

JNC TJ6430 2002-001

試験用キルンによる転換試験

(核燃料サイクル開発機構 人形峠環境技術センター)

(契約業務報告書)

2002年3月

三井造船株式会社

この資料は、核燃料サイクル機構内における検討を目的としている機構内資料です。については複製、転載、引用等を行なわないよう、また、第三者への開示または内容漏洩がないように管理して下さい。また、今回の開示目的以外のことには使用しないように注意して下さい。

本資料についての問い合わせは、下記に願います。

708-0698 岡山県苫田郡上斎原村 1550

核燃料サイクル開発機構 人形崎環境技術センター

環境保全技術開発部 管理課

目次

1.はじめに	1
2.実施概要	1
3.試験装置	1
4.UO ₂ F ₂ の水素還元反応試験	
4. 1 サンプル調製	2
4. 2 試験内容	2
4.2.1 試験項目	2
4.2.2 試験プロセス	3
4.2.3 試験方法	3
4. 3 試験結果	3
4.3.1 試験運転温度履歴	3
4.3.2 開放点検	3
4. 4 分析結果	5
4.4.1 X線回折	5
4.4.2 TG/DTA分析	5
4.4.3 フッ素定量分析	6
4.4.4 生成粉体の観察	6
4. 5 まとめ	7
4. 6 今後の展開	7
5.UF ₄ 水蒸気反応（水蒸気酸化反応）	
5. 1 試験内容	9
5.1.1 試験項目	9
5.1.2 試験方法	9
5.1.3 供試サンプル	9
5.1.4 試験プロセス	9
5. 2 試験結果	10
5.2.1 試験運転温度履歴	10
5.2.2 開放点検	10
5. 3 分析結果	11
5.3.1 X線回折	11
5.3.2 TG/DTA分析	12
5.3.3 生成粉体の観察	12

5. 4 まとめ -----	12
5. 5 今後の展開 -----	13
6. UF ₆ の水蒸気反応	
6. 1 試験内容-----	14
6.1.1 試験項目 -----	14
6.1.2 試験方法 -----	14
6.1.3 試験プロセス -----	14
6.1.4 試験条件 -----	15
6. 2 試験結果	
6.2.1 試験運転温度履歴 -----	15
6.2.2 UF ₆ 投入量の検証-----	15
6.2.3 開放点検 -----	16
6. 3 分析結果-----	16
6.3.1 X線回折-----	17
6.3.2 生成粉体の観察-----	17
6. 4 まとめ-----	17
6. 5 今後の展開-----	17
7. おわりに-----	
	18

1. はじめに

人形峠環境技術センターは、センター内に保管されている六フッ化ウラン (UF_6) および四フッ化ウラン (UF_4) の安定化処理を計画なさっており、安定化処理方法として UF_6 を還元してウラン酸化物である二酸化ウラン（以下、 UO_2 ）等に再転換するプロセスを検討中である。過去にBNFLでこの再転換の反応装置としてロータリーキルンが用いられていたことから、今回は反応装置としてロータリーキルンを用いた際の再転換反応の基礎試験データ取得を目的として試験を行った。

本報告書では、人形峠環境技術センター製錬転換施設試験棟の転換試験室において実ウラン試料を用いて小規模な工学基礎試験を実施した試験結果を示し、反応条件、反応プロセスについて検討した。

2. 実施概要

UF_6 および UF_4 を酸化物に転換して安定化する反応として湿式法がすでに確立されているが、乾式方は湿式法に比べて廃棄物が少ないとや生成物の品質が優れていることが期待できる。しかしながら乾式方による転換は国内では実績が無く、工学的な基礎データも不十分な状態である。そこで今回の試験では小型のロータリーキルン試験装置を用いて反応の基礎データを取得することとした。

UF_6 を乾式法で UO_2 に再転換する場合、一般的に言われている反応経路は



すなわち、 UF_6 を水蒸気酸化させ、反応生成物を水素還元することにより UO_2 を生成するプロセスである。

また、 UF_4 の酸化物転換は、



本試験では、特に、ロータリーキルンを用いて上記の3つの反応について基礎試験を行い再転換反応に及ぼす操作条件の影響を検討した。

3. 試験装置

人形峠環境技術センター製錬転換施設試験棟の転換試験室において実ウラン試料を用いて小規模な工学基礎試験を実施した。本試験で用いた反応装置は写真3-1に示す小型ロータリーキルンである。

4. UO₂F₂ の水素還元反応試験

4.1 サンプル調製

UO₂F₂ は中間生成物であり施設内に管理保管されていないため、ラボスケールで UO₃ を用いて調製して、試験用サンプルとしての UO₂F₂を得た。(調製担当は JNC 殿担当)

写真 4-1 にサンプル調製によって得られた UO₂F₂を示す。UO₂F₂の性状は粉状であった。これは、UO₂F₂の調製工程において、乳鉢を用いて粉碎する工程があるため、微粉体が形成されやすいからである。

調製した UO₂F₂は潮解性が強いため、JNC 殿所有の X 線回折分析装置を用いての分析は難しかった。(分析試料調製作業であるガラス板への固定が出来なかった。) さらに、簡易方法で固定した試料を分析した結果では、明瞭なピークを検出出来ず、サンプル粉体の同定は今回の試験では出来なかった。

ただし、調製方法の検討に用いた文献データによると、調製によって得られるサンプルの主成分は、おおよそフッ化ウラニル 1.5 水和物【 UO₂F₂ · 1.5H₂O 】であると記述されている。そこで、今回の試験では、使用サンプルをフッ化ウラニル 1.5 水和物 (UO₂F₂ · 1.5H₂O) と想定した。

別途、サンプル粉体の性状分析を行ったところ、

- EPMA による定性分析では調製サンプルに、U の他に微小な F のピークが見られた。
- 蛍光 X 線分析では調製サンプル中に、F がある。また、少量の N a が検出された。

等の知見が得られたが、実試験において用いたサンプルの UO₂F₂ の組成状況および UO₂F₂ 純度を確定するには至らなかった。

4.2 試験内容

本反応試験は、フッ化ウラニルの水素雰囲気での還元反応である。反応式は以下のようである。



(サンプルとして調製試料を用いるため、フッ化ウラニル水和物が含まれている。)

試験目的は、反応式の成立性を確認するとともに、上記反応における最適条件の検討を行うことである。

4.2.1 試験項目

最適条件の検討を行うため、表 4-1 に示す反応条件を設定し試験を行った。

表 4-1 UO₂F₂ の転換反応試験

	反応温度	ガス投入量	回転数	反応時間*	試験条件
	[°C]	[倍当量]	[rpm]	[hr]	
Run 1-1	570	2	1	2	
Run 1-2	520	2	1	2	反応温度の影響
Run 1-3	600	4	1	2	ガス量の影響
Run 1-4	600	2	1	2	〔基準条件〕
Run 1-5	600	4	0.5	2	キルン回転数の影響
Run 1-6	600	2	1	4	反応時間の影響
Run 1-7	600	2	1	2+2	昇温時から

Total 7 Run

*反応時間・・・

反応時間は、キルン内温度が反応温度に十分に達した後、反応ガスを投入し始めてからの時間を示す。ただし、Run 1-7 に関しては、昇温開始時より反応ガスを投入し、昇温時間 2 時間と反応温度での保持時間 2 時間をもってトータルでの反応時間とした。この条件設定は、昇温時間において UO_2F_2 が反応を開始し、昇温時間中に反応が完結してしまうかどうかを確認するためである。

4.2.2 試験プロセス

本反応試験においては、オフガス処理での HF への対応を検討し、JNC 殿所有のケミカルトラップを用いることとした。プロセスの概略を図 4-1 に示す。

4.2.3 試験方法

ロータリーキルンを用い、 UO_2F_2 に転換ガス（水素）を供給し、 UO_2 への転換挙動を調べる。ロータリーキルンを用いた反応の手順の概略を示す。

- ① キルン内部に調製した試料 UO_2F_2 を約 64g (U 換算 ; 25g) 仕込む。
その後、フランジを閉めキルン内部を気密する。
- ② キルン内を窒素（約 1L/min）でバージする。30 分間バージ後に昇温作業に移行する。
- ③ キルン外部ヒーターを用いて反応設定温度まで昇温する。
その際に、キルンは 0.5 (rpm) にて回転させる。
- ④ キルン内部の雰囲気温度 [Re-6] の温度が設定温度（反応温度）に達したところで、反応ガスすなわち H_2 (4vol%) をキルン内に供給する。（バージ窒素は停止）
供給量は化学量論比の倍当量とする。
- ⑤ キルンの回転数を設定回転数に変更する。[反応開始]
- ⑥ 設定した反応時間保持する。
- ⑦ 反応時間後、反応ガスの供給を停止しバージ用窒素ガス（約 1L/min）を投入する。
外部ヒーターを OFF としキルンを自然冷却させる。回転数は 0.5(rpm) 程度に落とす。
- ⑧ 冷却によりキルン内温度が 250°C 以下になったら、バージガス投入を停止しキルンも停止する。
- ⑨ 翌日、キルン内温度確認後、キルン内部を開放点検行う。

4.3 試験結果

4.3.1 試験運転温度履歴

反応試験における運転温度履歴を図 4-2 および図 4-3 に示す。設定温度であるターゲット温度はキルン内雰囲気温度（レトルト中心に挿入されている熱電対指示温度）であり、チャート内では実線にて示してある。

4.3.2 開放点検

試験運転後の開放点検の結果を写真 4-2 に示す。

反応物（キルン内部粉体）は、キルン円筒部底部に堆積していた。また、キルン内壁への固着物はなかった。キルン内壁において、生成物の採取しにくいような強固な固着凝着状態は発生せず、サンプリングおよび洗浄時の支障とはならなかった。図 4-4 に粉体の残留状況のイメージ図を示す。

以上の開放点検の結果は、総数 7Run の全てのケースについてほぼ同様な傾向が得られた。今回の試験条件においては反応生成物の粉体としての性状（付着性）には大きな差異は見られなかった。

キルン内部観察後、生成物のサンプリングを実施した。ただし、サンプリングにおいては気流槽式のサイクロンを用いた。サイクロンによる回収方法は粉体の飛散による汚染の拡大防止のためと作業の安全性の面から JNC 殿と討議し決定したものである。

反応生成物の性状は粉体もしくは粒状であり、塊状の生成物は観察されなかった。また、回収した反応物の外観には試験条件による変化はほとんどなく、7Run ともほぼ同等のものであった。写真 4-3 に回収した反応物を示す。

生成物のサンプリングを実施した結果を表 4-2 に示す。サンプリングに際して気流槽式（サイクロン）を用いたが、キルン内の反応生成物すべてを回収することは不可能であった。そこで、作業工程上可能な限りのサンプリング量をもって実回収量とした。その上でのロータリーキルンによる UO_2F_2 反応試験の回収率を算出した。また、投入した $\text{UO}_2\text{F}_2 \cdot 1.5\text{H}_2\text{O}$ が全量反応し UO_3 に転換した場合、キルン内より回収すべき粉体の理論量を計算し、この理論量と実回収量の比を回収率として求めた。

表 4-2 開放点検およびサンプリング

	試料投入量		実回収量 [g]	理論量 [g]	回収率 [%] 実回収量／理論回収量
	[g]	U [mol]			
Run 1-1	64.7	0.19	—	51.3	—
Run 1-2	65.4	0.20	42.1	54.0	78
Run 1-3	65.7	0.20	28.5	54.0	53
Run 1-4	64.7	0.19	41.0	51.3	80
Run 1-5	65.0	0.20	27.4	54.0	51
Run 1-6	65.4	0.20	36.5	54.0	68
Run 1-7	65.3	0.20	35.4	54.0	66
試料は $\text{UO}_2\text{F}_2 \cdot 1.5\text{H}_2\text{O}$ であると仮定する。			UO ₃ に転換した理論計算		

表 4-2 の回収率を図 4-5 にまとめた。

- ① サイクロンによる実回収量は理論量の 70% 程度の回収量であった。

未回収分として、(a) 試験中にオフガスに同伴してトラップ側に飛散した粉体量、(b) 開放点検後の回収時、サイクロンにて捕集出来無かった粉体量の 2 通りが考えられる。

- ② 試験中にオフガスに同伴してトラップ側に飛散した粉体量は実測していなかったため、飛散量を定量化出来ない。ここで、図 4-6 にサンプリング回収率とガス供給量の関係を示す。図よりガス供給量の差異により回収率が若干異なっている。ガス流量の増加により回収率が低下している傾向にあり、ガス供給量を増やし、キルン内ガス線速度を増加させると微粉体が飛散しやすくなる傾向にあるのではないかと考えられる。

- ③ 回収時のロス分に関しては、サイクロンを用いた粉体回収の作業性効率によると考えられる。工程上可能な限り回収作業を行ったが、回収不可能な箇所（キルンの最深部など）が生じたり、回収方

法がサイクロン方式であるため、吸引回収できた微粉体においても気流に同伴しサンプリングホッパーに捕捉できないといった問題点が生じてしまい、結果として回収量は低下してしまったと考えられるが、現在の回収方法では、その際に生じる回収ロスを明確化（定量化）出来なかった。

- ④ ②③より、回収量のばらつきにより、実際の反応による転換生成量を明確化できないため、厳密なマテバランスを得ることが出来なかった。そのため、 UO_2F_2 への転換率の算出は困難であり、各反応を定量的に判断することは出来なかった。

4.4 分析結果

本反応試験においては、反応生成物の同定及び反応式の成立性を確認するために、サンプリングした粉体に関して以下の分析を行った。

- (1) X線回折分析 (2) TG/DTA による分析 (3) 残留フッ素の分析
(4) 生成粉体の観察 (・ビデオマイクロ撮影 ・粒度分布測定)

これらの項目について、分析結果をまとめ、検討する。

4.4.1 X 線回折

サンプリングした生成物の X 線回折分析を行った。分析結果を付録資料 I にまとめた。

X 線回折分析の結果、反応生成物の主成分は [$\text{UO}_{2.9}$] であると同定された。

Run1-1 から Run1-7 までほとんどの条件において $\text{UO}_{2.9}$ に転換されており、X 線回折による分析結果からは試験条件での生成物への影響はほとんど見受けることが出来なかった。

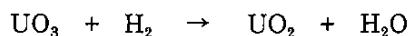
4.4.2 TG/DTA 分析

TG/DTA 分析の目的は、回収粉体中の水素還元雰囲気での未反応量を求ること、特に、定量的に未反応量を測定することである。TG/DTA 分析では、反応ガスとして H_2 (4vol%) を用い反応炉内温度を 1000°C まで昇温させ、そのときの供試体の重量減少を測定した。

TG/DTA 分析に用いたサンプルを表 4-3 にまとめる。ただし、発生ガスであるフッ素 (HF) による腐食雰囲気を考慮し、TG/DTA 分析装置の健全性を検討し分析件数は限定された。測定結果チャートを添付資料 No.3 に示す。表 4-3 にはチャートから得られた各 Run の重量減少率を算出してまとめた。

表 4-3 に示す TG/DTA 分析結果は、以下のようにまとめることができる。

- (1) TG/DTA において、Run1-2 以外のサンプルは約 700°C から重量減少し始め 850°Cまでの間に平均 3.6% の重量減少の反応を起こしている。ここで、TG 変化の重量減少減少は水素による還元反応であると考えられ、想定反応式を下記に示すと、測定された重量減少は量論値とほぼ一致する。



また、TG/DTA 分析後の試料を X 線回折した結果、 UO_2 であると同定された。

以上の結果より、観察された重量減少は、酸化物 UOX において X が 2.9 → 2.2 への還元反応における重量変化であると推定される。

- (2) Run1-2 においては、700°C に達するまでの低温領域からで重量減少が観察できる。ただし、重量減のピークは 800°C 前後、重量減少量も 4% 程度であることより最終的には UO_2 に転換されている。低温側での重量減少が生じたのは、Run1-2 においては反応温度が 520°C と低温であったため、フッ素の脱離反応が不十分であり、一部 UO_2F_2 が残留していたためと考えられる。

表 4-3 回収サンプルの TG/DTA 分析結果

試験	試験条件 (反応条件)	TG/DTA 分析有無	分析結果		
			減量開始温度 [℃]	減量率 [%]	0-400(℃)での 減量率 [%]
Run 1-1			—	—	—
Run 1-2	温度の影響	○	550	4.4	1.3
Run 1-3	ガス量の影響	○	670	3.7	0.0
Run 1-4	【基準条件】	○	700	3.7	0.0
Run 1-5	回転数の影響		—	—	—
Run 1-6	反応時間の影響	○	710	3.5	0.0
Run 1-7	昇温時からのガス投入		—	—	—

4.4.3 フッ素定量分析

X 線マイクロアナライザ（以下、EPMA）による残留フッ素の分析を行った。【依頼分析】

ただし、EPMA は微小部分の分析を得意とするものの、試料全体の分析は困難であるため試料全体が分析できる蛍光 X 線分析装置を併用した。試料の定性分析の結果を表 4-5 にまとめた。

表 4-4 回収サンプルの残留フッ素分析結果

Run No.	検出元素	
	EPMA による定性分析	蛍光 X 線分析による定性分析
Run 1-1	U	U, Ni
Run 1-2	U	U, Ni, Na, ?Si
Run 1-3	U	U, Na
Run 1-4	U, Na	U, Na, ?F
Run 1-5	U, Na	U, Ni, Na, F
Run 1-6	U, Na	U, Na, ?Ni
Run 1-7	U	U, Ni, Na

