流化床氢还原制备铀氧化物固相分布模拟测定研究

申浩楠,牛玉清,李大炳,康绍辉,康修铭,叶开凯,张佳宇

(核工业北京化工冶金研究院,北京　101149)

摘要:为测定气-液-固流化过程中 UO_2 颗粒固相分布规律,通过磁场辅助气-液-固三相流化床冷模试验,系统探究了镍粉(模拟催化剂)与氧化铝(模拟 UO_2 产物)的流态化行为及磁场调控下的分离特性。结果表明:无磁场时,氧化铝颗粒的轴向固含率分布随气体流量(5～40 L/min)变化而显著变化,低气体流量(5～20 L/min)下床层底部形成高浓度沉积区,粒径越大沉积效应越明显,中高气体流量(25～40 L/min)下大气泡破碎增强轴向混合,但顶部固含率仍低于底部;镍粉因高密度特性表现出显著差异,细颗粒(200～300 目)需气体流量≥15 L/min 实现准均匀分散,而粗颗粒(100～200 目)即使在气体流量达 40 L/min 时,仍沉积于床层底部;施加磁场后,镍粉随磁场强度增强逐渐富集于床层下部,形成磁性团聚的"表观大颗粒"并稳定沉积于气体分布板附近,而非磁性氧化铝随液流上浮;同一磁场强度下,镍粉与氧化铝固含率比自上而下递增,而随磁场增强比值迅速下降,表明磁性颗粒聚集效应显著。研究结果验证了磁场辅助流化床对磁性催化剂与非磁性产物的动态分离效能,明确了气体流量、磁场强度及颗粒匹配的关键参数,可为铀化工连续化反应器设计提供理论支撑。

关键词:磁化流化床;氢还原;制备;铀氧化物;气-液-固三相;固含率分布

中图分类号:TL212　　**文献标识码**:A　　**文章编号**:1009-2617(2025)06-0759-07

DOI:10.13355/j.cnki.sfyj.2025.06.007

天然铀是关系现代能源体系和国家安全的重要战略物资,在核能发电、国防装备等领域具有不可替代的关键作用。目前,在国内天然铀的生产中,针对碱性铀合格液,通常采用酸化去除碳酸根—碱沉淀工艺制备重铀酸钠产品。但该工艺存在试剂消耗大、母液循环利用率低等问题,且产品为湿基,铀含量较低,运输成本较高[1-2]。相较而言,二氧化铀具有铀含量较高、更利于后续铀转化衔接等优势,因此逐渐成为了铀产品制备新方向之一。

目前,氢还原作为一种成熟的还原技术,已在多个领域得到广泛应用[3-11]。在铀化工领域,氢还原同样是重要的工艺手段之一。在镍粉或自催化作用下,溶液中 UO_2^{2+} 可被氢还原为 U^{4+},之后再通过控制试验条件使 U^{4+} 水解生成 UO_2 颗粒,UO_2 颗粒从溶液中分离即可得到 UO_2 产品。氢还原 UO_2^{2+} 是氢气与铀溶液在固相催化剂作用下的气-液-固反应过程。为满足后续转化操作要求,对沉淀二氧化铀产品的粒度与活性也提出了一定要求。因此,有必要开发出一种新型氢还原反应器,在确保气相/液相连续进入反应体系的同时,实现固相催化剂颗粒与固相 UO_2 颗粒的在线分离,以及 UO_2 产品的粒径分级。

流化床因具备热质传递效率高、连续性强、可进行多相反应等优点成为了氢还原反应器的重要研究方向之一,其操作的关键是掌握物料的流化特性[12-15]。为掌握固体催化剂和 UO_2 颗粒固相分布规律,选用具有良好催化活性和磁响应性,且在铀催化加氢还原工艺中常用的镍粉作催化剂;此外,考虑到 UO_2 颗粒具有放射性,存在安全防护、特殊许可及操作困难等诸多问题,使用不便,因此选用密度、颗粒尺寸及流态化行为等关键物理特性与 UO_2 高度接近的氧化铝颗粒作为非磁

