

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **046062**(13) **B1**(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента
2024.02.02

(21) Номер заявки
202290456

(22) Дата подачи заявки
2020.07.30

(51) Int. Cl. **G01N 15/14** (2006.01)
G01F 1/66 (2006.01)
C01G 43/01 (2006.01)
G01N 15/10 (2006.01)

(54) **СИСТЕМА И СПОСОБ ДЛЯ РЕГУЛИРОВАНИЯ РАЗМЕРА ГЕЛЕВЫХ ЧАСТИЦ
ОКСИДА МЕТАЛЛА**

(31) **16/530,695**

(32) **2019.08.02**

(33) **US**

(43) **2022.06.30**

(86) **PCT/US2020/044232**

(87) **WO 2021/025941 2021.02.11**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
Экс ЭНЕРДЖИ, ЭлЭлСи (US)

(72) Изобретатель:
Линнин Николас (US)

(74) Представитель:
Медведев В.Н. (RU)

(56) MCALISTER, AL et al., 'Demonstration of microfluidics for synthesis of sol-gel feedstocks', Oak Ridge National Laboratory, March 2019, No. ORNL/SPR-2019/1082. See pages 3-5; figure 4.

WO-A2-2009132198

US-A1-20110163265

US-A1-20080221814

PAI, RAJESH V. et al., 'Fabrication of dense (Th,U)O₂ pellets through microspheres impregnation technique', Journal of Nuclear Materials, 2008, vol. 381, pages 249-258. See the entire document.

(57) Гелевые частицы оксида металла могут быть приготовлены с желаемым размером частиц посредством приготовления низкотемпературного водного раствора нитрата металла, содержащего гексаметиленetetрамин в качестве исходного раствора; и вынуждения исходного раствора протекать по первой трубе и выходить из первой трубы в качестве первого потока с первым расходом, с тем, чтобы касаться высокотемпературной неводной рабочей текучей среды. Рабочая текучая среда протекает по второй трубе со вторым расходом. Срезающее усилие между первым потоком и рабочей текучей средой разрушает первый поток на частицы раствора нитрата металла, и разложение гексаметилентетрамина преобразует частицы раствора нитрата металла в гелевые частицы оксида металла. Размер гелевой частицы оксида металла измеряется оптическим способом, с помощью детектирующего устройства, направленного на поток гелевых частиц оксида металла в потоке рабочей текучей среды. Детектирующее устройство измеряет передачу света, поглощаемого либо гелевыми частицами оксида металла, либо рабочей текучей средой, так что передача света через рабочую текучую среду изменяется в течение периода времени, когда гелевая частица оксида металла проходит мимо оптического датчика. Если измеренный размер частицы не равен примерно желаемому размеру частицы, размер частицы может быть скорректирован посредством регулирования отношения первого расхода к суммарному расходу, где суммарный расход равен сумме первого и второго расходов.

B1**046062****046062****B1**

Уровень техники

1. Область техники, к которой относится изобретение

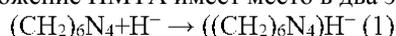
Это изобретение относится, в общем, к приготовлению гелевых частиц оксида металла, имеющих регулируемый размер частиц.

2. Описание предшествующего уровня техники

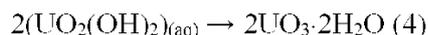
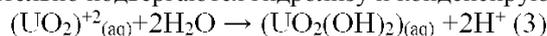
Гелевые частицы оксида металла могут быть приготовлены посредством рассеивания капель раствора соли металла в неводных текучих средах и вынуждения соли металла в каплях подвергаться внутреннему гелеобразованию, чтобы формировать гелевую фазу в форме гелевых частиц оксида металла.

Гелевые частицы оксида металла могут быть приготовлены с помощью сопла для двух текучих сред, из растворов множества солей металла или солей оксида металла, включающих в себя нитраты урана, тория, плутония и редкоземельных металлов, таких как церий. Раствор соли содержит гексаметилтетрамин (НМТА) и мочевины и протекает из первого сопла с первым расходом, в поток неводной рабочей текучей среды во втором сопле. Неводная рабочая текучая среда нагревается до температуры, достаточной, чтобы вызывать НМТА-разложение.

В случае раствора нитрата уранила, прежде чем раствор соли контактирует с рабочей текучей средой, комплексы ионов металла с мочевиной из формулы $UO_2((NH_2)_2CO)_2^{+2}$ формируются, когда мочевина может помогать смягчать преждевременное гелеобразование. Когда комплексы ионов металла с мочевиной нагреваются посредством рабочей текучей среды, они могут разлагаться, чтобы формировать UO_2^{+2} или аналогичные разновидности окиси урана. Одновременно, НМТА разлагается, чтобы формировать гидроксид аммония. Разложение НМТА имеет место в два этапа, как в реакциях (1) и (2):



Ионы металла дополнительно подвергаются гидролизу и конденсируются как в реакциях (3) и (4):



Гидроксид аммония, сформированный во время реакции (2), увеличивает pH раствора, способствуя гидролизу и конденсации (3), приводя в результате к формированию частиц иона металла $2UO_3 \cdot 2H_2O$ как сферических гелевых частиц. Гелевые сферы оксида урана собираются и спекаются, чтобы формировать керамические частицы, полезные в качестве сердцевин для гранул ядерного топлива.

Во время формирования гелевой частицы капли раствора оксида металла рассеиваются в рабочей текучей среде с высокой скоростью и подвергаются быстрому гелеобразованию от разложения НМТА. Размер этих гелевых частиц является критичным, с точки зрения спецификаций ядерного топлива. В частности, размер спекшихся керамических частиц для использования в гранулах ядерного топлива регулируется по размеру гелевых частиц. При спекании гелевые частицы теряют около 35% своей массы, в то время как радиус частиц сокращается примерно на 65%. Во время формирования гелевых частиц посредством внутреннего гелеобразования размер сформировавшихся гелевых частиц является неизвестным до тех пор, пока гелеобразование не закончится и частицы не будут восстановлены. При определении характеристик гелевых частиц может быть обнаружено, что частицы являются слишком большими для приготовления желаемого продукта, такого как ядерное топливо. Альтернативно, частицы могут быть небольшими для желаемого применения или иметь нежелательно широкое распределение размера частиц.

