

JNC TJ8400 2001-029

# 酸化ウランのLi還元試験に関する研究Ⅱ

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

2001年1月

株式会社 東芝

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問合せください

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49号  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184,  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構  
(Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

2001年1月

## 酸化ウランの Li 還元試験に関する研究 II (契約業務報告書)

中村 等<sup>※1</sup> 藤田 玲子<sup>※1</sup> 八幡 秀胤<sup>※1</sup> 川田 千はる<sup>※1</sup> 宇都宮 一博<sup>※1</sup>

### 要 旨

乾式再処理技術は、より経済性の高い再処理技術の候補技術として有望である。乾式再処理技術のうち、米国アルゴンヌ国立研究所で先行して研究開発が行われている金属燃料リサイクル技術を我が国が進めている酸化物燃料リサイクルに適用するためには、酸化物燃料を金属に還元する必要がある。昨年度は前処理法としてボロキシデーションを想定し、還元材として金属リチウム (Li) を用いた酸化ウラン ( $U_3O_8$ ) の還元試験を行い、生成物の回収用のメッシュバスケットの材料について検討することが重要であることがわかった。

そこで本年度はメッシュ材料に係わる調査を行い、その結果に基づき昨年度用いた  $U_3O_8$  と同等の粒径の酸化ウラン ( $UO_2$ ) を用いた還元試験を行い、昨年度の結果と比較評価した。また、模擬 FP として粉状の酸化物を混合し、模擬 FP の影響を比較評価した。

その結果、①各種メッシュ材料の調査により Ti および W を候補として試験を行ったが、いずれも Li 還元条件では破損すること。しかしながら、SUS 製のメッシュホルダーの構造を工夫することによりメッシュを破損せずに Li 還元できること、②  $UO_2$  単独、FP 共存系いずれの場合にも還元生成物中の金属ウラン量から評価される還元率は 80~100% と高く、模擬 FP を添加しても  $UO_2$  の還元率には影響を及ぼさないこと、③還元生成物中に模擬 FP の大部分が混入することが明らかになった。

今後、模擬 FP の Li 還元における挙動および還元生成物中の U と模擬 FP の分離法について検討することが重要である。

---

本報告書は株式会社 東芝が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した研究成果に関するものである。

機構担当部課室：東海事業所 環境保全センター 先進部 乾式 Gr

※1：株式会社東芝

Study on Reduction of Oxide Uranium in Lithium Process II

Hitoshi Nakamura<sup>\*1</sup>, Reiko Fujita<sup>\*1</sup>, Hidetsugu Yahata<sup>\*1</sup>,  
Chiharu Kawada<sup>\*1</sup>, and Kazuhiro Utsunomiya<sup>\*1</sup>

Abstract

Pyrochemical reprocessing is one of a successful candidate of good economy for spent fuel reprocessing. Metallic fuel reprocessing process based on Argonne National Laboratory technology needs a reduction process from oxide fuel to metallic fuel to be applied to oxide fuel reprocessing.

This study has examined the reduction process using metallic Li as a reducing agent for  $\text{UO}_2$  which is comparatively estimated with the results of  $\text{U}_3\text{O}_8$  examined last year after investigating the material of mesh basket with literature. The mesh basket made of Ti and W for oxide container, which are selected by investigating the material of mesh basket with literature, were both broken during reduction. However, the mesh basket made of several layers of stainless steel was not broken at the same reduction condition. The reduction ratio of  $\text{UO}_2$  was estimated to be about 80-100% by a gas bullet method or an acidic pretreatment method. The influence of simulated fission products (FPs) on the reduction ratio of  $\text{UO}_2$  was nothing, however the reduction products were mixed with the simulated FPs.

A further study such as investigating the behavior of FPs in the Li reduction conditions and establishing the separation process of FPs from the reduction products of  $\text{UO}_2$  is necessary.

---

This work was performed by TOSHIBA Corporation under contract with Japan Nuclear Cycle Development Agency.  
JNC Liaison : Dry Process Technology Group, Advanced Fuel Recycle Technology Division  
※1 : Power System & Services Company TOSHIBA Corporation

## 目 次

I. はじめに .....	1
II. 研究内容 .....	2
1. Li 還元に関する調査 .....	2
1.1 メッシュ材料の調査 .....	2
1.2 メッシュ材料の耐食性確認試験 .....	2
2. Li 還元剤とした UO <sub>2</sub> 還元試験 .....	4
2.1 試験方法 .....	4
2.2 還元生成物および塩の分析方法 .....	6
3. 試験結果 .....	10
3.1 UO <sub>2</sub> 単独での還元試験(Run-1) .....	10
3.2 UO <sub>2</sub> と模擬 FP 共存系の還元試験結果(Run-2) .....	11
4. 考察 .....	13
4.1 UO <sub>2</sub> の還元率 .....	13
4.2 模擬 FP 共存系の UO <sub>2</sub> 還元率 .....	13
III. おわりに .....	15

## 表リスト

表 1・1 メッシュ材料の評価結果	16
表 1・2 メッシュ材料耐食性試験の試験条件	17
表 1・3 各メッシュ材料の重量変化	18
表 2・1 模擬 FP 共存系 Li 還元試験で用いた酸化物の組成比	19
表 3・1 LiCl 中の Li <sub>2</sub> O 濃度による UO <sub>2</sub> 還元率の径時変化(U 単独)(Run・1)	20
表 3・2 塩酸法とガスピューレット法による還元率測定結果(U 単独)(Run・1)	21
表 3・3 還元生成物の組成および付着量(U 単独)(Run・1)	22
表 3・4 LiCl 中の Li <sub>2</sub> O 濃度による酸化 U 還元率の径時変化(Run・2)	23
表 3・5 塩酸法とガスピューレット法による還元率測定結果(模擬 FP 共存系)(Run・2)	24
表 3・6 還元生成物の組成および付着量(模擬 FP 共存系)(Run・2)	25
表 3・7 還元生成物回収後の塩中元素組成(模擬 FP 共存系)(Run・2)	26

## 図リスト

図 1-1 Ag-Li 状態図	27
図 1-2 Ag-U 状態図	27
図 1-3 Au-Li 状態図	28
図 1-4 Au-U 状態図	28
図 1-5 Cu-Li 状態図	29
図 1-6 Cu-U 状態図	29
図 1-7 Fe-U 状態図	30
図 1-8 Mo-U 状態図	30
図 1-9 Li-Ni 状態図	31
図 1-10 U-Ni 状態図	31
図 1-11 Li-Pt 状態図	32
図 1-12 Pt-U 状態図	32
図 1-13 Li-Ti 状態図	33
図 1-14 Ti-U 状態図	33
図 1-15 U-Ta 状態図	34
図 1-16 W-U 状態図	34
図 1-17 耐食試験前のメッシュ材料の外観	35
図 1-18 耐食性試験後のメッシュ材料	36
図 1-19 耐食性試験後のメッシュ材料(1)	37
図 1-20 耐食性試験後のメッシュ材料(2)	38
図 2-1 Li 還元試験装置	39
図 2-2 メッシュバスケット底部のメッシュ装荷状態	40
図 2-3 Li 還元試験 化学分析操作フロー(ガスピューレット法)	41
図 2-4 Li 還元試験 化学分析操作フロー(塩酸法)	42
図 3-1 LiCl 中の Li <sub>2</sub> O 濃度による UO <sub>2</sub> 還元率の経時変化(Run-1)	43
図 3-2 Li 還元後のメッシュホルダー外観(Run-1)	44
図 3-3 Li 還元生成物サンプルのサンプリング箇所(Run-1)	45
図 3-4 還元生成物の外観(Run-1)	46
図 3-5 メッシュ上に回収した破損 Ti メッシュの外観(Run-1)	47
図 3-6 メッシュ上に回収した破損 Ti メッシュの外観(Run-1)	48
図 3-7 LiCl 中の Li <sub>2</sub> O 濃度による酸化 U 還元率の経時変化(Run-2)	49
図 3-8 Li 還元後のメッシュホルダー外観(Run-2)	50

図 3-9 Li 還元生成物サンプルのサンプリング箇所(Run-2) .....	51
図 3-10 還元生成物の外観(Run-2) .....	52
図 3-11 Li 還元後の W メッシュ(Run-2) .....	53

## I. はじめに

核燃料サイクル開発機構殿（以下、機構殿と記す）では、より経済性の高い再処理技術として有望である乾式再処理技術の検討を行っている。米国 ANL で先行して研究開発が行われている金属燃料リサイクル技術を、わが国が進めている酸化物燃料リサイクルに適用するためには、酸化物燃料を金属に還元する必要がある。

本研究ではこの還元法に関して、還元剤として金属 Li を用いた Li 還元法について調査を行う。平成 11 年度に実施した試験において、微細な  $U_3O_8$  を被還元物とした場合に生成物回収用のメッシュが溶融する現象が確認されていることから、この溶融現象の解明と Li 還元時の FP 挙動データの取得を目的とする。

## II. 研究内容

### 1. Li 還元に関する調査

平成 11 年度に実施した Li 還元試験では、ボロキシデーション法を想定し、 $UO_2$  を媒焼酸化した  $U_3O_8$  の微細な粉を用いて試験を実施した。その結果、SUS304 製のメッシュが溶融する現象が確認された。そこで、ここではメッシュ溶融現象の原因調査を目的として、溶融しないメッシュ材料を選定するため、メッシュ材料について以下の観点から調査を行う。

- ・ U や Li との状態図
- ・ メッシュサイズ
- ・ 成型加工法
- ・ その他

#### 1.1 メッシュ材料の調査

メッシュ材は入手が容易であることはもちろんのこと、還元試験温度（650°C）において溶融してはならない（その融点は 650°C を十分上回る必要がある）。まず、これらの観点から材料を選定し、次に Li や U との反応性を状態図により調査した。結果を表 1-1 に、また候補材と Li や U との状態図を図 1-1～図 1-16 に示す（ただし Mo、Ta および W については Li との状態図は見当たらない）。

表 1-1 からわかる通り、Ag、Au、Cu、Mo、Ni、Pt、Ta、Ti、W、SUS316L およびモネルのうち、Ag、Au、Pt は Li と反応すると考えられるため除外する。また SUS316L については、その主成分である Fe が U と反応するため除外する。

以上より、Cu、Mo、Ni、Ta、Ti、W およびモネル (Cu-Ni 合金) について、溶融塩中の耐食性試験を行い、これらの候補材の中から Li 還元試験に供するメッシュ材を選定する。

#### 1.2 メッシュ材料の耐食性確認試験

##### 1.2.1 試験方法

1.1 項において選定した、Cu、Mo、Ni、Ta、Ti、W およびモネル (Cu-Ni 合金) の 7 種の材料について、Li による酸化ウランの還元反応環境下での耐食性を確認する試験を行った。表 1-2 に還元条件を示す。

試験では、円筒状のメッシュ保持具に前記 7 種のメッシュ候補テストピースを設置し、LiCl 溶融塩中に漬浸させた状態で  $UO_2$  の Li 還元を行った。還元反応後に、各テストピースを溶融塩から引き上げ、目視および工学顕微鏡による外観観察を行い、溶融や腐食の様子を確認した。

### 1.2.2 試験結果

試験前後のテストピースを設置したメッシュ保持具の外観を図 1-17 および図 1-18 に示す。また試験前後のテストピースの光学顕微鏡による外観観察結果を図 1-19 および図 1-20 に示す。

モネル、Cu および Ni は、溶融塩 (LiCl) 中に浸漬していた部分が失われていた。また外観上はメッシュ形状を保っていた Ti、W、Ta および Mo のうち、Ta と Mo は図 1-20 からわかる通り表面が腐食されていた。

以上より、メッシュ材として Ti と W を選定し、Li 還元試験で使用することとした。

## 2. Li を還元剤とした UO<sub>2</sub> の還元試験

試験は以下の 2 種の被還元物について各々実施した。

Run-1 : 粒径が 40  $\mu\text{m}$  以下の UO<sub>2</sub>

Run-2 : 粒径が 40  $\mu\text{m}$  以下の UO<sub>2</sub> に FP の模擬物質(以下模擬 FP と記す)として Zr、Ce、Mo、Sr、Cs、Ru、Nd および La の粉状酸化物を混合したもの

\*1 平成 11 年度に実施した Li を還元剤とした U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (40  $\mu\text{m}$  以下) の還元試験との比較のため、UO<sub>2</sub> の粒径を 40  $\mu\text{m}$  以下とした。

### 2.1 試験方法

#### 2.1.1 試験装置

試験装置の概略を図 2-1 に示す。本装置は Ar ガス雰囲気グローブボックスの下部に設けられた電気炉の炉心管内に設置されており、この電気炉によって所定の試験温度に維持される。試験装置は、外側からグラファイト製の伝熱容器(図 2-1 には示されていない)、SUS 製の保護容器、SUS 製のルツボ、SUS 製のメッシュの底を持つ円筒(以下、メッシュホルダーと記す)の順に設置された多重容器構造である。

被還元物である酸化物試料はメッシュホルダーのメッシュ上に装荷され、ルツボ内に装荷された溶融塩(LiCl)中に漬浸される。試験後にメッシュホルダーは溶融塩から引き上げられる際に、生成物はメッシュ上に残留することから、溶融塩と生成物との粗分離が可能となる。なお、メッシュの材料と構成については図 2-2 に示す通り、Run-1 では SUS 製メッシュの上に Ti 製メッシュを乗せた構成、また Run-2 では SUS 製メッシュの上に W 製メッシュを乗せた構成とした。

また本試験では、微細な酸化物試料を溶融塩中に均等に分散させることにより反応を促進させることを狙って、溶融塩の攪拌を行う。このためルツボの中心にパドル型 4 枚羽根攪拌翼を、またメッシュホルダ内部壁面に邪魔板を設置している。なお攪拌による溶融塩の飛散を防止するため、ルツボ上部にルツボカバーを設置した。

