

**CNIC-01632**  
**SINRE-0098**

溶胶喷射流振动分散  
及小颗粒凝胶微球的尺寸控制研究

**INVESTIGATION OF THE VIBRATION DISPERSION  
OF SOL JET AND THE SIZE CONTROL OF  
FINE GEL MICROSPHERES**

*(In Chinese)*

中国核信息中心  
China Nuclear Information Centre

CNIC-01632  
SINRE-0098

# 溶胶喷射流振动分散及 小颗粒凝胶微球的尺寸控制研究

王录全 应诗浩 姬长鸿 黎光荣 姜淮 尹荣才  
(中国核动力研究设计院, 核燃料及材料国家重点实验室, 成都, 610005)

## 摘 要

为了改善小颗粒陶瓷核燃料微球的尺寸分布, 并控制其直径, 用振动控制溶胶喷射流分散过程, 制得了相应的均一溶胶滴。溶胶喷射流速度及相应振动频率高时用载带流保护溶胶滴, 而低时不用, 制得了不同直径的小颗粒均一湿凝胶微球。通过微球的直径测量, 验证了液体喷射流振动分散的原理。

关键词: 喷嘴 溶胶喷射流 振动分散 小颗粒 湿凝胶微球

# **Investigation of the Vibration Dispersion of Sol Jet and the Size Control of Fine Gel Microspheres**

*(In Chinese)*

WANG Luquan YING Shihao JI Changhong

LI Guangrong JIANG Huai YIN Rongcai

(The Nuclear Power Institute of China,

The Key Laboratory of Nuclear Fuel and Materials, Chengdu, 610005)

## **ABSTRACT**

In order to improve the size distribution and to control the diameter of fine ceramic nuclear fuel microspheres, the dispersion process of Sol jet is controlled by vibration; and the corresponding uniform Sol drops have been prepared. The uniform fine Gel microspheres with different diameters have been fabricated by using carrying-fluid to protect the formed Sol drops when the velocity of Sol jet and the corresponding vibration frequency are high; the carrying-fluid is not necessary when those are not high. The principle of vibration dispersion of liquid jet has been tested and verified by the diameter measurements of the Gel microspheres.

**Key words:** Nozzle, Sol Jet, Vibration Dispersion, Fine Microsphere, Wet Gel Microsphere

## 引言

在溶胶-凝胶工艺制备陶瓷核燃料微球的过程中，控制溶胶喷射流分散过程，可改善溶胶液滴及陶瓷核燃料微球的尺寸分布，提高尺寸合格率，降低生产成本。控制方法可分为三种：（1）单流喷嘴、振动分散；（2）双流喷嘴；（3）双流喷嘴、振动分散。对中粗颗粒微球的尺寸控制，已进行了很多研究，取得了较好的结果<sup>[1, 2]</sup>，但对直径小于 200  $\mu\text{m}$  的小颗粒燃料微球的尺寸控制，难度很大，文献报道也很少。美国橡树岭国家实验所（ORNL）采用双流喷嘴改善小颗粒燃料微球的尺寸分布，利用驱动流的湍动作用使溶胶喷射流分散成滴，结果表明，当微球的平均直径为 65  $\mu\text{m}$  时，直径在 45~91  $\mu\text{m}$  范围内的微球所占的比率约为 60%，结果也不好<sup>[3]</sup>。

为了控制小颗粒  $\text{UO}_2$  微球的尺寸分布，提高其尺寸合格率，建立了一套小型液体喷射流振动分散装置，利用该装置可对溶胶喷射流的分散过程直接观察和控制，从而及时调整控制参数，迅速获得实现均匀分散时各参数的合适值。用不同孔径（0.10 mm 及 0.20 mm）的孔板作喷嘴，在很宽的振动频率范围内（几百至几千 Hz）实现了溶胶喷射流的均匀分散，使用相应的溶胶滴保护法（加载带流与否）分别制得了均匀性很好的小颗粒湿凝胶微球。

