

研究紹介

ほう珪酸ガラスのアルミナ-クロム質れんがへの浸潤および溶損過程

1 はじめに

廃棄物の中でも放射性元素を含む廃液は、ほう珪酸ガラスで包埋されて処分される。ここで使用されるガラス溶融炉は長期の安定操業が求められることから、高耐食性、高耐スポーリング性が要求される。現在、内張材にはアルミナ-クロム質電鍍れんがが用いられているが、溶融ガラス中に共存する白金族（Platinum Group Metals, PGM）の損耗への影響や、浸潤・溶損過程等については不明な点も残されている。

本研究では、溶融ガラスによる電鍍れんがへの浸潤、変質、溶損過程に白金族が与える影響を調査するとともに、既知の浸潤、溶損モデルで整理が可能か否か、ガラスの粘性、濡れ性、表面張力といった基本特性を測定して検討を行った。

2 実験

回転侵食試験は、角柱状のれんがサンプルを1300℃の溶融ガラスに240h浸漬する方法で行い、ガラスを48hごとに交換し、回転数3 rpmで実施した。試験後に試料を切断し、気液界面近傍と浸漬部における浸潤変質層および溶損深さを計測した。

ガラスの粘性および表面張力は、平行板法およびプレート法で測定した。濡れ角については表面張力測定時の待機荷重値より算出した値を用いた。これらの測定結果より、次式を用いて白金族の有無による浸潤深さ（ L_1 ）および侵食深さ（ L_2 ）の比を算出した。

$$L_1^2 = (\sigma \cdot \cos\theta \cdot K \cdot t) / (\mu \cdot \varepsilon) \quad \dots (1)$$

$$L_2 = \frac{dC}{dt} = \frac{RTS}{6\pi\mu r N V \delta} (C_s - C) \quad \dots (2)$$

σ :表面張力、 K :通気率、 t :時間、 μ :粘度、 ε :気孔率、 C :濃度、 R :気体定数、 T :温度、 S :固体の表面積、 N :アボガドロ数、 V :溶液の容積、 δ :拡散層厚さ

3 結果と考察

図1に侵食試験結果を示す。侵食剤に固相の白金族が共存するガラス（With PGM）を用いると、浸潤変質層厚みおよび溶損深さは、気液界面部、浸漬部のいずれにおいても減少した。これより、白金族の分散はれんがの長寿命化に寄与していると考えられる。

同じれんがを用いたにも関わらず、白金族分散の有無で侵食深さおよび浸潤深さに差が生じた。これは、白金族の分散によりガラス-れんが間の表面張力やガラスの粘性が変化した結果であることが式(1)および(2)から推察できる。

