

JAERI-Tech

96-026



高速誘電加熱ゲル化装置用に試作した
鉛直方向電界型空洞共振器の性能試験

1996年6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。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒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公済会資料センター（〒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 Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1996

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 株高野高速印刷

高速誘電加熱ゲル化装置用に試作した
鉛直方向電界型空洞共振器の性能試験

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

(1996年5月15日受理)

鉛直方向電界型空洞共振器を試作し、既報の「高速誘電加熱ゲル化装置」に取り付けた。この高速ゲル化装置を用いて、模擬液および内部ゲル化用のウラン含有溶液の液滴を加熱した。結果は、ウラン含有溶液をゲル化させるに必要な加熱が可能であることを示した。しかし、そのゲル化時に空洞共振器内に生ずる電界の強度は、加熱液滴から放出されるアンモニアガスのために放電を起こす電界強度と同程度であった。そのため、安定した状態でゲル粒子を得ることはできなかった。考察した結果、空洞共振器形状の改良、安定化電源導入を伴う電源改良等により安定したゲル化が可能になることが示唆された。

Performance Test of a Vertically-directed Electric-field Cavity Resonator
Made for the 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 May 15, 1996)

A cavity resonator with vertically-directed electric field was produced and attached to "the rapid gelation apparatus with microwave heating" previously reported. Using the rapid gelation apparatus, drops of a simulated solution and of U-containing solutions for internal gelation were heated. The results indicated that the heating required for gelation of the U-containing solutions was possible. However, the electric field strength in the cavity resonator at that time was comparable to that causing the discharge due to the gaseous ammonia released from the heated drops. As a result, gel microspheres were not obtained in a stable state. The discussion suggests that the stable gelation would be realized by improving the cavity resonator shape and/or by modifying the power supply accompanied with using a power stabilizer.

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

* Denki Kogyo Co., Ltd.

高速誘電加熱ゲル化装置用に試作した
鉛直方向電界型空洞共振器の性能試験

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

(1996年5月15日受理)

鉛直方向電界型空洞共振器を試作し、既報の「高速誘電加熱ゲル化装置」に取り付けた。この高速ゲル化装置を用いて、模擬液および内部ゲル化用のウラン含有溶液の液滴を加熱した。結果は、ウラン含有溶液をゲル化させるに必要な加熱が可能であることを示した。しかし、そのゲル化時に空洞共振器内に生ずる電界の強度は、加熱液滴から放出されるアンモニアガスのために放電を起こす電界強度と同程度であった。そのため、安定した状態でゲル粒子を得ることはできなかった。考察した結果、空洞共振器形状の改良、安定化電源導入を伴う電源改良等により安定したゲル化が可能になることが示唆された。

目 次

1. はじめに	1
2. 試作した共振器	2
2.1 試作の動機	2
2.2 鉛直方向電界型共振器の難点	2
2.3 試作共振器を配置した「高速誘電加熱ゲル化装置」の構成	3
2.4 共振器の形状	3
2.5 共振器に投入できる最大実効電力	3
3. 滴下液の共振器出口温度の評価方法	5
3.1 温度制御液滴下装置および捕集液滴温度測定装置	5
3.2 滴下液温－捕集液温関係	5
4. 模擬液滴の加熱試験	6
4.1 加熱液滴温度の供給速度依存性	7
4.2 加熱液滴温度のノズル位置依存性	7
5. ウラン含有原液滴のゲル化試験	8
5.1 ゲル化原液の調製・供給方法	8
5.2 ゲル粒子回収方法	9
5.3 ゲル化試験結果	9
6. 考 察	11
6.1 共振器側の改良	11
6.2 電源側の改良	12
7. おわりに	13
謝 辞	13
参考文献	13

Contents

1. Introduction	1
2. Cavity Resonator Produced	2
2.1 Motive for Production	2
2.2 Negative Aspects of Cavity Resonators with Vertically-directed Electric Field	2
2.3 Composition of a Rapid Gelation Apparatus with Microwave Heating by Using the Cavity Resonator	3
2.4 Shape of Cavity Resonator	3
2.5 Maximum Effective Electric Power Injected into Cavity Resonator	3
3. Method for Evaluating Temperature of Falling Drops at Cavity Outlet	5
3.1 Apparatus for Forming Drops of a Solution with Controlled Temperature and for Measuring Temperature of the Drops	5
3.2 Relation between Temperatures of Dropping Solution and of Recovered Solution	5
4. Heating Test of Simulated Solution Drops	6
4.1 Dependence of Heated Drop Temperature on Feed Rate	7
4.2 Dependence of Heated Drop Temperature on nozzle position	7
5. Gelation Test of U-containing Source Solution Drops	8
5.1 Method for Preparation and Feed of Source Solution to be Gelled	8
5.2 Method for Recovering Gel Particles	9
5.3 Results of Gelation Test	9
6. Discussion	11
6.1 Improvement of Cavity Resonator	11
6.2 Improvement of Power Source	12
7. Summary	13
Acknowledgments	13
References	13

1. はじめに

筆者らは、1994年に「高速誘電加熱ゲル化装置」⁽¹⁾を開発した。これは、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の一つである内部ゲル化法において、ゲル化原液の液滴のゲル化に必要な加熱を行うための加熱装置である。従来の内部ゲル化法⁽²⁾では、ウラン等の燃料元素を含むゲル化原液の中にあらかじめヘキサメチレンテトラミン(HMTA)を混合しておき、その小滴を空气中で形成・滴下し、加熱シリコンオイル中を落下している間に加熱し、液滴内でHMTAをアンモニアに分解してゲル化させている。上記の「高速誘電加熱ゲル化装置」は、加熱シリコンオイル滴下法の代りに、空气中で形成したゲル化原液滴を、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するLedergerberの方法⁽³⁾を参考に製作したものである。

上記「高速誘電加熱ゲル化装置」とLedergerberの装置との相違点の一つは、使用するマイクロ波の周波数である。彼は、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桁高い通信用周波数帯(Xバンド)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と報告している。それに対して、筆者らの「高速誘電加熱ゲル化装置」では、市販の誘電加熱用電源(工業用2.45GHz適用)を使用している。もう一つの相違点は、装置のチューニング方法である。共振器の共振周波数は、共振器内の液滴の存在の有無、共振器温度の変化等により異なる。そのため、液滴を有效地に加熱するためには、電源周波数と共振器の共振周波数とを一致させるチューニングを必要とする。Ledergerberの装置では、周波数可変の電源を用いて電源周波数を共振周波数に合せるようしている。それに対して、筆者らの装置では、電源周波数は固定であるので、共振器内に石英棒をスムースに挿入する機構を設けて、共振周波数の方を電源周波数に合せる方法を採用している。共振器の共振モードは両者ともTE_{10(x)}モードで、電界の向きが水平になるように(水平方向電界型)配置しているが、Ledergerberの装置ではX=11~21であるのに対して、筆者らはX=1のものを採用している。

前報⁽¹⁾では、主に「高速誘電加熱ゲル化装置」の加熱部について詳述したが、以後の検討課題として、①共振器内での液滴落下距離の短縮が期待できる鉛直方向電界型のTE₁₀₁モードの共振器の試作検討、②原液供給・滴下部の改良の必要性を指摘した。②については、別に報告⁽⁴⁾⁽⁵⁾したように、冷却を必要としない原液調製・供給・滴下方法の開発をした他、現在も炭素微粉を懸濁させた原液の滴下部への安定供給に向けた改良を進めている。

本報では、①の鉛直方向電界型のTE₁₀₁モードの共振器の試作をし、加熱特性を調べた。その結果、室温の原液滴を必要な温度まで加熱できる性能があることが分った。しかし、前報で予想したように加熱に必要な電界強度が若干高いためか、放電限界電界強度を低下させるガス(アンモニア)を発生させる実際のゲル化原液を安定して(放電なく)ゲル化させる状態には到達できなかった。この結果を基に検討した結果、安定化電源導入を伴う電源改良、共振器形状の改良等を行うことによって、鉛直方向電界型共振器による実際のウラン含有原液のゲル化が可能になると推察できたので、報告する。