Настоящее изобретение направлено на способы получения гелевых частиц оксида металла с регулируемым размером частиц, которые предоставляют возможность регулирования размера частиц во время формирования частиц.

Предмет изобретения является иллюстрацией преимуществ, которые могут быть достигнуты посредством различных вариантов осуществления, раскрытых в данном документе, и не предназначается быть исчерпывающим или ограничивающим возможные преимущества, которые могут быть реализованы. Дополнительные преимущества различных вариантов осуществления, раскрытых в данном документе, будут очевидны из описания в данном документе или могут быть узнаны из применения на практике различных вариантов осуществления, раскрытых в данном документе, или которые модифицированы с учетом какого-либо изменения, которое может быть очевидно специалистам в области техники. Соответственно, настоящее изобретение заключается в новых способах, компоновках, сочетаниях и улучшениях в данном документе, показанных и описанных в различных вариантах осуществления.

Сущность изобретения

Различные варианты осуществления, описанные в данном документе, относятся к оптическим датчикам, которые предоставляют возможность анализа в реальном времени размера гелевых частиц, сформированных в сопле для двух текучих сред, также как расхода гелевых частиц в сопле.

Различные варианты осуществления, раскрытые в данном документе, относятся к способу оптимизации размера гелевых частиц оксида металла, включающему в себя приготовление низкотемпературного водного раствора нитрата металла, содержащего гексаметилтетрамин в качестве исходного раство-

ра; обеспечение протекания исходного раствора через первое сопло и его выхода из первого сопла в качестве первого потока с первым расходом; и обеспечение протекания высокотемпературной неводной рабочей текучей среды через второе сопло в качестве второго потока со вторым расходом, где второй поток контактирует с первым потоком. В различных вариантах осуществления сдвигающее усилие/сдвигающее взаимодействие между первым потоком и вторым потоком разбивает первый поток на капли раствора нитрата металла, и термическое разложение гексаметилентетрамина посредством высокотемпературной рабочей текучей среды преобразует капли раствора нитрата металла в гелевые частицы оксида металла. Гелевые частицы переносятся во втором потоке рабочей текучей среды. В различных вариантах осуществления средний размер частиц для гелевых частиц оксида металла или средний расход гелевых частиц оксида металла в рабочей текучей среде измеряется оптическим способом, с помощью детектирующего устройства, направленного на поток гелевых частиц оксида металла в потоке рабочей текучей среды.

В различных вариантах осуществления детектирующее устройство измеряет передачу света, поглощенного либо гелевыми частицами оксида металла, либо рабочей текучей средой, так что передача света через рабочую текучую среду изменяется в течение периода времени, когда гелевая частица оксида металла проходит через детектирующее устройство. Зависимое от времени изменение в передаче света может быть использовано для измерения среднего размера частиц или объемного расхода частиц. В различных вариантах осуществления, если измеренный размер частиц или объемный расход не равен приблизительно желаемому размеру капли или расходу, регулируют упомянутый размер капли или расход посредством регулирования отношения первого расхода к суммарному расходу, где суммарный расход является суммой первого и второго расходов.

В различных вариантах осуществления, если измеренный размер частицы больше желаемого размера частицы, измеренный размер частицы может быть уменьшен посредством увеличения расхода рабочей текучей среды; уменьшения расхода исходного раствора, или того и другого. Если измеренный размер частиц меньше желаемого размера частиц, измеренный размер частиц может быть увеличен посредством уменьшения расхода рабочей текучей среды; увеличения первого расхода исходного раствора, или того и другого.

В различных вариантах осуществления детектирующее устройство включает в себя первый оптический датчик и второй оптический датчик, разнесенные друг от друга вдоль потока рабочей текучей среды на первое расстояние; и каждый из первого и второго датчиков включает в себя первое и второе оптические волокна на противоположных сторонах потока рабочей текучей среды. Первое оптическое волокно в каждом датчике отправляет сигнал через рабочую текучую среду, а второе оптическое волокно принимает сигнал. В различных вариантах осуществления сигнал, отправленный посредством первого оптического волокна в каждом датчике, является оптическим сигналом с длиной волны, которая не поглощается рабочей текучей средой, но поглощается гелевыми частицами оксида металла. В каждом датчике первое и второе оптические волокна отделяются расстоянием, которое, по меньшей мере, равно диаметру трубы, переносящей рабочую текучую среду, и которое является достаточно небольшим, чтобы предотвращать затухание сигнала, движущегося через рабочую текучую среду.

В различных вариантах осуществления первый датчик и второй датчик разнесены друг от друга вдоль второго потока рабочей текучей среды на первое расстояние. Первое расстояние между датчиками меньше среднего диаметра гелевых частиц, где средний диаметр гелевых частиц может быть между 0,8 мм и 3,2 мм, между 1 и 2,5 мм, между 1 и 2 мм, между 1 и 1,5 мм или между 1,5 и 2 мм. В различных вариантах осуществления интервал между датчиками от 0,1 до 1 мм, от 0,2 до 0,9 мм, от 0,3 до 0,8 или от 0,5 до 0,7 мм меньше желаемого целевого диаметра гелевых частиц.

В различных вариантах осуществления средний размер частиц может быть рассчитан посредством первого вычисления скорости гелевой частицы оксида металла, проходящей первый оптический и/или второй оптический датчик. В различных вариантах осуществления два датчика разнесены вдоль пути протекания на известное расстояние, и скорость гелевой частицы вычисляется на основе времени, за которое передний конец или задний конец гелевой частицы проходит это известное расстояние. После того как скорость гелевых частиц определена, расход рабочей текучей среды, переносящей гелевые частицы мимо датчиков, вычисляется. После того как расход вычислен, доля потока, заполненного гелевыми частицами (объем гелевых частиц), затем вычисляется посредством деления первого интервала времени, за которое одна гелевая частица проходит мимо одного оптического датчика, на второй интервал времени, за который две последовательные гелевые капли достигают одного оптического датчика.