## 1 试验装置及方法

试验装置如图 1。该装置由四部分组成。第一部分是分散及胶凝系统，由配胶槽、贮胶槽、 $\text{N}_2$  瓶、缓冲罐、精密压力表、喷嘴、精密恒温浴槽、胶凝槽、数字式超级恒温浴槽、磁力驱动泵、载带流流量计等构成。第二部分是振动发生及传递系统，由信号发生器、功率放大器、振动台、振动传递杆及喷嘴构成。第三部分是振动及分散状态检测系统，由示波器、频闪灯、频闪灯控制器组成；第四部分是定位系统，由试验台架及固定部件构成。

在冷却的配胶槽中配制溶胶，配好的溶胶经过滤后转入贮胶槽，在压力的作用下，溶胶流经喷嘴形成溶胶喷射流。信号发生器发生的信号经功率放大器放大后驱动振动台，振动通过振动传递杆及喷嘴传递给流过喷嘴形成的溶胶喷射流，使其均匀分散成滴。分散状态通过频闪灯直接观察，在自由分散或非均匀分散状态下，看到的液滴大小不均匀，处于跳动状态，且其间隔不均匀；而在均匀分散状态下，形成的液滴大小相等，处于同一直线上（即喷射流方向上），且其间隔均匀；通过调整频闪灯的闪光频率，可使观察到的液滴图像处于静止状态。采用适当的溶胶滴保护法可使分散形成的均匀溶胶滴通过胶凝而固定为均匀的湿凝胶微球。

## 2 试验结果及讨论

### 2.1 分散试验

为了制备直径小于 200  $\mu\text{m}$  的小颗粒  $\text{UO}_2$  微球，按从溶胶滴到  $\text{UO}_2$  微球的直径收缩比为 3 的原则，需制备直径小于 600  $\mu\text{m}$  的溶胶滴。用最小型号的针头（4.5#）作喷嘴时，

