

JAERI-Tech
94-010



高速誘電加熱ゲル化装置の開発

1994年7月

山岸 滋・長谷川篤司*・小川 徹

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division,
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura,
Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

高速誘電加熱ゲル化装置の開発

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部
山岸 滋・長谷川篤司*・小川 徹

(1994年7月1日受理)

セラミック燃料微小球製造法の一つである内部ゲル化法においては、原液中にヘキサメチレンテトラミン (HMTA) を前もって混合しておき、その球状液滴を加熱して、HMTAの熱分解によりアンモニアを発生させ均一にゲル化させる。この加熱のために、液滴が加熱部中を落下する短時間の間に高周波誘電加熱により温度を約80K上昇させ得る高速ゲル化装置を試作した。電源には、工業用に指定されている周波数 (2.45GHz) のマイクロ波を用いる市販の誘電加熱用電源に若干の改造を加えたものを使用した。本装置を用いてU含有微小ゲル球の調製が可能であることを実証した。

Development of a Rapid Gelation Apparatus with Microwave Heating

Shigeru YAMAGISHI, Atsushi HASEGAWA* and Toru OGAWA

Department of Chemistry and Fuel Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 1, 1994)

In the internal gelation process for fabricating ceramic fuel microspheres, hexamethylenetetramine (HMTA) is added to the source solution, and then the droplets of the solution are heated to decompose the HMTA into ammonia and gelled homogeneously. For the heating, a rapid gelation apparatus was developed, which enabled the temperature of the droplets increase around 80 K during a short time of their fall through its heating cavity. A commercial power supply for dielectric heating by using microwave with a frequency of 2.45 GHz assigned to industrial uses, was used with a little improvement. The gel microspheres containing uranium were prepared by using this rapid gelation apparatus.

Keywords: Ceramic Fuels, Microspheres, Internal Gelation, Sol-gel Process, Fabrication, Apparatus, Dielectric Heating, Microwave, Gel, Uranium Oxide

* Denki Kogyo Co., Ltd.

目 次

1. はじめに	1
2. 可能性の検討	2
2.1 加熱用空洞共振器	2
2.2 水滴加熱に必要な電界強度	3
2.3 共振器自身による電力損失	5
2.4 石英管による電力損失	5
2.5 まとめ	6
3. 試作した装置と運転方法	7
3.1 装置構成	7
3.2 共振器の形状	7
3.3 マイクロ波スペクトル幅の改良	8
3.4 マイクロ波エネルギーの調節	8
3.5 共振器の整合	8
3.6 放電検知・インタロック信号発信用メータリレーの設定	9
4. 特性・加熱性能試験	11
4.1 放電検知・インタロック信号発信用メータリレーの特性	11
4.2 蒸留水滴加熱試験	11
4.3 模擬液滴加熱試験	14
4.4 酸不足型硝酸ウラニル溶液のゲル化試験	16
5. 共振器の水平方向電界型配置から鉛直方向電界型配置への改良について	17
5.1 二つの型式の共振器についての概算加熱性能の比較	17
5.2 水の誘電特性値を正しく評価した場合と概算の場合との所要電力の比較	18
5.3 ゲル化に必要な電力の推定	18
5.4 滴下位置の影響	18
5.5 まとめ	19
6. おわりに	20
謝 辞	20
参考文献	21

Contents

1. Introduction	1
2. Preliminary Survey on Possibility of the Development	2
2. 1 Heating Cavity	2
2. 2 Electric Field Necessary for Heating Droplets	3
2. 3 Power Loss due to the Cavity	5
2. 4 Power Loss due to the Quartz Tube	5
2. 5 Summary	6
3. Developed Apparatus and Its Operation Procedures	7
3. 1 Composition of the Apparatus	7
3. 2 Shape of Heating Cavity	7
3. 3 Improvement of Microwave Spectrum Width	8
3. 4 Control of Microwave Energy	8
3. 5 Adjustment of Heating Cavities	8
3. 6 Setting of the Meter-relay for Detecting Electric Discharge and Generating Interlock Signal	9
4. Tests on Property and Heating Ability of the Apparatus	11
4. 1 Property of the Meter-relay	11
4. 2 Heating Test of Pure Water Droplets	11
4. 3 Heating Test of Dummy Solution Droplets	14
4. 4 Gelation of Droplets of Acid-deficient Uranyl Nitrate Solutions	16
5. On the Improvement of Heating Cavities from the Horizontally-directed Electric Field Type to the Vertically-directed One	17
5. 1 Comparison between the Two Type Cavities on Heating Ability Calculated Roughly	17
5. 2 Comparison between Necessary Powers Calculated Roughly and Calculated in Detail on the Evaluation of Dielectric Properties of Water	18
5. 3 Estimation of Power Necessary for the Gelation	18
5. 4 Effect of Dropping Position	18
5. 5 Summary	19
6. Summary	20
Acknowledgements	20
References	21

1. はじめに

原子炉用セラミックス燃料粒子製造分野におけるゲル粒子経由での製造方法としては、ウラン等の燃料元素を含む原液（溶液またはゾル）の小滴を第2流体（気体、または、有機液体）との界面張力をを利用して形成し、それにアンモニア等のゲル化剤を作用させてゲル化（固化）した粒子（ゲル粒子）を熱処理してセラミックス粒子に転換する方法が一般的である。このゲル粒子を造る方法は、ゾルゲル法と総称される（最近、これについての短い総説⁽¹⁾ を筆者の一人が記している）。このゾルゲル法は、外部ゲル化法と内部ゲル化法に大別される。前者の外部ゲル化法では、ゲル化剤を小滴の外部から作用させる。それに対して、後者の内部ゲル化法では、原液の中にあらかじめヘキサメチレンテトラミン（略称：HMTA）を混合しておき、小滴を加熱して小滴内部のHMTAを熱分解させ、その分解生成物であるアンモニアをゲル化剤として利用する。

内部ゲル化法では、第2流体として加熱したシリコンオイル等を用いて、その中の小滴形成と約80Kの温度上昇によりHMTAを熱分解させゲル化を行う方法⁽²⁾ が一般的である。それに対して、空气中で形成した小滴を、空洞共振器（以下、共振器と略記する）の内部に発生させたマイクロ波電界中を落下させる間に誘電加熱し、HMTAを分解しゲル化させる「高速誘電加熱ゲル化法」と呼ぶべき Ledergerberの方法⁽³⁾ がある。他の内部ゲル化法と比較した場合に、この「高速誘電加熱ゲル化法」の最大の利点は、有機溶媒使用が不要なことである。

現在、長寿命の α 線放射体であるTRU（超ウラン元素）の蓄積が原子力界で課題となっており、その消滅処理のために、これらのTRUを窒化物粒子の形にし、それに窒化チタン（TiN）をコーティングした被覆粒子燃料を用いて、専用の原子炉での核反応により転換（消滅）させる案が提案されている⁽⁴⁾。この粒子燃料の製造過程では、 α 線放射体であるTRUを含む廃棄物を低減することが重要である。そもそも、燃料製造方法としてゾルゲル法が重要視されてきたのは、液体から粒子状固体へ転換する工程の中に施設汚染をもたらす粉末取扱工程を含まないからである。この粒子製造に「高速誘電加熱ゲル化法」を採用することは、施設汚染低減に加えて廃棄物量減少が図れるという大きなメリットがある。

しかし、Ledergerberの例では、小滴のゲル化に必要とされる約80Kの温度上昇を与えるには、工業用に指定されている周波数（0.915または2.45GHz）では不十分で、約1桁高い周波数の8.2~12.4GHzを適用して初めて目的とする加熱を可能とした。この通信用周波数帯（Xバンド）のマイクロ波を適用した誘電加熱用高出力電源は、特別に設計・製作する高価なものとなる。

本研究開発の目的は、工業用周波数（2.45GHz）を適用した安価な市販の誘電加熱用マイクロ波電源を用いて、小滴が空洞共振器内のマイクロ波電界中を落下している間に内部ゲル化されるのに必要な約80Kの温度上昇をもたらす誘電加熱が可能であるかを検討し、装置を試作することである。

2. 可能性の検討

工業用周波数適用の市販の誘電加熱用電源（最大出力5kW）を利用して、落下水滴温度を80K上昇させる可能性を検討した。加熱部となる空洞共振器に与えた条件は、次のとおりである。

- ・ 加熱部となる空洞共振器の鉛直長さ : 200mm程度
- ・ 水滴滴下位置 : 共振器の上方30mm
- ・ 滴下時初速 : 0 mm/s
- ・ 空洞共振器
 - モード : TE₁₀₁
 - 形状 : 幅(a)64mm、奥行(b)30mm、高さは共振波長(L)の直方6面体 (Fig.1)
 - 材質 : 銅
- ・ マイクロ波周波数 : 2.45 GHz

2.1 加熱用空洞共振器

まず、共振器のサイズを決めるために、共振波長を求める。モードTE₁₀₁の共振器の共振波長(L)は、次式で表される⁽⁵⁾。

$$L = \frac{s}{2} \cdot \frac{\lambda}{[1 - (\lambda/2a)^2]^{1/2}} \quad \dots \quad (1)$$

ここで、sは共振器内に立てる波の数で、ここではs=1とする。λはマイクロ波の波長で、光速cとマイクロ波周波数fからλ=c/fで与えられる。(c=2.998×10⁸ m/s、f=2.45×10⁹ s⁻¹より、λ=122.4mm)。(1)式より、L=208mmと計算できる。

次に、この共振器のQ値を求める。Q値とは、共振器の特性を決める尺度として、一般に用いられるもので、次の式で定義される無次元の値である。

$$Q = 2\pi \cdot \frac{\text{貯蔵エネルギーの最大値}}{1\text{サイクルごとに消費されるエネルギー}}$$

モードTE₁₀₁の共振器の無負荷時の理論Q値は、次の式で求められる⁽⁵⁾。

$$Q = \frac{\lambda}{\Delta_{cu}} \cdot \frac{2}{[(\lambda/a)^3 + (\lambda/L)^3 + (2\lambda/b)]} \quad \dots \quad (2)$$

ここで、Δ_{cu}は銅の表皮深さで、次の(3)式で与えられる⁽⁵⁾。

$$\Delta_{cu} = [\rho / (\pi f \mu_r \mu_0)]^{1/2} \quad \dots \quad (3)$$

ここで、 ρ は銅の比抵抗で、 $\rho = 1.72 \times 10^{-8} \Omega \cdot m$
 μ_r は銅の比透磁率で、 $\mu_r = 1$
 μ_0 は真空の透磁率で、 $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} H/m$

である。

これより、 $\Delta_{cu} = 1.334 \times 10^{-3}$ mmであり、 $Q = 1.20 \times 10^4$ となる。

2. 2 水滴加熱に必要な電界強度

一様な電界 E_0 の場（誘電率： ϵ_0 ）に置かれた球状の誘電体（誘電率： ϵ ）の中の電界 E は、一般的に次のように表される⁽⁸⁾。

$$E = \frac{3\epsilon_0}{(\epsilon + 2\epsilon_0)} E_0$$

ここで、検討する場は空気、誘電体は水であるので、 ϵ_0 として真空の値 ($\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12} \text{F/m}$) を、水の比誘電率 ($\epsilon_r = \epsilon / \epsilon_0$) として室温の値 ($\epsilon_r = 76.7$) を用いると、 $\epsilon \gg \epsilon_0$ 故、上式は、

に近似できる。

強度 E の電界に時間 t 存在した体積 ΔV の水滴の誘電加熱による発熱量 W_e は、

$$W_w = (1/2) \omega \epsilon_r \epsilon_0 E^2 \cdot \tan \delta \cdot \Delta V \cdot t \quad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (5)$$

である⁽⁷⁾。ここで、 ω は角速度 ($\omega = 2\pi f$)、 $\tan \delta$ は水の誘電正接である。
(4)(5)式を整理すると、

$$W_w = \frac{9}{4} \pi f (\epsilon_0 / \epsilon_r) E_0^2 \cdot \tan \delta \cdot \Delta V \cdot t \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

となる。一方、体積 ΔV (m^3) の水滴の温度を ΔT (K) だけ上昇させるに必要な W_{w} は、

である。(6)(7)式を整理すると、水滴の体積に関係なく、水滴の加熱に必要な電界強度 E_0 と時間 t は次式を満足すれば良いことが分る。

ここで、 ΔT (80K)、 ϵ_r 、 f 、 ϵ_0 、 $\tan \delta$ (室温: 1570×10^{-4}) の値を入れて計算すると、目的の加熱に必要な $E_0^2 \cdot t$ は、

$$E_0^2 \cdot t = 2.66 \times 10^{11} \text{ (V}^2\text{m}^{-2}\text{s)}$$

となる。

しかし、モード TE_{101} の共振器内では、Fig. 1 に示すように電界の方向は奥行方向であり、その強度は縦（鉛直）方向と幅方向では、それぞれの中央部が最大、両端部が最小（ゼロ）の正弦波分布を持つ。すなわち、最大値を E_{\max} とすると、共振器水平断面中央部の共振器上端より z の位置の電界 E_z は、

$$E_0 = E_{0\max} \cdot \sin(\pi z/L) \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (9)$$