2. 試作した共振器

2. 1 試作の動機

先に開発した「高速誘電加熱ゲル化装置」の加熱部である空洞共振器は、 TE_{101} モードのものを水平方向電界型に配置したもので、内寸法は幅62mm、奥行27mm、高さ 221mmである。この高さに、原液滴下用ノズル先端と共振器上端との必要間隔 ($\sim 30\text{mm}$)、及び、共振器下端とゲル粒子回収液面との必要間隔 ($\sim 45\text{mm}$) を合せると、液滴落下距離は 300mm前後になる。共振器内でゲル化した直後の粒子は豆腐のように柔らかいものであるから、この距離が短いほど、ゲル粒子が回収液面に突入する際の衝撃は少なくなるので望ましい。

また、加熱に係わる液滴落下経路である共振器中央線上の電界強度分布は、水平方向電界型の TE_{101} モードであるので、共振器上・下端がゼロで中央が最大となる半サイクルの正弦波状のものである。加熱は電界強度の2乗と時間の積に依存するので、液滴速度が小さく滞在時間の長い共振器上部では電界強度が小さく有効に加熱されにくい難点がある。

この水平方向電界型共振器をFig. 1 のように90度傾けたものの中央を液滴が通過するよう（鉛直方向電界型）にすれば、共振器内の液滴通過線上では常に電界強度が最大で有効に加熱できる可能性がある。また、このタイプでは、共振器の高さを低くすることが可能なので、ゲル粒子の回収液面突入時の衝撃も緩和されるという期待も大きかった。

2. 2 鉛直方向電界型共振器の難点

一方、鉛直方向電界型共振器の難点として、製作以前から、①必要最大電界強度が大きいこと、②沿面放電の起こる可能性、の二つが考えられた。

①については、目的の加熱に必要な電界強度を、前報⁽¹⁾において製作した水平方向電界型共振器と本報で試作する鉛直方向電界型共振器との間で比較をしたところ、必要最大電界強度は鉛直方向電界型の方が数割大きい結果となった。この短所については、原液の調製・供給方法の改良⁽⁴⁾により室温での原液滴下を可能とし、必要な温度上昇を（約80°Cから約60°Cへと）数割低く抑えられるようになったので、目的の加熱には前報で製作したものと同程度の電界強度で済むと期待された。

②の沿面放電とは、原液滴を通過させる共振器中央に汚染防止のために配置する石英管の表面に沿って起こる（可能性のある）放電のことである。この空洞共振器の上・下面中央の間の電位差は最大であり、そこを石英間が貫通する形で配置されることに起因するものである。しかし、共振器内部を汚染する可能性の高いゲル化原液がアンモニアを発生し、共振器構成材の銀メッキ銅を腐食するので、石英管の使用は不可欠と考えられた。そのため、後述のような特殊形状の石英管の配置も可能とする共振器の設計で対処することにした。

2. 3 試作共振器を配置した「高速誘電加熱ゲル化装置」の構成

高速誘電加熱ゲル化装置の全体構成をFig. 2に示す。加熱・制御部は、マグネットロン発振器(1)、サーキュレータ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)、サーキュレータB(6)、方向性結合器B(7)、鉛直方向電界型空洞共振器(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)、共振状態粗調整用石英棒(12a)、共振状態微調整用石英棒(12b)、微調整用石英棒駆動機構(13)、石英管(14)で構成される。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。

このうち、(1)～(7)の全部と(9)の大部分は前報の場合と共通である。今回試作した部分は、空洞共振器(8)、共振状態粗調整用石英棒(12a)、共振状態微調整用石英棒(12b)、微調整用石英棒駆動機構(13)、石英管(14)であり、導波管(9)の一部を新共振器に適合するように構成しなおした。

2. 4 共振器の形状

試作した空洞共振器の略図をFig. 3に示す。共振器の形は、高さ(b) 54.6mm、幅(L) 109.2mm、奥行(a) 70mmの方形空洞を基本とした。bおよびLは、導波管の内寸法と同じ値である。奥行(a)は、必要に応じて、厚さ1、および2mmのスペーサを用いて70～73mmに変えられるようにした。共振器の整合をとるため、共振器と導波管の間に、導波管断面中央に導波管と同じ高さ(54.6mm)で幅11mmの長方形の窓を持つ厚さ2mmの板をアイリスとして設けた。石英管は、図のような外径10mm、内径8mmの直管状のものと、沿面放電抑止性能を向上させるために内側から碍子状に膨らませたもの(最大外径: 23mm、最小外径: 10mm、突起部: 4箇所、肉厚: 1mm)の2種類用意した。共振器中央の鉛直方向に石英管を通すために、内径11mmの挿入孔を上・下面に設けた。碍子状石英管設置の場合のために、上面の孔は図に示すように2重構造とした。すなわち、上面に内径25mmの孔を設け、その上に内径11mmの孔を有する上蓋をする構造とした。Fig. 3には、直管状石英管を使用する場合(a=72mm)の状態を示している。石英管の中心線上への固定は、上蓋および下面の外側に設けた固定具によりOリングを介して行うようにした。共振状態への調整は、高さ方向中央部において2本の石英棒を挿入することに依った。粗(微)調整のためには、直径8(6)mmの棒を水平方向中心線より25(15)mm離れた位置への挿入に依った。粗調整棒は手動で、微調整棒はマイクロメータ式駆動機構で操作した。

2. 5 共振器に投入できる最大実効電力

共振器の加熱性能を高めるには、①共振器へ投入する実効入射電力 P_{I} [(電源からの入射電力 P_1) - (スタブチューナからの反射電力 P_R)] のうち加熱へ利用する率を高くすること、②共振器内部の電界強度を大きくすること、が必要がある。

①のためには、マイクロ波のスペクトル幅をできるだけ狭くし共振器から反射される割合を低

くするのが望ましい。しかし、現実には、系の共振周波数が液滴の有無により約0.3MHzシフトする他、電源周波数の方も電源の不安定さのために常時若干の変動をしている。今回は安定化電源を用いることなく、共振状態の変動に対しても安定した加熱性能を持たせるために、前報⁽¹⁾のマイクロ波（スペクトル幅：～1MHz）をそのまま用いた。

②のためには、できるだけ共振器に投入できる実効入射電力 P_i を大きくすることが必要である。しかし、電界強度がある値（最大許容値）を超えると放電が生ずる。その許容値は雰囲気に依存する。そこで、まず、液を滴下せずに、共振器に電力を投入するだけの条件で、特別な配慮をしないで投入できる実効入射電力を調べた。その最大値は、冬季より大気中水蒸気圧の高い夏季の方が低く、 $P_i \approx 1.6\text{kW}$ ($P_i = 4.0\text{kW}$, $P_R \approx 2.4\text{kW}$ ；以後の記述では、電力はすべて $P_i = 4.0\text{kW}$ の場合の実効入射電力 P_i に統一している) であった。それ以上を投入すると、石英管外の共振器内空間において、沿面放電でない放電が生じた。

後述のように、この1.6kWでは、室温の模擬液を必要な温度（約80°C）に加熱するには不足だったので、放電なしに安定して投入できる電力の上昇につとめた。許容値を低下させる水蒸気の分圧を下げるために、共振器近くの導波管にガス導入孔を設け、そこから乾燥空気をゆっくり（約0.1l/min）流し共振器と石英管の隙間から排出させるようにした。これにより、夏季でも、安定して、～2.0kWまでは投入できるようになった。それ以上の電力を投入した場合に生ずる放電も沿面放電ではないので、以後の試験は直管状の石英管を使用して行った。

3. 滴下液の共振器出口温度の評価方法

共振器で加熱した液滴の共振器出口における温度の評価は、前報⁽¹⁾と同様の手法で評価した。すなわち、模擬液滴を共振器を通して滴下・加熱し、下部に配置した捕集液滴温度測定装置に捕集し測定した温度を、温度既知の液滴を滴下・捕集し測定して得た滴下液温－捕集液温曲線により校正して求める方法で評価した。

3. 1 温度制御液滴下装置および捕集液滴温度測定装置

温度制御液滴下装置は、Fig. 4 の上部に示すような全長 320mm のジャケット管の外側に恒温水を流し、ジャケット管内側（内径 6 mm）の上半部には測定液としての蒸留水をポンプで供給し外側の恒温水で加熱した後ノズル（ステンレス鋼製、外径 0.7 mm）より滴下できる構造のものである。滴下液温度はノズル直近の測温点 1 の熱電対で常時モニターした。ノズル先端はジャケット管下端の上方 70 mm に位置するように調節した。この場合のジャケット管下端の位置は、図の左側に比較して示すように、試作共振器の上蓋の上方 5 mm にノズル先端を配置する場合の共振器下端の位置に相当する。つまり、この共振器内で加熱した液滴と同じ落下速度の温度既知水滴を、下方の捕集液温度測定装置に供給するようにしてある。