收稿日期:2025-05-10

第一作者简介:申浩楠(2000—),男,硕士,助理工程师,主要研究方向为铀纯化转化。

通信作者简介:牛玉清(1967—),男,硕士,研究员级高级工程师,主要研究方向为铀纯化转化、核燃料循环。

性模拟物，利用磁场辅助镍粉流化控制，进行了气-液-固流化过程中 UO_2 颗粒固相分布的模拟测定研究。

1 试验部分

1.1 试验原料及仪器

原料：镍粉，粒径范围分别为 100～200、200～300 目；氧化铝：粒径范围分别为 100～200、200～300 和 300～400目，为精确模拟真实铀氧化物的物理特性，选取 3 种粒径范围样品。

试验装置由 4 个功能模块协同构建：1）气体供给模块，通过净化与流量控制单元实现气体的稳定输入；2）流化模块，依托非磁性有机玻璃床体与气体分布器维持气-液-固三相体系的动态平衡；3）磁场调控模块，通过可调线圈结构生成轴向均匀磁场，为反应过程提供可控外部激励；4）多点取样模块，沿床体轴向设置取样口，用于实时监测不同区域固相分布状态，以表征体系动态特性。试验装置组成及关键参数见表 1，设计示意及实物如图 1 所示。

表 1 试验装置组成及关键参数

Table 1 Composition and key parameters of experimental device

子系统	组成部件	关键参数
气体供给系统	罗茨鼓风机、压缩空气储罐、除油器、除湿器、压力调节器、转子流量计	流量范围：0～100 L/min
流化装置	非磁性有机玻璃主体、风室、气体分布板（金属烧结板）、流化床体	床体尺寸：直径 80 mm，高 500 mm
磁场产生装置	四组异批次赫姆霍兹线圈、直流稳压电源	线圈间距 Z：调节范围为 50～383 mm； 磁场强度调节：0～4 A电流控制； 轴向均匀性：半径 60 mm 内磁场波动≤10%
取样口	在气体分布板上方沿轴向设置 7 个取样口（高度间隔 60 mm）	其中心位置分别为 30、90、150、210、270、330 及 390 mm

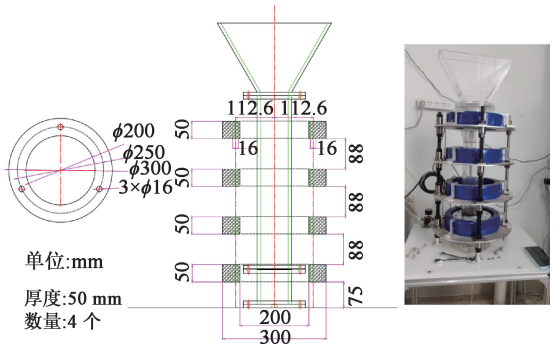


图 1 试验装置设计示意及实物照片

Fig. 1 Schematic diagram and photograph of the experimental device

1.2 试验方法

1）单一固相体系轴向分布表征

氧化铝颗粒分布规律测定：选用 100～200、200～300、300～400目3 种粒径规格，在无磁场条件下向床体注入 1.50 kg 去离子水与 0.25 kg 氧化铝（平均固含率 14.3%），通过气体流量（Q）梯度试验（5～40 L/min，步长 5 L/min）并结合轴向分层取样，解析颗粒粒径与气体流量对固含率分布的影响规律。

镍粉颗粒分布规律测定：选用 100～200、200～300目 2 种粒径规格，在相同试验条件下对比镍粉与氧化铝的流态化行为差异。

2）混合固相体系轴向分布与浓度

无磁场时，镍粉和氧化铝分布规律测定：在气体流量 20、30、40 L/min（对应表观气体流速 0.066～0.133 m/s）下，向床体加入 250 g 镍粉（200～300目）、250g 氧化铝（200～300目）及 1 500 mL去离子水，稳态后通过轴向分层取样、高温干燥与磁性分离镍粉和氧化铝，定量解析镍粉与氧化铝的局部质量比。