#### 2.1.2 使用試薬

##### ①LiCl

- APL 社製、ガラスアンプル入り粉末、純度 99.99 %

##### ②Li

- レアメタリック社製、Ar ガス封入 Al ラミネート袋入り、純度 99.8 % 以上
- $\phi 4 \text{ mm} \times 250 \text{ mm}^L$  (ただし試験時は約 10 mm に切断して使用)

##### ③ウラン酸化物

・BNFL 社製  $UO_2$ 、 $^{235}U$  含有率 0.714 %、O/U 比 2.001、ペレット形状（ただし試験時は粉碎・分級後、40  $\mu m$  以下の粒子のみ使用）

### 2.1.3 試薬量

#### Run-1

- ・LiCl 10 [mol] (424 [g])
- ・ $UO_2$  27 [g] ( $UO_2$  約 0.1 [mol])
- ・Li 3.47 [g] (酸化物 1 当量に対し 5 当量)

#### Run-2

- ・LiCl 10 [mol] (424 [g])
- ・ $UO_2$  表 2-1 参照
- ・Li 3.73 [g] (酸化物 1 当量に対し 5 当量)
- ・FP 表 2-1 参照

### 2.1.4 試験前準備

初めに、ルツボカバーを取り付けたルツボを炉心管内の所定の位置に設置し、秤量した LiCl を装荷した。LiCl は吸湿性が高いため、水分を除去する目的でルツボ内温度を 500 °C で 10 時間保持した。その後、ルツボ内温度を 650 °C まで加熱し一旦 LiCl を溶融させてから、常温まで自然冷却し固化させた。

固化した LiCl 上に、酸化物粉末を装荷したメッシュバスケットを置き、この状態で再び 650 °C に加熱して LiCl を溶融させるとともに、メッシュバスケットをルツボ内の所定の位置まで引き下げた。その後、攪拌翼を溶融塩中の所定の位置に設置した。

### 2.1.5 還元試験

試験では、攪拌翼回転数 500 rpm で攪拌しながら Li を溶融塩に添加した。Li は 10 分毎に 1 度ずつ計 11 回添加した。

添加後から試験終了までの攪拌回転数は 900 rpm とした。ただし溶融塩のサンプリングでは、装置構造の制限から攪拌翼を溶融塩から引き抜く必要があるため攪拌はしていない。サンプリングは、試験開始直後、2、4、6 時間後および試験終了直前を行い、その際の攪拌停止時間は約 10 分である。なお試験時間は Li 添加時間も含め 8 時間である。

### 2.1.6 塩中静置

試験終了後、溶融塩温度を 700 °C とし、生成物を塩中で 24 時間静置した。静置開始直後と 24 時間の静置後に、溶融塩のサンプリングを行い、LiCl 中の  $Li_2O$

濃度を測定した。

静置後、メッシュバスケットを溶融塩から引き上げ、ルツボ内ガス空間に 700 ℃で約 1 時間保持し、自由落下により溶融塩をできるだけメッシュバスケットから除去した後、室温まで自然冷却した。自然冷却後は、装置からメッシュバスケット、ルツボ、攪拌翼等を取り外し、各部品の付着物を採取して化学分析を実施した。

## 2.2 還元生成物および塩の分析方法

試験中の溶融塩中  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度、生成物の還元率および生成物に付着した塩の組成を分析した。分析フローを図 2-3 および図 2-4 に示す。

### 2.2.1 還元生成物の塩含有率

試料を分取して重量を測定し ( $W_s$  [g]) 蒸留水に溶解した後、あらかじめ重量を測定した孔径 0.45 [ $\mu\text{m}$ ] の濾紙 ( $W_f$  [g]) で濾過する。溶解促進のため、必要に応じ超音波を使用することもできる。濾過後の濾紙は 70 [℃] で 2 時間乾燥させ、重量を測定する ( $W_d$  [g])。濾液は後述する  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度測定用の試料とする。 $W_f$  と  $W_s$  の合計から、乾燥後の不溶解物を含んだ濾紙重量 ( $W_d$ ) を差し引いたものが、濾過の際に溶解して濾紙に捕捉されなかった塩である。なお塩含有率  $R_{\text{salt}}$  [%] は以下の式から求められる。

$$R_{\text{salt}} (\%) = 100 \times (W_f + W_s - W_d) / W_s \quad \dots \dots \dots \quad (2.1)$$

### 2.2.2 $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度の測定

$\text{Li}_2\text{O}$  は次式の通り水と反応しアルカリ性の  $\text{LiOH}$  になる。



このため以下の反応を利用した中和滴定法で  $\text{LiOH}$  を定量することにより、 $\text{Li}_2\text{O}$  量が評価できる。



すなわち  $\text{Li}_2\text{O}$  量は、滴定で消費した  $\text{HCl}$  の 1/2 当量となり、以下の方法によって滴定量から  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度を求めることができる。

試料を蒸留水に溶解して一定量 ( $V_m$  [ml]) にメスアップする。試料が還元生成物や溶解後残渣が残る浴塩の場合は、2.2.1 項と同様な操作により正味の塩重量を求める。メスアップした試料から必要量 ( $V_n$  [ml]) を正確に分取し、中和指示薬の 0.04 [W/v%] の BTB (プロモチモールブルー) 溶液を数滴添加して 0.01~0.1 [N]  $\text{HCl}$  で滴定する。 $\text{HCl}$  の規定度は適宜状況に応じ、適切な濃度のものを選択した。

試料の中和に要した  $\text{HCl}$  の規定度を  $x$  [N]、ファクターを  $y$  [-]、滴定量を  $V_a$  (ml)

すると、 $\text{Li}_2\text{O}$  濃度  $C_1$  [mol%] は次式から求められる。

$$Cn(\text{mol}\%) = \frac{\frac{xy}{2000} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va}{\frac{xy}{2000} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va + \left[ Wf + Ws - Wd - \frac{xy}{2000} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va \times Li2O \right] / LiCl} \times 100$$

$$= \frac{\frac{xy}{20} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va}{\frac{xy}{2000} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va + \left[ Wf + Ws - Wd - \frac{xy}{2000} \times \frac{Vm}{Vn} \times Va \times 29.88 \right] / 42.394} \quad \dots \dots \dots \quad (2.4)$$

なお試料を蒸留水に溶解した際、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{Li}$  とも  $\text{LiOH}$  となるため、 $\text{Li}$  が共存する場合には  $\text{Li}$  と  $\text{Li}_2\text{O}$  は区別できない。 $\text{Li}$  の水との反応は以下のとおりであるので、中和滴定の際  $\text{Li}$  は  $\text{Li}_2\text{O}$  の 2 倍当量に対し、当量の  $\text{HCl}$  を消費することになる。



### 2. 2. 3 還元率の測定

還元率は以下の3通りの方法で評価した。

### (1) 塩中 Li<sub>2</sub>O 濃度からの還元率の予測

塩中の  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度から還元率を評価するため、試験中に適宜溶融塩をサンプリングした。

Li による  $\text{UO}_2$  の還元反応は以下の通りである。



ただし、サンプリングによる塩の減量は無視できるものとした。

Run-1 では  $\text{UO}_2$  のみ 0.1 mol 装荷しているため、全量還元されれば、式(2.6)より  $\text{Li}_2\text{O}$  が 0.2 mol 生成することになる。これが 10 mol の  $\text{LiCl}$  に溶解していることから、100 %還元された時の塩中  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度は、 $100 \times 0.2 \text{ [mol]} / (0.2 \text{ [mol]} + 10 \text{ [mol]}) = 1.96 \text{ [mol\%]}$  となる。この値とサンプリングした塩中の  $\text{Li}_2\text{O}$  濃度の測定値とを比較することにより還元率を評価する。

Run-2についても同様に評価する。酸化物の Li による還元反応の一般式は次のように表せる。



したがって  $\text{Li}_2\text{O}$  は 100 %還元時に  $\text{M}_x\text{O}_y$  1 mol に対し y mol 生成するとして、 $\text{M}_x\text{O}_y$  の初期装荷量から評価する。

## (2) 咸酸法

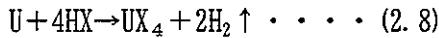
試料を分取して HCl に溶解させる。溶解後 孔径 0.45 μm の濾紙を用いて濾過する。不溶解分は濾紙とともに HNO<sub>3</sub> に浸して不溶解分全量を溶解する。HCl 溶解分は U、HNO<sub>3</sub> 溶解分は UO<sub>2</sub> としてそれぞれ一定量にメスアップし、ICP-AES で U 濃度を測定し、その結果から還元率を評価する。

U および  $UO_2$  の試料の ICP-AES による U 濃度とメスアップ量を各々  $C_U$  [ppm]、 $V_U$  [ml]、 $C_{UO_2}$  [ppm]、 $V_{UO_2}$  [ml] とすると、還元率  $R_{red}$  [%] は(2.6)式で求められる。

$$R_{red} (\%) = C_U \cdot V_U / (C_U \cdot V_U + C_{UO_2} \cdot V_{UO_2}) \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (2.7)$$

### (3) ガスビュレット法

還元生成物とハロゲン系の酸を反応させて発生する  $H_2$  量から反応に寄与した U(すなわち金属 U) 量を評価する。反応後の溶液を回収して硝酸 ( $HNO_3$ ) などで残渣を溶解、ICP で定量した全 U 量の割合から還元率を求める。反応式は以下の通りである。



ガスピュレット装置のビュレットと水準管を隔てる遮断液は  $H_2O$  とする。 $H_2$  発生量を  $V_{H_2}$  [l]、分析時の温度、気圧を各々  $T$  [K]、 $P$  [atm]、 $T$  における水蒸気圧を  $p$  [atm] とすると、 $H_2$  モル数  $n_{H_2}$  [mol] は次式で求められる。

$$n_{H_2} = (P - p) V_{H_2} / RT \quad \dots \quad (2.9)$$

R: 气体定数 (=0.08206 [l·atm/(K·mol)])

(2.7) 式から金属 U が反応すると  $1/2$  [mol] の  $H_2$  が発生する。金属 U の重量を  $W_U$  [g] とすると

$$W_U = 238 \times n_{H_2} / 2 \quad \dots \quad (2.10)$$

一方、ICPで定量した全Uを  $W_{\text{TOTAL-U}} [\text{g}]$  とすると還元率  $R_{\text{red}} [\%]$  は、次式で評価できる。

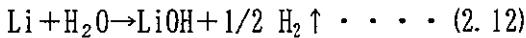
$$R_{red} [\%] = 100 \times \frac{W_u}{W_{TOTAL-U}} \dots \dots \dots (2.11)$$

#### 2.2.4 塩中 Li 化合物組成

ここでは 2.2.1 項で求めた還元生成物の付着塩量のうち、Li 化合物の組成をガスビュレット法によりさらに詳しく評価する。したがって、生成物の水洗前重量測定の詳細操作については 2.2.1 項を参照することとし、さらにそれ以降の操作を述べる。

金属 Li 量は 2.2.3 (2) 項と同様に求めることができる。

還元生成物と  $H_2O$  を反応させて発生する  $H_2$  量から評価した金属 Li 量を評価する。反応式は以下の通りである。



したがって、(2.8) 式により算出した  $H_2$  を  $n_{H_2}$  [mol] とすると Li 量 ( $=W_{Li}$  [g]) は次式で求められる。

$$W_{Li} = 6.941 \times 2 \times n_{H_2} \quad (2.13)$$

初めに還元生成物の水洗前の重量を秤量する。ガスビュレットで上記の反応が終わった後、反応容器より溶液を回収し残渣をろ過し、中和滴定でろ液の Li と  $Li_2O$  の総量を定量して (2.12) 式で求めた Li 重量を差し引けば  $Li_2O$  量 ( $=W_{L0}$  [g]) が決定する。中和滴定による Li と  $Li_2O$  の総量は (2.13) 式で評価できる。

残渣は乾燥後秤量することで、水洗前の重量との差を  $LiCl$ 、Li、 $Li_2O$  の総量 ( $=\Delta W$  [g]) とみなせる。既に明らかになった  $W_{Li}$ 、 $W_{L0}$  を  $\Delta W$  から差し引けば、残りの  $LiCl$  重量 ( $=W_{LC}$  [g]) が求められる。

#### 2.2.5 FP マスバランス

Run-2 では FP のマスバランスを把握するため、還元率測定用の試料を用いて酸溶解法、ガスビュレット法とも U 以外に FP についても測定した。

### 3. 試験結果

#### 3.1 UO<sub>2</sub>単独での還元試験結果 (Run-1)

##### 3.1.1 LiCl 塩中 Li<sub>2</sub>O 濃度による還元率の評価

還元反応の進行状態を把握するため、還元により生成した溶融塩中の Li<sub>2</sub>O 濃度の経時変化から、UO<sub>2</sub>の還元率を評価した。本試験では、UO<sub>2</sub>装荷量 27 g に対し、還元反応により発生する Li<sub>2</sub>O 量は最大で 5.98 g となる。したがって溶融塩中の Li<sub>2</sub>O 濃度が 1.96 mol%に達すれば、還元試験に供した UO<sub>2</sub>が全て U に還元されたと判断できる。

Li 還元時における Li<sub>2</sub>O 濃度からの還元率の経時変化を表 3.1 および図 3.1 に示す。

この結果、UO<sub>2</sub>単独における Li による還元は還元開始 (Li の投入開始) から 2 時間程度で終了していることがわかった。また還元率は約 95 %程度であった。

