının kullanılmasında bazı problemler ortaya çıkmıştır. Moderatör sıvısının termal genişlemesini ve ısı iletim özelliklerini kötü yönde etkilemektedir. Bu nedenle katı yanabilir-soğurucu gadolinyum Gd_2O_3 şeklinde ilk kez yakıtın içerisine katılarak 1967 yılında Dresden (Almanya) da bir reaktörde denenmiştir WREBUS (1992). Bundan sonra katı yanabilir-soğurucular aşağıdaki iki uygulamayla nükleer reaktörlerde başarılı olarak kullanılmaktadır.

- Yakıt içermeyen yanabilir-soğurucular: Bunlar çeşitli şekillerde kontrol çubuğu olarak (pyrex, bor karbür veya alümina içerisine karıştırılarak) kullanımı.

- Yanabilir-soğurucuların yakıtın içerisine doğrudan karıştırılmasıyla kullanımı.

Bu farklı iki kullanım durumu için üretim teknikleri farklılıklar göstermektedir. Bu tez çalışmasında Gd_2O_3 yanabilir soğurucusu UO_2 içerisine doğrudan karıştırılarak düşük sıcaklıkta $1150^\circ C$ 'de CO_2 atmosferinde sinterleme yapıp gadolinyum miktarıyla mikroyapı ve yoğunluk değişimlerinin incelemesi yapıldı.

Gadolinyum adı Finlandiya'lı jeolog Johann Gadolin (1760-1852)'den gelmektedir. Gd_2O_3 nükleer yakıt içerisinde ağırlıkça % 1-10 oranlarında kullanılmaktadır. Bu tez çalışmasında da bu aralık esas alınarak incelemeler yapıldı. Günümüzde gadolinyum Gd_2O_3 şeklinde oksit tipi nükleer yakıtlarla beraber yanabilir-soğurucu olarak iyi neticeler verdiği için birçok nükleer yakıt üreticisi için önemli bir nükleer yakıt bileşeni olmuştur.

Gadolinyum miktarının yakıt içinde artmasıyla yakıt özellikleri ve nükleer dizaynlar hayli kompleks bir hal almaktadır. Özellikle ısı iletkenliği ve ergime noktası gadolinyum miktarının artışıyla düşmektedir. Bu nedenlerle gadolinyuma alternatif olarak bazı yeni yanabilir-soğurucular geliştirilmiştir. Zirkonyum diborit ZrB_2 ve erbiyum bunların başlıcalarıdır.

- ZrB_2 : Westinghouse (ABD) firması tarafından geliştirilmiş olup ince bir film tabakası şeklinde ZrB_2 nükleer yakıtın üzerine kaplanarak kullanılmaktadır. Uluslararası literatürde IFBA (integrated fuel burnable absorber) olarak adlandırılmaktadır WREBUS (1992). ZrB_2 nin başlıca dezavantajları şöyle sıralanabilir:

- Üretim tekniği daha zor ve karmaşıktır.
- Kaplama tabakasının kalınlığının kontrolü zordur.

- ZrB_2 'ün α ve β bombardımanı sonrası He oluşturmaktadır. Bu nedenle yakıt çubuğunda ön basıncın düşürülmesi gerekmektedir.

- Bu tip yanmış yakıtların yeniden işlenmesinde çözünmeyen ZrB_2 bileşiği filtreleri tıkararak problem çıkarmaktadır.

- Er: Erbiyumun etkin bir nötron absorblama özelliğine sahip olduğu bilinmektedir. Bu özellikleri açısından bora benzemektedir. Erbiyumla ilgili ilk deneyler TRIGA tipi test reaktörlerinde yapılmıştır. Erbiyum çok iyi moderatör sıcaklığı kontrol sabiti ve yakıt demeti güç dağılımı sağlar.

Yanabilir-soğurucuların kıyaslanmaları tablo 1.0.1. de görülebilir.

Tablo 1.0.1. Yanabilir-soğurucuların özellikleri

Yanabilir-soğurucu	Gd	ZrB_2 (IFBA)	Er
Yakıt üreticileri	a	Westinghouse	ABB/CE
Isı iletkenliği düşüşü	Çok	Çok az	Az
Erime noktası düşüşü	Önemli	Çok az	Az
Her demete karşılık yanabilir-soğurucu %	3-6	30-40	20-30
U miktarı azalışı	Önemli	Çok az	Önemli
^{235}U miktarı azalışı	Az	Çok az	Çok az
Geciktirme oranı	Yüksek	Yüksek	Orta
Atık aktivite	Düşük	Çok az	Önemli
Yakıt demeti güç dağılımı	İyi	Orta	İyi
Yerel güç yoğunlaşması	Önemli	Düşük	Düşük
Moderatör sıcaklığı sabiti kontrol (MTC)	İyi	En kötü	En iyi
Fabrikasyona uygunluk	İyi	Ayrı tesis	Ayrı tesis
Yakıtın yeniden işlenebilirliği	İyi	Zor	İyi

a: FBFC (Belçika)- SIEMENS (Almanya)— Fabricazione Nucleari (İtalya-JNF-MNF ve NFI (japonya)-KNFC (Kore)-ENUSA (İspanya)-ABB Atom (İsveç)-BNFL (İngiltere)—BWFC-GE ve SPC (ABD).

Gadolinium kullanımının fiziksel nedenlerini Radkowsky (1964) şöyle açıklamaktadır: Reaktörlerde daha iyi bir güç dağılımı, yakıtın daha uzun süre ve kontrollü yanması ve reaktör kalbinin güvenliğinin artırılmasıdır.

1.1. Gadolinyumun Nötronik Özellikleri

Doğal gadolinyum şu izotopları içermektedir: ^{152}Gd , ^{154}Gd , ^{155}Gd , ^{156}Gd , ^{157}Gd , ^{158}Gd ve ^{160}Gd . Bu izotoplardan ikisi termal enerji bölgesinde büyük nötron absorpsiyon kesitine sahip olmalarıyla karakterize edilirler. Tablo 1.1.1. de gadolinyumun termal nötron absorpsiyon kesiti Westcott faktörü ve rezonans integralleri görülmektedir Mughabab (1984).

Tablo 1.1.1. Gadolinyumun termal nötron absorpsiyon kesiti Westcott faktörü ve rezonans integralleri Mughabab (1984).

Gd İzotopları	Doğal Gd içindeki oranı (%)	Termal Kesit (Barn= 10^{-24} cm ²)	Westcott faktörü (Barn) $\longrightarrow$	Rezonans integral
Gd (Doğal)	-----	48890+104	0.8467	390+10
^{152}Gd	0.2	735+20	0.9784	2020+160
^{154}Gd	2.1	85+12	0.9967	230+26
^{155}Gd	14.8	60900+50	0.8425	1447+100
^{156}Gd	20	1.5+1.2	1.0006	104+15
^{157}Gd	15.7	254000+815	0.8512	700+20
^{158}Gd	24	2.2+0.2	1.0009	73+7
^{160}Gd	21.8	0.77+0.2	0.9997	7.2+1

2.0. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ TİPİ NÜKLEER YAKIT ÜRETİMİ

2.1. Fabrikasyon prosesleri

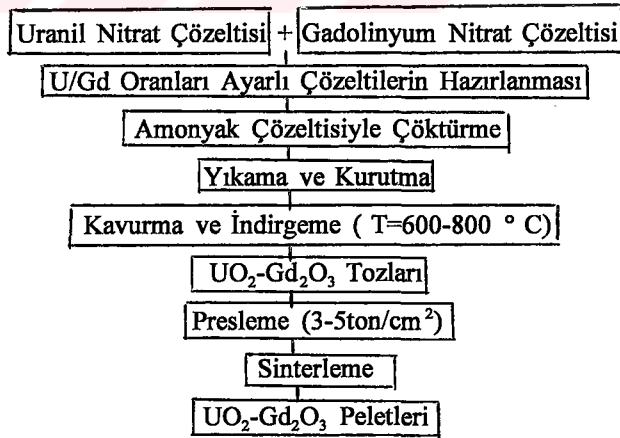
$\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ sistemi aktinit oksit /lantanit oksit ikili sistemidir ve oldukça fazla stokiometrik olmayan oksit sistemlerini oluşturmalarıyla bilinmektedir (Keller et al, 1973, Beals et al, 1965, Beals et al, 1969, Grossmann et al, 1972, Wada et al, 1973). Yakıt içerisinde homojen gadolinyum dağılımı için çeşitli yöntemler geliştirilmiştir. Sol-jel prosesiyle elde edilen ve üzerlerine wolfram kaplanan Gd_2O_3 küreciklerinin UO_2 nükleer yakıt peletlerinin içerisinde dağıtılması veya UO_2 ve Gd_2O_3 ün karışık çöktürülmeleri yöntemiyle homojen olarak birbirleri içerisinde karışmaları sağlanabilir (Amato et al, 1971).

$\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin üretiminde en çok kullanılan yöntem ise daha önceden hazırlanmış UO_2 ve Gd_2O_3 tozlarının mekanik olarak karıştırılmalarıdır. Yaş karıştırma ile daha iyi neticeler elde edilmekte ve yaş karıştırmadan sonra kurutma ve granülasyon yapılmaktadır (Flipot et al, 1971 and Manzel et al,

1980). Uygun UO_2 tozuyla da örneğin $\text{AUC:NH}_4[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]$ den üretilen UO_2 tozlarıyla kuru karıştırma yöntemiyle de iyi neticeler elde edilebilmektedir (Manzel et al,1980, Littlechild et al, 1973). Özet olarak fabrikasyon iki temel yöntemle yapılmaktadır. Birincisi Gd ve U oksitlerinin moleküler seviyede karıştırılması;ikincisinde Gd ve U oksitlerinin ince toz seviyesinde karıştırılmasıdır. Önceleri $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ karışımlarını elde etmek için soljel ve birlikte çöktürme kullanılmaktaydı (Ferguson et al, 1961 Ferguson et al, 1964, Ferguson et al, 1970, Haas et al, 1964, Haas et al, 1966, Zimmer et al, 1975 , Zimmer et al, 1979, Zimmer et al, 1979 , Yamagishi et al, 1985 , Mathews et al, 1980, Guenduez et al, 1991 and Ganguly et al, 1991). Daha sonraki çalışmalardaysa çoğunlukla uranyum ve gadolinyum oksitleri kuru yöntemle karıştırılarak hazırlanmışlardır (Littlechild et al, 1973, Davis et al, 1973, Manzel et al, 1980, Une et al, 1985, Ho et al, 1986, Une et al,1988, Yuda et al,1991, and Riella et al, 1991).

2.1.1.Sol-jel ve Birlikte Çöktürme

Önceleri sinterlenmiş UO_2 nükleer yakıt peletlerine gadolinyum nitrat çözeltisi içerisinde Gd emdirilerek Gd içeren UO_2 peletleri hazırlanmıştır. Fakat bu metotla % 0.5 ten fazla Gd_2O_3 içeren homojen UO_2 peletlerinin hazırlanması çok zor olmaktadır. Sol-jel yöntemindeyse uranyum ve gadolinyum nitrat çözeltileri amonyak içerisinde jelleştirilmektedir. Jelleştirmeyle homojen bir dağılım elde edilmektedir. Bu yöntemle $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin üretim şeması şekil 2.1.1.1. de görülmektedir. Sol-jel prosesi için iki yol vardır. Biri iç diğeri de dış jelleştirme. Her iki durumdada gadolinyum ve uranyum nitratin $\text{UO}_2/\text{Gd}_2\text{O}_3$ oranlarını tam olarak verecek şekilde sudaki çözeltileri hazırlanır. Gd_2O_3 oranının UO_2 ye oranı % 10 u geçmeyecek şekilde ayarlanması gerekir aksi halde yeni fazlar oluşur.



Şekil 2.1.1. $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin sol-jel yöntemiyle üretimi.

2.1.2. Toz Hazırlama

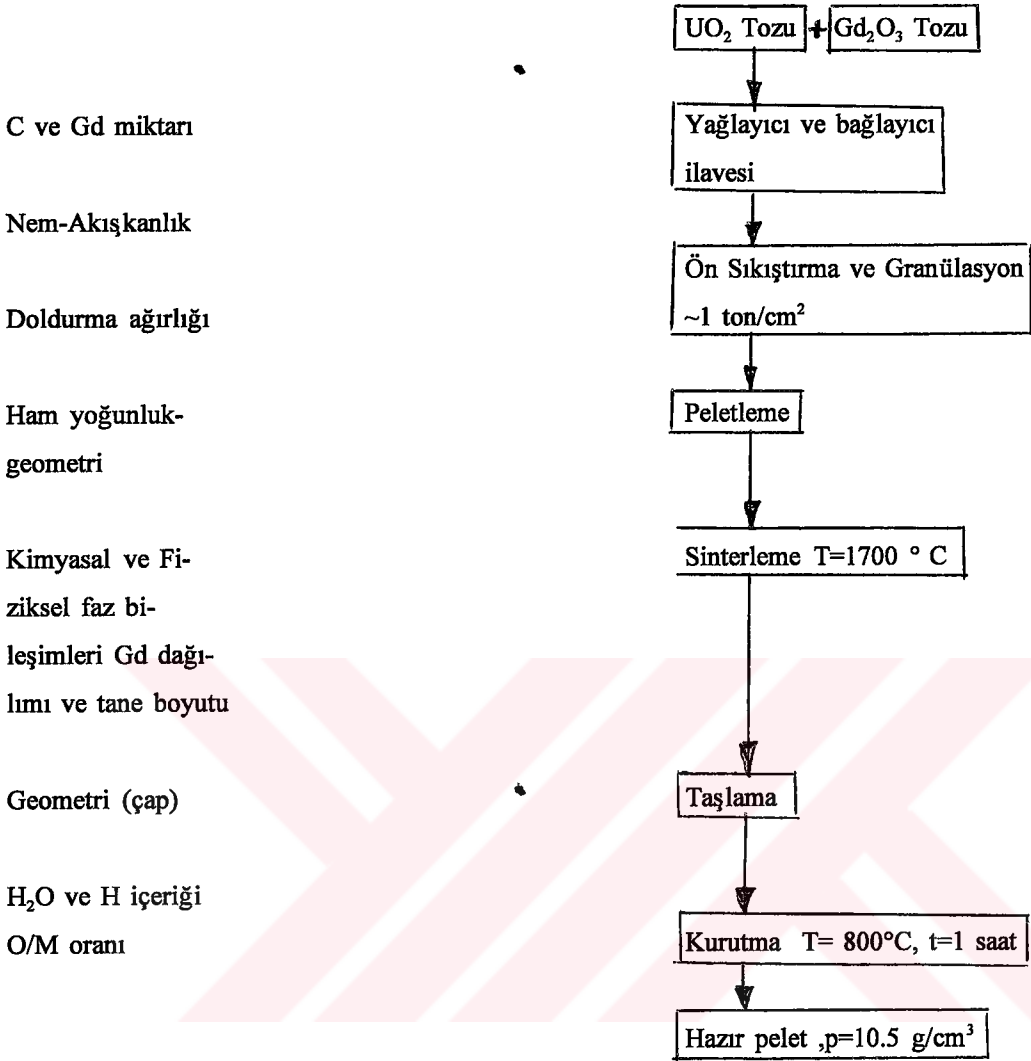
İç jelleştirmede HMTA : $C_4N_4H_{12}$ (hegzametilen tetramin) $10^\circ C$ 'de çözeltiye ilave edilir. Çözelti inert bir taşıyıcı gazla ince bir delikten $90^\circ C$ 'deki sıcak silikon yağına püskürtülür. HMTA bu sıcaklıkta bozunur ve NH_3 verir ve bu NH_3 de saniyeler mertebesinde solüsyonu jelleştirir. Jelleşmiş mikro kürecikleri silikon yağından arındırmak için önce karbon tetra klorür: CCl_4 sonra amonyak: NH_3 le yıkanır. Dış jelleştirmede uranyum ve gadolinyum nitrat çözeltisi karışımına üre ve amonyak ilave edilir. Üre U^{2+} iyonlarıyla kompleks yapar ve amonyakta bunun kararlılığını sağlar. Bu çözeltiye %1 TiO_2 ilavesiyle mikroyapıda ve pelet özelliklerinde iyileşme sağlanabilir.