施加磁场时，镍粉和氧化铝分布规律测定：在相同气体流量与物料配比下，施加梯度磁场（以电流强度 0～4 A 调节磁场强度），对比磁场作用对两相浓度分布的影响。

2 试验结果与讨论

2.1 单一固相体系轴向分布表征

2.1.1 氧化铝颗粒固含率的轴向分布

在纯水体系、无磁场、不同气体流量下，粒径分别为 100～200、200～300、300～400目的氧化

铝固含率的轴向分布测定试验结果如图 2～4 所示。

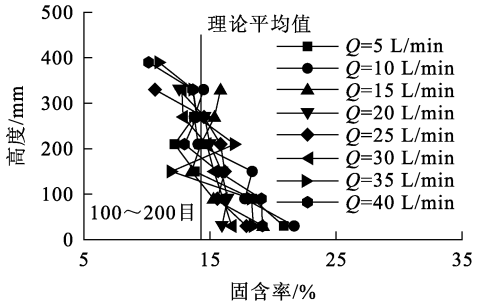


图 2　不同气体流量下，100～200目氧化铝固含率的轴向分布测定结果

Fig. 2　Measurement results of axial distribution of solid content in 100～200 mesh alumina at different gas flow rates

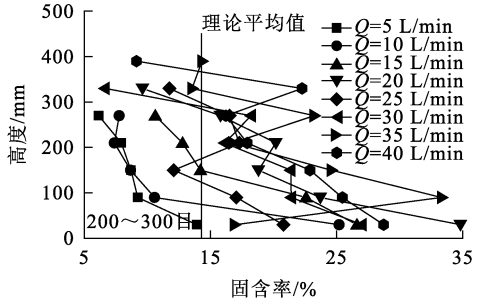


图 3　不同气体流量下，200～300目氧化铝固含率的轴向分布测定结果

Fig. 3　Measurement results of axial distribution of solid content in 200～300 mesh alumina at different gas flow rates

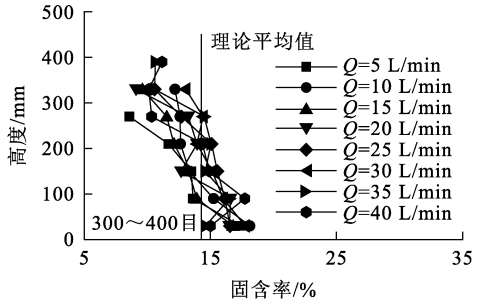


图 4　不同气体流量下，300～400目氧化铝固含率的轴向分布测定结果

Fig. 4　Measurement results of axial distribution of solid content in 300～400 mesh alumina at different gas flow rates

氧化铝固含率的轴向分布与气体流量密切相关：当气体流量较小时，气泡的扰动较弱，因此下部的固含率高，上部的固含率低；随气体流量增大，固含率的轴向分布较均匀。由图 2 看出：在低气体流量区（5～20 L/min），小气泡主导弱扰动，床层底部形成高浓度沉积区，轴向梯度显著，粒度越大沉积效应越明显；在中高气体流量区（25～40 L/min），大气泡破碎增强轴向混合，但液流曳力不足导致顶部固含率仍低于底部。试验数据存在局部异常波动点，源于三相流化体系固有的动态非稳态特性——气液两相随机运动与颗粒碰撞导致瞬时浓度涨跌；但试验数据统计显著性足以支撑轴向分布下大上小的普适性结论，该规律与气固流化床中 Geldart-B 类颗粒的分布特性一致。

2.1.2　镍粉颗粒的固含率轴向分布

在纯水体系、无磁场、不同气体流量下，粒径分别为 100～200、200～300目的镍粉的固含率轴向分布测定试验结果如图 5、6 所示。

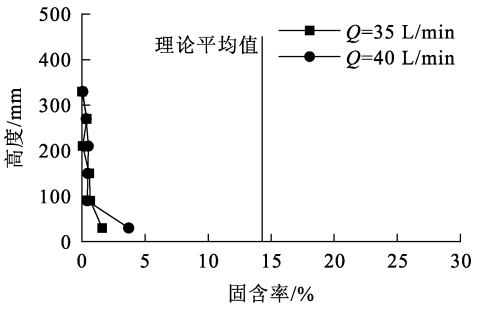


图 5　不同气体流量下，100～200目镍粉的固含率轴向分布测定结果

Fig. 5　Axial solid content distribution of 100～200 mesh nickel powder at different gas flow rates