В различных вариантах осуществления устройство для создания гелевых частиц оксида металла с регулируемым размером частиц включает в себя систему для формирования гелевых частиц оксида металла, содержащую:

сопло для рабочей текучей среды, формирующее путь протекания, сопло для рабочей текучей среды выполнено с возможностью перемещения рабочего потока рабочей текучей среды с первым расходом по пути протекания;

сопло для раствора соли металла, имеющее выход, сопло для соли металла выполнено с возможностью перемещения первого потока низкотемпературного водного раствора соли металла, содержащего

гексаметилентетрамин, в путь протекания со вторым расходом; и необязательно нагреватель, выполненный с возможностью поддержания температуры рабочей текучей среды на уровне, достаточном для обеспечения гелеобразования соли металла в растворе соли металла посредством гексаметилентетрамина.

В различных вариантах осуществления устройство дополнительно включает в себя систему для регулирования среднего размера гелевых частиц оксида металла, расположенную ниже по потоку от системы для формирования гелевых частиц оксида металла. Система для регулирования размера гелевых частиц включает в себя детектирующее устройство, включающее в себя:

первый датчик и второй датчик, разнесенные друг от друга по пути протекания на первое расстояние, первый и второй датчики выполнены с возможностью измерения среднего размера гелевых частиц и расхода частиц; и

систему управления для регулирования среднего размера гелевых частиц оксида металла на основе входного сигнала от детектирующего устройства.

В различных вариантах осуществления система для регулирования среднего размера гелевых частиц выполнена с возможностью вычисления объемного расхода из первого времени прохождения, за которое гелевая частица оксида металла проходит расстояние между первым датчиком и вторым датчиком.

В различных вариантах осуществления, если вычисленный размер гелевой частицы отличается от желаемого размера гелевой частицы, система для регулирования среднего размера конфигурируется, чтобы регулировать средний размер гелевых частиц посредством регулирования отношения первого расхода рабочей текучей среды к суммарному расходу, где суммарный расход является суммой первого расхода и второго расхода раствора соли металла.

В свете текущей потребности в улучшенном способе приготовления гелевых частиц оксида металла с прогнозируемым размером, краткое изложение различных вариантов осуществления представляется. Некоторые упрощения и опущения могут быть выполнены в последующем кратком изложении, которое предназначается, чтобы выделить и ввести некоторые аспекты различных примерных вариантов осуществления, но не ограничивать рамки изобретения. Подробные описания предпочтительного примерного варианта осуществления, достаточные, чтобы предоставлять возможность обычным специалистам в области техники создавать и использовать идеи изобретения, последуют в дальнейших разделах.

Краткое описание чертежей

Для того, чтобы лучше понимать различные примерные варианты осуществления, ссылка выполняется на сопровождающие чертежи, на которых:

фиг. 1 показывает устройство для наблюдения за размером гелевых частиц оксида металла, сформированных в сопле для двух текучих сред;

фиг. 2 и 3 показывают выходные сигналы, создаваемые датчиками в устройстве на фиг. 1, когда гелевая частица оксида металла обнаруживается посредством датчиков; и

фиг. 4 показывает блок-схему последовательности операций, показывающую процессы для регулирования размера гелевых частиц оксида металла, сформированных в сопле для двух текучих сред;

фиг. 5 показывает устройство на фиг. 1, совместно с CPU и насосами, управляемыми посредством CPU;

фиг. 6 показывает:

диаметр сердцевины спекшихся частиц оксида металла, приготовленных из гелевых частиц, как функцию времени;

расход раствора бульона оксида металла как функцию времени; и

суммарный расход как функцию времени; и

фиг. 7 показывает график, на который нанесен диаметр сердцевины как функция отношения расхода раствора бульона оксида металла к суммарному расходу.

Вследствие большого числа точек данных, использованных для формирования данных, представленных на фиг. 6 и 7, данные были представлены как облако, представляющее перекрывающиеся точки данных, вместо нанесения на график отдельных точек данных.

Подробное описание изобретения

Когда используется в данном документе, термин "около" может быть интерпретирован как означающий "в пределах 10% от сформулированного значения", "в пределах 5% от сформулированного значения" или "в пределах 3% от сформулированного значения". Все числа, сформулированные без квалификатора, могут быть интерпретированы в понятиях значащих цифр.

Когда используется в данном документе, формулировка "сконфигурирован, чтобы", когда применяется к устройству или его части, означает, что перечисленное устройство или элемент предназначается или конструируется, чтобы выполнять перечисленную функцию.

Когда используется в данном документе, термин "диаметр", упоминаемый в данном документе как m_1 , ссылается на длину частицы, когда она движется по трубе мимо оптического датчика. В некоторых вариантах осуществления диаметр трубы может быть меньше длины частицы, вынуждая частицу вытягиваться по длине трубы. В других случаях, диаметр трубы может быть больше или приблизительно равен длине частицы, вынуждая частицу быть практически сферической. В любом случае, расстояние по

длине частицы должно называться ее диаметром $m1$.

Обращаясь теперь к чертежам, на которых аналогичные номера ссылаются на аналогичные компоненты или этапы, раскрываются широкие аспекты различных примерных вариантов осуществления.

Фиг. 1 является видом системы для измерения размера гелевых частиц оксида металла. Система включает в себя сопло 1, сконфигурированное, чтобы переносить неводную рабочую текучую среду ("сопло для рабочей текучей среды"), где рабочая текучая среда переносится в сопле 1 по пути протекания, помеченному стрелкой А, с первым расходом. Гелевые частицы 3, имеющие диаметр $m1$ (показан как равный длине вытянутой частицы на фиг. 1), движутся по трубе 1 в направлении стрелки А мимо первого датчика 4 и второго датчика 5, каждый соединен с CPU 10. Датчик 4 имеет два оптических волокна 6 и 7, разделенных трубой 1. Оптический сигнал с выбранной длиной волны передается от волокна 6 волокну 7, в направлении стрелки В. Рабочая текучая среда является прозрачной для выбранной длины волны, в то время как гелевые частицы 3 являются полупрозрачными или непрозрачными для выбранной длины волны. Сигнал, соответствующий зависящему от времени изменению в интенсивности света между светом, передаваемым из волокна 6, и светом, принимаемым волокном 7, передается в CPU 10. Выходной сигнал от датчиков 4 и 5 передается по кабелям 13 и 14 в CPU 10, где вычисляется размер частицы.