实验结果验证了液体喷射流振动分散的原理，但表明很难制备与小颗粒  $\text{UO}_2$  微球尺寸相应的溶胶滴<sup>[4]</sup>。

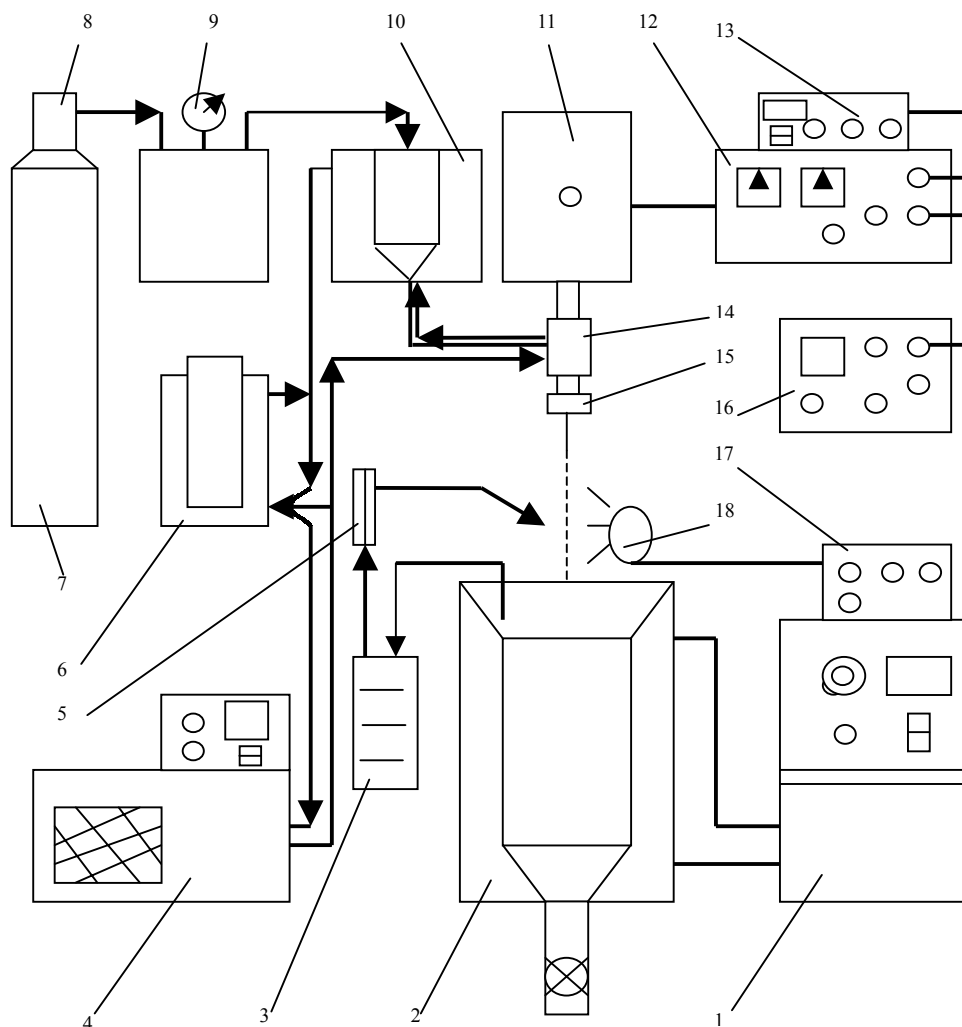


图1 试验装置示意图

- 1—数字式超级恒温浴槽；2—胶凝槽；3—磁力驱动泵；4—精密恒温浴槽；5—流量计；6—配胶槽；  
7— $\text{N}_2$ 瓶；8—稳压罐；9—精密压力表；10—贮胶槽；11—振动台；12—功率放大器；  
13—信号发生器；14—振动传递杆；15—喷嘴；16—示波器；17—频闪灯控制器；18—频闪灯。

从理论上讲，对相同的喷嘴孔径、液体流速及振动幅度，孔越长，液体在喷嘴中流动时形成层流的趋势越强，流出喷嘴后自然分散的趋势越强，相对而言，振动的作用越弱，因而最大有效振动频率越低，分散形成的最小均一液滴的直径越大；反之，喷嘴孔越短，液体在喷嘴孔内流动时形成层流的趋势越弱，流出喷嘴后形成活塞式流动的趋势越强，因而最大有效振动频率越高，分散形成的最小均一液滴的直径越小，因此，喷嘴孔的长度越短，对通过振动制备小颗粒液滴越有利。以前的研究结果也表明，用孔板作

喷嘴制备小颗粒  $\text{UO}_2$  微球是可行的<sup>[5]</sup>，因此用孔板作喷嘴进行了溶胶分散实验。

孔径为 0.10 mm 的孔板的分散实验结果列于表 1，其中的液滴直径为按振动分散原理计算所得。由表 2 可见，用孔板作喷嘴时，可以通过振动实现溶胶喷射流的均匀分散；不论流量及振动频率怎样变化，制得的溶胶滴的平均直径相差不大，都符合尺寸要求，因此，用孔径为 0.10 mm 的孔板制备尺寸符合要求的小颗粒溶胶滴是可行的。只是由于使用的压力较高，喷嘴也容易堵塞，操作上有一定困难。液滴的直径与孔径之比为 2.94~2.28，与文献[6]的值相差很大。

表 1 压力、流量、有效振动频率范围及溶胶滴直径（孔径为 0.10 mm 的孔板，溶胶）

压力/MPa	流量/ml · min <sup>-1</sup>	有效频率范围/Hz	液滴直径/mm
0.10	2.6	3200~8000 <sup>1)</sup>	0.2958~0.2179
0.09	2.4	3000~8000 <sup>1)</sup>	0.2943~0.2122
0.08	2.2	2600~8000 <sup>1)</sup>	0.2998~0.2061
0.07	2.0	2500~8000 <sup>1)</sup>	0.2980~0.2026
0.06	1.8	2300~6300	0.2921~0.2088
0.05	1.6	2100~5200	0.2859~0.2144
0.04	1.5	1500~4500	0.3170~0.2198 <sup>2)</sup>
0.03	1.2	1300~2000	0.3086~0.2673 <sup>2)</sup>

注：1) 超过 8000 Hz 时仍可实现均匀分散；

2) 喷射流不太稳定。

表 2 压力、流量、有效振动频率范围及溶胶滴直径（孔径为 0.20 mm 的孔板，溶胶）

压力/MPa	流量/ml · min <sup>-1</sup>	有效频率范围/Hz	液滴直径/mm
0.08	8.0	4500~5000	0.3810~0.3707
0.07	7.2	4000~4300	0.3856~0.3764
0.06	6.6	3000~3800	0.4122~0.3810
0.05	5.8	2000~2700	0.4520~0.4090
0.04	4.9	1500~2100	0.4703~0.4204
0.03	4.0	1000~1800	0.5032~0.4136

