

CN9100174

CNIC-00322

TU-0009

# 中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

三碳酸铀酰铵流化床分解-还原制备二氧化铀的研究

CONVERSION OF AMMONIUM URANYL

CARBONATE TO  $UO_2$  IN A

FLUIDIZED BED

(In Chinese)



原子能出版社

中国核情报中心

China Nuclear Information Centre

CNIC-00322

TU-0009

三碳酸铀酰铵流化床分解-还原  
制备二氧化铀的研究

CONVERSION OF AMMONIUM URANYL  
CARBONATE TO  $UO_2$  IN A  
FLUIDIZED BED

*(In Chinese)*

赵 琚 邱履福 钟 兴 许贺卿

(天津大学)

中国核情报中心

原子能出版社

北京·1989.11

## 摘 要

以三碳酸铀酰铵 (AUC) 分解-还原的热力学与动力学数据为依据, 在内径  $\phi 60\text{mm}$  单级流化床中进行了 AUC 分解-还原制备  $\text{UO}_2$  的工艺研究。以  $\text{N}_2$ 、Ar 及 AUC 分解尾气经催化裂解、转化得到的含  $\text{H}_2$  和  $\text{CO}$  的混合气 (循环气) 作为流化气, 研究了反应温度、流化气组成及流化速度对转化率的影响。在温度  $\geq 570^\circ\text{C}$  情况下, 以循环气或循环气与 Ar 的混合气流化时, 设备生产能力达到了  $3.32\text{kg}(\text{湿料})/(\text{h}\cdot\text{L})$  的较高水平。

**关键词:** 三碳酸铀酰铵 分解 还原 二氧化铀 流化床反应器

# CONVERSION OF AMMONIUM URANYL CARBONATE TO $UO_2$ IN A FLUIDIZED BED

Zhao Jun    Qiu Lüfu    Zhong Xing    Xu Heqing

(Tianjin University)

## ABSTRACT

The conversion of AUC (Ammonium Uranyl Carbonate) to  $UO_2$  was studied in a fluidized bed of 60mm inner diameter based on the thermodynamics and kinetics data of decomposition-reduction of AUC. The influence of the reaction temperature, composition of fluidization gas and fluidization velocity on conversion were investigated by using  $N_2$ , Ar and circulation gas (mixing gas of  $H_2$  and CO obtained from the exhaust gas of the decomposition of AUC by catalyst crack-conversion) as the fluidization gas. The throughput is up to the high levels (3.32kg(wet)/h · L) by using circulation gas or mixing of circulation gas and Ar (<21%) as the fluidization gas when the reaction temperature exceeds 570°C.

## 一、前言

在核燃料生产过程中,三碳酸铀酰铵(以下简称AUC)作为生产铀氧化物 $UO_2$ 的起始核纯化合物日益得到广泛的重视和工业应用。采用AUC作为中间产品的核燃料转化过程,结晶过程中具有纯化能力高、沉淀易过滤,由AUC制得的 $UO_2$ 具有良好的反应性及制备陶瓷元件的烧结性、流动性好等独特优点。

实现AUC转化流程的关键过程是AUC的热分解及其热解产物的还原。本研究以AUC的分解-还原热力学与动力学数据为依据,在直径 $\phi 60\text{mm}$ 的单级流化床中进行了AUC分解-还原制备 $UO_2$ 的工艺研究,其工艺特点是利用AUC分解产生的 $NH_3$ 经裂解,转化得到含有还原性较强的CO与 $H_2$ 的混合气作为流化气,不仅省去了外加流化气,而且还使反应温度有所降低,反应速度明显加快。

## 二、理论分析

### 1. AUC分解-还原的热力学与动力学分析

以AUC制备 $UO_2$ 包括实现下述2个化学反应过程,即AUC的热分解及其热解产物的还原。AUC的分解-还原反应是一系列复杂的气固反应过程。AUC在不同气氛中的热重曲线(图1)表明,AUC的热分解大致可分为以下几个阶段<sup>[1]</sup>:

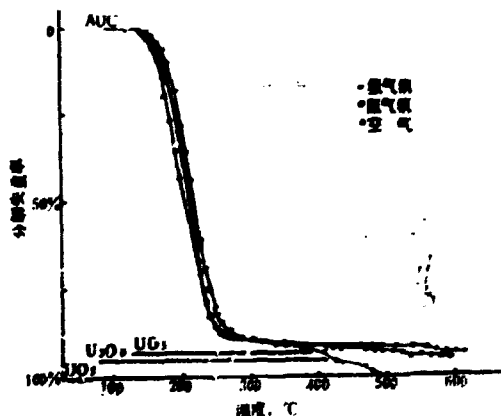


图1 AUC在不同气氛中分解的热重曲线

#### (1) AUC的热分解 ( $< 380^\circ\text{C}$ )

AUC分解是一个吸热量很大的反应,其分解热约为 $502\text{kJ/mol}^{[2, 3]}$ 。AUC结晶通常含约8%的湿存水,若在 $550^\circ\text{C}$ 下热分解,则每千克AUC的分解吸热量约为 $1604\text{kJ}$ ,这是一个很可观的吸热量。AUC分解的第一阶段(分解率至90%)的分解速度远大于第二阶段的分解速度,反应速度由新相成核和结晶生长速度控制<sup>[4]</sup>,动力学方程

$$[-\ln(1-\alpha)]^{2/3} = Z \exp(-E/RT)t \quad (1)$$

活化能 $E$ 为 $120.60\text{kJ/mol}$ ,指前因子 $Z$ 为 $8.08 \times 10^{12}\text{s}^{-1}$ ,由上式则可求得达到一定分解率 $\alpha$ 所需时间与反应温度的关系(图2)及一定温度下转化率与时间的关系(图3)。

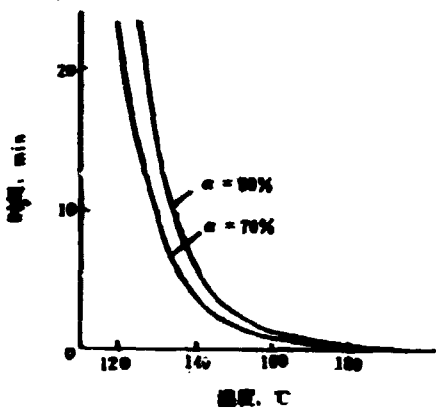


图2 AUC分解达到一定转化率所需时间与反应温度的关系

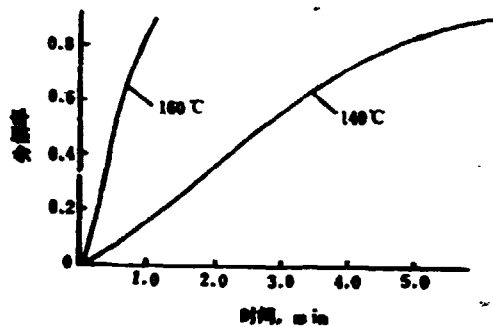


图3 AUC分解转化率与时间的关系

从图2可以看出, 随反应温度升高, 反应速度急剧增加, 温度 $>180^{\circ}\text{C}$ , 反应即在瞬间完成。

AUC分解反应的另一特点是它在常压下的分解是一个远离平衡的化学反应, 分解反应不受气氛影响。

根据以上分析可以看出, 由于AUC分解速度极快, 且吸热量很大, 因此, 传热速度往往成为控制步骤。所以, 实现AUC分解的关键问题是解决供热, 应选用传热性能良好的反应器。

### (2) AUC分解产物的热解和还原 ( $>380^{\circ}\text{C}$ )

从图1的热重线变化可看出,  $380^{\circ}\text{C}$ 以后, 固体失重出现了较明显的差别, 在不同气氛中反应结果不同。在 $\text{H}_2$ 中,  $380^{\circ}\text{C}$ 时固体 $\text{UO}_2$ 开始被还原为 $\text{U}_2\text{O}_3$ , 从 $420^{\circ}\text{C}$ 开始,  $\text{U}_2\text{O}_3$ 继续被还原为 $\text{UO}$ 。

