

直流电弧等离子体球化 U_3Si_2 粉体

孔常静¹, 宁伟建¹, 吴彬¹, 高克家, 纪崇甲¹

孙明涛², 马永新², 任永刚², 李冠兴²

(1. 中国科学院力学所)

(2. 核工业总公司国营二二厂)

摘要:研制了直流电弧等离子体球化 U_3Si_2 粉体装置。在 Ar + He 气氛下对粒度为 10 ~ 150 μm 范围内不规则形状的 U_3Si_2 粉体进行了球化。球化率达 90 %。

关键词: U_3Si_2 粉体; 等离子体; 球化

1 引言

目前许多国家积极研究用低富集度的铀代替高富集度铀用于研究、实验反应堆燃料和靶材料^[1,2]。 U_3Si_2 是一种高密度低富集度核燃料。经真空熔炼配制的 U_3Si_2 合金须制成粉末使用。以机械法获得的 U_3Si_2 颗粒, 其形状不规则, 为条状, 多边状, 片状等。在制造铀硅化合物燃料元件时, 若将颗粒变成球形, 将提高粉体在基体中的分布均匀性, 提高燃料元件在横截面上的热扩散率和电导率^[3]; 改善挤压流动性^[4,5], 克服挤压工艺中存在的困难。此外, 球形燃料颗粒的辐照损伤小, 基体材料的物理机械性能得以最大限度地保留下来。

等离子体制备球状粉体是近年来被广泛应用的方法。直流电弧等离子体法能量转化率高, 产品产量高, 资本投资少, 易实现大规模工业化生产。目前等离子体制备球状粉体的报道很多^[6,7,8,9], 大部分集中在粉体的超细化上, 等离子体法用于球化粉体的报道较少, 特别是将等离子体技术应用于核燃料的球化在国内外文献中均未见报道。因此研究 U_3Si_2 粉体的球化具有特别重要的意义。

本文在用等离子体技术球化 U_3Si_2 粉体的球化装置与球化工艺方面作了一定的探讨。

2 实验过程

2.1 试验装置

图 1 为自行设计球化装置示意图。等离子体发生器的阴极采用钨钽合金, 阳极采用铜合

收稿日期: 1999-08-20

作者简介: 孔常静 (1965 -), 女, 硕士, 1995 年毕业于大连理工大学, 主要从事材料的组织结构与性能关系, 等离子体薄膜制备技术, 等离子体粉体制备技术等方面的研究工作。

宁伟建 (1959 -), 男, 工程师, 从事直流等离子体技术的研究工作。

金。用 Ar + He 为等离子体载气,气体纯度为 99.99 %。送粉系统为振动式送粉器,用 Ar 气作为粉体的载气。球化炉与骤冷器以及收集系统均采用不锈钢内壁面。骤冷器采用水冷,收集器为双碟阀快速拆卸结构。集尘器采用超细滤布。高压抽风机将过滤后的气体抽出排放。

2.2 试验条件

原材料是机械破碎制备的 U_3Si_2 粉体,粒度在 10 ~ 150 μm 之间。颗粒成不规则形状。粉体用筛子分级后球化,分别为 < 500 目 (10 ~ 15 μm), 320 ~ 500 目 (25 ~ 45 μm), 200 ~ 320 目 (45 ~ 75 μm), 150 ~ 200 目 (75 ~ 100 μm), 100 ~ 150 目 (100 ~ 150 μm)。球化工艺基本参数为:电流 400 A,弧电压 70 V,功率 28 kW,等离子体载气为 Ar + He,送粉载气为 Ar 气,送粉量 3 kg/h。用扫描电镜(SEM)观察球化前与球化后粉体的形貌。在废气排放出口用人造纤维滤纸测量被气化的粉体。滤纸的颗粒收集范围为 0.1 ~ 10 μm 。

2.3 结果

图 2(a)为球化前的 U_3Si_2 粉体 SEM 形貌照片。图 2(b)-(f)分别为 < 500 目 (10 ~ 15 μm), 320 ~ 500 目 (25 ~ 45 μm), 200 ~ 320 目 (45 ~ 75 μm), 150 ~ 200 目 (75 ~ 100 μm), 100 ~ 150 目 (100 ~ 150 μm) 的 U_3Si_2 粉体球化后的扫描电镜照片。