为了制备直径相差不大的液滴，可采用同一喷嘴，在相同的液体流量条件下，以不同的振动频率获得，但如果要制备直径相差较大的液滴，就必须采用不同孔径的喷嘴，因为通过对液体喷射流施加振动制得的液滴的直径约为喷嘴孔径的两倍<sup>[6]</sup>。因此，用孔径为 0.20 mm 的孔板进行了溶胶分散实验，结果列于表 2，其中的液滴直径为按振动分散原理计算所得。

由表 2 可见，对孔径为 0.20 mm 的孔板，压力越高，溶胶的流量越大，相应的有效振动频率越高，制得的溶胶滴的平均直径越小；液滴直径都符合尺寸要求。液滴直径与

孔径之比为 2.51~1.85，与文献[6]的值接近。

## 2.2 胶凝实验

为了控制陶瓷核燃料微球的尺寸分布，需将通过振动形成的均匀溶胶滴保持下来，为此，通过胶凝试验确定溶胶滴的保持方法及凝胶微球的尺寸分布。

### 2.2.1 孔径为 0.10 mm 的孔板作喷嘴

用孔径为 0.10 mm 的孔板作喷嘴时，根据表 1，为避免喷嘴孔堵塞，并保证较合适的溶胶流量，选用压力为 0.06 MPa。选一振动频率（接近振动台的有效振动频率且使均匀分散状态较稳定）进行胶凝试验。

结果表明，当溶胶滴直接进入胶凝介质时，不论喷嘴至胶凝介质的距离怎样调节，都很难制得均一的湿凝胶微球；而采用载带流（为与溶胶喷射流成某一角度的直径比其大得多的胶凝介质液流）后，通过它的流动作用，减小溶胶滴与胶凝介质间的相对速度，从而减小冲击力及再分散的可能性；同时使分散形成的均一溶胶滴进入载带流后成彼此分离的状态，减少粘连就可使均一溶胶滴通过胶凝而较好地保持下来，如图 2。

由图 2 可见，未加载带流时，湿凝胶微球的均匀性差，因溶胶滴再分散形成的小球较多；加载带流后，微球的均匀性好，基本消除了小球。因此，当溶胶喷射流速度及相应的振动频率较高时，必须采用载带流保护溶胶滴，才能使形成的均一溶胶滴保持下来。凝胶微球的实测直径约为 0.225 mm，与按振动分散原理计算的液滴直径 0.276 mm 有差别，这是由于胶凝引起的收缩所致。