##### 3.1.2 還元率と還元生成物への不純物付着量

還元反応終了後、メッシュバスケット上に回収された還元生成物および、攪拌羽根付着物、メッシュバスケット壁面付着物、メッシュからの脱落物についてサンプリングを行い (サンプリング箇所については図 3-3 に示す)、還元率、塩付着量、Li 付着量、Li<sub>2</sub>O 付着量について測定を行った。各サンプルの分析結果を表 3.2 および表 3.3 に示す。また還元試験後のメッシュホルダー壁面、メッシュおよび LiCl の外観を図 3.2 に、還元生成物の光学顕微鏡による外観観察結果を図 3.4 に示す。

塩酸法とガスビューレット法による還元率の測定結果は同等な値であり、酸化物は 85~95 %程度が還元され還元生成物となっていることが確認された。ただし塩酸法によるメッシュバスケット壁面付着物の還元率は 70 %程度で、還元生成物中への Fe 含有量は 20 %と、他の測定結果に対して 1 枠以上高い値を示した。

塩、Li、Li<sub>2</sub>O の還元生成物への付着量は、付着物の 98 %以上は塩であり Li および Li<sub>2</sub>O の還元生成物への付着は、微量であることが確認された。

##### 3.1.3 メッシュの破損

昨年度実施した還元試験でメッシュ (昨年度は SUS 製のメッシュを使用) が破損した理由の一つに、還元試験終了後、700 °Cで 24 時間塩中に静置する際、U と Fe の反応の可能性が考えられた。この理由を回避するため、SUS 製のメッシュ上に、1. で示した耐食性試験の結果を基に Ti 製メッシュ (80 メッシュ) を設置し還元試験に使用した。しかし、還元試験終了後の Ti 製メッシュは図 3-2 で確認できるように、破損してバラバラな状態で、SUS 製メッシュ上に回収された。回収されたメッシュの一部をサンプリングし、光学顕微鏡により拡大観察した結果を

図 3-5 および図 3-6 に示す。還元生成物中の Ti の混入は、 $10^{-2}\%$  で極微量であった（表 3-3）。また Ti 製メッシュの破損による塩中への Ti の溶出または拡散量は  $2.7 \times 10^{-5}$  wt%，重量にして 0.1 mg 程度であり、Ti 製メッシュは破損したが、そのほとんどが、金属として SUS 製メッシュ上に回収されていることがわかった。

### 3.2 UO<sub>2</sub> と模擬 FP 共存系の還元試験結果 (Run-2)

#### 3.1.2 LiCl 塩中 Li<sub>2</sub>O 濃度による還元率の評価

還元反応の進行の程度を確認するため、溶融塩中の Li<sub>2</sub>O 濃度の経時変化から、UO<sub>2</sub> の還元率を評価した。

還元反応により発生する Li<sub>2</sub>O 量は装荷した全ての UO<sub>2</sub> および模擬 FP が還元されると想定した場合、最大で 6.39 g となる。化合物の生成自由エネルギーの値から、Li を還元剤として還元反応が起こらないと予測される Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が還元反応に寄与しないと想定すると Li<sub>2</sub>O 量は 5.95 g となる。

したがって溶融塩中の Li<sub>2</sub>O 濃度が 2.1 mol% または 1.95 mol% に達すれば、還元試験に供した UO<sub>2</sub> および模擬 FP が全て U に還元されたと判断できる。

Li 還元時における Li<sub>2</sub>O 濃度からの還元率の経時変化を表 3-4 および図 3-7 に示す。

この結果、模擬 FP が共存した場合でも還元反応は還元反応開始 (Li の投入開始) から 2 時間程度で終了していることがわかった。また UO<sub>2</sub> に対する還元率は約 100 % であることがわかった。

#### 3.2.2 還元率と還元生成物への不純物付着量

還元反応終了後、メッシュバスケット上に回収された還元生成物および、攪拌羽根付着物、メッシュからの脱落物（サンプル量が少量のため、塩酸法でのみ測定）についてサンプリングを行い（サンプリング箇所については図 3-9 に記載）、還元率、塩付着量、Li 付着量、Li<sub>2</sub>O 付着量について測定を行った。分析結果を、表 3-5、表 3-6 に示す。還元試験後のメッシュホルダー壁面、メッシュおよび LiCl の外観を図 3-87 に、還元生成物の光学顕微鏡による観察結果を図 3-10 に示す。

塩酸法とガスピューレット法による還元率測定の結果は同等な値であり、酸化物は、ほぼ 100 % 還元されていることが確認された。

塩、Li、Li<sub>2</sub>O の還元生成物への付着量は、付着物はほとんどが塩であり Li<sub>2</sub>O の還元生成物への付着量は検出限界以下だった。ただし Li の付着量は Run-1 より若干多い結果となった。

塩中からメッシュホルダを引上げた後の塩中の模擬 FP 含有量を表 3-7 に示す。塩中の模擬 FP 含有量は 0.01 wt%，重量約 56 mg で装荷量の 1.3 % 程度であった。

よって装荷した模擬 FP の 98 %以上が還元生成物と共にメッシュバスケット上に残留したと推定される。分析のため、還元生成物を水洗し濾過した濾液中 (LiCl および Li, Li<sub>2</sub>O 等) には模擬 FP はほとんど確認されないことから、還元生成物中の U と混在する形で残留していることがわかった。

## 4. 考察

### 4.1 $\text{UO}_2$ の還元率

40  $\mu\text{m}$  以下の微細な粒径の  $\text{UO}_2$  に対し Li 還元を行った結果、 $\text{UO}_2$  の 85~95 % が金属に還元されていることが確認された。昨年度実施した  $\text{U}_3\text{O}_8$  を用いた Li 還元試験と比較すると、格段に高い還元率を得ることができた。

この理由は、還元率が、酸化物と  $\text{Li}_2\text{O}$  の生成自由エネルギー  $\Delta G$  の差にあると考えられる。

$\Delta G$  の差が大きいと Li が供給された瞬間から激しい還元反応が起こると予想できる。還元生成物に Fe が多く含有すると還元率が低下する、というこれまでの経験からも、 $\Delta G$  の大きな差による反応熱は、還元生成物の周囲温度が装置内温度の 650 °C を大きく越え、SUS 製メッシュ中の Fe と還元生成物の U の接触が、最低共晶温度 725 °C を越え、Fe と U の合金が生成されるという予測ができる。

よって  $\text{Li}_2\text{O}$  との  $\Delta G$  が  $\text{UO}_2$  より大きい  $\text{U}_3\text{O}_8$  を用いた Li 還元は、初期の反応で高い反応熱(800 °C 程度)を発生し  $\text{UO}_2$  が生成され、 $\text{UO}_2$  と  $\text{Li}_2\text{O}$  との  $\Delta G$  の差が小さくなり、還元の進行止まり、還元率が低下したものと思われる。

### 4.2 模擬 FP 共存系の $\text{UO}_2$ 還元率

$\text{UO}_2$  と模擬 FP が混在した条件での、還元率は、サンプルを採取したとのポイントでも、塩酸法、ガスビューレット法共に、還元率はほぼ 100 % であることが確認された。この結果は、模擬 FP の混在が  $\text{UO}_2$  の還元反応にほとんど影響を与えないことを示す。しかし模擬 FP の、大部分は還元生成物と混在しメッシュバスケット上に残留した。メッシュバスケットに残留した模擬 FP は、還元生成物(金属 U)と、吸着、熱による焼結、または共晶といった状態でメッシュバスケットに残留しているのではないかと推察される。

### 4.3 メッシュ材料の破損

$\text{UO}_2$  単独と模擬 FP 混在時の Li 還元試験で、数枚重ねたメッシュの最上部に使用した Ti および W 製メッシュは共に Li 還元試験後に破損が確認された結果となった。

1.2 の耐食性試験結果では破損せず、実際の還元試験で破損した理由は、メッシュサンプルを、実際の還元試験と異なる置き方をしていたため、耐食性試験と還元試験でのメッシュへの U、Li 等の接触量の違いと考えられる。また Ti や W は表面の酸化被膜により耐食性を保っているため、還元雰囲気で使用した場合、十分な耐食性を得られない可能性もある。

今回の還元試験では SUS 製メッシュに破損は確認されていない。この原因は、 $\text{UO}_2$  の還元率のところで触れた、生成自由エネルギー  $\Delta G$  の差によるものと推察される。具体的には  $\text{Li}_2\text{O}$  との  $\Delta G$  の差が大きい  $\text{U}_3\text{O}_8$  では、還元反応時に大きな反応熱の発

生が考えられる。このためにメッシュとの接触部分での還元反応による部分的な温度上昇により、U と Fe の最低共晶温度 725 °C を越えたため、メッシュの破損が起こったと想定される。これに対し  $\text{UO}_2$  では  $\text{Li}_2\text{O}$  との  $\Delta G$  の差が小さいために、還元反応が穏やかに進行するため SUS メッシュへのダメージが小さいと考えられる。本年度実施した  $\text{UO}_2$  を出発物質とした Li 還元試験では、SUS メッシュは Li 還元後も健全性を維持していた。特に Run-2 の模擬 FP 混在時の Li 還元で使用したような、325 メッシュの SUS メッシュを線径の太い 50 メッシュ程度の SUS メッシュで挟んだ構造の場合、Li 還元後も十分な強度を維持しており、メッシュバスケットの構造の工夫によりメッシュ材料は SUS で十分対応可能であると言える。

#### 4.4 Li 還元プロセスの成立性

$\text{UO}_2$  を Li により還元し、金属 U を生成する Li 還元は、粉末状  $\text{UO}_2$  単独および粉末状  $\text{UO}_2$  と模擬 FP 共存系どちらの場合も、U の還元率は 100% に近い値を得た。ただし Li 還元を成立させる条件とし、反応温度、Li 添加方法、攪拌方法、Li 還元装置の雰囲気管理および塩、 $\text{UO}_2$  そして Li の比率が重要である。また Li 還元プロセスを成立性させるには以下の項目も重要なと考える。

##### (1) 還元生成物の回収方法

還元生成物の回収方法は、本試験では金属メッシュを用いた濾過式の回収方法を用いている。本方法は、還元生成物の粒径がメッシュのサイズよりも小さく、メッシュから脱落し、回収率が低下するという問題点がある。還元生成物の回収率を向上するため、メッシュ構造（焼結フィルターの使用等）の検討、遠心分離等を用い、還元生成物と  $\text{LiCl}$  の分離を検討する必要があると考えられる。

##### (2) FP の分離方法

Li 還元により得られた U を溶融塩から分離する際、U に FP が混ざることが確認された。Li 還元生成物である U を電解精製に持ち込む前に、U に付随する FP を分離する工程が必要になる可能性もある。

### III.おわりに

昨年度実施した  $U_3O_8$  を用いた Li 還元試験の結果に基づき、Li 還元装置に用いるメッシュバスケットのメッシュ材料の見直しを行い、本年度は微細な粒径 40  $\mu\text{m}$  以下の  $UO_2$  を出発物質とした Li 還元試験を行った。本試験により得られた知見を以下にまとめる。

- ① Li 還元に用いるメッシュ材料として使用可能な材料を摘出し、Li および U との反応性を調査し、有望と思われるメッシュ材料の選定を行った。その結果 Ti、Ta、W、Cu、Ni、Mo、モネル材を選定した。選定したメッシュ材料を用いて Li 還元環境における耐食性試験を行った。この試験結果から、Ti および W の Li 還元環境における耐食性を確認した。これらのメッシュ材料を用い、Li 還元試験を行った。しかしながら両材料とも Li 還元試験終了後にはメッシュの破損が確認された。が  $UO_2$  を出発物質とした本試験では、同時に装荷した SUS 製メッシュは破損がなく、 $UO_2$  を出発物質とした Li 還元では SUS 製メッシュが使用可能であることを確認し、今回の実験で使用したメッシュの構成方法(SUS 製 325 メッシュを同材質の 50 メッシュで挟み込む構造)が、Li 還元時のメッシュ材料の強度を維持するのに有効な手段であることがわかった。
- ② Li 還元試験において、 $Li_2O$  から算出した還元率は、ほぼ 100% であった。また Li 還元により生成した還元生成物についても、サンプリングした各部で還元率が 80~100 % で、この結果は塩酸法およびガスピューレット法とも、ほぼ同じ値であることが確認された。
- ③ 微細な粒径の  $UO_2$  27 g を出発物質とした Li 還元試験では、 $Li_2O$  の発生量から還元開始後、2 時間程度で還元が終了し、還元生成物の還元率は 80~100 % と高いことが確認された。しかし還元生成物の回収の際、メッシュからの還元生成物の脱落が見られた。今後、還元生成物の効率的な回収方法を検討する必要がある。
- ④ Li 還元の際、 $UO_2$  と共に模擬 FP 共存した場合でも、還元率は、ほぼ 100 % であった。 $UO_2$  の還元に模擬 FP の共存は影響しないことがわかった。ただし還元生成物中に模擬 FP のほとんどが残留することが確認されている。今後は模擬 FP の Li 還元における挙動の詳細な調査が必要である。また還元生成物中の U と模擬 FP 成分の分離方法に付いても検討する必要がある。

表1-1 メッシュ材料の評価結果

融点が650°C以上で メッシュ材料として 使用実績がある材料	Liとの反応性	Uとの反応性	評価	耐食性確認試験 で使用するメッ シュ材料
Ag	あり	なし	Liと反応するため候補材料として不適切	
Au	あり	なし	Liと反応するため候補材料として不適切	
Cu	なし	限定された存在比の ときのみ反応性あり	Uとの反応性が不明確なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	○
Mo	状態図なし	限定された存在比の ときのみ反応性あり	Uとの反応性が不明確なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	○
Ni	なし	あり (Fe類似の状態図)	Uとの反応性が不明確なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	○
Pt	あり	なし	Liと反応するため候補材として不適切	
Ta	状態図なし	なし	Liとの反応性が不明なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	○
Ti	なし	限定された存在比の ときのみ反応性あり	Uとの反応性が不明確なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	
W	状態図なし	なし	Liとの反応性が不明なため候補材として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある	○
SUS316L	状態図なし	状態図なし	Feが主成分である。FeとUは反応するため候補材料として不適切	
モネル (CU-Ni)	状態図なし	状態図なし	Li、Uとの反応性が不明なため候補材料として選定しメッシュ材料として適切か確認する必要がある、	○