EPMA の分析結果からはフッ素を検出することはなかった。

蛍光 X 線回折分析の結果より、残留フッ素は Run 1-5 で見られ、Run 1-4 についても断定は出来ないが少量検出された。また、多く検出されている Na に関しては、試料調製に用いた原料 UO_3 に起因するものであり、反応によるものではない。Ni はロータリーキルンの本体材質であるため、一部摩耗により回収物中に混入したと考えられる。

フッ素残留分析の結果からは、Run 1-5 の反応条件『キルンの回転数の低下』により、フッ素の一部が脱離せず残留した結果が得られた。すなわち、回転数の低下により、キルン内部の攪拌性が低下し、 UO_2F_2 と反応ガスの接触効率が低下し、反応率が低下したと考えられる。ただし、以上の F 定性分析においてはサンプル量が微少であり、かつ微量を任意に抽出しているため、1 バッチのみの今回の結果を持って、条件設定を断定するのは難しい。

4.4.4 生成粉体の観察

反応生成物の主成分は $\text{UO}_{2.9}$ であることが同定させた。そこで、反応物の粉体性状を把握するために

下記の分析を行った。

(1) ビデオマイクロ撮影

UO_2F_2 の転換反応によって得られた粉体を写真 4-4 に示す。

(2) 粒度分布測定

各 Run における回収粉体の粒度分布の結果を添付試料 No.2 する。また、測定結果より回収粉体の平均粒径を表 4-5 にまとめる。

表 4-5 回収粉体の平均粒径

Run	Average Diameter (μm)
1-1	321.77
1-2	244.58
1-3	269.19
1-4	334.37
1-5	259.97
1-6	196.54
1-7	231.92
Total Ave.	265.5

回収粉体の平均粒径は、200~300 (μm) 程度であった。回収物中には微小粒径と推定される 5 (μm) 以下の粉体が 10%ほど含まれていた。

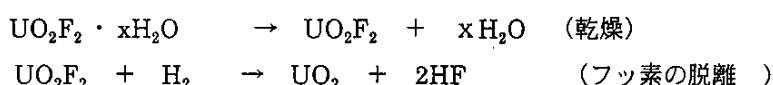
これらの微粉体は供試体として用いた UO_2F_2 の調製方法によるところが大きいと考えられる。 UO_2F_2 の調製過程において、乾固後乳鉢により細かく粉碎されるため、供試サンプル UO_2F_2 は微小粉体に形成された。

4.5 まとめ

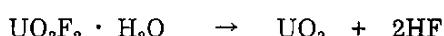
- (1) UO_2F_2 の転換反応試験は、プロセス上の問題点はなく定常な試験運転が可能であった。たとえば、キルン内圧の微負圧制御に関しても、オフガスラインのベロー型バルブの開度調製で安定して負圧維持が可能であった。(試験中のガス量の変動が少ないため)
- (2) 開放点検時、キルン内壁への生成粉体の固着・凝着はなく、薄く付着している程度であり、洗浄及びメンテナンスの面では容易であった。
- (3) UO_2F_2 の転換反応は、ほぼ試験条件によらず反応生成物は $[\text{UO}_{2.9}]$ に転換していた。

4.6 今後の課題

今回の試験では、水素分圧 0.04、600°C、で UO_3 が回収された。当初想定した UO_2F_2 の転換反応は、下記のような反応である。



しかしながら今回の試験で UO_3 が回収されたことから以下の反応が生じている可能性がある。(ただし、この反応に関する文献データはない。)



一旦 UO_3 が生成してしまうとこれを水素還元するのはかなり困難である。文献によれば UO_3 は

- ・ 水素分圧 0.26 (200torr)、500°C、60 分で 90%以上が UO_2 に還元される。
- ・ 水素分圧 0.066 (50torr)、400°C、100 分で 40%弱が UO_2 に還元される。
- ・ また、酸素分圧 0.013 (10torr) 下でも、1350°Cで熱分解により $\text{UO}_{2.2}$ に還元される。

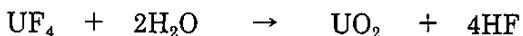
すなわち、今回の試験条件は UO_3 を 100%還元できる条件ではないが、全く UO_2 が生成しない条件でもない。もし UO_2 への水素還元反応が十分に進行する反応条件を探索するとすると、反応条件のパラメータとして、(1) 反応温度、(2) 水素分圧が挙げられる。ただし、本試験ではロータリーキルンを用い微負圧にて運転制御しており、キルン内部への空気の漏れこみの恐れがある。そのため、爆発限界以上に水素分圧を増加することは安全上問題がある。

従って、まず UO_3 が生成した原因を検討し、 UO_3 が生成しない反応条件を明らかにする方が得策と思われる。そのためにはまず組成の同定できる UO_2F_2 試料を使い、示差熱天秤程度の量で還元反応条件を確立することが必要であろう。

5. UF₄水蒸気反応（水蒸気酸化反応）

5.1 試験内容

UF₄を乾式法において水蒸気酸化反応させる試験であり、そのため、反応ガスとして水蒸気を用い小型ロータリーキルン内でUF₄を水蒸気酸化反応させる。水蒸気酸化反応は以下の反応式である。



基礎試験の目的は、反応式の成立性を確認するとともに、反応における最適条件の検討を行うものとする。

5.1.1 試験項目

反応式の成立性を確認するとともに、上記反応における最適条件の検討を行った。

UF₄の酸化物転換反応： 下記の条件をふって試験を行う。Run毎の運転条件を表5-1に示す。

表5-1 UF₄の酸化物転換反応

Run	温度		水蒸気投入量		回転数		反応時間		試験条件
	550	600	4	8	1	0.5	1	2	
2-1		○	○		○			○	〔基準条件〕
2-2		○		○	○			○	水蒸気分圧の影響
2-3	○		○		○			○	反応温度の影響
2-4		○	○		○		○		反応時間の影響
2-5		○	○			○		○	キルン回転数の影響
Total		5 Run							

5.1.2 試験方法

試験方法は、UO₂F₂の反応試験と同じ工程にて実施した。ロータリーキルン内にUF₄を約66g(U換算:25g)仕込み、反応ガスとして水蒸気を供給する。水蒸気の供給には後述の水蒸気発生器を用いた。

5.1.3 供試サンプル

供試サンプルであるUF₄はJNC段管理保管されていたものを使用した。サンプルの写真を写真5-1に示す。供試体であるUF₄のX線回折分析を行った。分析結果によると、サンプルは主成分がおおよそ4フッ化ウラン3/4水和物【UF₄・3/4H₂O】であると同定された。

5.1.4 試験プロセス

プロセスの概略を図5-1に示す。

- (1) UF₄を乾式法において水蒸気酸化反応させるプロセスである。そのため、反応ガスとして水蒸気を供給するため、水蒸気発生装置を用いる。【図5-2】
- (2) 水蒸気を用いた水蒸気酸化反応であるため、オフガスを処理するためにコールドトラップを設置した。オフガス中の水分および飛散粉体の回収を目的としており、そのため、オフガスはケミカルトラップを経由せず、コールドトラップを出たオフガスの最終処理は既設のアルカリスクラバ

一を用いた。

5.2 試験結果

5.2.1 試験運転温度履歴

反応試験における運転温度履歴を図 5-3 に示す。設定温度であるターゲット温度はキルン内雰囲気温度であり、チャート内では実線にて示す。

5.2.2 開放点検

試験運転後の開放点検の結果、各 Run ともキルン内壁への固着物は観察されなかった。一例として Run2-4 の解放点検時の状態を写真 5-2 に示す。キルン内壁において、生成物の採取がしにくいような強固な固着凝着状態は発生せず、微粉体の付着程度の状態であった。

(1) 転換反応後の粉体サンプリング

内部の観察後、生成物のサンプリングを実施した。サンプリングには気流槽式回収装置（サイクロン）を用いた。

回収粉体の性状は試験条件によらず、全 5Run とも粒状もしくは塊状であった。また、塊状の生成物はさほど大きくはなく、生成物同士が付着固着していき塊状サイズが成長していくようなものは観察されなかった。UO₂ の粒径が成長したわけではなく、供試サンプルとしてキルン内に投入した時点での、UF₄ の粒径が大きかったからである。(UF₄ の供試サンプルは乳鉢での粉碎工程はなく、サンプルサイズは 700~1000 μm 程度の粒状もしくは塊状であった。)

例として Run2-3 の回収物を写真 5-3 に示す。

次に、反応物の回収量の結果を表 5-2 に示す。また、投入した UF₄·3/4H₂O が全量反応し UO₂ に転換された場合、キルン内に残留する粉体の理論計算量を計算し、この理論量と実回収量の比を回収率として求めた。

表 5-2 開放点検およびサンプリング

	試料投入量		実回収量 [g]	理論量 [g]	回収率 [%]
	[g]	U [mol]			
Run 2-1	66.6	0.20	50.3	54.0	93
Run 2-2	66.4	0.20	46.8	54.0	87
Run 2-3	66.3	0.20	44.2	54.0	82
Run 2-4	66.3	0.20	49.1	54.0	91
Run 2-5	66.6	0.20	39.9	54.0	74
	試料は UF ₄ ·3/4H ₂ O である。			UO ₂ に転換したと理論計算。	(実回収量) ÷ (理論量)

表 5-2 より、

- ① 今回の試験において回収率は非常に高く、平均でも 85% 程度の回収率が得られた。UO₂F₂ の転換反応に比べ非常に高い回収率である。これは、キルン内に残留する生成物のサイズが比較的大きく、

回収作業が容易となり回収時のロスを抑えることが出来たからである。

- ② Run2-5においてのみ回収率が低いが、これは、回収時の作業工程の問題で回収を十分に行うことが出来なかつたため実回収量が少なかったものであり。反応条件による回収量の低下ではない。

(2) キルン系外への移行率

本反応試験においては、反応ガスとして水蒸気を用いており、そのためオフガスを処理するために図5-1に示すようにコールドトラップを設置した。コールドトラップはオフガス中の水分および飛散粉体の回収を目的としている。

試験運転後、コールドトラップを開放点検した際の測定結果を表5-3に示す。

表5-3 コールドトラップ開放点検結果

	水分			ウラン			ウラン量 [mg]
	水蒸気 投入量 [g]	凝縮水量 [g]	捕集率 [%]	F量 [g]	理論 発生量 [g]	捕集率 [%]	
Run 2-1	32.0	28.5	89	7.7	14.4	53	0.70
Run 2-2	62.1	44.4	71	6.7	14.4	46	0.76
Run 2-3	32.0	27.3	85	9.5	14.4	66	2.27
Run 2-4	31.3	26.0	83	8.1	14.4	56	1.06
Run 2-5	32.5	25.0	77	5.0	14.4	35	< 0.50
			(凝縮水量)/ (水蒸気投入量)		HFにて 移行と仮定	(F量)/ (理論発生量)	

コールドトラップの性能評価として、コールドトラップでの凝縮水の捕集率を求めた。

水分の捕集率は高く、投入水蒸気の8割程度を十分に捕集していた。

次に、キルン系外へのウランの移行率を求めた。コールドトラップにおいて測定されたウラン量より分かるように、ウランの飛散はほとんど抑制されていた。そこで、運転時においてオフガスに同伴して粉体はキルン系外に持ち出されることはないと考えられる。

5.3 分析結果

UF₄ 転換反応試験では、反応生成物の同定及び反応式の成立性を確認するために、サンプリングした粉体に関して以下の分析を行った。

- (1) X線回折分析 (2) TG/DTA による分析
(3) 生成粉体の観察 (・ビデオマイクロ撮影)

これらの項目について、分析結果をまとめると。

5.3.1 X線回折

サンプリングした生成物のX線回折を実施した。

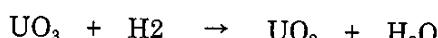
分析結果を図にまとめる。

- (1) 生成物の大部分は【UO_{2.2}】であることが同定させた。

- (2) Run 2-3・Run 2-4において、一部 $[\text{UO}_3]$ と同定されるピークが観察された。ただし、主成分としては $[\text{UO}_{2.2}]$ であると判断された。これは、 $\text{UO}_{2.2}$ のピークの方が強く明確に出ているためである。Run 2-3は「反応温度の影響」を観察するため、反応温度を 550°C と基準条件での 600°C より低温での反応条件であった。また、Run 2-4は「反応時間の影響」を観察するため、反応時間を 1 時間（基準条件 2 時間）という反応条件であった。

5.3.2 TG/DTA 分析

サンプリングした生成物の TG/DTA を実施した。TG/DTA 分析では、反応ガスとして H_2 (4 vol%)、反応温度は 1000°C まで昇温した。対象とする反応は下記に示す。



分析サンプルは Run 2-3 を用いた。これは、Run 2-3・Run 2-4においては、一部 UO_3 と同定される反応生成物に対して上記の還元反応を実施し、 UO_2 への未反応量を想定するためである。また、参考として Run 2-1 での回収物に関しても分析を行い比較した。

結果を図に示す。反応生成物は一度増量した後、 700°C より減量し始め減量率 2.0%まで減量した。重量の増量反応に関しては現在検討中であるが、最終的に TG/DTA 測定により生成したものは UO_2 であった。（反応後の粉体の X 線回折結果より同定。）

表 4-4 TG/DTA 解析結果

	重量減少		
	減量開始温度 [°C]	減量率 [%]	0-400 (°C)での減量 [%]
Run 2-1	700	1.1	-
Run 2-3	600	2.0	

5.3.3 生成粉体の観察

(1) ビデオマイクロ撮影

Run 2-3 の回収粉体をビデオマイクロ撮影した映像を写真 5-4 に示す。

5.4 まとめ

今回の試験結果より以下のことが述べられる。

- (1) 生成物の大部分は $[\text{UO}_{2.2}]$ であることが同定させた。
- (2) Run 2-3・Run 2-4において、一部 $[\text{UO}_3]$ と同定されるピークが観察された。ただし、主成分としては $[\text{UO}_{2.2}]$ であった。これは、 $\text{UO}_{2.2}$ のピークの方が強く明確に出ているためである。一部が存在の確認された UO_3 については、転換反応により生じたとは想定できない。サンプル UF_4 中に混ざっていたものと考えられる。
- (3) UF_4 の転換反応における十分条件とすると、「反応温度 600°C 」「反応時間 2 時間」が基準条件と設定される。

5.5 今後の課題

UF_4 を乾式法において水蒸気酸化反応させる試験により、 UO_2 が回収された。水蒸気を用いた乾式法によるプロセスとして問題なく試験を実施することが出来た。

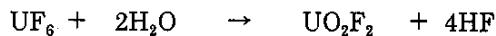
また、反応条件のパラメータとして、水蒸気の投入量に関しては試験条件での、2倍当量、4倍当量ともに十分な反応性を示すことが出来た。一方、反応温度、反応時間については、反応温度 600°C、反応時間 2 時間が反応に対する必要条件であると考えられる。

UF_4 の乾式法において水蒸気酸化反応は現状のプロセスと反応条件において反応が行われると考えられるため、今後の課題としては、反応率の向上を目的とした試験に移行していくべきである。それには生成量を把握しなければならないが、現在の回収方法では生成物全量の回収は難しく、生成物側から反応率を求めることが出来ない。このため、仕込量と系外への逃散量から生成量を推定するしかなく、コールドトラップでの捕捉率を確認しておく必要がある。

6. UF₆の水蒸気反応

6.1 試験内容

UF₆を乾式法において水蒸気酸化反応させる試験であり、そのため、反応ガスとして水蒸気を用い小型ロータリーキルン内でUF₆を水蒸気酸化反応させる。水蒸気酸化反応は以下の反応式である。



基礎試験の目的は、反応式の成立性を確認するとともに、反応における最適条件の検討を行うものとする。また、UF₆(G)の定量供給を実施するため、試験プロセスにおいて、UF₆供給ラインを設置した。

6.1.1 試験項目

反応式の成立性を確認するとともに、上記反応における最適条件の検討を行った。

UF₆の酸化物転換反応： 下記の条件をふって試験を行う。Run毎の運転条件を表6-1に示す。

表6-1 UF₆の水蒸気酸化反応

Run	温度		水蒸気投入量		回転数		UF ₆ (G)投入量		試験条件
	550	600	4	8	1	0.5	1	2	
3-1		○	○			○		○	[基準条件]
3-2		○	○			○	○		UF ₆ (G)投入量
<i>Total</i>		<i>2 Run</i>							

6.1.2 試験プロセス

本試験ではUF₆供給ラインを設置し、UF₆(G)に関する定量ガス供給のためにJNC殿所有のマスフローコントローラを借用し供給ラインに組み込んだ。マスフローコントローラの仕様は、使用条件：80°C、1kgf/cm²において最大100ccmである。上記のマスフローコントローラを用いてUF₆供給ラインを作成した。使用温度条件80°Cより、ライン全系を恒温槽に収納した。UF₆供給ラインを写真6-1に示す。また、試験プロセス下流側においても、UF₆の別途処理系としてケミカルトラップが必要となった。

