



(21) 申请号 201711041149.4

(22) 申请日 2017.10.30

(65) 同一申请的已公布的文献号
申请公布号 CN 109727696 A

(43) 申请公布日 2019.05.07

(73) 专利权人 中核四0四有限公司
地址 732850 甘肃省兰州市508信箱1分箱

(72) 发明人 艾利君 陈永红 杨廷贵 周国梁
潘传龙 张顺孝 郭亮

(74) 专利代理机构 核工业专利中心 11007
专利代理师 任超

(51) Int. Cl.
G21F 9/28 (2006.01)
G21F 9/30 (2006.01)

(56) 对比文件

US 5882552 A, 1999.03.16

JP 2007155380 A, 2007.06.21

JP S6479691 A, 1989.03.24

JP 2912920 B1, 1999.06.28

CN 106782736 A, 2017.05.31

EP 1683162 A2, 2006.07.26

JP H11287890 A, 1999.10.19

JP 2011033504 A, 2011.02.17

US 2005167861 A1, 2005.08.04

JP H11242096 A, 1999.09.07

US 2013148774 A1, 2013.06.13

叶玉星, 高源. 用电解精炼法回收和纯化铀和钚的研究I. 铀-钚合金芯块的直接溶解. 《核化学与放射化学》. 1994, (第04期),

审查员 李怀涛

权利要求书2页 说明书3页

(54) 发明名称

MOX芯块回收再利用方法

(57) 摘要

一种MOX芯块回收再利用方法, 包括以下步骤: 步骤一: 选用MOX燃料芯块, 对其外观、尺寸、铀钚含量、杂质含量、O/M、密度数据进行分析检测; 步骤二: 对O/M不合格芯块进行回收利用; 步骤三: 对密度不合格芯块进行回收利用; 步骤四: 对外径不合格芯块进行回收利用; 步骤五: 对多项不合格芯块进行回收利用。

1. 一种MOX芯块回收再利用方法,其特征在于:包括以下步骤:

步骤一:选用MOX燃料芯块,对其外观、尺寸、铀钚含量、杂质含量、O/M、密度数据进行分析检测;

步骤二:O/M不在1.90~1.99之间的芯块,认为是不合格的芯块,将芯块装入石英烧结舟中,再将烧结舟装入烧结炉内;将炉内气压抽至0.01~5.00Pa之间,以0.1~15.0L/min速度通入Ar及H₂混合气体,选择0.1~10.0%H₂含量的混合气体,气压保持在8~18KPa之间,如此往复操作1~10次,氧势为-800~-150KJ/mol,露点-50~0℃,H₂O含量为10~1000ppm;将烧结炉内温度以0.1~10℃/min的速度升温,并在600~1500℃保温0.5~48h,气压保持在1~14KPa之间,气体流量控制速度在0.1~35L/min,氧势为-700~-250KJ/mol,露点-5~-60℃,H₂O含量为10~1000ppm;

步骤三:对于密度值小于91%TD的芯块,将芯块装入石英烧结舟中,再将烧结舟装入烧结炉内;将炉内气压抽至0.05~2.00Pa之间,以1~10L/min速度通入Ar+%H₂,H₂含量为1~15%,气压保持在5~16KPa之间,如此往复操作1~10次,氧势为-600~-150KJ/mol,露点-30~0℃,H₂O含量为50~700ppm;将烧结炉内温度以0.1~3℃/min的速度升温,并在1200~1800℃保温0.5~12h,气压保持在2~22KPa之间,气体流量控制速度在0.5~10L/min,氧势为-600~-100KJ/mol,露点-10~-40℃,H₂O含量为200~1200ppm;

步骤四:对于外径超过8.8mm的芯块,以5~20cm/min的速度送入磨削机中,以30~800rpm的转速度对芯块进行磨削处理;

步骤五:对于密度值高于97.3%TD、芯块高度在7.3mm以下,外径小于3.5mm、UO₂含量低于56.4%,PuO₂含量低于3.3%、杂质含量超过6550μg/g铀钚的芯块,按照10~80%的装填率加入破碎机中,以10~1000rpm的破碎速度,在10~500N的压力下进行破碎处理10~2000min;当破碎后的颗粒粒径分布在2~200μm布区间、比表面积为0.1~10m²/g后,按照20~400%装填率加入球磨罐中,按照1:1的比例加入直径为1~10mm的ZrO₂磨球,以0.5~10L/h的速度通入N₂,以1~30r/min的速度将物料预先混合均匀1~90min;然后以2~20L/h的速度通入N₂,按照1~25r/min的速度逐渐增加球磨速度,以10~1000rpm的转速搅拌20~500min,处理结束后,以3~60r/min的速度逐渐减小搅拌速度直至停止;

步骤六:对球磨细化获得的混合粉末分析铀钚含量、粒度、比表面、杂质含量进行分析,若混合粉末粒度在0.3~1.2μm之间,比表面积为7.2~36.4m²/g,均匀性在98.3~99.9之间,杂质含量小于1730μg/g,则为合格粉末。