Фиг. 2 показывает зависящее от времени изменение в интенсивности света как последовательность гелевых частиц, проходящих мимо датчика 4. Если изменение в интенсивности света между светом, передаваемым из волокна 6, и светом, принимаемым волокном 7, меньше предварительно определенного фонового значения, CPU выводит значение, равное нулю. Если изменение в интенсивности света превышает предварительно определенное фоновое значение вследствие присутствия гелевой частицы 3 между волокнами 6 и 7, CPU выводит значение, равное единице, приводящее в результате к зависящему от времени сигналу в форме последовательности прямоугольных импульсов 11. Каждый прямоугольный импульс 11 имеет передний фронт 11а и задний фронт 11b. Длина каждого прямоугольного импульса соответствует периоду времени для того, чтобы одна гелевая частица прошла датчик 4 (период Р). Время между передними фронтами 11а (или задними фронтами 11b) соседних прямоугольных импульсов представляет частоту F, с которой гелевые частицы проходят датчик 6. Если все частицы 3 имеют аналогичные размеры, период и частота могут быть определены из двух соседних прямоугольных импульсов. Если частицы 3 имеют различные размеры, усредненное или среднее значение периода и частоты может быть определено из последовательности прямоугольных импульсов 11.

Как показано на фиг. 1, датчик 5 имеет два оптических волокна 8 и 9, разделенных трубой 1. Оптический сигнал с выбранной длиной волны передается от волокна 8 волокну 9. Сигнал, соответствующий зависящему от времени изменению в интенсивности света между светом, передаваемым из волокна 6, и светом, принимаемым волокном 7, передается в CPU 10. Фиг. 3 показывает зависящее от времени изменение в интенсивности света, когда последовательность гелевых частиц проходит мимо датчика 4, и когда последовательность гелевых частиц проходит мимо датчика 5. Датчики 4 и 5 размещаются так, что размер $x1$ между волокнами 6 и 7 меньше желаемого диаметра $m1$ гелевой частицы.

Как видно на фиг. 3, датчики 4 и 5, каждый, представляют зависящее от времени изменение в интенсивности света как последовательность прямоугольных импульсов 11, сдвинутых на период ΔT времени. Период Р и частота F может быть вычислена либо из выходного сигнала от датчика 4, либо выходного сигнала от датчика 5 или как средние значения, полученные от датчика 4 и датчика 5.

После того как период Р, частота F и смещение ΔT были определены, скорости частиц, расходы и объем частиц могут быть определены. Сначала, скорость частицы может быть определена из смещения по времени ΔT , соответствующего интервалу времени, которое занимает прохождение передним концом или задним концом расстояния $x1$ между датчиком 4 и датчиком 5. Скорость V может быть вычислена следующим образом:

$$V = x1 / \Delta T \quad (5)$$

Суммарный объемный расход, Flow, раствора ионов металла и рабочей текучей среды по трубе 1 может быть вычислен из скорости v и внутреннего диаметра $d1$ трубы 1 следующим образом:

$$\text{Flow} = [V(d1)^2 / 4] \pi \quad (6)$$

Расход раствора ионов металла, Flow_M , может быть вычислен следующим образом:

$$\text{Flow}_M = (P/F) * \text{Flow} \quad (7)$$

Это может быть переставлено следующим образом:

$$\text{Flow}_M / \text{Flow} = P/F \quad (7)$$

Когда отношение $\text{Flow}_M / \text{Flow}$ наносится на график как функция диаметра частиц для сердцевин, полученных посредством спекания гелевых частиц, диаметр частицы показывает линейную зависимость с $\text{Flow}_M / \text{Flow}$, по меньшей мере, когда $0,4 < \text{Flow}_M / \text{Flow} < 0,8$. Таким образом, посредством манипулирования этим соотношением потоков расход частицы может регулироваться.

Объем гелевой частицы может быть оценен, рассчитан посредством умножения периода Р на расход Flow:

$$\text{Объем частицы} = P * \text{Flow} = P [V(d1)^2 / 4] \pi \quad (8)$$

Возвращаясь к фиг. 1, раствор, несущий раствор соли оксида металла, проходит по трубе 12 и пересекает трубу 1, несущую рабочую текучую среду по пути протекания, обозначенному стрелкой А, с первым расходом. Труба 12 переносит низкотемпературный водный раствор соли металла ("раствор соли") по пути протекания, обозначенному стрелкой С, со вторым расходом. Выход трубы 12 находится на пути протекания рабочей текучей среды в трубе 1. Соль оксида металла может быть солью редкоземельного металла, плутония, урана или тория. Соль оксида металла может также быть любой солью, которая подвергается гелеобразованию при реагировании с аммиаком или гидроксидом аммония.

Когда раствор соли выходит из трубы 12, срезающее усилие между потоком раствора соли и потоком рабочей текучей среды разрывает поток раствора соли на частицы раствора соли, рассеянные в рабочей текучей среде. В различных вариантах осуществления раствор соли содержит гексаметиленetetрамин (НМТА), и рабочая текучая среда нагревается до температуры, достаточной, чтобы вынуждать НМТА разлагаться на аммиак и формальдегид. Аммиак затем вынуждает частицы раствора соли загустевать в сферические гелевые частицы 3 оксида металла. Частицы 3 переносятся вдоль сопла 1 потоком рабочей текучей среды в направлении стрелки А.

Хотя фиг. 1 показывает трубу 12 для переноса раствора оксида металла как пересекающую трубу 1 под прямым углом, это не является обязательным признаком устройства на фиг. 1. В некоторых вариантах осуществления труба 1 и труба 12 могут быть соосными, при этом труба 12 находится внутри трубы 1. Альтернативно, трубы 1 и 12 могут пересекаться и формировать единую общую трубу. Все, что требуется, это чтобы раствор соли в трубе 12 протекал внутрь протекающей рабочей текучей среды, переносимой по трубе 1.

В различных вариантах осуществления соединение оксида металла, такое как UO_3 , U_3O_8 , $UO_2(NO_3)_2$, нитраты тория или плутония или нитраты редкоземельного металла, используется для формирования раствора соли оксида металла. Соединение оксида металла растворяется в водном растворе, чтобы формировать металлосодержащий раствор соли. В различных вариантах осуществления соединение оксида металла является соединением урана, таким как UO_3 , U_3O_8 или $UO_2(NO_3)_2$. Раствор соли может также содержать мочевины и НМТА. В различных вариантах осуществления раствор соли может быть лишенным кислоты раствором нитрата уранила, содержащим воду, UO_3 и либо HNO_3 , либо $UO_2(NO_3)_2$. Мочевина реагирует с ионом металла при низких температурах, чтобы формировать комплексные соединения, которые противодействуют преждевременному гелеобразованию, такие как $UO_2(NH_2CO)_2^{+2}$.