捕集液温度測定装置は、真空ジャケット構造を持つ。液滴は、この真空ジャケット内（内径 8 mm）を 75 mm 落下して測温点 2 の微小プールに到達し、熱電対で測温される。この微小プール（深さ～1 mm）の液は内径 1 mm の細管を通してオーバーフローされプール内の液量は一定に保たれるようにしてある。これにより、滴下開始後、比較的短時間に微小プール内液温が平衡に達する。この捕集液温度測定装置は、温度制御蒸留水滴下装置のジャケットの下端から 50 mm 下方に、排気部を挟んで、配置した。

この排気部は、捕集液温度測定装置を共振器下部（図の左側）に配置して使用する場合に、回収液であるアンモニア水および加熱液滴から発生する水蒸気等のガスが共振器内に上昇して放電発生の原因となるのを防止するために設けたものである。排気により液滴落下方向が変わらないように、水平方向の相対する二方から合わせて約 0.2 l/min の速度で排気するようにした。この排気は、滴下液温－捕集液温曲線を求める場合にも、同様に行った。

3. 2 滴下液温－捕集液温関係

Fig. 4 の装置を用いて、50～95°C に加熱した蒸留水を滴下し、捕集した水の温度を測定した。蒸留水流速は、0.63～3.00 ml/min の 5 段階に変えた。その結果を Fig. 5 に示す。捕集水温は、滴下水温より低く、その差は高温側で大きい。また、流速による差も高温側で大きい。例えば、滴下水温 80°C の場合の捕集水温は 69.5～74.5°C（流速による差： 5.0°C）、滴下水温 70°C では捕集水温 62.5～66°C（流速による差： 3.5°C）である。

4. 模擬液滴の加熱試験

実用のウラン含有ゲル化原液を滴下し共振器内を通して加熱するとゲル化が起こるためその温度を直接測定することは困難である。そこで、前報⁽¹⁾で用いたのと同じ模擬液（組成：硝酸アンモニウムと尿素の各1mol/l混合溶液）を用いて加熱性能を評価することにした。Table 1に示すように、これまでに実際のウラン含有ゲル化原液からゲル粒子を首尾良く調製できた場合の実効入射電力では、この模擬液を～77℃に加熱できることが分る。したがって、模擬液を～77℃に加熱できる条件があれば、実用において必要な加熱性能があるといえる。

Table 1 前報⁽¹⁾の共振器を用いて実用ウラン含有原液から
健全なゲル粒子が得られた実効入射電力での模擬液到達温度

実用ゲル化原液	U濃度(mol/l)	1.0	0.68
	HMTA/Uモル比	1.8	2.2
	温度(℃)	2 ⁽¹⁾	27 ⁽⁴⁾
実効電力(kW)		2.6	2.1
同温度模擬液の	温度上昇(℃)*	75	48
	到達温度(℃)*	77	75

* (1)のFig. 14より評価

4. 1 加熱液滴温度の供給速度依存性

ノズル（ステンレス鋼製、外径 0.7mm）の位置および捕集液温測定装置をFig. 4 のように、蓋上5mmおよび共振器下方50mmに配置して、室温の模擬液を0.63、0.90、1.5、2.0、3.0ml/min の5種の速度で供給し捕集液滴温度を測定した。それを、Fig. 5 の校正曲線で共振器出口温度に換算した液温をFig. 6 に示す。1.4~1.9kWの実効入射電力のいずれの場合でも液滴温度は模擬液供給速度が3ml/min以上ではほぼ平衡に達すると見なせたが、速度が小さくなると高温になる傾向が顕著であった。これは、蓋上5mmのノズル先端で液滴が成長し落下するまでの時間が長いほど高温になることを意味するので、マイクロ波がその部分までリークしていることを示唆している。

室温でのゲル化原液調製・供給方法⁽⁴⁾ では、約3ml/minの速度を必要とするので、その条件では、1.6 kW強の実効入射電力で目的の77°Cへの加熱ができると考えられた。

4. 2 加熱液滴温度のノズル位置依存性

ゲル化原液の供給速度がより低い場合を考慮して、マイクロ波リークの影響がどの程度あるのかを知るために、ノズル位置を2mm上げて（蓋上7mmにして）同様の実験を行った。Fig. 7 がその結果である。マイクロ波リークの影響は激減し、供給速度1ml/min以下でもマイクロ波リークの影響はごく僅かで、1ml/min以上の範囲では全く影響はない。この条件では、1.7kW以上の実効入射電力の投入により、純粹に（ノズルでの液滴成長時の加熱の寄与なく）、共振器内落下の間に室温（27~28°C）の模擬液滴を77°C以上に加熱できるといえる。

5. ウラン含有原液滴のゲル化試験

5. 1 ゲル化原液の調製・供給方法

本試作共振器を取り付ける「高速誘電加熱ゲル化装置」は、初めに述べたように、ウラン含有ゲル化原液から健全なゲル粒子を調製し、それを熱処理して原子炉燃料としてのセラミックス微小球を製造することを目的として開発を進めてきたものである。このために、本装置のゲル化原液供給・液滴形成部 (Fig. 2 の 15) として、冷却不要の方法⁽⁴⁾ をすでに開発している。それは、酸不足型硝酸ウラニル溶液（被ゲル化液）とヘキサメチレンテトラミン (HMTA) と尿素の混合溶液（ゲル化液と記す）とを別々のポンプで混合部に供給し、その混合液を極細管（内径 0.1mm）を通することで均質に混合してノズルから滴下するものである。また、細管を使用することで、混合後滴下までの経路の内容積を極く小さく（約 0.004ml）し、室温で混合してもゲル化の始まる前にノズルから滴下できるようにしたものである。この方法では、2 液の混合比を一定に保つことが必須条件であるため、液体クロマトグラフィ用の高圧無脈流ポンプを使用している。

上記方法を含めて、少量の試験用ゲル化原液の調製・供給のためにこのようなポンプを使用すると、ポンプ等の送液系への残留率が高く不便である。また、使用後のポンプの洗浄等の維持管理が必要である。これらの不便、不経済を取り除くために、当該液体をポンプ内に入れることなく、少量のゲル化原液を上記の室温混合方式で調製・供給する方法⁽⁵⁾ を開発した。Fig. 8 は、その方法を模式的に示したものである。図中 7 は、高圧用 6 方バルブで、被ゲル化液用およびゲル化液用に 2 台ある。各々は、6 個のチューブ接続部 (1 ~ 6) を持ち、バルブ内流路 a、b、c は、図のように、それぞれ 6 - 1、2 - 3、4 - 5 を結ぶ状態 A か、1 - 2、3 - 4、5 - 6 の間を結ぶ状態 B に切換えられる構造のものである。まず、2 液供給・混合・滴下の準備として、両バルブを状態 A にし 12 の被ゲル化液（または、ゲル化液）タンクからそれぞれの負荷チューブ内に、注射器 13 を用いて 12 → 4 → c → 5 → 8 → 2 → b → 3 → 13 のように吸引して各液を負荷する。一方、被ゲル化液系およびゲル化液系の 2 台のポンプ 9 で蒸留水を、それぞれの系統において、9 → 1 → a → 6 → 10 → 11 のように送り、ノズルまでを満たす。これで準備完了である。両バルブを状態 B に切換え、ポンプを作動させると、各負荷チューブ内の液は、9 → 1 → a → 2 と供給される水に押されて 2 → 8 → 5 → c → 6 → 10 のように供給され、10 → 11 の間に混合されノズル 11 より滴下される。各液を負荷チューブ内に負荷する時、後押し用の水との間に若干の空気層を残しておくと、液と水との混合を防ぐのに都合が良い。

本ゲル化試験には、この方法を用いてゲル化原液を調製・供給した。被ゲル化液は、NO₃⁻/U モル比 1.55 の酸不足型硝酸ウラニル溶液 (U 濃度 : 1.36~2.5mol/l) を、ゲル化液には HMTA-尿素の等モル混合溶液 (各成分濃度 : 2.75~3mol/l) を用いた。各液の負荷チューブには、内径 2 mm のテフロン管 (長さ: 50~150mm) を用いた。このゲル化原液調製・供給方法により原液として必要な混合液が供給できることは、前報⁽¹⁾ の共振器を用いて加熱・ゲル化した場合に満足のいくゲル粒子が得られている⁽⁶⁾ ことにより確認されている。