表1-2 メッシュ材料耐食性試験の試験条件

LiCl量	424 [g]
UO <sub>2</sub> 量	27 [g]
Li量	
UO <sub>2</sub> 粒径	40 [ $\mu\text{m}$ ] 以下
Li添加方法	全量を11分割し10分おきに添加
還元温度	650 [°C]
還元時間	8 [時間]
攪拌回転数	900 [rpm] (Li投入中は500 [rpm])
静置温度	700 [°C]
静置時間	24 [時間]

表1-3 各メッシュ材料の重量変化

	初期重量 [g]	還元後重量 [g]	重量減少率 [%]
W	0.0108	0.0100	7.41
Mo	0.0206	0.0199	3.40
Ta	0.3471	0.3409	1.786
Ti	0.0821	0.0801	2.44

表2-1 模擬FP共存系Li還元試験で用いた酸化物の物組成比

金属	金属原子量	使用済み 燃料中 存在量 [kg]*	使用済み 燃料中 存在量 [mol]	酸化物の 添加形態	化合物 原子量	酸化物とし た場合の 使用済み燃 料中存在量 [kg]	化合物とし ての存在比 [wt.%]	添加重量 [g]
U	238.029	1.38E+04	5.78E+01	UO <sub>2</sub>	270.07	1.56E+04	83.9	22.7
Sr	187.62	3.96E+01	2.11E-01	SrO	103.63	2.19E+01	0.12	0.032
Zr	91.22	2.33E+02	2.56E+00	ZrO <sub>2</sub>	123.22	3.15E+02	1.69	0.457
Mo	95.94	2.81E+02	2.93E+00	MoO <sub>3</sub>	143.95	4.22E+02	2.27	0.612
Ru	101.07	2.59E+02	2.57E+00	RuO <sub>2</sub>	133.07	3.41E+02	1.84	0.500
Cs	132.9054	3.21E+02	2.41E+00	Cs <sub>2</sub> O	281.82	6.80E+02	3.67	0.988
La	138.9055	1.03E+02	7.41E-01	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	325.84	2.41E+02	1.30	0.350
Ce	140.12	1.87E+02	1.33E+00	CeO <sub>2</sub>	172.13	2.29E+02	1.23	0.333
Nd	144.24	3.16E+02	2.19E+00	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	336.48	7.37E+02	3.96	1.07
合計						1.86E+04	100	

\*受託研究 FBRリサイクルシステムに関する研究その4(I)で検討

表3-1 LiCl中のLi<sub>2</sub>O濃度によるUO<sub>2</sub>還元率の経時変化 (U単独) (Run-1)

経過時間 [hr]	還元率 [%]
0	0
2	93.9
4	97.3
6	95.0
8	93.6
22	92.9
32	96.4

表3-2 塩酸法とガスピューレット法による還元率測定結果（U単独）(Run-1)

	還元率 [%]	
	塩酸法	ガスピューレット法
メッシュ上回収物	89.2	84.6
メッシュ脱落物	96.3	95.8
メッシュバスケット壁面付着物	70.8	89.5
攪拌羽根付着物	95.7	94.9

表3-3 還元生成物の組成および付着物量 (U単独) (Run-1)

	元素組成 (%)			サンプル重量 [g]	塩付着量 [g]	Li <sub>2</sub> O付着量 [g]	Li付着量 [g]
	U	Fe	Ti				
メッシュ上回収物1	99.45	0.517	0.035	—	—	—	—
メッシュ上回収物2	99.88	0.052	0.071	0.053	6.00E-03	ND	1.01E-04
メッシュ脱落物1	99.78	0.209	0.014	—	—	—	—
メッシュ脱落物2	99.48	0.518	0.002	0.043	1.11E-02	1.35E-04	7.90E-05
メッシュバスケット壁面付着物1	80.52	19.43	0.048	—	—	—	—
メッシュバスケット壁面付着物2	99.89	0.095	0.017	0.06	3.04E-02	3.10E-04	4.72E-05
攪拌羽根付着物1	97.69	2.29	0.025	—	—	—	—
攪拌羽根付着物2	99.91	0.074	0.012	0.047	1.39E-02	ND	2.48E-04

注) 1は塩酸法による還元率測定サンプル、2はガスピューレット法による還元率測定用サンプル

表3-4 LiCl中のLi<sub>2</sub>O濃度による酸化U還元率の経時変化（模擬FP共存系）(Run-2)

LiCl中Li<sub>2</sub>O濃度による還元率

経過時間 [hr]	添加物全てが還元 反応に寄与すると した場合の還元率 [%]	Nd,La,Ce以外の添 加物が還元反応に 寄与するとした場 合の還元率 [%]
0	0.0	0.0
2	98.4	105.5
4	95.0	101.9
6	97.6	104.6
8	97.7	104.7
24	101.1	108.3
32	94.8	101.6

表3-5 塩酸法とガスピューレット法による還元率測定結果（模擬FP共存系）(Run-2)

	還元率 [%]	
	塩酸法 <sup>*1</sup>	ガスピューレット法
メッシュ上回収物	98	~100
メッシュ脱落物	94.5	— <sup>*2</sup>
攪拌羽根付着物	98.9	~100

\* 1：塩酸法による還元率はUに対する還元率を測定した

\* 2：メッシュ脱落物はサンプル量が少なかったため塩酸法のみ実施

表3-6 還元生成物の組成および付着物量（模擬FP共存系）(Run-2)

塩付着量

	サンプル重量 [g]	塩付着量 [g]	Li <sub>2</sub> O付着量 [g]	Li付着量 [g]
メッシュ上回収物2	0.043	8.00E-03	ND	1.19E-03
攪拌羽根付着物2	0.019	8.00E-03	ND	4.38E-04

注) 塩酸法ではサンプルを直接酸溶解するため付着塩の測定は行わない

還元生成物の組成

		元素組成[%]										
		U	Mo	Ce	Nd	La	Sr	Zr	Ru	Cs	W	Fe
塩酸法	メッシュ上回収物(6mol%HCl溶解分)	9.42E+01	3.15E-01	6.86E-01	3.12E+00	8.21E-01	8.72E-03	2.29E-01	9.10E-02	ND	ND	2.04E-01
	メッシュ上回収物(6mol%HCl溶解残渣)	9.96E+01	6.64E-02	ND	ND	ND	ND	3.01E-01	5.42E-02	ND	ND	1.50E-02
ガスピューレット法	メッシュ上回収物(水溶解分)	ND	ND	ND	ND							
	メッシュ上回収物(7mol%HBr溶解分)	9.21E+01	9.70E-01	6.17E-01	2.80E+00	6.82E-01	6.98E-03	1.21E+00	1.25E+00	ND	1.26E-01	2.27E-01
塩酸法	メッシュ脱落物(6mol%HCl溶解分)	9.68E+01	4.90E-01	4.05E-01	2.03E+00	ND	1.19E-02	9.01E-02	ND	ND	ND	1.38E-01
	メッシュ脱落物(6mol%HCl溶解残渣)	9.96E+01	2.34E-01	ND	ND	ND	7.32E-04	1.02E-01	2.38E-02	ND	ND	6.71E-02
塩酸法	攪拌羽根付着物(6mol%HCl溶解分)	9.42E+01	9.29E-01	3.63E-01	3.02E+00	4.08E-01	8.46E-03	5.85E-01	1.73E-01	ND	ND	3.51E-01
	攪拌羽根付着物(6mol%HCl溶解残渣)	9.98E+01	2.01E-02	ND	ND	ND	ND	8.36E-02	3.62E-02	ND	ND	2.97E-02
ガスピューレット法	攪拌羽根付着物(水溶解分)	ND	ND	ND	ND							
	攪拌羽根付着物(7mol%HBr溶解分)	9.42E+01	1.27E+00	6.96E-02	1.06E+00	1.78E-01	7.97E-03	1.50E+00	1.16E+00	ND	2.94E-01	2.81E-01

表3-7 還元生成物回収後の塩中元素組成（模擬FP共存系）(Run-2)

	模擬FP元素								その他		
	Mo	Ce	Nd	La	Sr	Zr	Ru	Cs	U	W	Fe
元素量(g)	2.18E-04	ND	1.33E-02	1.16E-02	1.58E-02	1.32E-03	1.62E-04	ND	3.85E-02	ND	ND
元素組成(%)	2.69E-01	ND	1.64E+01	1.43E+01	1.95E+01	1.63E+00	2.00E-01	ND	4.76E+01	ND	ND