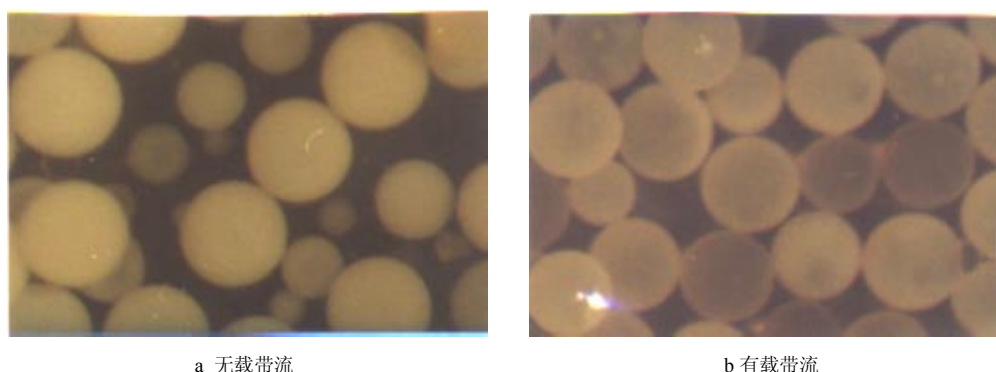


图 2 载带流对湿凝胶微球均匀性的影响

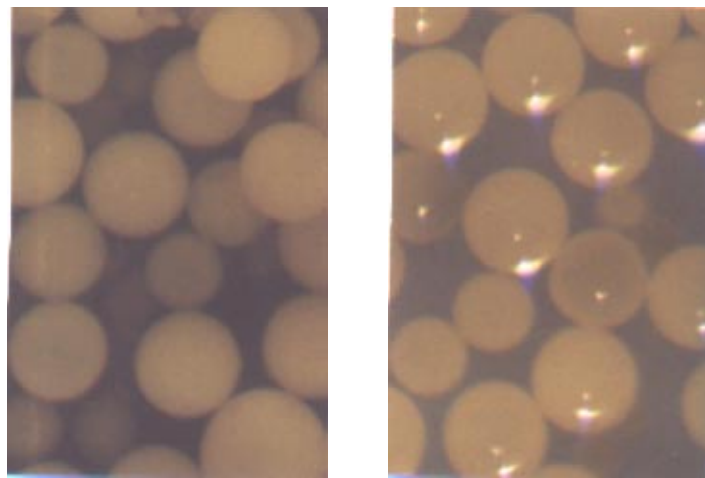
（喷嘴孔径 0.10 mm，溶胶流量 2.1 ml/min，振动频率 3200 Hz，23×）

为了确定载带流流量对微球均匀性的影响，在相同的分散状态下，采用不同的载带流流量进行了胶凝对比实验，结果如图 3。由图 3 可知，当载带流流量为 1.0 L/min 时，微球中有个别大、小球，这是由于载带流速度过低，溶胶滴进入载带流后未迅速分开，导致粘连及再分散所致；当载带流流量为 1.9 L/min 时，微球的均匀性差，直径有点连续，这是由于载带流的速度过快，分散形成的均一液滴在入胶凝介质时，与载带流的冲击力过大，使均一液滴再分散所致；当载带流流量为 1.5 L/min 时，湿凝胶微球的均匀性好，微球的直径约为 0.25 mm，与溶胶液滴的计算直径 0.271 mm 有差别，这是由于胶凝引起的收缩所致。因此，在均匀分散的条件下，只有当载带流流量合适时，才能制得均匀的

湿凝胶微球。

### 2. 2. 2 孔径为 0.20 mm 的孔板作喷嘴

前述试验结果表明，溶胶喷射流速度及相应的振动频率高时，分散形成的溶胶液滴进入胶凝介质时容易再次分散，必须用载带流才能使形成的溶胶滴保持下来，因而溶胶喷射流速度及振动频率低时溶胶滴的保持可能更容易，所以用孔径为 0.20 mm 的孔板作喷嘴时，在形成溶胶喷射流时的最低压力 (0.03 MPa)下进行了振动分散及胶凝实验。结果表明，在均匀分散的条件下，用载带流保护溶胶滴时，不论怎样调整载带流的流量，制得的湿凝胶微球的均匀性都不好；而不用载带流时，湿凝胶微球很均匀，如图 4。



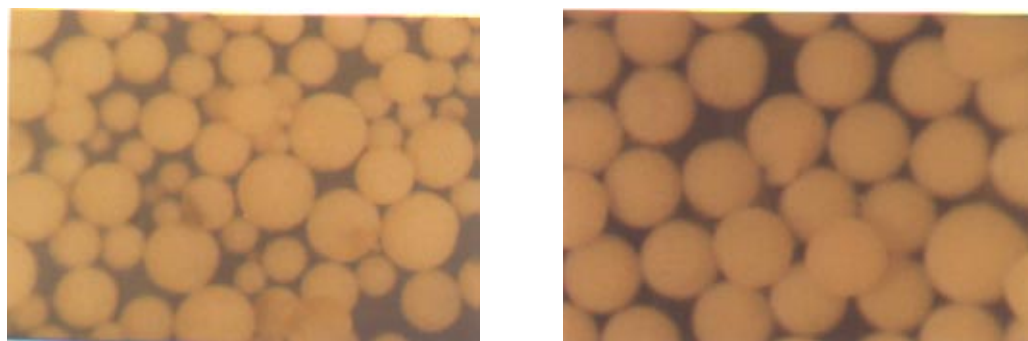
a 载带流量 1.5l/min

b 载带流量 1.0l/min

c 载带流量 1.9l/min

图 3 载带流流量对湿凝胶微球尺寸分布的影响

(喷嘴孔径 0.10 mm, 溶胶流量 2.0 ml/min, 振动频率 3200 Hz, 23×)



a 载带流流量为 60l/h

b 无载带流

图 4 载带流对湿凝胶微球均匀性的影响

(喷嘴孔径 0.20 mm, 溶胶流量 3.9 ml/min, 振动频率 1300 Hz, 23×)