工业上还原高价铀氧化物通常采用 $\text{H}_2$ 、 $\text{NH}_3$ 和 $\text{CO}$ 等气态还原剂, 其还原反应的热效应和自由能变化如表1所示。

表1  $\text{UO}_2$ 还原反应热力学数据<sup>[17]</sup>

反 应	$\Delta H^{\circ}$ , kJ/mol		$\Delta Z^{\circ}$ , kJ/mol	
	$650^{\circ}\text{C}$	$850^{\circ}\text{C}$	$650^{\circ}\text{C}$	$850^{\circ}\text{C}$
$\text{UO}_2 + \text{H}_2 \rightarrow \text{UO} + \text{H}_2\text{O}$	-113.46	-113.46	-125.19	-129.37
$\text{UO}_2 + \frac{2}{3}\text{NH}_3 \rightarrow \text{UO} + \frac{1}{3}\text{N}_2 + \text{H}_2\text{O}$	-91.60	-92.11	-189.66	-210.60
$\text{UO}_2 + \text{CO} \rightarrow \text{UO} + \text{CO}_2$	-176.98	-189.66	-128.95	-119.32

从热力学观点看, 3种还原剂均能有效地实现还原反应, 其中以 $\text{NH}_3$ 的还原能力为最强, 而且随温度升高还原能力显著增加, 但反应动力学研究表明,  $\text{CO}$ 和 $\text{H}_2$ 的还原能力远大于 $\text{NH}_3$ 。因此, 若将AUC分解气中的 $\text{NH}_3$ 裂解为 $\text{H}_2$ 和 $\text{N}_2$ , 继之完成 $\text{H}_2$ 与分解气中 $\text{CO}_2$ 的转化反应生

成CO，则可得到含有H<sub>2</sub>和CO的混合气，以此混合气体作为UO<sub>2</sub>的还原剂，将有助于提高反应速度和降低反应温度。

在工业上H<sub>2</sub>是应用最广的还原剂。AUC分解产物用H<sub>2</sub>还原的动力学研究表明<sup>[4]</sup>，还原转化率与时间呈线性关系，如图4所示。还原反应速度与固体转化率无关。还原分为两个阶段进行，第一阶段还原至U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>（还原率33%），其还原速度远大于第二阶段的速度，在500℃以上，第一阶段在瞬间即可完成。还原速度随温度升高迅速增加，500℃以上，5min内还原

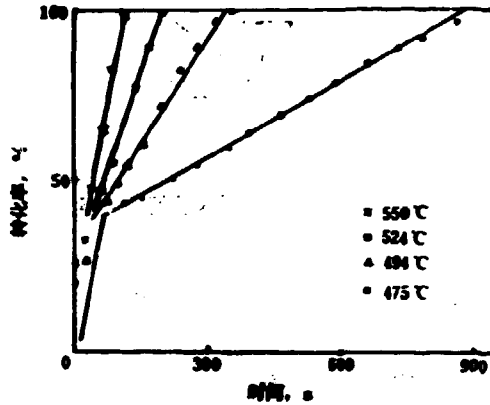


图4 AUC分解产物用纯H<sub>2</sub>还原时转化率与时间的关系

率即可达99%。在450~600℃用H<sub>2</sub>还原时，还原第二阶段的速度方程为

$$r = 1.130 \times 10^7 \exp(-27.2 \times 10^3/RT) \quad (2)$$

在AUC分解产物的H<sub>2</sub>还原过程中，当有水汽存在时，还原速度与氢摩尔含量的1.93次方成正比

$$r = 1.130 \times 10^7 [\exp(-27.2 \times 10^3/RT)] \cdot x_{H_2}^{1.93} \quad (3)$$

