

doi: 103969/j.issn.0490-6756.2017.03.025

U-Mo 微球与 Al 粉的混合工艺研究

庾正伟, 王录全, 刘 海, 冷茂林, 黄健民, 郭 振

(中国核动力研究设计院, 成都 610213)

摘要: 采用垂直行星分罐式混料机进行 U-Mo 微球与 Al 粉混合, 系统研究了混合时间、混合转速和料罐填充率对物料混合度的影响, 并设计正交试验分析三因素对物料混合度的影响程度. 采用变异系数法和体视显微镜分析了混合物料的混合度和微观形貌. 结果表明, 最佳混合工艺参数为: 混合时间 90 min、混合转速 30 r/min 和料罐填充率 30%, 其物料混合度为 93.6%; 三种混合因素对混合度的影响程度为: 混合时间 < 料罐填充率 < 混合转速.

关键词: U-Mo/Al 弥散燃料元件; 混合工艺; 行星混料机; U-Mo 微球; 混合度

中图分类号: TL214 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2017)02-0371-05

Study on the mixing process of U-Mo microspheres and Al powders

YU Zheng-Wei, WANG Lu-Quan, LIU Hai, LENG Mao-Lin, HUANG Jian-Min, GUO Zhen

(Nuclear Power Institute of China, Chengdu 610213, China)

Abstract: U-Mo microspheres and Al powders were mixed by vertical planetary pot-classifying mixer. The influences of mixing time, mixing speed and filling rate on the mixing degree of mixed powders were studied systematically. The orthogonal experiment is designed to analyze the influence degree of the three factors on the mixing degree. The mixing degree and microstructure were discussed by variation coefficient method and stereomicroscope, respectively. Results show that optimal mixing process parameters: the mixing time of 90 min, the mixing speed of 30 r/min and the filling rate of 30%. The optimal mixed powders have a mixing degree of 93.6%. Three kinds of mixed factors impacting on the mixing degree have the order: mixing time < filling rate < mixing speed.

Keywords: U-Mo/Al dispersion fuel element; Mixing process; Planetary mixer; U-Mo microsphere; Mixing degree

1 引言

U-Mo/Al 弥散燃料元件具有铀密度更高、 γ 相稳定、辐照性能优良和后处理简单等优点, 已成为 RERTR 计划开发低浓铀燃料的热点, 同时也是研究试验堆用燃料元件的发展方向^[1-4]. 该燃料元件的 U 分布均匀性即 U-Mo 燃料相在 Al 基体中的均匀弥散程度, 是非常关键的技术指标. U 分布均匀性好, 可提高燃料元件的起泡温度, 增加燃

耗和寿命; U 分布均匀性差, 将降低燃料元件的起泡温度, 使其局部过热甚至破损, 引发堆芯事故^[5,6].

在 U-Mo/Al 弥散燃料元件制备中, U 分布均匀性主要受 U-Mo 颗粒与 Al 粉的混合均匀程度影响. 国内外已有的相关报道中, U-Mo 颗粒都是采用的不规则状粉末, 未见球形颗粒. U-Mo 燃料相若采用球形颗粒相比不规则状粉末将具有如下优点: 1) 燃料颗粒与基体的反应层更均匀; 2) 能有效

收稿日期: 2016-10-10

基金项目: 反应堆燃料及材料国家重点实验室预研基金(9140C700101120C70019)

作者简介: 庾正伟(1984-), 男, 汉, 硕士, 毕业于四川大学, 助理研究员, 从事核燃料与材料研究. E-mail: 285884469@qq.com

控制颗粒的粒度范围,提高燃料的利用率;3)能提高燃料的辐照性能,降低燃料的辐照肿胀等^[6-8].然而 U-Mo 球形颗粒(简称 U-Mo 微球)与 Al 粉的混合,由于形状和密度差异大,混合过程中极易导致 U-Mo 微球偏析、聚集^[9],难以均匀弥散在 Al 粉中,相比 U-Mo 粉和 Al 粉的混合难度大幅增加.同时国内外也未见此类形状和密度差异较大的颗粒混合详细报道.因此开展 U-Mo 微球与 Al 粉的混合工艺研究,提高混合均匀程度,保障燃料元件的 U 分布均匀性,成为急需解决的技术难题.本文采用垂直行星分罐式混料机进行 U-Mo 微球与 Al 粉混合实验,系统研究了混合时间、混合转速和料罐填充率对物料混合度的影响,并设计正交试验分析三因素对物料混合度的影响程度.