で表される。また、水滴が共振器上端の上方 z_0 で形成され、そこから初速 v_0 で落下する場合の時間 t における z は、

である。したがって、目的の加熱に必要な共振器内電界強度最大値 $E_{0\max}$ は

より計算できる。ここで、 t_1 、 t_2 は、水滴がそれぞれ共振器入口と出口を通過するまでの時間である。この式の定積分は E_{\max} の電界での必要滞在等価時間 t_{eq} を意味する。

$$\int_{t_1}^{t_2} [\sin^2(\pi z/L) \cdot dt] = t_{eq}$$

$v_0 = 0 \text{ mm/s}$, $L = 208 \text{ mm}$ の場合について、 t_1 , t_2 を計算すると、それぞれ、

$$t_1 = 0.0782\text{s}, \quad t_2 = 0.220\text{s}$$

であり、

$$t_{eq} = 0.0663_s$$

となる。これより、水滴温度の80K上昇に必要な電界強度最大値 $E_{0\max}$ については、次

の値が得られる。

$$E_{0\max}^2 = 4.018 \times 10^{12} [(\text{V}/\text{m})^2]$$

$$E_{0\max} = 2.004 \times 10^6 [\text{V}/\text{m}] = 20.04 [\text{kV}/\text{cm}]$$

2. 3 共振器自身による電力損失

上述のような直方6面体のTE₁₀₁モードの共振器による電力損失(Cavity loss)P_cは次式で求められる⁽⁸⁾。

$$P_c = (\omega/Q) (\epsilon_0 \cdot E_{0\max}^2 \cdot a \cdot b \cdot L/8) \quad \dots \dots \dots \quad (12)$$

ここに、80Kの水滴温度上昇をさせるためのE_{0max}他の値を入れると、P_c=2.29×10³Wとなる。

2. 4 石英管による電力損失

上述の共振器を実際のゲル粒子調製に使用するには、ゲル化用原液あるいはゲル粒子回収部(共振器下部に設置)のアンモニア水からの汚染から共振器を保護するために、共振器中央を鉛直方向に貫く石英管を設置する。この石英管の存在による電力損失P_qは、各水平断面内の石英が断面中央に存在すると過大評価すると、次式で求められる。

$$\begin{aligned} P_q &= (1/2) \omega \epsilon_0 \epsilon_r' \tan \delta' \int_0^L E_{0\max}^2 \sin^2(\pi z/L) \cdot S \cdot dz \\ &= (1/4) \omega \epsilon_0 \epsilon_r' \tan \delta' \cdot S \cdot E_{0\max}^2 \cdot L \quad \dots \dots \dots \quad (13) \end{aligned}$$

ここで、ε_{r'}、tan δ'、Sはそれぞれ石英の比誘電率、誘電正接、水平断面積である。石英管の内径8mm、外径10mm、共振器内長さL=208mmとすると、石英管断面積S=9π×10⁻⁶(m²)となる。この他、E_{0max}=20.0 kV/cm、ε_{r'}=3.78、tan δ'=0.6×10⁻⁴(3GHzでの値)を入れると

$$P_q = 183\text{W}$$

となる。

2. 5 まとめ

直径3.5mm の水滴の温度を 80K上昇させるに必要なエネルギーは7.5Jであり、水滴落下時間（加熱時間）は0.2s程度であるので、水滴加熱に直接使われる電力は0.04kW程度である。したがって、必要なマイクロ波電力の大部分は共振器自身による電力損失で、石英管による電力損失および水滴加熱に消費される電力を含めても 2.5kW程度である。また、共振器中の電界強度最大値 ($E_{0\max}$: 20.0kV/cm) も最大許容電界強度30kV/cmより小さい。この結果、市販の誘電加熱用 5kW電源で目的の加熱が可能であると判断された。

以上の検討は、マイクロ波の共振器への投入口が無限小の場合について行っている。しかし、実際には、投入部のアイリスの形状、共振器保護用に配置する石英管等によって、共振波長Lは異なるものになる。すなわち、a、b、Lを決めた後で、アイリスの形状を決め、石英の量の調節により共振状態を出現させることができる。後述のように、試作器では、その手順で共振器の整合をとるようにした。

3. 試作した装置と運転方法

3.1 装置構成

試作した高速誘電加熱ゲル化装置の構成をFig. 2に示す。このうち、本報告の対象である加熱・制御部は、マグネットロン発振器(1)、サーチューレータA(2)、方向性結合器A(3)、入射・反射電力メータ(4)、スタブチューナ(5)、サーチューレータB(6)、方向性結合器B(7)、空洞共振器(8)、導波管(9)、スペクトラムアナライザ(10)、放電検知・インタロック信号発信部(11)、共振状態微調整用石英棒(12)、石英棒駆動機構(13)、石英管(14)で構成される。(なお、市販電源は、通常、上記の(1)～(3)あるいは(1)～(5)で構成されている。)これに、ゲル化用原液供給・液滴形成部(15)、ゲル粒子受器(16)を加えて高速誘電加熱ゲル化装置を構成している。

サーチューレータAはマグネットロンの保護用であり、サーチューレータBは共振器とスタブチューナのアイソレーションをとる目的で設けている。スタブチューナは、共振器への入射電力を可変する目的で設けている。方向性結合器Aは、マグネットロン発振器からの入射電力とスタブチューナによる反射電力を入射・反射電力メータで表示し、実際の共振器への入射電力を知るために設けている。

方向性結合器Bを設けた当初の目的は、共振器から反射されるマイクロ波の周波数スペクトルをスペクトラムアナライザでモニタし、共振状態微調整用石英棒を共振器に出入させながら共振器の整合をとることであった。後述のように、試作後の利用開始後に、方向性結合器Bにあるもう一つの反射電力端子を利用して、放電検知・インタロック信号発信部を取り付けた。

共振器中央を貫通する石英管は、加熱ゲル化のために滴下される原液等からの共振器の汚染をさけるために配置している。

3.2 共振器の形状

空洞共振器の略図をFig. 3に示す。その内寸法は、幅(a)=62mm、奥行(b)=27mmとし、高さ(L)は、用いる石英管の肉厚により変更できるように2種類製作した。一つは肉薄石英管用で、共振器下部の蓋として平板を用いてL=221mmとし、他方は肉厚石英管用で、共振器下部の蓋として高さ24mm(幅60mm、奥行23mm)の底上げ部を設けたものを用いてL=197mmになるように調節した。すなわち、2種の共振器を整備した。

空洞共振器へのマイクロ波の導入部として、共振器側面の上端から86.5mmの位置を中心にも、幅(共振器の奥行方向)27mm、奥行(共振器に垂直方向)6.5mm、高さ21mmのアイリス(窓)を設けた。

共振器を構成する上蓋と下蓋の中央に直径11mmの円形の穴を設けて直径約10mmの石英管を設置した。その石英管の固定のため上蓋の穴には固定具を溶接で取り付けた。

共振器下蓋には、さらに、共振状態微調整用石英棒を出入させるために、アイリスの設置した側と反対方向の隅(中央から幅方向に25mm、奥行方向に7mmの位置)に直径7mmの穴を設けた。共振状態微調整用石英棒は、直径6mmでその出入にはマイクロメータ

型駆動機構を採用した。これにより液の滴下中でもトラブルなく共振状態の微調整が可能となった。

3. 3 マイクロ波スペクトル幅の改良

本装置の電源としては、カタログ品である電気興業（株）製のUP-5型誘電加熱用電源（2.45GHz、定格 5kW）を用いた。しかし、本電源に使用しているマグネットロン発振器の周波数スペクトル幅は、約3.5MHzであった。このカタログ品の電源では、マグネットロンのアノード回路に入れるチョークコイルとしてマグネットロンメーカ推奨のものを用いている。このスペクトル幅が大きいことは、共振周波数のシフトに対して安定性がよいが、加熱効率は劣る。試作の過程で加熱効率の増大が必要となったので、このチョークコイルのインダクタンスを加減して、スペクトル幅を約1MHzにする改造を行った。

3. 4 マイクロ波エネルギーの調節

1次的には、電源のマグネットロン発振器の出力を電源箱前面のダイヤル操作により、電源からの入射電力 P_i を調節する。ついで、スタブチューナの操作により、反射電力 P_R を調節し、共振器への実際の入射電力 P_1 を調節する。この実際の入射電力 P_1 は、入射・反射電力メータの指示値の差から求められる ($P_1 = P_i - P_R$)。

スタブチューナによる反射電力の調節の目的は、前述のマグネットロン発振器の周波数スペクトル幅がマグネットロン出力に大きく依存し、低出力側で幅が大きいからである。そのため、 P_i が同じでも P_1 が異なると共振器の加熱効率が異なる。

3. 5 共振器の整合

当初は、アイリスを固定し、スタブチューナの調整と共振器の底部をプランジャ方式の可動のものを用いて長さ (L) を調整することにより整合をとる計画であった。しかし、可動部での放電のためその計画は放棄し、前述のように、アイリスを固定、共振器長さ L を半固定とし、微調整用石英棒（直径 6mm）の挿入により整合をとる方式とした。整合の確認をモニタするには、スペクトラムアナライザの導入が必要となり、そのためには、Fig. 2 に示すように、方向性結合器BとサーキュレータBを追加する必要があった。系の共振周波数は、共振器の温度、石英管の位置、液滴存在の有無により異なるので、共振器から反射するマイクロ波スペクトルをスペクトラムアナライザで観察・モニタしながら、共振状態微調整用石英棒を駆動機構を用いて上下させ、共振周波数が入射マイクロ波の周波数スペクトル幅（最小値 f_{min} 、最大値 f_{max} ）の中に入るよう調整する。しかも、Fig. 4 に示すように、共振周波数の中心は、液滴が系内に存在しない場合 (f_0) と存在する場合 (f_1) では後者の方が 0.35~0.50MHz 低い。従って、液の滴下を開始する前に系を共振状態にしウォーミングアップする過程では、共振状態微調整用石英棒を操作して f_0 と f_1 の両方が f_{min} と f_{max} の間にに入るような位置に f_0 の位置を調整する必要がある。

以上の調整により、液滴の加熱が可能となるが、加熱効率を最大にする条件は特性試験によって求める必要がある。

3. 6 放電検知・インタロック信号発信用メータリレーの設定

(1) 設置の必要性

前述のように、この放電検知・インタロック信号発信部は、試作装置の性能試験の段階で必要性を痛感したため、後で付加した部分である。性能試験では、80K の温度上昇を確認するため、実液のゲル化の場合と同様に滴下液を5°C以下に冷却したものを用いた。そのため、試験の途中で滴下ノズルの上部に凝縮した水滴がノズル先端まで流下し、ノズルからの液滴と合体する。この場合に、時として滴下経路が中央から外れることが起こる。この度合いが大きいと、液滴が石英管内壁に付着する。このような付着は、振動等によっても生ずる。付着部では異常発熱し水蒸気圧が一気に高まり放電が発生する。もし、放電をそのまま放置すると石英管も溶融し、共振器も損害を受けることになる。これを避けるために、放電検知・インタロック信号発信部を設けた。

(2) 構成

方向性結合器Bには、スペクトラムアナライザへ出力する端子のほかに、もう一つの反射マイクロ波検出端子がある。共振器の整合が最良の状態では、共振器からの反射電力 P_r は最小値になるが、放電が発生すると整合がとれず反射電力が増大する。この性質を利用して、この端子に反射電力を示すメータリレー（現状のものは、フルスケール 200 μA の電流値 (I) 表示のもので指示値も反射電力と直線関係にあるものである）を取り付け、そのリレー端子を電源の外部インタロック端子につないだ。

(3) 操作法

- ①電源投入前に上限設定値を最大にしておく。
- ②電源投入直後の共振状態から大きくずれている（共振器への入射電力のほぼ全部が反射している）状態でのメータの指示値が、あらかじめ校正してある値と一致することを確認する。
- ③系を共振状態に調整していくと、指示値が低下していくので上限設定値を順次低下させ、②の時の指示値より小さい値に設定する。（注：設定値を共振時の値にあまり近づけるとノイズ等により放電がないのにインタロックされることがある。）

(4) 共振状態調整のための利用

上述のように、本発信部のメータリレーは、共振器からの反射電力 P_r の定性的モニタでもある（ただし、後述のように、加熱器として使用中の同調状態では、正確な反射電力をることはできない）。共振周波数は、液滴の存在しない場合 (f_0) と存在する場合 (f_1) とで異なるため、メータリレー電流値 I も液滴の存在しない場合 (I_0) と存在する場合 (I_1) で異なる。そのため、液滴を滴下している場合のメータの針 (I) は滴下に同期して振れ続ける。