さらにUF₆(G)を扱う上で事前対応として、供給配管中のフッ素ベーキングの必要性があったため、フッ素ボンベを設置した配管系統となる。配管系統を図6-1に示す。

6.1.3 試験方法

ロータリーキルンを用いた反応の手順の概略を示す。

[事前準備]・UF₆供給ラインの真空脱気、UF₆の加熱保温。恒温槽80°Cにて保温。

①キルン内を窒素(約1L/min)でバージする。30分間バージ後に昇温作業に移行する。

②キルン外部ヒーターを用いて反応設定温度まで昇温する。

その際に、キルンは0.5(rpm)にて回転させる。

③キルン内部の雰囲気温度[Re-6]が設定温度(反応温度)に達する。

④水蒸気発生器を起動させ、供給所定量の水蒸気を発生させる。

水蒸気の発生量が安定したら、水蒸気をロータリーキルン内部に供給する。

⑤UF₆供給系統を準備する。UF₆保管用シリンドラを加熱させる。

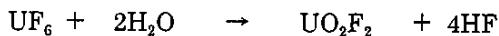
⑥UF₆供給系の圧力を1kgf/cm²にて安定させる。(バルブ開度調製)。圧力を一定に保持した後、UF₆仕様マスフローコントローラを用いて100ccm定量供給する。(UF₆仕様マスフローコントローラ)

ラ；JNC 殿備品借用)

- ⑦ロータリーキルン内に水蒸気およびUF₆を定量供給させ、UO₂F₂への水蒸気酸化反応を開始する。
- ⑧反応時間後、反応ガス（UF₆、水蒸気）の供給を停止しバージ用窒素（約1L/min）を投入する。
外部ヒーターをOFFとしキルンを自然冷却させる。
- ⑨UF₆供給系統を窒素で置換を行う。（真空引き）
- ⑩冷却によりキルン内温度が250°C以下になったら、キルンを停止する。
- ⑪翌日、キルン内温度確認後、キルン内部を開放点検行う。

6.1.4 試験条件

試験条件は、UF₆の水蒸気酸化反応を示す下式より、各反応当量を算出した。



反応式から得られた各反応ガスの投入量を下表に示す。水蒸気投入量を4倍当量としてキルン内部を十分な水蒸気雰囲気とする事で、UF₆との気相反応を完結させるのが目的である。水蒸気の投入量制御に関しては、UF₄転換試験で用いた水蒸気発生装置を用いるので問題はない。UF₆の投入量制御はUF₆仕様マスフローコントローラ（JNC 殿備品）を用いる。

表 6-2 UF₆の水蒸気酸化反応

	UF ₆ 投入量		水蒸気投入量 [g/min]	
	[g/min]	[cc/min]	1倍当量	4倍当量
Run 3-1	1.2	100	0.12	0.50
Run 3-2	1.2	100	0.12	0.50
	FICによる制御。 1kgf/cm ² 、80°C			

6.2 試験結果

6.2.1 試験運転温度履歴

反応試験における運転温度履歴を図 6-2 に示す。設定温度であるターゲット温度はキルン内雰囲気温度であり、チャート内では実線にて示す。

6.2.2 UF₆投入量の検証

試験結果を表 6-3 に示す。今回の試験において、UF₆の定量供給を行うため、UF₆用のマスフローコントローラを用いたが、表よりマスフローコントローラによる流量制御が不十分であったことが分かる。そのため、Run3-1 に関しては UF₆において反応余剰量が発生してしまった。余剰 UF₆は、キルン下流に設置していたコールドトラップ内部において凝縮水と反応して UO₂F₂として捕集できた。後述するように、その際トラップ内において生成した UO₂F₂によりトラップ内ライン（1/4"配管）が閉塞し、試験運転の支障となった。

表 6-3 UF₆の水蒸気酸化反応結果

	シリカ - 重量 [g]		UF ₆ 投入量		理論量	水蒸気投入量	余剰 UF ₆ 量
	前	後	[g]	[g/min]	[g/min]	[g/min]	[g/min]
Run 3-1	3982	3665	317	10.6	1.2	0.50	5.7
Run 3-2	3665	3589	76	2.5	1.2	0.50	—
			投入時間 30min		UF ₆ 理論値の 4倍当量		

6.2.3 開放点検

(1) キルン内開放点検

試験運転後の開放点検の結果を写真 6-2, 6-3 に示す。今回の試験においては、供給水蒸気に対して UF₆ の過剰投入が生じた。開放点検の結果、キルン内壁には粉体が付着している状態を観察できた。

図より分かるように、Run3-1・Run3-2 ともキルン内壁全体に粉体が付着しているのが観察できる。

- 粉体の付着量は、Run3-1 の方が明らかに多かった。これは、UF₆ の過剰投入量が Run3-1 の場合の方が多いためであると考えられる。
- 粉体の付着はキルン内壁全体に及んでおり、比較的低温であるキルン入口側においても粉体の付着が観察された。(入口フード部含む。)
- 粉体の付着状況は付着力としては小さく、壁面への固着凝着といった強い付着状態ではなかった。そのため、粉体回収装置を用いた気流による回収で十分に回収可能であった。

(2) キルン系外の開放点検結果

UF₆ の水蒸気酸化反応試験において、図 6-1 に示すようにコールドトラップを設置した。試験運転後のコールドトラップ内を開放点検した結果、コールドトラップ内の配管 1/4" が付着物により閉塞気味になっていた。

この付着物の由来を考察すると、(a) キルン内から生成物 (UO₂F₂) がオフガスに同伴し飛散して下流のラインに付着したもの。(b) コールドトラップ内にて生成したものの 2 通りの考察がされる。(a)に関しては、キルンからコールドトラップまでの配管中において UO₂F₂ が観察されなかつたため、オフガスに同伴し飛散した粉体量はほとんどないとは考えられる。従って、今回の試験では過剰な UF₆ の投入により余剰な UF₆ がコールドトラップに流出し、トラップ内で UO₂F₂ が生成したものと考えられる。

(3) 回収粉体の性状

内部の観察後、生成物のサンプリングを実施した。ただし、サンプリングにおいては気流槽式回収装置（サイクロン）を用いた。

回収粉体の性状は、写真 6-4 に示すように、白色で非常に微粉体であった。

6.3 分析結果

本反応試験においては、反応生成物の同定及び反応式の成立性を確認するために、サンプリングした粉体に関して以下の分析を行った。

- (1) X線回折分析
- (2) 生成粉体の観察（ビデオマイクロ撮影）

これらの項目について、分析結果をまとめる。

6.3.1 X 線回折

サンプリングした生成物の X 線回折を実施した。分析結果を添付資料 No.3 にまとめる。

X 線回折装置を用いた分析に際して吸着剤を用いたが UO_2F_2 は溶解することなく X 線回折分析を実施出来た。分析結果として、生成物の大部分は【 UO_2F_2 】であると同定された。とくに、 UO_2F_2 ・無水和物が主体であると同定された。

6.3.2 生成粉体の観察

ビデオマイクロ撮影の結果より、転換生成されて粉体の粒径は非常に微粉であった。例として Run3-2 の回収粉体の映像を写真 6-5 に示す。粒径として、0.001~0.01mm 程度であると考えられる。(粒度分布測定未定)

6.4まとめ

UF_6 を乾式法において水蒸気酸化反応させる試験を行い、反応ガスとして水蒸気を用い小型ロータリーキルン内で UF_6 を水蒸気酸化反応させた。その結果、キルン内での生成物の大部分は【 UO_2F_2 】であることが同定させた。

すなわち、水蒸気酸化による UO_2F_2 への反応は比較的早い反応であり、キルン内部を水蒸気雰囲気に保つておけば、 UO_2F_2 への転換が行えると考えられる。今回の試験結果からは、噴霧状態の違いによる生成率への影響を観察できなかった。

- (1) UF_6 用のマスフローコントローラを用いたが、マスフローコントローラによる流量制御十分でなかった。
- (2) UF_6 の水蒸気酸化反応により、 UO_2F_2 が生成されていた。
- (3) 開放点検の結果、 UO_2F_2 の生成状況はキルン内壁全体に及んでいた。

6.5 今後の課題

今回の試験で、反応ガスとして水蒸気を用いた UF_6 の乾式法において UO_2F_2 への水蒸気酸化反応が、小型ロータリーキルンをもちいて行えることが実証された。ただし、 UF_6 用のマスフローコントローラによる流量制御が不十分であり、反応率を追うための十分な結果を得ることが出来なかった。

今後の課題は、 UF_6 の流量制御（投入量を明確化する）を正確に行い、かつ系外への逃散量を把握することによって反応率を定量的に評価できるようにすることである。その上で、反応率への影響をあたえるパラメータ（反応温度、噴霧方法、反応雰囲気）を検討する。

また、開放点検結果より、粉体の付着がキルン全体に及んでおり、低温部での粉体の付着も確認された今後、連段での反応試験を行う場合、 UO_2F_2 の生成箇所を加熱部に限定しなければならず、 UF_6 の噴霧方法を検討し、 UO_2F_2 の生成箇所の拡大を抑制する必要がある。現状の変更点とすると図 6-3 のように、噴霧方向を変更し、積極的に特定のキルン内壁にて付着を増進させるプロセスを考慮する必要があると考えられる。

7. おわりに

UF₆ および UF₄ の乾式法による酸化物転換反応 (UF₆ の水蒸気酸化反応、UO₂F₂ の水素還元反応、UF₄ の水蒸気酸化反応) について基礎試験を行い、以下の知見を得た。

- (1) UO₂F₂ の転換反応試験は、プロセス上の問題点はなく定常な試験運転が可能であった。開放点検時、キルン内壁への生成粉体の固着・凝着はなく、薄く付着している程度であり、洗浄及びメンテナンスの面では容易であった。最終的に、UO₂F₂ の転換反応は、ほぼ試験条件によらず反応生成物は [UO_{2.9}] に転換していた。
- (2) UF₄ の転換反応における生成物の大部分は [UO_{2.2}] であることが同定させた。Run 2-3・Run 2-4において、一部 [UO₃] と同定されるピークが観察されたが、主成分としては [UO_{2.2}] であった。「反応温度 600℃」「反応時間 2 時間」が [UO_{2.2}] への転換反応の十分条件と考えられる。
- (3) UF₆ を乾式法において水蒸気酸化反応させる試験では、キルン内の生成物の大部分は [UO₂F₂] であると同定された。すなわち、水蒸気酸化による UO₂F₂ への反応は非常にはやい反応であり、キルン内部を水蒸気雰囲気に保つておけば、UO₂F₂ への転換が行えると考えられる。

キルン内壁面に付着する物はない。
また、キルン内壁面の粉体が飛散しない
ではない。

・内窓壁
・酸素 (O₂)

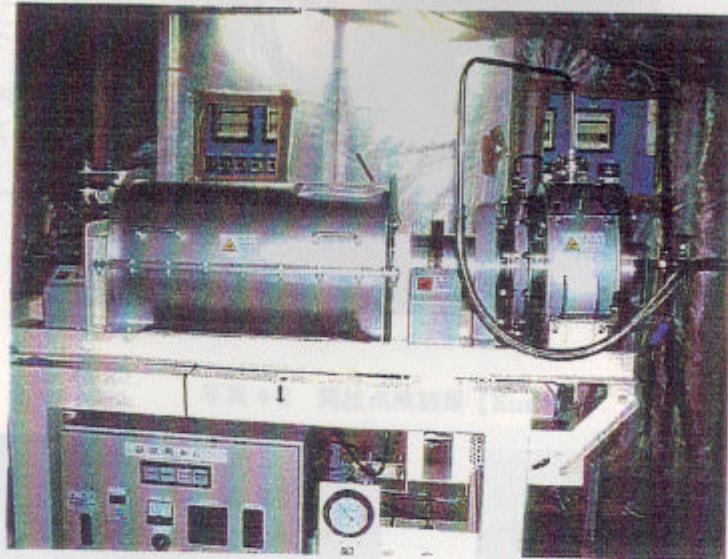


写真 3-1 小型ロータリーキルン装置

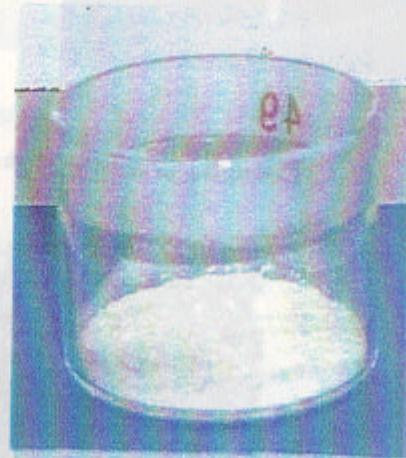


写真 4-1 調製サンプル 【UO₂F₂】

・内窓壁
・酸素 (O₂)

