

用尿素作沉淀剂进行 ADU 沉淀的工艺研究

朱常桂 缪运胜

(中国核动力研究设计院, 成都, 610005)

研究了用尿素溶液作沉淀剂在 $UO_2(NO_3)_2 \cdot (UNH)$ 溶液中制备重铀酸铵(ADU)沉淀物的初步工艺。获得了反应温度、UNH 浓度、尿素加入量及反应时间对 ADU 沉淀的影响规律。采用该工艺, 制得了性能良好的 ADU 粉末。

关键词 尿素 ADU 沉淀 ADU 粉末 UO_2 粉末

中图法分类号 TL 213.1 O 623.542

陶瓷级 UO_2 粉末是制备核燃料元件的重要物料。其湿法制备流程主要有 ADU 流程和 AUC(三碳酸铀酰铵)流程。工业上采用的 ADU 流程是以 UF_6 或 UNH 为原料, 与 NH_4OH 反应生成 ADU 粉末。这些 ADU 粉末一般由微米级的一次团块和几十微米的二次团块组成, 这些团块直接影响所得到的 UO_2 粉末乃至 UO_2 烧结芯块的性能。为消除这些团块的存在, 进行了采用尿素溶液作沉淀剂从 UNH 溶液中制备 ADU 的初步工艺研究。

1 实验方法

沉淀反应器为高腰烧杯, 用油浴加热控温, 可调速搅拌器搅拌。

尿素进行 ADU 沉淀的机理是: 溶解于水溶液的尿素在一定温度下水解为 NH_3 和 CO_2 , CO_2 在酸性溶液中溶解度很小, 因而从溶液中释出; 而 NH_3 则溶于水溶液中, 使体系中的 pH 值缓慢地均匀地增加, 从而均匀生成 ADU 沉淀。

实验方法为: 将 400 mL UNH 溶液加入到 800 mL 的高腰烧杯中(这种 UNH 溶液不能有固体杂质), 滴加 25% 的氨水并进行搅拌, 直到最初生成的沉淀又溶解为止。此时, UNH 溶液的 pH 值约为 3。将盛有该 UNH 溶液的高腰烧杯放入恒温油浴中加热至一定温度, 加入一定体积和浓度的尿素热溶液。在此温度下, 尿素开始缓慢水解, 所释放的 NH_3 被吸收, UNH 溶液 pH 值随之升高, 生成 ADU 沉淀。在 ADU 晶种产生后及颗粒长大期间, 要充分搅拌。为避免所生成的 ADU 颗粒聚结, 沉淀反应完成后, 应立即过滤。滤饼用冷水洗涤, 并用丙酮或酒精脱水, 得到松散无团块聚结的 ADU 粉末。

朱常桂: 男, 47 岁, 核化学化工专业, 副研究员

收稿日期: 1997-01-21 收到修改稿日期: 1997-03-24

2 结果与讨论

1) 反应温度的影响 温度直接影响尿素的水解速度。温度越高, 尿素水解速度越快, 相当于沉淀剂氨水的加入速率越高。同时, 高温也有利于颗粒长大。实验表明, 反应温度在 85—100 之间变化时, 对 ADU 粒度无明显影响。温度较高, 反应时间缩短, 但高温蒸发快, 使得 ADU 浆体过稠; 低于 80 , 反应时间过长, 超过 2 h 反应仍未进行完全。反应温度控制在 90—95 为宜。

2) UNH 浓度的影响 UNH 浓度在 0.3—0.8 mol/L 范围内变化时, ADU 粒度及母液中的铀含量随 UNH 浓度的增高而降低; UNH 浓度越高, 生产能力越大, 但易使 ADU 浆体过稠, 搅拌困难。UNH 浓度控制在 0.4—0.5 mol/L (95—120 g/L) 范围内为宜。

3) 尿素加入量的影响 ADU 粒度及母液中的铀含量随尿素加入量的增加而减小, 当反应温度为 94 , UNH 浓度为 0.5 mol/L, 尿素中的氨与铀的摩尔比为 10 时, 母液中铀含量降至 250 mg/L, 此时 pH 值为 5.7; 再加大氨与铀的摩尔比, 母液中铀含量并无明显降低, 且 pH 值也无明显升高。

4) 反应时间的影响 沉淀剂 NH_3 是由尿素水解而获得的, 由于尿素完全水解所需时间较长, 所以沉淀反应时间也较长。当反应温度为 94 时, 沉淀反应需 90 min 方可认为完全。

3 结论

1) 用尿素进行 ADU 沉淀时, 由于 ADU 沉淀是均匀过程, 所以, ADU 沉淀颗粒表面光滑, 粒度分布较窄, 平均颗粒尺寸为 10 μm 左右, 没有团块形成; 且滤饼容易过滤, 再现性好, 工艺条件容易控制。

2) 所制备的 UO_2 粉末具有很好的陶瓷性能, 压制烧结实验结果表明, UO_2 芯块烧结密度为 96 % T. D. 左右, 且有很好的微观结构。

参 考 文 献

- 1 蔡文仕, 舒保华. 陶瓷二氧化铀制备. 北京: 原子能出版社, 1987. 8

THE TECHNICAL RESEARCH OF ADU PRECIPITATION IN UREA PRECIPITANT

Zhu Changgui Miao Yunsheng

(Nuclear Power Institute of China, P. O. Box 291-106, Chengdu, 610005)

ABSTRACT

The paper introduces the basic technical research of ADU precipitation which is prepared in $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ and urea solution. The effects of reaction temperature, UNH concentration, urea amounts and reaction period on the ADU precipitation is researched, and ADU powder with good technological properties is prepared.

Key words Urea ADU precipitation ADU powder UO_2 powder