①液滴滴下前に I_0 が最小になるように f_0 を調節した状態で滴下を開始すると、メータの針は滴下に同期して大きい方に振れる ($I_0 < I_1$)。②この状態から微調整用石英棒を抜いて f_0 を大きくしていくと滴下に同期した針の振れがほとんど観察できない ($I_0 = I_1$) 状態になる。③さらに石英棒を抜いて f_0 を大きくしていくと針は小さい方に ($I_0 > I_1$) 振れるようになる。④さらに石英棒を抜いて f_0 を (すなわち f_1 も) 大きくしていくと、 $f_1 \approx (f_{min} + f_{max}) / 2$ となる附近で I_1 は最小となるはずであるが、針の振れのためその条件を明確に把握することはできない。⑤さらに石英棒を抜いていけば、 I_1 は再び増大に向かう。

液滴加熱効率の大きさは、①<②<③<④>⑤の順で、④の場合に最大となるはずだが、その状態は瞬時のため明確に確認できない。その条件は、 P_1 、 P_0 によっても変るので、それぞれの場合について f_0 と f_{max} との関係、すなわち ($f_{max} - f_0$) を変えて液滴加熱効率を調べておけば、最も良い共振状態への調整に利用できる。

4. 特性・加熱性能試験

4. 1 放電検知・インタロック信号発信用メータリレーの特性

前述のように、本発信部は本体の試作完成後に付加したものである。そのため、予算上の制約から放電検知・インタロック信号発信が可能であれば良いとした。しかし、本メータリレーは電流値表示で反射電力表示ではないものの、反射電力メータの役目も果たし得る。共振器が同調状態からはずれた状態 ($f_0 >> f_{max}$) では、入射電力 P_i のほぼ全量が反射する。それゆえ、その状態における反射電力 P_r (すなわち P_i) とメータリレーの電流値との関係を、用意した二つの共振器について P_r を変えて測定した。Fig. 5 は $L = 221\text{mm}$ (外径10mm、肉厚1mm石英管使用) の共振器についての結果である。Fig. 6 は $L = 197\text{mm}$ (外径10.5mm、肉厚1.5mm石英管使用) の共振器についての結果である。電流値-反射電力曲線は、電源からの入射電力 P_i により若干異なるほか、共振器によっても少し異なる。しかし、共振器と P_r を固定すれば十分反射電力計として利用できるといえる。(ただし、マイクロ波スペクトルが入射波と同じ全反射時に限られる。後述のように、同調・吸収により変質したスペクトルの反射波では、図の曲線から求めた値は実際より小さい値を示すと考えられるので適用できない。)

4. 2 蒸留水滴加熱試験

4. 2. 1 滴下水滴温度の測定方法

共振器内を落下中に誘電加熱された水滴の温度を直接測定することは難しい。しかも、共振器の加熱性能を検査するためには共振器出口における水滴の温度を評価しなければならない。そのために、Fig. 7 のようなガラス製の装置を製作した。ノズルより滴下する水は、外側に恒温水を高速で循環させる二重管ジャケットの内側にポンプから供給して、滴下の前に所定の温度に加熱する。その温度は滴下用ノズルの入口に近い位置(測温点1)の熱電対でモニタする。水滴の落下するジャケット下部の内径は、共振器内に配置する石英管と同じ8mmとした。長さはジャケット下端が共振器出口に相当するよう調節し、ジャケット出口での水滴温度が所定の温度を維持するようにした。ジャケットの下方には図のような測温部を設けるが、両者の中間には共振器下部の非加熱部及び下方の構造物に相当する部分としてガラス管を配置した。

測温部は二重管構造で、外側は保温のため真空にしてある。二重管内部の内径は上部で8mm、下部で3mmで内径の小さくなる部分(測温点2)に熱電対の接合部を配置した。落下した水滴の液面が測定点2の少し上に維持されるようにオーバーフロー部を配置した。

ノズルは外径0.7mmのステンレス製注射針を用い、高圧定量ポンプを用いて、0.90または0.63ml/minの速度で蒸留水を供給した。水滴を連続して滴下した場合の測温部の温度をレコーダで記録し平衡温度を求めた。Fig. 8 は、その平衡温度を滴下水温に対して示す。

共振器で加熱した水滴の温度は、測温部の平衡温度を測定し、この図を用いて評価した。

4. 2. 2 結果

長さしが221mmの共振器を用いて、その上端の上方30mmの位置に先端のある外径0.7mmのノズルから、蒸留水を滴下しつつ、前記の温度測定装置を用いて平衡水温をモニタした。

開発途中の工場での試験において、制御の安定性を犠牲にしてでも最高の加熱性能を發揮するようにマイクロ波スペクトル幅を可能な限り小さくした条件でも、室温の蒸留水を滴下した時の最高上昇温度は42Kにすぎず、加熱性能は2.2で検討した設計仕様の約1/4であった。

現状では、放電限界に近い条件($P_i = 5\text{ kW}$, $P_o = 4\text{ kW}$)でも、二つの共振器とも、室温の蒸留水を44~45°Cまで加熱できる(温度上昇は約25K)にすぎなかった(Table 1)。

4. 2. 3 考察

このように加熱性能が2.2の検討結果と異なった理由は二つある。第1は、水の二つの誘電特性値、すなわち比誘電率 ϵ_r と誘電正接 $\tan \delta$ が温度に依存しない定数(25°Cの値)とした概算に依ったことである。第2は、前述のように共振器に入射されるマイクロ波の周波数スペクトルには幅があるので、入射した電力の全部が水滴を含めた共振器系の加熱に利用されるのではなく、Fig. 4に示すようなスペクトルのマイクロ波が反射されることである。すなわち、入射マイクロ波の利用率が100%でなく、相当低いことである。設計時には、水滴の有無による共振周波数のシフトは想定できなかった。また、市販の誘電加熱用マイクロ波電源の周波数スペクトル幅はメーカーでも測定されておらず、数MHzの大きなものであることは想定されていなかった。(この幅は、今回の開発で初めて測定されたものである。)それゆえ、第1の概算の誤差を取り除いて、マイクロ波の利用率(α)を求めるなどを、以下に試みる。

(1) 水の誘電特性値

水の二つの誘電特性値(比誘電率 ϵ_r と誘電正接 $\tan \delta$)は、Fig. 9に示すように温度が上昇すると共に小さくなる。図の文献データ⁽⁸⁾を4次式フィッティングすると、

$$\epsilon_r(T) = 80.48 - 0.01290T - 0.0074018T^2 + 8.0960 \times 10^{-5}T^3 - 3.6654 \times 10^{-7}T^4$$

$$\tan \delta(T) = 0.32427 - 0.00105018T + 1.95094 \times 10^{-4}T^2 - 1.8553 \times 10^{-6}T^3 + 6.7589 \times 10^{-9}T^4$$

の式が得られた。

(2) 水滴温度上昇の計算法

$L = 221\text{mm}$ の共振器内を通過した水滴の温度の計算には、次の方法を用いた。共振器内通過時間を細かく等分割（ここでは百等分）し、その n 番目区分の最終位置の共振器上端からの位置 z_n を求める。電界強度最大値 E_{\max} を与えれば、(9)式より z_n における電界強度 $E_0(z_n)$ が分る。 n 番目の区分での温度上昇の計算には、 z_{n-1} における温度 T_{n-1} での ϵ_r と $\tan \delta$ を用い、電界強度としてはその区分の前後端での強度の平均値を用いた。また、この計算では、いずれも、滴下初速 $v_0 = 0\text{mm/s}$ 、滴下位置 $z_0 = 30\text{mm}$ 、前述のマイクロ波利用率 α は 1 とした。

Fig. 10は、2. 2において 80K の水滴温度上昇が得られると概算された電界強度を与えた場合の共振器内での水滴温度を、初期水温 T_{in} をパラメータとして示す。温度上昇は、 $T_{in} = 25^\circ\text{C}$ では 54K、 $T_{in} = 0^\circ\text{C}$ では 69K であった。 ϵ_r と $\tan \delta$ を一定 (25°C 値) とした概算による過大評価率は $T_{in} = 0 \sim 25^\circ\text{C}$ では約 1.2 ~ 1.5 倍に過ぎないことが分かる。

(3) 滴下位置と水滴温度上昇の関係

蒸留水加熱試験での滴下位置が設計と異なっているかも知れないので、その影響を調べた。Fig. 11では、電界強度が Fig. 10 と同じ場合について、滴下位置 z_0 を 10、20、30 mm に変えて比較した。この共振器では、滴下位置 10mm と 30mm での温度上昇の差は小さいことが分かる。

(4) 電界強度最大値 E_{\max} と水滴温度上昇の関係

Fig. 12は、初速 0 mm/s、滴下位置 30mm に固定し、電界強度最大値 E_{\max} を変えた場合の共振器出口での水滴温度 T_{out} を E_{\max}^2 に対して示している。水の二つの誘電特性値が温度に依存しない場合には T_{out} は E_{\max}^2 に比例するが、実際には温度に依存するため、図のように、入口温度によって温度上昇の様子が少しずつ異なる曲線となる。

この図の計算と同じ方法で 4. 2. 2 の蒸留水滴加熱試験時の滴下前後の温度から、その時の電解強度を求めることができる (Table 1)。

(5) 試作共振器の Q 値の測定

$L = 221\text{mm}$ の共振器の Q 値の測定を試みた。測定するために共振器に測定器を取り付けると条件が変わってしまうが、概略値は求められる。その値は、 1.3×10^4 であった。本共振器は、2. 2 で検討したサイズとは若干ことなるが、その検討での値とほぼ近い Q 値を持っていることになる。

(6) マイクロ波の利用率 α の推定

本電源で発振するマイクロ波の周波数スペクトル幅は、実際には、出力その他の条件が変ると変化する。スペクトル幅が変化すれば、前述のマイクロ波利用率 α も変るはずである。しかし、ここではマイクロ波利用率 α は一定であると仮定して、試作共振器についての概略の α 値の推定を試みる。

共振器に入射する電力を P_i 、共振器で吸収する電力を P_a とすると、 $\alpha = P_a / P_i$

である。ここで、4.2.2の蒸留水滴加熱試験の結果から得た E_{\max}^2 の値と(5)項で実測したQ値から、(12)(13)式を用いて P_r と P_a を計算し(水滴加熱に利用される電力ははるかに小さいので無視すると)、共振器で吸収され加熱に利用された電力 P_u は $P_u = P_r + P_a$ であるので、Table 1に示すように、 α は約0.2と計算される。

このように、本試作の共振器では、共振器へ入射電力の約20%しか系の加熱に利用されていないことが分る。

(7) メータリレー電流値からのマイクロ波利用率 α の算出の試み

Table 1の水温変化測定時のメータリレー電流値からFig. 5および6を用いて換算した反射電力はいずれも1kW以下であった。これに系の吸収電力($P_r + P_a$)を加えたものが入射電力のはずである。しかし、この値は1.7kW以下でマイクロ波利用率は約60%以上となり、前項の値より3倍も大きい。この不一致の原因は、前述のように、同調時の反射マイクロ波のスペクトルがFig. 5および6の曲線を与えた全反射の場合から変質しているためと考えられる。この場合の換算では、反射電力が実際より小さいために利用率 α が実際より大きくなると結論すべきであろう。

(8) まとめ

加熱試験において設計の約1/4の加熱性能しか示さなかったのは、水の誘電特性値の温度依存性を厳密に評価しなかったこともあるが、それ以上にマイクロ波利用率 α の評価を全くしなかったことが大きく影響したと考察される。

4.3 模擬液滴加熱試験

前節に記したように、本装置の仕様である水滴温度の80K上昇は不可能であった。しかし、幸い、本装置の目的とする加熱対象は蒸留水ではなく高濃度電解質溶液である。この場合、電解質によるジュール発熱が加わるので、加熱効率の増大が期待できる。しかし、本来の加熱対象であるゲル化用原液を用いての昇温試験をこの測定装置で行うのは、受液部でのゲル化が起こるため困難である。そのため、模擬溶液による加熱試験を行った。模擬液には、硝酸アンモニウム(NH_4NO_3)および尿素の混合水溶液2種(濃度:各1mol/l、または各4mol/l)を用いた。この理由は、実際のゲル化用原液の組成がU濃度=0.7~1.5mol/l、 NO_3 濃度=1.05~3.0mol/l(NO_3/U モル比=1.5~2)、尿素濃度=ヘキサメチレンテトラミン(HMTA)濃度=1~3.6mol/l(尿素・HMTA/Uモル比=1~2.4)であることから、これらのゲル化用原液の加熱特性は上記2種の模擬液の中間に位置するか近いものであろうと想像したことにある。

4.3.1 最適加熱条件

1mol/l模擬液滴の温度上昇 ΔT を、共振器への入射電力 P_r を3kWに固定して、電源からの入射電力 P_i を4~5kWの範囲で変えて調べた。用いた共振器は $L=221\text{mm}$ の

ものである。 ΔT としては、その最大値の他に、液滴の有無により共振器からの反射電力の指標であるメータリレー電流値がほとんど変化しない ($I_0 = I_1$) 条件での値を測定した。その結果をFig.13に示す。いずれの P_1 の場合でも、 $I_0 = I_1$ の条件での温度上昇は、最大値より約3K 小さい。