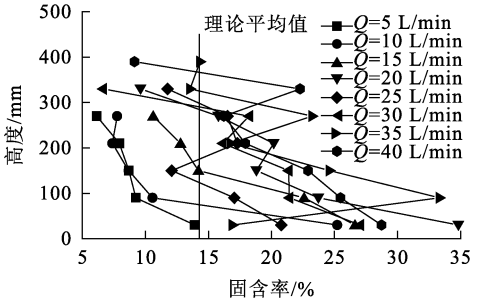


图 6　不同气体流量下，200～300目镍粉的固含率轴向分布测定结果

Fig. 6　Axial solid content distribution of 100～200 mesh nickel powder at different gas flow rates

由图 5、6 看出，镍粉因具有高密度特性，使得其流态化行为与氧化铝存在明显差异：对于 200～300目细颗粒，气体流量大于 15 L/min 时，气泡扰动可实现准均匀分散，但须注意其在混合体系中易被液相夹带上浮，需磁场截留；而对于 100～200 目的粗颗粒，即使气体流量提升至 40 L/min，仍会因其具有高密度特性导致在床层底部形成沉积层，且各高度的镍粉固含率均远低于理论平均值，在顶部固含率甚至趋近于 0。

2.2 混合固相体系轴向分布与浓度比研究

1)无磁场

无磁场时，在不同气体流量下，双组分(Ni/Al_2O_3)流化床中，氧化铝＋镍粉总固含率轴向分布如图 7 所示，镍粉和氧化铝的固含率之比轴向分布如图 8 所示，氧化铝的固含率的轴向分布如图 9 所示，镍粉的固含率轴向分布如图 10 所示。

由图 7～10 可知：在双组分(Ni/Al_2O_3)流化床中，给定气体流量条件下，总固含率、氧化铝固含率和镍粉固含率均呈上稀下浓的轴向分布特征，且气体流量升高，气体搅动加剧，搅起更多底层沉积颗粒，导致三者固含率均显著提升；但氧化铝和镍粉分布特性不同，氧化铝在床层上部相对富集(Ni/Al_2O_3固含率比＜1.0)且轴向分布较为均匀，而镍粉则在下部富集(Ni/Al_2O_3 固含率比＞1.0)，并呈现更陡峭的轴向梯度。产生这一差异的根源在于颗粒物性及其在单组分流化中的行为：单组分试验显示，氧化铝在气体流量提升至中高范围(25～40 L/min)后，因大气泡破碎增强混合，其轴向分布趋近均匀；相比之下，高密度镍粉表现出强沉降倾向——细颗粒(200～300 目)在气体流量＞15 L/min时虽可实现准均匀流化，但须依赖磁场抑制液相夹带上浮，而粗颗粒(100～200目)即使在高气体流量(40 L/min)下也仅在床层底部形成沉积层，顶部固含率趋近于 0。因此，在双组分体系中，氧化铝因其固有的易流化特性得以维持相对均匀的分布，而镍粉(尤其是粗颗粒)受限于高密度导致的易沉降本质，难以被气体有效悬浮至床层上部，造成显著的轴向不均匀性。镍粉这种强烈的、难以被常规气体流量流化的轴向分布不均，成为了主导氧化铝和镍粉轴向固含量分布较大差异的关键因素。

