

# 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  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  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  $\text{NH}_3$  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  $\mu\text{m}$  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  $\text{UO}_2$  粉末具有很好的陶瓷性能, 压制烧结实验结果表明,  $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$  powder