

硝酸溶液から酸化物への転換工程における 共振応答と試料電力の評価

吉永尚生、山村朝雄
京都大学複合原子力科学研究所

概要

試料の形と状態が共振と電力配分へ及ぼす影響を、硝酸溶液から酸化物への三転換経路に沿って検討した。空気から水へ誘電率を段階的に変える連続化係数 α_w を用い、電場分布の類似度で同じ共振モードを追跡した。半径 3 mm の水円柱 0.10–2.00 mL では隣接液量の重なりが 0.946 以上となり、2 mL の Q は 22.1 であった。0.50 mL で校正した形状近似と他の円柱の差は、周波数移動で 14 %、 Q で 26 % 以内となった。水 50 μ L 球の Q は 1.97×10^5 、 $Q_b = 2000$ での電力配分は 1.00 % で、反射ゼロ・1 kW 入射でも放熱ゼロでの 100 mm 自由落下中の昇温は 6.9 K にとどまる。同じ外部場での球の単位体積当たり吸収は、基準 0.50 mL 円柱に対する近似式で約 1/18 となる。低損失酸化物の仮定例 ($\epsilon = 5 - 0.01i$) では、有限要素法 (FEM) 計算で得た配分が 3.19 % に下がった。離調、反射、試料と背景の損失比を分け、必要電力を満たす条件を示す。

キーワード: マイクロ波加熱、共振、脱分極、電力配分、COMSOL Multiphysics

1. はじめに

使用済燃料由来のウラン・プルトニウム等の硝酸溶液を酸化物へ転換する経路として、脱硝法は加熱・分解[4,5]、内部ゲル化法は液滴内のゲル化[6,7]、水熱法は密閉管内で約 120 °C に保つ水酸化物からの転換を用いる (本事業、謝辞参照)。この三経路をマイクロ波加熱で比べるには、必要な熱量と、試料が実際に受け取る電力 (以下、試料電力) の双方を評価する必要がある。水換算の主段階の熱量は、脱硝が他経路の約 8–10 倍となる (表 1)。

表 1. 主加熱段階の熱量 (水 1 mL 換算)。

経路	主加熱段階	温度 [°C]	熱量 [kJ]
内部ゲル化	液相昇温	20→100	0.33
水熱	液相昇温	20→120	0.42
脱硝	昇温・蒸発・蒸気加熱	20→450	3.29

水 1 mL $\approx$ 1 g、比熱 4.18 J/(g K)、蒸発潜熱 2.26 kJ/g、蒸気比熱 2.0 J/(g K) による[8]。脱硝は昇温 0.33、蒸発 2.26、蒸気の 100→450 °C 加熱 0.70 kJ の合計。蒸気が系外へ逃げる場合は最後の項を除く。反応・容器・放熱と他経路の後段は含めない。試料電力は、反射と内部配分の二段階で決まる。キャビティは電磁波を共振させる金属容器である。給電口が一つで、入射した電力が反射・壁の損失・試料の損失の三つにしか分かれないう定常状態を考える。給電口での反射の大きさは反射係数 S_{11} (50 Ω 基準の複素数) で表し、 $|S_{11}|^2$ が反射電力の割合になる[13] (4.3 節)。入射電力 P_{in} [W]、壁等の背景損失 P_b [W]、試料損失 P_s [W] の収支 $P_{in} - P_{in}|S_{11}|^2 = P_s + P_b$ に、試料配分率 $\eta = P_s/(P_s + P_b)$ を代入すると、

$$P_s = P_{in}(1 - |S_{11}|^2)\eta \quad (1)$$

内部配分は Q 値の定義から導く[13] (6.1 節)。 Q 値は共振の鋭さを表す無次元量で、蓄えたエネルギーを 1 周期あたりの損失で割った量に比例し、損失が小さいほど大きい。キャビティに蓄えられた周期平均エネルギー U [J]、角周波数 $\omega = 2\pi f$ [rad/s] (f は周波数 [Hz]) に対し、 $Q_s = \omega U/P_s$ 、 $Q_b = \omega U/P_b$ と置く。共通の ωU が消えて $Q_s/Q_b = P_b/P_s$ となるため、

$$\eta = P_s/(P_s + P_b) = 1/(1 + Q_s/Q_b) \quad (2)$$

低損失試料ほど、背景に対する配分は小さい。例えば $Q_s = 9Q_b$ なら $\eta = 10\%$ となる。試料吸収率 $A_s = P_s/P_{in} = (1 - |S_{11}|^2)\eta$ は、入射電力を分母とし反射も含む点が η と異なる。

加熱を妨げる要因は、電源が出せる周波数の範囲 (帯域) から共振が外れる離調、反射の増大による不整合、試料配分 η の低下に分けられる。複素比誘電率 $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$ は分極の実部 ϵ' と損失成分 ϵ'' を持つ。形状が内部電場を変えるため、 ϵ'' だけでは吸収は決まらない。

本稿では、(1)各段階、とくに乾固後の電力充足、(2)帯域 2.40–2.50 GHz に収まる液量・形と装置長の効果、(3)100 W・1 kW 入射時の試料電力、(4)1 mL 円柱から液滴への共振・吸収・必要時間の変化、を調べる。液滴を取り上げるのは、内部ゲル化法が液滴の加熱を前提とするためである。球は円柱と異なる脱分極の基準形状として比較できる。