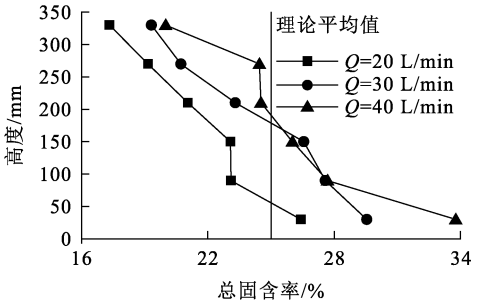


图 7 总固含率的轴向分布

Fig. 7 Axial distribution of total solid content

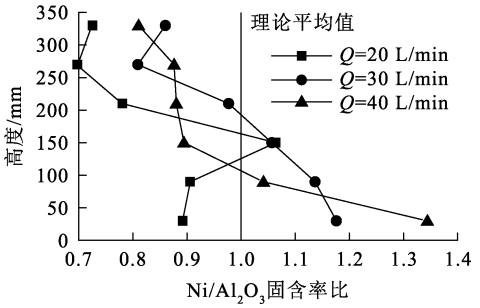


图 8 镍粉和氧化铝固含率比的轴向分布

Fig. 8 Axial profiles of the solid content ratio of nickel powder to alumina

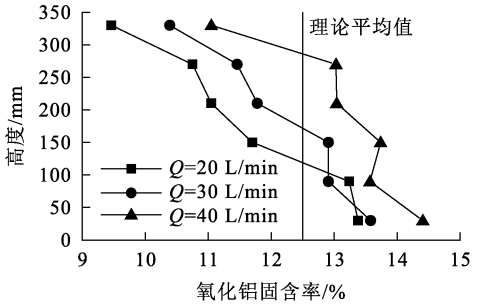


图 9 氧化铝固含率的轴向分布

Fig. 9 Axial profile of solid concentration for alumina

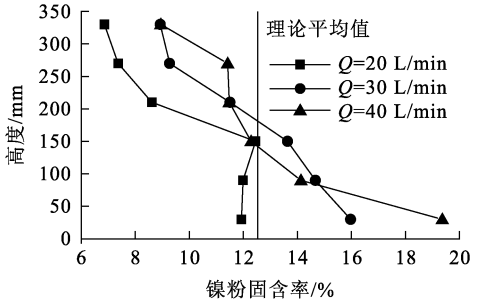


图 10 镍粉固含率的轴向分布

Fig. 10 Axial profile of solid concentration for nickel powder

2)施加磁场

施加磁场时，在不同磁场强度(I)条件下，气

体流量为 20 L/min 时，总固含率的轴向分布如图 11 所示，镍粉和氧化铝的固含率比的轴向分布如图 12 所示；气体流量为 30 L/min 时，总固含率的轴向分布如图 13 所示，镍粉和氧化铝的固含率比的轴向分布如图 14 所示；气体流量为 40 L/min 时，总固含率的轴向分布如图 15 所示，镍粉和氧化铝的固含率比的轴向分布如图 16 所示。

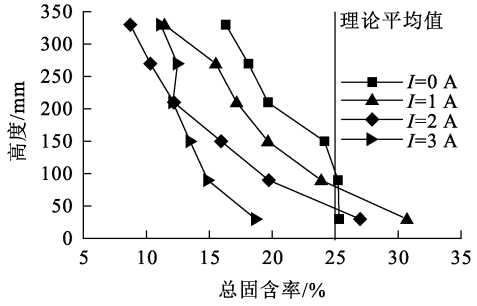


图 11　气体流量为 20 L/min 时，总固含率的轴向分布

Fig. 11　Axial distribution of total solid content as measured at gas flow rate of 20 L/min

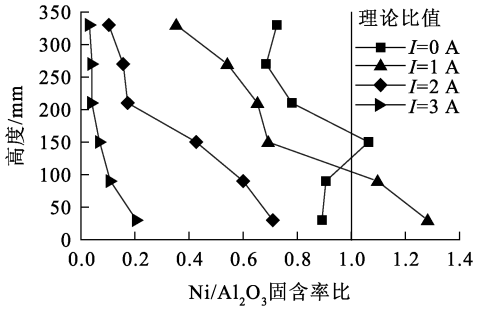


图 12　气体流量为 20 L/min 时，镍粉和氧化铝的固含率比的轴向分布

Fig. 12　Axial distribution of solid content ratio between nickel powder and alumina as measured at gas flow rate of 20 L/min

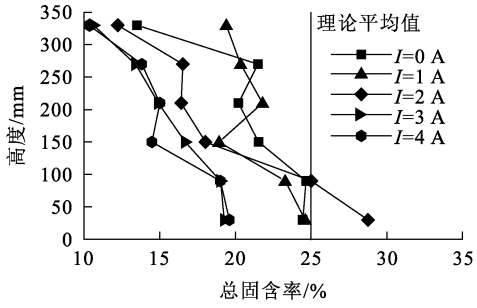


图 13　气体流量为 30 L/min，总固含率的轴向分布

Fig. 13　Axial distribution of total solid content as measured at gas flow rate of 30 L/min