从图 2(b)-(f)可以看到,不同粒度范围的 U_3Si_2 粉体均能球化。经不同视场观测可以得到球化率 90 %以上。观察结果可看到球度很好。

球化后,称量排气口处的人造纤维滤纸,无增重。检测人造纤维的放射性,也未测出有放射性。因此可以认为被球化粉体的收集率在 99.99 %以上。

3 讨 论

直流电弧等离子体球化 U_3Si_2 粉体是将不规则形状的 U_3Si_2 粉体由 Ar 气作载气送入等离子体火焰中,粉体子受热,熔融,在内聚力的作用下收缩成球状液滴,液滴进入骤冷器后凝固而形成球状颗粒。

U_3Si_2 粉体在空气中易燃烧,在球化过程中要用惰性气体加以保护。 U_3Si_2 粉体最大存放量为 3 kg,因此设计了每小时 3 kg 的送粉球化速度。

等离子体发生器与球化器中往往有巨大的温度梯度和速度梯度存在^[10]。直流电弧等离子体虽然中心温度高,但高温区尺寸小, U_3Si_2 粉体只有在等离子体火焰中心区,吸收足够的能量才能完成加热,熔融,球化过程。球化炉中气流速度高,颗粒在高温区停留时间短,而 U_3Si_2 密度大 (12.2 g/cm³),只有增加粉体在等离子体中的停留时间,才能使粉体充分吸收能

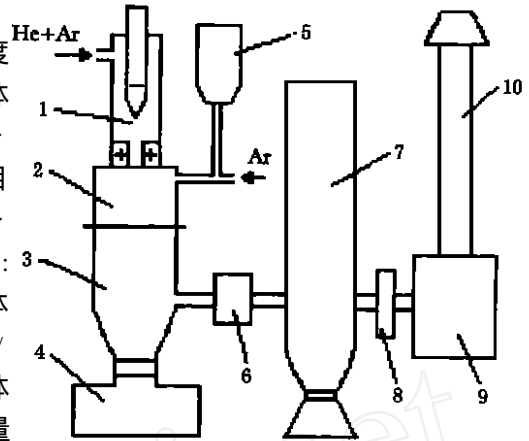


图 1 直流等离子体球化 U_3Si_2 装置

1. 等离子体发生器;2. 球化炉;3. 骤冷器;
4. 收集器;5. 送粉器;6. 螺旋收集器;
7. 集尘器;8. 碟阀;9. 高压抽风机;10. 烟筒

Fig. 1 D. C. plasma system for the production of spherical U_3Si_2 powder

1. Plasma Generator 2. Spheritized Chamber
3. Quenching Chamber 4. Collector
5. Powder Feeder 6. Screw Collector
7. Dust Collector 8. Dish Valve
9. High Pressure Pump 10. Chimney