2. 根据权利要求1所述的一种MOX芯块回收再利用方法,其特征在于:所述步骤二中,保温结束后,以2~40℃/min的速度降温至35~70℃,将芯块转运出烧结炉,检测O/M后贮存备用。

3. 根据权利要求1所述的一种MOX芯块回收再利用方法,其特征在于:所述步骤三中,保温结束后,以0.1~10.0℃/min的速度降温至室温,将芯块转运出烧结炉,检测密度后贮存备用。

4. 根据权利要求1所述的一种MOX芯块回收再利用方法,其特征在于:所述步骤五中,破碎介质为WC硬质合金,介质为球形,直径为1~30mm。

5. 根据权利要求1所述的一种MOX芯块回收再利用方法,其特征在于:所述步骤六中,若各项参数不合格则返回相应步骤进行处理,直至分析结果合格,然后按照5~40%w.t.的比

例与 UO_2 、 PuO_2 原料粉末混合,进行MOX芯块制备后续处理。

MOX芯块回收再利用方法

技术领域

[0001] 本发明属于回收再利用领域,具体涉及一种MOX芯块回收再利用方法。

背景技术

[0002] MOX生坯压制以及芯块烧结过程中,由于物料流动性、物料物化性质、烧结工艺等参数不理想导致生产出一定量的不合格芯块,为提高产品合格率,需对不合格芯块进行回收再利用。

[0003] 目前,传统的核燃料制造领域对于不合格产品主要采用容器贮存的方式进行处理,存在有几点不足,一是不合格芯块的贮存导致铀钚物料利用率低;二是芯块贮存费用昂贵,变相导致芯块制造成本高昂;三是积聚的芯块对设备和人员均会造成辐照损害。为了解决这些问题,本专利设计了一种MOX芯块回收再利用方法,通过对芯块不合格原因梳理,采用针对性的处理方式,解决铀钚物料利用率不高、芯块大量积存的问题,实现不合格芯块的合理利用,提高了产品合格率。

发明内容

[0004] 本发明的目的在于提供一种MOX芯块回收再利用处理方法,解决目前不合格芯块处理方式单一的难题,实现不合格芯块的合理利用。

[0005] 本发明的技术方案如下:一种MOX芯块回收再利用方法,包括以下步骤:

[0006] 步骤一:选用MOX燃料芯块,对其外观、尺寸、铀钚含量、杂质含量、O/M、密度数据进行分析检测;

[0007] 步骤二:O/M不在1.90~1.99之间的的芯块,认为是不合格的芯块,将芯块装入石英烧结舟中,再将烧结舟装入烧结炉内;将炉内气压抽至0.01~5.00Pa之间,以0.1~15.0L/min速度通入Ar+%H₂,选择0.1~10.0%H₂含量的混合气体,气压保持在8~18KPa之间,如此往复操作1~10次,氧势为-800~-150KJ/mol,露点-50~0℃,H₂O含量为10~1000ppm;将烧结炉内温度以0.1~10℃/min的速度升温,并在600~1500℃保温0.5~48h,气压保持在1~14KPa之间,气体流量控制速度在0.1~35L/min,氧势为-700~-250KJ/mo,露点-5~-60℃,H₂O含量为10~1000ppm;

[0008] 步骤三:对于密度值小于91%TD的芯块,将芯块装入石英烧结舟中,再将烧结舟装入烧结炉内;将炉内气压抽至0.05~2.00Pa之间,以1~10L/min速度通入Ar+%H₂,H₂含量为1~15%,气压保持在5~16KPa之间,如此往复操作1~10次,氧势为-600~-150KJ/mol,露点-30~0℃,H₂O含量为50~700ppm;将烧结炉内温度以0.1~3℃/min的速度升温,并在1200~1800℃保温0.5~12h,气压保持在2~22KPa之间,气体流量控制速度在0.5~10L/min,氧势为-600~-100KJ/mo,露点-10~-40℃,H₂O含量为200~1200ppm;;

[0009] 步骤四:对于外径超过8.8mm的芯块,以5~20cm/min的速度送入磨削机中,以30~800rpm的转速度芯块进行磨削处理;

[0010] 步骤五:对于密度值高于97.3%TD、芯块高度在7.3mm以下,外径小于3.5mm、U₂O₈含

量低于56.4%，PuO₂含量低于3.3%、杂质含量超过6550μg/g (U+Pu)的芯块，按照10~80%的装填率加入破碎机中，以10~1000rpm的破碎速度，在10~500N的压力下进行破碎处理10~2000min；当破碎后的颗粒粒径分布在2~200μm布区间、比表面积为0.1~10m²/g，后，按照20~400%装填率加入球磨罐中，按照1:1的比例加入直径为1~10mm的ZrO₂磨球，以0.5~10L/h的速度通入N₂，以1~30r/min的速度将物料预先混合均匀1~90min；然后以2~20L/h的速度通入N₂，按照1~25r/min的速度逐渐增加球磨速度，以10~1000rpm的转速搅拌20~500min，处理结束后，以3~60r/min的速度逐渐减小搅拌速度直至停止；