在有N<sub>2</sub>存在的情况下，还原速度与氢分压的指数关系一般为0.5~0.88次方<sup>[7-11]</sup>。

根据以上对AUC分解-还原的动力学特性分析，本试验拟采用单级流化床进行AUC分解-还原制备UO<sub>2</sub>，流化气为AUC分解气中的NH<sub>3</sub>经裂解、转化得到的CO与H<sub>2</sub>的混合气。该工艺过程有如下特点：(1)流化床传热性能好，可获得很大的传热速率，以满足AUC分解所需热量；(2)分解-还原在一个设备内完成，还原过程放出的热量(96.3kJ/mol UO<sub>2</sub>)可直接用于AUC的分解；(3)利用AUC分解尾气中NH<sub>3</sub>裂解、转化获得的CO与H<sub>2</sub>混合气作为流化气，不仅省去了外加流化气，而且可降低反应温度，提高还原速度；(4)在流化床反应器中，固体与流化气呈逆流流动，从而减小了水汽对还原的影响。

## 2. 固体平均停留时间的估算

在流化床中固体颗粒的流动近于全混，因此可按全混反应器处理。在全混反应器中，停留时间分布函数

$$E(t) = \frac{1}{t} e^{-t/\tau} \quad (4)$$

设出口固体物料的平均转化率为 $\bar{x}_0$ ，则

$$1 - \bar{x}_0 = \int_0^{\infty} (1 - x_t) E(t) dt \quad (5)$$

分别将分解和还原的动力学关系式及式(4)代入式(5)积分，则可相应得到达到一定分解率和一定还原率所需时间，如表2和表3所示。由表2可看出，在250℃以上，分解率达90%仅需极短时间(<1s)。从表3可看到，由于AUC分解产物的还原性能极好，在600℃于单级流化床内反应，在H<sub>2</sub>分压较低(50%)的不利条件下，达到90%还原率也仅需约1.8h。

表2 不同反应温度下分解率达90%所需时间

反应温度, °C	150	175	200	225	250
所需时间, s	695	103	19	4	1

表3 不同反应温度、不同氢浓度下还原率达90%所需时间 (s)

反应温度, °C	气相氢浓度(摩尔分数)			
	1.0	0.80	0.65	0.50
500	13063	20078	29993	49902
550	4441	6831	10200	16928
600	1710	2631	3928	6518

从以上对AUC分解-还原所需停留时间的估算表明，采用单级流化床进行AUC分解-还原制备UO<sub>2</sub>是可行的。

### 三、实验流程和设备

实验研究的原则工艺流程如图5所示，该流程由以下几部分组成，即流化床反应器系统，尾气净化、排放系统，尾气的裂解、转化与循环系统。

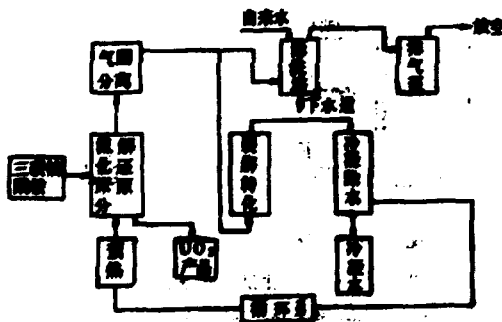
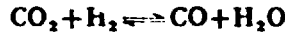
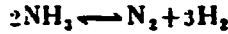


图5 实验研究的原则工艺流程

AUC在流化床反应器中完成分解-还原反应，尾气经气、固分离后，一部分经洗涤后直



接排空，另一部分使之在550~600℃通过镍催化剂，实现下述裂解、转化反应



在上述条件下， $\text{NH}_3$ 裂解反应进行的相当完全（裂解率约95%），而转化反应接近平衡转化率（~50%）。裂解、转化后的气体经冷却除水，即得到含 $\text{H}_2$ 约38%、含 $\text{CO}$ 约12%的混合气，将此混合气用循环泵送入流化床底部作为还原性流化气，我们称之为循环气。循环气的组成见表4。

表4 循环气组成\*

裂解转化温度, °C	循环气组成, %					
	$\text{NH}_3$	$\text{CO}$	$\text{H}_2$	$\text{CO}_2$	$\text{N}_2$	$\text{H}_2\text{O}$
560~580	7~8	12~13	38	8~9	32	3