図の下の部分には、それらのデータを取得した時の共振器からの反射マイクロ波スペクトル幅(図の $f = f_{min}$ の曲線)と液滴不在時の共振周波数 f_0 と f_{max} の関係($f_{max} - f_0$)を示している。この図は、液滴滴下前に共振器の共振周波数 f_0 を入射マイクロ波スペクトルの最大周波数 f_{max} からこの図の一番下の線で表す値だけ小さい周波数に合せておけば、最高の液滴温度上昇が得られることを意味する。また、滴下中に調節する場合には $I_0 = I_1$ の条件での共振周波数を約0.2MHz(図の下の2本の曲線値の差)高くするのを目安にすればよいことも意味する。

上の図では、液滴温度上昇は明らかに $P_1 = 4.4\text{ kW}$ の場合に最大で $P_1 = 5.0\text{ kW}$ で最小となっている。入射電力が同じ場合にはスペクトル幅が小さいほど吸収ピーク周波数での電力は大きいはずであり、スペクトル幅の小さい (P_1 が大きい) ほど液滴温度上昇が大きくなるとの予想に反する結果である。

液滴を効率よく加熱するには、液滴存在下の共振器の共振周波数 f_1 を入射マイクロ波スペクトルのほぼ中央 [$f_1 \approx (f_{min} + f_{max})/2$] に調節すればよいはずであるが、滴下前の液滴不在の状態でこの条件を探すことはできない。しかし、液滴不在の共振器の共振周波数 f_0 と f_1 のシフト量は前述のように0.35~0.50MHzであるので、それを考慮に入れて滴下前に f_0 を調節しておくことができるはずである。この場合、スペクトル幅が広い条件では、液滴存在の有無のいずれの時期でもマイクロ波吸収域の主要部が入射マイクロ波スペクトル幅の中に入るので滴下開始後の f_0 のシフトも少なく(共振器の加熱状態の変化が少なく)都合が良い。しかし、スペクトル幅が狭い (P_1 、 P_2 とも大きい) 条件では f_0 がスペクトルの端の (f_{max} に近い) 方に相当寄った状態となるので、滴下開始前に上述の調節をした状態では共振器温度は最高ではない。この状態で滴下を開始すると共振器の温度が上がり共振周波数が (f_0 、 f_1 とも) 低い方にシフトするので再調節が必要となる。また、再調節後も電源のゆらぎに基づく入射マイクロ波スペクトルのシフトによりマイクロ波吸収域の主要部がスペクトル幅からはみ出す確率が高く共振器の加熱状態の変動により液滴加熱効率も変動する。ひどい場合には、同調状態からはずれて f_0 が f_{max} に近付き最後には f_{max} を超えてしまう結果となることがある。

Fig. 13において P_1 が大きくなると液滴温度上昇が小さくなつた主要原因是、上述の電源の不安定性と考えられる。

4. 3. 2 模擬液滴温度上昇に及ぼす各種条件の影響

試験は長さ $L = 221$ および 197 mm の2種の共振器について行った。Table 2は、液滴温度上昇に対する模擬溶液濃度および共振器長さの影響を示す。加熱効率は、 4 mol/l 溶液の方が若干劣り、 $L = 221\text{ mm}$ の共振器の方が若干優れていることが分る。いずれの共振器でも、約 3 kW の入射電力 P_1 で本装置の仕様であるゲル化用原液の液滴温度の 80 K

上昇が可能であると推定された。

Fig. 14は、模擬液滴温度上昇 ΔT と共振器への入射電力 P_i との関係を、電源からの入射電力 P_i および滴下前温度 T_{in} を変えて調べた結果である。Fig. 13のような P_i 依存性は P_i の大きい方であるが P_i の小さい方では予想どおり P_i の大きい方が加熱効率が高くなる傾向が観られる。しかし、 P_i による ΔT の差は大きくても7K以内であることが分る。 T_{in} の影響については、室温(23°C)と3°Cの場合の差は7Kほどであった。実際のゲル化用原液の組成が変われば、ゲル化に必要な温度上昇も変り、そのために必要な原液冷却温度も変る。図の結果は、室温から現実的な冷却温度の最低値(3°C)までの範囲で十分な温度上昇が可能であることを示している。

4. 3. 3 模擬液と蒸留水との加熱効率の比較

Fig. 14には、蒸留水の温度上昇データも示した。これより、模擬液と蒸留水の加熱効率が比較できる。 $P_i = 3\text{ kW}$ での ΔT は約6倍も異なることが分る。これは、模擬液中の電解質による加熱の寄与が水の誘電加熱の約5倍あり、等価加熱に要する模擬液／蒸留水の所要電力比は約1/6であることを意味する。

4. 4 酸不足型硝酸ウラニル溶液のゲル化試験

内部ゲル化法でウラン含有微小球を調製する場合のゲル化用原液の代表的な組成は、ADUN (acid deficient uranyl nitrate、酸不足型硝酸ウラニル) 溶液と(HMTA+尿素)混合溶液と、ゲル化直前に混合したものである。本ゲル化試験では、5mlのADUN溶液(U濃度=3.01mol/l、NO₃/U比=1.55)に1mlの水を加えた液を2°Cに冷却しておき、別に2°Cに冷却しておいた(HMTA+尿素)混合溶液(各濃度: 3mol/l)の9mlを混合したものをゲル化原液として使用した。この原液の組成は、U濃度=1.0mol/l、(HMTA、尿素)/Uモル比=1.8である。この原液を2°Cに冷却した状態で、外径0.7mmのステンレス製注射針の先端を平に研磨したノズルから低い頻度で滴下させた。滴下位置は共振器上端から30mm上方であった。共振器への供給電力 P_i は2.6kW($P_i=4.0\text{ kW}$ 、 $P_R=1.4\text{ kW}$)であった。ゲル化粒子は共振器下端の下方約30mmに水面を持つ蒸留水中に回収した。ゲル化後、希アンモニア水で洗浄したゲル粒子の写真をFig. 15に示す。本試験では、ゲル化回収が可能であることの確認のみを目的とし、サイズの制御を目的としていないので、得られたゲル粒子は平均直径が約2.5mmのやや大きすぎるものであった(この粒子は、直径0.73mmの理論密度のUO₂に相当する)。それでも真球度(最大径/最小径比)は、1.1またはそれ以下であることが分る。また、この方法で得られる粒子の真球からのずれ方は、1軸が他の2軸より長い形($x=y < z$)になり、有機溶媒中でゲル化する場合($x=y > z$)^(10, 11)と異なることも分った。

安定したゲル化方法として確立するためには、原液組成の最適化、原液供給・滴下方法の改良、ゲル粒子回収方法の改良等、今後の研究開発が必要である。その中で、真球度は改善できると期待している。また、サイズの制御については、これまでに蓄積した微小球調製技術^(11, 12)を十分活用できるので、特に問題ないと考えている。

5. 共振器の水平方向電界型配置から鉛直方向電界型配置への改良について

本試作装置での共振器の配置は、Ledergerber のを模倣して、水平方向電界型の配置を採用している。この配置は、Fig.1 に示すように、電界強度が、共振器の上端と下端でゼロ、中央で最大となる分布を持つ。共振器内を落下する液滴の速度は重力により加速され電界強度の大きい位置を通過する時間は比較的短い。

それに対して、共振器を鉛直方向電界型に配置すると、液滴の通過する共振器中央部ではどの位置でも電界強度は最大値を有する。従って、落下速度の最小である共振器上端でも効率良い加熱が可能であり、水平方向電界型配置に比べて鉛直方向長さの短い共振器で同程度の加熱ができる可能性がある。その可能性を検討した。

5. 1 二つの型式の共振器についての概算加熱性能の比較

本試作に関して水平方向電界型配置について 2. で検討した条件で、鉛直方向電界型配置の共振器について、同様に検討した。すなわち、液の滴下は共振器上端の上方 30mm ($z_0 = 30\text{mm}$) から初速 $v_0 = 0\text{mm/s}$ で滴下する条件である。

鉛直方向電界型配置では、Fig.1 の b の方向を高さ（鉛直）方向にとるので、 E_0 は常に $E_{0\max}$ であり、 t_{eq} は $(t_2 - t_1)$ に等しくなる。b を固定すると、 P_e を最小にするのは $a = L = 86.5\text{mm}$ の場合である。 P_e の(13)式は

$$P_e = (1/2) \omega \epsilon_0 \epsilon_r' \cdot \tan \delta' \cdot E_{0\max}^2 \cdot S \cdot b \dots \dots \dots \quad (13')$$

に置き換えればよい。こうして、いくつかの b について、水滴温度の 80K 上昇に必要な $E_{0\max}$ 、 P_e 、 P_a 、共振器下端における液滴速度 v_2 を計算した。その結果を、2. の水平方向電界型配置についての検討結果と比較したのが Table 3 である（この比較は、水の誘電特性値（比誘電率と誘電正接）として 25°C の値を温度に依存しないと近似して概算した結果に基づいているので、80K の温度上昇に必要な電界強度最大値 $E_{0\max}$ は共振器入口水滴温度によって変わらない）。

鉛直方向電界型配置を水平方向電界型配置と比較すると、加熱に必要な電界強度は同程度か多少高いが、所要電力は小さく済むことが分る。さらに重要なことは、高さが低くて済むので、液滴の出口速度は小さいことである。また、Fig.16 に鉛直方向電界型配置の $b = 55\text{mm}$ の共振器内での水滴温度変化を示すが、Fig.10 の水平方向電界型配置の場合と比べて、共振器内を落下中に平均的に加熱される様子が明瞭である。

鉛直方向電界型配置共振器について高さ b の大小の影響を 50mm と 60mm の間で比較すると、出口速度を小さくするために b を無理して 50mm のように小さくしても、 $L = 208\text{mm}$ の水平方向電界型配置との速度比は、 $b = 60\text{mm}$ の 60% に対して 58% にすぎない。一方、必要電界強度比は、 $b = 60\text{mm}$ の場合の 108% に対して $b = 50\text{mm}$ では 116% と大きい。Fig. 17 と 18 は、それぞれ $b = 60\text{mm}$ および $b = 50\text{mm}$ の鉛直方向電界型配置の共振器に、概算では 80K の温度上昇をもたらす電界強度を与えた場合の、滴下位置による水滴温度の比較

をしている。いずれも、入口水滴温度が0°Cのもので、Fig. 11の場合と比較して、前述のように滴下位置の影響が大きいことが明瞭である。したがって、鉛直方向電界型配置への改良にあたっては、これらの効果を踏まえて、 z_0 をなるべく小さくすることと合せて、高さ b を決定すべきである。

5. 2 水の誘電特性値を正しく評価した場合と概算の場合との所要電力の比較

水の誘電特性値は、実際には、Fig. 9のように温度に依存する。この温度依存性を正しく評価して、80Kの温度上昇に必要な電界強度最大値 $E_{0\max}^2$ の計算を、共振器の型、鉛直長さ（ L または b ）、 z_0 等の種々の組合せについて4. 2. 3(2)と同じ方法で行った。その結果から、必要電力に比例すると考えられる $E_{0\max}^2$ を計算し、Table 3のような概算により求めた $E_{0\max}^2$ と比較した。その比率は、共振器の型その他の条件に無関係で、共振器入口での水滴温度 T_{in} のみに依存する値(Table 4)であることが分った。したがって、共振器の蒸留水滴加熱性能の相対比較には、概算によるTable 3の値の比較で十分であるといえる。(Fig. 10と16で、入口温度が同じ場合の出口温度が一致するのは、この反映である。)

5. 3 ゲル化に必要な電力の推定

実際のゲル化に必要な電力は、4. 3及び4. 4の結果から、模擬液温度の80K上昇に要する電力で近似してよいといえる。80K昇温のための模擬液／蒸留水の所要電力比 β は、Table 4の値と同様に、入口温度には依存するが共振器の型・サイズには依存しないと考えられる。

したがって、ゲル化用液滴のゲル化に必要な電力の算出には、Table 3の必要電力値に、Table 4の比率、マイクロ波利用率 α （4. 2. 3での概算値は約0.2）、さらに模擬液／蒸留水の所要電力比 β （4. 3. 3では約1/6と評価）による補正を加えればよいことになる。すなわち、

$$\text{必要電力} = [\text{Table 3 の電力値}] \cdot [\text{Table 4 の比率}] \cdot \beta / \alpha$$

ここで、[Table 4 の比率]、 β 、 α の各値は共振器の型・サイズに共通である。したがって、必要電力の共振器の型・サイズによる比較をするには、[Table 3 の電力値]の比較だけで十分であるといえる。

5. 4 滴下位置の影響

滴下位置 z_0 により、80Kの水温上昇に必要な $E_{0\max}^2$ の値は影響される。その程度を共振器の型と鉛直長さ（ L または b ）を変えて、5°Cの水滴の加熱の場合について計算した結果がTable 5である。水平方向電界型配置共振器では、滴下位置 z_0 を30mmから10mmに小さくする効果はあまりない（電力低減：9～10%）。それに対して、鉛直方