Bundan başka UO_2 ve Gd_2O_3 tozlarının kuru olarak karıştırılmaları oldukça kolaydır ve bu nedenle endüstriyel uygulamalarda tüm tesislerde kullanılmaktadır. İleriki bölümlerde anlatılacağı üzere bu tez çalışmasında kuru karıştırma yöntemi uygulanmıştır.

Değişik uranyum bileşiklerinden itibaren hazırlanan UO_2 tozlarıyla Gd_2O_3 tozları vidalı veya diğer tip mekanik karıştırıcılar vasıtasıyla karıştırılırlar. Laboratuvarlardaysa 100 mikronluk elekten birkaç kez birlikte elemeye kilogram mertebelerinde karışımlar yapılabilir. Şekil 2.1.2.1. de UO_2 ve Gd_2O_3 tozlarının kuru karıştırma yöntemiyle karıştırılıp pelet üretimi şematik olarak gösterilmiştir.

2.1.3 UO_2 - Gd_2O_3 Peletlerinin Sinterlenmesi

Nükleer yakıt endüstrisinde UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinin sinterlemesi Ar/H_2 veya N_2/H_2 gaz karışımlarında $1600-1700^\circ C$ 'de üç saat süreyle yapılmaktadır. Gaz karışımlarının nemli olması durumunda yoğunluklarda bir miktar artma olmaktadır. Sinterlemede bu sıcaklıklar yüksek sıcaklık sinterlemesi olarak adlandırılırlar. Soljel yöntemiyle hazırlanan tozların sinterlenmesinden sonra yapıda homojen bir UO_2 , Gd_2O_3 ve TiO_2 dağılımı olup Gd_2O_3 oranının artışıyla porozite ve kafes parametreleri artmaktadır. TiO_2 ise her ikisinde azaltılmaktadır. Sol-jel yöntemiyle nükleer yakıt üretimi şu an için endüstriye uygun değildir. Çünkü çok fazla atık sıvı oluşmaktadır.



Şekil 2.1.2.1. UO_2 ve Gd_2O_3 tozlarının kuru yöntemle karıştırılarak pelet üretimi.

UO_2 - Gd_2O_3 toz karışımları içerisine az miktarda TiO_2 veya Al_2O_3 ilavesi nihai üründe yoğunluk tane boyutu ve ısı iletkenliği özelliklerini iyileştirmektedir. Stearik asit veya çinko stearat bağlayıcı olarak kullanılabilir.

Granülasyonda önce izostatik preste presleme yapılır sonra kırılır ve elenir. Granülasyonun boyutu 1 mm nin altında olmalıdır.

Granule edilmiş tozlara çinko stearat katılıp tek yönlü preste sıkıştırma ile $\sim 50\%$ teorik yoğunluklu ham peletler elde edilir. Eğer sinterleme önce kısmi oksitleyici atmosferde 1100°C 'de ve sonra indirgen atmosferde 1700°C 'de yapıldığında uranyum ve gadolinyum oksitlerinin en iyi iç difüzyonları

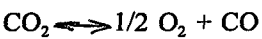
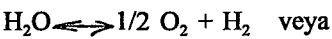
gerçekleşmektedir. Gd_2O_3 miktarının artışıyla sinterleşme gecikmekte ve yapıda daha fazla por oluşmaktadır.

Sinterlenen yapıda ana matriksin UO_2 olması önemlidir. Gd_2O_3 'ün bu yapı içerisinde homojen dağılımı arzu edilir. Ana matriks UO_2 olarak kaldığında termal iletkenlik ve ergime noktası düşmemektedir. Genellikle Gd_2O_3 'ün UO_2 matriksi içerisinde homojen dağılımı mümkün değildir. Bu da hassas nötronik hesaplamalarda birçok komplikasyonlara neden olmaktadır.

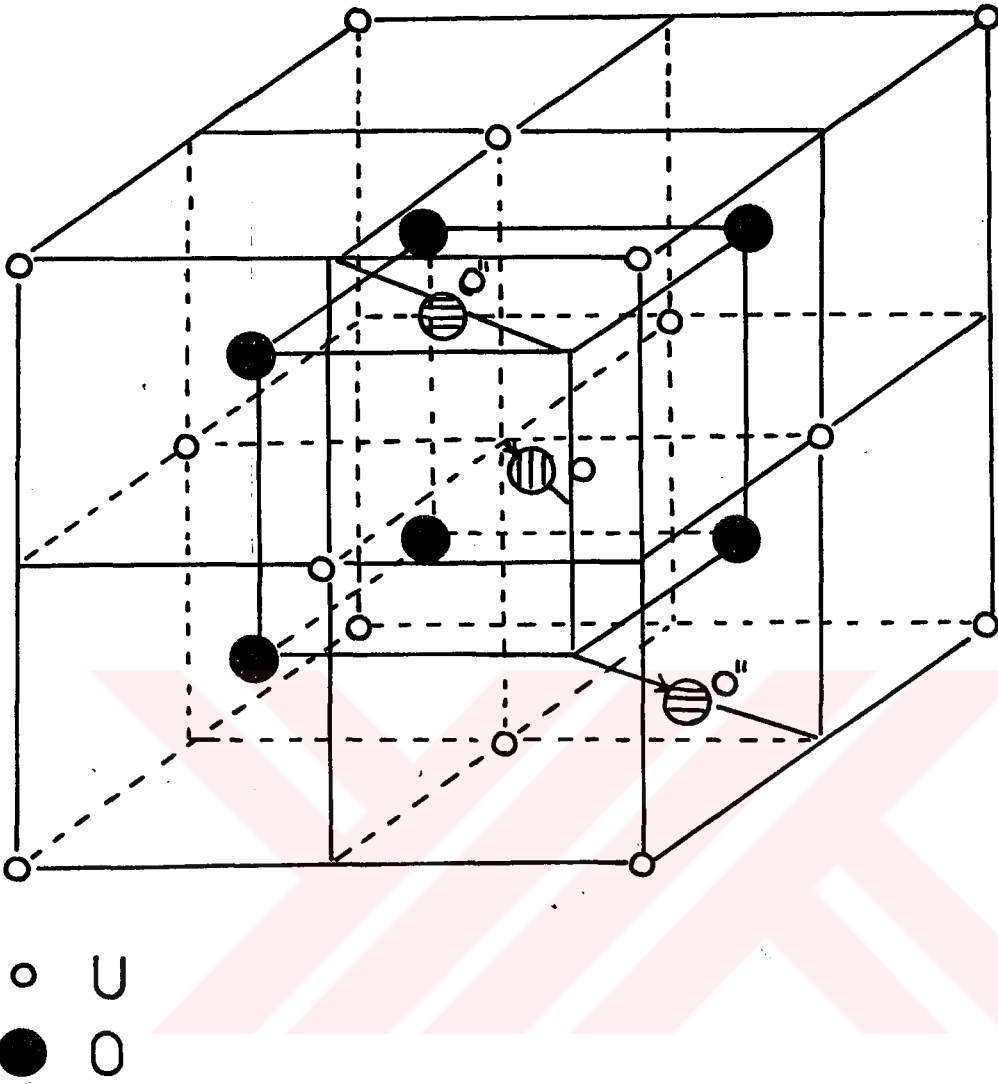
UO_2 - Gd_2O_3 peletleri birçok çalışmada kuru hidrojen atmosferinde sinterlenmiştir (Littlechild et al, 1973, Davis et al, 1978, Manzel et al,1980 , Une et al, 1985). Yoğunluklar $\%Gd_2O_3$ miktarının artışıyla azalmaktadır. Öte yandan bir başka çalışmada $\%0$ - 12 Gd_2O_3 içeren UO_2 - Gd_2O_3 sisteminde $1750^\circ C$ 'de nemli hidrojen atmosferinde yapılan sinterleme deneylerinde en yüksek yoğunluklar $\%4$ - 8 Gd_2O_3 içeren peletlerde elde edilmiştir ve oksijen potansiyelinin artmasıyla $UO_2 + \%9$ Gd_2O_3 peletlerinde yoğunlukların düştüğü görülmüştür (Ho et al,1986). Yine bir başka çalışmada UO_2 ve UO_2 - $\%4$ Gd_2O_3 peletlerinin sinterleme kinetikleri H_2 altında dilatometrik analizle incelenmiştir. Bulunan neticelere göre 1. safha sinter eşiği $1200^\circ C$ 'nin üzerinde başlamaktadır.

Bu durum hem saf UO_2 hemde $\%4$ Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri içinde geçerlidir; ancak $\%4$ Gd_2O_3 içeren peletlerde büzülme katı eriyik oluşumunun başlamasıyla gecikmektedir (Manzel et al, 1980). Literatürde bir başka çalışmada UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinde 1.safha sinterleme kinetikleri 925 - $1100^\circ C$ aralığında incelenerek oksijen potansiyeli ve Gd_2O_3 miktarına bağlı olarak yoğunlukların değiştiği görülmüştür (Yuda et al, 1991). Bu literatür çalışmasındaki peletler şu şekilde hazırlanmışlardır: UO_2 tozlarının yüzey alanları BET yöntemine göre ölçülmüş ve 4.2 m^2/g bulunmuştur. Peletlere ağırlıkça $\%1.5$ kadar naftalin ve stearik asit bağlayıcı olarak katılmıştır. Gd_2O_3 'ün ise yüzey alanı 5.7 m^2/g olarak bulunmuştur. UO_2 , Gd_2O_3 ve bağlayıcılar havanda karıştırıldıktan sonra bilyalı değirmende iki saat süreyle öğütülmüşlerdir. Pres basıncı 2.3 - 3.4 ton/ cm^2 aralığında uygulanarak $\sim$ $\%53$ - 55 arasında teorik yoğunluklara sahip ham peletler elde edilmişlerdir. Teorik yoğunluklar: $UO_2=10.96$ g/ cm^3 , $\%5$ Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri için $=10.81$ ve $\%10$ Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri için 10.65 g/ cm^3 olarak hesaplanmışlardır.

Sinter sıcaklıklarındaki oksijen potansiyeli (GO_2) gaz karışımlarından ve denge sabitlerinden aşağıdaki reaksiyonla hesaplanmıştır (Yuda et al, 1991).



Sinterlemeden sonra bütün peletlerin yoğunlukları immersiyon tekniğiyle ölçülmüş ve bazı peletlerde seramografik incelemeler yapılmıştır. Katı eriyik oluşumları ve homojenite tespitleri için XRD ve elektron prob mikro analizör kullanılmıştır. Açık ve kapalı por ölçümleri civalı porozimetreyle yapılmıştır. Farklı atmosferlerdeki sinter eğrileri dilatometre vasıtasıyla elde edilmiştir. $1650^\circ C$ de iki



Şekil 2.1.3.2. UO_2 Kristal yapısı

saat süreyle izotermal sinterleme yapılarak yoğunlaşmanın atmosfer tipine bağlı olarak yoğunlaşmanın 800-950°C de başladığı görülmüştür (Yuda et al, 1991).

Daha oksitleyici atmosferlerde büzülmenin daha düşük sıcaklıklarda başladığı görüşü savunulmaktadır (Manzel et al, 1980).

Şekil 2.1.3.1. de oksijen potansiyeli Gd_2O_3 miktarı ve sinter yoğunlukları ilişkileri görülmektedir (Yuda et al, 1991). Saf UO_2 de sinter yoğunluğu oksijen potansiyelinin artışıyla artmasına rağmen $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde azalmıştır. Bazı çalışmalarda (Stuart et al, 1975), Matzke (1982), saf UO_2 peletlerinde oksijen potansiyeli ile sinter yoğunluğu etkisi incelenmiş ve benzer sonuçlar elde etmişlerdir. Tane boyutunda oksijen potansiyelinin bir fonksiyonu olarak arttığı 1650°C'de indirgen atmosferden $GO_2 = -500$ kJ/mol'den hafif oksitleyici $O_2 = -330$ kJ/mol e geçildiğinde $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinde 1-2 mikrondan 10-15 mikrona çıktığı görülmüştür (Yuda et al, 1991). Saf UO_2 peletlerinde tane boyutu aynı şekilde artmıştır. Literatürde saf UO_2 peletlerinde sinter yoğunluğunun ve tane boyutunun oksitleyici atmosferde artmasının nedeni olarak katyon difüzyonunun artışı gösterilmektedir Matzke (1979), Matzke (1982), (Assmann et al, 1986). Kısmi oksitleyici atmosferlerdeki sinterlemelerde daha iyi homojenite bulunmuştur. İndirgen atmosferdeki sinterlemede yapı içerisindeki gadolinyum konsantrasyonunda büyük değişimler gözlenmiştir (Davis et al, 1978). XRD çalışmalarında $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinin 1200-1500°C arasında oluşmaya başladığı gözlenmiştir (Yuda et al, 1991). Peletlerde Gd_2O_3 ün homojen dağılmamış olması termel gerilmeler nedeniyle mikro çatlakların oluşmasına neden olmaktadır. Bu olay da sinterlemeyi olumsuz yönde etkilemektedir. Ağırlıkça %5-10 arasında Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleriyle H_2O/H_2 ve CO_2/CO atmosferlerinde yapılan çalışmalarda aşağıdaki neticelere ulaşılmıştır (Yuda et al, 1991):

1- Yoğunlaşma heriki atmosfer altında da Gd_2O_3 miktarına oldukça bağlıdır. Oksitleyici atmosferde UO_2 nin yoğunlaşması daha fazla olmaktadır. $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerindeyse 1650 ° C de iki saatlik ısıtma işlemine rağmen oksitleyici atmosferde saf UO_2 peletlerinden daha düşük yoğunluklar elde edilmiştir.