写真 4-4 ピデオマイクロ撮影【撮影例：回収粉体】



写真 4-2 開放点検結果【Run 1-3】

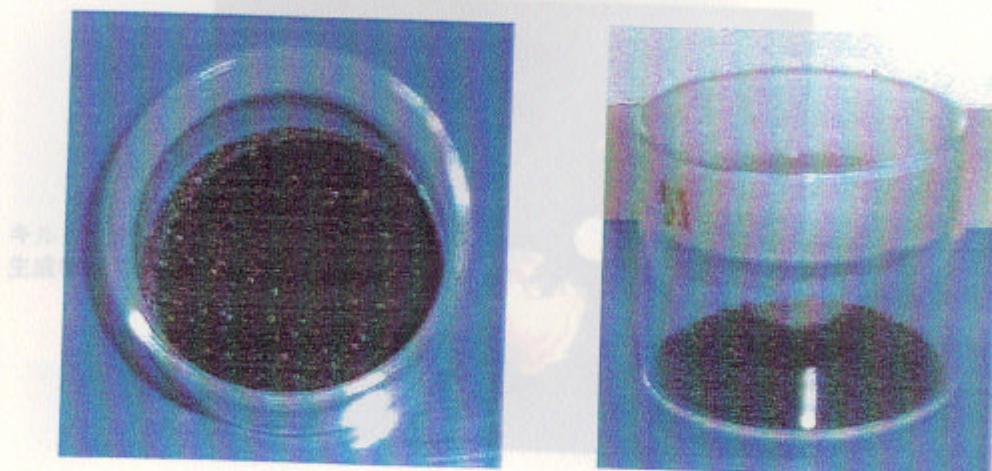


写真 4-3 UO_2F_2 還元反応後のキルン内回収物【Run 1-2】



写真 4-4 ビデオマイクロ撮影【撮影例：回収粉体 Run1-2】

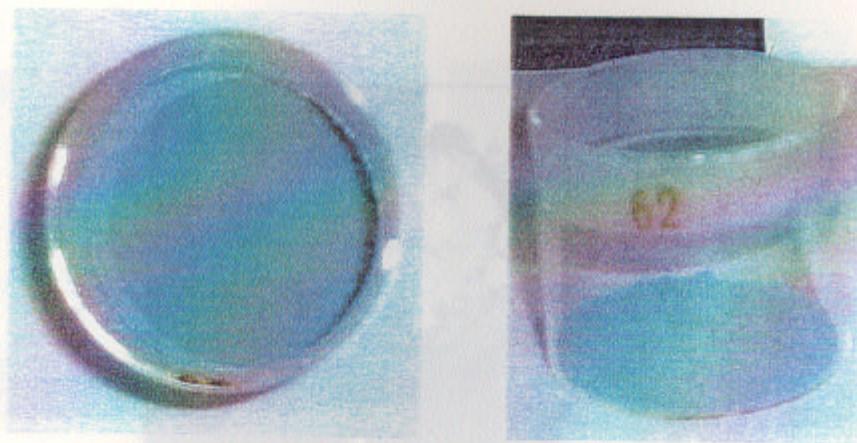


写真 5-1 調製サンプル 【UF₄】

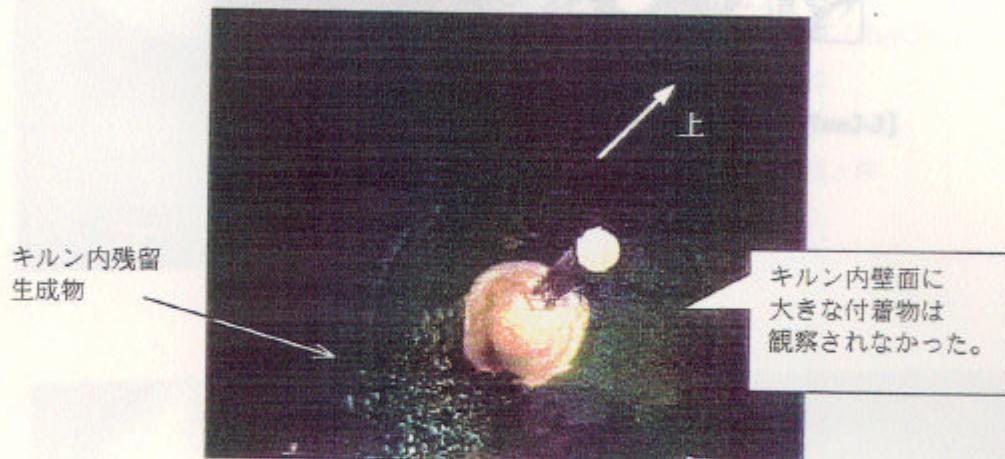


写真 5-2 開放点検結果【Run2-4】

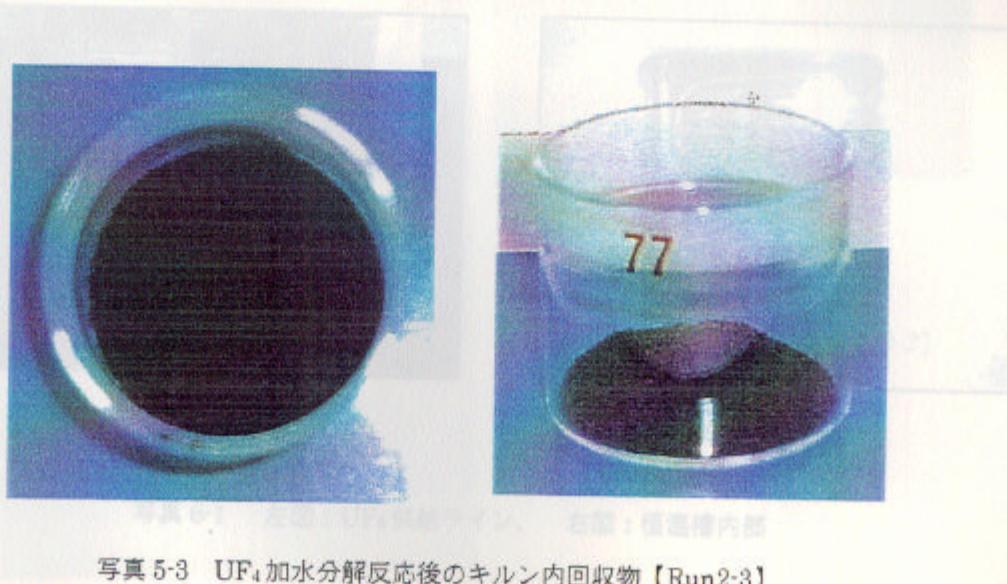


写真 5-3 UF₄加水分解反応後のキルン内回収物【Run2-3】

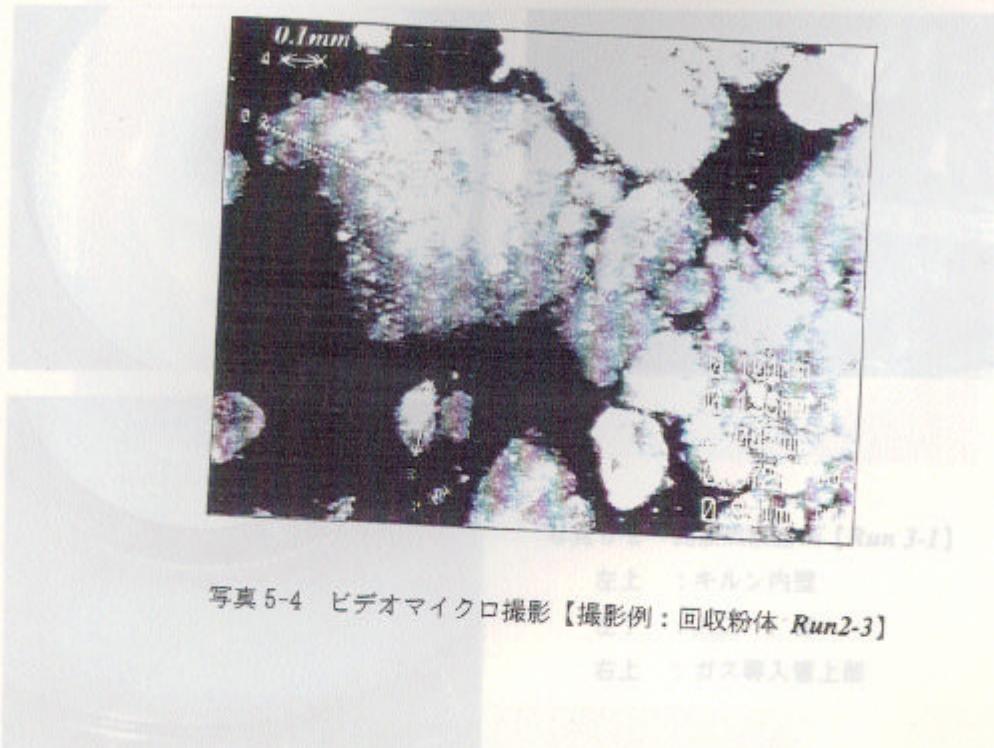


写真 5-4 ビデオマイクロ撮影【撮影例：回収粉体 Run2-3】

右上：ガス導入管上部

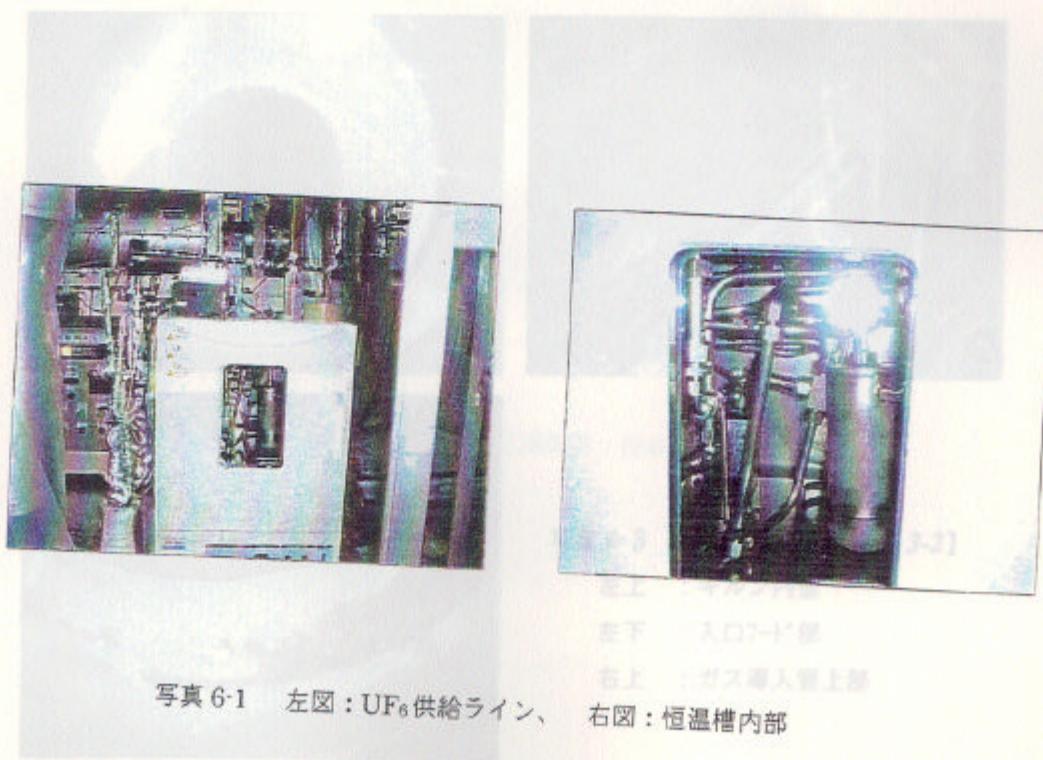


写真 6-1 左図：UF₆供給ライン、右図：恒温槽内部

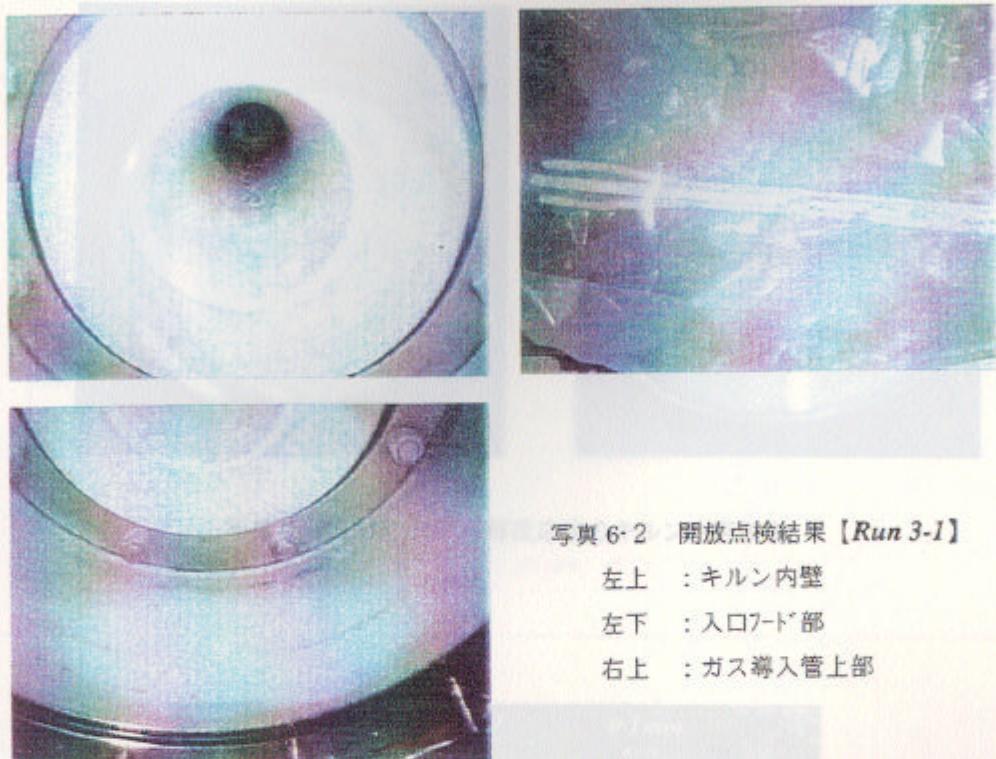


写真 6-2 開放点検結果【Run 3-1】

- 左上：キルン内壁
- 左下：入口フード部
- 右上：ガス導入管上部

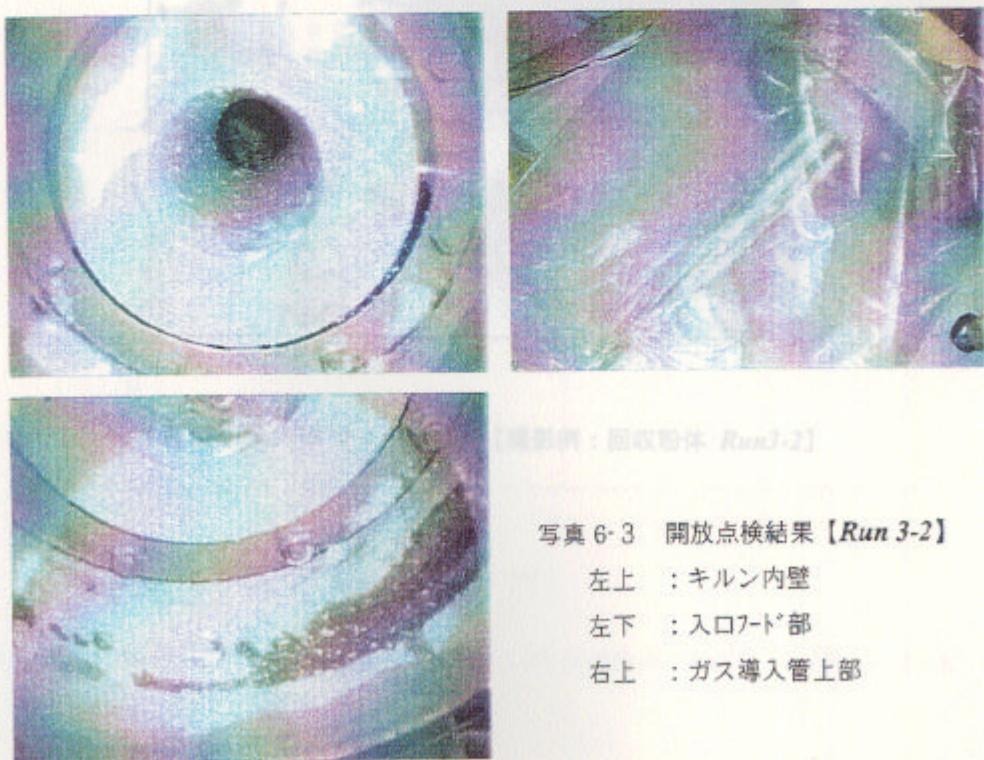


写真 6-3 開放点検結果【Run 3-2】

- 左上：キルン内壁
- 左下：入口フード部
- 右上：ガス導入管上部

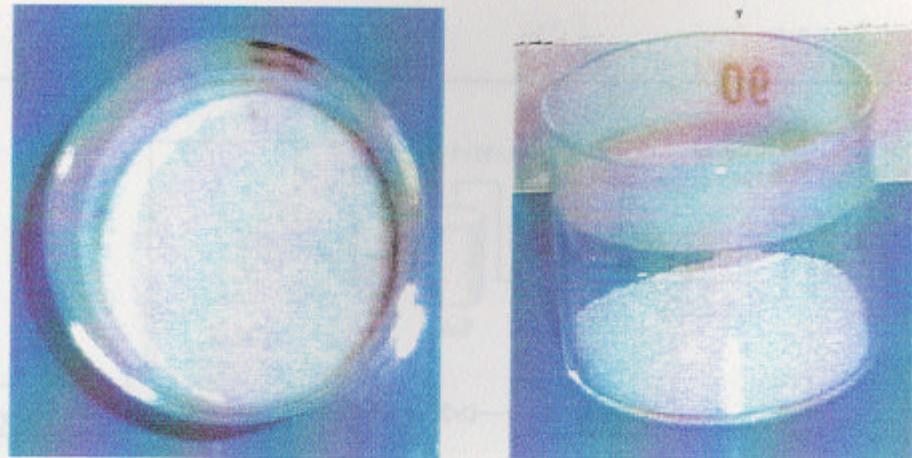


写真 6・4 UF_6 加水分解反応後のキルン内回収物

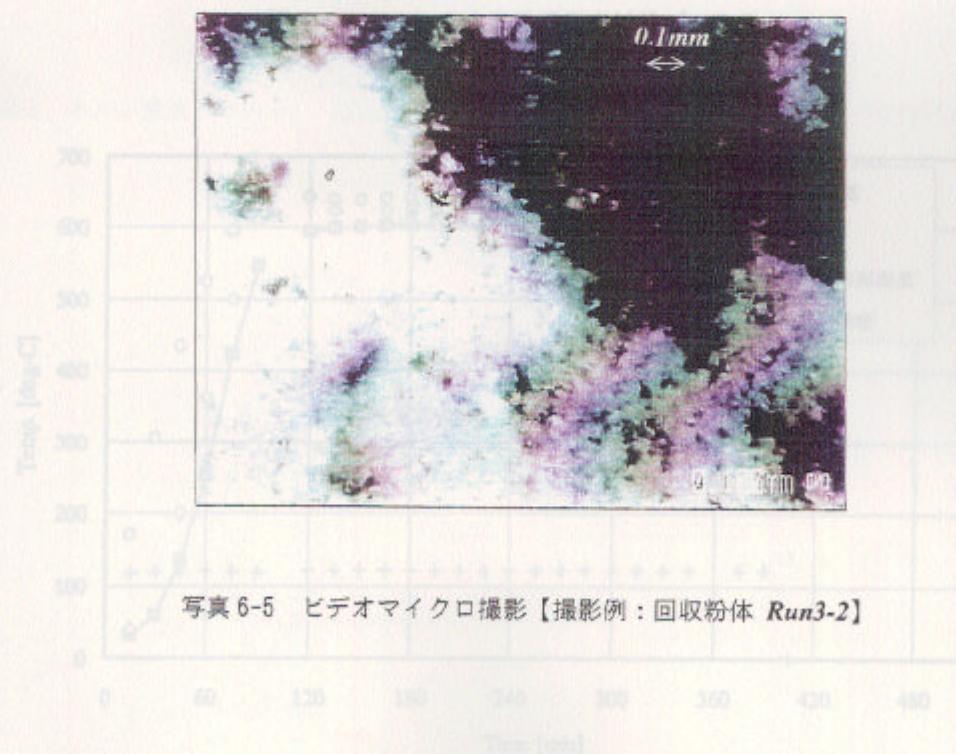


図 6-2 キルン反応運転の温度データ(1) [写真 6-4] 反応温度 600°C、反応時間 1 hr