[0011] 步骤六：对球磨细化获得的混合粉末分析铀钚含量、粒度、比表面、杂质含量进行分析，若混合粉末粒度在0.3~1.2μm之间，比表面积为7.2~36.4m²/g，均匀性在98.3~99.9之间，杂质含量小于1730μg/g，则为合格粉末。

[0012] 所述步骤二中，保温结束后，以2~40℃/min的速度降温至35~70℃，将芯块转运出烧结炉，检测O/M后贮存备用。

[0013] 所述步骤三中，保温结束后，以0.1~10.0℃/min的速度降温至室温℃，将芯块转运出烧结炉，检测密度后贮存备用。

[0014] 所述步骤五中，破碎介质为WC硬质合金，介质为球形，直径为1~30mm。

[0015] 所述步骤六中，若各项参数不合格则返回相应步骤进行处理，直至分析结果合格，然后按照5~40%w.t.的比例与UO₂、PuO₂原料粉末混合，进行MOX芯块制备后续处理。

具体实施方式

[0016] 一种MOX芯块回收再利用方法，包括以下步骤：

[0017] 步骤一：选用MOX燃料芯块，对其外观、尺寸、铀钚含量、杂质含量、O/M、密度数据进行分析检测。

[0018] 步骤二：O/M不在1.90~1.99之间的芯块，认为是不合格的芯块，将芯块装入石英烧结舟中，再将烧结舟装入烧结炉内；将炉内气压抽至0.01~5.00Pa之间，以0.1~15.0L/min速度通入Ar+%H₂，选择0.1~10.0%H₂含量的混合气体，气压保持在8~18KPa之间，如此往复操作1~10次，氧势为-800~-150KJ/mol，露点-50~0℃，H₂O含量为10~1000ppm；将烧结炉内温度以0.1~10℃/min的速度升温，并在600~1500℃保温0.5~48h，气压保持在1~14KPa之间，气体流量控制速度在0.1~35L/min，氧势为-700~-250KJ/mol，露点-5~-60℃，H₂O含量为10~1000ppm；保温结束后，以2~40℃/min的速度降温至35~70℃，将芯块转运出烧结炉，检测O/M后贮存备用；

[0019] 步骤三：对于密度值小于91%TD的芯块，将芯块装入石英烧结舟中，再将烧结舟装入烧结炉内。将炉内气压抽至0.05~2.00Pa之间，以1~10L/min速度通入Ar+%H₂，H₂含量为1~15%，气压保持在5~16KPa之间，如此往复操作1~10次，氧势为-600~-150KJ/mol，露点-30~0℃，H₂O含量为50~700ppm；将烧结炉内温度以0.1~3℃/min的速度升温，并在1200~1800℃保温0.5~12h，气压保持在2~22KPa之间，气体流量控制速度在0.5~10L/min，氧势为-600~-100KJ/mol，露点-10~-40℃，H₂O含量为200~1200ppm。保温结束后，以0.1~10.0℃/min的速度降温至室温℃，将芯块转运出烧结炉，检测密度后贮存备用。

[0020] 步骤四：对于外径超过8.8mm的芯块，以5~20cm/min的速度送入磨削机中，以30~800rpm的转速度芯块进行磨削处理。

[0021] 步骤五:对于密度值高于97.3%TD、芯块高度在7.3mm以下,外径小于3.5mm、 UO_2 含量低于56.4%, PuO_2 含量低于3.3%、杂质含量超过6550 $\mu\text{g/g}$ (U+Pu)的芯块,按照10~80%的装填率加入破碎机中,以10~1000rpm的破碎速度,在10~500N的压力下进行破碎处理10~2000min,破碎介质为WC硬质合金,介质为球形,直径为1~30mm;当破碎后的颗粒粒径分布在2~200 μm 布区间、比表面积为0.1~10 m^2/g ,后,按照20~400%装填率加入球磨罐中,按照1:1的比例加入直径为1~10mm的 ZrO_2 磨球,以0.5~10L/h的速度通入 N_2 ,以1~30r/min的速度将物料预先混合均匀1~90min;然后以2~20L/h的速度通入 N_2 ,按照1~25r/min的速度逐渐增加球磨速度,以10~1000rpm的转速搅拌20~500min,处理结束后,以3~60r/min的速度逐渐减小搅拌速度直至停止;

[0022] 步骤六:对球磨细化获得的混合粉末分析铀钚含量、粒度、比表面、杂质含量进行分析,若混合粉末粒度在0.3~1.2 μm 之间,比表面积为7.2~36.4 m^2/g ,均匀性在98.3~99.9之间,杂质含量小于1730 $\mu\text{g/g}$,则为合格粉末;若各项参数不合格则返回相应步骤进行处理,直至分析结果合格,然后按照5~40%w.t.的比例与 UO_2 、 PuO_2 原料粉末混合,进行MOX芯块制备后续处理。