5.2 ゲル粒子回収方法

本「高速誘電加熱ゲル化装置」によりゲル化した粒子は、アンモニア水の中に回収する。前述のように、加熱液滴の落下中あるいは回収液への突入に伴い発生する水蒸気、アンモニア等のガスが共振器石英管内に逆流して放電を起こすのを防ぐために、石英管内の気体を常時下方より排気し新鮮な空気を石英管上部より流入させる必要がある。そのために、Fig. 9のような、強制排気付のゲル粒子回収装置を用いた。排気速度は、3、4章の場合と同様に、通常0.21/minとした。回収液には、約50°Cの0.5mol/lアンモニア水を用いた。回収液面と共振器下端との距離は45mmであった。

5.3 ゲル化試験結果

前2節の方法で、各種の組成のゲル化原液について、実効入射電力を変えてゲル化を試みた。いずれの試験も、Fig. 7の場合と同様に、ノズル先端を共振器蓋上7mmに固定して行った。その結果は、Table 2に示すように、十分ゲル化できる実効入射電力を投入した場合には、滴下直後、あるいは、十数sの間に放電が発生し、安定してゲル化できる条件を見出すことができなかった。この放電は、石英管内で鉛直方向に起こるものであり、模擬液滴下の場合には放電を起こさない実効入射電力の投入で発生しているので、水蒸気よりもゲル化原液から発生するアンモニアが放電限界電界強度を下げているものと推定される。すなわち、本試作共振器を用いて、試験と同じノズル位置で、実用ゲル化原液から健全ゲル粒子を得るために必要な電界強度は、ゲル化原液から発生するアンモニアの存在下での放電限界電界強度と同程度であると考えられる。

Table 2 ゲル化試験結果

被ゲル化液		ゲル化液		原液組成		実効入射電力(kW)	結果	
U濃度(mol/l)	速度(ml/min)	濃度(mol/l)	速度(ml/min)	U濃度(mol/l)	HMTA/U		滴下後放電までの時間	ゲル粒子状態
1.36	1.5	3.0	1.5	0.68	2.2	1.6	直後	—
"	"	"	"	"	"	1.5	数s	良好
"	"	"	"	"	"	1.4	十数s	良好
2.5	1.2	2.75	1.8	1.0	1.65	1.7	直後	—
"	"	"	"	"	"	1.6	数s	良好
"	"	"	"	"	"	1.5	—	不完全

この放電限界より低い電界強度で健全なゲル化を実現する唯一の方法は、ノズル位置を下げて、液滴の共振器内滞在時間を短縮することである。しかし、これは、二つの点で困難であつた。一つは、前述のマイクロ波リークによる滴下前の加熱効果が加わるため、ノズル閉塞の危険があることである。もう一つは、実際の共振器の上部の構造が、Fig. 3の略図のように単純ではなく、蓋部分以外は、共振器冷却用の構造物が蓋上面よりさらに5mm上にせり出したものになっているため、操作上ノズル先端位置を下げるのが困難であることである。したがって、本試作共振器で実用ゲル化原液から健全ゲル粒子を調製することは困難であると結論せざるを得なかつた。

6. 考 察

本試作共振器では、目的のウラン含有溶液のゲル化は達成されなかつたが、鉛直方向電界型共振器の実用可能性についてある見通しを得ることができた。以下について改良すれば、実用性能は得られると考えられる。

6. 1 共振器側の改良

本試作共振器の設計において結果的にマイナスに作用した点として、次の3点が挙げられる。

- ①沿面放電対策として、蓋を有する複雑な構造としたこと。
- ②共振器冷却を配慮するあまり、冷却水路を共振器上面にも設けたこと。
- ③開発費の制約から、共振器の高さ b を、2.45GHzマイクロ波用の市販導波管の短径と同じにしたこと。

①②は、ノズル位置を上げる必要を生み、液滴の共振器内滞在時間を短くした。③は、共振器内通過距離を制約し、液滴の共振器内滞在時間を制限した。これらが、ゲル化に必要な電界強度を放電限界近くまで高くした。

①に関しては、前述のように、液滴を滴下しない条件で、より高い実効入射電力(2kW以上)の投入により発生する放電も、沿面放電ではなかったので、過剰対策であったといえる。

②に関しては、放電を誘発する共振器内部への結露を防止する観点から、共振器温度は室温より高い一定温度に維持するのが望ましく、冷却温度はそれほど低い必要はない。本共振器においては、Fig. 3 の略図面の前側は、フランジにより銀メッキ銅製の平板（その内部に冷却回路を有する）と固定されており、後側は、同材料のアイリスと冷却回路内蔵ブロック(10mm厚)を挟んで、導波管のフランジと固定されている。さらに、図の左右面の全面は冷却水に接している。それに加えて、上・下面の中央部以外の部分も冷却水に接するようにしてある。しかし、冷却水に直接接していない蓋部分でも、使用中の温度は他と大差ないほどに冷えていた。したがって、上面の冷却部は不要と考えられる。

本試作共振器の上部の蓋部分を削除して空洞部上面を平坦にし、かつ、冷却部をなくせば、ノズル位置は5mm下げられる。また、蓋部分で方形空洞の形がくずれている影響はよく分らないが、この部分をなくすことにより、上方へのマイクロ波リークを現状より低く抑えられる可能性はある。その場合、ノズル先端の位置をさらに下げ滞在時間を長くすることが可能となる。

③に関しては、現状の54.6mmより高くして液滴の共振器内滞在時間を長くすることができるのと、ゲル化に必要な電界強度を小さくし、放電を抑制できると考えられる。

以上を盛り込んで、ノズル先端を共振器空洞上部の上方10mmに置くことが可能で、高さ $b=70\text{mm}$ の共振器を新たに製作したとすると、液滴の共振器内滞在時間は0.083sとなる。これは、5章の試験の場合(0.062s)の134%である。この場合、ゲル化に必要な電界強度は86%となり、14%下げができる。共振器の外枠の構成材の厚さを本試作品の5mmより薄くできれば、さらに電界強度を下げることができる。

6. 2 電源側の改良

現在、電源としては、商用のものを安定化させることなく使用している。そのため、共振器へ入射す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0.1~0.25MHz/sの走査速度で常時モニタしていると、走査の度に最小周波数 f_{\min} と最大周波数 f_{\max} が変る。また、長期的にも、平均的周波数が変動する。先に、本試験でのスペクトル幅 ($\Delta f = f_{\max} - f_{\min}$) は約1MHzであると記したが、入射・反射電力の設定と同じにしても、電源安定度に依存してスペクトル幅が大きく変動する。例えば、実効入射電力1.6~1.7kWの場合のスペクトル幅 Δf は、各走査において0.97~1.26MHzの範囲で変動した。(ここで、本試験時の実際のスペクトル幅を1.1MHzと解釈する)。

一方、ウラン含有原液の加熱試験では、系の共振周波数は液滴のない場合 (f_0) に比べて液滴のある場合 (f_1) は0.3MHz小さい。また、 f_1 をなるべく大きくするように液滴滴下前に f_0 をなるべく f_{\max} に近く調節しようとするが、 f_{\max} の変動のため、近づけられる限度は0.25MHzであった。(その理由は、 f_0 を f_{\max} 近づけすぎると、 f_{\max} が小さい方へ変動した場合に系が吸収するエネルギーが減少するため共振器構成材の温度が低下し、サイズ変化のために共振周波数が変化してしまうことである。)

以上をまとめると、本性能試験時には、 $f_{\max} - f_0$ 、 $f_0 - f_1$ 、 $f_1 - f_{\min}$ の間隔が、それぞれ0.25、0.3、0.55MHzとなる条件であったといえる。

安定化電源を用いると、スペクトルの位置が安定するのでスペクトル幅自身を(マグネットロンのアノード回路のチョークコイルのインダクタンスの加減等により)小さくすることができる。また、 f_{\max} の変動を抑えられるので、 $f_{\max} - f_0 = 0.15\text{MHz}$ に調節することも可能となる。例えば、スペクトル幅を0.8MHzまで縮小した場合、 $f_{\max} - f_0$ 、 $f_0 - f_1$ 、 $f_1 - f_{\min}$ の間隔を、それぞれ0.15、0.3、0.35MHzのように調節することが可能となる。スペクトル幅の1.1MHzから0.8MHzへの縮小は、共振器への実効入射電力のうち液滴を含む共振器系の加熱に利用されるマイクロ波エネルギーの増大をもたらす。その増大率は、スペクトル幅縮小率に概略反比例すると見做せる。一方、必要電界強度の2乗がマイクロ波加熱エネルギーに比例するので、スペクトル幅の縮小は、必要電界強度の2乗をその縮小率に比例して低下させることができる。すなわち、必要電界強度を本試験の場合に比べて27%下げることができる。