負荷を一度に大きく変えると、複数の共振の周波数の順番が入れ替わり、周波数だけでは同じモード (共振の型) を見失う。そこで、空気から水へ少しずつ誘電率を変える連続化係数 α_w を導入し、隣り合う条件の電場分布の類似度で同じモードを対応させる[2]。水の液量も段階的に変え、給電を含まない固有モード解析[1]から形状の効果を調べる。 $Q_b = 2000$ は電力配分を比較するための仮定とする。

2. 実験系と数値モデル

2.1 実験と周波数変化の基準

実験の周波数変化 Δf_{exp} は、水 0.50 mL 添加前後の $f_{\text{boat+water}} - f_{\text{boat}}$ で定義する。図 1 の横型円筒と軸上石英管を対象に、試料用の石英の舟形容器（ボート）のみを基準 f_{boat} とした。

実験と計算の位置原点・方向は未確定で、一対一比較はしない。系列 A・B は設定の差が未確認の別系列として整理し、反復測定の評価には用いない。実験の出力記録は 10 W である。

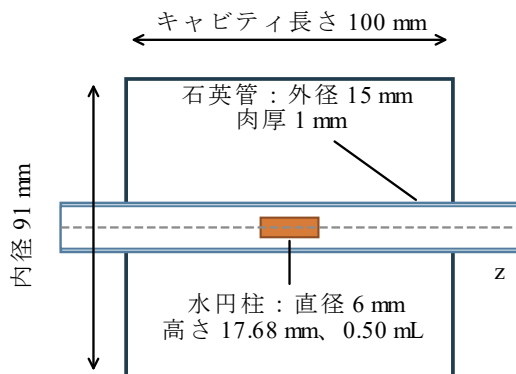


図 1. キャビティの軸方向断面。水 0.50 mL を中央に置く。計算では給電とポートを省く。

2.2 連続化係数と計算条件

固有モード計算では、試料の効果を取り出すため給電・ポート・壁損失を省いた。COMSOL Multiphysics 6.4 の RF Module と Electromagnetic Waves, Frequency Domain で有限要素法（FEM）解析を行い[1,3]、壁を無損失の完全電気導体（PEC）としたため、得られる Q は Q_s となる。

基準試料は半径 $r = 3.0$ mm、高さ $h = 17.68$ mm、体積 $V = 0.50$ mL の円柱で、水の比誘電率を $\epsilon_w = 76.7 - 12i$ とする。連続化係数 α_w [-]により $\epsilon(\alpha_w) = 1 + \alpha_w(\epsilon_w - 1)$ と置く。表 2 の 0 は空気、1 は水で、中間は実在の物質ではなく追跡のための踏み石である。試料の軸方向位置 s （中央からのずれ）[mm]ごとに、負荷領域を空気にした解（空気相当）を基準として、 $\Delta f_{\text{calc}} = f(s, \alpha_w) - f(s, 0)$ を定義する。

表 2. 比誘電率の設定。非磁性（比透磁率 $\mu_r = 1$ ）、導電率 $\sigma = 0$ S/m。損失は ϵ'' に含め、時間因子を $\exp(i \omega t)$ とする。

領域・補間係数	ϵ [-]
空気・ $\alpha_w = 0$	1
石英	4.6（追加比較 3.8）
$\alpha_w = 0.25$	$19.925 - 3i$
$\alpha_w = 0.50$	$38.85 - 6i$
$\alpha_w = 0.75$	$57.775 - 9i$
水・ $\alpha_w = 1$	$76.7 - 12i$

円柱は r を保って 0.10、0.25、0.50、1.00、1.25、1.50、1.75、2.00 mL を比較した。50 μ L 球（半径 2.2854 mm）、中央板 0.50 mL、石英 $\epsilon = 3.8$ も別条件とした。各形状の水と空気相当は同じ頂点・要素接続で求め、小試料は局所細分割も比較した（付録 A）。

給電付きモデルは、PEC 壁と 50 Ω の集中ポート（給電面）から 1 W を入れ、固有モード解との照合に用いた。実機の同軸線路・導波管・整合器を含まないため、実機の反射予測は対象外とする。実機の反射は負荷・給電構造・整合器の設定に依存する。本稿の電力比較は反射ゼロの仮定で行い、実機では反射を測定する。

表 3. 主な記号と意味（無次元量は [-]）。

記号 [単位]	意味
Q_s , Q_b , η , A_s [-]	試料・背景の Q 、配分率、試料吸収率
S_{11} , N , F , L [-]	反射係数、脱分極係数、応答、損失指標
V [mL], r , h , s [mm]	体積、半径、高さ、軸方向位置
κ , N_{ell} [-]	縦横比、回転楕円体の係数
P_{req} , P_{other} [W] C_{eff} [J/K]	目標昇温込みの必要電力、他の熱負担、有効熱容量

3. 材料と液量の段階的な追跡

モード形状の類似度を表す MAC（modal assurance criterion）の文献[15]式(12)を用いる。本稿では各電場の 3 成分を共通 1024 点 $\mathbf{r}_k$ で等重みに並べ、 $S_{ij} = \sum_k \mathbf{E}_i(\mathbf{r}_k) \cdot \mathbf{E}_j(\mathbf{r}_k)$ から振幅指標 O を計算する。 $*$ は複素共役である。

$$O_{ij} = \frac{|S_{ij}|}{\sqrt{S_{ii} S_{jj}}}, \quad 0 \leq O_{ij} \leq 1 \quad (3)$$