2- $UO_2-Gd_2O_3$ peletlerinin yoğunlukları, oksitleyici atmosferlerde kapalı porların oluşumu nedeniyle düşmüştür. Bu porlarda yapıda üniform olmayan hacimsel değişikliklere neden olurlar. UO_2-UO_2 ve $UO_2-Gd_2O_3$ reaksiyonlarının farklı oluşu nedeniyle farklı yoğunlaşma oranları elde edilmektedir. Ara ve son sinterleme kademeleri oksitleyici atmosferden farklılık göstermektedir.

3- $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinin oluşumu ve tane büyümesi büyük ölçüde sinter atmosferinin indirgenlikten ($p_{H_2O}/p_{H_2}=10^{-3}$) hafif oksitleyiciliğe ($p_{CO_2}/p_{CO}= 0.04$) bağlı olduğu gözlenmiştir. Uranyum ve gadolinyumun katyon yarıçaplarının yakınlığı nedeniyle kübik fluorit tipi yapıda şekil 2.1.3.2. kolaylıkla $(U,Gd)O_2$ katı eriyiği oluşabilir. Gd_2O_3 1200°C civarında monoklinik kristal yapısından kübik yapıya geçmektedir. Benim kanaatime görede $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinin oluşumunda bu sıcaklıkta başlamasında bu dönüşümünde etkisi vardır. Çeşitli literatür çalışmalarında ısıtma işlem ve sıcaklıkların Gd_2O_3 ün kristalografik dönüşümlerine etkileri incelenmiştir (Goldschmidt et al, 1925, Schafer et al, 1959 Guentert et al, 1958, Roth et al, 1960, Warschaw et al, 1961).

Tablo 2.1.3.1. de UO_2 , Gd_2O_3 ve ZrB_2 ye ait bazı fiziksel özellikler verilmiştir.

Tablo 2.1.3.1. UO_2 , Gd_2O_3 ve ZrB_2 ye ait bazı fiziksel özellikler

Malzeme	Kafes	Kafes param. Å	Yoğunluk g/cm^3	Ergime sıcak. °C	Genleşme katsayısı $\cdot 10^{-6}$	Young modülü k.bar
Gd_2O_3 (Beals et al, 1965)	Monok.	a=14.06 b= 3.572 c= 8.75	8.348	2330		1502
UO_2	Kübik	a=10.812				
	Kübik	a= 5.468	10.96	2860	12	2300
ZrB_2	Hegza	a= 3.17 c= 3.53	6.09	3040	7.7	4200

UO_2 - Gd_2O_3 sistemine ait farklı yapısal modeller için O/U ve O/M oranları tablo 2.1.3.2. de görülmektedir (Ho et al, 1986).

2.1.4. $(\text{U,Gd})\text{O}_2$ Katı Eriyiğinin Yapısı

UO_2 - Gd_2O_3 sisteminde yük dengelemeleri şu şekilde açıklanabilir: Anyon alt kafesinde boşluk oluşumu U^{4+} nın U^{5+} ve U^{6+} ya oksitlenmesi; arayer oluşumları veya bu hata tiplerinin kombinasyonlarının oluşumu sinter atmosferine bağlıdır (Ho et al,1985).

Ayrıca Gd_2O_3 ün üç farklı kristalografik yapısının bulunması katı eriyik oluşumlarında önemli rol oynamaktadır. Gd_2O_3 e ait üç kriticalografik form aşağıda verilmiştir(Roth et al,1960).

A-Tipi: Hegzagonal, $a = 3.76 \text{ \AA}$, $c = 5.89 \text{ \AA}$ **B-Tipi:** Monoklinik

$a = 14.06 \text{ \AA}$, $b = 3.57 \text{ \AA}$, $c = 8.75 \text{ \AA}$

C-Tipi: Kübik $a = 10.8122 \text{ \AA}$

Daha ayrıntılı fiziksel özellikler değişik çalışmalarda incelenmişlerdir (Dole et al, 1956 , Case et al, 1981). Yakın stokiyometrik $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinde kafes parametreleri gadolinyum miktarının artışıyla azalmaktadır. % 40 mol olarak gadolinyum içeren yapıda en küçük değerine ulaşır (Ho et al,1985). Farklı atmosfer ve farklı gadolinyum miktarları için kafes parametrelerinin değişimi incelenerek literatürde aşağıdaki bağıntılar bulunmuştur.

Mekanik olarak karıştırılmış, 1700°C 'de 4 saat süreyle H_2 atmosferinde sinterlenmiş %0-40 mol Gd_2O_3 içeren $UO_2-Gd_2O_3$ peletleri için değerler şöyledir (Beals et al, 1965):

$a = 5.474 - 0.19 X$, a: kafes parametresi A, X: % mol Gd_2O_3 . Yine mekanik olarak karıştırılmış 1700°C 'de Ar altında sinterlenmiş %0-40 mol Gd_2O_3 içeren $UO_2-Gd_2O_3$ peletleri için neticeler şöyledir (Beals et al, 1965).

$a = 5.470 - 0.162 X$. Burada da a ve X değerleri yukarıdaki gibidir. Birlikte çözülmüş ve H_2 atmosferinde 1600°C 'de 2 saat sinterlenmiş $UO_2-Gd_2O_3$ peletleri için ağırlıkça %0-30 Gd_2O_3 aralığında aşağıdaki değerler verilmektedir (Wada et al,1973): $a = 5.4704 - 0.237 X$.

Başka bir literatür çalışmasında mekanik olarak karıştırılmış $UO_2-Gd_2O_3$ sisteminde 1800°C 'de 2 saat H_2 atmosferinde sinterlenmiş peletler için ağırlıkça % 0-30 Gd_2O_3 aralığındaki neticeler şöyledir (Ohmichi et al,1981):

$a = 5.4725 - 0.185 X$.

Yine aynı literatür çalışmasında mekanik olarak karıştırılmış ve yaş hidrojen atmosferinde yapılan çalışmada da ağırlıkça % 0-12 Gd_2O_3 aralığındaki neticeler şöyle bulunmuştur (Ohmichi et al,1981).

$a = 5.4725 - 0.185 X$.

Bu sonuçlardan özet olarak Gd_2O_3 miktarının artışıyla $(U,Gd)O_2$ yakın stokiyometrik katı eriyiği için kafes parametreleri azalmaktadır. Peletlerin fabrikasyon yöntemleri buna etki etmemektedir. Her % 1 mol Gd_2O_3 miktarı kafes parametresini 0.002 Å küçültmektedir. Daha öncede bahsedildiği gibi $(U,Gd)O_2$ katı eriyiği U^{3+} ve oksijen boşluğunun bir karışımıdır (Ohmichi et al, 1981). Tablo 2.1.3.2. de bu yapısal modellemeler görülmektedir. U^{3+} iyon çapı (0.88 Å) , U^{4+} iyon çapından (1.001 Å) daha küçüktür. Kafes parametreleri ; Gd^{3+} iyon çapı (1.053 Å) uranyumdan büyük olmasına rağmen gadolinyum miktarının artışıyla küçülmektedir. Bu bağıntı gadolinyum miktarına bağlı olarak aşağıdaki şekilde açıklanmıştır (Ohmichi et al,1981):

a: Kafes parametresi Å olarak, X : Gd miktarı mol olarak.

$$da/dx = 4/3\sigma * (r Gd^{3+} + r U^{5+} - 2r U^{4+}) = -0.16$$

Tablo 2.1.3.2 UO₂-Gd₂O₃ Yapısal modeller (Ho et al, 1985)

Model	Formül	$x \approx y$ $y \approx z$	Katyon Kafesi	Anyon Kafesi	Araçlar	O/U	O/M
1. Oksijen boşluğu	$(U_{1-x}^{4+}Gd_x^{3+})O_{2-(x/2)}$	$y = 0$	Dolu	Hata	Yok	=2	<2
2. Katyon arayeri	$(U_{1-x}^{4+}(3/4)xGd_x^{3+})O_2$	$y = 0$	Dolu	Dolu	$(x/4)Gd^{3+}$	=2	<2
3. U ⁵⁺ ve oksijen boşluğu	$(U_{1-x-y}^{4+}U_y^{5+}Gd_x^{3+})O_{2-[(x-y)/2]}$	$x > y$	Dolu	Hata	Yok	>2	<2
4. U ⁵⁺	$(U_{1-x-y}^{4+}U_y^{5+}Gd_x^{3+})O_2$	$x = y$	Dolu	Dolu	Yok	>2	=2
5. U ⁵⁺ ve anyon arayeri	$(U_{1-x-y}^{4+}U_y^{5+}Gd_x^{3+})O_{2-[(x-y)/2]}$	$x < y$	Dolu	Dolu	$[(y-x)/2]O^{2-}$	>2	>2
6. U ⁶⁺	$(U_{1-x/2-x}^{4+}U_{x/2}^{6+}Gd_x^{3+})O_2$	$z = x/2$	Dolu	Dolu	Yok	>2	=2
7. U ⁶⁺ ve anyon arayeri	$(U_{1-x-z}^{4+}U_z^{6+}Gd_x^{3+})O_{2+x-z-(x/2)}$	$z > x/2$	Dolu	Dolu	$[z-(x/2)]O^{2-}$	>2	>2
8. U ⁵⁺ ve U ⁶⁺	$(U_{1-x-y-z}^{4+}U_y^{5+}U_z^{6+}Gd_x^{3+})O_2$	$\begin{pmatrix} x = y + 2z \\ y = 2z \end{pmatrix}$	Dolu	Dolu	Yok	>2	=2
9. U ⁵⁺ , U ⁶⁺ ve oksijen boşluğu	$(U_{1-x-y-z}^{4+}U_y^{5+}U_z^{6+}Gd_x^{3+})O_{2-[(x-y-2z)/2]}$	$x > y + 2z$ $y \geq 2z$	Dolu	Hata	Yok	>2	<2

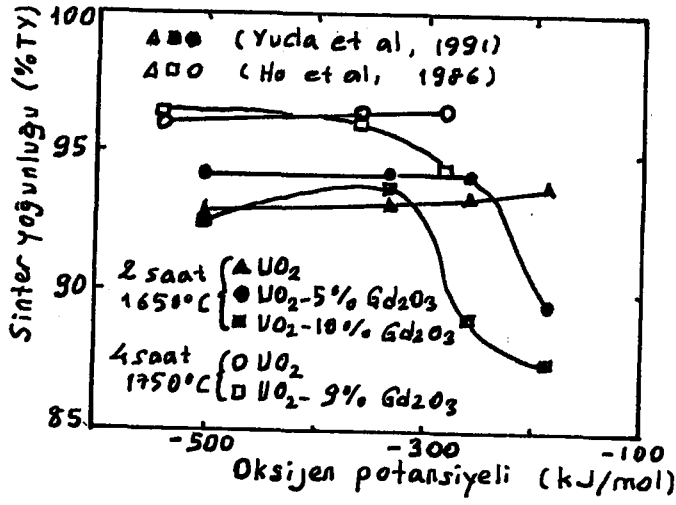
Sabit gadolinyum miktarında ($U^{4+}_{1-2x+2y}U^{5+}_{x-2y}Gd^{3+}_xO^{2-}_{2-y}$) tipi hipostokiyometrik (U,Gd)O₂ katı eriyiğinde kafes parametreleri O/M oranlarının azalması veya oksijen boşluğu konsantrasyonlarının artmasıyla artmaktadır. Şekil 2.1.4.1. de bu durum görülmektedir. Oksijen boşluklarının boyutları O²⁻ iyonlarından % 10 kadar daha büyüktür (Ohmichi et al, 1981). Sinterlemede yetersiz süre ve sıcaklıklar (U,Gd)O₂ sisteminde kısmi dengesizlikler oluşturabilir. Gadolinyum miktarına bağlı olarak iki veya üç tip katı eriyik ile oldukça farklı kafes parametreleri gözlenebilir. Teorik olarak katı eriyiğin O/U oranı yalnızca U⁴⁺ dan başka U katyonlarının değerliğiyle kontrollüdür. (U,Gd)O₂ katı eriyiğinde O/U , O/M ve U⁵⁺/U oranları birbirine bağlıdır (Ho et al, 1986). Yapılan deneyler göstermiştir ki % 10 a kadar Gd₂O₃ ilavesiyle (U,Gd)O₂ katı eriyiğinin yoğunluğunda yüksek sıcaklık sinterlemesinde belirgin bir değişim gözlenmemiştir (Fukushima et al, 1982). Basit olarak Gd₂O₃ artışıyla yoğunluk düşüşü olacağını söylemek mümkündür Gd₂O₃ ve UO₂ arasındaki ilişki çok daha karmaşıktır. Şekil 2.1.4.2. ve 2.1.4.3. de literatür ve bu çalışmadaki verilere göre Gd₂O₃ miktarının yoğunluk üzerine etkisi görülmektedir.

UO₂-Gd₂O₃ tipi nükleer yakıt üreten Westinghouse (ABD) firması peletleri 6 saat süreyle yaş H₂ atmosferinde sinterlenmişlerdir (Ho et al, 1986). Bir başka ABD firması olan B B nin sinter koşulları açıklanmamıştır (Newmann et al,1984). Başka bir çalışmada da numuneler kuru H₂ atmosferinde 2 saat süreyle sinterlenmişler ve benzer sonuçlar bulunmuştur (Une et al,1985).