\* 仅用循环气流化时，尾气裂解、转化后得到的气体。

实验的实际流程和流化床反应器的结构如图6所示。

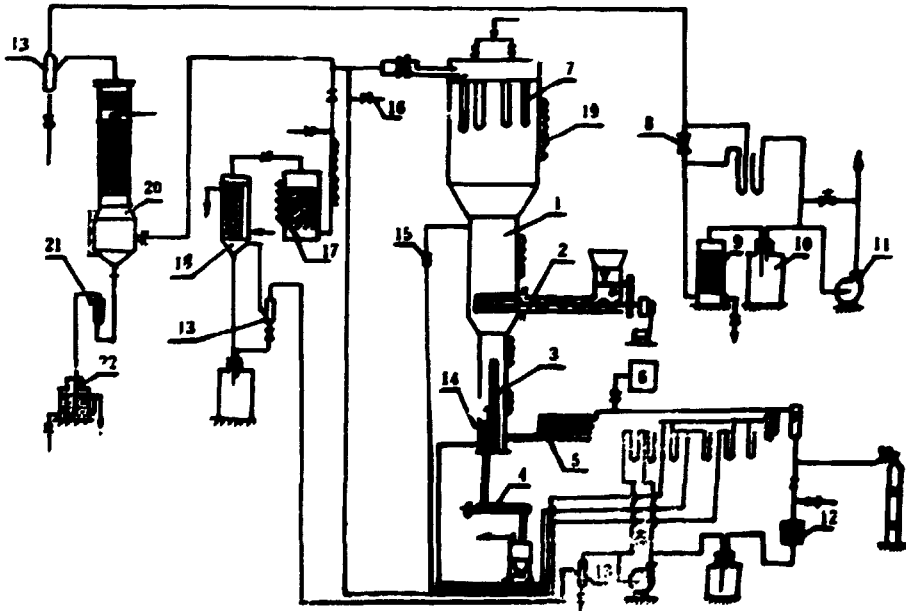


图6 实验流程

1. 流化床, 2. 进料蛟龙, 3. 内电加热器, 4. 出料蛟龙, 5. 气体预热器, 6. 气体分析器, 7. 过滤管, 8. 气体流向指示节流管, 9. 干燥器, 10. 缓冲罐, 11. 泵, 12. 气体过滤器, 13. 气液分离器, 14. 气体分布器, 15. 节流喷嘴, 16. 取样管, 17. 催化裂解转化器, 18. 水冷凝器, 19. 电加热炉丝, 20. 淋洗塔, 21. 单向活门, 22. 受液槽。

流化床反应器由不锈钢制成，内径 $\phi 60\text{mm}$ ，除床外壁用电热丝加热外，在床中心处装有1根 $\phi 20 \times 295\text{mm}$ 的电热棒，作为内换热器。气体分布器为侧孔式锥形，共15个，开孔率约1%。

床顶部为气、固分离器，内装烧结不锈钢过滤管。

原料AUC由螺旋输送机(2)以一定速率送入流化床，产品由螺旋输送机(4)送入料罐(5)。尾气经气、固分离器(10)进行气、固分离，被分离的固体回落床内，排出气体一部分经淋洗塔(22)洗涤，再经水冷器(21)后排空；另一部分气体(约30%)进入裂解、转化柱(11)。裂解、转化获得的含H<sub>2</sub>和CO的混合气经冷却器(12)冷却，再经气、液分离器(19)除水后，由循环泵送入预热器(8)再进入流化床底部作为流化气。

流化层高度的测量采用床层压强降与流化层高度的下述关系式<sup>[12]</sup>。

$$\Delta p = 0.084H$$

$\Delta p$ 为床层压强降，mmHg柱； $H$ 为流化床层高度，mm，经电阻料位计<sup>[13]</sup>校核，两者结果基本一致。

原料AUC的物性：含水7.8%，干AUC的粒度分布如表5所示，平均粒径 $d_p = 1/\Sigma(x_i/d_{pi}) = 82.37\mu\text{m}$ ，松装密度 $1170\text{kg}/\text{m}^3$ ，震实密度 $1590\text{kg}/\text{m}^3$ 。

表5 干AUC粒度分布

筛号, $\mu\text{m}$	+20	-20 +40	-40 +60	-60 +80	-80 +100	-100 +120	-120 +140	-140 +160	-160 +180	-180 +200	-200
	筛分, % (重量)	0.39	0.25	0.14	0.29	0.91	3.43	3.10	12.35	7.20	14.20