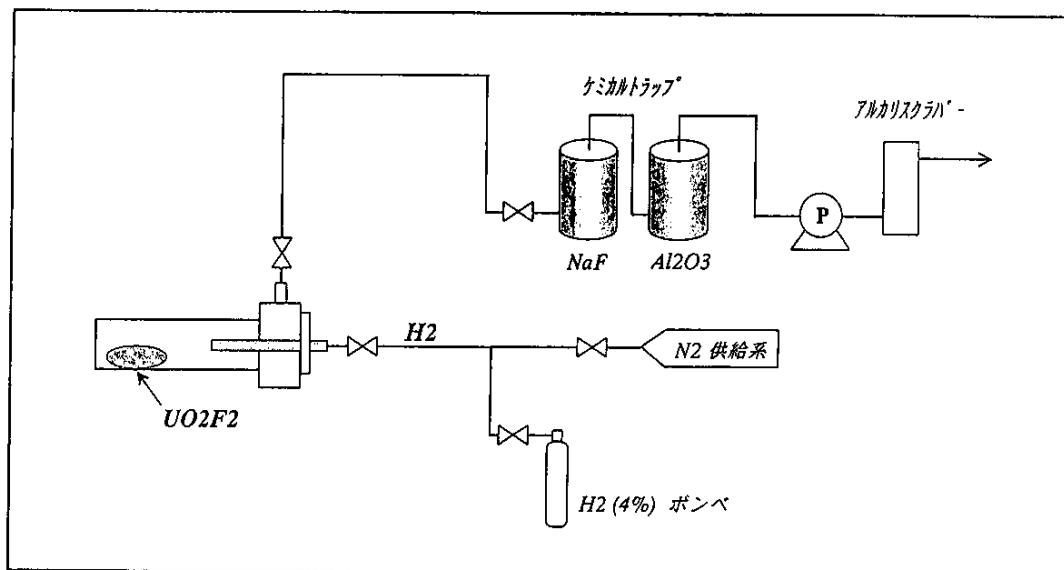


図 4-1 UO_2F_2 の水素還元反応試験プロセス

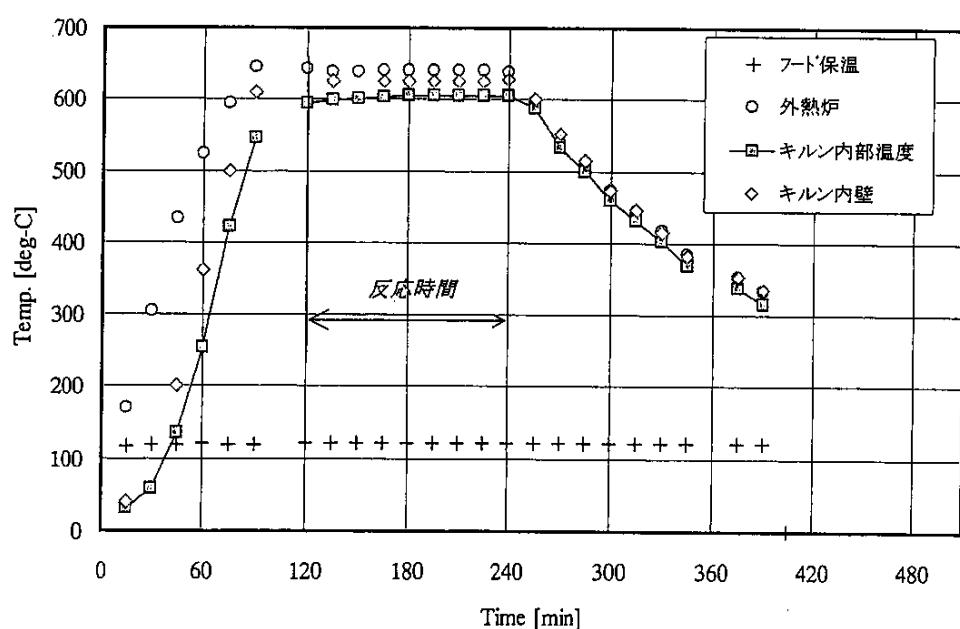


図 4-2 キルン反応運転の温度チャート 【Run 1-4】 反応温度 600°C、反応時間 2 hrs

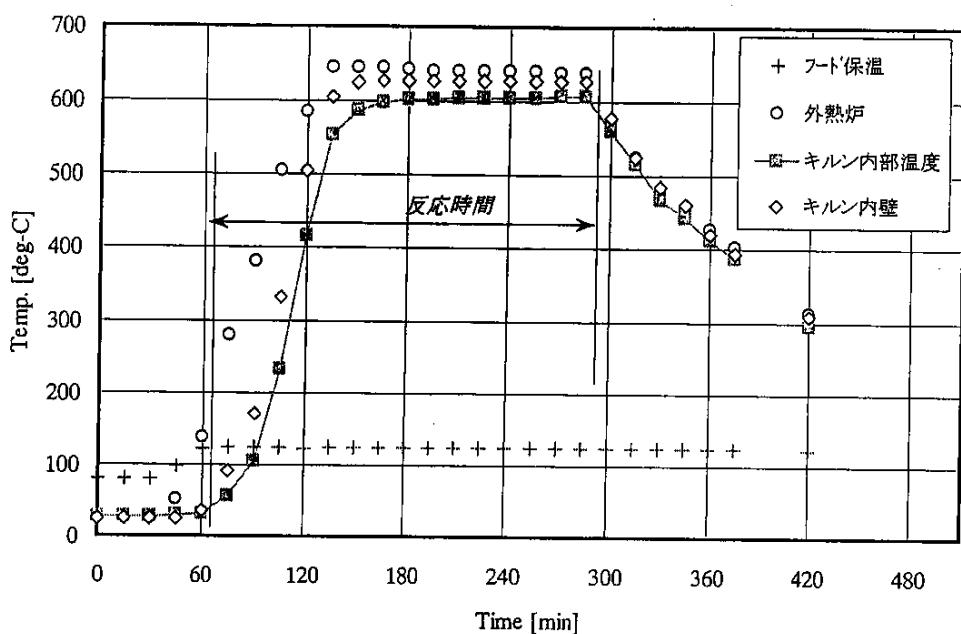


図 4-3 キルン温度チャート 【Run 1-7】 反応温度 600°C、反応時間 4 hrs (昇温時間含む)

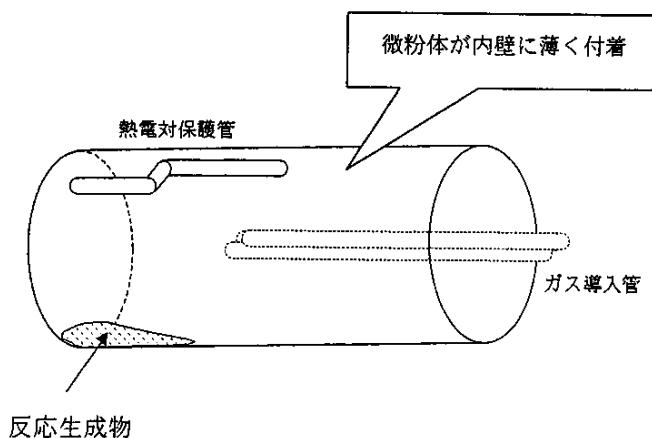


図 4-4 キルン開放点検結果

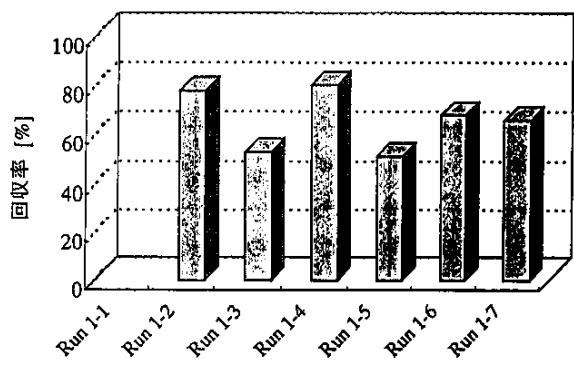


図 4-5 各 Run におけるサンプリング時の回収率（理論比）

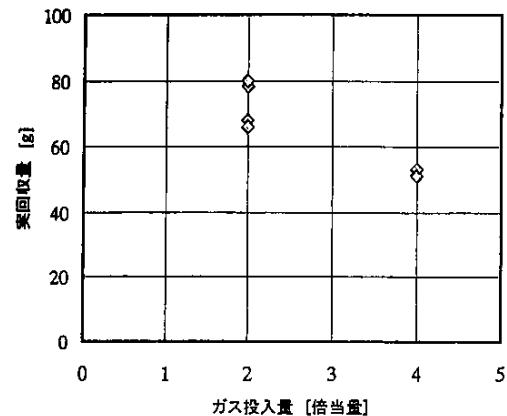


図 4-6 サンプリング回収率とガス投入量の関係

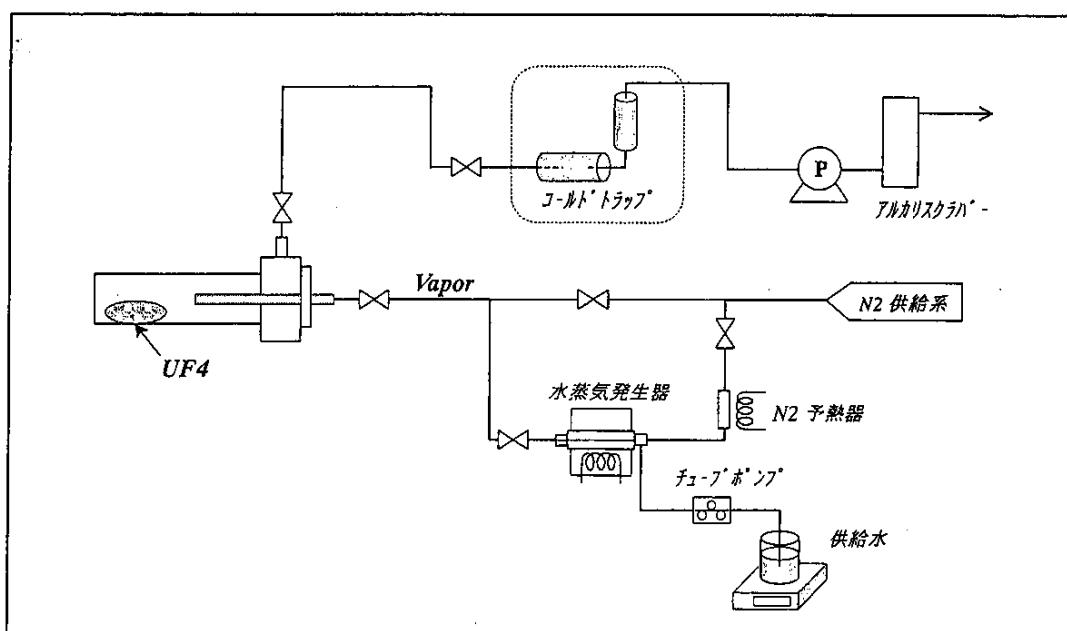


図 5-1 UF4 の酸化物転換反応プロセス

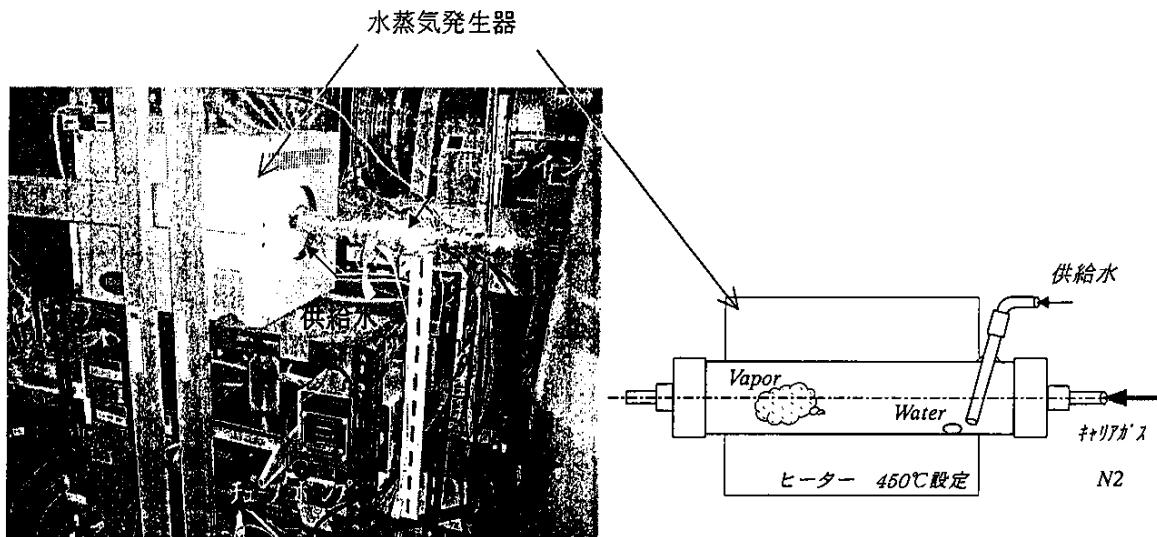


図 5-2 水蒸気発生器（左：実機写真、右：発生器内概要図）

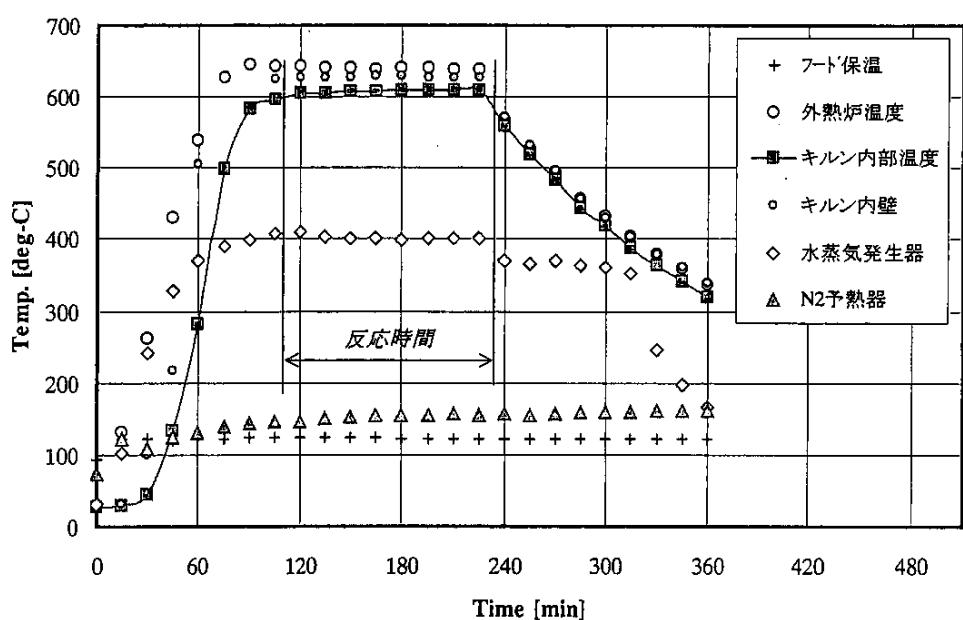


図 5-3 キルン内部温度チャート [Run2-1] 反応温度 600°C、反応時間 2 hr

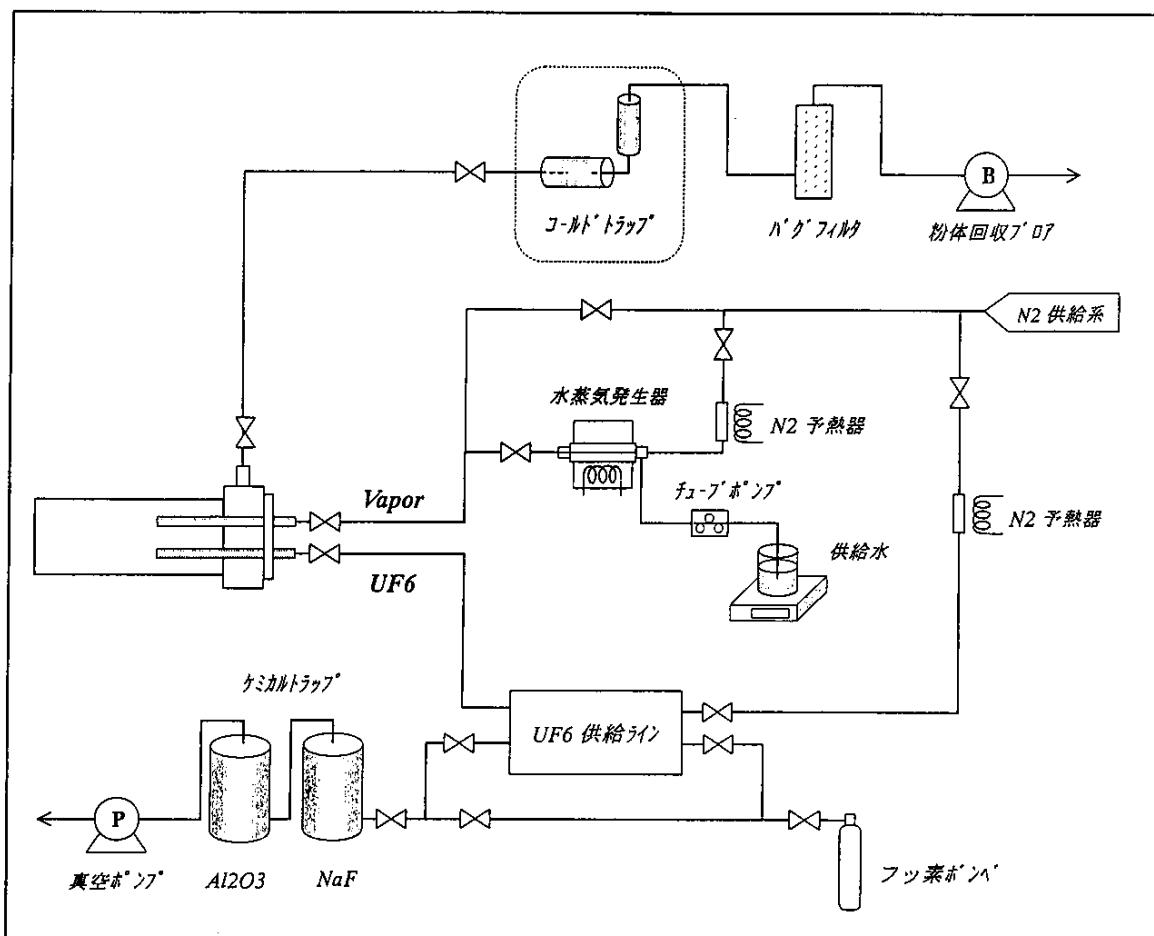


図 6-1 $\text{UF}_6(\text{G})$ の乾式法加水分解反応試験配管系統図

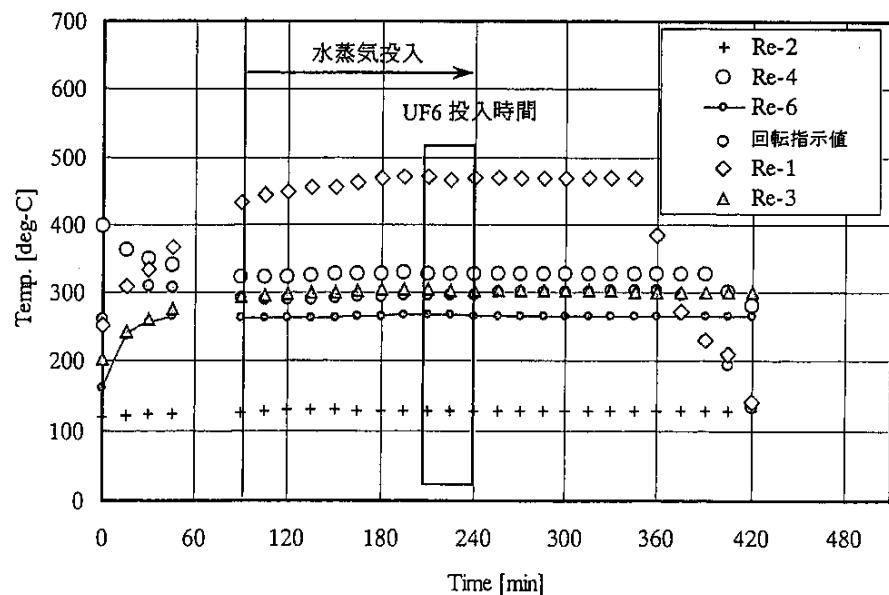


図 6-2 キルン内部温度チャート ([Run3-2] 反応温度 250°C、反応時間 30min)