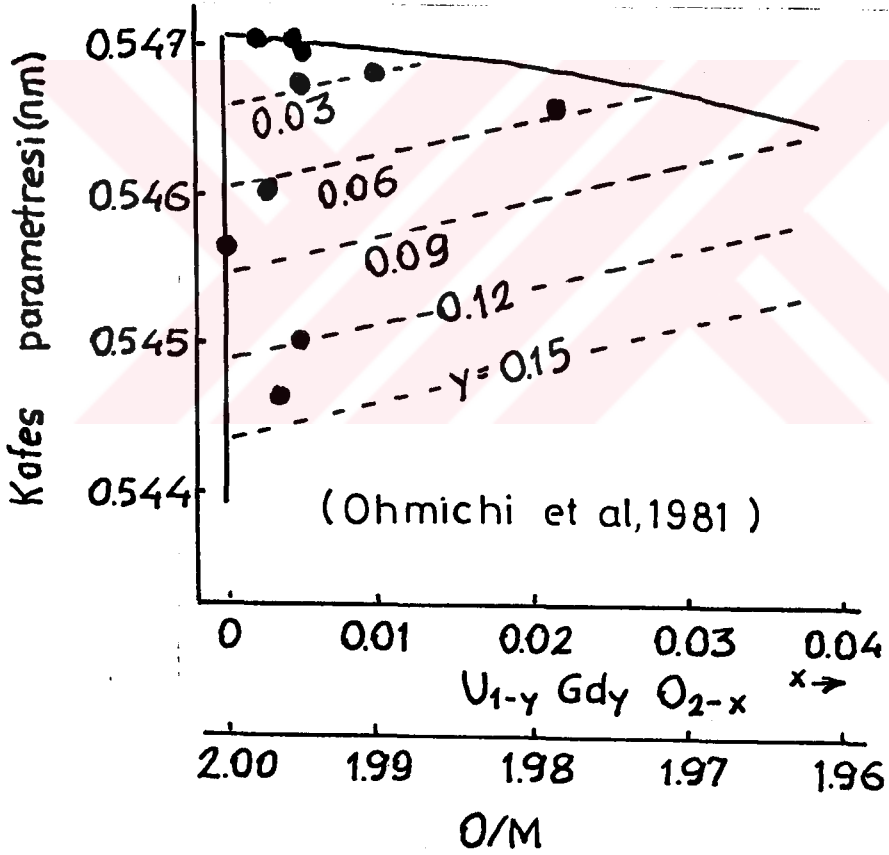
2.1.5. UO₂-Gd₂O₃ Peletlerinde Kalite Kontrol

Uluslararası Atom Enerjisi Ajansı'nın 1991 Şubatında yayınlanan "Guidebook on QC of MOX and Gd Bearing Fuels,IAEA-TECDOC-584" adlı kitabında değişik nükleer yakıt üreten ülke firmalarının tecrübeleri ve en iyi malzeme tercihleri anlatılmaktadır. Saf UO₂ nükleer yakıt peletleri için gerekli kontroller gadolinyumlu peletler içinde geçerlidir. O/U ve O/M oranları Gd₂O₃ miktarıyla değişir. UO₂,Gd₂O₃ ve U-Gd-O katı eriyiğini içeren bölgeler analizlerle belirlenir. Tablo 2.1.5.1. de gadolinyum miktarına bağlı hesaplamaların nasıl yapıldığı görülmektedir. Gadolinyum içeren yakıtlar ve yakıt demetlerinin üretilmesinde ana problemler; peletlerin ve yakıt çubuklarının tam doğru olarak yerlerine yerleştirilmeleridir. Bunlar için özel kontrol teknikleri vardır. Yakıt içerisindeki Gd₂O₃ dağılımı seramografi teknikleriyle, Gd₂O₃ miktarıysa kütle spektrometresi , gama spektrometresi veya XRF ile yapılmaktadır. Yakıtlar üretim esnasında barkodla kodlanır ve kontroller için hazır halde tutulur. Video kamerayla tüm üretim ve kullanım kademelerinde gadolinyum içeren yakıtlar izlenir. Gadolinyum içeren yakıt çubuklarının konumları aşağıdaki tekniklerle yapılır:

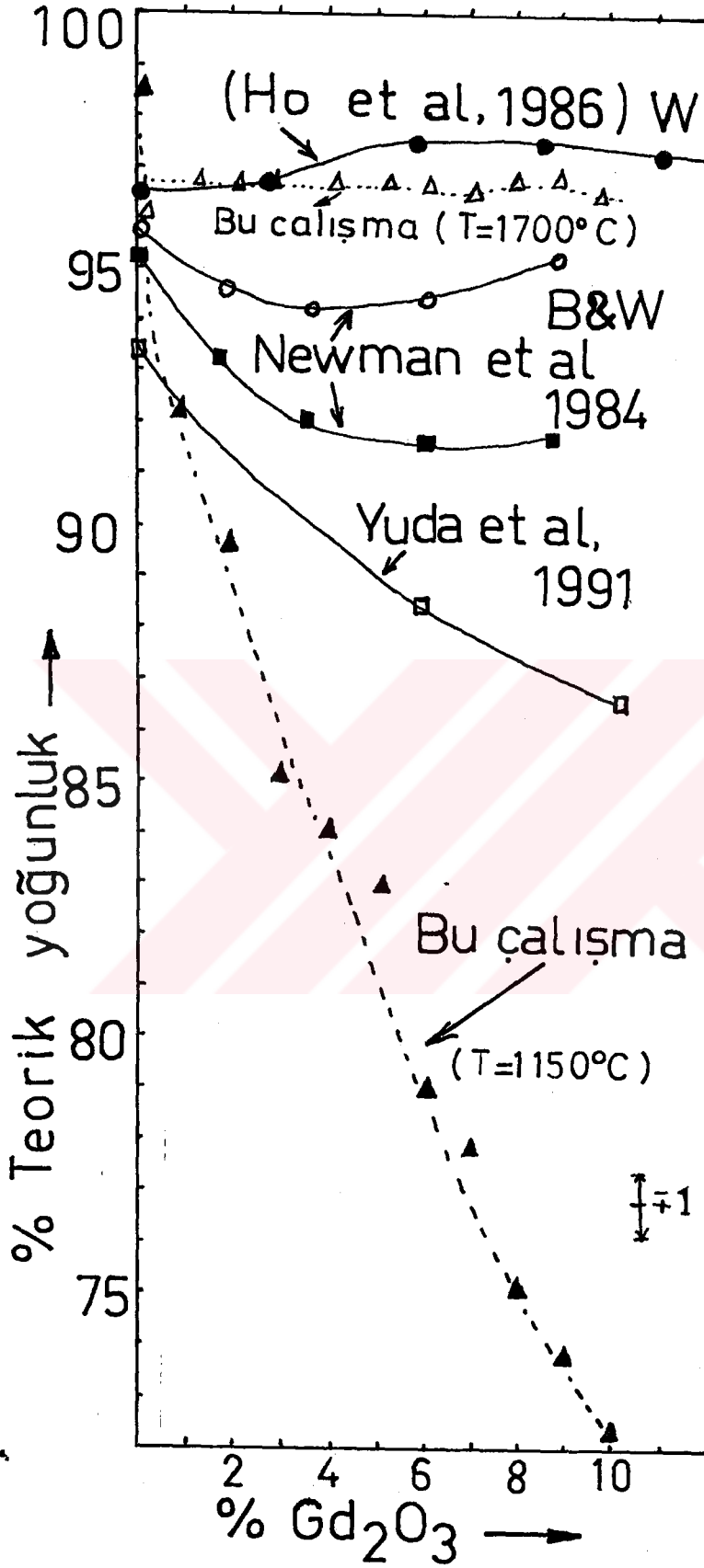
- Uranyum peletlerinin aktive edilmiş gama radyografisi
- Gadolinyumlu peletlerin yüksek alan magnetometrisi
- Düşük alan magnetik testleri
- Görsel makro kontroller
- Yukarıdakilerin kombinasyonları.



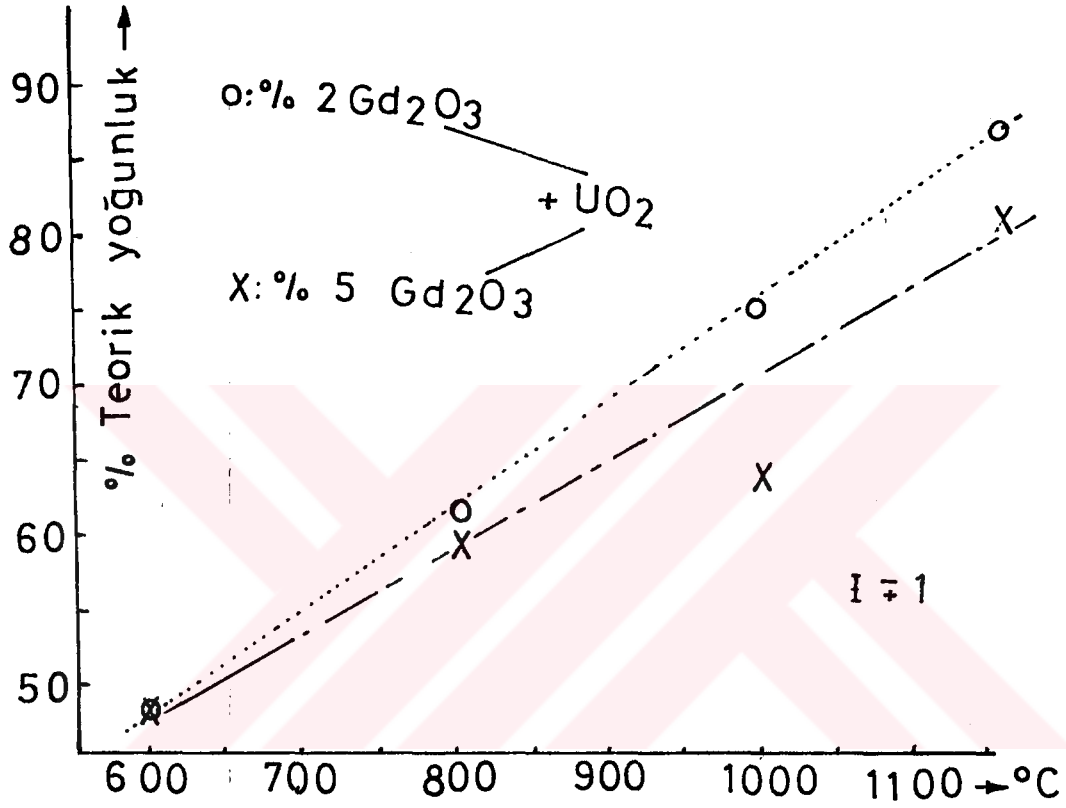
Şekil 2.1.3.1. Yoğunluk, ΔG_{O_2} ilişkisi



Şekil 2.1.4.1.
O/M Kafes parametreleri ilişkisi



Şekil 2.1.4.2. Gd_2O_3 yoğunluk ilişkisi



Şekil. 2.1.4.3. % Gd_2O_3 - Yoğunluk - Sıcaklık ilişkisi

Tablo 2.1.5.1. UO_2 peletlerinde Gd etkilerinin hesaplanması.

Oksijen/Uranyum oranı	Kaynak
$\text{O/U} = (2.000 + 0.008 \cdot \% \text{Gd}_2\text{O}_3)$	IAEA-TECDOC-584
%12 Gd_2O_3 e kadar	" " "
$\text{O}/(\text{U} + \text{Gd}) = 2.00 + 0.02$	
$\text{O/U} = 2.020 + 0.045$ (% 5 Gd_2O_3 için)	Contr.of Russian Fed. to CRP on BAF
Yoğunluk	
$p = p_0 - 0.040 \cdot \% \text{Gd}_2\text{O}_3 + 0.15$ (g/cm_3)	IAEA-TECDOC-584
p: UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinin yoğunluğu	
p_0 : UO_2 nin teorik yoğunluğu	
$p = 95 + \% 1$	
$p_{th} = 95 - \% 1.5$	IAEA-TECDOC-584
$p_{th} = 100 / (\% \text{Gd}_2\text{O}_3 \cdot \% \text{UO}_2)$	
$p_{\text{Gd}_2\text{O}_3} \cdot p_{\text{UO}_2}$	
$p \approx 10.25, 10.55$ g/cm_3 (%5 Gd_2O_3)	Contr.of Russian Fed.to CRP on BAF
Gd dağılımı	
Optik mikroskopta bağlı alanlar	
% $\text{Gd}_2\text{O}_3 < 15$ için	IAEA-TECDOC-584
Saf UO_2 alanı $< \% 40$	" " "
UO_2 - Gd_2O_3 katı eriyiği $\sim \% 60-94$	Newmann et al, 1984 Asmann et al, 1988
Gd_2O_3 ce zengin ve çapı	
> 10 mikron parçacıklar	Haeldahl et al, 1988
Gd_2O_3 ce zengin aglomeratlar,	
40-100 mikron alanları $< \% 2$	Contr.of Russian Fed.
Bölgesel dağılımlar	
Gd_2O_3 ce zengin topaklar	Yukarıdaki tüm
$< 10-200$ mik.	kaynaklar
Maksimum Gd_2O_3 bölgesindeki	
$\text{Gd}_2\text{O}_3 < 15$ mikron	" "
UO_2 ce zengin bölgedeki UO_2 boyutu	
$< 30-100$ mikron	" "
Gd_2O_3 ce zengin bölgenin hacimsel	
oranı $< \% 6-15$	Newmann et al, 1984