## 四、实验结果及讨论

### 1. 流化气的影响

实验结果表明，气氛对还原影响较大，数据见表6。

表6 流化气对还原率的影响

试验编号	流化气		进料速率, kg/h	流化层高度, mm	下段料层温度, ℃	还原率, %
	流化气组成, %	流量, L/min				
2-01	N <sub>2</sub> -97.6	4.0	1.00	300±15	550±10	38~39
2-09	Ar-99.89	4.0	2.00	420±15	550±10	54~56
2-10	Co-5~8	0.4	2.00	420±15	550±10	71~74
	Ar-92~95	3.6				
2-18	H <sub>2</sub> -50	2.0	2.00	420±15	550±10	95~97
	Ar-50	2.0				
2-22	循环气	4.0	2.16	420±15	550±10	>98

由表6可看出，当用含氧量较高的工业N<sub>2</sub>流化时，还原率仅达38~39%；用含氧量<15ppm的

Ar流化时,还原率比用工业N<sub>2</sub>时有显著提高;在流化气Ar中加入5~8%的CO,则产品还原率达到11~74%;用H<sub>2</sub>或循环气流化时,均可获得还原率97%以上的合格产品。因此,可以认为流化气是否含氧对产品还原率有较大影响,流化气中还原性成分愈高,还原率也愈高。

## 2. 流化速度的影响

在流化床中,流化速度直接影响流化状态,而流化状态的不同不仅影响固体粒子的返混程度,而且还会影响反应过程的传热与传质。因此,流化速度无疑是流化过程的重要参数之一。在AUC分解-还原系统中,流化状态不仅取决于进气流速,而且还取决于分解所产生的气体量,因此,在本研究中以分布板处和流化层上界面处的表观速度与最小流化速度之比(即流化数)来表征其流化速度。实验结果见表7。比较表7数据可以看出,以惰性气体流化时,即使生产强度是增加的,还原率仍随流化数增加而增大。因为以惰气流化时,其特点是以热分解的NH<sub>3</sub>做为还原剂,这就要求分解产生的NH<sub>3</sub>与分解产物之间有充分有效的接触,还原率取决于气、固两相充分有效的混合和必要的接触时间,由于流化数在一定范围内的增加,强化了UO<sub>3</sub>与分解气之间的有效接触,因此提高了还原率。

表7 流化速度对分解还原的影响

试验序号	流化气组成及流量, L/min	流化数		原料量, kg/h	生产强度, kg/h·L	流化层高度, mm	下筛料层温度, ℃	还原率, %
		分布板处	层上界面					
2-08	Ar-2.3	22	56	2.00	1.27	420±15	650±10	~58
2-08	Ar-4.0	16	58	2.00	2.04	405±15	660±10	70~79
2-20	Ar-8.0	72	72	2.00	2.2*	300±15	630±10	83~87
2-35	Ar-8.0	72	110	3.00	3.58	300±15	650±15	90~91
2-22	循环气-4.0	32	60	2.16	1.37	420±15	550±10	≥98
2-23	循环气-4.0 Ar-1.0	40	64	2.16	1.37	420±15	550±10	≥98
2-32	循环气-6.0 Ar-1.0	52	128	3.00	2.30	380±20	545±5	≥98
2-29	循环气-8.0 Ar-2.0	80	172	4.00	1.80	510±30	545±5	~90

以循环气流化时,流化数在一定范围内的变化,对还原率没有影响。但当流化数大于某一数值时,即使减小生产强度,仍然导致了还原率的降低。其原因是以循环气流化时,既要充分利用NH<sub>3</sub>的还原作用,又要使还原能力大于NH<sub>3</sub>的H<sub>2</sub>和CO贡献于高价氧化物深度还原,从而达到降低反应温度、提高还原速度的目的。因此流化数不能太大,否则由于固体粒子的剧烈返混,将导致平均还原率的大幅度下降。