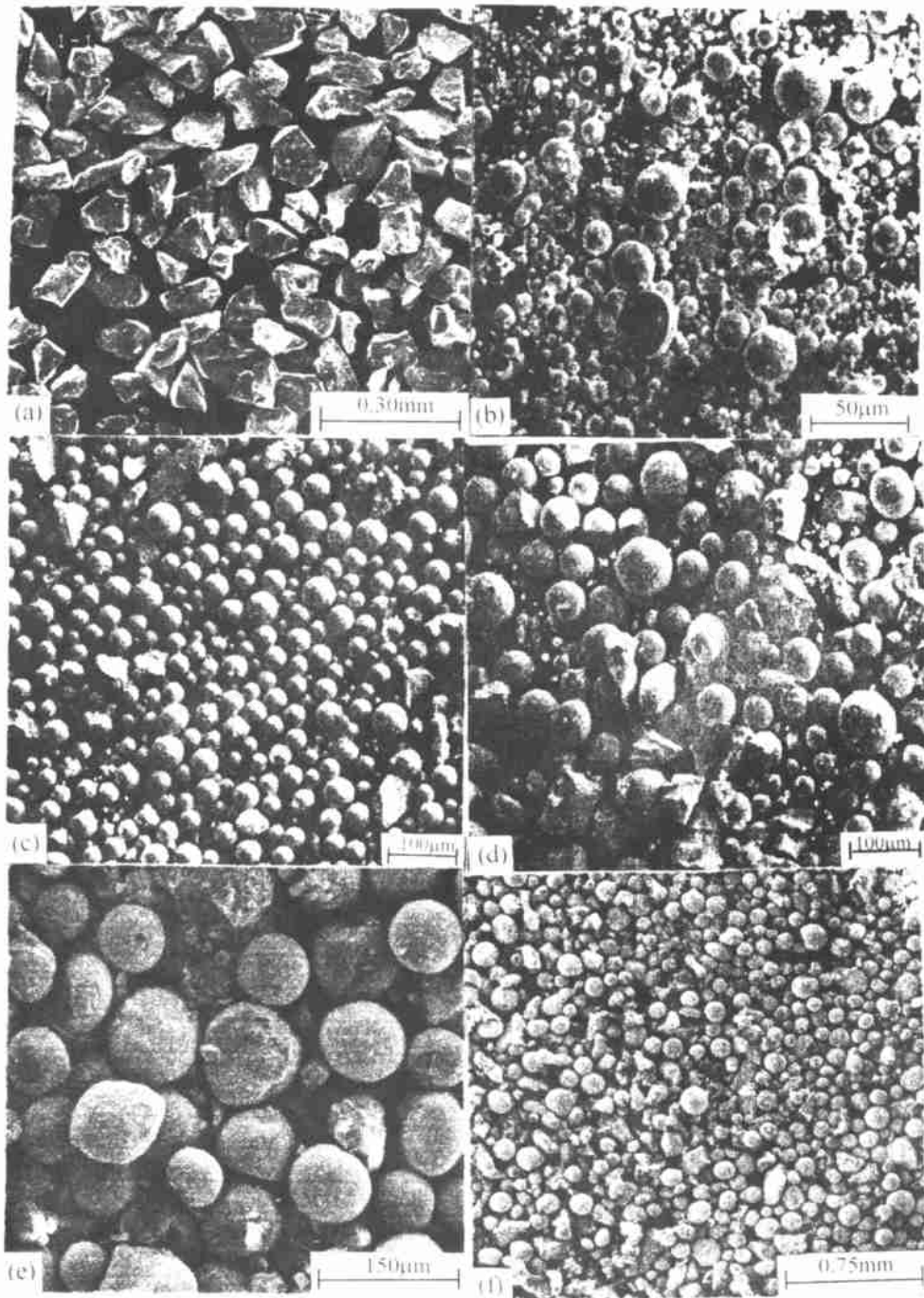


图 2 U_3Si_2 粉体球化前(a)与球化后(b)-(f)的 SEM 照片

(b) <500 目(10 ~ 20 μm) , (c) 320 ~ 500 目(25 ~ 45 μm) (d) 200 ~ 320 目(45 ~ 75 μm) ,

(e) 150 ~ 200 目(75 ~ 100 μm) , (f) 100 ~ 150 目(100 ~ 150 μm)

Fig. 2 SEM micrographs of as-received (a) and spheritized (b)-(f) U_3Si_2 powder

(b) <500 mesh(10 ~ 20 μm) , (c) 320 ~ 500 mesh(25 ~ 45 μm) (d) 200 ~ 320 mesh(45 ~ 75 μm) ,

(e) 150 ~ 200 mesh(75 ~ 100 μm) , (f) 100 ~ 150 mesh(100 ~ 150 μm)

量。

在设计中采用 Ar + He 作为等离子体载气。Ar 气极易电离,但弧压梯度很低,故弧长很短。在前期工作中曾用加氮气的方法来提高弧压,但是,氮气在等离子体状态下与 U_3Si_2 粉体中的铀发生反应生成氮化铀,氮化铀为核燃料所不允许。因此选用添加 He 气来增加电弧长度,使电弧电压提高。电弧长度还与阳极与阴极内的气流状态有关,适当加大等离子体气体的气流量也可以增加电弧长度。当阳极长度一定时,阳极与阴极间的层流状态不仅和其间的内径与内壁的光滑度有关,还与管壁的冷却方式和冷却强度有关,通过合理的调整,可使阳极弧根落在距出口端面 10 ~ 15 mm 的位置上,达到发生器热效率和出口火焰长度最佳的状态。使 U_3Si_2 粉体在等离子体区具有足够的加热时间吸收能量,熔融,球化。

送粉位置也影响球化效果。从等离子体火焰的横截面来看,距中心区越远温度越低,距离阳极出口端面越远,火焰温度越低^[11]。所以,存在着送粉段最佳结构尺寸问题。设计中将送粉口在结构允许的条件下尽量靠近等离子体火焰出口处。使粒子受热行程加长。

球化效果与球化炉内径有关。同等功率下,球化炉的内径适当缩小,等离子体火焰相对集中,单位体积内能量密度高,有益于粉体球化。同时内壁的缩小还减少能量损失。首次设计中球化率不到 50%,适当缩小球化炉内径后,粉体的球化率可达 90% 以上。这里需要指出,内径不能无限制缩小,内径太小不仅影响球化效率,还会造成粉体在壁面上结疤,影响球化效率。