3.0. DENEYLER

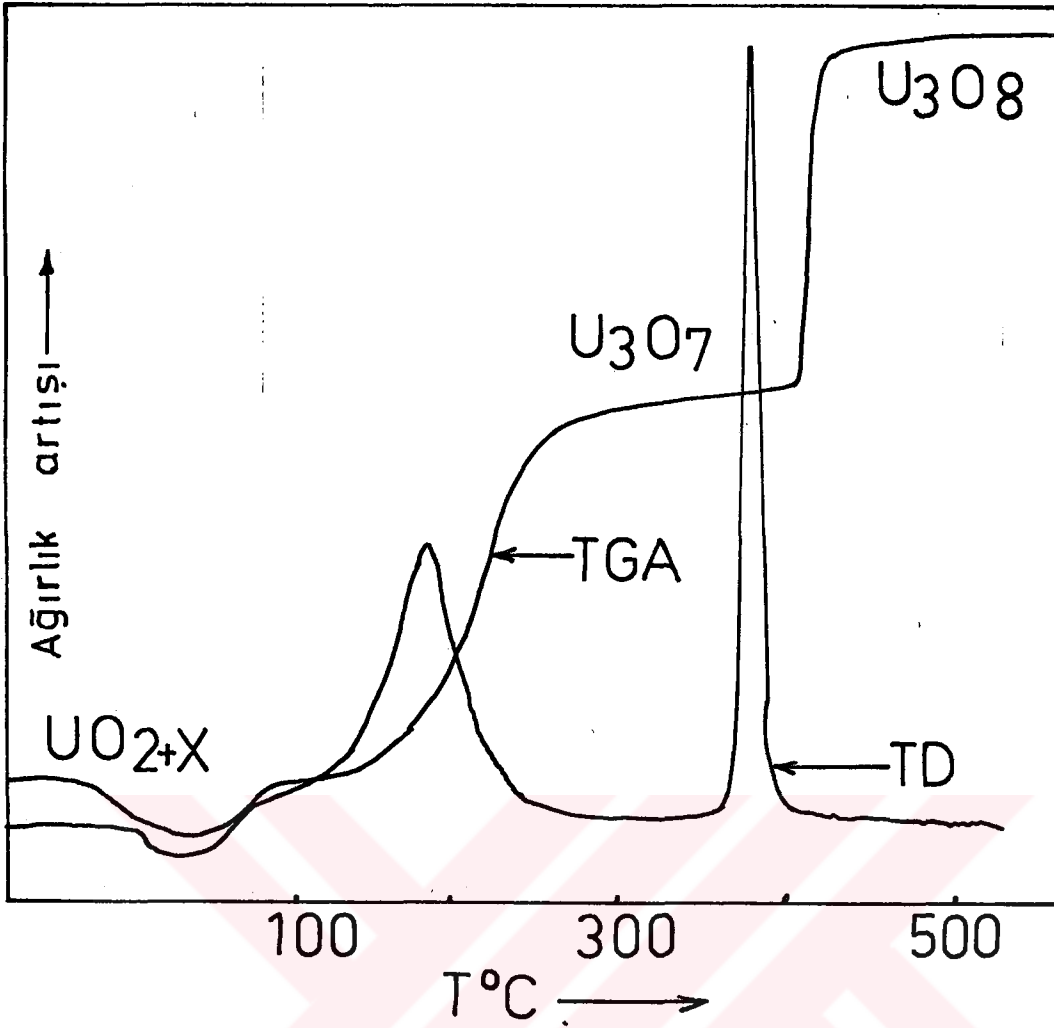
3.1. Tozların Hazırlanması

Bu tez çalışmasının deneylerinde kullanılan UO_2 tozları, Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi Nükleer Yakıt Teknolojisi Bölümünde solvent ekstraksiyonuyla saflaştırılan uranyum konsantresinden ADU (amonyum di uranat):(NH_4) $_2$ U_2O_7 çöktürülerek; bu bileşiğin ya doğrudan doğruya veya hava atmosferinde kavurma yoluyla oluşan uranyum oksitlerinin uygun atmofer,sıcaklık ve sürelerde indirgenmesiyle elde edilmektedir. Genel olarak da ADU 400°C de hava atmosferinde 4 saat süreyle kavrularak UO_3 elde edilmekte, daha sonra bu UO_3 yaşı H_2 atmosferinde indirgenerek aşağıdaki reaksiyon gereği $\sim 650^\circ C$ 'de UO_{2+x} (x: stokiyometrik kompozisyona farklılık) e dönüşmektedir.

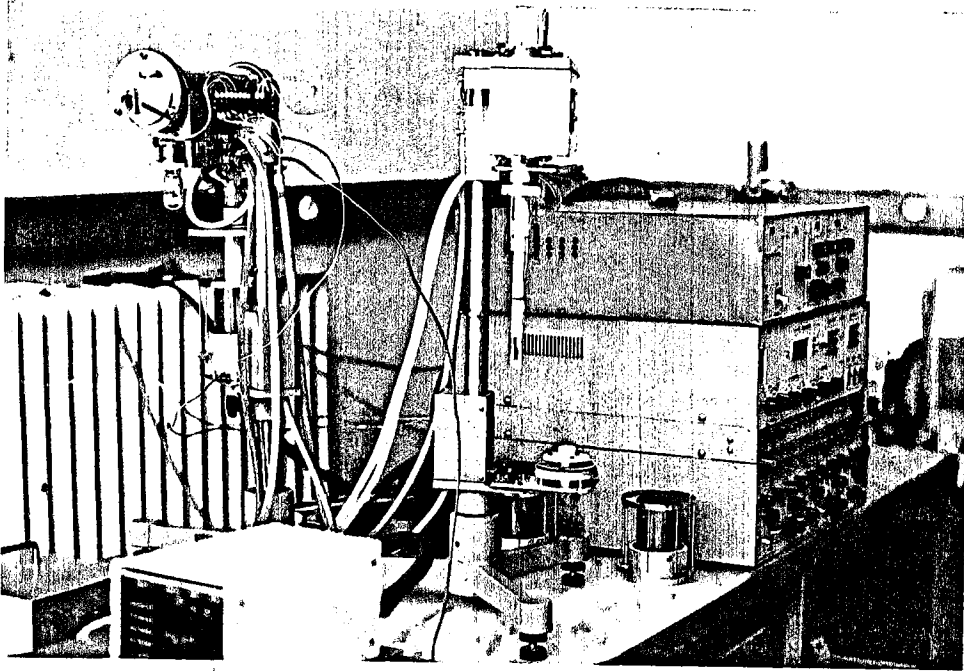
$UO_3 + H_2 \longrightarrow UO_{2+x} + H_2O$. Daha sonra elde edilen bu UO_{2+x} tozlarının kalite kontrolleri yapılmakta ve UO_2 seramik nükleer yakıt peletleri yapımına uygun olup olmadıkları belirlenmektedir. Deneylerde kullanılan UO_{2+x} tozlarının ICP de yapılan safsızlık analizleri tablo 3.1.1. de görülmektedir.

Tablo 3.1.1. Bu tez çalışmasında kullanılan UO_{2+x} tozlarının safsızlık analizleri.

Element	Safsızlık miktarı ($\mu g/gU$)
Cd	1.46
Ni	16.00
Mo	21.00
Cr	40.40
Fe	794.00
Co	1.20
Cu	54.60
Zn	10.21
Ca	24.60
Al	298.00
Mn	9.50
Na	140.00
Mg	77.00
Pb	8.10
K	140.00
Ti	7.30



Sekil 3.1.1. UO_{2+x} Oksitlenmesi



Şekil 3.1/2, TGA Cihazı

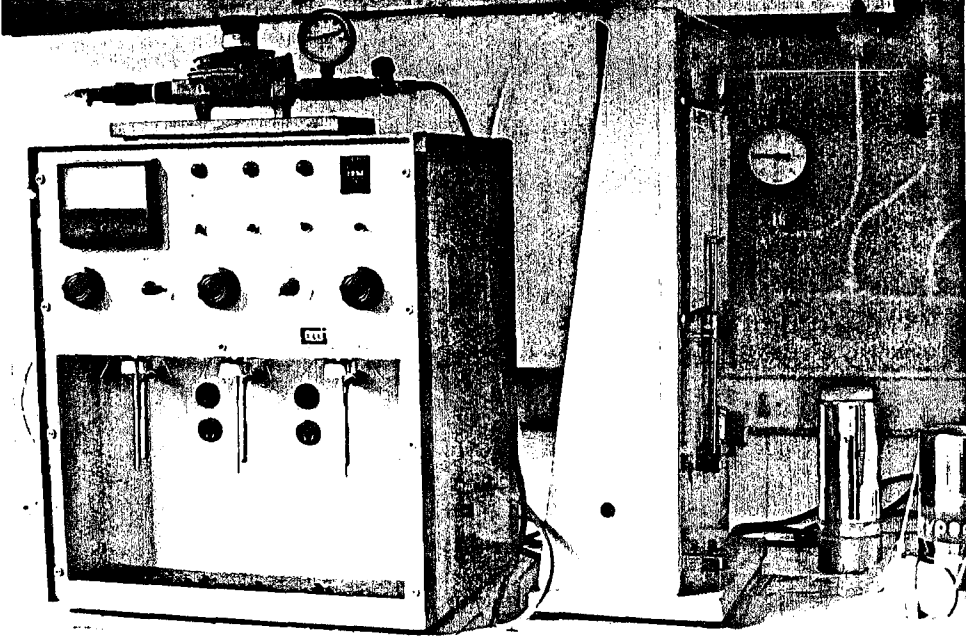
Yine bu tez çalışmasında kullanılan UO_{2+x} tozlarının havada oksitlenmesine ait termogravimetrik analiz eğrileri şekil 3.1.1. de görülmektedir. Bu oksitlenme eğrilerinden itibaren yapılan hesaplamalarda stokiyometrik kompozisyona farklılık $x=0.3$ olarak bulundu. Hesaplama aşağıdaki formülle yapıldı:

$$x = (\text{Kuru } UO_{2+x} \text{ ağırlığı} * 17.5417) / (\text{kuru } U_3O_8 \text{ ağırlığı}) - 16.875 \text{ (Yaylı ve diğerleri, 1987).}$$

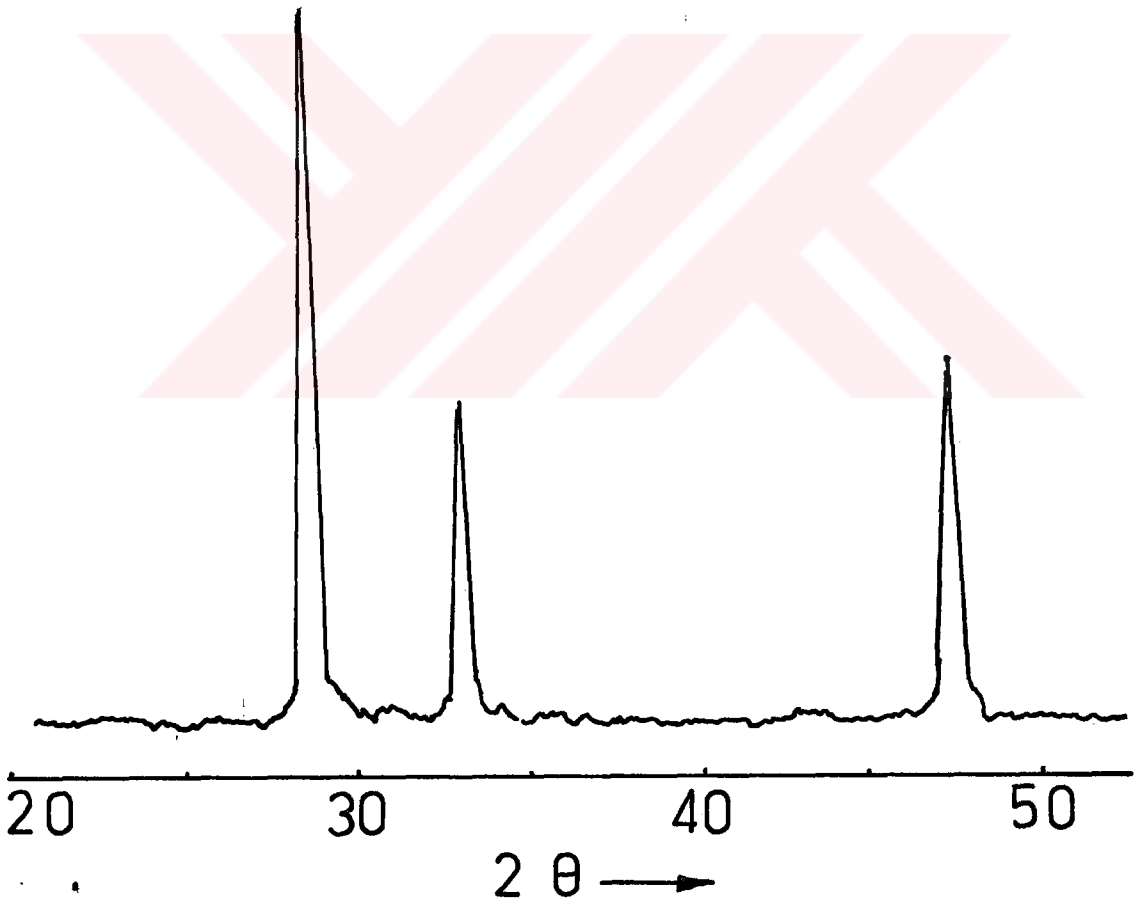
Tarmogravimetrik analiz deneyleri Schimadzu DT 30 marka cihazda yapıldı. Şekil 3.1.2. Yine bu UO_{2+x} tozlarının özgül yüzey alanı ölçümleri BET yöntemine göre (Brunauer et al, 1938) Micromeritics High Speed Surface Area Analyzer marka cihazda yapıldı ve $6.5 \text{ m}^2/\text{g}$ olarak bulundu. Şekil 3.1.3.

Aynı cihazda bu tez çalışmasında kullanılan Gd_2O_3 tozlarının özgül yüzey alanı $3.5 \text{ m}^2/\text{g}$ olarak ölçüldü. Ölçümlerden önce gaz giderme yapıldı. Deneylerde kullanılan UO_{2+x} tozları alümina bilyalarla sermik bir değirmende 4 saat süreyle öğütülüp 45 mikronluk eleklerden elendi. Sonra elekten geçen tozlar yani 45 mikronun altı deneylerde kullanıldı. Yine bu deneylerde kullanılan UO_{2+x} tozlarına ait x-ışını kırınımları şekil 3.1.4.de görülmektedir. Bu tozların görünür yoğunlukları $\sim 1 \text{ g/cm}^3$ ve içerdikleri nem miktarı da % 0.3 olarak bulundu. Görünür yoğunluklar bir cam ölçü kabına doldurulan tozun hiç sarsmadan kapladığı hacim ve bu tozun ağırlığından itibaren hesaplandı. Nem miktarı ise termogravimetrik analiz (TGA) eğrilerinden itibaren hesaplandı.

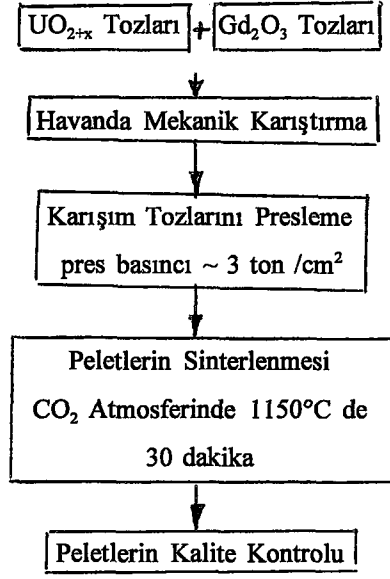
Bu çalışmada kullanılan Gd_2O_3 tozları Merck firmasının ürünü olup verilen değerlere göre safiyet oranı % 99.9 dur. Safsızlıkların büyük bir kısmını başta samaryum olmak üzere diğer nadir toprak elementlerinin oksitleri oluşturmaktadır. Termogravimetri incelemelerinden Gd_2O_3 ün içerdiği nem miktarı % 0.2 olarak bulundu. Bu tez çalışmasındaki deneylerde ağırlıkça % 0-10 aralığında Gd_2O_3 içeren 5 g lık peletler şekil 3.1.5. te görüldüğü gibi hazırlandı. Ayrıca tablo 3.1.2. de bu tez çalışmasındaki UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinin ağırlıkça % Gd_2O_3 oranları ve 5 g lık peletlerdeki UO_2 ve Gd_2O_3 ağırlıkları g olarak görülmektedir. Her bir pelet için UO_2 ve Gd_2O_3 tozları havanda mekanik olarak karıştırılıp hiçbir bağlayıcı ve yağlayıcı ilave edilmedi.