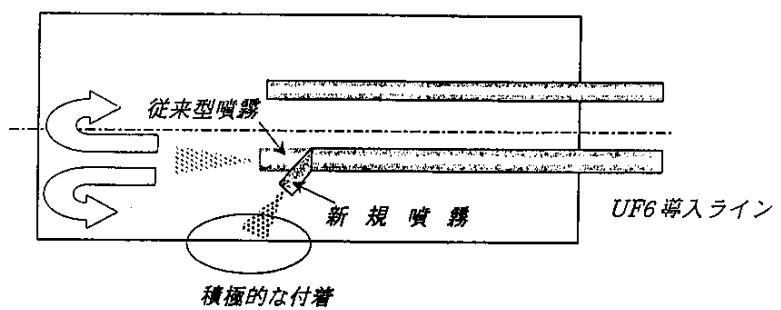
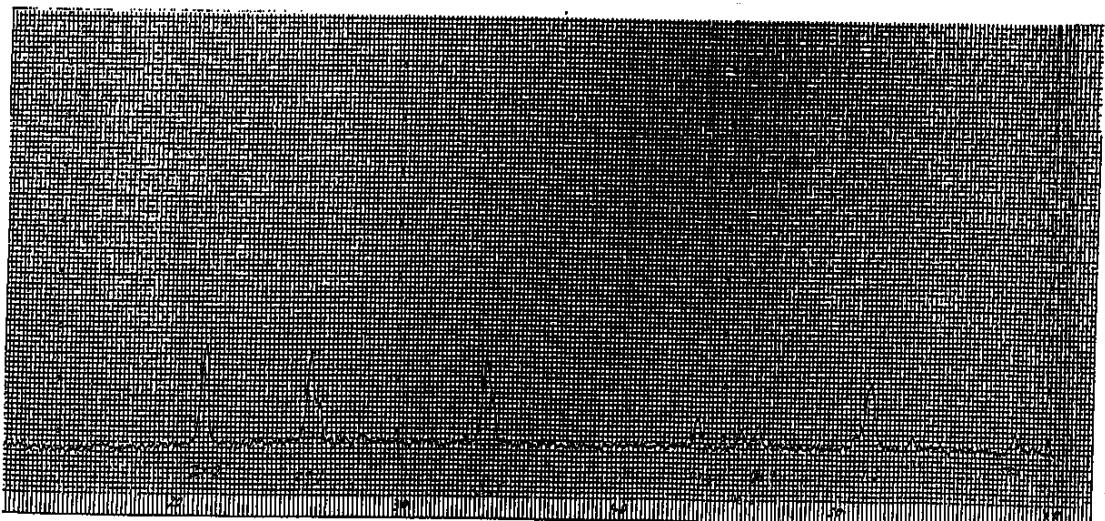


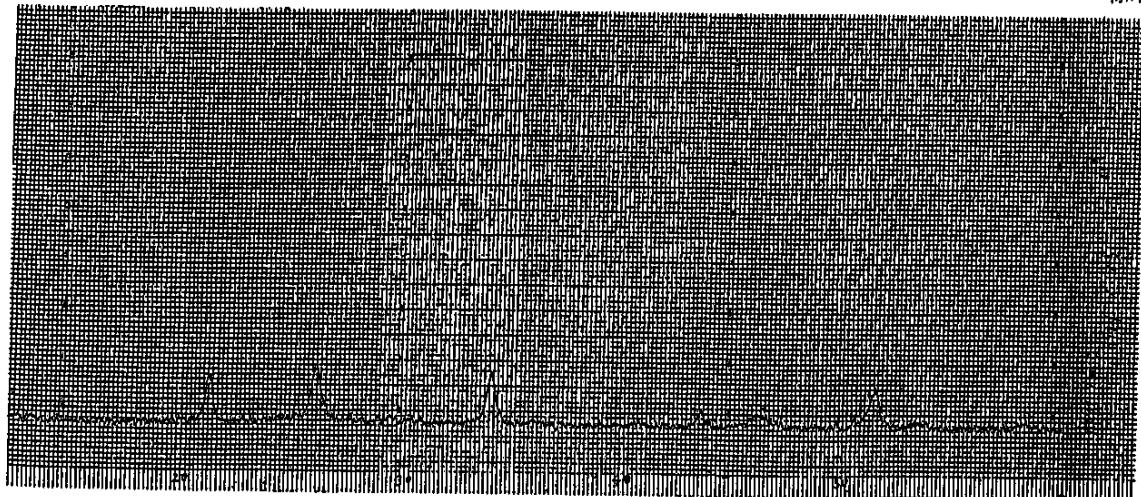
図 6-3 UF_6 噴霧パターンの変更例

添付資料

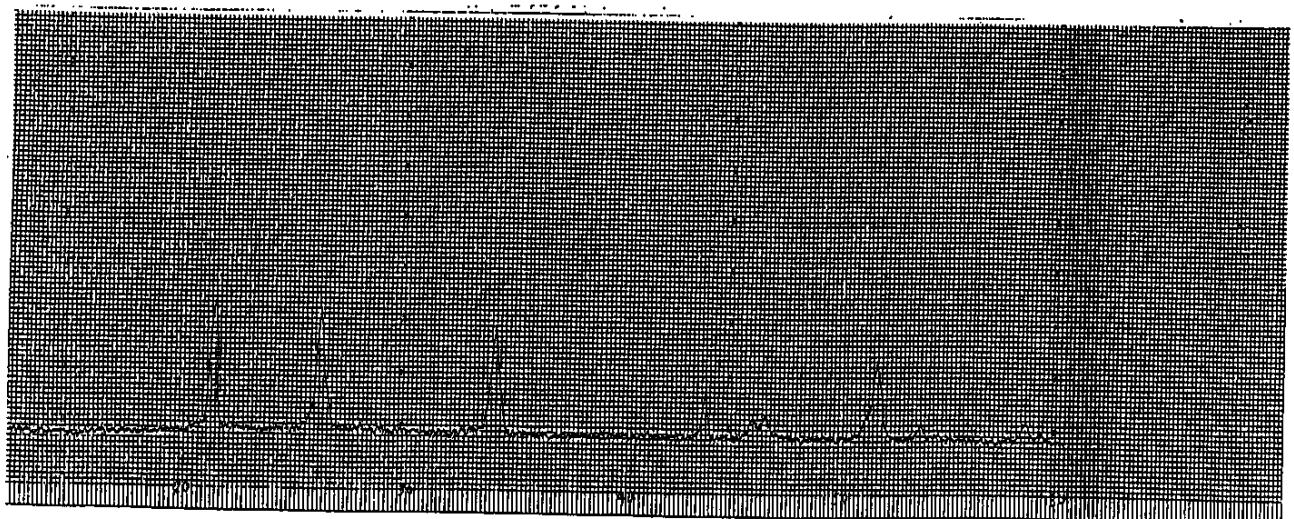
- 添付図 1 X線回折分析結果 Run1-1 回収粉体
添付図 2 X線回折分析結果 Run1-2 回収粉体
添付図 3 X線回折分析結果 Run1-3 回収粉体
添付図 4 X線回折分析結果 Run1-4 回収粉体
添付図 5 X線回折分析結果 Run1-5 回収粉体
添付図 6 X線回折分析結果 Run1-6 回収粉体
添付図 7 X線回折分析結果 Run1-7 回収粉体
添付図 8 X線回折分析結果 Run1..TG/DTA 測定後、残留粉体
- 添付図 9 TG/DTA 測定結果 Run1-1 回収粉体
添付図 10 TG/DTA 測定結果 Run1-3 回収粉体
添付図 11 TG/DTA 測定結果 Run1-4 回収粉体
添付図 12 TG/DTA 測定結果 Run1-6 回収粉体
- 添付図 13 粒度分布測定結果 Run1-2 回収粉体
- 添付図 14 X線回折分析結果 Run2-1 回収粉体
添付図 15 X線回折分析結果 Run2-2 回収粉体
添付図 16 X線回折分析結果 Run2-3 回収粉体
添付図 17 X線回折分析結果 Run2-4 回収粉体
添付図 18 X線回折分析結果 Run2-5 回収粉体
添付図 19 X線回折分析結果 Run2..TG/DTA 測定後、残留粉体