7. おわりに

本試作共振器は、室温の実用ゲル化原液をゲル化に至らしめる温度以上まで加熱できる性能があることを確認した。しかし、ゲル化温度に達した液滴から発生するアンモニアと思われるガスの存在下での放電限界電界強度とゲル化に要する電界強度が同じ程度であったため、健全なゲル粒子を得る条件を見出せない結果となった。しかし、6章に記した改良を行えば、鉛直方向電界型共振器の実用可能性があることを確認できた。

謝 辞

本試作共振器の製作・試験に携わられた電気興業株式会社の諸氏に深く感謝いたします。また、ゲル化原液調製・供給装置の部品等について相談にのって下さった日本精密科学株式会社の綾部義信氏に感謝します。

参考文献

- (1) 山岸 滋、長谷川篤司、小川 徹：JAERI-Tech 94-010(1994)
- (2) 例え、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、および、G.Ledergerber: IAEA-TECDOC-352 (1985) p.165-174
- (4) 山岸 滋：日本原子力学会1995年春の年会要旨集(1995)、L48；日特願平7-356(1995)
- (5) 山岸 滋：未発表（投稿準備中）；日特願平7-194873(1995)

7. おわりに

本試作共振器は、室温の実用ゲル化原液をゲル化に至らしめる温度以上まで加熱できる性能があることを確認した。しかし、ゲル化温度に達した液滴から発生するアンモニアと思われるガスの存在下での放電限界電界強度とゲル化に要する電界強度が同じ程度であったため、健全なゲル粒子を得る条件を見出せない結果となった。しかし、6章に記した改良を行えば、鉛直方向電界型共振器の実用可能性があることを確認できた。

謝 辞

本試作共振器の製作・試験に携わられた電気興業株式会社の諸氏に深く感謝いたします。また、ゲル化原液調製・供給装置の部品等について相談にのって下さった日本精密科学株式会社の綾部義信氏に感謝します。

参考文献

- (1) 山岸 滋、長谷川篤司、小川 徹：JAERI-Tech 94-010(1994)
- (2) 例え、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、および、
G. Ledergerber: IAEA-TECDOC-352 (1985) p. 165-174
- (4) 山岸 滋：日本原子力学会1995年春の年会要旨集(1995)、L48；日特願平7-356(1995)
- (5) 山岸 滋：未発表（投稿準備中）；日特願平7-194873(1995)

7. おわりに

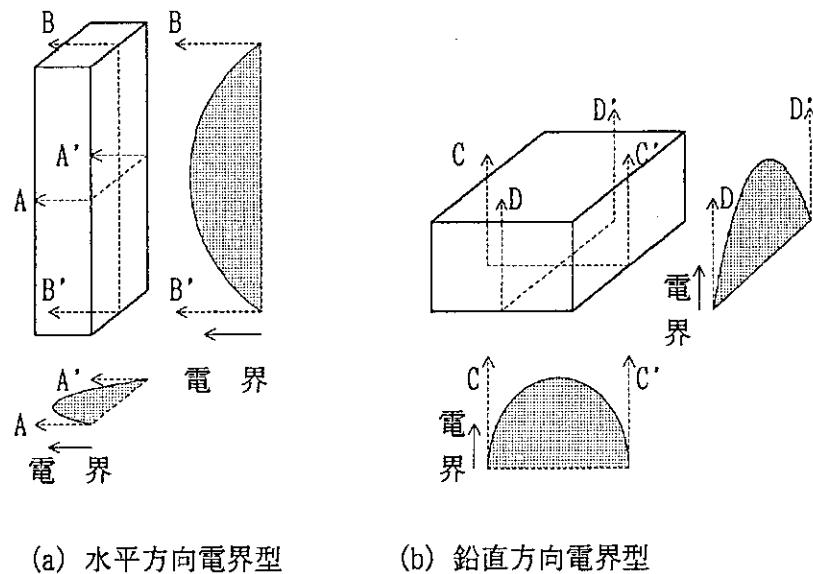
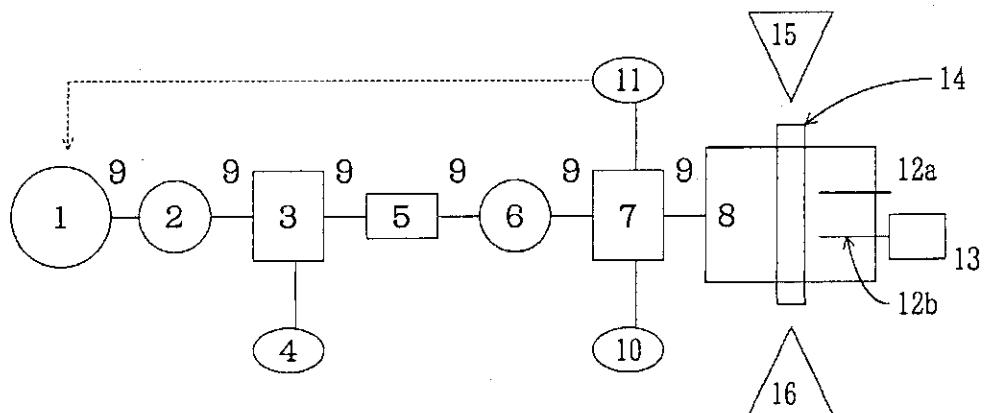
本試作共振器は、室温の実用ゲル化原液をゲル化に至らしめる温度以上まで加熱できる性能があることを確認した。しかし、ゲル化温度に達した液滴から発生するアンモニアと思われるガスの存在下での放電限界電界強度とゲル化に要する電界強度が同じ程度であったため、健全なゲル粒子を得る条件を見出せない結果となった。しかし、6章に記した改良を行えば、鉛直方向電界型共振器の実用可能性があることを確認できた。

謝 辞

本試作共振器の製作・試験に携わられた電気興業株式会社の諸氏に深く感謝いたします。また、ゲル化原液調製・供給装置の部品等について相談にのって下さった日本精密科学株式会社の綾部義信氏に感謝します。

参考文献

- (1) 山岸 滋、長谷川篤司、小川 徹：JAERI-Tech 94-010(1994)
- (2) 例え、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、および、G.Ledergerber: IAEA-TECDOC-352 (1985) p.165-174
- (4) 山岸 滋：日本原子力学会1995年春の年会要旨集(1995)、L48；日特願平7-356(1995)
- (5) 山岸 滋：未発表（投稿準備中）；日特願平7-194873(1995)

Fig. 1 TE₁₀₁モード共振器の電界の方向と強度分布の比較

- | | | |
|---------------------------------|-------------------|-------------|
| 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（鉛直方向電界型）、 | |
| 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:共振状態調整用石英棒 (a:粗調整用、b:微調整用) 、 | | |
| 13:微調整用石英棒駆動機構、 | | |
| 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