Şekil 3.13 Yüzey alanı cihazı



Şekil 3.14. UO_{2+x} x-ışını kırınımı



Şekil 3.1.5. Bu tez çalışmasındaki proses adımları.

Tablo 3.1.2. Bu tez çalışmasında kullanılan $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin ağırlıkça % Gd_2O_3 ve 5 g lık peletlerin ağırlık değerleri.

Pelet No	Ağırlıkça % Gd_2O_3	Gd_2O_3 (g)	UO_2 (g)
1	0.00	0.00	5.00
2	1.00	0.05	4.95
3	2.00	0.10	4.90
4	3.00	0.15	4.85
5	4.00	0.20	4.80
6	5.00	0.25	4.75
7	6.00	0.30	4.70
8	7.00	0.35	4.65
9	8.00	0.40	4.60
10	9.00	0.45	4.55
11	10.00	0.50	4.50

3.2. Tozların Preslenmesi

Yanabilir-soğurucu yakıtlardaki Gd_2O_3 miktarı genellikle ağırlıkça % 0-10 aralığında kullanıldığından bu tez çalışmasında bu aralık esas alınarak UO_2 - Gd_2O_3 peletleri hazırlandı.

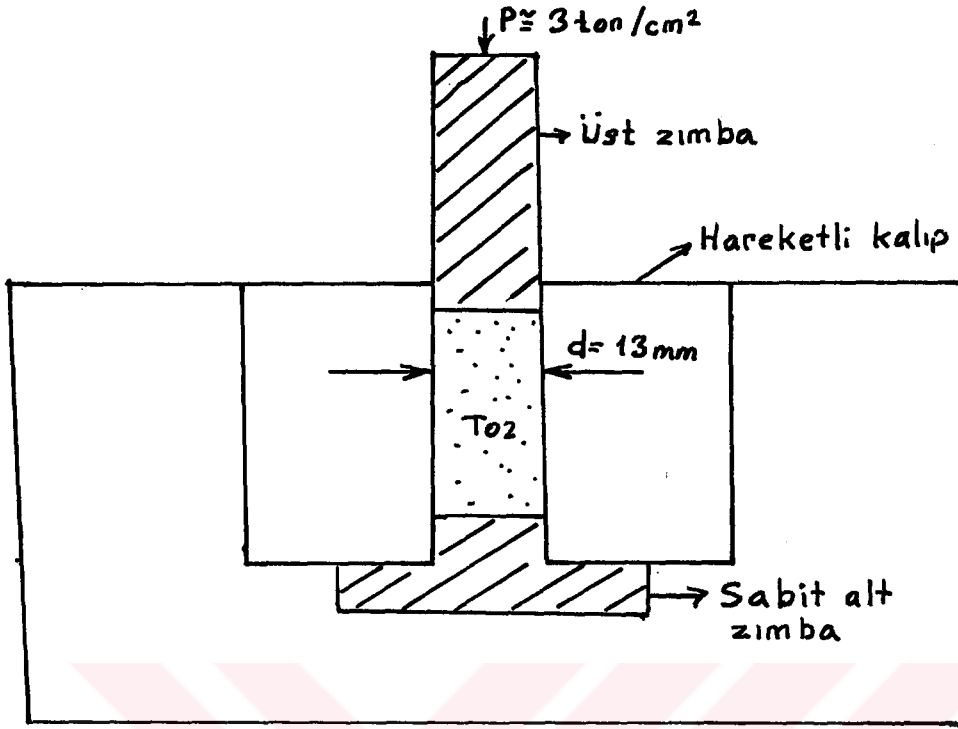
Bu toz karışımlarının şekillendirilmeleri için hareketli kalıp ve elpresi kullanıldı. Kalıp yüzeylerindeki sürtünmeyi azaltmak için etil alkol-çinko stearat solüsyonu ile kalıp yüzeyleri ıslatıldı. Tozların kalıba kesikli doldurulmaları ve presleme basıncında özellikle 3 ton/cm² nin üzerinde kesikli uygulanmasıyla ham peletlerde presleme yönüne dik yüzeylerde laminasyonlar oluşmakta, peletler kalıptan çıkarılırken bazen 2 bazende daha fazla parçaya ayrılmaktadır. Tozların preslenmesi ve tozun kalıba yüklenmesi çok dikkatli yapılmalıdır. Bu çalışmada peletlerde laminasyon oluşturmada sağlam ham peletler üretmek için tozlara en çok 3 ton/ cm² lik basınç uygulandı ve ~ % 50 teorik yoğunluklu ham peletler elde edildi. Tozlar iç çapı 13 mm olan silindirik kalıba bir defada kesintisiz yüklendikten sonra üst zımbanın aşağı doğru itilmesiyle sıkıştırılarak şekillendirilip silindirik peletler haline getirildi. Tüm peletlerde en düşük teorik yoğunluk aynı presleme koşullarında % 48 ile ağırlıkça % 10 Gd_2O_3 içeren peletlerde elde edildi. En yüksek yoğunluklarda saf UO_2 peletlerinde % 52 olarak bulundu. Şekil 3.2.1. te presleme düzeneği görülmektedir.

Tozlar preslendikten sonra kalıp yatağından alınıp sıkıştırma yönünde basınç uygulanarak peletler kalıptan çıkarıldı. Dışarı çıkarılan bu peletlerde önce geometrik hacim hesaplamalarından ve peletlerin ağılıklarından ham pelet yoğunlukları hesaplandı. Endüstriyel uygulamalarda presler otomatik olarak çalışmakta ve seri presleme yapılmaktadır. Presleme toz metalurjisinin en önemli adımlarından biridir. Ürünün presten sağlam ve istenilen ham yoğunluklarda çıkması istenir. Presin ve kalıp malzemelerinin cinsi, kalıp yüzeylerinin pürüzsüzlüğü, yağlayıcı ve bağlayıcılar ve nihayet preslenen tozun karakteristikleri preslemeye etkileyen önemli faktörlerdir.

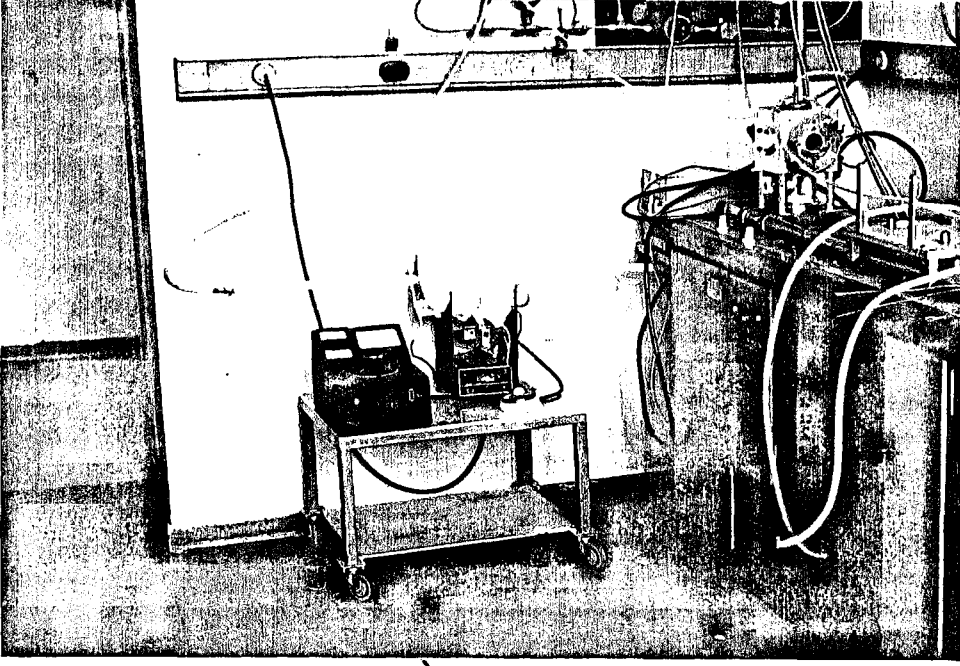
3.3. UO_2 - Gd_2O_3 Peletlerinin Düşük Sıcaklıkta Sinterlenmesi

Nükleer yakıt terminolojisinde düşük sıcaklık sinterlemesi 1200°C nin altında yapılan ve genelde saf UO_2 nükleer yakıt peletlerinin 1100°C civarında kısmen oksitleyici atmosferde sinterlenmesine verilen addır (Assmann et al,1985, Asmann et al,1986, Asmann et al,1988, Dörr et al, 1980).

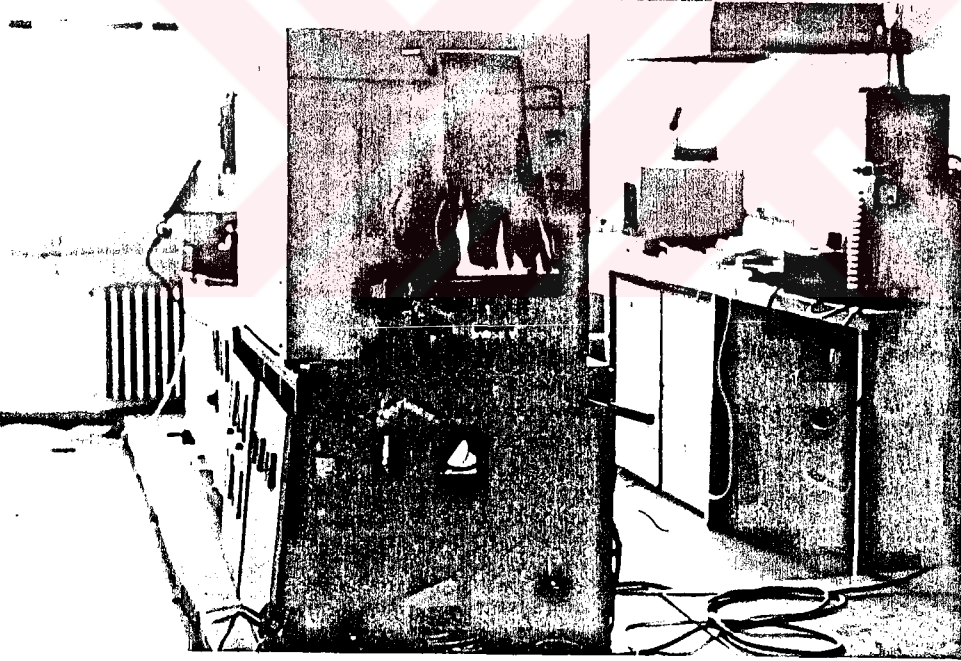
Bu tez çalışmasında ADU dan itibaren elde edilen UO_2 tozlarından ve Merck firmasından alınan Gd_2O_3 tozlarından itibaren hazırlanan peletler alümina battaniyeyle sarılarak şekil 3.3.1. de görülen sinter fırınına yerleştirildi. Sıcaklık ölçümleri numunelerin tam yanında Ni-NiCr termokupla yapıldı. Peletler fırına konulduktan sonra fırının içindeki havayı süpürmek için oda sıcaklığında 30 dakika süreyle CO_2 gazı fırından geçirildi. Daha sonra güç kontrol ünitesi vasıtasıyla her 20 dakikada 10 volt arttırılarak



Sekil 3.2.1. Presleme düzeneği

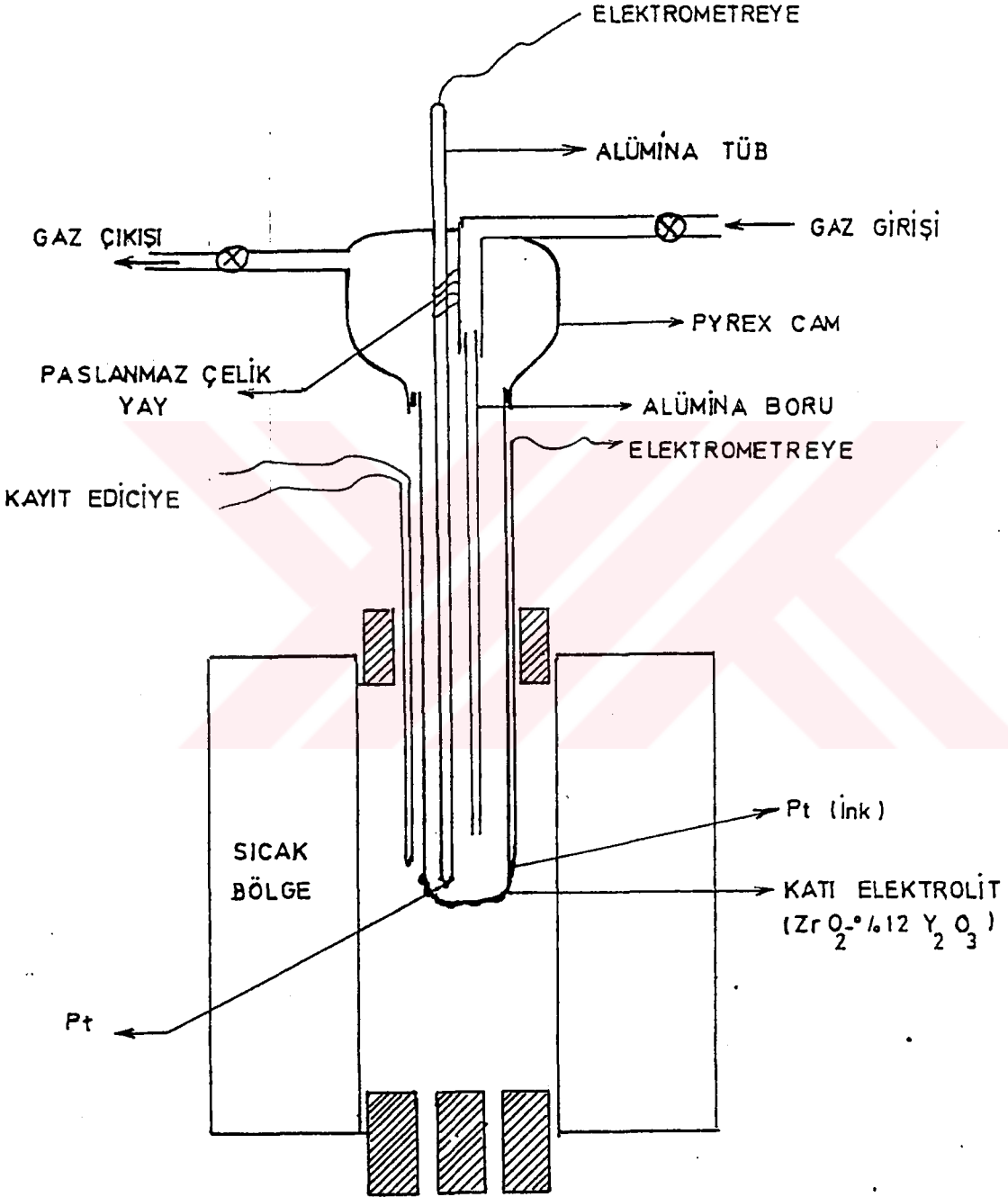


a)



b)

Şekil.3.3.1. a) Düşük , b) Yüksek Sıcaklık Sinterleme Fırınları



Şekil 3.3.2. Po_2 ölçüm ünitesi

fırın akış halindeki CO_2 atmosferinde ısıtmaya başlandı. ~ 120 voltta ve 5 amperlik güçte fırın 1150°C 'ye çıktı. Tüm ısıtma periyodu süresince CO_2 akışı sabit debide ~ 2 cc/saniye olarak ayarlandı. Isıtma hızı ~ $7^\circ\text{C}/\text{dakika}$ olarak ölçüldü. Peletler 30 dakika süreyle 1150°C 'de CO_2 atmosferinde bekletildikten sonra yine akış halindeki CO_2 atmosferinde ~ $10^\circ\text{C}/\text{dakikalık}$ soğutma hızıyla oda sıcaklığına söğütüldü. Fırın oda sıcaklığına soğutulduktan sonra kapaklar açılıp peletler dışarı alındı. Peletlerde ilk yapılan makro muayenelerde gadolinyum miktarının artışıyla büzülmenin azaldığı gözlemlendi. Bu tez çalışmasında kullanılan CO_2 gazı Habaş firmasından teknik CO_2 olarak satın alınmıştır. Endüstriyel uygulamalarda da teknik safiyetteki CO_2 yeterli olmaktadır (Asmann et al, 1985). Bu CO_2 gazında katı elektrolitik hücre vasıtasıyla yapılan ölçümde $\text{PCO}_2 = 2.7 \cdot 10^{-6}$ olarak ölçüldü. Katı elektrolitik hücre olarak Y_2O_3 ile stabilize edilmiş ZrO_2 kullanıldı. Şekil 3.3.2. de bu düzenek görülmektedir.