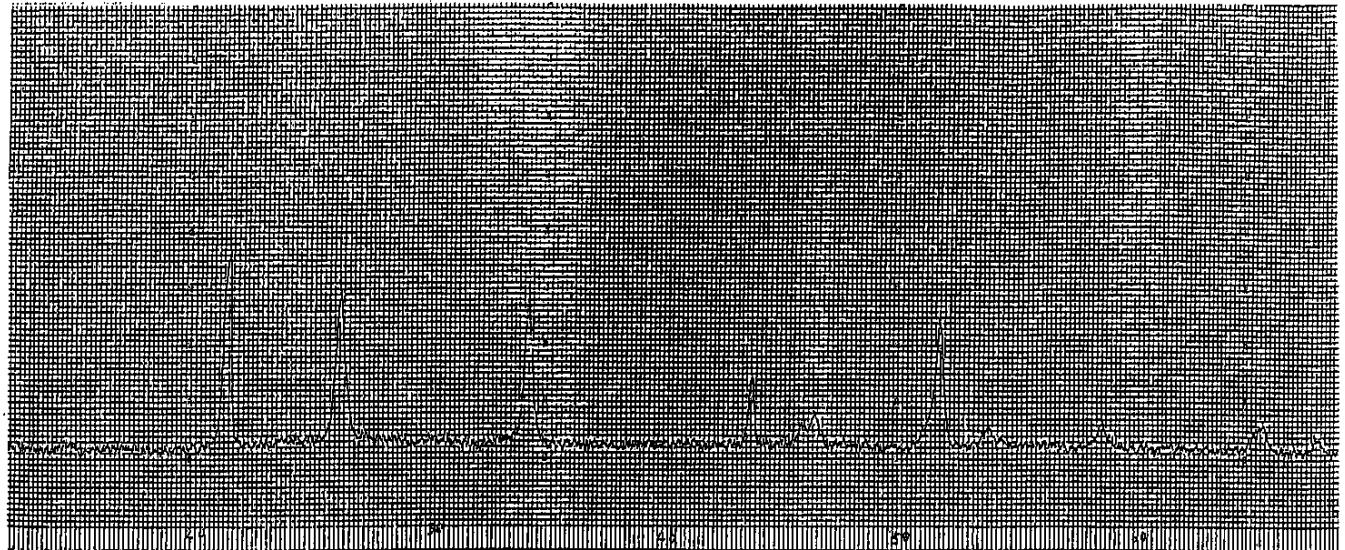
添付図 1



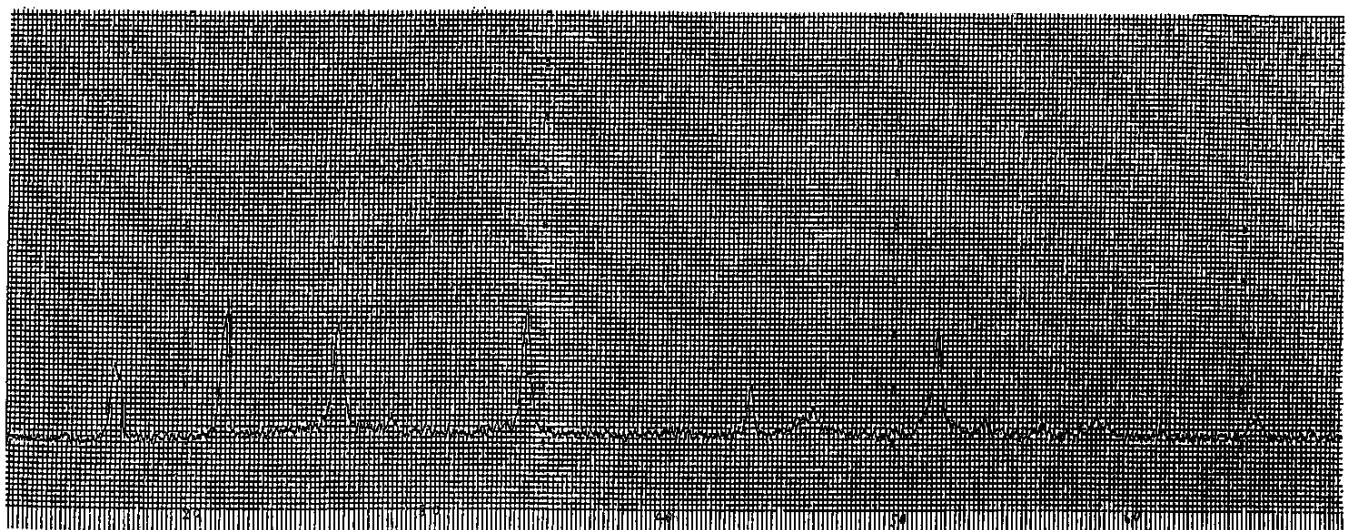
添付図 2



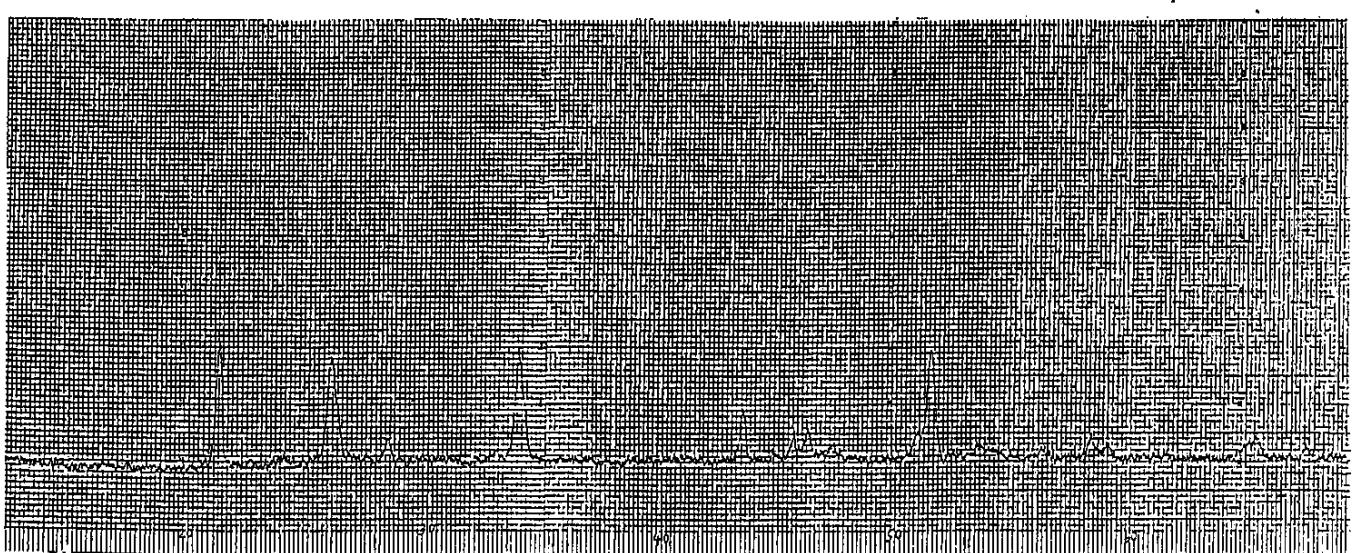
添付図 3



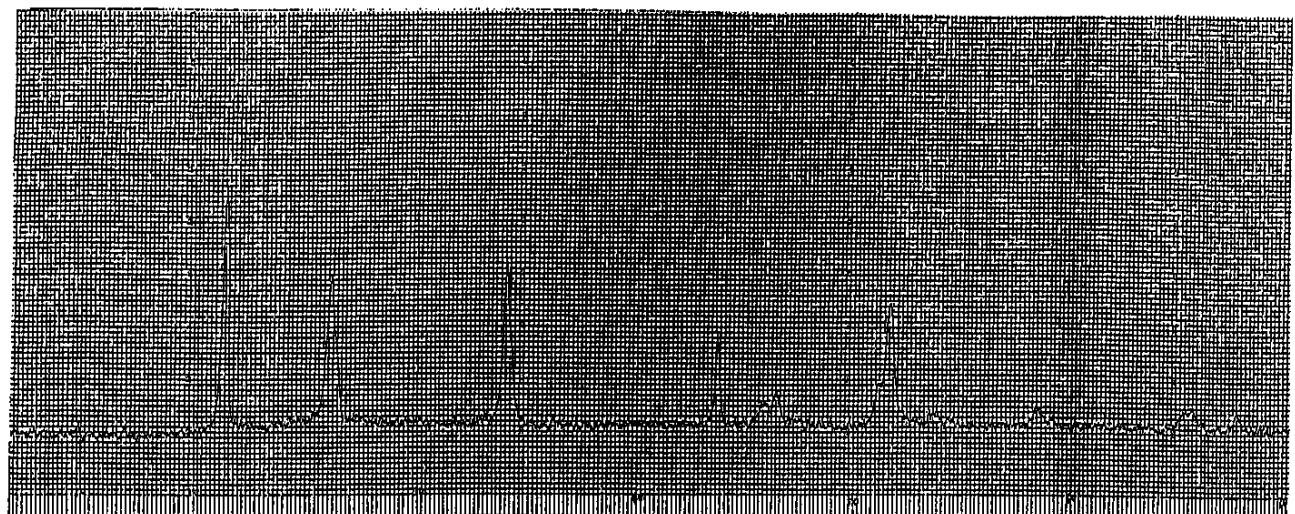
添付図 4



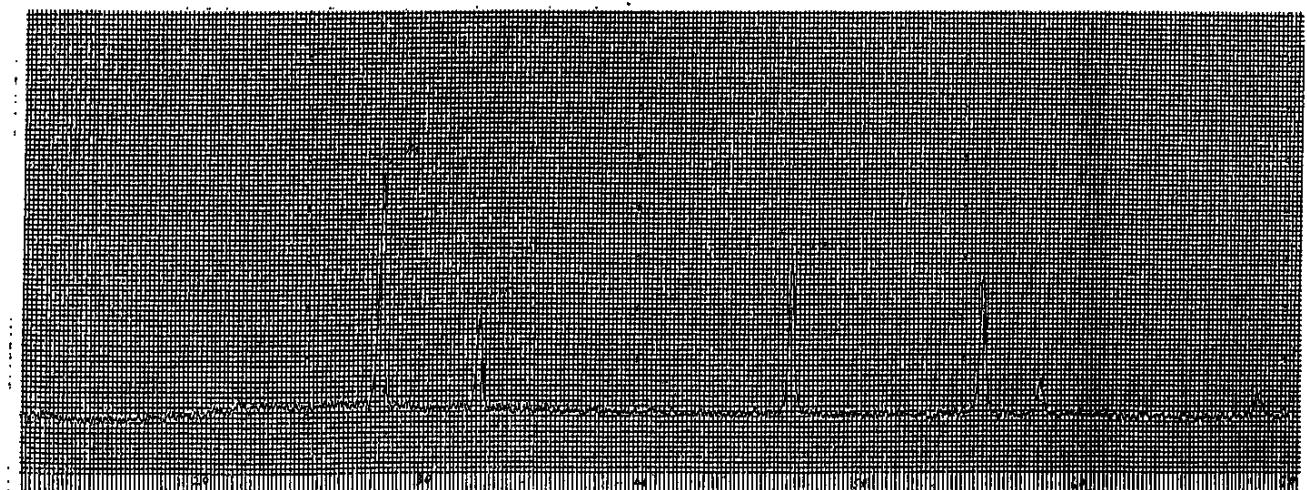
添付図 5



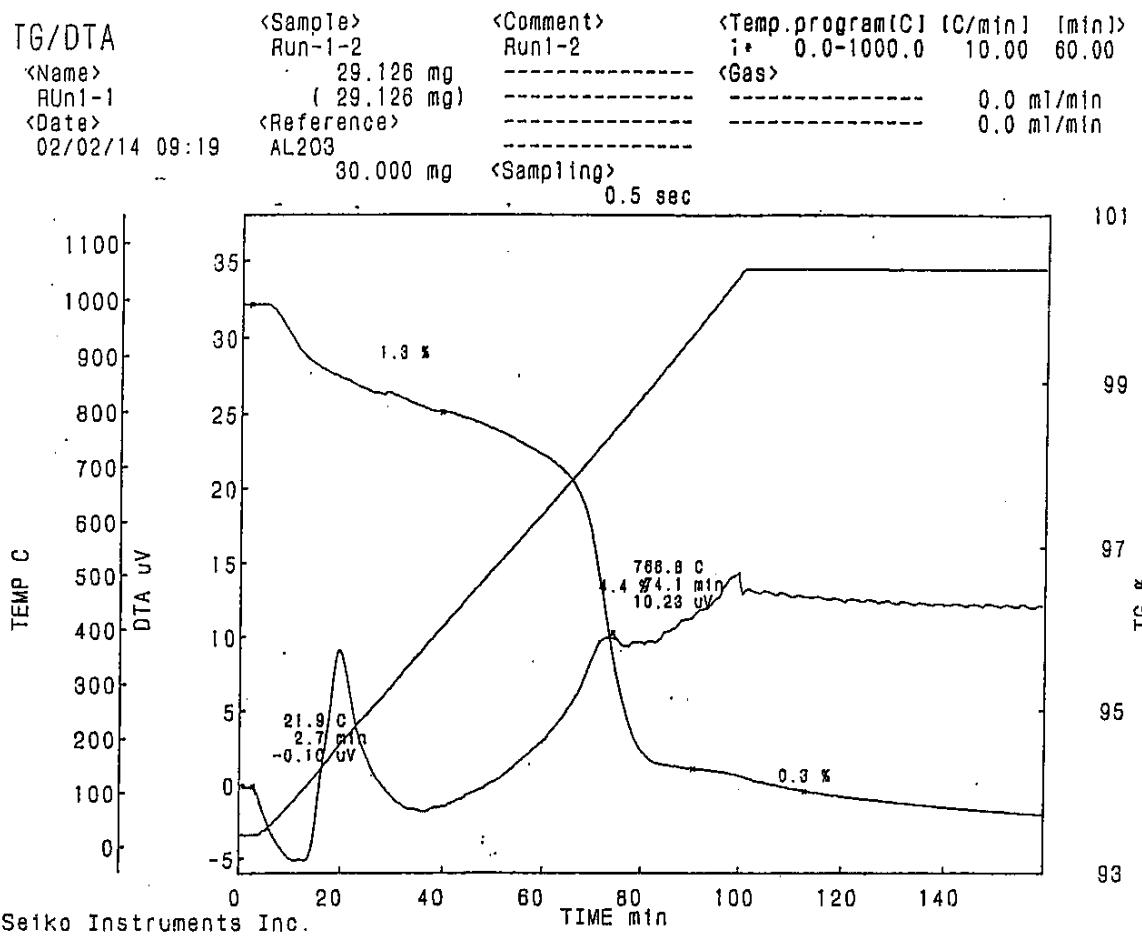
添付図 6



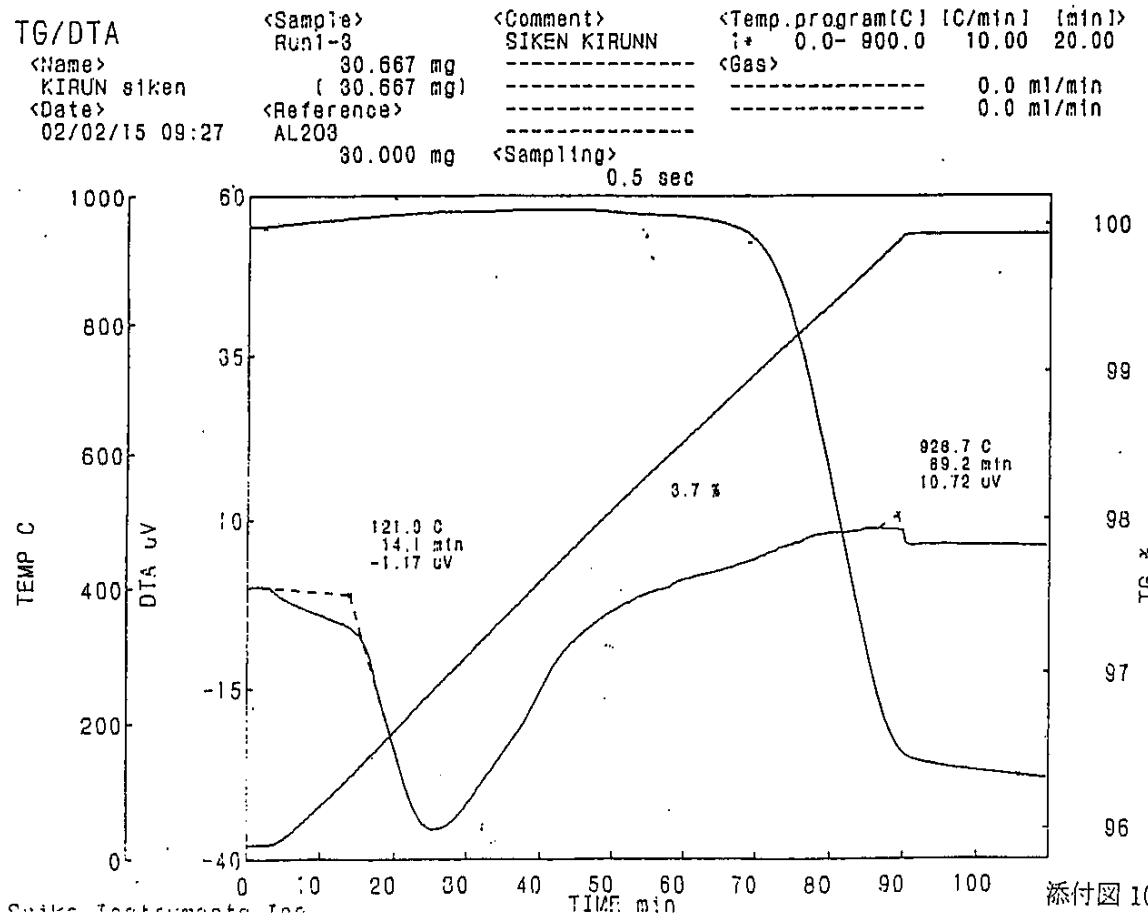
添付図 7



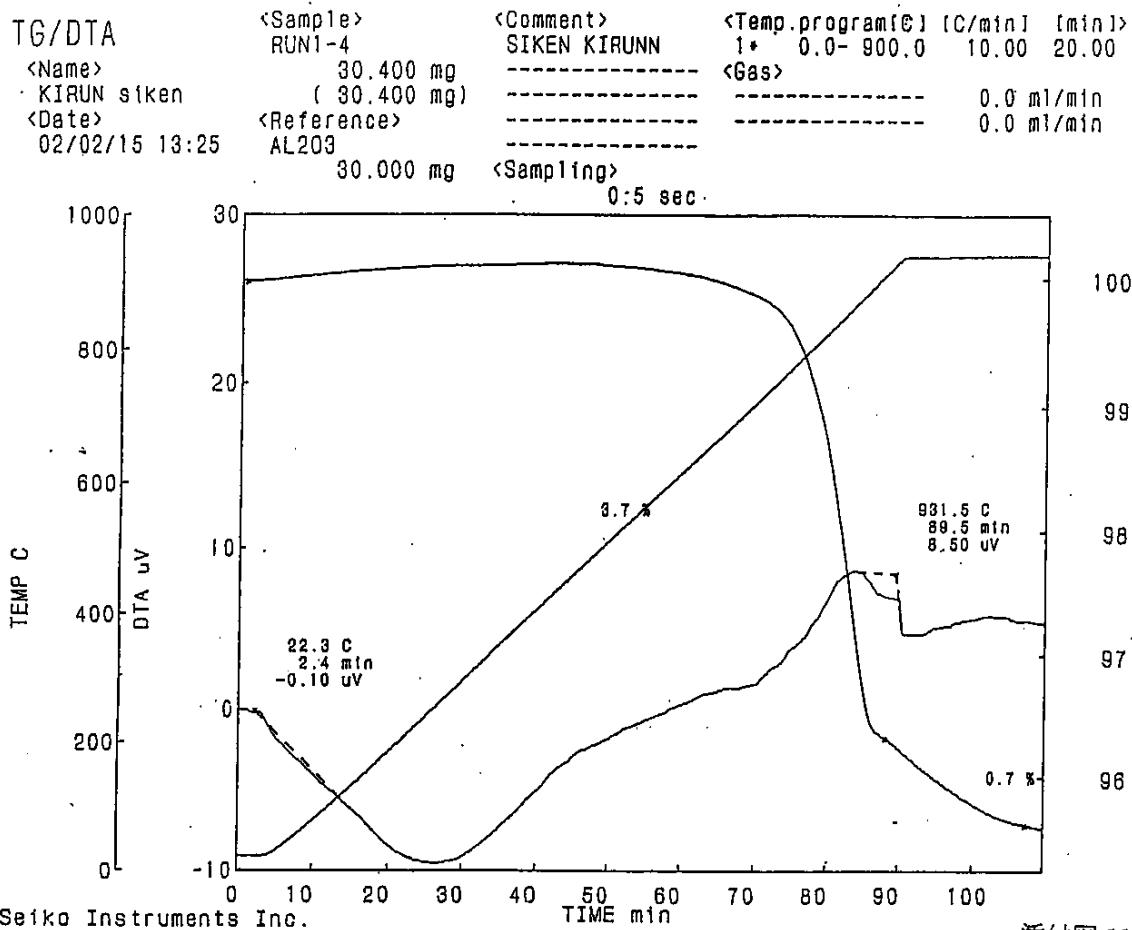
DTA 測定後、枠体 添付図 8



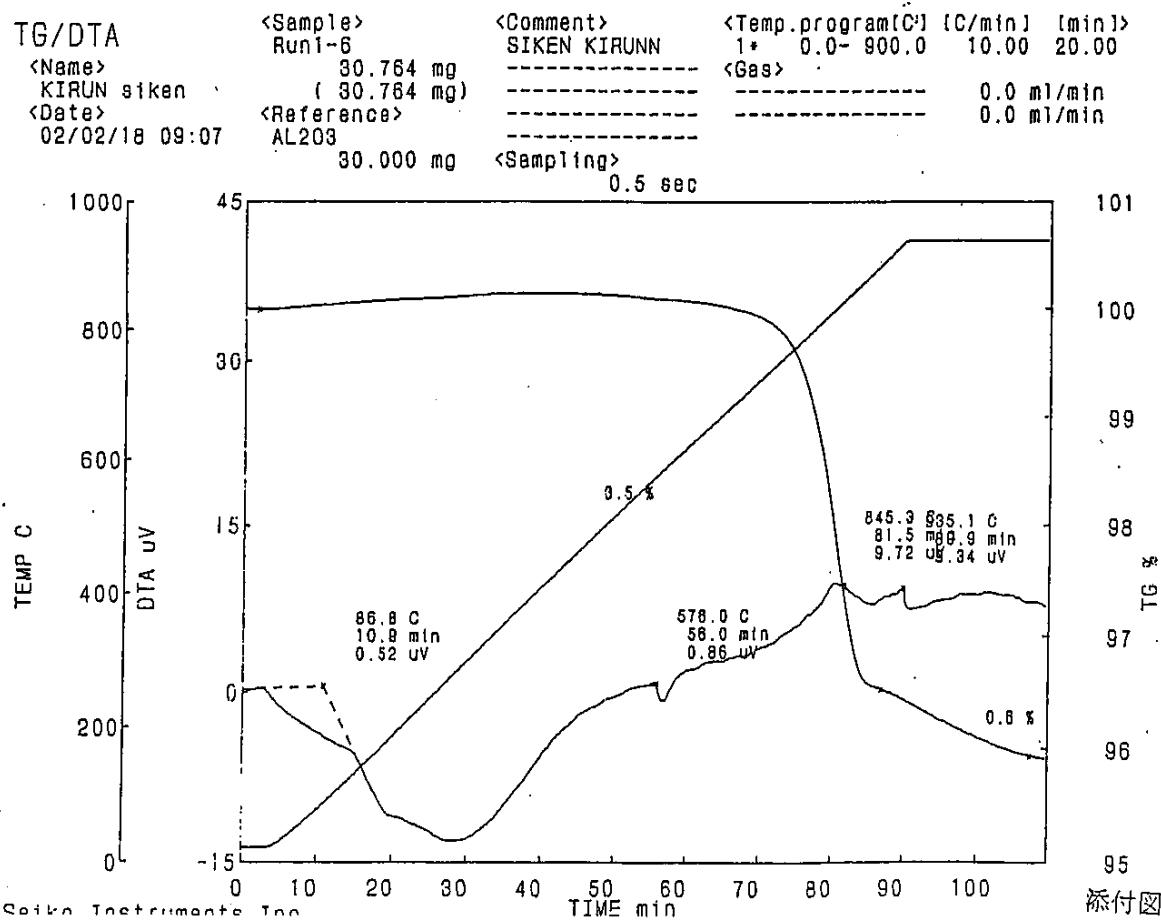
添付図 9



添付図 10



添付図 11

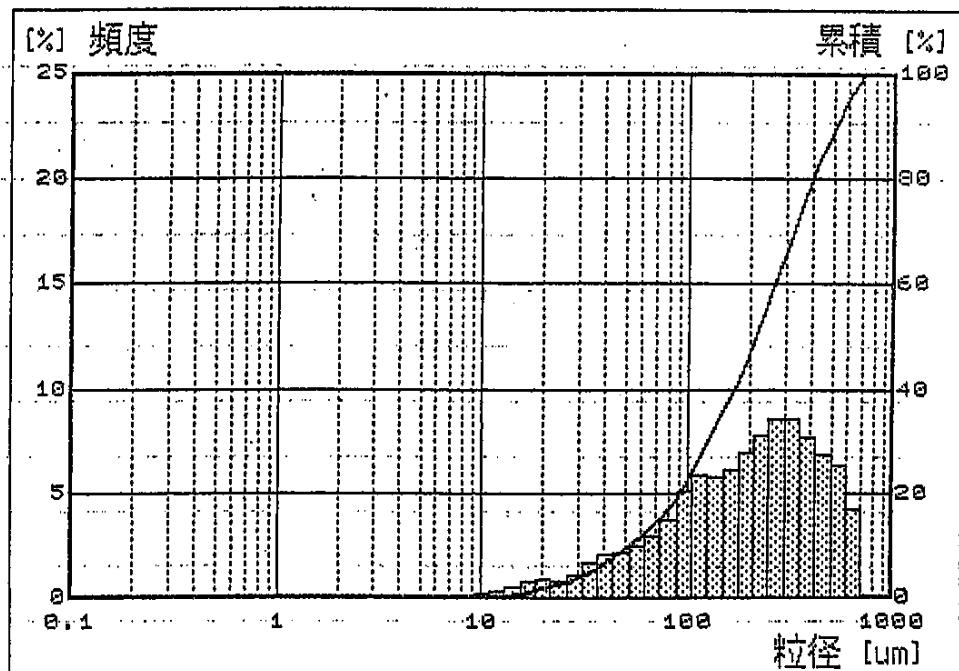


添付図 12

※※ 粒度分布測定結果 ※※

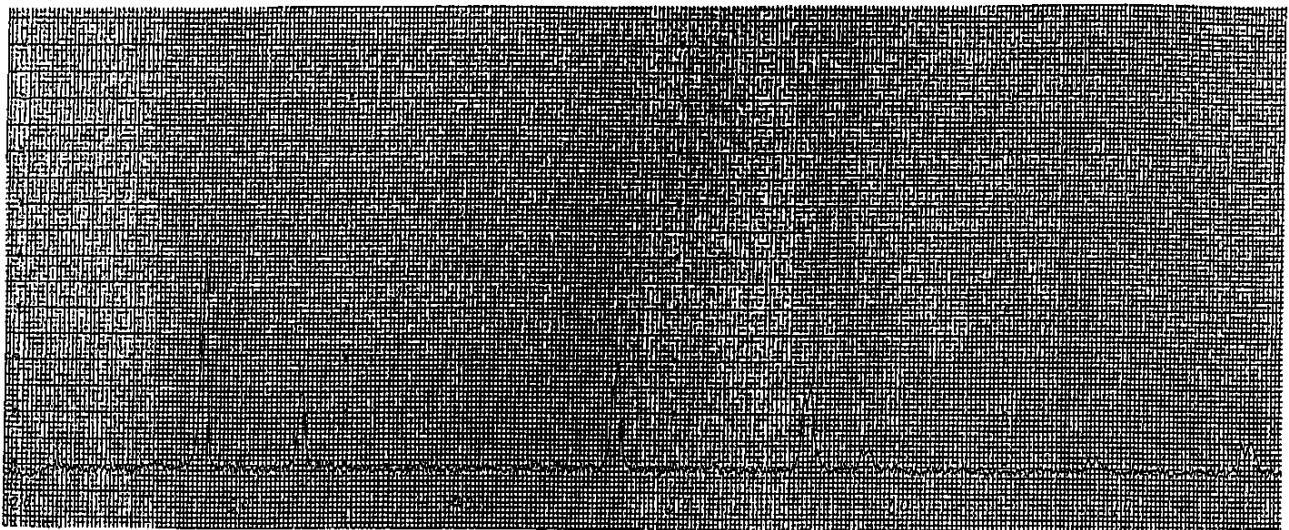
** Microtrac(FSA) **

RUN No.	0	サンプルタイム	10 (sec)
ID-1	RUNI-2	計測使用レンジ	0.69 - 704.00 (μm)
ID-2		データアドレス	23
計測日付	07/19/91	コメント	
計測時間	04:04	備考	

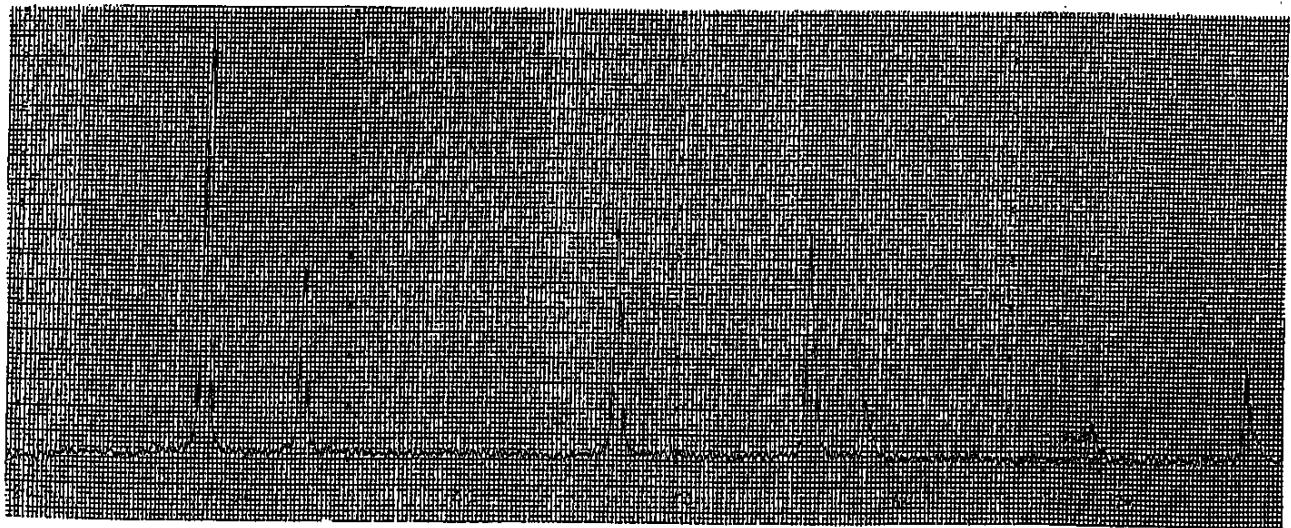


(CH)	粒径 (μm)	累積 (%)	頻度 (%)	(CH)	粒径 (μm)	累積 (%)	頻度 (%)	※要約データ※
(1)	704.00	100.00	4.23	(21)	22.00	2.71	0.90	DV = 0.0291
(2)	691.99	95.77	6.39	(22)	18.50	1.81	0.79	10% = 50.37 (μm)
(3)	497.80	89.38	6.88	(23)	15.56	1.02	0.48	50% = 209.94 (μm)
(4)	418.60	82.50	7.66	(24)	13.08	0.54	0.29	90% = 505.80 (μm)