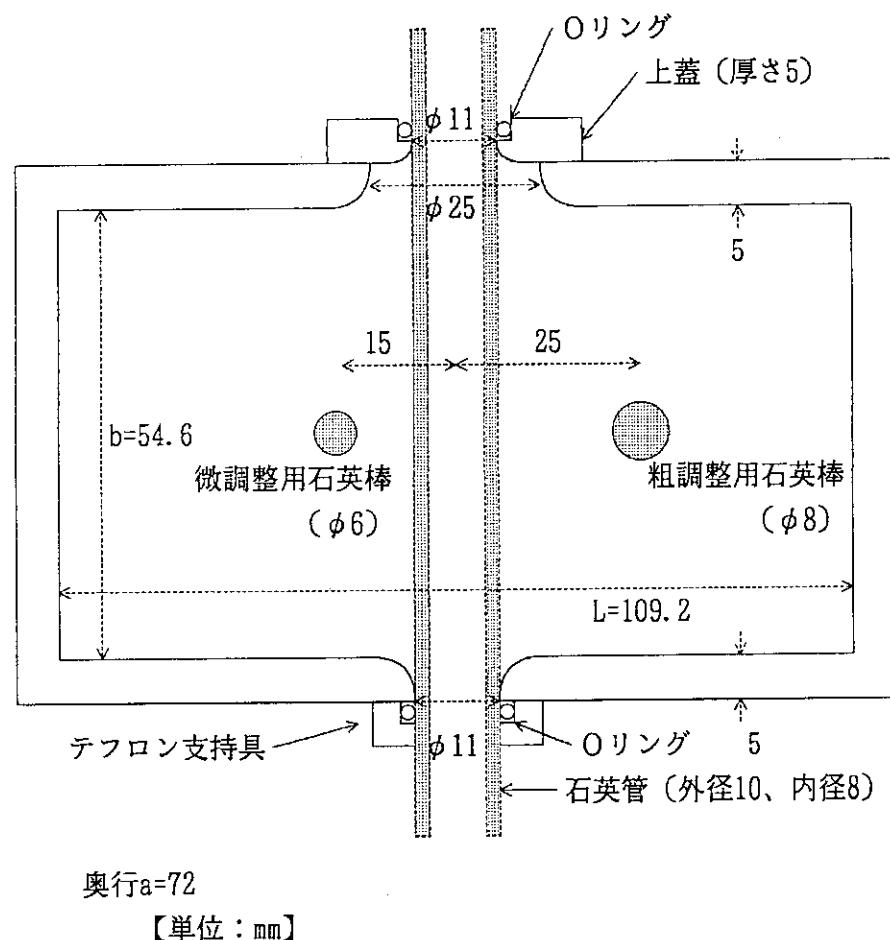


Fig. 3 鉛直方向電界型共振器の略図
 (上蓋は、直管状の石英管の代わりに碍子状に膨らませた石英管をも
 插入・設置できる構造にするため設けた。)

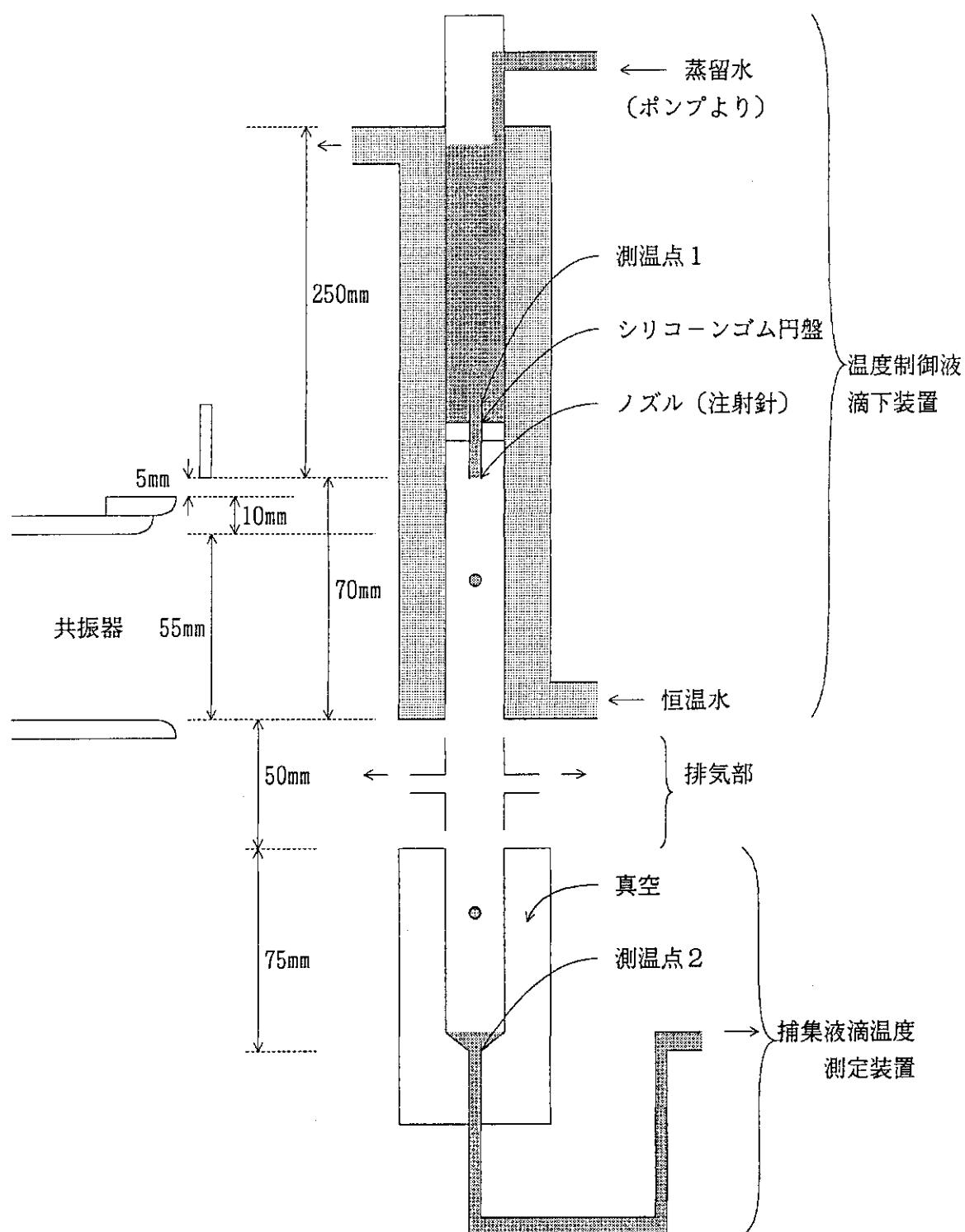


Fig. 4 溫度制御液滴下装置と捕集液滴温度測定装置
[共振器加熱模擬液滴下時の共振器との位置関係を左に比較して示す]