Неводная рабочая текучая среда может быть нагрета до температуры 50-90°C, 50-80°C, 55-75°C, 55-70°C или примерно $60 \pm 5^\circ C$. В случае раствора нитрата уранила, когда раствор соли покидает трубу 12 и контактирует с рабочей текучей средой, комплексные соединения ионов металла с мочевиной могут распадаться, чтобы формировать UO_2^{+2} . Одновременно, НМТА разлагается, чтобы формировать гидроксид аммония и формальдегид. Гидроксид аммония, сформированный посредством реакций разложения НМТА, нейтрализует частицы оксида урана и стимулирует формирование полимера ионов металла $(UO_2(OH))_n^{+n}$ в качестве сферических гелевых частиц 3 в сопле 1.

На основе входных сигналов от датчиков 4 и 5 по кабелям 13 и 14 CPU 10 управляет системой управления для регулирования среднего размера гелевых частиц оксида металла, как показано на фиг. 4. CPU принимает данные от датчиков 4 и 5, определяющие первое время переноса (ΔT) для того, чтобы гелевая частица прошла первое расстояние x_1 между датчиками 4 и 5. Это время переноса ΔT преобразуется в объемный расход на этапе 15 на фиг. 4 посредством вычисления скорости частицы из времени ΔT для того, чтобы гелевая частица оксида металла прошла расстояние x_1 , с помощью уравнения (5) выше, и умножения скорости частицы на площадь поперечного сечения потока рабочей текучей среды согласно уравнению (6) выше, чтобы определять объемный расход.

На этапе 16 на фиг. 4 размер m_1 гелевой частицы оксида металла, как показано на фиг. 1, вычисляется посредством умножения объемного расхода, вычисленного на этапе 13, на период P , изображенный на фиг. 4, чтобы определять объем частицы.

На этапе 17 на фиг. 4 вычисленный диаметр m_1 частицы может быть сравнен с желаемым диаметром m_2 частицы. Если $m_1 = m_2$ (этап 18), тогда условия гелеобразования частиц в сопле 1 являются неизменными, и анализ заканчивается (этап 19). Если $m_1 > m_2$ (этап 20), тогда гелевые частицы являются слишком большими, и CPU регулирует относительный расход рабочей текучей среды в трубе 1 и раствор соли в трубе 12 на фиг. 1. Посредством уменьшения отношения расхода А раствора соли к сумме расхода А и расхода В рабочей текучей среды, например, посредством уменьшения расхода раствора соли (этап 20а) относительно расхода рабочей текучей среды, срезающее усилие между двумя растворами в сопле 1 на фиг. 1 увеличивается, уменьшая размер частиц раствора соли, рассеянных в рабочей текучей среде.

Если $m_1 < m_2$ (этап 21), тогда гелевые частицы являются слишком небольшими, и CPU увеличивает отношение расхода А раствора соли к сумме расхода А и расхода В рабочей текучей среды, например, посредством увеличения расхода раствора соли (этап 20а) относительно расхода рабочей текучей среды, для того, чтобы уменьшать размер частиц раствора соли, рассеянных в рабочей текучей среде.

Фиг. 5 показывает устройство на фиг. 1, вместе с CPU 10, как часть системы, которая предоставляет возможность пользователю регулировать размер гелевых частиц 3. Фиг. 5 показывает трубу 1, сконфигу-

рированную, чтобы переносить рабочую текучую среду по пути протекания, помеченному стрелкой А, с первым расходом; и трубу 12, сконфигурированную, чтобы переносить водный раствор соли металла по пути протекания, помеченному стрелкой В, со вторым расходом. Выход трубы 12 находится на пути протекания трубы 1 (отметим, что трубы 1 и 12 являются соосными в системе на фиг. 5, но перпендикулярными на фиг. 1). Рабочая текучая среда нагнетается в трубу 1 из трубы 1а насосом 22. Раствор соли нагнетается в трубу 12 из трубы 12а насосом 23. Данные от датчиков 4 и 5 передаются в CPU 10 по кабелям 13 и 14, где объемный расход потока в сопле 1, объем частицы и диаметр частицы могут быть вычислены, как видно на фиг. 4. Если вычисленный диаметр m_1 гелевой частицы не равен приблизительно желаемому диаметру m_2 частицы, CPU сигнализирует насосам 22 и 23 через кабели 24 и 25 изменять относительные скорости насосов 22 и 23. Если $d_1 > x_1$, тогда гелевые частицы являются слишком большими, и CPU изменяет относительный расход рабочей текучей среды в сопле 1 и раствора соли в сопле 2 на фиг. 1, увеличивая скорость насоса 22, уменьшая скорость насоса 21, или то и другое. Если $d_1 < x_1$, тогда гелевые частицы являются слишком маленькими, и CPU уменьшает относительный расход рабочей текучей среды и раствора соли, уменьшая скорость насоса 22, увеличивая скорость насоса 23, или то и другое. CPU, таким образом, манипулирует относительным расходом рабочей текучей среды и раствора соли, управляя степенью срезающего усилия между рабочей текучей средой и раствором соли, после того как раствор соли выходит из сопла 2 и касается рабочей текучей среды. Увеличенное срезающее усилие вынуждает раствор соли разрываться на более мелкие капли, в то время как уменьшенное срезающее усилие вынуждает раствор соли разрываться на более крупные капли.

Пример 1. Регулирование диаметра гелевой частицы посредством манипулирования расходами.

Лишенный кислоты раствор нитрата уранила с концентрацией 1,3 М на основе $UO_2(NO_3)_2$ был приготовлен. Раствор содержал 1,7 М мочевины и 1,7 М НМТА и имел вязкость около 1,2 сП. Раствор соли был накачан в трубу 12 устройства согласно фиг. 1 при температуре 0-5°C. Раствор соли, или бульон, выходил из трубы 12 с расходом, в общем, в диапазоне между 0,5 мл/мин и 1,5 мл/мин, как видно на фиг. 6. Раствор соли затем вводится в трубу 1 для рабочей текучей среды.