(5)	352.00	74.84	8.57	(25)	11.00	0.25	0.17	MV = 244.58 (μm)
(6)	296.00	66.27	8.59	(26)	9.25	0.08	0.08	MA = 111.84
(7)	248.90	57.68	7.81	(27)	7.78	0.00	0.00	CS = 0.054 (m ³ /cc)
(8)	209.30	49.87	7.05	(28)	6.54	0.00	0.00	SD = 179.96
(9)	176.00	42.82	6.24	(29)	5.50	0.00	0.00	Loading Index
(10)	148.00	36.58	5.82	(30)	4.62	0.00	0.00	0.99
(11)	124.45	30.76	5.88	(31)	3.89	0.00	0.00	Laser Intensity
(12)	104.65	24.88	5.18	(32)	3.27	0.00	0.00	0.951
(13)	88.00	19.70	3.76	(33)	2.75	0.00	0.00	
(14)	74.00	15.94	2.92	(34)	2.31	0.00	0.00	
(15)	62.23	13.02	2.51	(35)	1.94	0.00	0.00	
(16)	52.33	10.51	2.21	(36)	1.64	0.00	0.00	
(17)	44.00	8.30	2.07	(37)	1.38	0.00	0.00	
(18)	37.00	6.23	1.68	(38)	1.16	0.00	0.00	
(19)	31.11	4.55	1.04	(39)	0.97	0.00	0.00	
(20)	26.16	3.51	0.80	(40)	0.82	0.00	0.00	

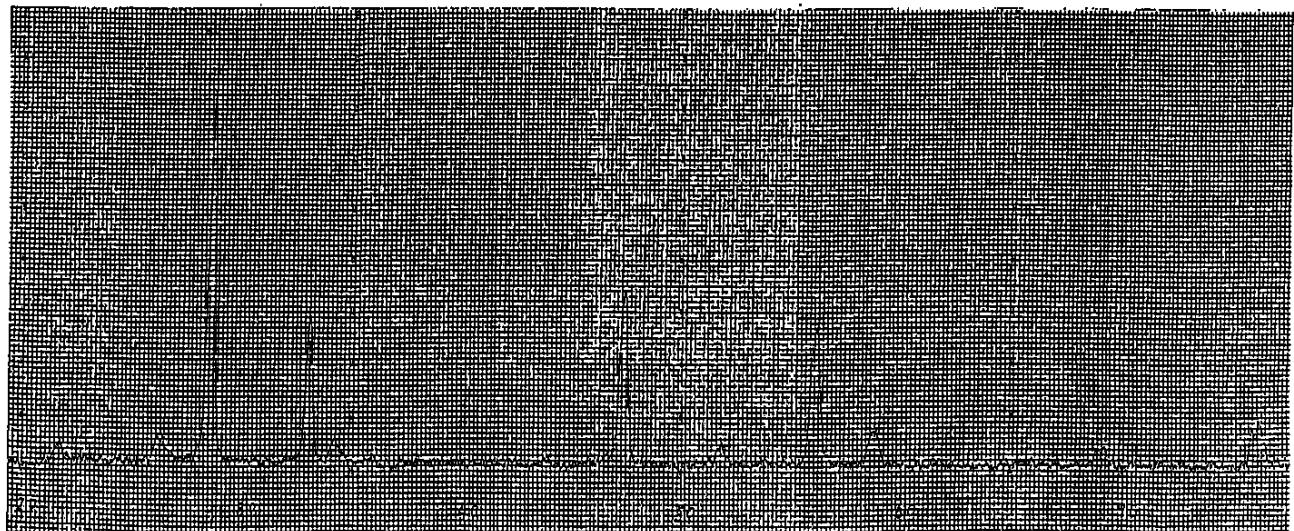
添付図 13



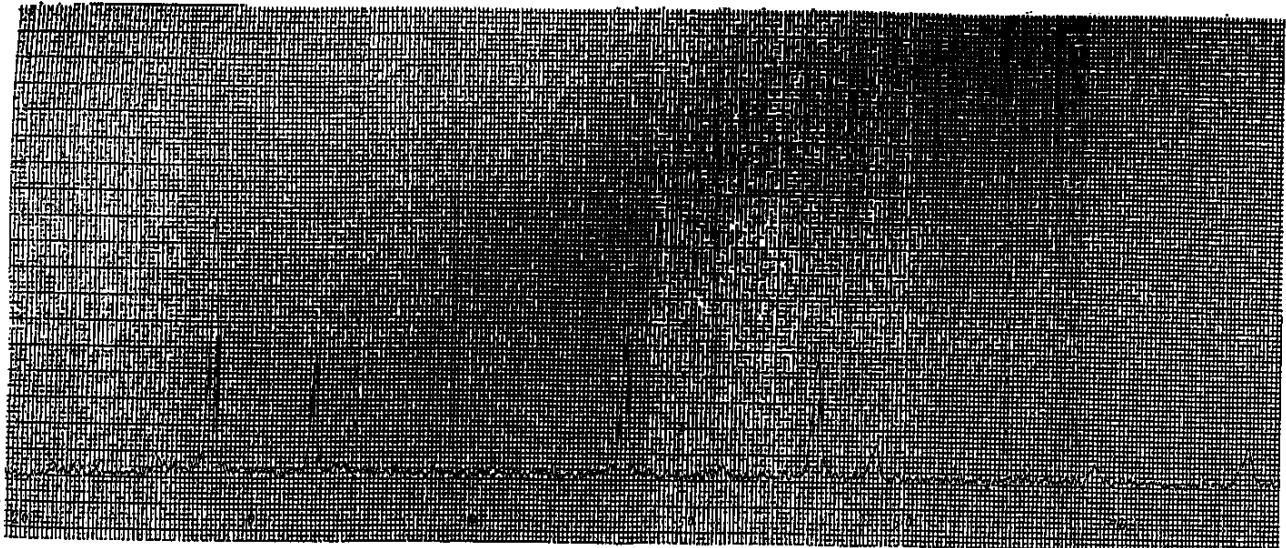
添付図 14



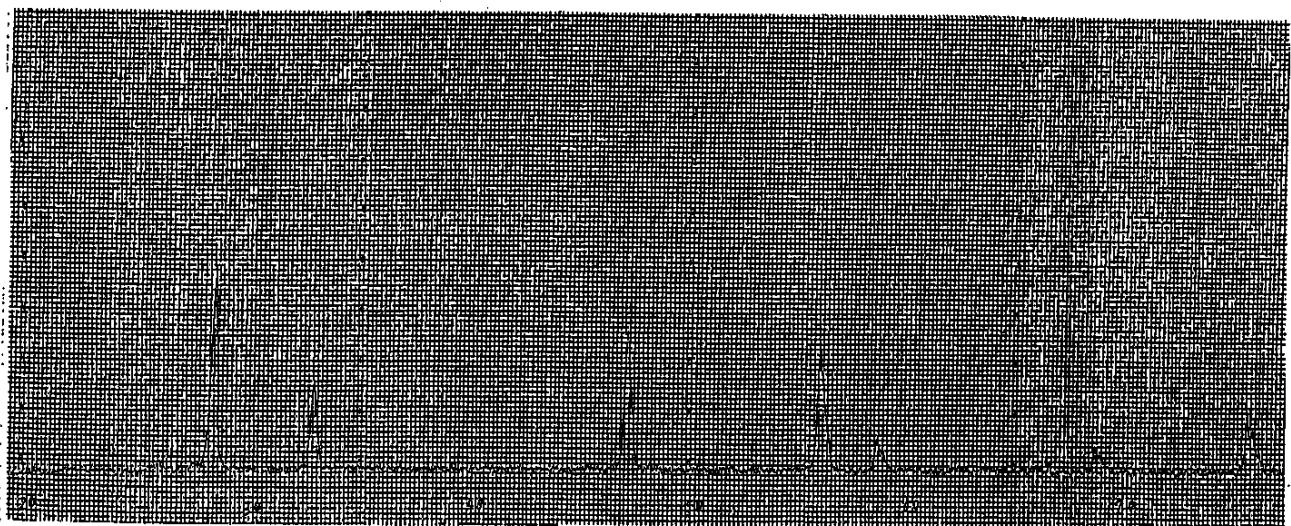
添付図 15



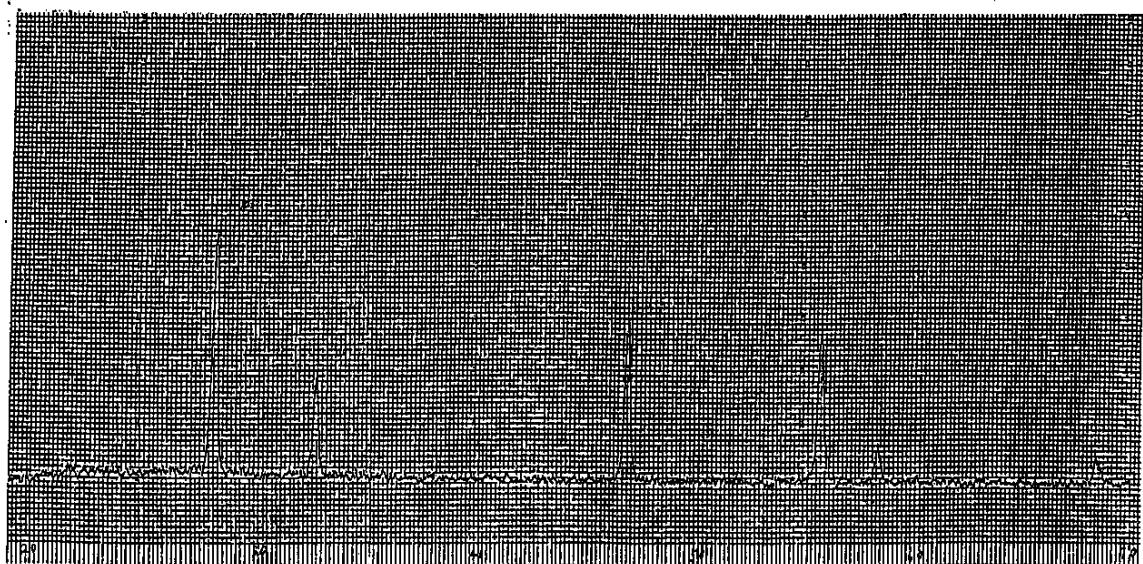
添付図 16



添付図 17



添付図 18



DTA測定後、新体 添付図 19