2 实验

以粒径约 100 μm 的 U-Mo 微球(17.2 g/cm³)和粒径小于 74 μm 的 Al 粉(2.7 g/cm³)为原料,依据燃料元件设计,按物质体积 20% U-Mo 微球和 80% Al 粉进行配比.根据粉末填充理论,将 Al 粉按粒径大小分为两级,细粉 < 47 μm 占 40 wt%,粗粉 47~74 μm 占 60 wt%,以提高整体物料的堆积密度和混合状态稳定性.将配比好的物料,按微球、细粉和粗粉的添加顺序进行手工简单预混后,装入混料罐中放置于垂直行星分罐式混料机上进行不同混合时间、混合转速和料罐填充率的混合实验.混料机示意图见图 1 所示,当转盘逆时针旋转时,料罐进行顺时针旋转,公自转比为 1:1.5,同时料罐垂直与转盘方向倾斜 30°,在物料混合运动中除了沿罐壁做滚动运动,还可在料罐纵向做翻滚运动,实现物料的三维混合.

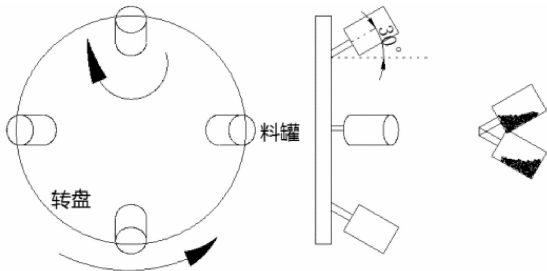


图 1 垂直行星分罐式混料机示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the vertical planetary pot-classifying mixer

运用变异系数法来评价不同工艺参数下物料的混合均匀性^[10],采用专用的取样装置,在料罐的不同位置和高度随机取样,取样数量定为 12 个.

通过分离装置将 U-Mo 微球和 Al 粉分离,测定 U-Mo 微球的质量百分比,得到 12 个测量值;然后统计其离散程度,计算出变异系数 CV 和混合度 M.同时采用体式显微镜观察 U-Mo 微球和 Al 粉混合后的微观形貌.

$$(1) CV = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left(\frac{X_i}{\bar{X}} - 1\right)^2} \times 100\% = \frac{\sigma_x}{\bar{X}} \times 100\%$$

$$(2) M = 1 - CV$$

式中: X_i —检测值; N —检测值个数; σ_x —标准偏差; \bar{X} —平均值.

3 结果与分析

3.1 不同混合时间对物料混合度的影响

选取混合转速 30 r/min 和料罐填充率 30%,进行混合时间为 60 min、75 min、90 min、105 min 和 120 min 的 U-Mo 微球和 Al 粉的混合试验,获取混合后物料的混合度.图 2 为不同混合时间的物料混合度变化曲线.由图 2 可知,混合时间为 60 min 时,物料混合度相对较低为 92.3%,随着混合时间的延长,物料混合度逐步提高,到 90 min 时物料混合度最好为 93.6%,继续延长混合时间,物料混合度已趋于稳定,呈小范围波动状态.这是因为混合转速和料罐填充率的固定,使物料混合运动状态、各组份分散模式固定,混合时间的变化主要影响物料各组份的分散程度.混合时间短,物料中各组份还未得到充分分散,混合度低;时间延长,各组份分散程度提高,混合度也相对提高;延长至一定时间以后,各组份分散程度达到极值,且呈现小范围波动状态.因而认为 90 min 是最佳混合时间.