MAC = O^2 である。規格化により任意振幅が、絶対値により全体位相が消える[2,15]。 $O \geq 0.9$ （MAC ≥ 0.81 ）を本研究の目安とし、最大値と次候補との差、相互対応、全候補の一対一割当も調べる。近接二偏極は、規格直交化し

た二つの電場を一組として比較し、最小特異値を用いる。これは組の中で最も一致が弱い方向の類似度を表す。

隣り合う二条件の組をステップと呼ぶ。 α_w に沿う 16 ステップと位置に沿う 6 ステップの O はそれぞれ 0.987 以上、0.958 以上で、水円柱 0.10→2.00 mL の 7 ステップは 0.946 以上であった。一方、1 mL から 2 mL へ一段で跳ぶと 0.842、0.50 mL から 2 mL では 0.790、2 mL で空気から水へ一段で跳ぶと 0.773 で、いずれも採用基準を下回る。1.25、1.5、1.75 mL を経れば 2 mL の解に 0.946 以上でつながった。

4. 共振応答の結果

4.1 実験と位置・誘電率の効果

表 4. 水 0.50 mL の Δf_{exp} [MHz]。NA は欠測。 f_{boat} の範囲は A が 2463.94–2467.44 MHz、B が 2464.20–2466.97 MHz。

Δf_{exp} [MHz]	0 mm	10 mm	20 mm	30 mm
系列 A	–62.46	–58.00	–39.76	–41.90
系列 B	NA	–57.21	–56.46	–64.77

実験の Δf_{exp} は約–40 から–65 MHz に広がった（表 4）。同じ 0.50 mL での広がり計算の位置差 6 %より大きく、液の形や配置も候補となる。

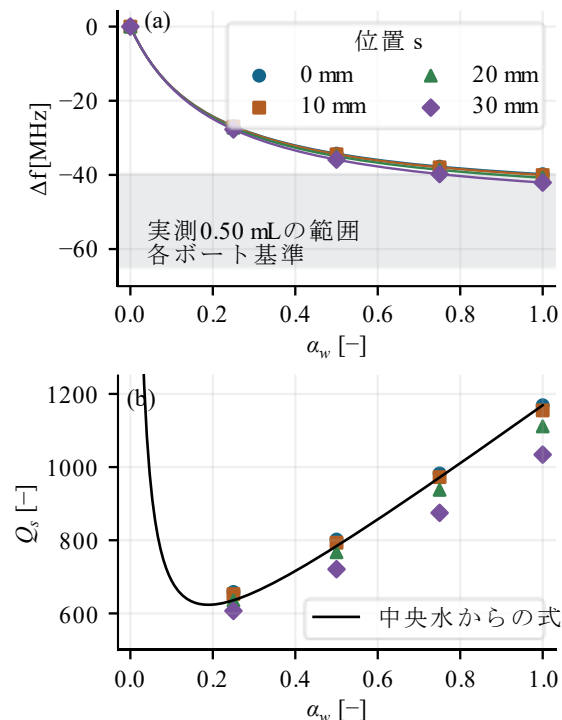


図 2. α_w に沿う (a) 周波数差と (b) Q_s 。点は 4 位置の FEM、線は式。灰色帯は水 0.50 mL の実測範囲（各ボート基準）で、 α_w 軸との対応ではない。中間 α_w は実材料を表さない。

位置効果は 6 %以内だが、誘電率応答は非線形であった（図 2）。空気から水への Δf_{calc} は –39.81 から –42.08 MHz で、全移動の約 2/3 が α_w

= 0.25 までに生じた。中央 Q は 659 から 1169 へ上がり、 ϵ'' が 3 から 12 へ増えても、蓄積エネルギーに対する損失は減った。 ϵ' も同時に変わるため、この挙動は内部電場を弱める脱分極の解釈を支持する。

4.2 解法と基準周波数の照合

給電付き水モデルで周波数を掃引して得た共振曲線の中心は 2.38047 GHz、給電口への漏れを含む負荷 $Q_L \approx 1173$ であった。給電口との結合が弱い側を仮定して漏れを補正した内部の $Q_0 \approx 1201$ は、固有モードの 2.38064 GHz・ $Q_s = 1169$ に対し周波数 0.17 MHz、 Q 約 3 %以内で整合する（付録 A）。

分割差は形状効果より小さかった。中央水 0.50 mL の Normal・Fine 差は Δf で 0.0709 MHz、周波数で 0.0927 MHz、 Q で 0.353 %であった（付録 A）。

石英の誘電率は、相対シフトより基準周波数に強く効いた。 ϵ を 4.6 から 3.8 へ変えると基準が 22.876 MHz 上がり、実験との差約 45 MHz のおよそ半分を説明する一方、 Δf は –39.952 MHz にとどまった（付録 A）。