向電界型配置共振器では、 z_0 の短縮による電力の低減が顕著（23～24%）である。したがって、この型では共振器上部の構造を可能な限り簡単にし、 z_0 の短縮を図ることが重要であることが分る。

5. 5 まとめ

鉛直方向電界型配置の場合を水平方向電界型配置の場合と比較すると、加熱に必要な電界強度は同じか多少高いが、所要電力は小さくて済むことが分る。さらに重要なことは、高さが低くて済むので、液滴の出口速度は小さいことである。

誘電加熱によりゲル化したゲル粒子は、通常、水性の回収液の中に回収されるが、ゲル粒子は一見固体状でも強度が極めて小さいもので、変形あるいは破損しやすい。この変形・破損を回避するには回収液面に突入する速度は可能な限り小さいことが望ましい。それゆえ、鉛直方向長さの短かくて済む鉛直方向電界型の配置にすると、本試作の水平方向電界型配置に比べてゲル粒子の変形・破損を回避しやすく、有利である。

したがって、鉛直方向電界型配置への転換により、ゲル化装置としての全体の性能を大きく改良できると結論できる。この型の中では、高さ b を小さくする努力より滴下位置 z_0 を小さくする努力が重要である。

（しかし、この鉛直方向電界型配置では、石英管に沿っての沿面放電が起こる可能性もあるので、実際にテストを行い、放電対策を講じる必要があるかもしれない。）

6. おわりに

ゲル化用原液の滴の落下中のわずか0.15秒の間に液滴内部のHMTAを熱分解してアンモニアを発生させゲル化を起こさせるに十分な80Kの温度上昇をもたらし得る「高速誘電加熱ゲル化装置」の加熱部を試作した。加熱を利用するマイクロ波は、一般工業用周波数である2.45GHzのもので、電源も一般的の誘電加熱用の出力5kWのものを用いて安価に試作できた。

当初の設計では、純粹に水の誘電加熱だけで80Kの温度上昇が得られる見通しであった。しかし、マイクロ波の利用率の検討が欠けていたので、設計どおりの温度上昇が実現しなかった。幸いなことに、本装置で加熱する目的の液体が高濃度の電解質溶液であったためジュール発熱の寄与を加えることができ、目的の加熱を可能とした。

本試作装置の加熱部である共振器の内部の電界方向は水平方向であるが、これを鉛直方向となるように改良することにより、本試作のものより鉛直方向の短い共振器で同程度の加熱性能が得られる可能性があることを明らかにした。この方向での改良型共振器の試作検討を今後も続ける予定である。

実際のゲル化用原液を冷却しながら多量のゲル粒子を安定に調製するためには、とりあえず少量ゲル化のために造った現在の原液供給・滴下部の工夫・改良が必要である。また、非酸化物粒子調製のためには、炭素微粉を懸濁させた原液を滴下部に安定して供給する機構が必要であり、今後その部分の開発整備を進める予定である。この整備によって、「高速誘電加熱ゲル化装置」全体が初めて完成することになる。

謝　　辞

本試作装置は、日本原子力研究所とアートック株式会社との間に交わされた装置製作に関する契約に基づいて電気興業株式会社で設計・製作がなされたものである。日本原子力研究所と電気興業株式会社を結びつけて下さったアートック株式会社の渡辺正晴氏、および、設計・製作・試験に携わった電気興業株式会社高周波事業部の各氏に感謝します。また、本装置試作に対して予算的配慮・激励をしてくださった日本原子力研究所の特別研究員近藤達男氏、東海研究所副所長立川園造氏、原子炉工学部長吉田弘幸氏、燃料研究部長半田宗男氏、他の方々に感謝致します。

6. おわりに

ゲル化用原液の滴の落下中のわずか0.15秒の間に液滴内部のHMTAを熱分解してアンモニアを発生させゲル化を起こさせるに十分な80Kの温度上昇をもたらし得る「高速誘電加熱ゲル化装置」の加熱部を試作した。加熱を利用するマイクロ波は、一般工業用周波数である2.45GHzのもので、電源も一般的の誘電加熱用の出力5kWのものを用いて安価に試作できた。

当初の設計では、純粹に水の誘電加熱だけで80Kの温度上昇が得られる見通しであった。しかし、マイクロ波の利用率の検討が欠けていたので、設計どおりの温度上昇が実現しなかった。幸いなことに、本装置で加熱する目的の液体が高濃度の電解質溶液であったためジュール発熱の寄与を加えることができ、目的の加熱を可能とした。

本試作装置の加熱部である共振器の内部の電界方向は水平方向であるが、これを鉛直方向となるように改良することにより、本試作のものより鉛直方向の短い共振器で同程度の加熱性能が得られる可能性があることを明らかにした。この方向での改良型共振器の試作検討を今後も続ける予定である。

実際のゲル化用原液を冷却しながら多量のゲル粒子を安定に調製するためには、とりあえず少量ゲル化のために造った現在の原液供給・滴下部の工夫・改良が必要である。また、非酸化物粒子調製のためには、炭素微粉を懸濁させた原液を滴下部に安定して供給する機構が必要であり、今後その部分の開発整備を進める予定である。この整備によって、「高速誘電加熱ゲル化装置」全体が初めて完成することになる。

謝　　辞

本試作装置は、日本原子力研究所とアトーテック株式会社との間に交わされた装置製作に関する契約に基づいて電気興業株式会社で設計・製作がなされたものである。日本原子力研究所と電気興業株式会社を結びつけて下さったアトーテック株式会社の渡辺正晴氏、および、設計・製作・試験に携わった電気興業株式会社高周波事業部の各氏に感謝します。また、本装置試作に対して予算的配慮・激励をしてくださった日本原子力研究所の特別研究員近藤達男氏、東海研究所副所長立川園造氏、原子炉工学部長吉田弘幸氏、燃料研究部長半田宗男氏、他の方々に感謝致します。

参考文献

- (1) 山岸 滋：「高機能材料を拓くゾルゲル法の現状と展望1992」、
技術情報サービス懇談会ゾルゲル法リポート刊行会、東京、(1992)、
p. 122-127(3.1.2.11 核燃料)
- (2) 例えば、V. N. Vaidya, S. K. Mukerjee, J. K. Joshi, R. V. Kamat and D. D. Sood:
J. Nucl. Mater., 148(1987) 324
- (3) G. Ledergerber: *Trans. Am. Nucl. Soc.*, 40(1982) 55-56
- (4) T. Mukaiyama, H. Takano, T. Takizuka, T. Ogawa, H. Yoshida and Y. Gunji:
Trans. Am. Nucl. Soc., 64(1991) 548-550
- (5) 石井宗典 他：「マイクロ波回路」、日刊工業新聞社、(1970)
- (6) 平川浩正：「電磁気学」、培風館、(1985)
- (7) 電気学会：「電気工学ハンドブック」、(1988)
- (8) 藤沢和男：「改版マイクロ波回路」、コロナ社、(1990)
- (9) 日本化学会編：「化学便覧基礎編Ⅱ」、丸善、(1966)
- (10) 山岸、高橋、白鳥、柴：JAERI 1271 (1981)
- (11) S. Yamagishi and Y. Takahashi: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 22(1985) 995
- (12) 山岸、高橋：JAERI-M93-122(1993)

Table 1 水滴温度上昇から計算した電界強度とマイクロ波利用率
(条件: $P_i = 5 \text{ kW}$, $P_e = 4 \text{ kW}$)

共振器	温度変化(°C)	$E_{\max}^2 (\text{V}^2 \text{m}^{-2})$	$P_e (\text{kW})$	$P_q (\text{kW})$	$(P_e + P_q) / P_i$
L=221mm	19.1→44.0	1.35×10^{12}	0.654	0.065*	0.18
L=197mm	22.1→45.0	1.38×10^{12}	0.596	0.089**	0.17

* 石英管外径10mm、内径8mmとして計算

**石英管外径10.5mm、内径7.5mmとして計算

Table 2 尿素・ NH_4NO_3 模擬液滴温度上昇に及ぼす溶液濃度と共振器長さの影響
(液下前温度 $T_{in} = 3 \text{ }^\circ\text{C}$ 、電源からの入射電力 $P_i = 5.0 \text{ kW}$)

共振器への入射電力 $P_i (\text{kW})$	L=197mm		L=221mm	
	1mol/l	4mol/l	1mol/l	4mol/l
3.0	80.5K	75.0K	82.5K	77.5K
3.2	-	82.5K	-	85.5K

Table 3 水滴温度の80K上昇に必要な電力および出口速度の共振器の型・サイズによる比較（水の誘電特性値として25°Cの値を全温度に対して用いた概算による）

高さ (mm)	電界強度 E_{\max} (kV/cm)	$Q \times 10^{-4}$	P_e (kW)	P_q (kW)	必要電力* ($P_e + P_q$) (kW)	出口速度 v_z (cm/s)	備考
鉛直方向電界型配置の場合							a = 86.5mm L = 86.5mm
b = 50	23.2	1.74	1.98	0.12	2.10	125	
b = 55	22.3	1.82	1.93	0.12	2.05	129	
b = 60	21.6	1.89	1.89	0.12	2.01	133	
水平方向電界型配置の場合							a = 64mm b = 30mm
L = 208	20.0	1.20	2.29	0.18	2.47	216	

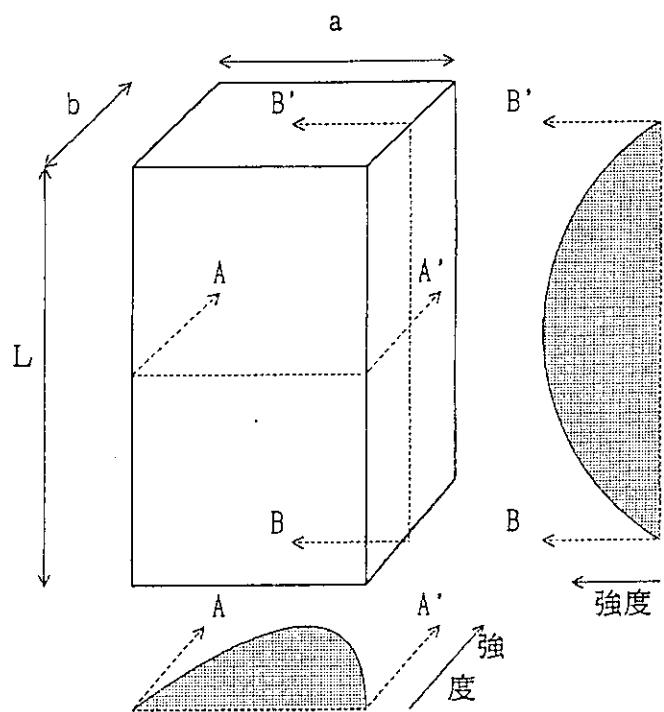
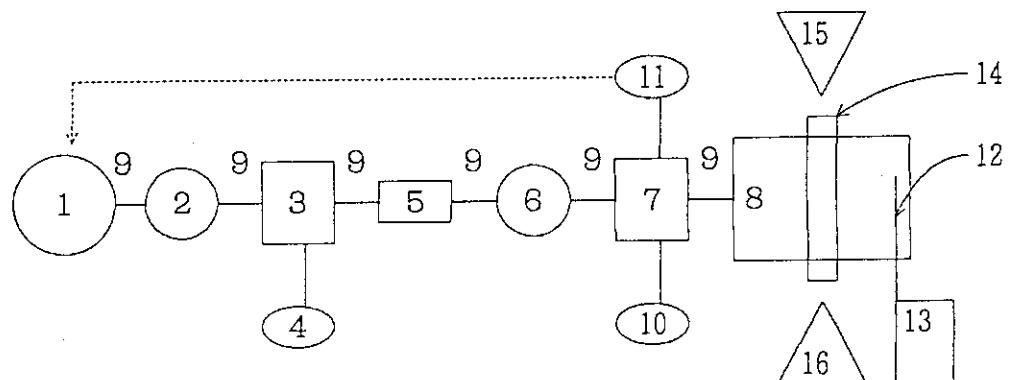
* 実際には、これに水滴加熱に必要な電力(約0.04kW)を加えたものである。

Table 4 水滴温度の80K上昇に必要な E_{\max}^2 の値の詳細計算と概算の比較
(必要電力の比は、共振器の型・サイズ他の条件によって変わらない)

入口水温 (°C)	0	5	10	15	20
E_{\max}^2 比 (詳細計算／概算)	1.25	1.35	1.44	1.54	1.63

Table 5 5°Cの水滴の80K上昇に必要な E_{\max}^2 値に及ぼす滴下位置の z_0 の影響

型	鉛直長さ (mm)	z_0 (mm)	E_{\max}^2 ($10^{12}V^2m^{-2}$)	Ratio
水平方向電界型	$L = 221$	30	5.20	1.000
		20	4.98	0.957
		10	4.74	0.911
	$L = 197$	30	5.59	1.000
		20	5.33	0.953
		10	5.05	0.903
鉛直方向電界型	$b = 60$	30	6.28	1.000
		20	5.63	0.897
		10	4.84	0.770
	$b = 50$	30	7.26	1.000
		20	6.46	0.890
		10	5.49	0.756