Рабочая текучая среда была накачана в трубу 1 устройства на фиг. 1. Рабочая текучая среда была силиконовым маслом с вязкостью 100 сП, при первоначальной температуре 0-5°C. Расход рабочего раствора регулировался, чтобы поддерживать суммарный расход, в общем, изменяющийся в диапазоне между 1,3 мл/мин и 2,25 мл/мин, как видно на фиг. 6. После того как рабочая текучая среда и раствор соли поступили в трубу 1, содержимое трубы 1 нагревалось до температуры около 56°C, вызывающей термическое гелеобразование раствора соли посредством индуцированного НМТА гелеобразования нитрата уранила, чтобы формировать гелевые частицы оксида урана.

Данные были записаны с помощью устройства согласно фиг. 1. Диаметр сопла 1 был 1 мм. Обращаясь к фиг. 1, расстояние x_1 между датчиками 4 и 5 было 6,35 мм. Расстояние между оптическими волокнами в каждом датчике 4 и 5, например, между волокном 6 и 7 в датчике 4, было 3,2 мм. Каждый волоконно-оптический датчик 6, 7, 8 и 9 имел диаметр 1,6 мм. Красный свет, имеющий длину волны 680 нм, был использован для обнаружения гелевых сфер, когда они проходят мимо волоконно-оптических датчиков.

В первой попытке расходы рабочей текучей среды и раствора соли были записаны как функция времени посредством процессора, как показано на фиг. 6. Процессор также записал период Р и частоту F гелевых частиц в протекающей рабочей текучей среде. Термическое гелеобразование посредством разложения НМТА, вызванного нагретой рабочей текучей средой, создало гелевые частицы оксида урана. Объем гелевых частиц был вычислен как функция периода Р и суммарного расхода, согласно уравнению (8). Процессор был сконфигурирован, чтобы вычислять объем и диаметр спекшихся частиц оксида урана, на основе ожидаемой 65% потери в объеме гелевых частиц при спекании. Вычисленный диаметр спекшихся частиц оксида урана, или сердцевин, был нанесен на график как функция времени, как показано на фиг. 6. Как показано на фиг. 6 и в таблице, манипулирование суммарным расходом и расходом раствора соли изменяет диаметр частиц сердцевин, созданных спеканием гелеобразных частиц.

Время (с)	Суммарный расход (Flow; мл/мин)	Расход бульона (Flow _M , мл/мин)	Flow _M /Flow	Диаметр сердцевин (мм)
30	1.56	1.08	0.69	1.28
120	1.68	0.9	0.54	1.18
360	1.74	1.02	0.59	1.21
480	1.44	0.72	0.5	1.14

Когда отношение потоков Flow/Flow_M было нанесено на график как функция диаметра сердцевин, как показано на фиг. 7, была линейная зависимость диаметра сердцевин от отношения потоков Flow/Flow_M, когда $0,3 < \text{Flow}/\text{Flow}_M < 0,8$, или $0,4 < \text{Flow}/\text{Flow}_M < 0,75$. Это показывает, что диаметр сердцевин может управляться посредством манипулирования отношением расхода раствора ионов ме-

талла к суммарному расходу.

Хотя различные примерные варианты осуществления были описаны подробно с конкретной ссылкой на некоторые его примерные аспекты, следует понимать, что изобретение приспособлено для других вариантов осуществления, и его детали приспособлены для модификаций в различных очевидных отношениях. Как легко очевидно специалистам в области техники, вариации и модификации могут быть затронуты, в то же время оставаясь в духе и рамках изобретения. Соответственно, предшествующее раскрытие, описание и чертежи существуют только в иллюстративных целях и никоим образом не ограничивают изобретение, которое определяется только формулой изобретения.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ измерения размера гелевых частиц оксида металла в потоке, протекающем в первом направлении, содержащий этапы, на которых:

а) вызывают протекание потока рабочей текучей среды, содержащей гелевые частицы оксида металла, мимо, по меньшей мере, двух датчиков, причем, по меньшей мере, два датчика разделены вдоль первого направления расстоянием, которое меньше ожидаемого размера частицы;

б) измеряют размер гелевой частицы оксида металла или расход оптическим способом, по меньшей мере, с помощью двух датчиков на основании времени ΔT перемещения гелевой частицы от первого датчика из, по меньшей мере, двух датчиков до второго датчика из, по меньшей мере, двух датчиков;

где указанные датчики измеряют передачу света на определенной длине волны через протекающий поток, причем

свет на определенной длине волны поглощается либо гелевыми частицами оксида металла, либо рабочей текучей средой, так что передача указанного света через протекающий поток, когда гелевая частица оксида металла проходит через оптический датчик, отличается от передачи указанного света через протекающий поток в оптическом датчике, свободном от указанных частиц.

2. Способ по п.1, в котором измерение расхода геля оксида металла содержит этапы, на которых:

измеряют скорость гелевой частицы в протекающем потоке посредством измерения времени ΔT , за которое передний или задний край гелевой частицы проходит от первого датчика до второго датчика, и делят ΔT на расстояние между первым и вторым датчиками; и

умножают скорость гелевой частицы на площадь поперечного сечения протекающего потока.

3. Способ по п.1, в котором измерение размера частицы оксида металла содержит этапы, на которых:

измеряют скорость гелевой частицы в протекающем потоке посредством измерения времени ΔT , за которое передний или задний край гелевой частицы проходит от первого датчика до второго датчика, и делят ΔT на расстояние между первым и вторым датчиками;

определяют расход протекающего потока посредством умножения скорости гелевой частицы на площадь поперечного сечения протекающего потока; и

умножают расход на период времени, за который гелевая частица проходит через первый датчик.