5. 形状と電力配分の評価

電場の段階的な対応と、空気・水の直接比較を分けて整理する（表 5）。以下の電力配分は、 $Q_0 = 2000$ ・反射ゼロを共通の比較条件とする。

表 5. 連続経路における電場対応。

経路	ステップ数	最小 O
α_w (4 位置)	16	0.9874
位置 (空気・水)	6	0.9582
円柱の液量	7	0.9459

形状による内部電場の弱まりを脱分極係数 N [-] で表す[11,14]。一樣な外部場中の等方・非磁性楕円体を準静的に扱い、電場は主軸に沿うとする。分極密度 p [C/m²] と真空誘電率 ϵ_0 に対し、 $p = \epsilon_0(\epsilon - 1)E_{\text{in}}$ 、 $E_{\text{in}} = E_0 - Np/\epsilon_0$ を連立すると $E_{\text{in}}/E_0 = 1/\{1 + N(\epsilon - 1)\}$ を得る[14] (3.2 節)。電場に沿う針では N は 0 に近く、球では 1/3 となる。分極応答を次の F で表す。

$$F = (\epsilon - 1)/\{1 + N(\epsilon - 1)\}, L = -\text{Im } F \quad (4)$$

空洞摂動近似[13,14]（それぞれ 6.7 節、3.2 節）では、外場と U を共通にすると、次の関係を得る。

$$-\Delta f/f_{\text{ref}} \approx C V \text{Re } F, \quad 1/Q_s \approx 2 C V L \quad (5)$$

f_{ref} は基準共振周波数、 $C > 0$ は外場と U で定まる体積の逆数の次元を持つ係数である。式(5)の比を取ると、

$$-2 Q_s \Delta f/f_{\text{ref}} \approx \text{Re } F/L \quad (6)$$

となる。円柱では N を実効値として用いる。

位置ごとの 5 点を $\Delta f = -a \alpha_w / (1 + b \alpha_w)$ へ当てはめた残差は最大 0.020 MHz で、中央の $a = 247$ MHz、 $b = 5.22$ は $N \approx 0.069$ に対応した。水の Q で損失側を定めると、中間 3 条件の Q も 3.5 % 以内で表された。

水負荷時の周波数を f_{ref} に用い、 Δf と Q_s の FEM 値を式(6)へ代入すると $N = 0.06697$ となり、当てはめの 0.069 との差は 2.94 % である。一次摂動式の基準を空気相当とすると 0.06566 となる。これは同じ計算結果の整合性確認である。

5.1 液量と形による共振・吸収の変化

水円柱の Q は 0.10 mL の 1.05×10^5 から 2.00 mL の 22.1 へ変わった。同じ 0.50 mL でも、円柱を

表 6. 水の液量・形状と近似式。 Δf は同一分割の空気基準との差。1 mL は Fine、0.10 mL 円柱と球は局所細分割、他は Normal。

形状	V [mL]	N	Δf 式 [MHz]	Δf FEM [MHz]	Q 式	Q FEM
円柱	2.00	0.009768	-571.26	-579.74	22.5	22.1
円柱	1.50	0.01519	-346.63	-386.98	46.0	37.9
円柱	1.00	0.02754	-160.97	-180.38	142.7	113.8
円柱	0.50	0.069	-39.81	-39.81	1169	1169
円柱	0.25	0.1472	-10.19	-9.61	8932	9938
円柱	0.10	0.2987	-2.09	-1.84	84562	1.05×10^5
中央板†	0.50	0.01706	-108.41	-108.18	157.0	157.0
球	0.05	1/3	-0.94	-1.02	2.09×10^5	1.97×10^5

† 中央板の N は Q から逆算したため、 Q は独立予測でない。円柱の係数 0.621 を球へは掛けない。表の予測は基準 0.50 mL の校正を固定し、FEM との残差を残した。

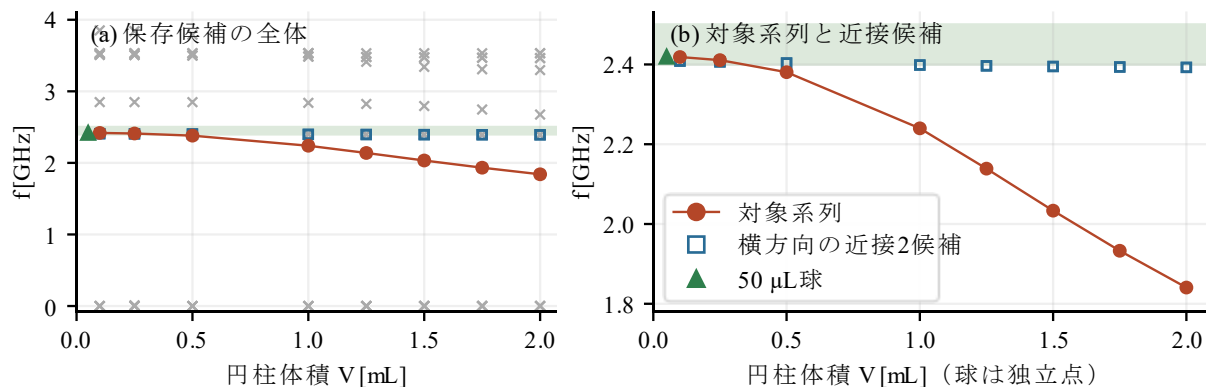


図 3. 絶対固有周波数と液量。(a)求めた全候補、(b)追跡した系列 (TM₀₁₀ 由来) と、横方向電場を持つ近接 2 候補 (TE₁₁₁ 由来)。帯は 2.40–2.50 GHz。線は確認した隣接系列を結び、球は別形状の独立点とする。