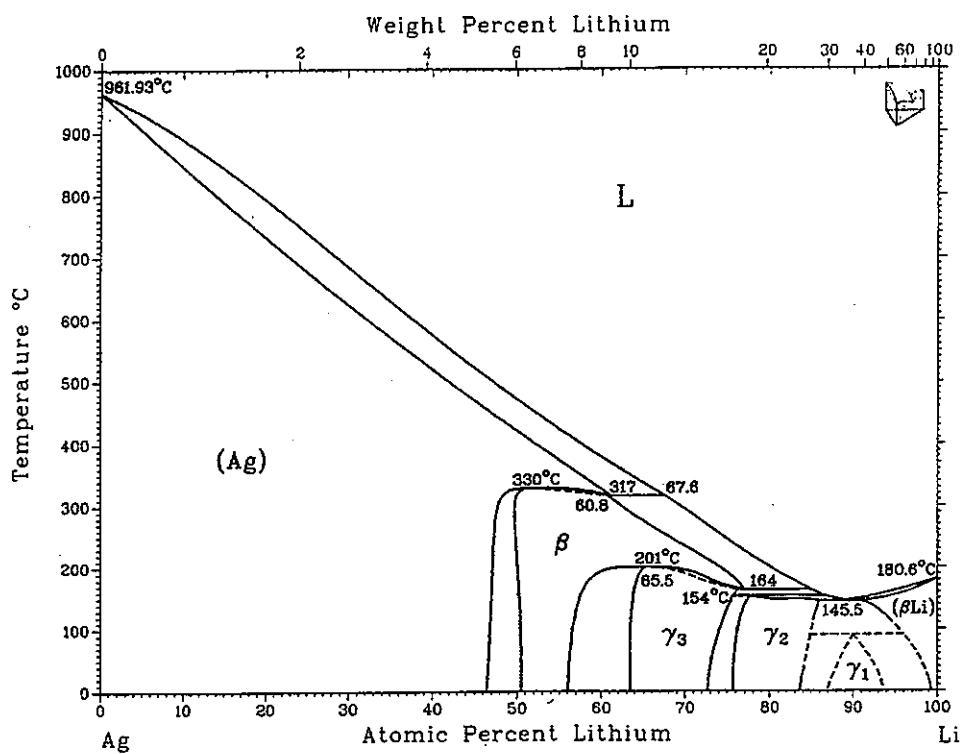


図 1-1 Ag-Li 状態図

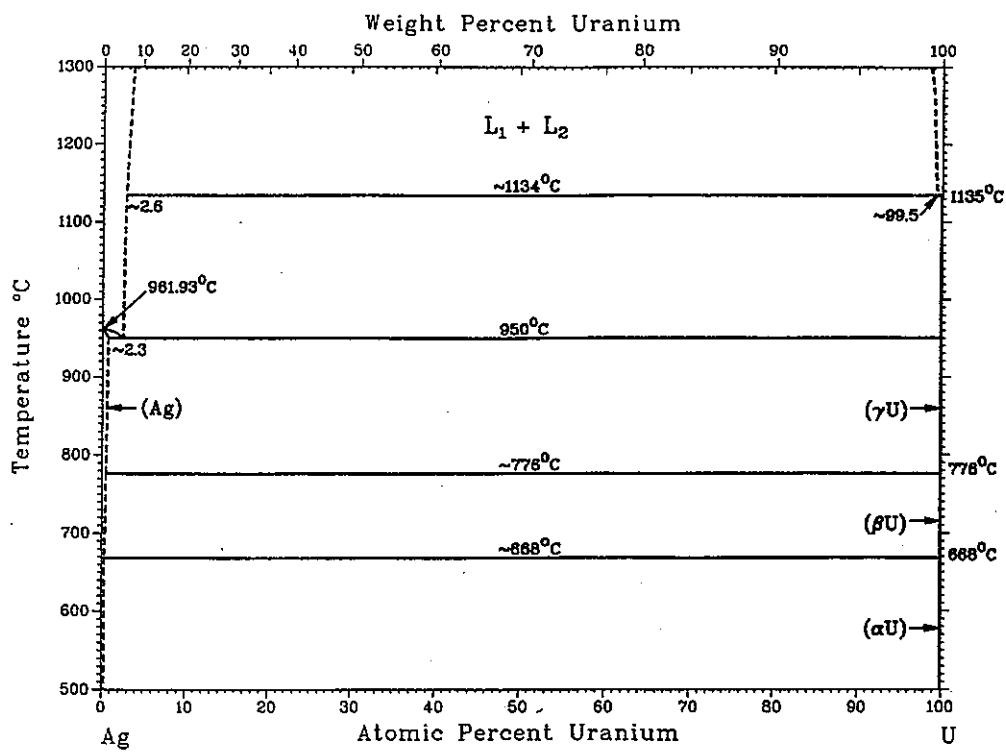


図 1-2 Ag-U 状態図

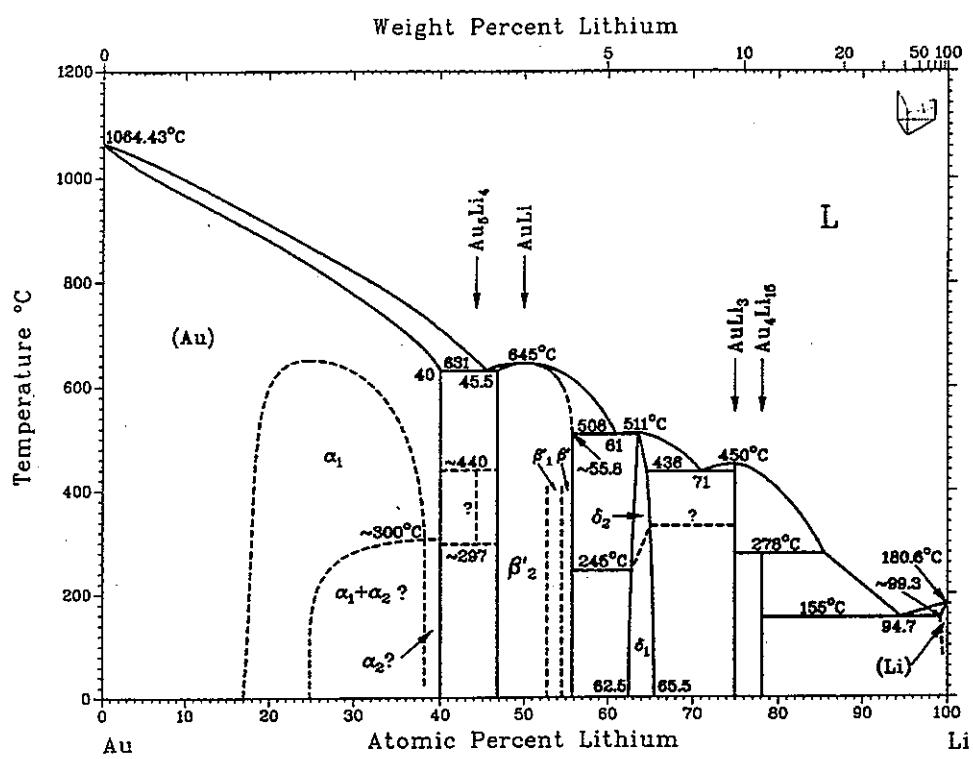


図 1-3 Au-Li 状態図

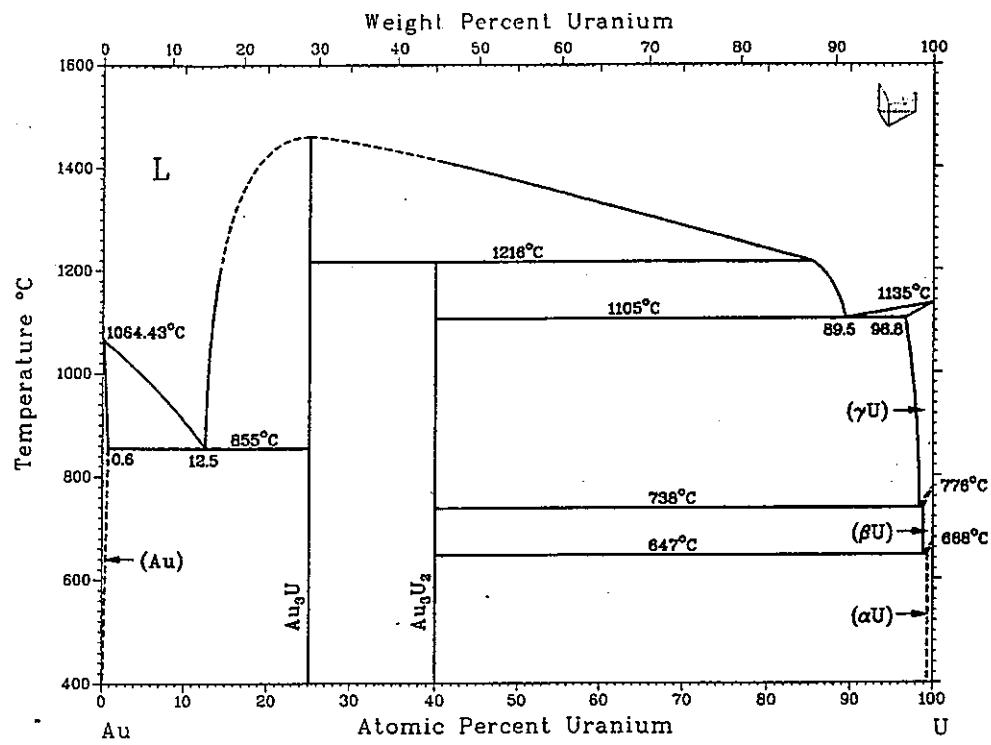


図 1-4 Au-U 状態図

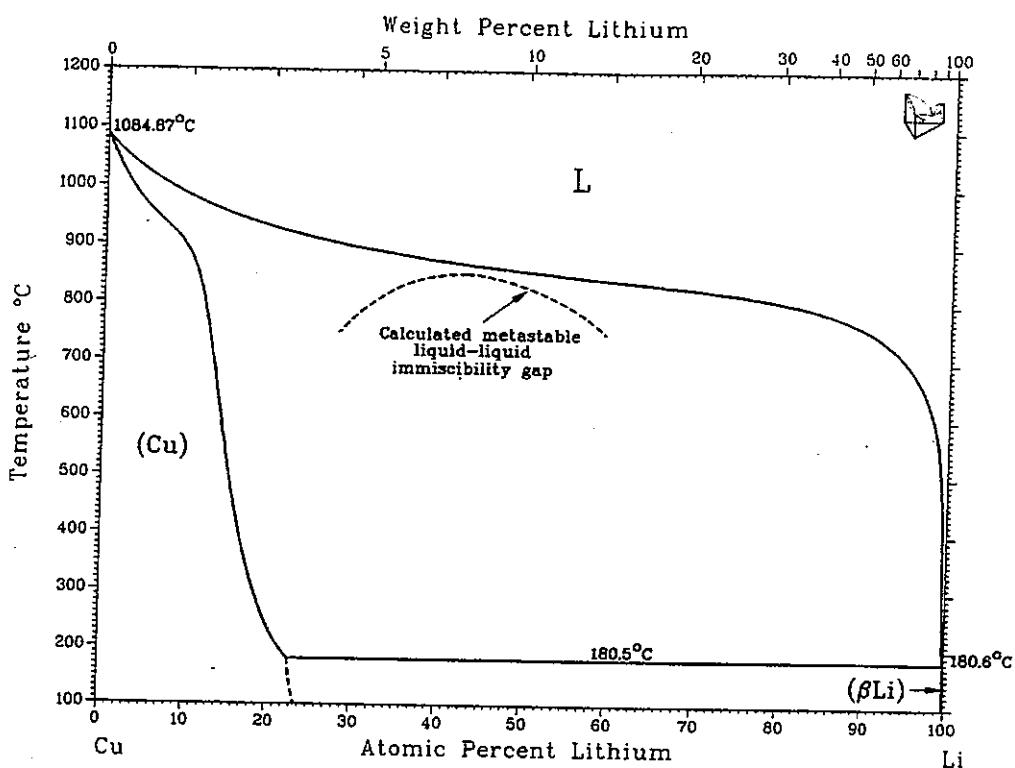


図 1-5 Cu-Li 状態図

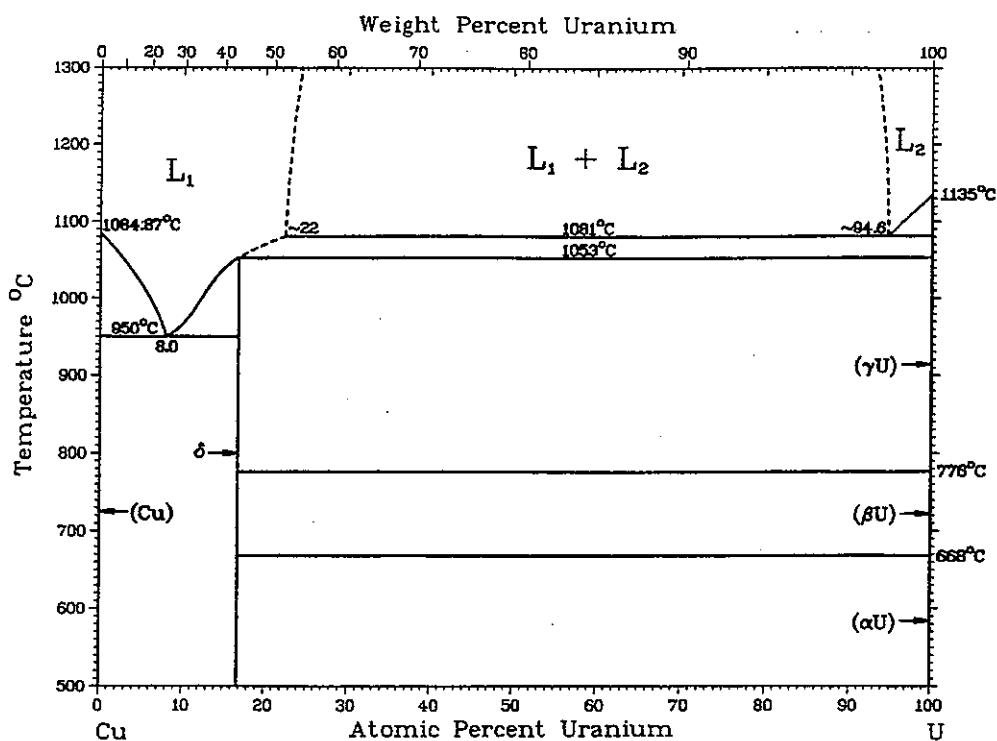


図 1-6 Cu-U 状態図

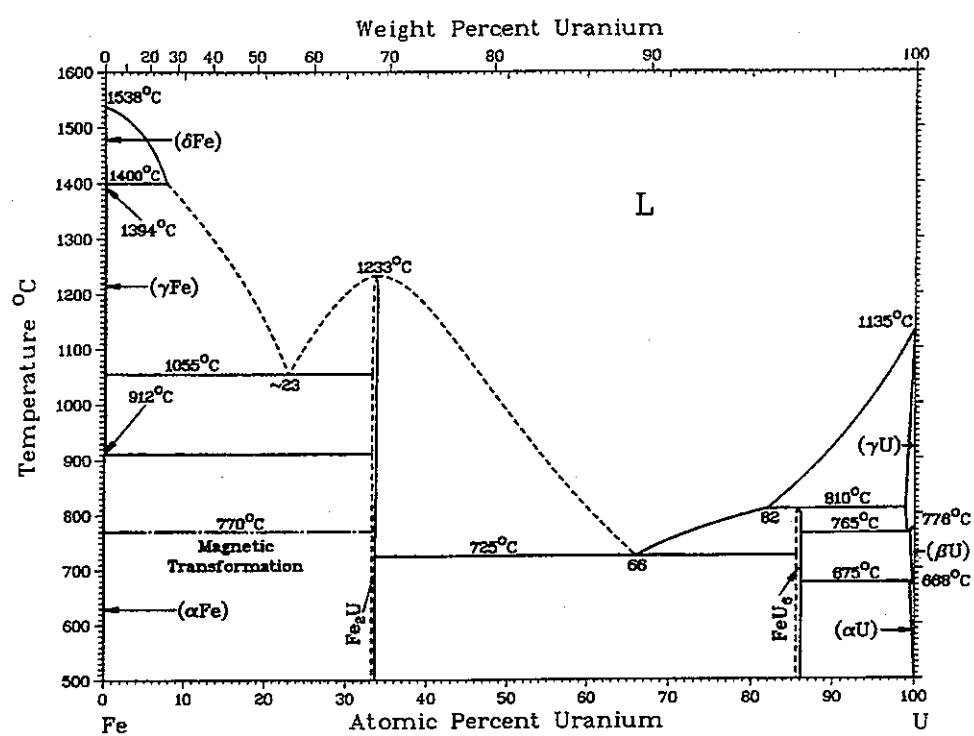