Fig. 1 TE₁₀₁モード共振器の電界分布模式図

- | | | |
|--------------------|----------------------|-------------|
| 1:マグネットロン発振器、 | 2:サーキュレータA、 | 3:方向性結合器A、 |
| 4:入射・反射電力メータ、 | 5:スタブチューナ、 | 6:サーキュレータB、 |
| 7:方向性結合器B、 | 8:空洞共振器、 | 9:導波管、 |
| 10:スペクトラムアナライザ、 | 11:放電検知・インタロック信号発信部、 | |
| 12:共振状態微調整用石英棒、 | | 14:石英管、 |
| 15:ゲル化用原液供給・液滴形成部、 | | 16:ゲル粒子受器。 |

Fig. 2 高速誘電加熱ゲル化装置の構成

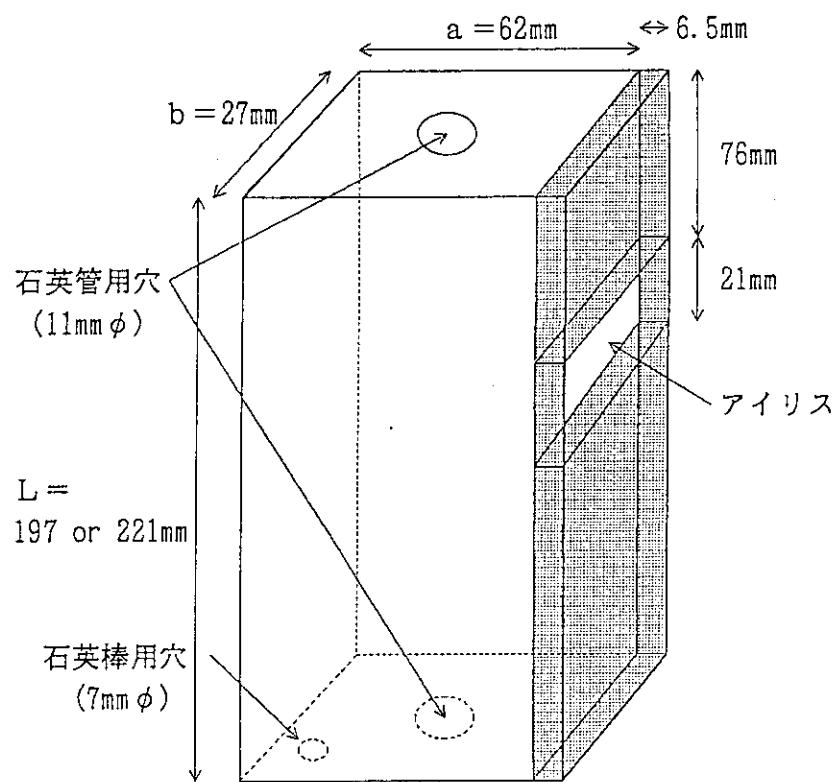
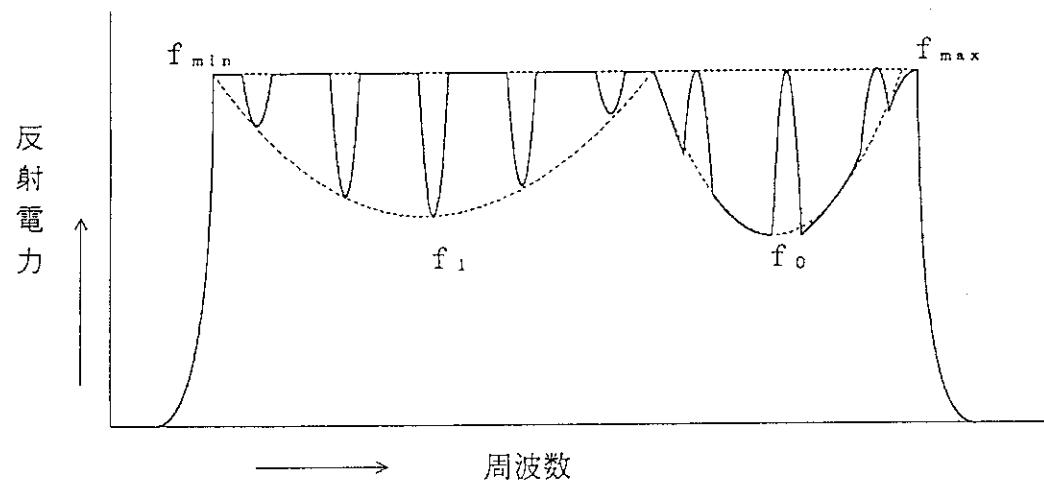


Fig. 3 加熱用空洞共振器の略図

Fig. 4 水滴滴下中にモニタした反射波スペクトル模式図
(共振器の共振周波数のシフトを示す)

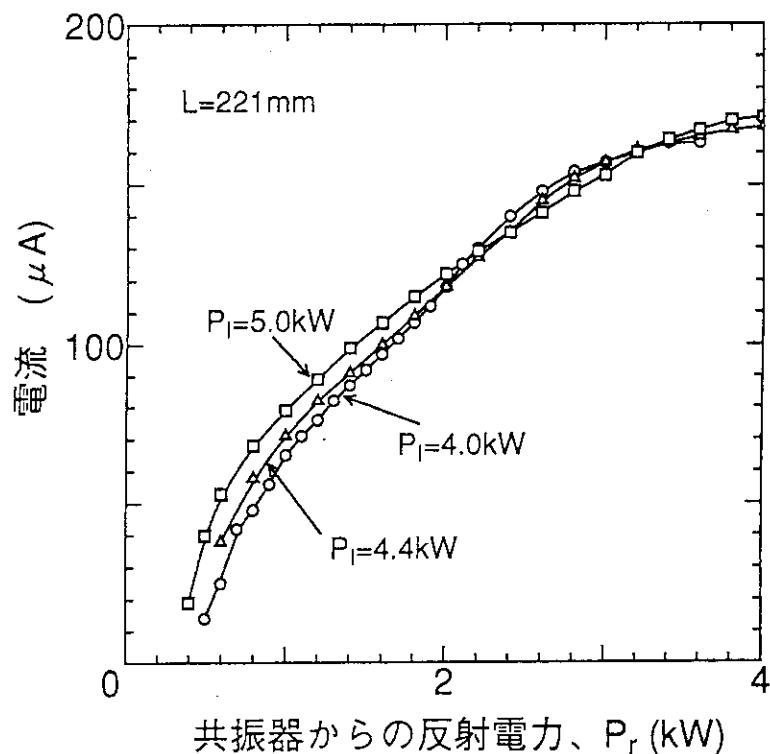


Fig. 5 メータリレー電流値と共振器からの反射電力の関係
($L=221\text{mm}$ 共振器用)

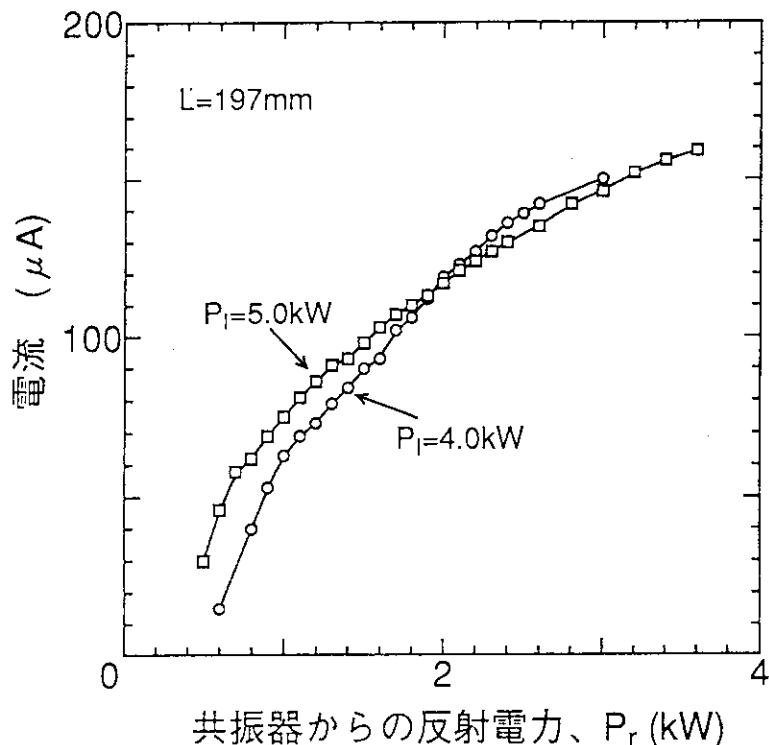


Fig. 6 メータリレー電流値と共振器からの反射電力の関係
($L=197\text{mm}$ 共振器用)