対象系列は 0.25 mL の 2.41083 GHz から 0.50 mL の 2.38064 GHz へ移り、この間で帯域下端を通る。横方向電場の近接 2 候補は 0.50 mL で 2.40355 GHz、1 mL で 2.39853 GHz、2 mL で 2.39263 GHz へ下がる。理想 TE₁₁₁ 二偏極との電場の組の比較で最小特異値が 0.986 以上となり、TE₁₁₁ 由来と整合する。調べたのは各液量で 2.45 GHz 付近の 12 候補である。

理想空円筒の TM₀₁₀ 周波数は長さ依存しない。ただし、同じ半径・試料・ N と一様場を仮定す

中央板へ変えると Q は 1169 から 157 となる (表 6)。追跡系列は、軸方向電場が軸上で最大となる理想 TM₀₁₀ に由来する。TE は軸方向電場がゼロ、TM は軸方向磁場がゼロの分類で、添字は円周方向の次数・半径方向の根の番号・軸方向の次数を表す[13] (6.4 節)。液量が増えると中央の軸方向電場が弱まり、分布が端側へ移る。

本研究では縦横比 $\kappa = h/(2r)$ に応じて $N = 0.621N_{\text{ell}}(\kappa)$ とし、回転楕円体の係数を用いる (付録 A)。0.621 は基準 0.50 mL だけで決めた値である。校正点以外の円柱では Δf の差が最大 14 %、 Q が 26 % であった。板の N は Q から別に逆算した。

れば蓄積エネルギーは長さ ℓ_c に比例し、負荷による Δf は $1/\ell_c$ に比例する。100 mm での -180 MHz を 200、300 mm で -90、-60 MHz とする値は目安である。

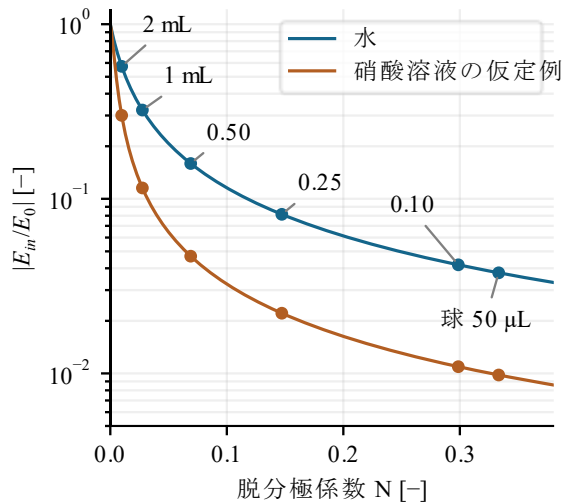


図 4. 内部一様場の近似式による電場比。円柱 2、1、0.50、0.25、0.10 mL の N は 0.00977、0.0275、0.069、0.147、0.299、球は $1/3$ 。各 6 点を示す。球では $N = 1/3$ より $E_{in}/E_0 = 3/(\epsilon + 2)$ となる。水の振幅比は 0.0377 で、同じ外部場に置く基準 0.50 mL 円柱に比べ、単位体積当たり吸収は近似式で約 $1/18$ となる（体積が異なるので総電力の比ではない）。50 μL 球の FEM は $\Delta f = -1.019$ MHz、 $Q_s = 1.97 \times 10^5$ 、 $Q_b = 2000$ で $\eta = 1.00\%$ となり、式の Q との差は 5.8 %であった。水 50 μL 球を $20 \rightarrow 100$ °C へ上げる顕熱は 16.72 J である。反射ゼロ・1 kW 入射の $P_s = 10.03$ W で表 7. 仮定状態の Q と電力配分 ($Q_b = 2000$ 、反射ゼロ)。円柱 0.50 mL、ゲル化は球 50 μL 。 P_s は入射 100 W・1 kW の値。 η と P_s は FEM の Q_s から式(1)、(2)で算出し、—の行は近似式を用いた。高損失 2 例は細分割値。

状態・モデル	$\epsilon' - i\epsilon''$	Q 式	Q FEM	η [%]	P_s [W] 100 W	P_s [W] 1 kW	部分的熱負担 [W]
脱硝・水	76.7 - 12i	1169	1169	63.1	63.1	631	60 s 蒸発 : 18.8
硝酸液 25 °C	60 - 300i	538.8	462.6	81.2	81.2	812	輻射 ≈ 0
硝酸液 105 °C	60 - 600i	1032	696.3	74.2	74.2	742	輻射 0.22
低損失 UO_3 例	5 - 0.01i	57948	60779	3.19	3.19	31.9	輻射 1.8 / 4.8
UO_3 感度例	5 - 0.03i	19316	—	9.38	9.38	93.8	同上
U_3O_8 高温例	10 - 2.5i	378.3	395.5	83.5	83.5	835	輻射 10.4
ゲル化・水球	76.7 - 12i	2.09×10^5	1.97×10^5	1.00	1.00	10.03	0.143 s 昇温 : 117
水熱・水	76.7 - 12i	1169	1169	63.1	63.1	631	60 s 昇温 : 3.48