由图 4a 可见，使用载带流后有很多小颗粒微球形成，这是因为此时形成的溶胶液滴



大, 溶胶滴进入载带流(胶凝介质)时, 由于与载带流的摩擦作用使其发生了再分散。因此, 当溶胶喷射流速度及相应振动频率较低时(2.07 m/s, 1300 Hz), 载带流反而不利于微球均匀性的改善。照片 4a 中的大球很均匀, 直径与照片 4b 上的相同, 约 0.45 mm, 与液滴的计算直径 0.4572 mm 很接近, 说明大球是由振动形成的, 而小球是由液滴的再分散形成的。

无载带流时固定溶胶流量, 用不同的振动频率进行了分散及胶凝实验, 结果表明, 微球都很均匀。当振动频率分别为 1300 Hz, 1000 Hz, 700 Hz 时, 相应的微球实测平均直径分别为 0.425 mm, 0.500 mm, 0.560 mm, 而相应溶胶滴的计算直径分别为 0.459 mm, 0.501 mm, 0.564 mm, 实测值与计算值相符, 验证了液体喷射流振动分散的原理, 即每个振动周期形成一个液滴。

### 3 结论

- (1) 用不同孔径的孔板作喷嘴, 可通过振动实现溶胶喷射流的均匀分散;
- (2) 对孔径为 0.10 mm 的孔板, 溶胶喷射流速度及相应有效振动频率高时, 需用载带流才能使分散形成的均匀溶胶滴通过胶凝而保持为均匀的湿凝胶微球;
- (3) 对孔径为 0.20 mm 的孔板, 溶胶喷射流速度及相应有效振动频率低时, 载带流反而不利于溶胶滴的保持, 此时溶胶滴直接进入胶凝槽中就可固定为均匀的湿凝胶微球。
- (4) 凝胶微球的实测直径与按  $d=(6Q/\pi f)^{1/3}$  (液体喷射流振动分散原理, 式中  $d$  为液滴直径;  $Q$  为液体流量;  $f$  为振动频率) 计算的液滴直径相符。

### 致谢

张志毅老师制作了频闪灯, 实验过程中得到王伟、张洁、杨燕等的支持和帮助, 作者深表感谢。

### 参 考 文 献

#### REFERENCES

- 1 朱永睿等. 溶胶-凝胶法制备陶瓷核燃料译文集. 北京: 原子能出版社, 1980  
ZHU Yongrui, et al. The translation collection for using Sol-Gel technology to fabricate ceramic nuclear fuel. Beijing: Atomic Energy Press
- 2 徐志昌等. 陶瓷 UO<sub>2</sub> 微球尺寸与球度控制方法. 核科学与工程, 1997, 17 (1): 52~59  
XU Zhichang, et al. The control method of size and sphericalness for ceramic UO<sub>2</sub> microspheres. Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 1997, 17 (1): 52~59
- 3 Hass P A, et al. Application of Drop Formation Procedures to Meet Gel-Sphere-PAC Requirements. IAEA-161, 1974, 72~84, Vienna
- 4 王录全等. 液体喷射流的振动分散研究. 2000 年核燃料及材料重点实验室年报  
WANG Luquan, et al. The research of the vibration dispersion of liquid jet. Annual Report of the Key

Laboratory of Nuclear Fuel and Materials.

- 5 曹新生等. 用于溶胶-凝胶工艺的液滴分散器. 中国专利 ZL952025183, 1995  
CAO Xinsheng, et al. The liquid drop generator used for the Sol-Gel technology. Chinese patent, ZL952025183, 1995
- 6 Chihang R. Chu, et al. A Study of Droplet Formation for Preparation of Spheres by Internal Gelation, ORNL/MIT-337, (January, 1982)