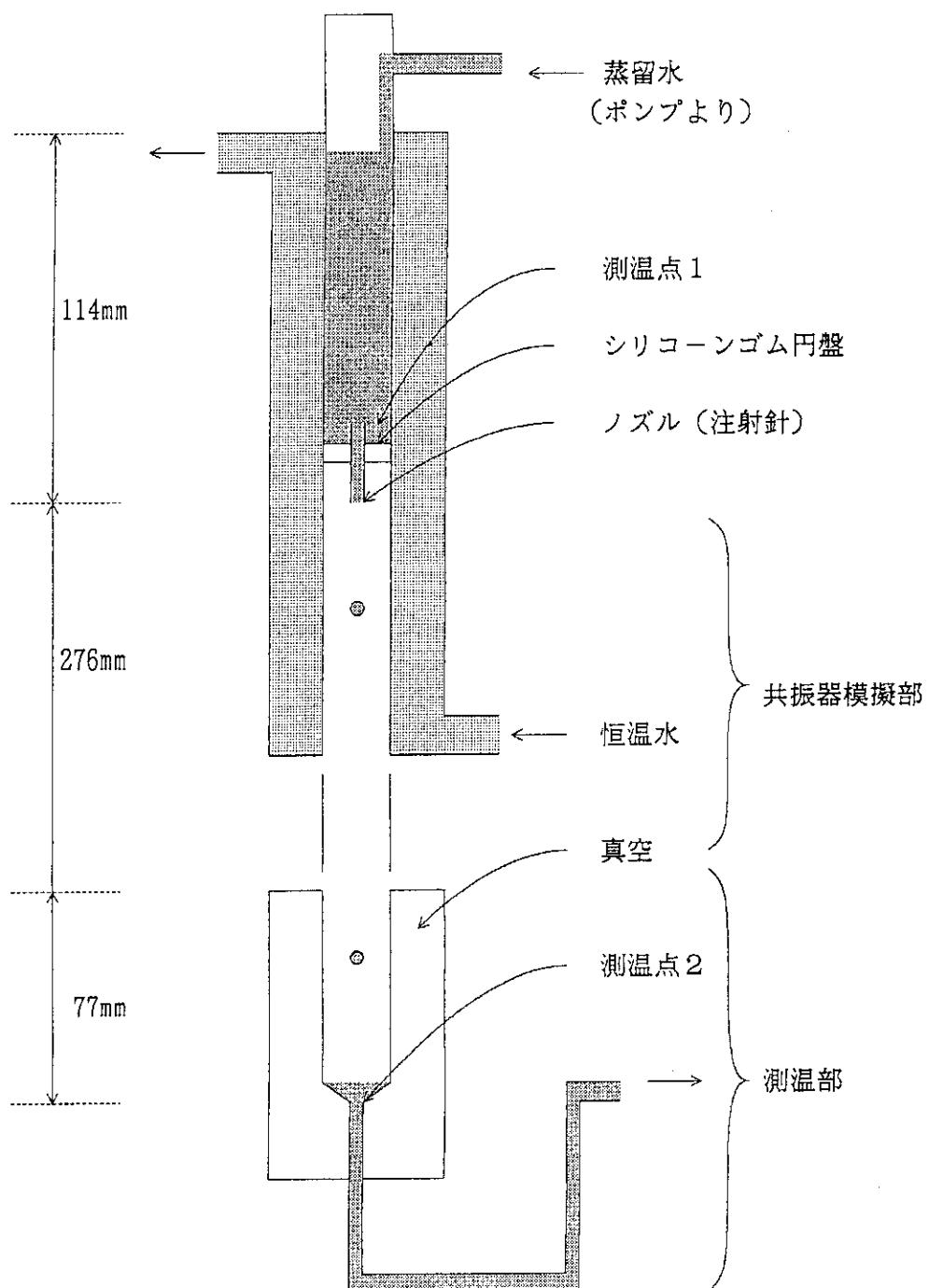


Fig. 7 滴下水滴温度測定装置

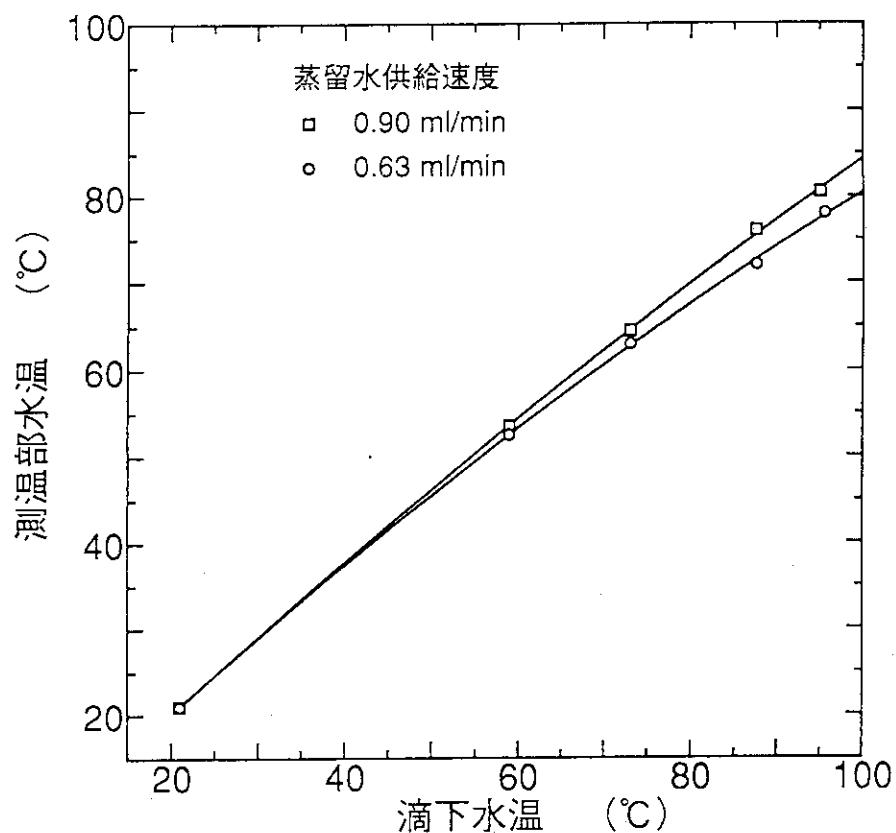


Fig. 8 水滴温度測定検量線

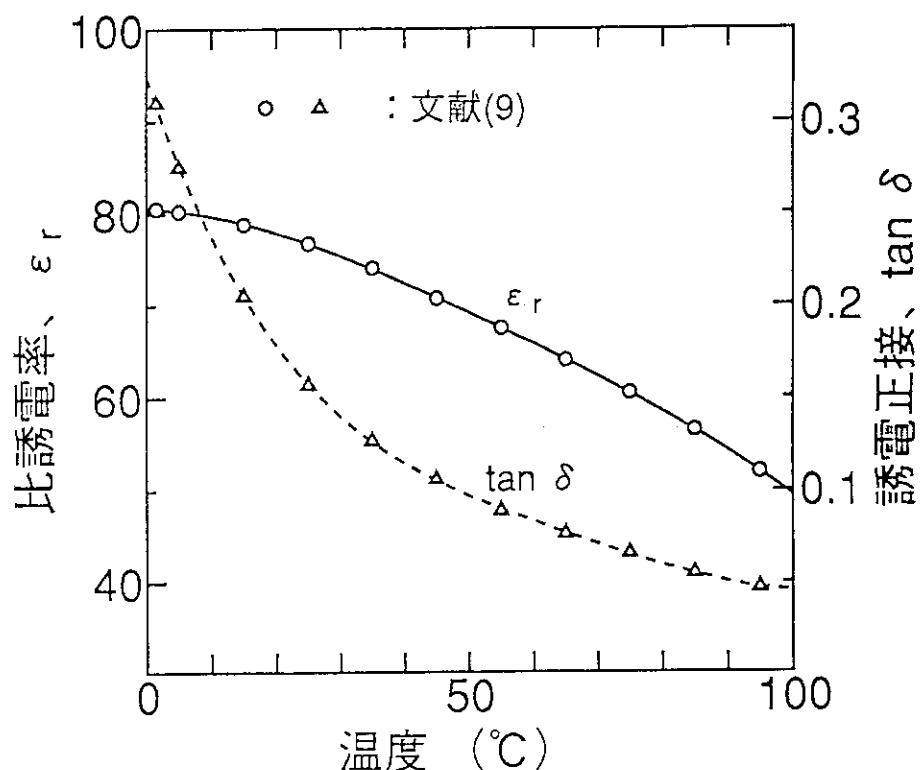


Fig. 9 水の比誘電率と誘電正接の温度依存性

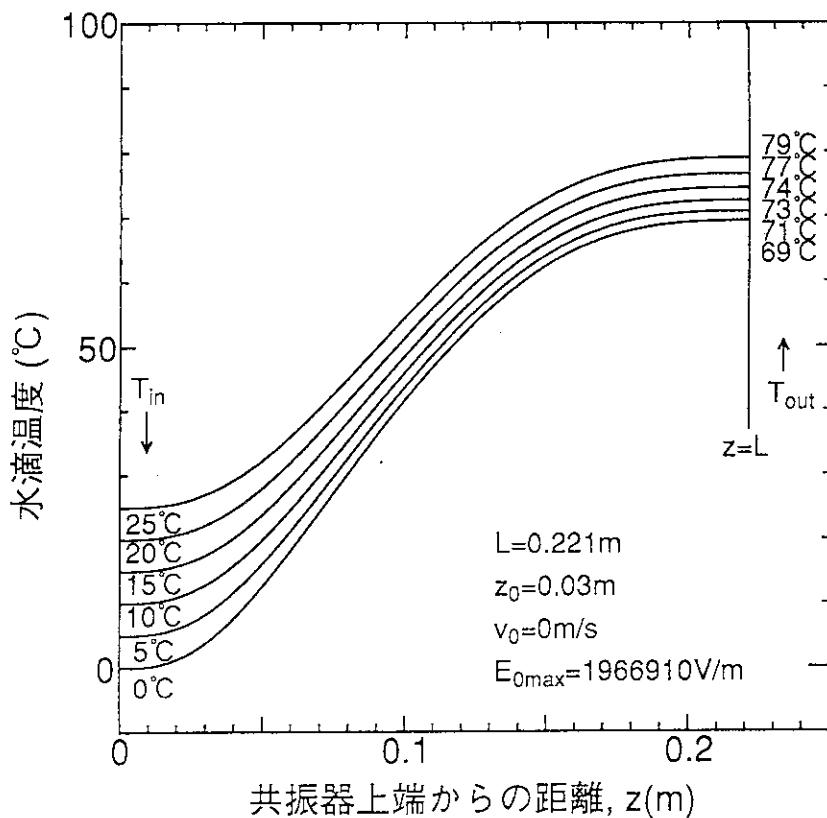
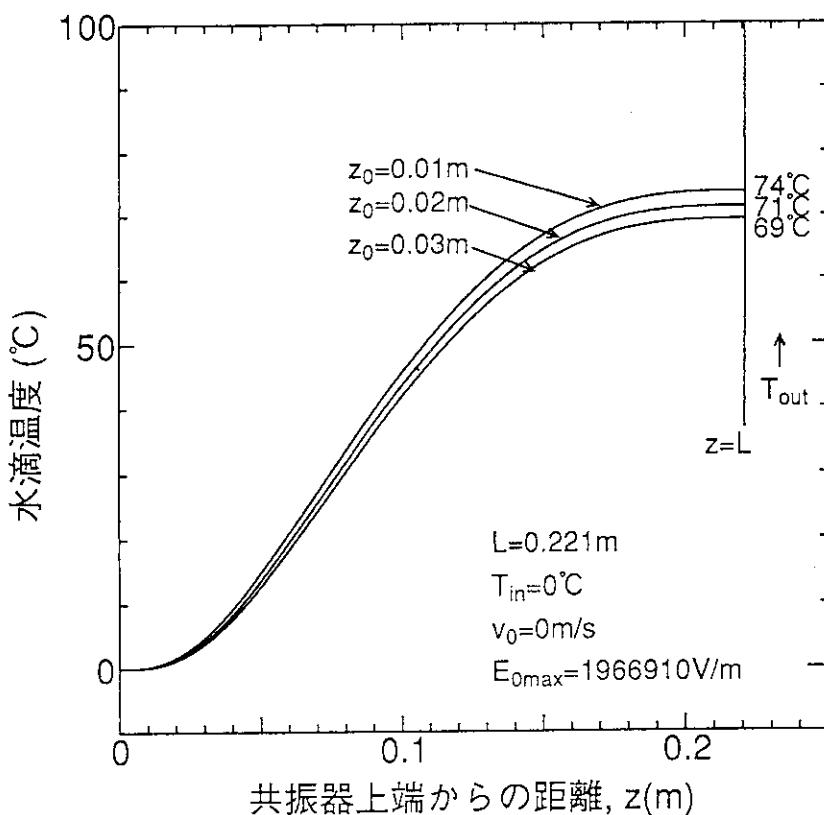


Fig. 10 80K昇温させると概算された電界強度での実際の水滴温度

Fig. 11 実際の水滴温度上昇に与える滴下位置の影響
(電界強度: $z_0 = 0.03\text{m}$ の場合に概算で80K昇温させる値)