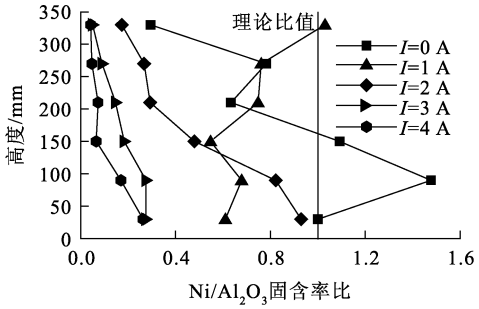


图 14　气体流量为 30 L/min 时，镍粉和氧化铝固含率比的轴向分布

Fig. 14　Axial distribution of solid content ratio between nickel powder and alumina as measured at gas flow rate of 30 L/min

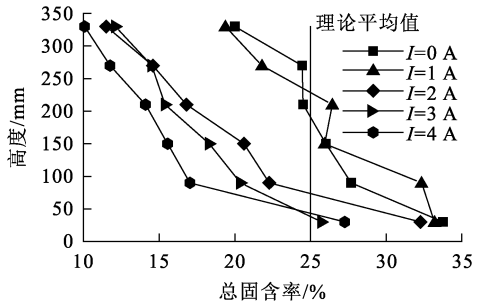


图 15　气体流量为 40 L/min 时，总固含率的轴向分布

Fig. 15　Axial distribution of total solid content as measured at gas flow rate of 40 L/min

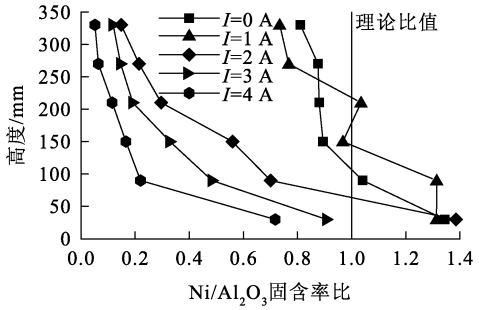


图 16　气体流量为 40 L/min 时，镍粉和氧化铝固含率比的轴向分布

Fig. 16　Axial distribution of solid content ratio between nickel powder and alumina as measured at gas flow rate of 40 L/min

由图 11～16 可知：当外加磁场强度为 0 时，随气体流量由 20 L/min 升至 40 L/min，颗粒分布状态与无磁场作用下的基本一致；在气体流量相同条件下，随磁场强度逐渐增大，床层上部镍粉含量显著降低，表明镍粉在磁场作用下主要富集于床层下部区

域;在同一磁场强度下,镍粉与氧化铝固含率比呈自上而下逐渐增大趋势,进一步验证了磁性颗粒在垂直方向上的非均匀分布特性;此外,随磁场强度增加,镍粉与氧化铝固含率比迅速下降,说明磁场对磁性颗粒的聚集效应增强;在磁场作用下,镍粉倾向于聚集成尺寸较大的"表观颗粒",从而加快其沉降速度,并稳定地沉积在气体分布板附近。试验中发现,随气体流量增大,维持镍粉固定在底部所需的磁场强度也随之增大。这表明,在较大气体流量条件下,气流对颗粒的曳力增强,在曳力和磁场的协同作用下可以形成镍粉均匀分布的磁锚定区。但由于气流所能提供的曳力存在上限,进一步增大磁场强度将导致磁性颗粒难以有效分散。因此,后续研究可考虑引入液相流体以增强曳力作用,这一改进方向也符合流化床反应器的发展趋势。

综上所述,通过合理调控磁场强度及气相与液相的流速,可实现磁性催化剂在床层内部的均匀分布,而非磁性颗粒则被气流与液流由底部带至床层上部。若在床体上部设置溢流口,则有望实现磁性颗粒与非磁性颗粒的选择性分离,从而实现设计构想。

3 结论

通过磁场辅助气-液-固三相流化床冷模试验系统探究了镍粉(磁性催化剂)与氧化铝(非磁性产物)在不同操作条件下的流态化行为及分离特性。结论如下:

1)在无磁场条件下,氧化铝颗粒在中高气体流量下趋于均匀分布,而密度较大的镍粉则因粒径不同呈现出显著的流化特征差异:细颗粒需较高气体流量才能实现分散,但仍易被液相夹带上浮;粗颗粒即使在最大气体流量下也难以充分流化,主要沉积于床层底部。