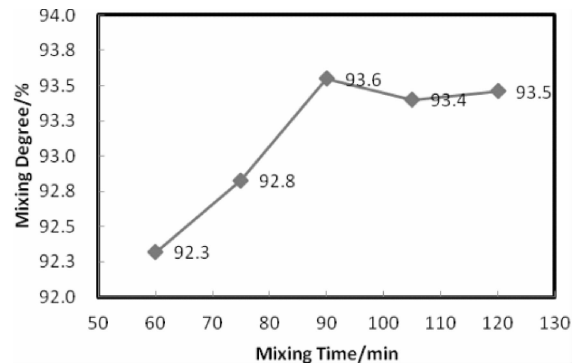


图 2 不同混合时间的物料混合度变化曲线

Fig. 2 Mixing degree of mixed powders varies with different mixing time

3.2 不同混合转速对物料混合度的影响

在混合时间研究基础上, 选取混合时间 90 min 和料罐填充率 30%, 进行混合转速为 10 r/min、20 r/min、30 r/min、40 r/min 和 50 r/min 的 U-Mo 微球和 Al 粉的混合试验, 获取混合后物料的混合度. 图 3 为不同混合转速的物料混合度变化曲线. 由图 3 可知, 混合转速为 10 r/min 时, 物料混合度最低为 89.4%, 随着混合转速的提高, 物料混合度先升高后降低, 当混合转速为 30 r/min 时, 物料混合度最高为 93.6%. 这是因为混合转速对物料混合运动状态有着重要影响, 转速由低到高, 物料混合运动分别为滑移、滚动、瀑布和离心四种状态^[11], 其中以瀑布方式运动物料的混合均匀程度最佳. 混合转速低时, 物料以滑移和滚动方式运动, 各组份相互分散程度低, 混合度低; 混合转速提高, 物料以瀑布方式运动, 各组份得到充分分散, 混合度也相对提高; 混合转速进一步提高, 物料开始进入离心方式运动, 部分组份得不到充分分散, 混合度也变低. 因而认为 30 r/min 是最佳混合转速, 其物料运动方式为瀑布状态.

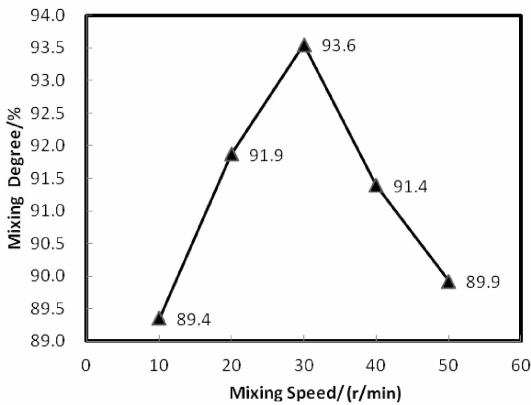


图 3 不同混合转速的物料混合度变化曲线
Fig. 3 Mixing degree of mixed powders varies with different mixing speeds

3.3 不同料罐填充率对物料混合度的影响

在上述研究基础上, 选取混合时间 90 min 和混合转速 30 r/min, 进行料罐填充率为 10%、20%、30%、40% 和 50% 的 U-Mo 微球和 Al 粉的混合试验, 获取混合后物料的混合度. 图 4 为不同料罐填充率的物料混合度变化曲线. 由图 4 可知, 料罐填充率为 10% 时, 物料混合度最低为 90.6%, 随着料罐填充率的提高, 物料混合度先升高后降低, 当料罐填充率为 30% 时, 物料混合度最高为 93.6%. 这是因为料罐填充率对物料混合运动模

式有直接影响^[12], 填充率低时, 物料在料罐中混合运动不激烈, 各组份分散程度低, 混合低; 填充率提高, 物料在料罐中混合运动加剧, 各组份得到充分分散, 混合度也相对提高; 填充率进一步提高, 物料的运动空间变小, 各组份难以得到充分分散, 底部物料混合效果差, 混合度也相对变低. 因而认为 30% 是最佳料罐填充率.