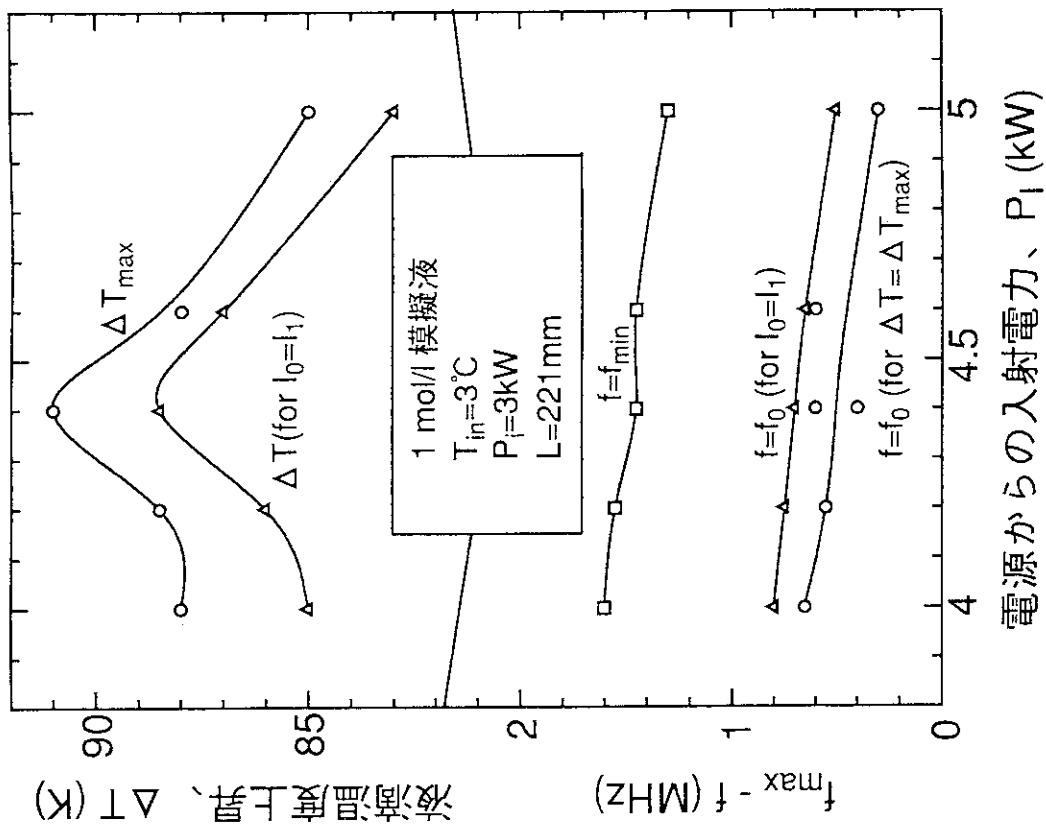


Fig. 13 液滴加熱に及ぼす電源入射電力の影響

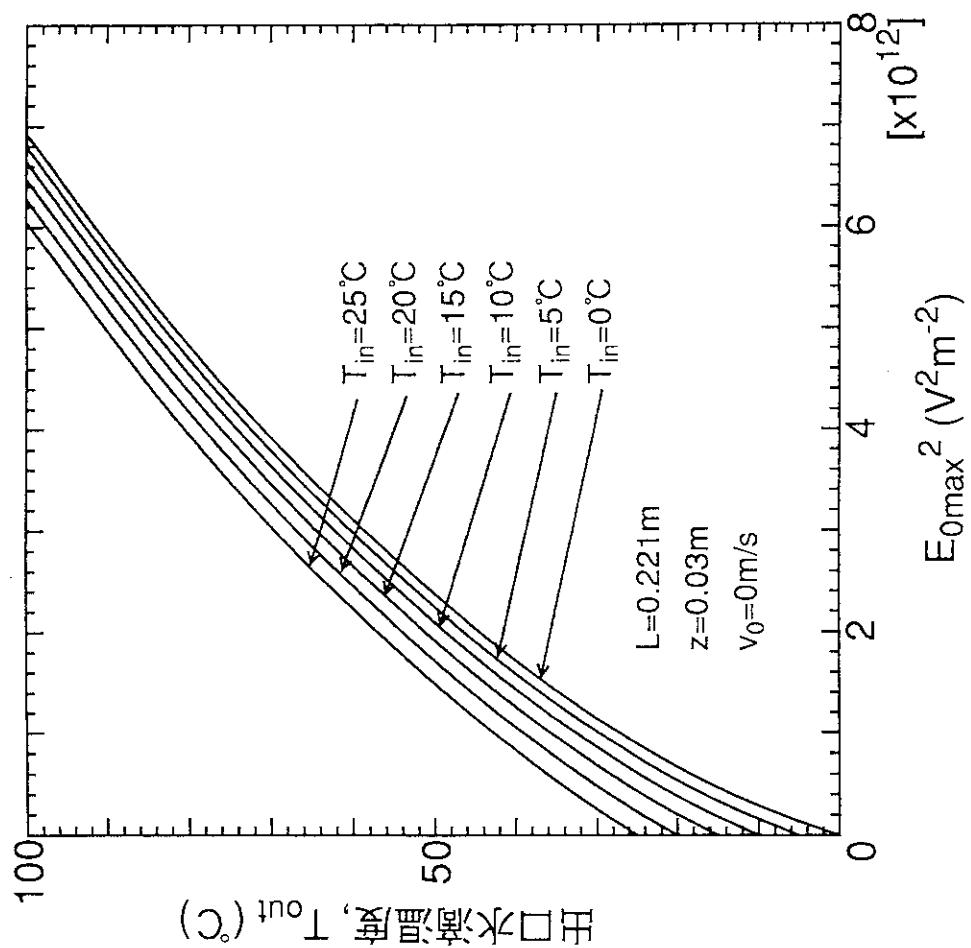


Fig. 12 共振器出口水温温度と電界強度最大値との関係

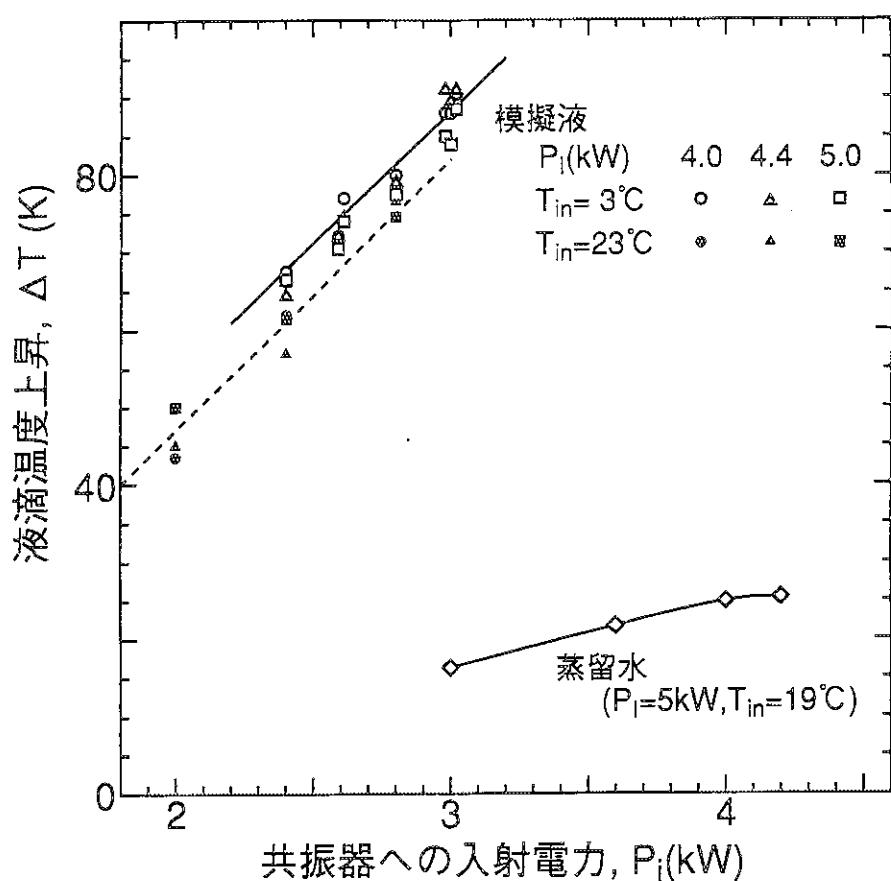


Fig. 14 蒸留水および1 mol/l 模擬液の温度上昇
(共振器: $L = 221\text{mm}$)

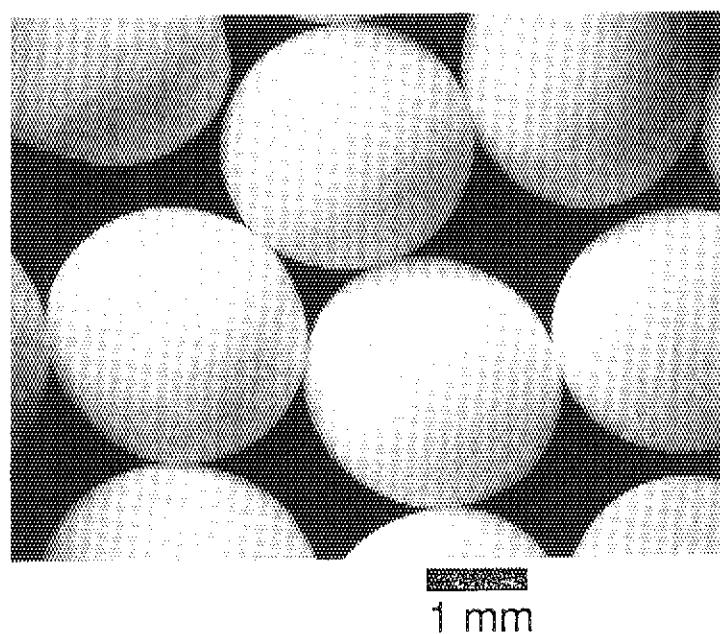


Fig. 15 本装置を用いて調製したU入りゲル粒子

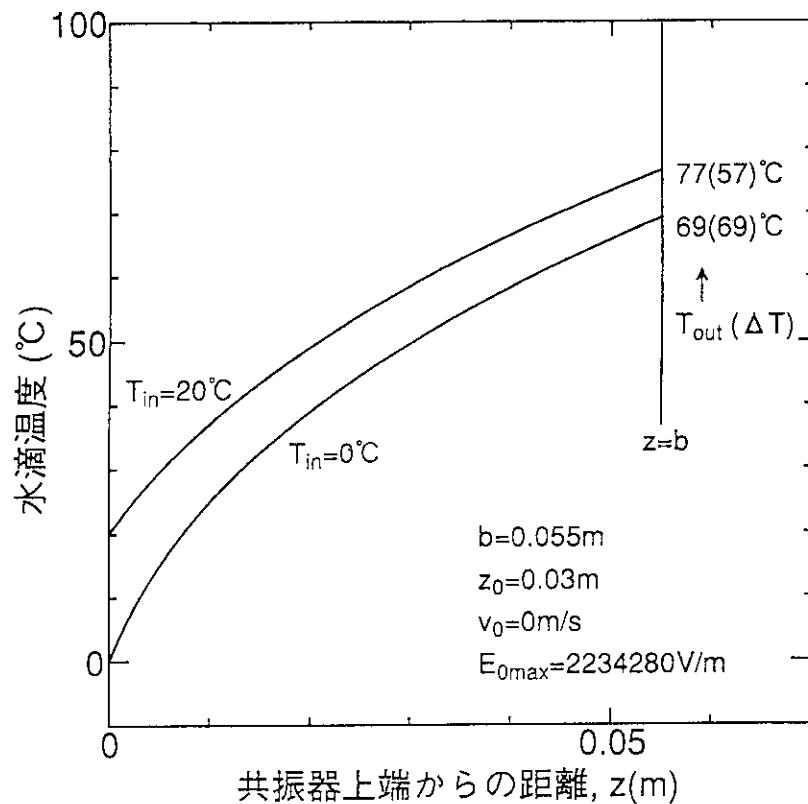


Fig. 16 鉛直方向電界型配置の共振器内水滴温度
(電界強度 : $z_0 = 0.03\text{m}$ の場合に概算で80K昇温させる値)

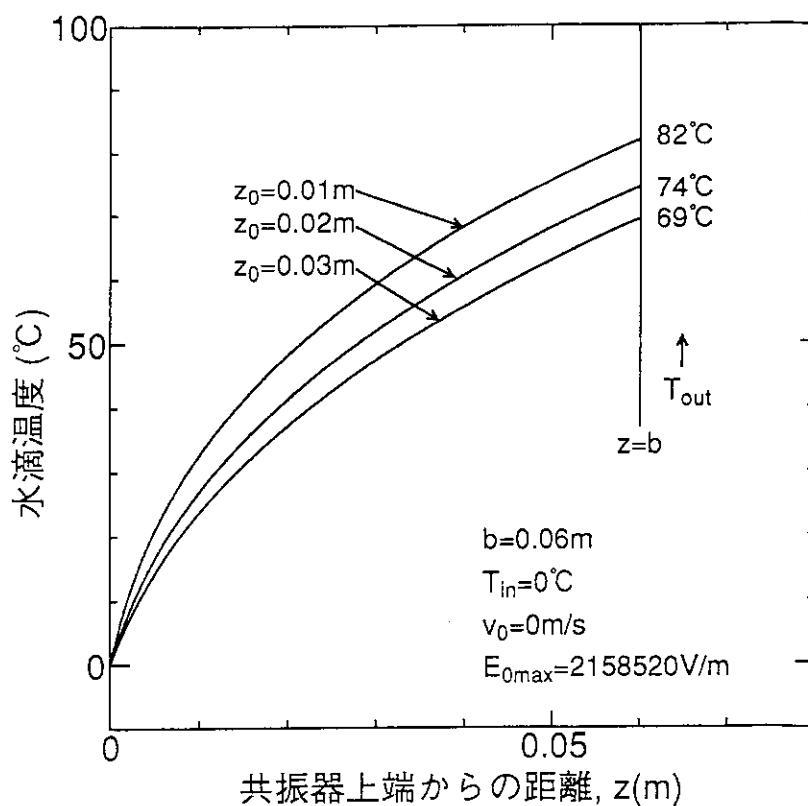


Fig. 17 $b = 60\text{mm}$ の鉛直方向電界型配置における滴下位置の影響
(電界強度 : $z_0 = 0.03\text{m}$ の場合に概算で80K昇温させる値)

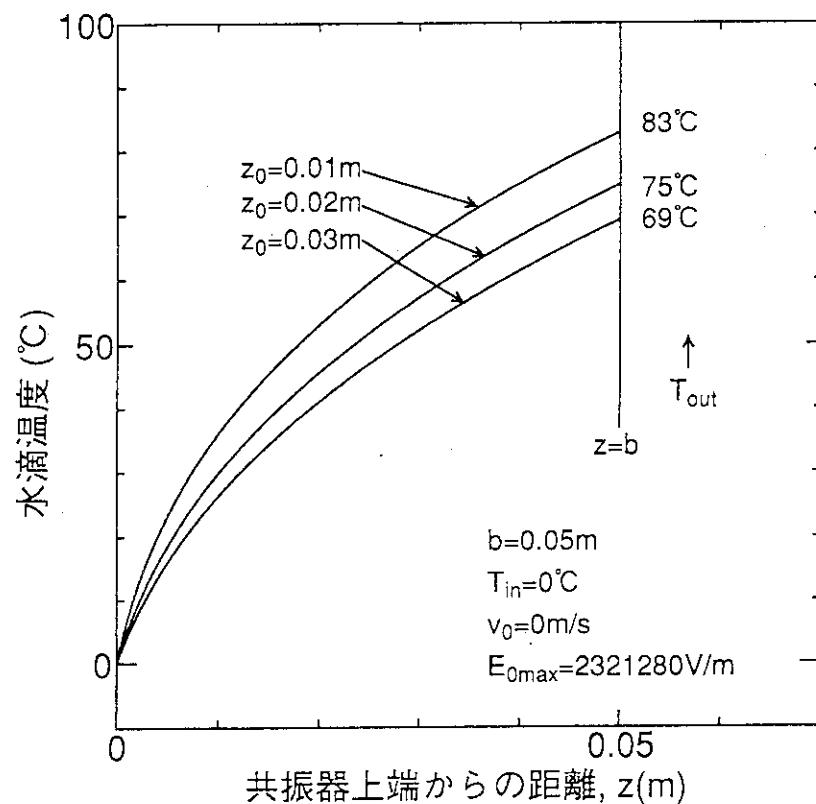


Fig. 18 $b=50\text{mm}$ の鉛直方向電界型配置における滴下位置の影響
(電界強度: $z_0=0.03\text{m}$ の場合に概算で80K昇温させる値)