2)施加磁场后,镍粉发生磁聚并形成较大的"表观颗粒",加速沉降并稳定富集于床层下部,而非磁性的氧化铝随液相上浮,镍粉和氧化铝沿轴向的固含率比随高度增加而显著下降,这验证了磁场对磁性颗粒聚集与定向调控的有效性。同时发现,磁场强度需与气体流量匹配,过强磁场反而会抑制颗粒分散。

为进一步提升磁性催化剂在床层中的分布均匀性,建议后续研究可考虑采用增强液相曳力,并结合磁场与气、液相流速的协同调控策略。此外,在反应器上部设置溢流结构有望为磁性与非磁性颗粒的选择性分离提供实现路径,相关设想需在后续热态试验中进一步验证与优化。

参考文献:

[1] 刘马林. 化工流化床技术在铀燃料循环工业中的应用[J]. 化工进展,2013,32(3):508-514.
LIU Malin. Review on application of fluidized bed technology in industry of uranium fuel cycle[J]Chemical Industry and Engineering Progress,2013,32(3):508-514.

[2] 邓佐卿,庄海兴,黄伦光. 我国天然铀纯化技术研究的发展与现状[J]. 铀矿冶,1998,17(4):231-238.
DENG Zuoqing,ZHUANG Haixing,HUANG Lunguang. Development and present situation of natural uranium purification technical research in China[J]Uranium Mining and Metallurgy,1998,17(4):231-238.

[3] 张国斌. 页岩提钒富钒液高压氢还原沉钒工艺及机理研究[D]. 武汉:武汉理工大学,2019.

[4] 郭学益,陈远林,田庆华,等. 氢冶金理论与方法研究进展[J]. 中国有色金属学报,2021,31(7):1891-1906.
GUO Xueyi,CHEN Yuanlin,Tian Qinghua,et al. Research progress on hydrogen metallurgy theory and method.[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals,2021,31(7):1891-1906.

[5] 喻克宁,胡嗣强,毛铭华,等. $Ni(OH)_2$水热氢还原制备超细Ni粉[J]. 材料研究学报,1995,9(3):223-227.
YU Kening,HU Siqiang,MAO Minghua,et al. The preparation of ultrafine ni powder from $Ni(OH)_2$ slurry by hydrothermal reduction with hydrogen[J]. Chinese Journal of Materials Research,1995,9(3):223-227.

[6] 喻克宁,梁焕珍. 铜硫化物直接水浆氢还原制备铜粉[J]. 有色金属,2004(4):74-76.
YU Kening,LIANG Huanzhen. Cu powder preparation by direct hydrogen reduction of Cu_2S and CuS slurries.[J]. Nonferrous Metals,2004(4):74-76.

[7] 林涛,汪莉,刘祥庆,等. 溶液沉淀—氢还原法制备纳米钴粉[J]. 粉末冶金技术,2008,26(1):41-43.
LIN Tao,WANG Li,LIU Xiangqing. Solution precipitation-hydrogen reduction process for preparing nanometer cobalt powder[J]. Powder Metallurgy Technology,2008,26(1):41-43.

[8] 陈景,聂宪生. 加压氢还原法分离铑铱[J]. 贵金属,1992(2):7-12.
CHEN Jing,NIE Xiansheng. Separation of rhodium and iridium by pressure hydrogen[J]. Precious Metals,1992(2):7-12.

[9] 石玉洪. 从硫酸钴液中高压氢还原制取细粒钴粉[J]. 四川冶金,1983(4):60-64.
SHI Yuhong. Production of fine cobalt powder by high-pressure hydrogen reduction from cobalt sulfate solution[J]. Sichuan Metallurgy,1983(4):60-64.

[10] 万小虎,王朝安,韩厚坤. 高压氢还原制备球形钴粉的研究[J]. 稀有金属与硬质合金,2022,50(2):75-78.
WAN Xiaohu,WANG Chao′an,HAN Houkun. Study on preparation of spherical cobalt powder by high-pressure hydrogen reduction[J]. Rare Metals and Cemented Carbides,2022,50(2):75-78.