図 1-7 Fe-U 状態図

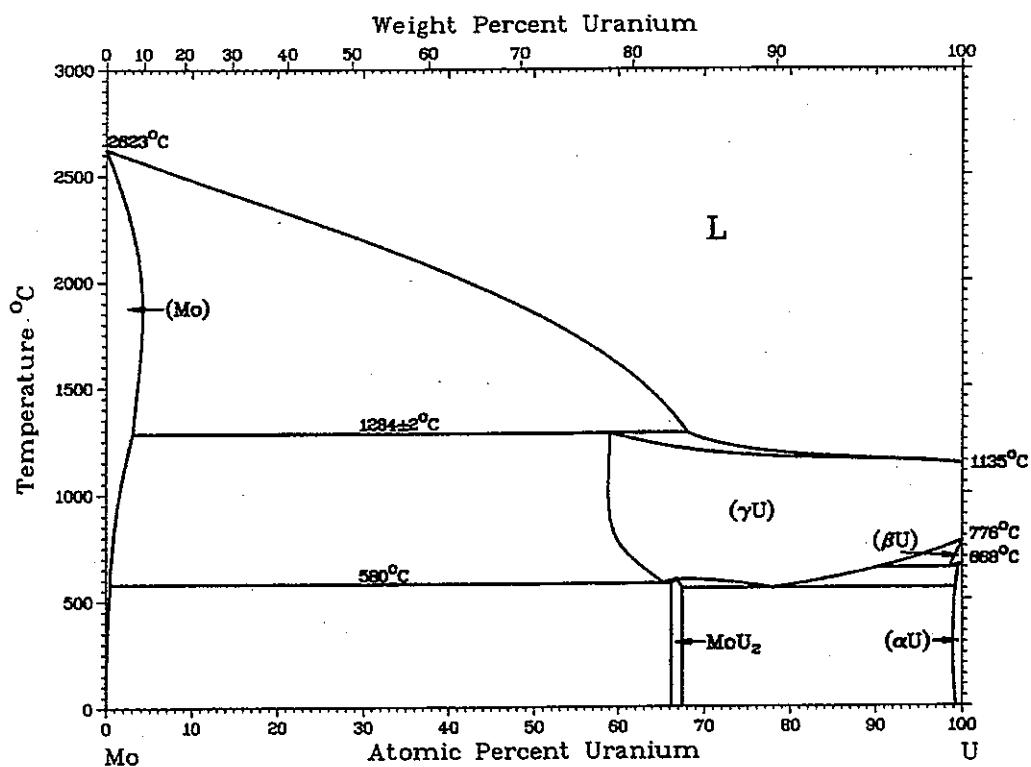


図 1-8 Mo-U 状態図

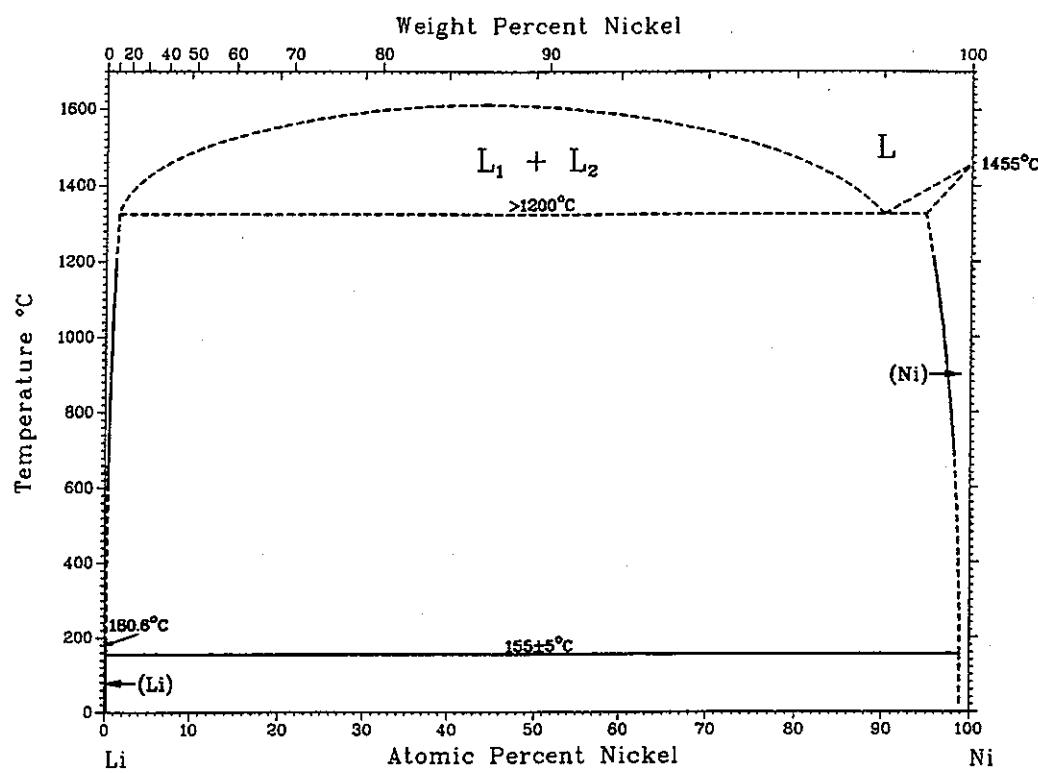


図 1-9 Li-Ni 状態図

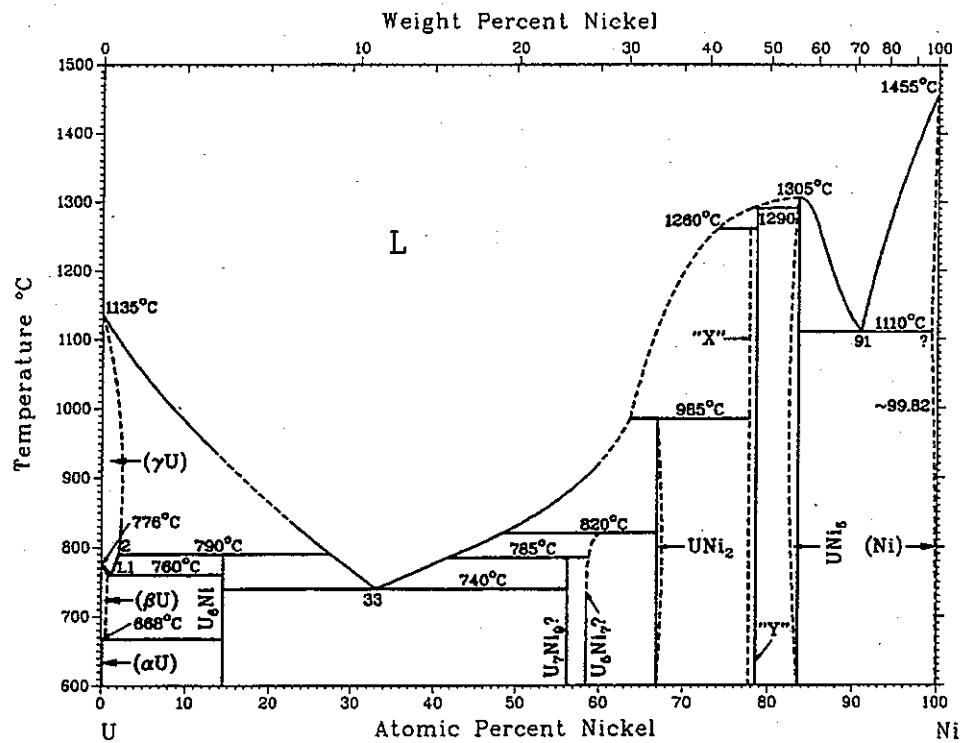


図 1-10 U-Ni 状態図

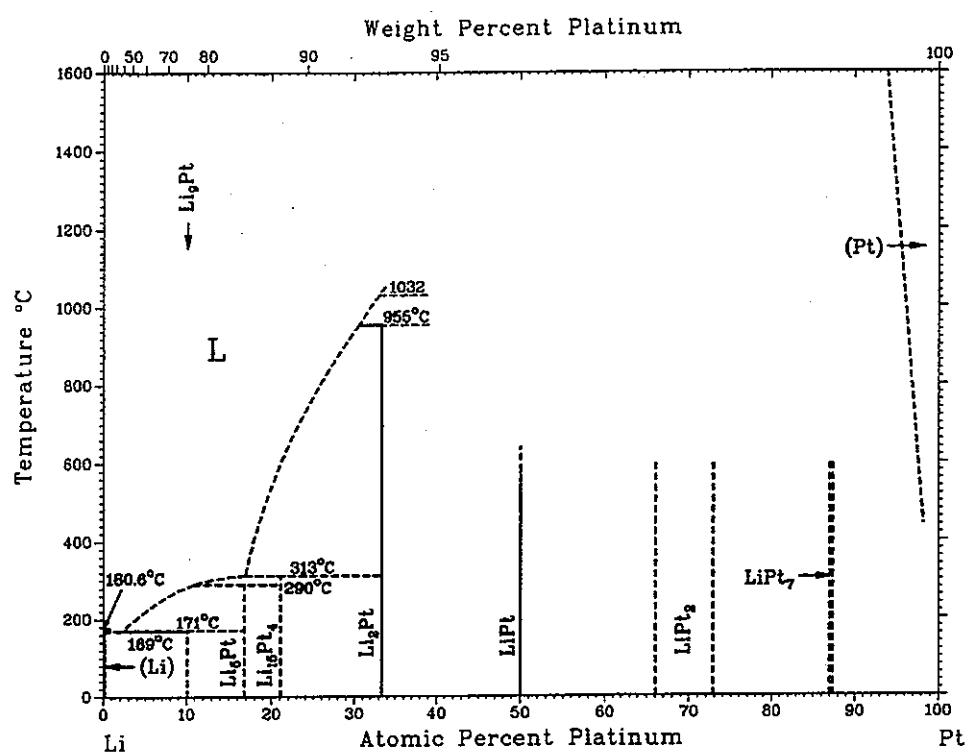


図 1-11 Li-Pt 状態図

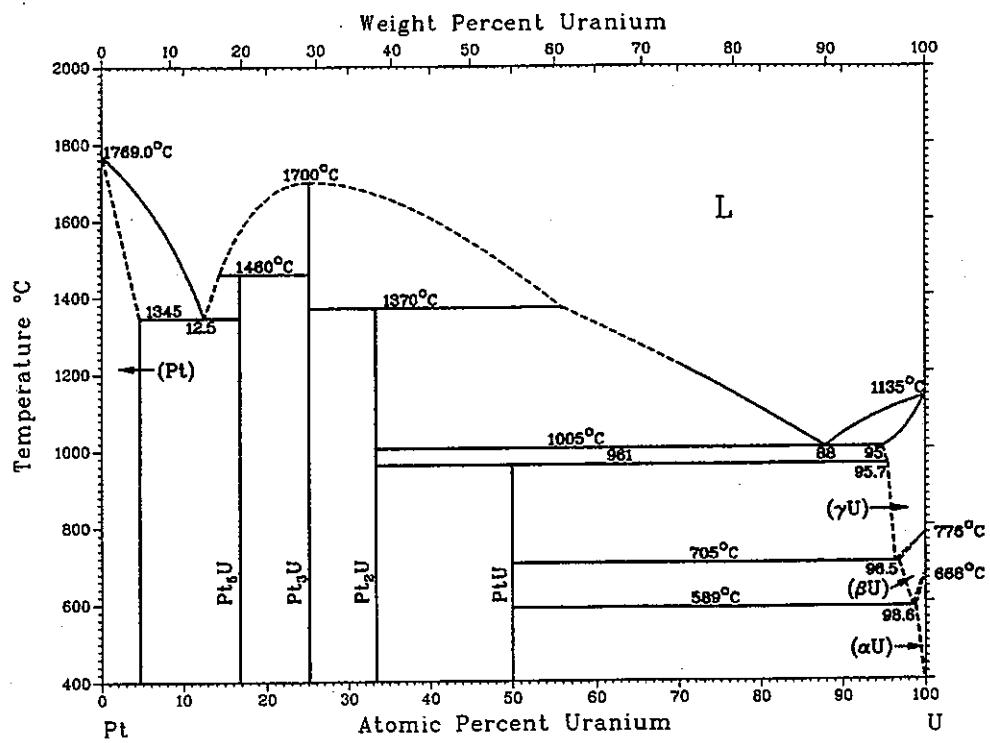


図 1-12 Pt-U 状態図

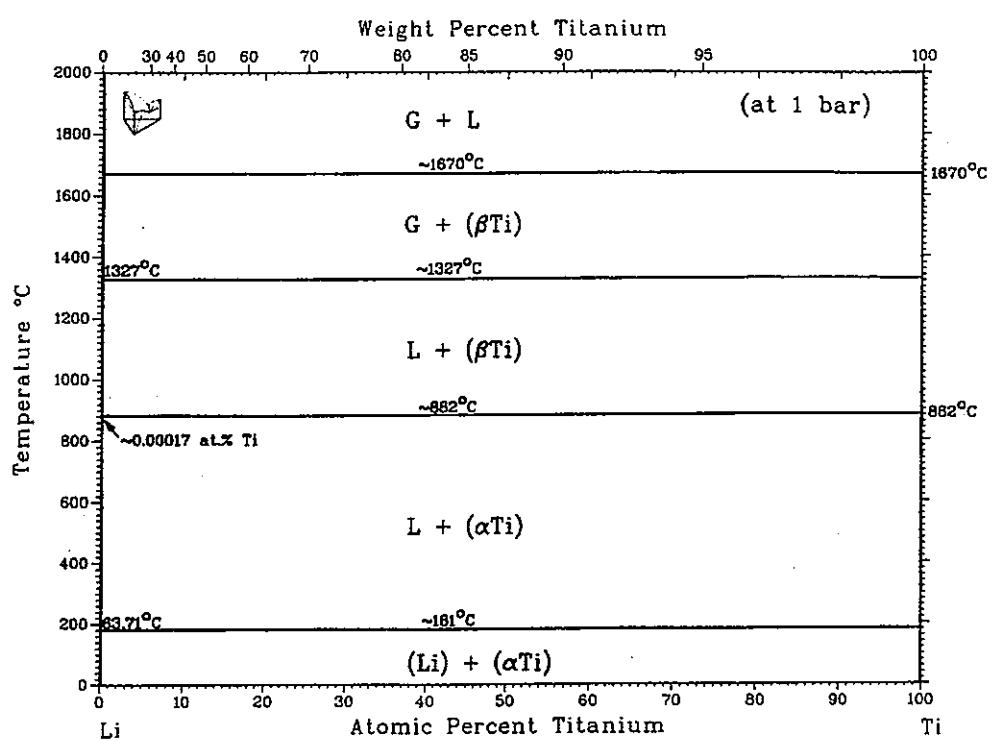