水以外の ϵ' は仮定、[5] の ϵ'' は図の概略値。 UO_3 の 0.03 は感度例で、輻射 1.8 / 4.8 W は 300 / 450 °C、 U_3O_8 は 600 °C に対応する。蒸発・水熱の 60 s は仮の目標で、水熱は $20 \rightarrow 120$ °C。反応・容器・他の放熱は別途加える。低損失酸化物への配分低下は、乾固後の加熱を制約し得る。 $\epsilon = 5 - 0.01i$ の FEM では、入射 100 W の試料電力 3.19 W は 450 °C の輻射 4.8 W にも不足し、1 kW では 31.9 W となる。 $\epsilon'' = 0.03$ の感度例は式で 9.4 / 94 W である。輻射損失は $P_{\text{rad}} = \sigma_{\text{SB}} \epsilon_{\text{rad}} A (T^4 - T_0^4)$ で評価する。 σ_{SB} は Stefan-Boltzmann 定数、 $\epsilon_{\text{rad}} = 0.8$ は放射率、放射面積 $A = 4 \text{ cm}^2$ 、 $T_0 = 300.15 \text{ K}$ (27 °C) と

も、放熱ゼロの必要時間は 1.67 s となる。100 mm 自由落下の 0.143 s を一定物性・一様場で加熱した昇温は 6.9 K で、目標に不足する。壁損失が支配的で整合を保つ理想 TM_{010} の弱負荷近似では、長さ $100 \rightarrow 50 \text{ mm}$ による吸収増加は約 1.5 倍にとどまる（付録 A）。液柱化による N の低減と、落下速度・加熱区間の調整による滞留時間の延長を、実液の物性・径・軌道・給電とともに検討する[7]。

5.2 低損失状態の配分と必要電力

ピーク複素振幅を用いると誘電損失の電力密度は $\omega \epsilon_0 \epsilon'' |E_{in}|^2 / 2$ である[13] (1.6 節)。5 節の内部電場を代入すると、外場基準の損失指標は $L = \epsilon'' |E_{in}/E_0|^2 = -\text{Im} F$ となる。 $\epsilon = \epsilon' - i\epsilon''$ で展開すれば式(7)を得る。これは分極応答[14]からの代数的帰結である。

$$L(\epsilon, N) = \epsilon'' / \{ [1 + N(\epsilon' - 1)]^2 + (N\epsilon'')^2 \} \quad (7)$$

$V \cdot N$ と外場・ U を共通にした近似比較として、基準水から $Q_s = 1169 L(\epsilon_w, 0.069) / L(\epsilon, 0.069)$ を求める。硝酸溶液、三酸化ウラン (UO_3)、八酸化三ウラン (U_3O_8) の仮定物性 4 例を FEM でも照合した。表 7 の η と P_s は、FEM の Q_s と仮定 Q_b から式(1)、(2)で算出した。 $\epsilon'' = 0.03$ の感度例だけ近似式を用いた。

し、 T は絶対温度[K]を用いる。伝導・対流による放熱は含めない。

固定 $\epsilon' \cdot N \cdot Q_b$ で、式の L は $\epsilon'' = [1 + N(\epsilon' - 1)] / N$ で最大となる。 $\epsilon' = 60$ 、 $N = 0.069$ では約 73.5 であり、 ϵ'' を $300 \rightarrow 600$ とすると式の η は $79 \rightarrow 66\%$ へ下がる。FEM も $81.2 \rightarrow 74.2\%$ となるが、内部一様場の式との量的な差は残る。目標達成には、昇温と他の熱負担を補う必要がある。 $P_{\text{req}} = C_{\text{eff}} d T_{\text{tar}} / d t + P_{\text{other}}$ と定義し、 C_{eff}

[J/K]は有効熱容量、 T_{tar} [K]は目標温度、 P_{other} [W]は蒸発・反応・容器・放熱の正味負担（発熱は差引き）とする。実温度は $C_{\text{eff}} dT/dt = P_s - P_{\text{other}}$ に従う。

式(1)、(2)に必要な配分率を置けば、 Q_s/Q_b から電力充足を判定できる。 $P_{\text{av}} = P_{\text{in}}(1 - |S_{11}|^2) > 0$ 、 $\eta_{\text{min}} = P_{\text{req}}/P_{\text{av}}$ に対し、 $0 < \eta_{\text{min}} < 1$ で $P_s \geq P_{\text{req}}$ は $Q_s/Q_b \leq 1/\eta_{\text{min}} - 1$ と同値で、 $\eta_{\text{min}} > 1$ は達成不能である。450 °Cの輻射のみなら η_{min} は 100 W で 4.8 %、1 kW で 0.48 %、 $\varepsilon = 5 - 0.01i$ の FEM を用いる 100 W 時の Q_b の目安は約 3.1×10^3 以上となる。

昇温速度は、試料電力と正味の熱負担の差を有効熱容量で割った値で決まる。温度上昇の解釈には、文献[5]の損失変化に加え、熱容量・反応・放熱を含む熱収支を要する。表7の顕熱・潜熱・輻射は必要電力の一部として、加熱継続を判定する。