Saf UO_2 peletlerinin düşük sıcaklıkta sinterlenebilmeleri son senelerde geliştirilen bir teknikle mümkün olmuştur (Dörr et al, 1980). Düşük sıcaklık sinterlemesinde sinterlenen malzemenin kafes yapısında sinter atmosferleri vasıtasıyla hata yaratılarak veya bazı katışıklarla hata yaratılarak difüzyon mekanizmaları değiştirilir ve düşük sıcaklık sinterlemesi gerçekleştirilir (Ganguly, 1990, Basak, 1987).

Bu tez çalışmasındaysa $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletleri saf UO_2 peletlerine uygulanan düşük sıcaklık sinterlemesi koşullarında sinterlendi. Literatürde saf UO_2 peletlerinin düşük sıcaklıkta sinterlenmeleriyle ilgili çalışmalar olmasına rağmen $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin düşük sıcaklık ta sinterlenmeleriyle ilgili çalışmalara rastlanmadı. Bu nedenle bu tez çalışmasındaki neticeleri literatür değerleriyle kıyaslamak ancak literatürde; yüksek sıcaklıkta sinterlenen $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ peletlerinin neticeleriyle yapıldı (Yuda et al, 1991, Ho et al, 1985, Ohmichi et al, 1981, Une et al, 1985). Literatür verilerindeki çalışmalarda sinter sıcaklıkları 1650°C nin üzerinde olup sinter yoğunluklarının teorik yoğunluklara oranı sinter atmosferi, Gd_2O_3 miktarı, sinter sıcaklığı ve sürelerle bağlı olarak en düşük % 10 Gd_2O_3 içeren peletlerde % 85 ve en yüksek de hiç Gd_2O_3 içermeyen peletlerde %96 olarak bulunmuştur.

Tablo 3.3.1.de bu tez çalışmasında bulunan % teorik yoğunluklarla bu değerlerin % Gd_2O_3 miktarıyla değişimleri ve şekil 2.1.4.2.de de bu çalışmada bulunan değerlerle literatür değerlerinin kıyaslaması görülmektedir.

Bu çalışmada bir kıyaslama oluşturmak için de %0-10 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri $10^\circ\text{C}/\text{dak}$ ısıtma hızıyla 1700°C 'ye H_2 atmosferinde ısıtılarak 1700°C 'de 4 saat süreyle sinterlenerek yoğunluk ölçümleri yapıldı ve bulunan yoğunluk değerlerinin (Ho et al, 1986) ile çok yakın olduğu gözlemlendi. Ayrıca %2 ve %5 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri $600\text{-}1150^\circ\text{C}$ sıcaklık aralığında sinterlemesi CO_2 atmosferinde yapılarak yoğunluk ölçümleri yapıldı. Şekil 2.1.4.3.'te %2 Gd_2O_3 ve %5 Gd_2O_3 içeren peletlerin farklı sıcaklıklarda sinterlenmesiyle elde edilen yoğunluk neticeleri görülmektedir. Burada da Gd_2O_3 miktarının artışıyla yoğunluk düşüşü arasında paralel bir ilişki görülmektedir.

Tablo 3.3.1. % Gd_2O_3 miktarıyla UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinde
% teorik yoğunluk değişimi.

% Gd_2O_3	Sinter sonrası % Teorik yoğunluk
0.00	98.50
1.00	92.25
2.00	89.71
3.00	85.18
4.00	84.07
5.00	83.05
6.00	79.12
7.00	78.63
8.00	75.34
9.00	73.70
10.00	72.28

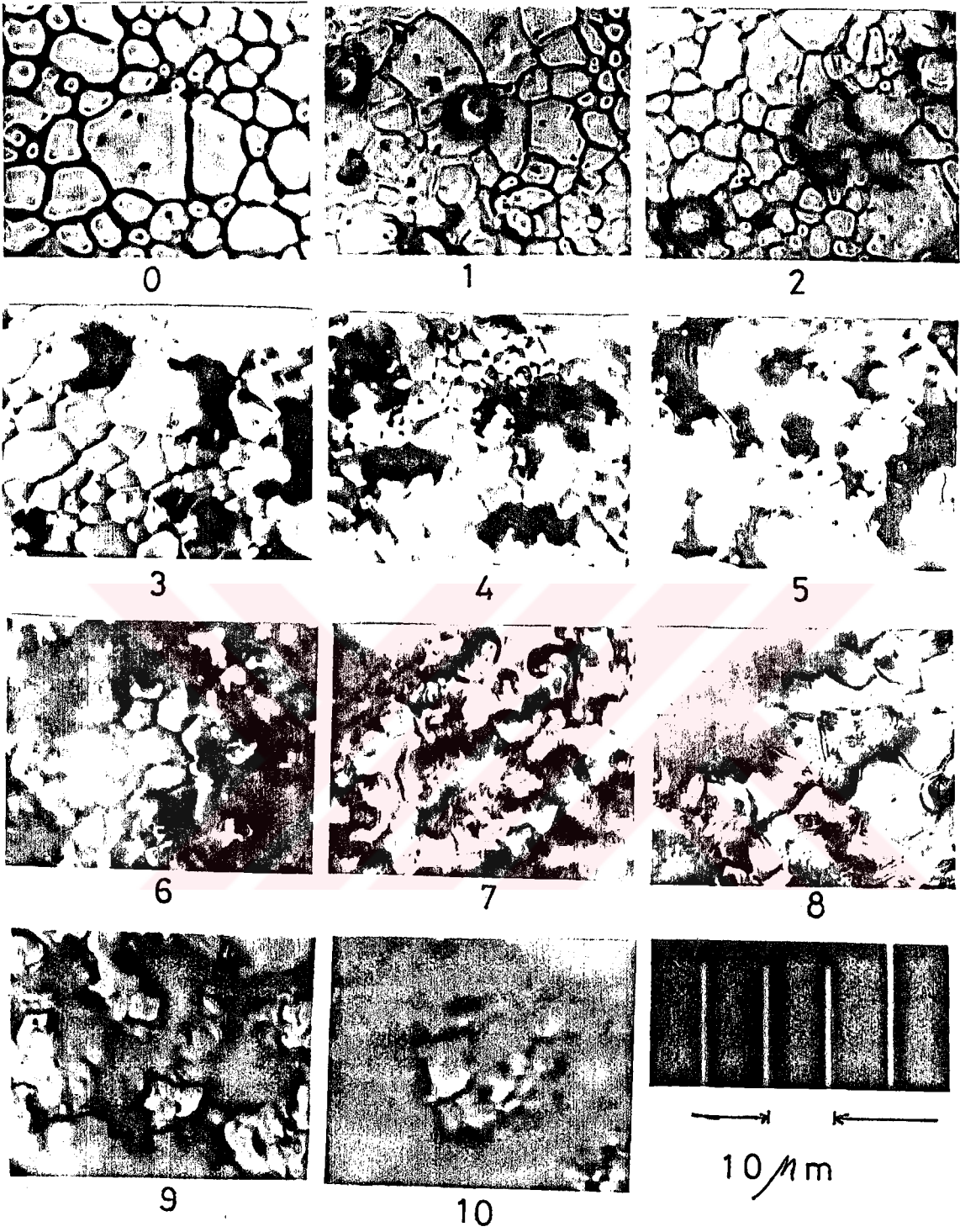
Peletlerin yoğunlukları önce geometrik olarak hacim ve ağırlıklardan sonrada Arşimet prensibine göre ksilol içerisinde yapılmaktadır (Dörr et al,1979). Geometrik yoğunluk ölçümleriyle Arşimet prensibine göre yapılan ölçümler arasında en çok % 0.5 lik farklılıklar bulundu ve ortalama yoğunluk değerleri sonuç olarak alındı.

3.4. UO_2 - Gd_2O_3 Peletlerinde Mikroyapı İncelemeleri

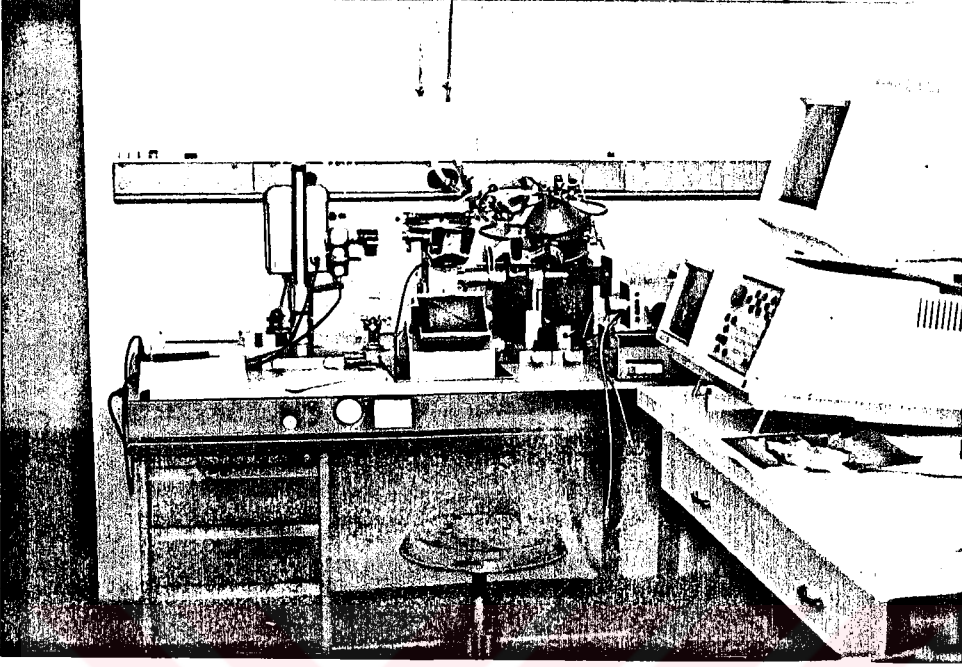
Düşük sıcaklıkta CO_2 atmosferinde sinterlenen ve % 0-10 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinin mikroyapı incelemeleri seramografi teknikleriyle yapıldı. Seramografik incelemelerde metalografide olduğu gibi önce parlatma ve dağlama yapıp daha sonra mikroyapı incelemelerine geçilmektedir. Ancak düşük sıcaklık sinterlemesinde CO_2 atmosferinde özellikle saf UO_2 peletleri termal olarak dağlandıklarından yeniden bir dağlama işlemine gerek kalmadan doğrudan mikroyapı incelemelerine geçilebilmektedir. Bu nedenle bu tez çalışmasında da UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinin mikroyapı incelemeleri için yeniden parlatma ve dağlama yapılmadan doğrudan incelemelere geçildi. Çünkü taneler,tane sınırları,porlar por dağılımları ve boyutları gibi mikroyapıyı karakterize eden özellikler ışık mikroskobunda çok net bir şekilde görülmekteydi.

Bu peletlerin mikroyapı incelemeleri Reichert marka optik mikroskopta yapıldı. Her bir peletin ayrı ayrı fotoğrafı çekilerek % Gd_2O_3 miktarına bağlı mikroyapı değişiklikleri incelendi. Yapılan mikroyapısal incelemelerden görüldü ki Gd_2O_3 miktarı arttıkça mikroyapıda UO_2 alanları hızla küçüldü. UO_2

alanlarındaki bu azalış hızının Gd_2O_3 miktarının artış hızından daha fazla olduğu gözlemlendi. Örneğin % 1 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinde UO_2 alanı ~ %92 ve Gd_2O_3 alanıda ~ %8 olarak bulundu. %10 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerindeyse bu oranlar; ~ %15 UO_2 alanı + ~ %85 Gd_2O_3 ve diğer alanlar olarak bulundu. Alan analizi hesaplamaları Optomax marka cihazda yapıldı. Şekil 3.4.1. de Gd_2O_3 miktarına bağlı olarak düşük sıcaklıkta CO_2 atmosferinde yapılan sinterlemeyle elde edilen bu tez çalışmasındaki peletlere ait mikroyapı incelemeleri görülmektedir. Şekil 3.4.2'de mikroyapı incelemelerinin yapıldığı mikroskop ünitesi görülmektedir. Bu fotoğraflardanda açıkça görüldüğü gibi saf UO_2 peletlerinde iki farklı boyutta taneler vardır. Bu saf UO_2 peletinin teorik yoğunluğu % 98.5 olarak ölçüldü. Saf UO_2 peletinde genellikle tanelerin içinde mikronaltı bir veya birkaç por görülmektedir. Tane sınırları çok belirgin olup en büyük tane boyutu 20 mikron , en küçüğü de 2-3 mikron civarındadır. Aynı UO_{2+x} tozundan yüksek sıcaklık sinterlemesinde elde edilen peletlerde teorik yoğunluk değeri %93 olarak bulundu. Mikroyapı incelemelerinden varılan bir başka sonuçta mekanik karıştırma ile Gd_2O_3 ün yapı içerisine homojen dağıtılması mümkün oldu.