図 1-13 Li-Ti 状態図

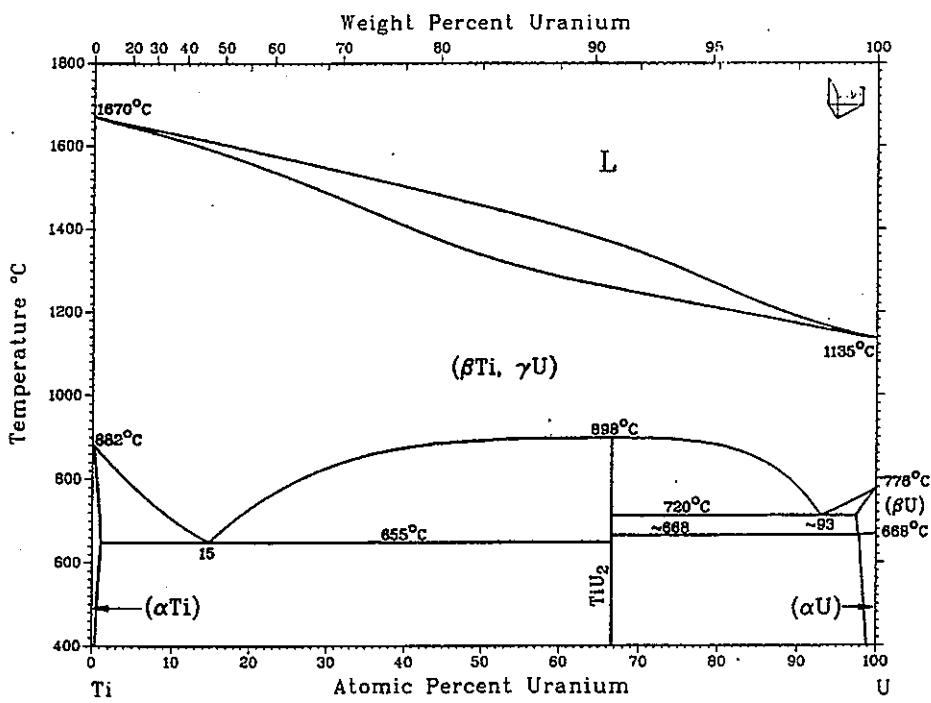


図 1-14 Ti-U 状態図

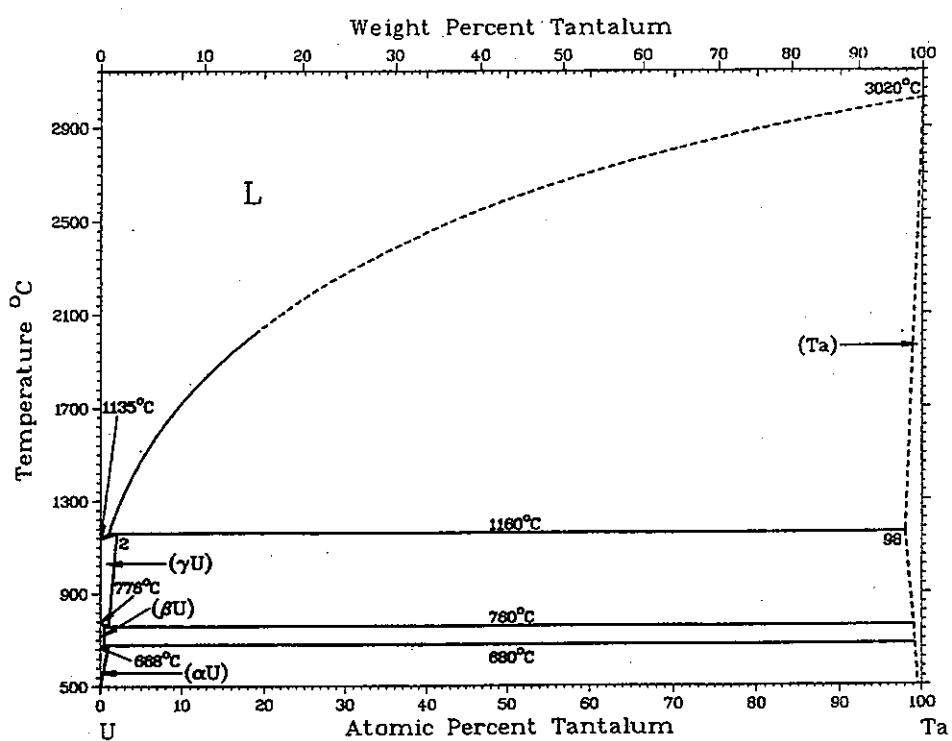


図 1-15 U-Ta 状態図

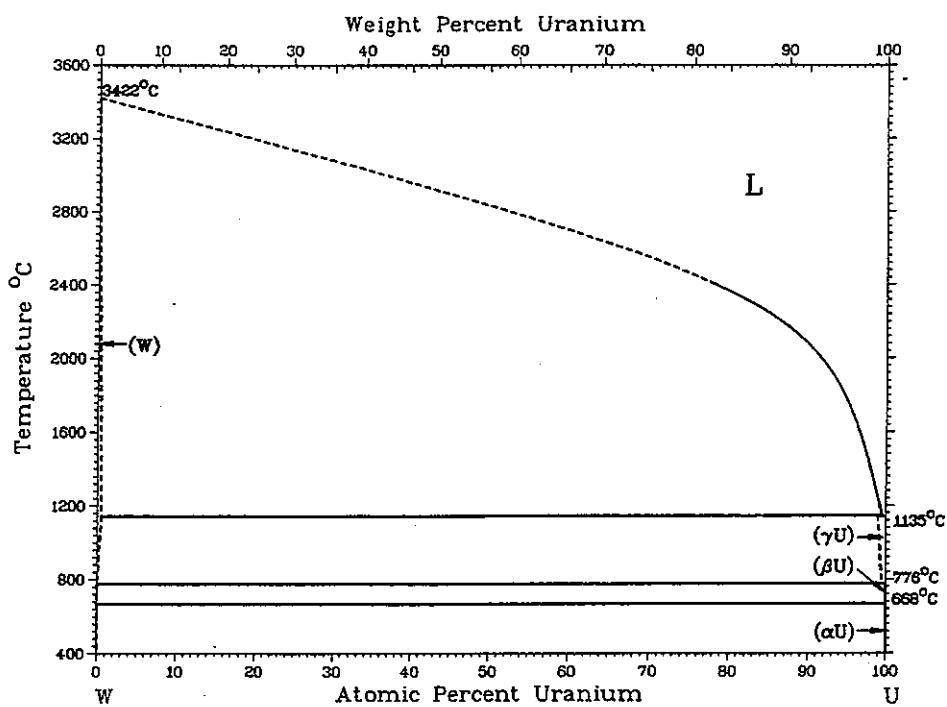


図 1-16 W-U 状態図

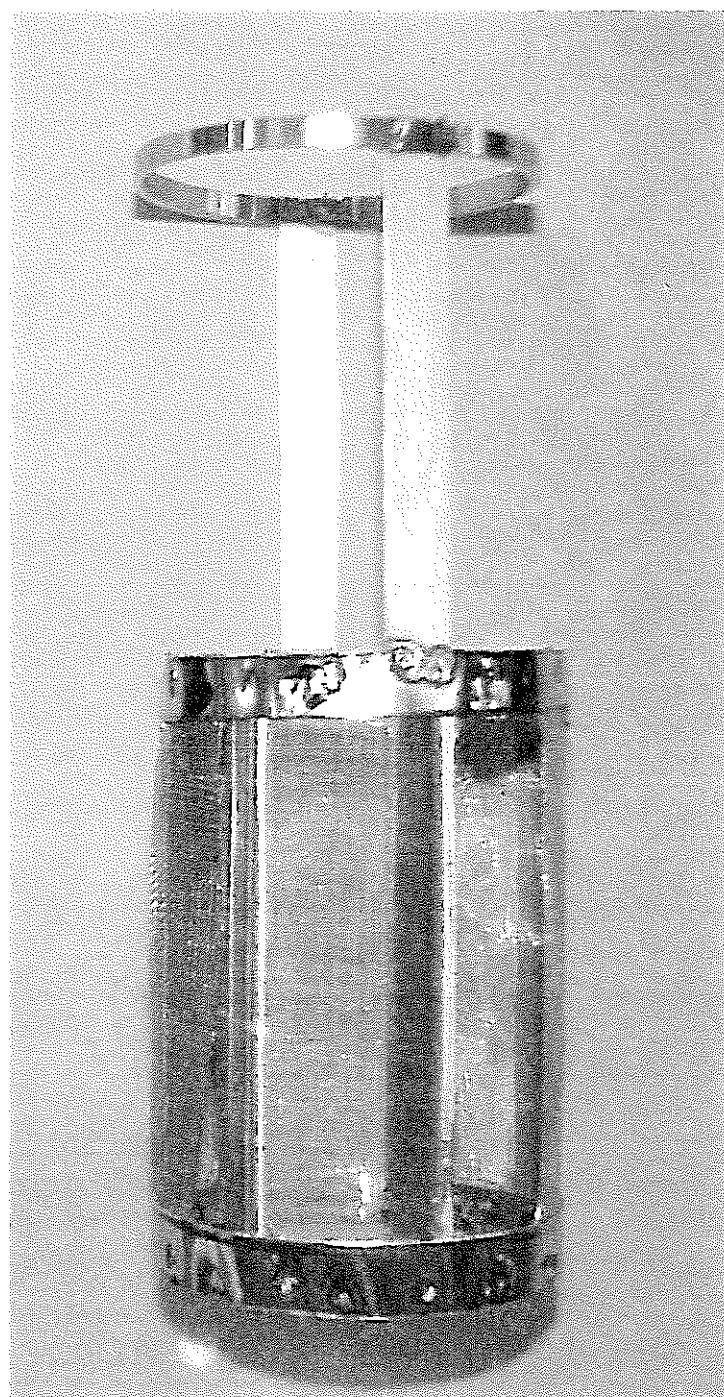


図1-17 耐食試験前のメッシュ材料の外観

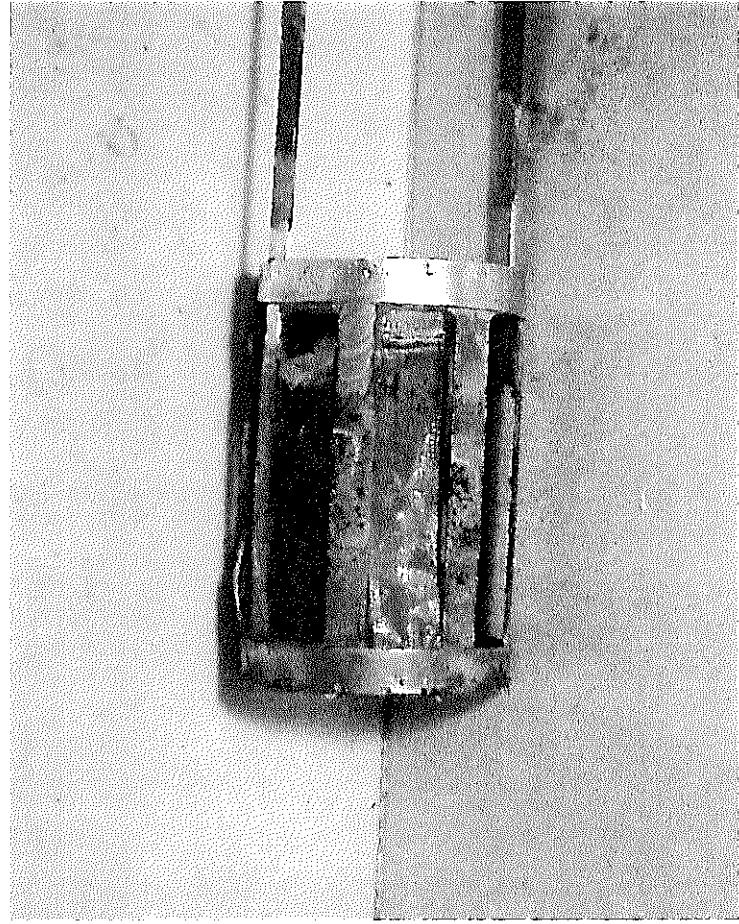
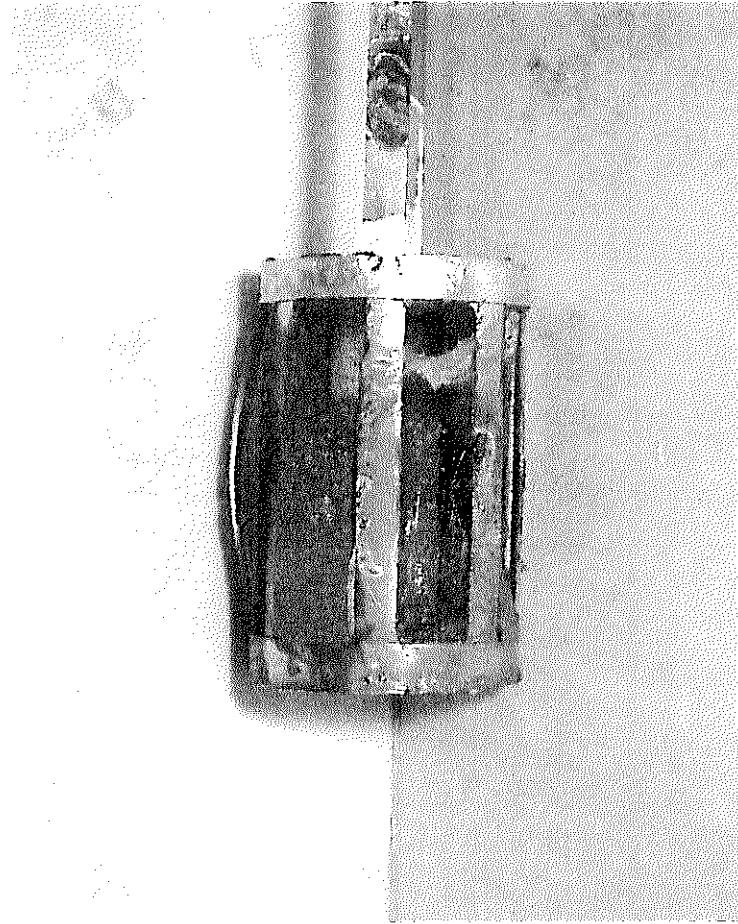
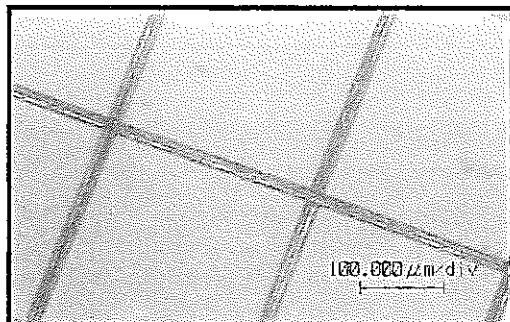