5.3 適用条件と実機での検証

表7は、乾固・収縮に伴う形の変化を固定した状態ごとの推算である。[5]の縦軸は損失積 $\varepsilon' \tan \delta = \varepsilon''$ であり、その概略値を用い、未掲載の ε' は仮定した。溶液と酸化物は[5]で別の測定法（反射法と空洞摂動法）によるため別系列として扱い、 UO_3 の測定温度は文献に記載がない。 $\varepsilon' = 3\text{--}10$ の感度例では、 $\varepsilon'' = 0.01$ の式の η は 2.1–4.2 %、0.03 まで含めた上端は 11.5 % となる。

1 mL 円柱の高さ 35.37 mm は水中位相波長 13.9 mm を超え、高損失例の減衰長も短い（付録A）。内部一様場を用いる準静的近似の前提から外れ得る[14]。球の式は石英管と局所場を省くが FEM は含む。近似式の精度は表6・7の比較範囲に限る。

実機で観測したモードは固有周波数だけでは同定できず、給電との結合と S_{11} を要する。計算の空気基準 2420.45 MHz と実験基準約 2465 MHz の差 44.6 MHz は未解消であり、実験値へ形状や ε を合わせていない。空キャビティの内部 $Q[10]$ を負荷時 Q_b に使えるか確認し、温度依存物性・収縮・熱収支と照合する[12]。

6. 結論

水円柱 0.10–2.00 mL を隣接電場で追跡し、2 mL の解が同じ系列に属することを確認した。1→2 mL の直接 $O = 0.842$ に対し、途中液量を介すと 0.946 以上となる。連続化は比較の経路を明確にする方法である。

四つの問いに対し、低損失例の 100 W 入射時 3.19 W は 450 °Cの輻射 4.8 W に不足し、帯域は対象系列と他候補を分けて評価した。各状態の 100 W・1 kW 配分は表7に示した。50 μL 球の 1 kW・100 mm 自由落下での放熱ゼロの昇温

6.9 K は目標に不足する。反射と Q_s/Q_b を分け、必要配分率から電力充足を判定する。

今後、セリウム (Ce) 硝酸溶液の温度・反射履歴を測定し、同温度・密度での Ce 系と U 酸化物の物性を照合して、乾固後の加熱継続条件を確かめる。

謝辞

本研究は文部科学省 原子力システム研究開発事業「アクチノイドマネジメントを備えた燃料サイクルの研究～持続的な原子力利用に向けて～」の成果の一部である。

参考文献

- [1] COMSOL AB, "Computing Q Factors and Resonant Frequencies of Cavity Resonators," COMSOL Multiphysics 6.4 Application Library Documentation.
- [2] Y. Li, "Tracking Eigenmodes over Parametric Sweeps," COMSOL Blog, Aug. 13, 2024.
- [3] COMSOL AB, "The Electromagnetic Waves, Frequency Domain Interface," RF Module User's Guide, COMSOL Multiphysics 6.4.
- [4] H. Oshima, "Development of Microwave Heating Method for Co-Conversion of Plutonium-Uranium Nitrate to MOX Powder," J. Nucl. Sci. Technol., vol. 26, no. 1, pp. 161–166, 1989, doi:10.1080/18811248.1989.9734282.
- [5] Y. Kato, T. Kurita, and T. Abe, "Dielectric Properties of Uranium and Plutonium Nitrate Solution and the Oxide Compounds Formed in the Denitration Process by the Microwave Heating Method," J. Nucl. Sci. Technol., vol. 41, no. 8, pp. 857–862, 2004, doi:10.1080/18811248.2004.9715557.
- [6] S. Yamagishi, "A New Internal Gelation Process for Fuel Microsphere Preparation without Cooling Initial Solutions," J. Nucl. Mater., vol. 254, pp. 14–21, 1998, doi:10.1016/S0022-3115(97)00351-6.
- [7] M. Cabanes-Sempere, C. Cozzo, S. Vaucher, J. M. Catalá-Civera, and M. A. Pouchon, "Innovative Production of Nuclear Fuel by Microwave Internal Gelation: Heat Transfer Model of Falling Droplets," Prog. Nucl. Energy, vol. 57, pp. 111–116, 2012, doi:10.1016/j.pnucene.2011.12.011.
- [8] NIST, Chemistry WebBook, Water (liquid/gas thermochemistry), (accessed 2026-10-20). [URL]
- [9] COMSOL AB, Circular Waveguide Filter, Application Library Documentation 6.4, (accessed 2026-10-20). [URL]
- [10] A. P. Gregory, Q-factor measurement by using a Vector Network Analyser, NPL Report MAT 58 (2021). doi:10.47120/npl.MAT58.
- [11] L. F. Chen, C. K. Ong, C. P. Neo, V. V. Varadan, and V. K. Varadan, Microwave Electronics: Measurement and Materials Characterization, John Wiley & Sons, 2004. doi:10.1002/0470020466.

- [12] G. A. Kriegsmann, "Thermal runaway in microwave heated ceramics: A one-dimensional model," J. Appl. Phys., vol. 71, no. 4, pp. 1960–1966, 1992. doi:10.1063/1.351191.
- [13] D. M. Pozar 著、永妻忠夫・村田博司・真田篤志訳、マイクロ波工学第4版、森北出版、2021。ISBN 978-4-627-78644-8。
- [14] C. Steiner et al., "Determination of the Dielectric Properties of Storage Materials for Exhaust Gas Aftertreatment Using the Microwave Cavity Perturbation Method," Sensors, 20, 6024, 2020, Sec. 3.2, Eqs. (8)–(15). doi:10.3390/s20216024.
- [15] R. J. Allemang and A. W. Phillips, "Spatial Information in Autonomous Modal Parameter Estimation," Shock and Vibration, 2014, 404132, Eq. (12). doi:10.1155/2014/404132.