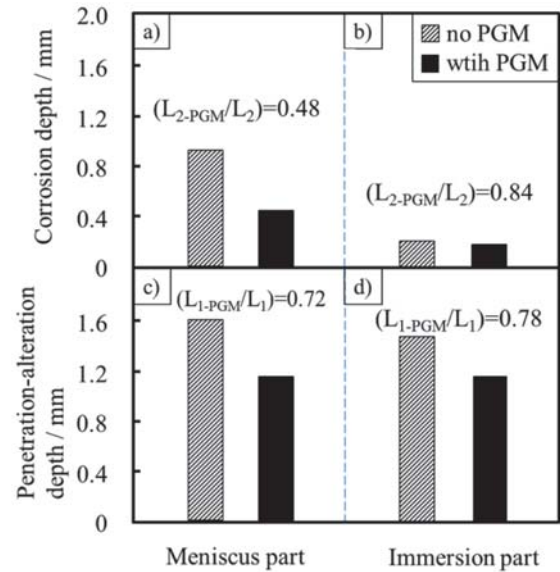


図1 侵食試験の結果

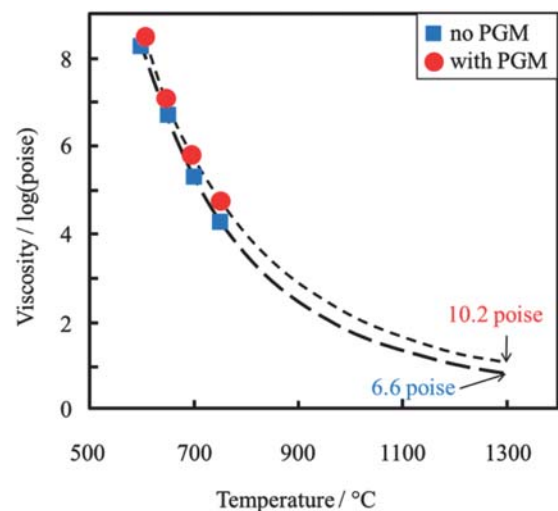


図2 各ガラスにおける温度と粘性値との関係

そこで、ガラスの粘性値およびガラス-れんが間の表面張力を測定した。

融液の粘性値が低い場合は細いワイヤーに吊り下げた球を融液中に沈め、その球を引き上げる際に発生する抵抗から粘性値を算出する球引上げ法が有効である。しかし、今回の様な粒子が分散した融液では、引き上げ時に粒子がワイヤーにまとわりつくために測定が困難である。今回は、ガラスの粘性値と温度との関係は式(3)に従うという性質を応用し、平行板法での測定結果から低粘性域を推測した値を用いた。図2に平行板法による測定結果を示す。

$$\mu = a \cdot T^n \dots (3)$$

ここでの μ は粘度、 a 、 n は実験値より求められる定数、 T は温度を示す。

600-800°Cにおいて、白金族が分散することで粘性が高くなることがわかった。この結果と式(3)から1300°Cにおける粘性値を推測した結果、No PGMで6.6poise、With PGMで10.2poiseとなり、白金族の分散により粘性は1.5倍も高くなることが予測される。これより、白金族の分散のガラスの粘性に与える影響が非常に大きいと言える。

図3にプレート法による表面張力の結果を示す。ここでは、各ガラスとれんが間との表面張力をより正確に把握するために治具にはれんがを用いた。両ガラスとも1200°Cまでは温度の上昇で表面張力は減少する傾向であったが、No PGMは1200°Cから一定値を示し、1300°CではWith PGMと同等の値となった。これより、1300°Cでの浸潤深さおよび侵食深さに与える表面張力の影響は白金族分散の有無に関わらず同程度であることが推測される。また、この表面張力の結果から接触角を算出した結果、No PGMで $\cos\theta=0.436$ 、With PGMで $\cos\theta=0.356$ となった。

以上の測定結果を表1にまとめる。表1の結果を式(1)および(2)に代入し、比率を求めた結果、 $L_{1-PGM}/L_1=0.74$ および $L_{2-PGM}/L_2=0.84$ と算出された。この値は、図1の(b)、(c)、(d)に示す実験値と良く一致しており、白金族の共存によるガラスの諸特性の変化が、れんがの浸潤、変質、溶損過程に影響を与えたことが理解される。一方、図1-(a)の実験値とは一致しておらず、気液界面の溶損には他の要因が関与していることが考えられる。

4 まとめ

溶融ガラスによる電鍍れんがへの浸潤、変質、溶損過程に白金族が与える影響を調査するとともに、既知の浸潤、溶損モデルで整理が可能か否か、ガラスの粘性、濡れ性、表面張力といった基本特性を測定して検討を行った結果、次の知見を得た。

- (1)白金族が分散することでれんがの浸潤深さおよび溶損深さは減少した。
- (2)白金族が含まれることでガラスの粘度および濡れ角は増大したが、1300°Cにおける表面張力は同等であった。
- (3)浸潤変質層の厚みおよび溶損の過程は既知の浸潤、溶損モデルで整理、理解することができる。

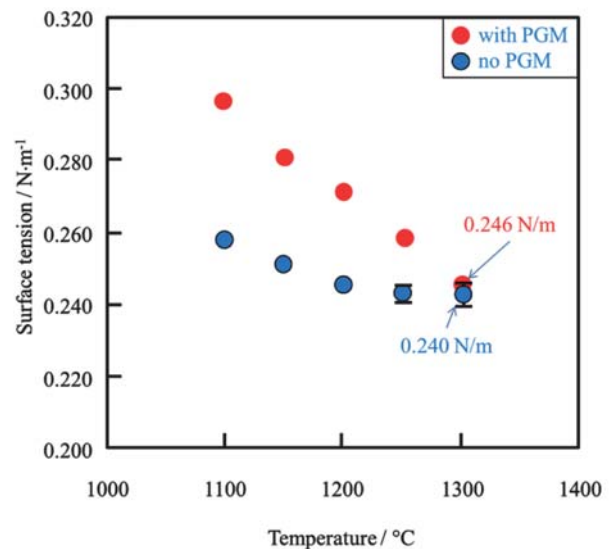


図3 各ガラスにおける温度と表面張力との関係

表1 1300°Cにおけるガラスの特性値

粘度 / poise		表面張力 / N·m ⁻¹		接触角 / cosθ	
no PGM	with PGM	no PGM	with PGM	no PGM	with PGM
6.6	10.2	0.240	0.246	0.436	0.357

(主任研究員 前田 朋之)