[11] 闫世凯，刘景辉，庞鹏沙，等. 浆料加压氢还原制备金属粉末研究进展[J]. 材料导报，2008，22(7)：56-59.
YAN Shikai，LIU Jinghui，PANG Pengsha，et al，Research progress in preparation of metal powders by hydrogen reduction of slurries under high pressure[J]. Materials Reports，2008，22(7)：56-59.

[12] 朱丽云，王振波，孙治谦，等. 多功能循环流化床大型冷模实验装置的设计[J]. 中国现代教育装备，2021，(1)：17-19.
ZHU Liyun，WANG Zhenbo，SUN Zhiqian，et al. Design of a multi-purpose large scale cold mold of the circulating fluidized bed test equipment[J]. China Modern Educational Equipment，2021，(1)：17-19.

[13] 王家兴. 均匀磁场作用下的液固流化床流动特性研究[D]. 哈尔滨：哈尔滨工业大学，2011.

[14] 马永丽，安澍，杨捷，等. 气液固流化床直接数值模拟研究进展[J/OL]. 化工学报，1-28[2025-08-04]. https://link.cnki.net/urlid/11.1946.TQ.20250227.1704.009.
MA Yongli，AN Shu，YANG Jie，et al. Progress on direct numerical simulation of gas-liquid-solid fluidization [J/OL]. CIESC Journal，1-28[2025-08-04]. https://link.cnki.net/urlid/11.1946.TQ.20250227.1704.009.

[15] 骆振福，樊茂明，陈清如. 磁场流化床的稳定性研究[J]. 中国矿业大学学报，2001(4)：30-33.
LUO Zhenfu，FAN Maoming，CHEN Qingru. Stability of magnetically fluidized bed[J]. International Journal of Mining Science and Technology，2001(4)：30-33.

Simulation and Measurement of Solid Phase Distribution in Fluidized Bed Hydrogen Reduction for Preparation of Uranium Oxide

SHEN Haonan，NIU Yuqing，LI Dabing，KANG Shaohui，KANG Xiuming，
YE Kaikai，ZHANG Jiayu

(*Beijing Research Institute of Chemical Engineering and Metallurgy，CNNC，Beijing* 101149，*China*)

Abstract：In order to determine the solid phase distribution law of UO_2 particles during the gas-liquid-solid fluidization process，Fluidization behavior of nickel powder (simulating catalyst) and alumina (simulating UO_2 product) in a cold model experiment of a magnetic field-assisted gas-liquid-solid three-phase fluidized bed，with a focus on separation characteristics under magnetic field regulation were systematically investigated. The results show that in the absence of a magnetic field，the axial solid content distribution of alumina particles varies significantly with the gas flow rates (5—40 L/min). Under low gas flow rates (5—20 L/min)，a high-concentration deposition zone is formed at the bottom of the bed，and the larger the particle size，the more obvious the deposition effect. Under medium and high gas flow rates (25—40 L/min)，large bubbles break to enhance axial mixing，but the solid content at the top is still lower than that at the bottom. Nickel powder shows significant differences due to its high-density characteristics. Fine particles (200—300 mesh) require a gas flow rate of ≥15 L/min to achieve quasi-uniform dispersion，while coarse particles (100—200 mesh) remain deposited at the bottom of the bed even when the gas flow rate reaches 40 L/min. After the application of a magnetic field，nickel particles gradually accumulate in the lower part of the bed as the magnetic field intensity increases，forming magnetic agglomerated "apparent large particles" that are stably deposited near the gas distribution plate，while non-magnetic alumina floats up with the liquid flow. Under the same magnetic field the solid content ratio of nickel powder to alumina to increase from top to bottom，but the ratio drops rapidly with the strengthening of the magnetic field，indicating a significant aggregation effect of magnetic particles. The research results verified the dynamic separation efficiency of magnetic field-assisted fluidized beds for magnetic catalysts and non-magnetic products，clarified the key parameters of gas flow rate，magnetic field intensity and particle matching，and provided theoretical support for the design of continuous reactors in uranium chemical industry.

Key words：magnetized fluidized bed；hydrogen reduction；preparation；uranium oxide；
gas-liquid-solid three-phase；solids concentration distribution