Sekil 3.4.1 % Gd_2O_3 -Mikroyapı ilişkisi



a)



b)

Şekil 3.4.2. a)Mikroskop ünitesi, b)peletler

4.0. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Bu tez çalışmasında % 0-10 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinin düşük sıcaklıkta $1150^\circ C$ de CO_2 atmosferinde sinterlemesi yapılarak yoğunluk ve mikroyapısal değişiklikler incelendi. Gd_2O_3 miktarının artışı yoğunluklarda ve mikroyapıdaki UO_2 alanlarında hızlı bir düşüşe neden oldu. Literatürdeki çalışmalarda $(U,Gd)O_2$ katı eriyiğinin $1200^\circ C$ 'nin üzerinde oluşmaya başladığı belirtilmektedir (Yuda et al,1991). Ancak literatürde bu tez çalışmasıyla kıyaslanabilecek koşullarda yapılmış deney ve neticelere rastlamamama rağmen bulduğum neticeleri literatürde yüksek sıcaklıklarda ve farklı atmosferlerde yapılan neticelerle kıyasladım. Saf UO_2 peletlerinde bu çalışmada ilk defa tarafımdan düşük sıcaklık sinterlemesi için UO_{2+x} tozlarında x değeri >0.25

olarak alınıp sinterleme yapıldı. Ancak literatürde düşük sıcaklık sinterlemesi için $x \leq 0.25$ olması gerektiği belirtilmektedir (Chevrel et al, 1992). Bu tez çalışmasında ise $x=0.3$ alınarak düşük sıcaklık sinterlemesi yapıldı ve çok yüksek yoğunluklarda saf UO_2 peletleri elde edildi. Bulunan sinter yoğunluklarına literatürde hiçbir düşük sıcaklık sinterlem değeri erişememiştir (Chevrel et al,1992 , Dörr et al, 1980). Bu neticeden hareketle $x=0.3$ alınarak düşük sıcaklıkta saf UO_2 peletleri sinterlenerek %98 in üzerinde teorik yoğunluklara sahip peletler üretilebilir. Bu çalışmada $x=0.3$ değerinde %2 ye kadar Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinde düşük sıcaklık sinterlemesiyle yoğunluk değerleri kabul edilebilir sınırlar içerisinde bulundu. Ancak daha fazla Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinde yoğunluklar reaktör koşulları için istenilen seviyelerde olmadı.

Sonuç olarak %2 ye kadar Gd_2O_3 ; UO_{2+x} tozlarına karıştırılarak düşük sıcaklık sinterlemesiyle $1150^\circ C$ 'de CO_2 atmosferinde %90'ın üzerinde teorik yoğunluklara sahip UO_2 - Gd_2O_3 peletleri üretilebilir. UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinin düşük sıcaklıkta özellikle %2'den fazla Gd_2O_3 içeren peletleri sinterlemek için başka yöntemler (Nb_2O_5 , MgO veya CaO gibi bazı katışkıların ilavesi ve/veya farklı sinter atmosferleri kullanmak) gereklidir. Düşük sıcaklıkta sinterlenen UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinde mikroyapıda UO_2 alanının toplam alana oranı için ; UO_2 alanı= $100 - 8 * \%Gd_2O_3$ şeklinde bir bağıntı bulundu. Ayrıca peletlerin fırına bir seramik battaniyeye sarılarak konulmaları fırın içerisinde homojen gaz dağılımı sağlamak ve peletlerin termal şoka uğrama risklerini azaltmaktadır. Düşük sıcaklık sinterlemesinde malzeme, zaman ve enerjiden tasarruf sağlanmaktadır.

Mikroyapısal incelemeler için CO_2 atmosferinde $1150^\circ C$ 'de sinterlenen peletlerde hiçbir ilave parlatma ve dağlama işlemine gerek yoktur.

Peletlerin yoğunluklarıyla % Gd_2O_3 miktarı arasında düşük sıcaklık sinterlemesinde ters bir ilişki olmasına karşın yüksek sıcaklıkta yapılan sinterlemede % Gd_2O_3 miktarı yoğunluk değişimine belirgin bir etki etmemektedir.

Ayrıca iki farklı oranda %2 ve %5 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinin $600^\circ C$ 'den başlayarak $1100^\circ C$ 'ye kadar CO_2 atmosferi altında yapılan sinterleme deneylerinde de %2 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerindeki

yoğunluk artışı, %5 Gd_2O_3 içeren UO_2 peletlerinden daha hızlı olmuştur. Bu da Gd_2O_3 miktarının artışının UO_2 peletlerinde düşük sıcaklık sinterlemesinde yoğunluk düşmesine neden olduğu görüşünü doğrulamaktadır. Yüksek sıcaklık sinterlemelerinde ise yine %0 - 10 aralığında Gd_2O_3 içeren UO_2 peletleri hidrojen atmosferi altında $1700^\circ C$ 'de 4 saat süreyle sinterlenerek yoğunluk ölçümleri düşük sıcaklık sinterlemesindeki UO_2 - Gd_2O_3 peletlerinde olduğu gibi hem geometrik ölçümlerde hem de Arşimed prensibine göre yapıldı. Yüksek sıcaklık sinterlemesinden elde edilen peletlerdeki yoğunluk değerleri (Ho et al, 1986) ile çok yakın benzerlikler gösterdi. Ancak düşük sıcaklık sinterlemesindeki yoğunluk değerleri ise % Gd_2O_3 miktarının artışıyla ters orantılı bir şekilde azaldı. Mekanik karıştırma ile yeterli homojen mikro yapının sağlandığı gözlemlendi. Ancak düşük sıcaklık sinterlemesinde UO_2 ile Gd_2O_3 $1150^\circ C$ 'de herhangi bir katı eriyik oluşturmadığından Gd_2O_3 yapı içerisinde serbest halde kaldı. Bu da göstermektedir ki UO_2 - Gd_2O_3 sisteminde düşük sıcaklık sinterlemesiyle elde edilen peletlerin iki fazlı bir yapıdan oluştuğu yani $UO_2+Gd_2O_3$ sinter öncesi yapısının korunduğu görüldü. UO_2 - UO_2 tozları arasında sinterleme gerçekleştiği halde UO_2 - Gd_2O_3 sinterleşmesi gerçekleşmedi.



KAYNAKLAR

- 1 - Amato, I.,1971. Proc.4th.Intern. Conf. Peaceful Uses At. En. Geneva , Paper Nr: 181
- 2 - Assmann, H., Dörr,W. and Peehs, M.,1985.J. Nucl. Mater. 106:211
- 3 - Assmann, H., Dörr,W. and Peehs, M.,1986. J.Nucl.Mater. 140:1
- 4 - Assmann, H., Peehs,M and Röpenack, H.,1988. J.Nucl.Mater. 153:115
- 5 - Basak, U.,1987. Preparation and Sintering of Th Based Ceramic Nuclear Fuels. M.Sc (Tech). Thesis University of Bombay.
- 6 - Beals, R.J.and Handwerk, J.H.,1965. J. Amer. Ceram. Soc.48:271-4
- 7 - Beals, R.J., Handwerk, J.H. and Wrona B.J.,1969. J.Amer Ceram. Soc.52:578-81
- 8 - Brunauer, S., Emmert, P.H. and Teller, E.,1938. J. Amer. Chem. Soc. 60: 309
- 9 - Case,E. , Smyt, j. and Hunter, O.,1991. Microcracking Behavior of Monoclinic Gd₂O₃. J.Nucl.Mater., 102:132-42
- 10 - Chevrel, A., Dehaut, P., Francois, B. and Baumard,J.F. 1992, J.Nucl.Mater. 189: 175-82
- 11 - Contribution of Russian Federation to CRP on BAF
- 12 - Davis, H.H. and Potter, R.A. 1978. Mater.Sci.Res. 11:515
- 13 - Dole,S.L. and Hunter, O. 1956. J.Nucl.Mater. 59:207-14
- 14 - Dörr, W., Assman, H. Maier, G. and Steven, J. 1979. J.Nucl. Mater. 81:135-41
- 15 - Dörr,W. and Assman, H. 1980. Energy and Ceramics Elsevier Public.Co :913
- 16 - Ferguson, D.E., Dean, Q.C. and Haas , P.A. 1961. CEND-153 1:23-38
- 17 - Ferguson, D.E., Dean, Q.C. and Douglas, D.A. 1964.Third Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy .,USA P 1237:307-313 18 - Ferguson, D.E., 1970. Progress in Nuclear Energy, Series 3 Vol.4 Process Chem.:37-78
- 19 - Flipot, A.J., Delbrassine, A. and Gilissen, R., 1971. Nucl. Eng.Int. 16: 23-38
- 20 - Fukushima, S., Ohmichi, T. , Maeda, A. and Watanabe, H. 1982, J. Nucl.Mater. 105: 201-210
- 21 - Ganguly, C. 1990. Res.and Dev. on Fabrication, Characterization and in Pile Performance of Th Fuels., BARC(1432):38 22-Ganguly, C. and Basak, U., 1991. J.Nucl.Mater. 178:179-183
- 23 - Goldschmidt, V.M., Ulrich, F., and Barth, T. 1925. Norske Videnskaps-Akad. Oslo.I. Mat.Naturv.Kl, 5:5-25
- 24 - Grossman, L.N., Packard, D.R., and Hill, H.W., 1972. Colloq. Intern.Centre. Natl. Rech. Sci. Paris Nr.205: 631-633

- 25 - Guenduez, G., O Neael, I. and Durmazuçar, H.H., 1991. J. Nucl. Mater. 178:212-216
- 26 - Guentert, O.J., and Mozzi, R.L., 1958. Acta.Cryst. 11:746
- 27 - Haas, P.A., Clinton, S.D. and Kleinsteinuber, I. 1964. Prod. Res.Dev.5(3): 236-244
- 28 - Haas, P.A., Clinton, S.D. and Kleinsteinuber, I. 1966. Can. J. Eng. Dec:348-353
- 29 - Haeldahl, L. and Erikson, S., 1988., J. Nucl.Mater. 153-66
- 30 - Haglund, J.A. and Hunter, O. 1973.,J.Amer.Ceram. Soc. 56(6):327-330
- 31 - Handbook on Special Refractory Elements and Compositions Metallurgia, 1969. Moscow
- 32 - Ho, S.M. and Radford, K.C. 1986. Nucl.Tech. 73:350
- 33 - IAEA-TECDOC-584 , 1991. Guidebook on QC of MOX and Gd Bearing Fuels
- 34 - Keller, C., Bailar, J.C., Emeleus, H.J., Nyholm, R.and Dickinson-Trotman, A.F. 1973. Comprehensive Inorg.Chem. Bd.5 Pergamon, Oxford 262
- 35 - Littlechild, J.E., Buttler, G.G. and Lester, G.W. 1973. Proc. Int.Conf. on Nucl. Fuel Performance London Paper 65
- 36 - Manzel, R. and Dörr, W. !980. Amer.Ceram. Soc.Bul.59: 601-616
- 37 - Matthews, R.B.,and Hat, P.E. 1980. J.Nucl.Mater. 92:207-216
- 38 - Matzke, H.J. 1979. Proc.Int.Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, 202
- 39 - Matzke, H.J. 1982. EUR.7700: 139
- 40 - Mughabab, S.B.1984. Neutron Cross Sections, Newyork-London Academic Press. V.1, part:8
- 41 - Newman, L., 1984. Thermal and Physical Properties of Urania-Gadolinia, Babcock & Wilcox Utility Power Generation, Rep. RAW-1759
- 42 - Ohmichi, T. Fukushima, S., Maeda, A. and Watanabe, B., 1981. J.Nucl.Mater. 40:102-120
- 43 - Radkowsky, A., 1964. Naval React.Phys.Handbook 1 Kap.4-7
- 44 - Riella, H.G., Durazzo, M., Hirata, M. and Nogueisa, R.A. 1991. J.Nucl.Mater. 178:204-212
- 45 - Roth,R.R. and Schneider, S.J. 1960. J.Res.Natl.Std.64A-309-316
- 46 - Schafer,M.W. and Roy, R. 1959. J.Amer.Ceram.Soc. 42:563-570
- 47 - Stuart, W.I. and Adams, R.B. 1975. J.Nucl.Mater. 58:201
- 48 - Une, K. and Ogume, M., 1985. J.Nucl.Mater. 131:88
- 49 - Wada, T.,Noro, K. and Tsukui, K.,1973. Nucl.Fuel Perform. Proc.Intern. Conf. London , 631-633

- 50 - Warschaw, I. and Roy, R. , 1961. J.Phys.Chem. 65(11): 2048-51
- 51 - WREBUS-IAEA, 1992. Technical Report Series No:343, Water Reactor Fuel Extended Burnup Study
- 52 - Yamagishi, S. and Yoshihisa, T., 1985. J. Nucl. Sci. 22:995 - 1000
- 53 - Yaylı, A. Aybers, M.T. ve Çolak, L., 1987. Termogravimetrik Metotla O/U Oranının Tayin Edilmesi ÇNAEM-39
- 54 - Yaylı, A., Yurtseven, İ. ve Cimcim, K., 1993. UO₂ nin Düşük Sıcaklıkta Sinterlenmesinde O₂ Kısmi Basıncının Sinterlemeye Etkisi, 6.Ulusal Nükl.Bil.Kong.Bursa
- 55 - Yuda, R. and Une , K. , 1991. J.Nucl.Mater. 178:195
- 56 - Zimmer, E., Naefe ,P. and Ringel, H.D., 1975. Trans. Amer. Nucl.Soc. Vol 20: 591-593
- 57 - Zimmer, E. and Naefe, E. ,1979. Nucl.Tech.42: 163-171
- 58 - Zimmer, E. and Ringel, H.D. , 1979. Nucl.Tech. 45:287-295

TÜRKİYE KÜLTÜR VE TURİZM BAKANLIĞI
MİLLÎ EĞİTİM BAKANLIĞI
MANTASYON MÜHÜRÜ

ÖZGEÇMİŞ

AHMET YAYLI

Doğum Tarihi : 1 Ocak 1956

Doğum Yeri : Vakfıkebir - TRABZON

İlkokul : Kalegüney Köyü - Dağmahalle İlkokulu - 1968

Ortaokul : Trabzon Cumhuriyet Ortaokulu - 1971

Lise : Trabzon Lisesi - 1974

Lisans : İTÜ Metalurji Fakültesi - 1981

Çalışmaları : 1983'ten beri Çekmece Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezinde çalışmaktadır.
1988'de 1 yıl Karlsruhe Nükleer Araştırma Merkezi, 1990'da 1 yıl Stuttgart
Üniversitesinde araştırma çalışmalarında bulundu.