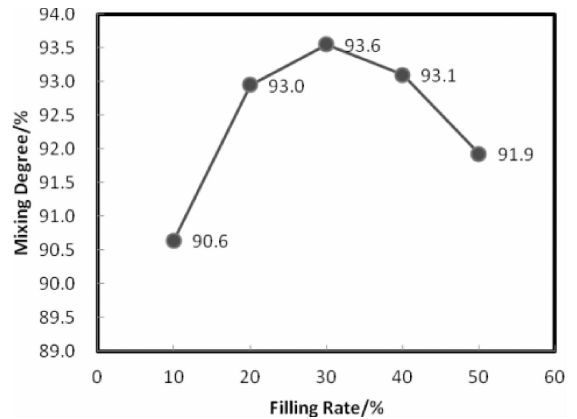


图 4 不同料罐填充率的物料混合度变化曲线
Fig. 4 Mixing degree of mixed powders varies with different filling rates

表 1 正交试验方案
Tab. 1 Orthogonal experiment scheme

试验组	影响因素			混合度/%
	混合时间 /min	混合转数 / (r/min)	料罐填充率/%	
1	60	10	10	85.1
2	60	30	30	92.3
3	60	50	50	90.1
4	90	10	30	89.4
5	90	30	50	91.9
6	90	50	10	90.2
7	120	10	50	87.5
8	120	30	10	92.1
9	120	50	30	90.5

表 2 各因素水平的混合度均值和极差分析结果
Tab. 2 Average and range analysis results of mixing degree of various factors and levels

平均值	混合度/%		
	混合时间(min)	混合转数(r/min)	料罐填充率(%)
均值 1	89.2	87.3	89.1
均值 2	90.5	92.1	90.7
均值 3	90.0	90.3	89.8
极差	1.3	4.8	1.6

3.4 三种混合因素对物料混合度的影响程度分析

为分析三种混合因素对物料混合度的影响程度^[13],在上述单变量法研究的基础上选取各因素的三个水平,按 $L_9(3^4)$ 正交表设计三因素三水平的正交试验,正交试验方案见表 1 所示. 由表 1 中的混合度数据,计算出各因素水平的均值和极差,如表 2 所示. 从表 2 中极差分析结果可知,混合转速的极差最大,料罐填充率极差次之,混合时间极差最小,表明三种混合因素对物料混合度的影响程度为:混合时间<料罐填充率<混合转速. 同时从表 2 中各因素水平的均值结果可知,三种混合因素的水平 2 的混合度均值最大,即最佳混合工艺参数为:混合时间 90 min、混合转速 30 r/min 和料罐填

充率 30%. 这与单变量法获得的各因素最佳参数相同,因而认为该混合工艺为最佳工艺,混合度可达 93.6%(见图 4 中混合度数据).

3.5 物料混合工艺优化前后微观形貌对比

采用体视显微镜对比分析混合工艺优化前后的物料微观形貌,见图 5 所示. 从图 5 可知,原混合工艺的混合物料,U-Mo 微球团聚明显,没有均匀弥散在 Al 粉中,混合均匀程度低;优化混合工艺的混合物料,U-Mo 微球没有明显团聚现象,较好的弥散在 Al 粉中,混合均匀程度高. 因此采用优化后的混合工艺,可有效提高 U-Mo 微球和 Al 粉的混合均匀程度,提升 U-Mo-Al 弥散燃料元件的性能.