球化效果还与内壁的散热有关,显然采用较好的内壁面保温层,等离子体火焰热损失减小,有利于受热效率的提高。设计中采用了镜面不锈钢内壁。以防止粉体沉积在壁面。

球化效果与颗粒粒径大小有关。粒径越小,其比表面积越大,吸收能量越多,粒子也易熔透,所以,小颗粒的粒子比大颗粒的粒子易球化。因此,将 U_3Si_2 粉末进行分级球化。这是因为如果粉体粒度分布较宽,在小颗粒能够球化的工艺条件下,大颗粒不能球化,大颗粒能够球化的条件下小颗粒又被气化,实现不了球化的目的。这个问题与采用不同等离子体气体球化 U_3Si_2 粉末所得的不同结果将在其它文章中论述。

球化效果与球化炉内的压力也有关。气体压力越高,单位体积内的能量密度越高,有利于能量的传递,对球化有利。

4 结 论

研制了功率为 28 kW 的直流电弧等离子体球化装置。球化 U_3Si_2 粉体可用 Ar + He 混和气体作等离子体载气。10 ~ 150 μm 范围内的 U_3Si_2 粉体经分级后均可有效的球化。球化率达 90%。

参 考 文 献

- 1 Aldemir T, Talnagi J W, Miller D W. Nuclear Technology, 1989, 86: 248 ~ 263
- 2 Buchholz B A, Hutter J C, Vandegrift G F. Nuclear Technology, 1997, 118: 225 ~ 232
- 3 Kim CK, Kim KH, Kuk HI, Kang S-JL. Journal of Nuclear Materials, 1994, 309(3): 315-320
- 4 Kim KH, Lee DB, Kim CHK, Kuk IH, Paik KW. Journal of Nuclear Science and Technology, 1997, 43(12): 1127 ~ 1132
- 5 IF Hium, Kuk. Nuclear Engineering International, 1996, 41(498): 44-45
- 6 Nariki Y, Inoue Y, Tanaka K. Journal of Materials Science, 1990, 25: 3101 ~ 3104
- 7 Khor K A, Cheang H N, Tan M J, et al. Journal of Materials Processing Technology, 1993, 37: 417 ~ 429
- 8 Cheney R F, Seydey E R. Metal Powder Report, 1990, 52(1): 43 ~ 47
- 9 Khor K A. Experimental Techniques, 1992, (July/ August): 13 ~ 16

U₃Si₂ Powder Sphericized by Direct Current Plasm

KONG Changjing ,NING Weijian ,WU Bin ,GAO Kejia ,JI ChongJia

(Institute of Mechanics ,Chinese Academy of Sciences 100080)

SUN Mingtao ,MA Yongxin ,RE Yonggang ,LI Guanxing

(State No. 202 Factory ,Nuclear Company)

(Manuscript received 20 August , 1999)

Abstract :The device for sphericized U₃Si₂ powder by direct current arc plasma was fabricated. In Ar and He mixture plasma atmosphere. The spherical U₃Si₂ powder was produced from irregular powder in the range of 10 ~ 150 μm. The result shows that the conversion rate of the U₃Si₂ powder could reach 90 %.

Key words :U₃Si₂ powder ; Plasma ; sphericize

(上接第 183 页 ,Continued from page 183)

Research on Physical Properties of Reactor Core in PWR Using Separated U- Th Fuel Assemblies

ZHANG Jiahua¹ , BAO Borong² ,CHEN Zhicheng¹

SI Shengyi³ ,ZHU Xinguan³

(1. Shanghai Institute of Nuclear Research ,Academia Sinica)

(2. School of Chemistry and Chemical Engineering ,Shanghai University)

(3. Institute of Shanghai Nuclear Engineering)

(Manuscript 20 August ,1999)

Abstract :A practical application of ²³²Th in Qinshan 300 MW (e) PWR was searched by using separated U- Th fuel assemblies and the Twin Refuelling system. From the calculation of ten cycles ,it shows that if irradiation time of thorium assemblies in core of PWR is long enough (10 cycles) ,the amount of ²³³U in core at the end of irradiation is increased to 212. 6 kg and it could take part in the chain reaction of the core. In this way ,the practical application of ²³²Th could be reached. Compared with full uranium fuel assemblies ,more than 200 kg ²³⁵U could be saved for each cycle by using separated U- Th assemblies. It shows the prosperous future of Th- U fuel cycle. Of course ,there are still some engineering problems left to be solved for real application.

Key words :PWR ; reactivities ; Th- U fuel cycle ; twin refuelling system ; burn-up ; EFPD