### 3. 温度的影响

温度对AUC的分解速度和高价铈氧化物的还原速度都具有极重要的影响。从表8数据可以看出,无论是以惰气流化或是以循环气流化,提高温度均可提高还原率。在单级流化床中进行AUC的分解和还原,其分解速度一般不会构成控制步骤,因而反应温度的确定主要决定于对还原速度的要求,在设备条件允许及不影响产品活性的前提下,适当提高反应温度对提高产品还原率和增加设备的生产强度都是有利的。

表8 温度对还原率的影响

试验编号	下段料层反应温度, °C	流化气组成及流量, L/min	进料速度, kg/h	流化层高度, mm	还原率, %	备注
2-09	55±10	Ar-4.0	2.00	420±15	54~56	
2-06	660±10	Ar-4.0	2.00	420±15	78~79	
2-22	550±10	循环气-4.0	2.00	420±15	≥98	合格产品出产慢
2-15	590±10	循环气-4.0	2.00	420±15	≥98	合格产品出产快
2-25	550±10	循环气-5.2 Ar-1.4	2.80	300±15	~95	
2-26	570±10	循环气-5.2 Ar-1.4	2.80	300±15	≥97	
2-33	550±5	循环气-8.0 Ar-1.0	3.00	300±15	93~94	
2-34	568±3	循环气-8.0 Ar-1.0	3.00	315±15	≥97	

### 4. 影响设备生产强度的因素

设备生产强度是评价设备先进与落后的重要指标,我们以循环气及循环气与Ar的混合气作为流化气,进行了提高生产强度的试验,初步考察了影响生产强度的因素,结果列于表9、表10表和11。

#### (1) 流化气的影响

比较表9中的2-22、2-23两组数据可以看出,在较低生产强度[如1.37kg(湿料)/h·L(有效)]时,循环气被惰气稀释20%时,对还原率未见影响;当提高生产强度时,则会引起还原率的降低。在此情况下,如欲获得合格产品,则需提高流化气中循环气的比例。

#### (2) 温度的影响

从表9中2-32与2-34组试验数据比较可看出,提高反应温度,则可增加设备的生产强度。因为提高温度加快了反应速度,从而提高了生产强度。

#### (3) 流化速度的影响

表9 生产强度试验

试验编号	生产强度, kg(湿料)/h·L	工 艺 条 件				还原率, %
		流化气组成及流量, L/min	进料速度, kg/h	下段料层反应温度, ℃	流化层高度, mm	
2-22	1.37	循环气—4.0	2.16	550±10	420±15	≥98
2-23	1.37	循环气—4.0 Ar—1.0	2.16	550±10	420±15	≥98
2-29	1.80	循环气—8.0 Ar—2.0	4.00	545±5	510±30	90
2-30	2.55	循环气—8.0 Ar—2.0	4.00	548±3	420±15	90
2-32	2.30	循环气—6.0 Ar—1.0	3.00	545±5	380±20	≥98
2-33	3.20	循环气—6.0 Ar—1.0	3.00	550±5	300±15	93
2-28	3.32	循环气—5.2 Ar—1.4	2.80	570±10	300±15	≥97
2-34	3.18	循环气—6.0 Ar—1.0	3.00	568±3	315±15	≥97

表10 流化速度对生产强度的影响

试验 编号	流化数		温 度, °C						流化气组成 及流量, L/min	进料速率, kg(湿料)/h	生产强度, kg(湿料) ·h <sup>-1</sup> ·L <sup>-1</sup>	还原率, %
			距分布板150mm			距分布板320mm						
	分布板处	料层上 界面	料层	外壁	Δt	料层	外壁	Δt				
2-22	32	60	550 ±10	523 ±15	-27	543 ±18	640 ±25	+97	循环气—4.0	2.16	1.37	≥98
2-23	40	64	550 ±10	523 ±3	-27	550 ±18	630 ±5	+80	循环气—4.0 Ar—1.0	2.16	1.37	≥98
2-26	49	114	570 ±10	710 ±40	+140	/	/	/	循环气—5.2 Ar—1.4	2.80	3.32	≥97
2-24	80	172	550 ±10	573 ±8	+28	520 ±15	650 ±25	+130	循环气—8.0 Ar—2.0	4.32	3.32	94