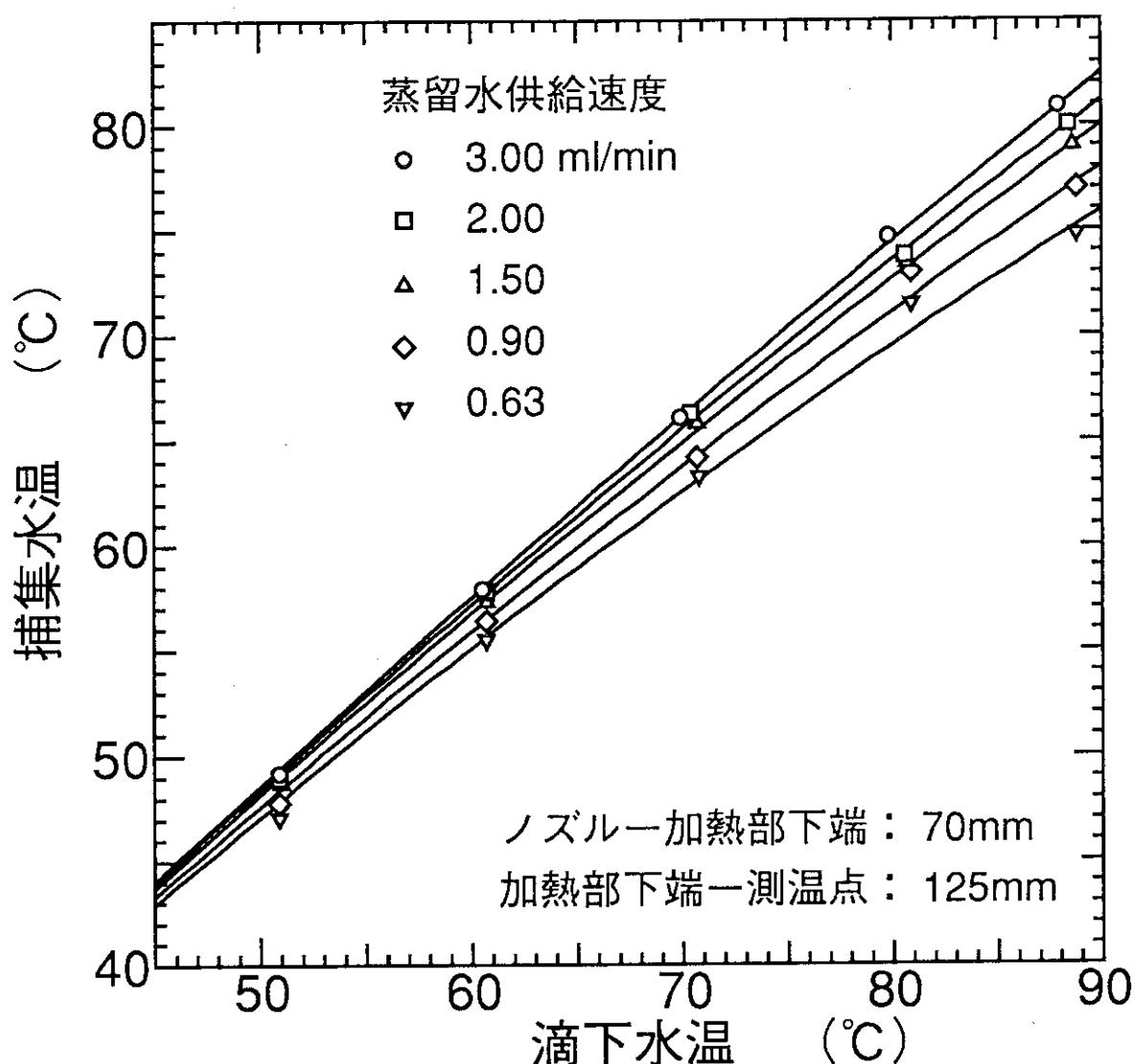


Fig. 5 滴下水温-捕集水温曲線

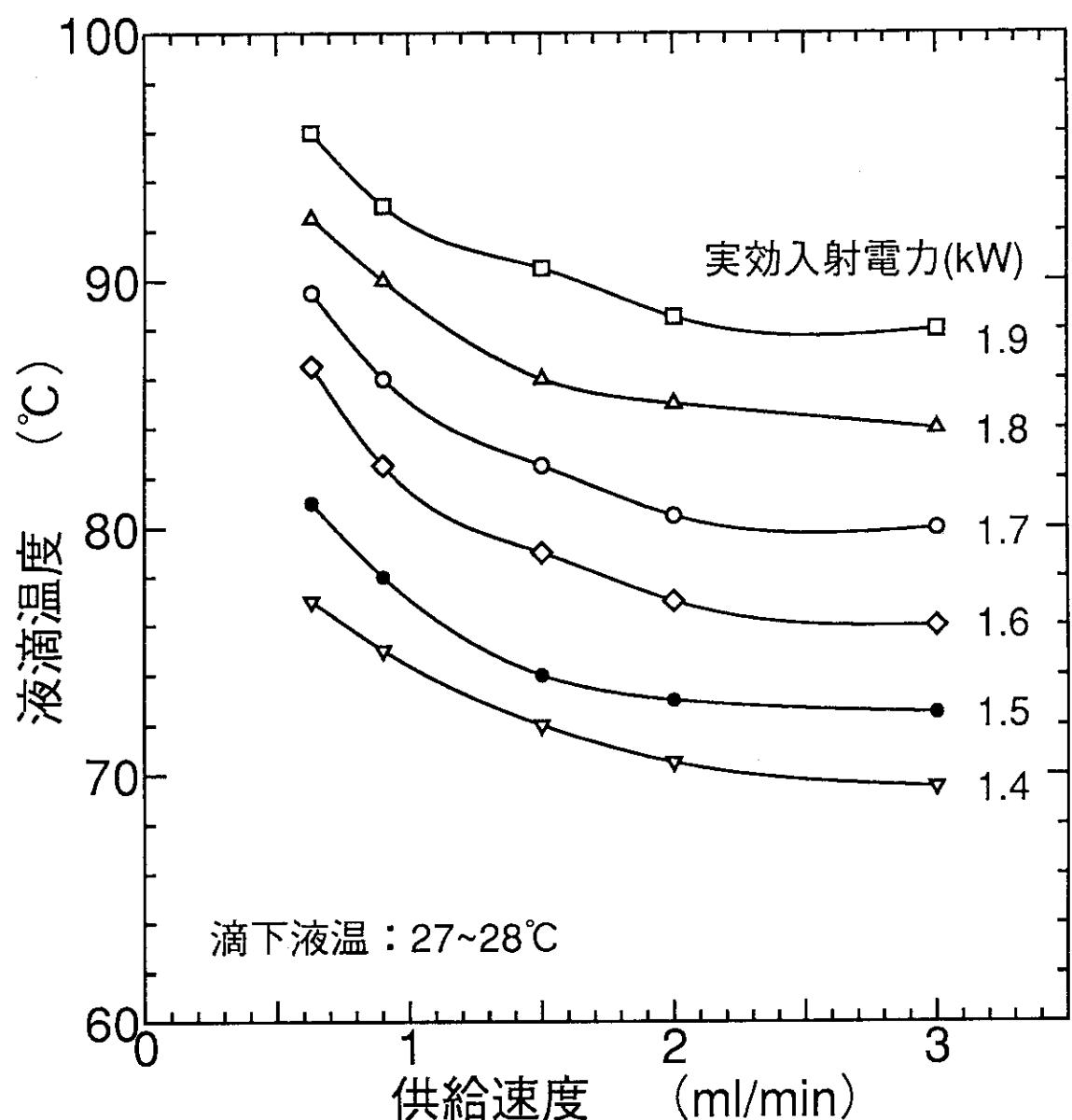


Fig. 6 蓋上 5 mm から滴下した模擬液滴の共振器出口での温度

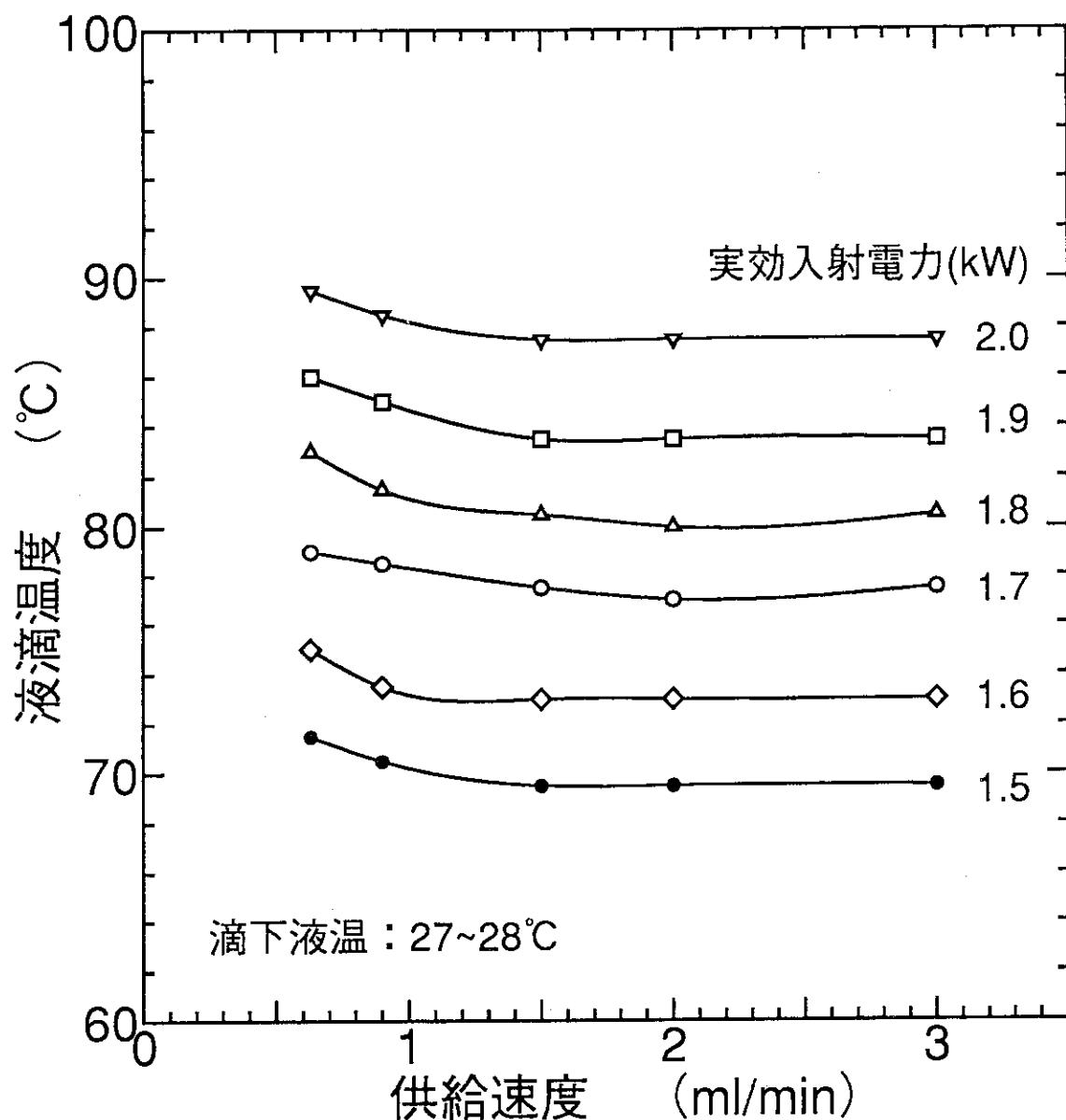
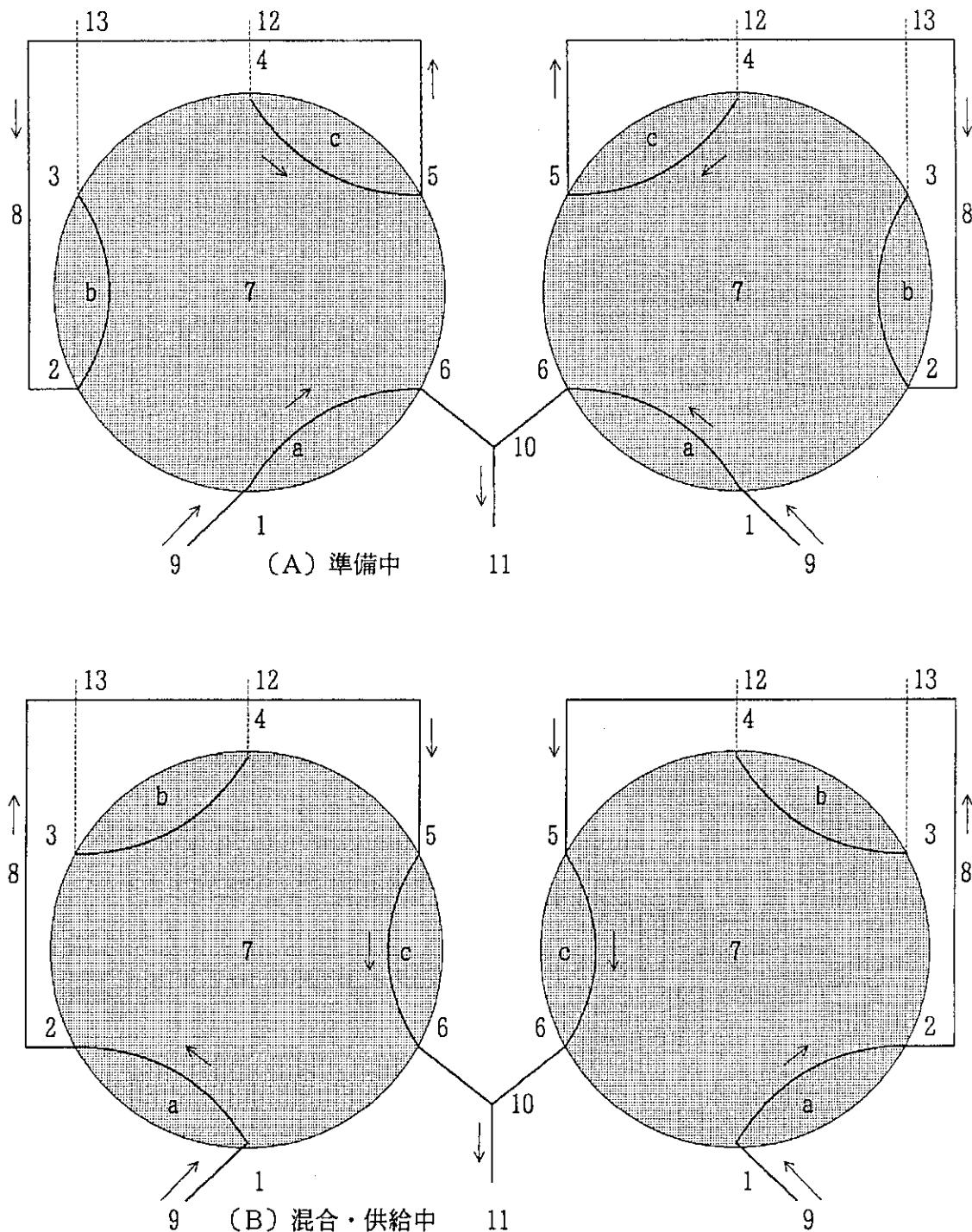