付録 A 係数の計算式と数値照合

回転楕円体の係数は、 $\kappa > 1$ で $e_{\text{ell}} = \sqrt{1 - \kappa^{-2}}$ 、 $\kappa < 1$ で $\xi = \sqrt{\kappa^2 - 1}$ を用いて、

$$N_{\text{ell}} = (1 - e_{\text{ell}}^2) \{ \ln[(1 + e_{\text{ell}})/(1 - e_{\text{ell}})] - 2 e_{\text{ell}} \} / (2 e_{\text{ell}}^3) \quad (\kappa > 1)$$

$$N_{\text{ell}} = (1 + \xi^2)(\xi - \arctan \xi) / \xi^3 \quad (\kappa < 1) \quad (\text{A1})$$

とする。 $\kappa = 1$ では $N_{\text{ell}} = 1/3$ である。円柱には 0.621 を掛けるが球には掛けない。

理想空円筒 TM_{010} の壁損失による Q は、半径 R_c 、長さ l_c に対し $Q_b \propto l_c/(R_c + l_c)$ となる[1]。弱負荷で壁損失が支配的、入射電力一定、共振・整合を維持する近似では、試料電力は Q_b/l_c に比例する。 $R_c = 45.5 \text{ mm}$ で、

$$P_s(50 \text{ mm})/P_s(100 \text{ mm}) \approx (45.5 + 100)/(45.5 + 50) = 1.52 \quad (\text{A2})$$

となる。これは表 7 の一定 Q_b による比較とは別の参考近似であり、石英管・負荷・給電を含む形状変更の予測には再計算を要する。

給電モデルのポート中心は(15, 0, 50) mm、PEC アームは軸方向両側に 1 mm 角×2.5 mm とした。保存した水の 2.3795–2.3815 GHz、0.125 MHz 刻みの曲線を再集計した。M5・COMMON90 分割の 2.3805、2.45 GHz 比較では吸収率差 1.8 % 以下、複素 S_{11} 差 8.6×10^{-4} 以下であった。

表 A1. 分割感度。 Δf は各分割内の空気基準との差。

対象	分割	四面体数	Δf [MHz]	Q_s
円柱 0.50 mL	Normal	54,832	-39.8067	1169
同	Fine	93,431	-39.7357	1173
円柱 1 mL	Normal	55,640	-180.6067	113.5
同	Fine	95,997	-180.3798	113.8
中央板 0.50 mL	Normal	53,432	-108.1764	157.0
同	Fine	88,736	-107.7020	158.2
円柱 0.10 mL	局所 0.31	137,597	-1.838546	105023.0
同	局所 0.30	145,239	-1.837978	105155.5
球 50 μL	局所 0.33	91,210	-1.019359	197313.8
同	局所 0.30	101,996	-1.019310	197332.9

小試料の水領域の実最大辺長は、円柱 0.472→0.439 mm、球 0.474→0.417 mm である。 Δf 差は 0.000568、0.0000483 MHz、 Q 差は 0.126、0.0097 % となった。下側板 Normal の参考値 ($\Delta f = -115.825 \text{ MHz}$ 、 $Q = 133$) は最小品質 9.7×10^{-7} を含む。

共通 1024 点の複素電場と全固有値を出力し、 $Q = \text{Re}(f)/(2|\text{Im}(f)|)$ を emw.Qfactor と照合した。原系列では sol2、追加解では sol1 を使う。1.25 mL 空気側は要求 12 中 1 枠が非有限となり、11 個の有限固有値と対象場を保存した出力から回収した。この枠を収束数や重なりへ算入していない。

直径 15 mm の理想円形金属管の最低 TE_{11} 遮断周波数は空気 11.7 GHz、石英全充填 5.46 GHz[9]で、2.45 GHz はそれ以下となる。空气管 20 mm の片道減衰は約 42 dB である。

給電曲線は定数背景付きローレンツ形で近似し、半値全幅から $Q_L = f/\Delta f_{\text{FWHM}}$ とした。弱結合側の $\beta \approx 0.023$ を仮定して $Q_0 = (1 + \beta)Q_L$ とする[10]。 β はポート形状に依存する照合値である。

半径 45.5 mm、長さ 100 mm の理想空円筒では TE_{111} が 2.44432 GHz、 TM_{010} が 2.52181 GHz となる[1,9]。石英管を含む空気相当では、対応する候補は約 2.41072、2.42045 GHz である。石英 $\epsilon = 3.8$ の追加例は空気 2.443323 GHz、水 2.403372 GHz、 $Q = 1183$ である。

$\epsilon = 60 - 300i$ 、 $60 - 600i$ の 2.45 GHz での振幅減衰長は 1.76、1.18 mm である。実最大辺を 2.99→0.928 mm とした FEM の Q 差は 2.41、2.79 % となった。表 7 は細分割値を用いる。低損失 2 例は Normal のみである。