比较表10中距分布板150和320mm处的 $\Delta t$ 可以看出,在流化速度较小时,AUC的分解反应主要是在床层上半部完成的,还原反应则主要在床层下半部完成;在流化速度较大时,由于床层固体粒子返混严重,致使分解区向下延展,分区现象变得很不不明显,导致了平均还原率的下降。为使还原率达到要求,就必须增加停留时间,从而将降低设备的生产强度。

表11所列主要工艺条件表明,以循环气或循环气与Ar (<21%)混合气流化时,在温度 $\geq 570^\circ\text{C}$ 情况下,设备生产能力达到了3.32kg(湿料)/h·L(有效)的较高水平。

表11 主要工艺条件

试验号	流化气		进料速度, kg/h	流化层高度, mm	生产强度, kg(湿料)/h·L	温度, °C				还原率, %
	流化气	流速, L/min				下段料层	下段外壁	中段料层	中段外壁	
2-22	循环气	4.0	2.16	420±15	1.37	550±10	523±15	540±18	640±25	≥98
2-23	循环气80%	4.0	2.16	420±15	1.37	550±10	523±3	550±10	630±5	≥98
	Ar—20%	1.0								
2-32	循环气85%	6.0	3.00	380±20	2.30	545±5	/	558±8	/	≥98
	Ar—15%	1.0								
2-28	循环气80%	5.2	2.80	300±15	3.32	570±10	710±40	/	/	≥97
	Ar—20%	1.4								
2-34	循环气85%	6.0	3.00	315±15	3.18	568±3	/	/	/	≥97
	Ar—15%	1.0								

## 五. 结 论

1. 本研究在单级流化床中实现了三碳酸铀酰铵的分解-还原2个反应过程,简化了流程,还原过程放出的热量直接用作三碳酸铀酰铵分解热的补充,从而节省了能源。
2. 三碳酸铀酰铵分解产生的尾气经催化裂解、转化、除水得到含有还原性较强的CO及H<sub>2</sub>混合气,以其作为流化气体,不仅省去了外加流化气,而且还使反应温度有所降低,在其它工艺条件相同的情况下,比用惰气流化时产品还原率有较大提高。
3. 影响三碳酸铀酰铵分解-还原的主要因素是反应温度、流化气组成及流化速度。
4. 用循环气或循环气与Ar (<21%)的混合气流化时,在反应温度 $\geq 570^\circ\text{C}$ 情况下,设备生产能力达到了3.32kg(湿料)/h·L(有效)的较高水平。

## 参 考 文 献

- [1] 葛庆仁, 康仕芳等, AUC分解及还原动力学, 中国核化学学会会议报告
- [2] 葛庆仁, 尚阳, 三碳酸铀酰铵的分解热效应及其热力学性质测定, 核工业部专业会议报告

- [3] H.G.Bachmann, J. Inorg. Nucl. Chem., 37, 735 (1975)
- [4] 周蒙, "对AUC在氢中分解和还原的动力学研究", 硕士论文, 天津大学化学系, (1986)
- [5] C.D.Harrington, Uranium Production Technology, 68 (1959)
- [6] 铀氟化物的化学及工艺学, (苏) H. II. 加尔金等, p70
- [7] S.A.Morrow, S.Graves and L.Tonclinson, Trans.Faraday Soc.57, 1400 (1961)
- [8] V.S.Helskala, J.Phys.Chem.69, 2012 (1965)
- [9] Demarco and Mendel, J.Phys.Chem.64, 132 (1960)
- [10] A.H.Lepage and A.G.Fane, J.Inorg.NuCl.Chem.36, 87 (1974)
- [11] J.Jusela, "Kinetics and Mechanism of Hydrogen Reduction of Some Uranium Oxides,NP19150 (1971)
- [12] 天津大学化工系, "三磺酸铀酰核在玻璃化床中热化分解的小试研究", 内部资料, 未发表
- [13] "流化床料位计的制作、调试和试用", 铀化工会议资料选编, 149 (1977)

# CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT



书号15175-00322

P.O.Box 2103

Beijing, China

## China Nuclear Information Centre