4. Способ оптимизации размера гелевых частиц оксида металла, содержащий этапы, на которых:

а) приготавливают низкотемпературный водный раствор нитрата металла, содержащий гексаметилентетрамин, в качестве исходного раствора;

б) вызывают протекание исходного раствора через первое сопло и его выход из первого сопла в качестве первого потока с первым расходом;

с) вызывают протекание неводной рабочей текучей среды через второе сопло в качестве второго потока со вторым расходом, где второй поток приводят в контакт с первым потоком;

при этом:

сдвиговое взаимодействие между первым потоком и вторым потоком разбивает первый поток на частицы раствора нитрата металла, и

разложение гексаметилентетрамина преобразует частицы раствора нитрата металла в гелевые частицы оксида металла;

измеряют размер гелевых частиц оксида металла, оптически, с помощью способа по п.1, и

если указанный измеренный размер гелевых частиц оксида металла не равен приблизительно ожидаемому размеру частицы, регулируют размер частицы посредством регулирования отношения первого расхода к суммарному расходу, где суммарный расход является суммой первого и второго расходов.

5. Способ по п.4, в котором измеренный размер гелевых частиц оксида металла больше ожидаемого размера частиц, и измеренный размер частиц уменьшают, по меньшей мере, посредством одного из уменьшения первого расхода исходного раствора.

6. Способ по п.4, в котором измеренный размер гелевых частиц оксида металла меньше ожидаемого размера частиц, и измеренный размер частиц увеличивают посредством увеличения первого расхода исходного раствора.

7. Способ по п.4, в котором измеренный размер гелевых частиц оксида металла отличается от ожидаемого размера частиц, и измеренный размер частиц изменяют посредством изменения первого расхода

исходного раствора.

8. Способ по п.4, в котором измерение размера гелевых частиц оксида металла содержит этапы, на которых:

измеряют скорость гелевой частицы в протекающем потоке посредством измерения времени ΔT , за которое передний или задний край гелевой частицы проходит от первого датчика до второго датчика, и делят ΔT на расстояние между первым и вторым датчиками;

определяют расход протекающего потока посредством умножения скорости гелевой частицы на площадь поперечного сечения протекающего потока; и

умножают расход на период времени, за который гелевая частица проходит мимо первого датчика.

9. Система, выполненная с возможностью оптимизации размера гелевых частиц оксида металла с помощью способа по п.4, содержащая:

систему для формирования гелевых частиц оксида металла, содержащую:

второе сопло, причем второе сопло представляет собой сопло для рабочей текучей среды, формирующее путь протекания, где сопло для рабочей текучей среды выполнено с возможностью перемещения рабочего потока рабочей текучей среды с первым расходом по пути протекания;

первое сопло, причем первое сопло представляет собой сопло для раствора соли металла, имеющее выход, где сопло для соли металла выполнено с возможностью перемещения первого потока низкотемпературного водного раствора соли металла, содержащего гексаметиленetetрамин, в путь протекания со вторым расходом; и

нагреватель, выполненный с возможностью поддержания температуры рабочей текучей среды на уровне, достаточном для обеспечения гелеобразования соли металла в растворе соли металла посредством гексаметиленetetрамина;

систему для регулирования среднего размера гелевых частиц оксида металла, размещенную ниже по потоку от системы для формирования гелевых частиц оксида металла, содержащую:

детектирующее устройство, где детектирующее устройство включает в себя:

первый датчик и второй датчик, разнесенные друг от друга по пути протекания на первое расстояние, где первый и второй датчики выполнены с возможностью измерения объемного расхода и среднего размера гелевых частиц; и

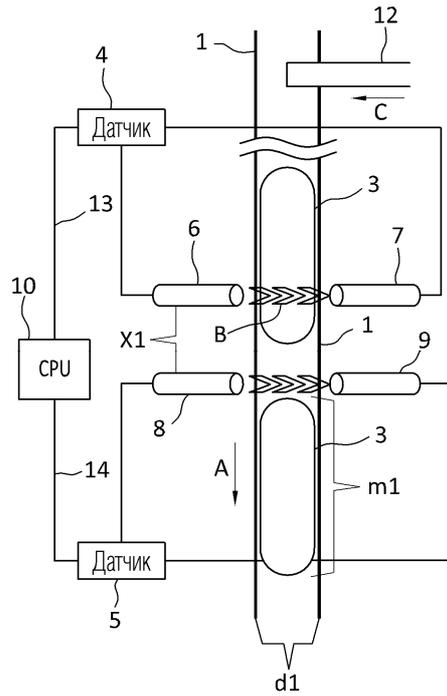
систему управления для регулирования среднего размера гелевых частиц оксида металла на основе входного сигнала от детектирующего устройства.

10. Система по п.9, в которой первый датчик и второй датчик разнесены друг от друга по пути протекания на первое расстояние, где первое расстояние меньше ожидаемого размера гелевых частиц оксида металла.

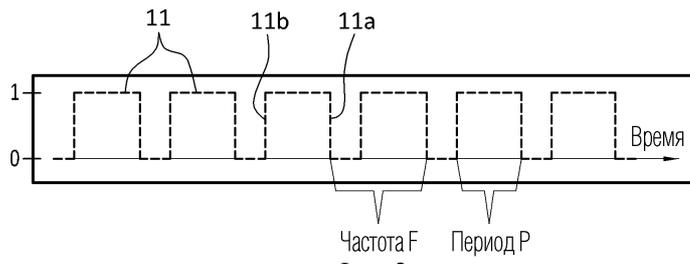
11. Система по п.9, в которой система для регулирования среднего размера выполнена с возможностью вычисления объемного расхода из первого времени прохождения, за которое гелевая частица оксида металла проходит первое расстояние между первым и вторым датчиками, и второго времени прохождения, за которое гелевая частица оксида металла проходит единственный датчик.

12. Система по п.9, при этом система для регулирования среднего размера выполнена с возможностью вычисления среднего размера гелевых частиц из первого времени прохождения, за которое гелевая частица оксида металла проходит первое расстояние между первым и вторым датчиками, и второго времени прохождения, за которое гелевая частица оксида металла проходит единственный датчик.

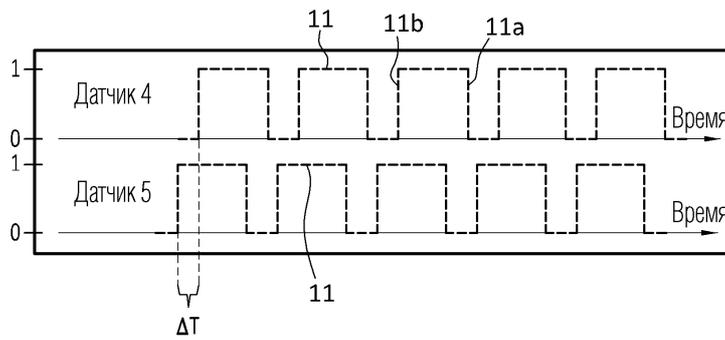
13. Система по п.11, при этом система для регулирования среднего размера выполнена с возможностью регулирования среднего размера гелевых частиц посредством регулирования отношения первого расхода к суммарному расходу, где суммарный расход является суммой первого и второго расходов.