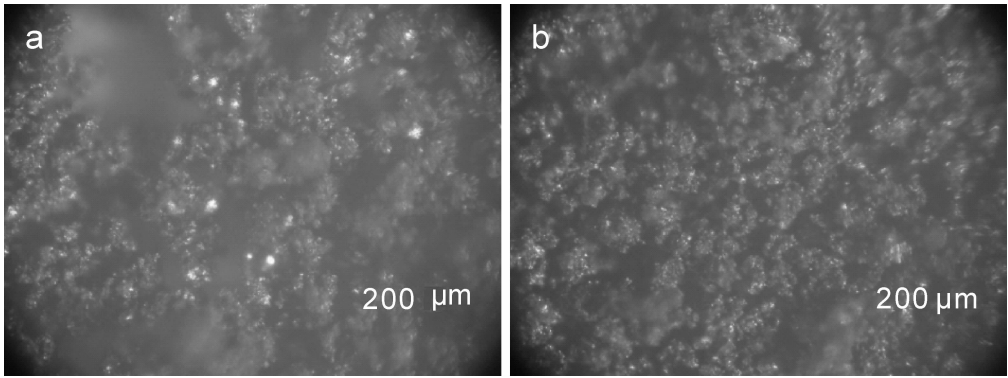


图 5 混合工艺优化前后微观形貌对比:(a)优化前,(b)优化后

Fig. 5 Microstructure images of mixed powders with different processes: (a) the original mixing process, (b) the optimal mixing process

4 结 论

1)采用垂直行星分罐式混料机,系统研究了不同混合时间、混合转速和料罐填充率对 U-Mo 微球和 Al 粉的混合度影响,获得了相关影响规律.

2)采用三因素三水平正交试验,获得了三种混合因素对 U-Mo 微球和 Al 粉混合度的影响程度,其为:混合时间<料罐填充率<混合转速.

3)U-Mo 微球和 Al 粉的最佳混合工艺为:混合时间 90 min、混合转速 30 r/min 和料罐填充率 30%,其物料混合度为 93.6%.

4)采用优化后的 U-Mo 微球和 Al 粉混合工艺,提高了物料的混合均匀程度,提升了 U-Mo/Al 弥散燃料元件的 U 分布均匀性.

参考文献:

[1] Leenaers A, Berghe S V D, Renterghem W V, et al.

Irradiation behavior of ground U(Mo) fuel with and without Si added to the matrix [J]. J Nucl Mater, 2011, 412: 41.

[2] Cho T W, Sohn D S, Kim Y S. Thermal conductivity of U-Mo/Al dispersion fuel: effects of particle shape and size, stereography, and heat generation [J]. J Nucl Sci Technol, 2015, 52: 1.

[3] Ryu H J, Park J M, Chang K K, Kim Y S, Hofman, G L. Diffusion reaction behaviors of U-Mo/Al dispersion fuel [J]. J Phase Equilib Diff, 2006, 27: 651.

[4] 尹昌耕, 陈建刚, 孙长龙, 刘云明, 庞晓轩, 孙旭东. 中国核动力院 U-Mo 合金燃料研究现状及进展[J]. 原子能科学技术, 2009, 43: 389.

[5] 李冠兴. 研究试验堆燃料元件制造技术[M]. 北京: 化学工业出版社, 2007.

[6] 张卓华, 彭诗念, 于俊崇. UO_2 -Zr 弥散燃料板严重事故早期行为与熔融芯体迁移模型研究[J]. 核动力工程, 2014, 6: 143.

[7] 冷茂林, 王晓敏, 刘睿睿, 何振娟, 王录全, 杨天华.

- 包覆工艺对微球形燃料相弥散燃料混合均匀性的影响[J]. 原子能科学技术, 2015, 49: 915.
- [8] 杨文斗. 反应堆材料学[M]. 北京: 原子能出版社, 2000.
- [9] 陆厚根. 粉体技术导论[M]. 上海: 同济大学出版社, 1998.
- [10] 尹邦跃, 梁雪元, 梁启东. 模拟 MOX 燃料粉末混合均匀性研究[J]. 原子能科学技术, 2005, 39: 125.
- [11] 陈文革. 粉末混合中物料的运动分析[J]. 电工材料, 2000, 1: 27.
- [12] 欧阳鸿武, 何世文, 廖奇音, 韦嘉. 圆筒型混合器中颗粒混合运动的研究[J]. 粉末冶金材料科学与工程, 2003, 35: 26.
- [13] 郭青锋, 王凤薇, 陈东辉, 王道武. 水相萃取红景天苷的研究[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2016, 53: 403.