Fig. 7 蓋上 7 mm から滴下した模擬液滴の共振器出口での温度



1~6: チューブ接続部、7: 六方バルブ、8: 被ゲル化液用、または、ゲル化液用負荷チューブ
 9: ポンプ、10: 混合部、11: 液滴滴下用ノズル、
 12: 被ゲル化液用、または、ゲル化液用タンク、13: 注射筒、a~c: バルブ内流路

Fig. 8 ゲル化原液調製・供給装置

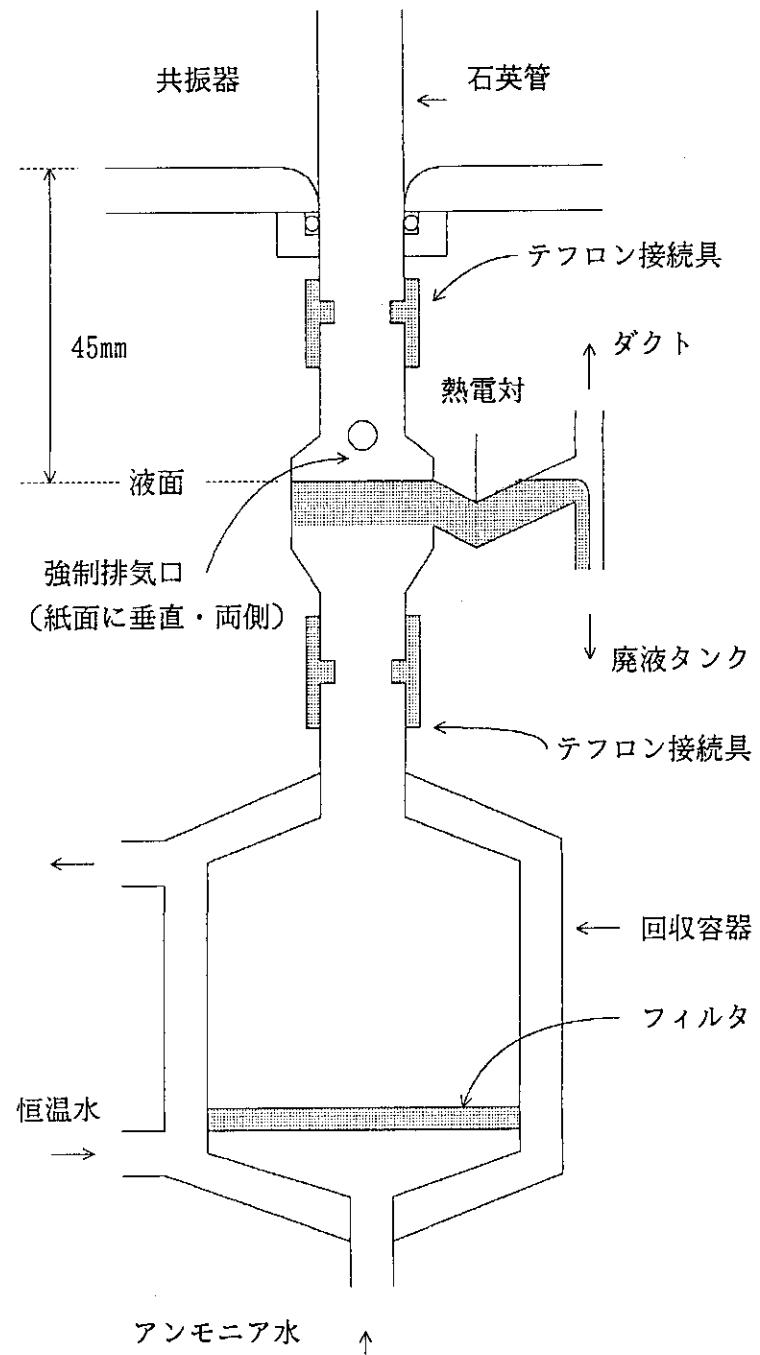


Fig. 9 強制排気口付・流水洗浄型ゲル粒子回収装置