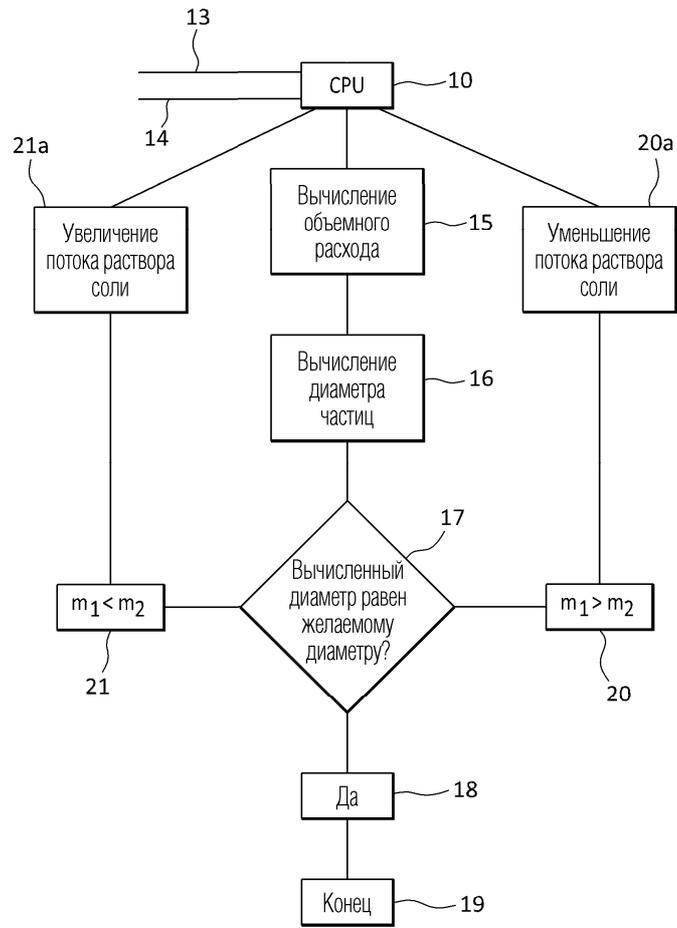
Фиг. 1



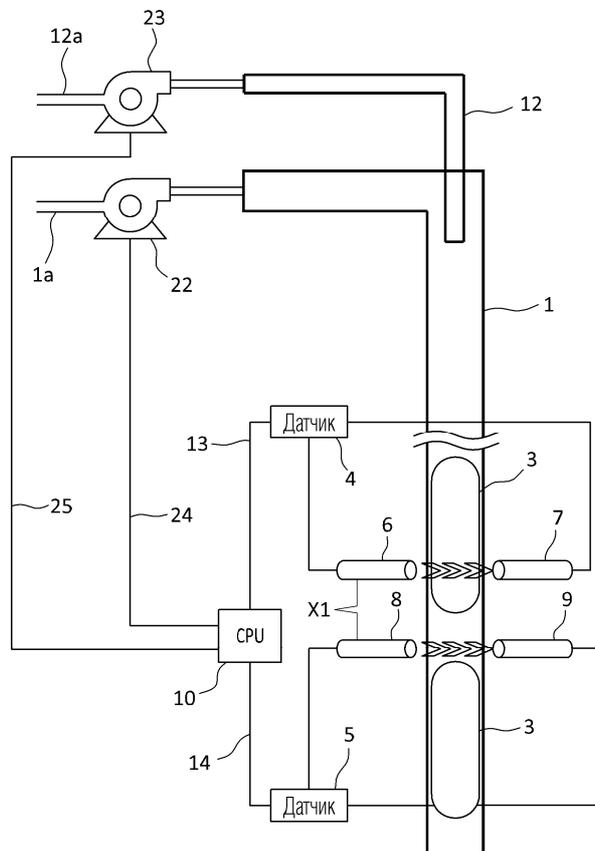
Фиг. 2



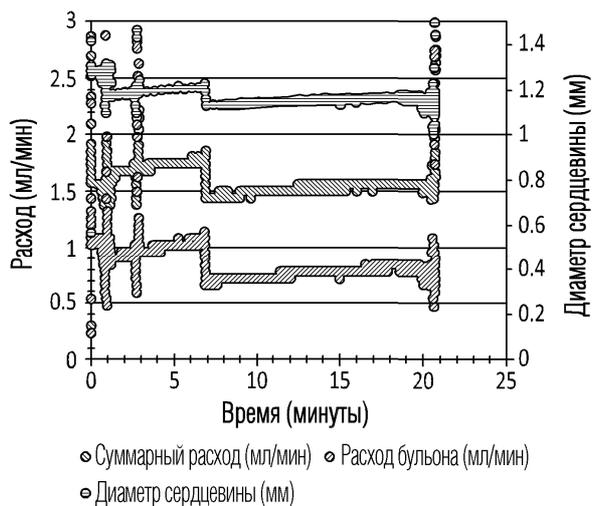
Фиг. 3



Фиг. 4

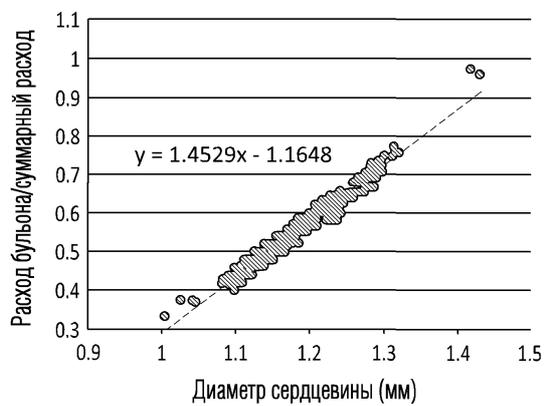


Фиг. 5



Фиг. 6

Диаметр сердцевинки относительно отношения потоков



Фиг. 7