図1-18 耐食性試験後のメッシュ材料

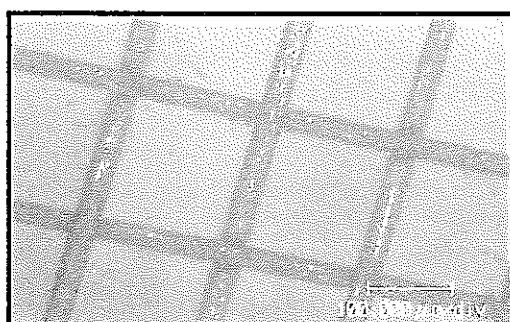
## 還元試験前

W

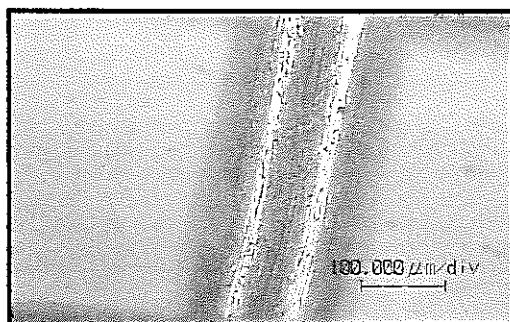


## 還元試験後

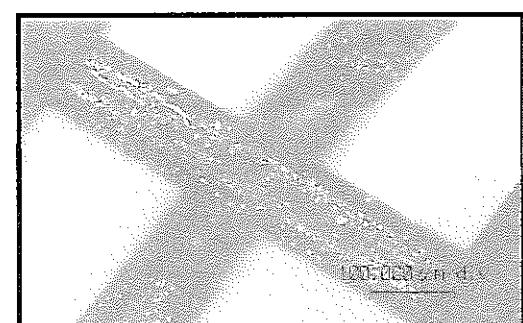
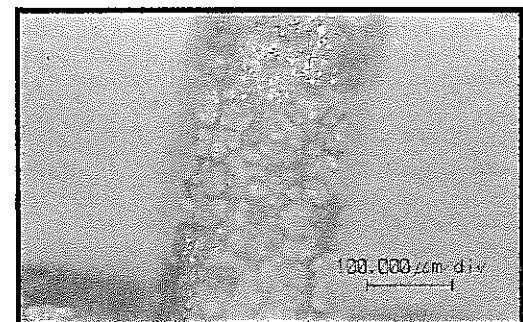
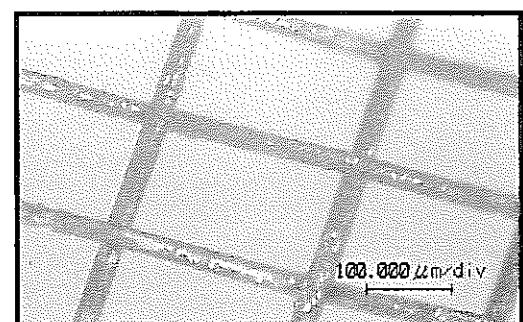
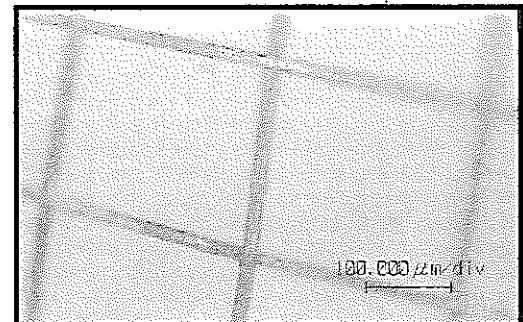
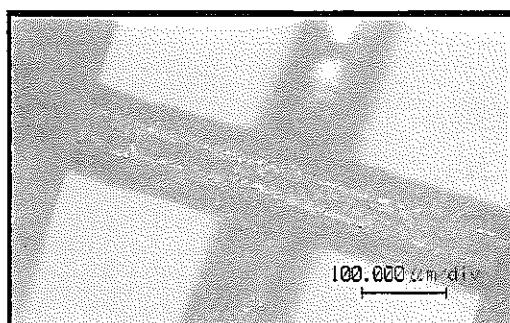
Mo



Ta



Ti



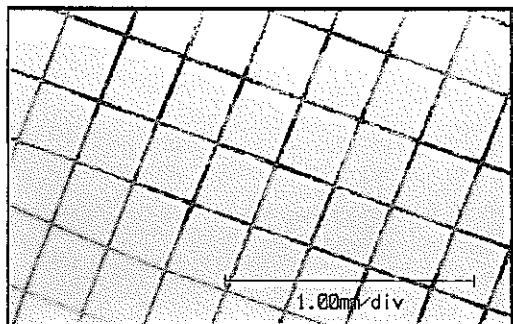
マイクロスコープにより撮影

撮影倍率: 500倍

図1-19 耐食性試験後のメッシュ材料(1)

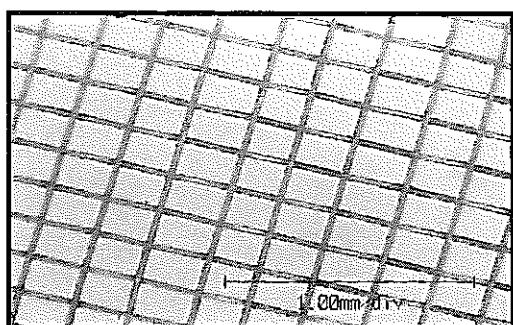
## 還元試験前

W

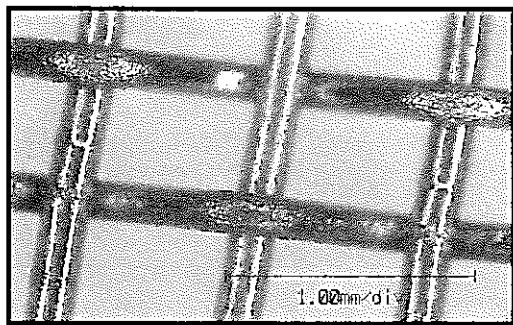


## 還元試験後

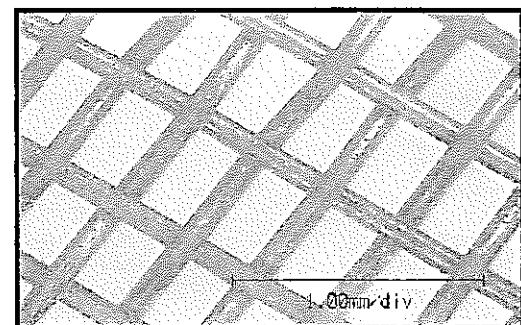
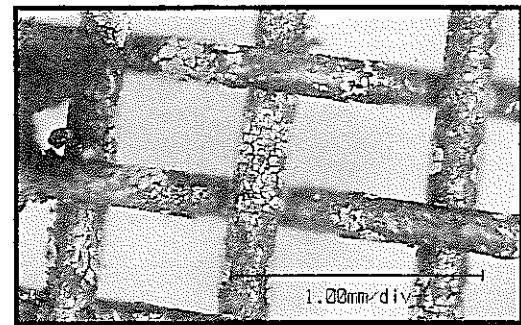
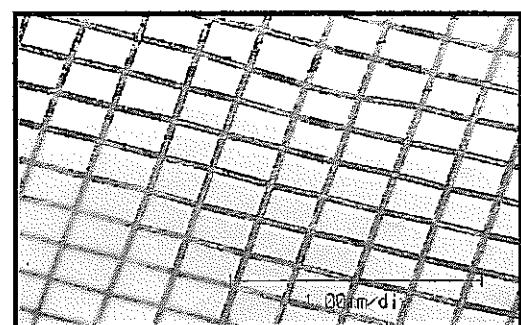
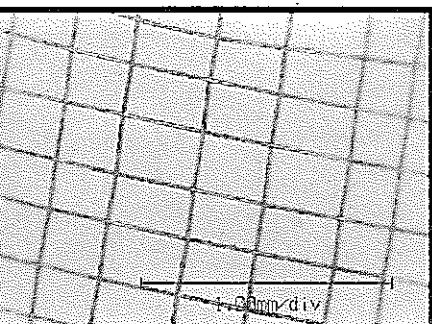
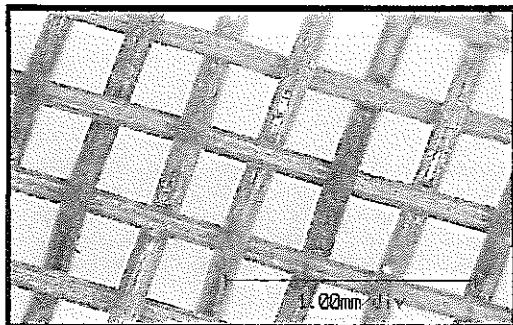
Mo



Ta



Ti



マイクロスコープにより撮影 撮影倍率:150倍

図1-20 耐食性試験後のメッシュ材料(2)

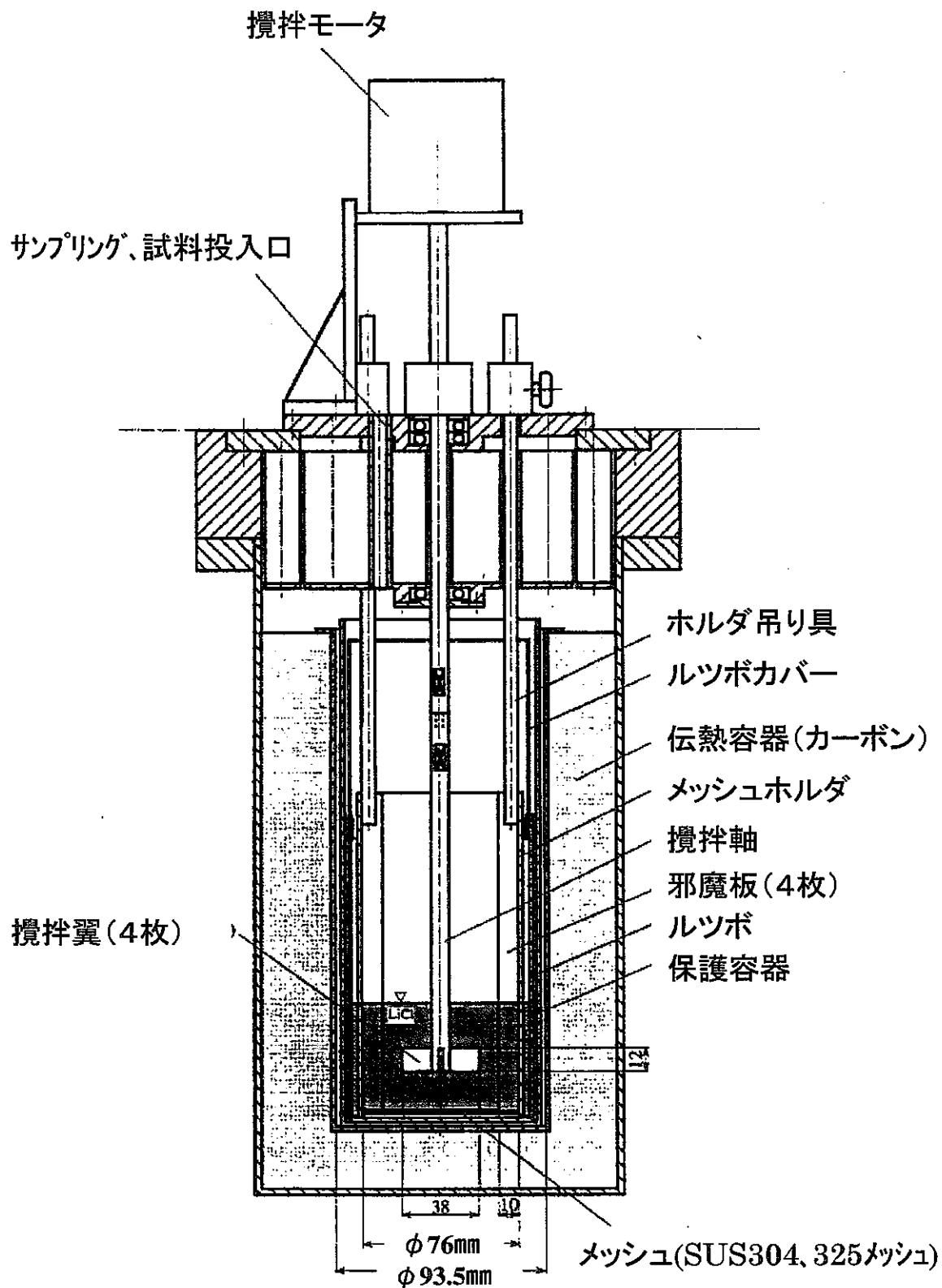


図2-1 L i 還元試験装置

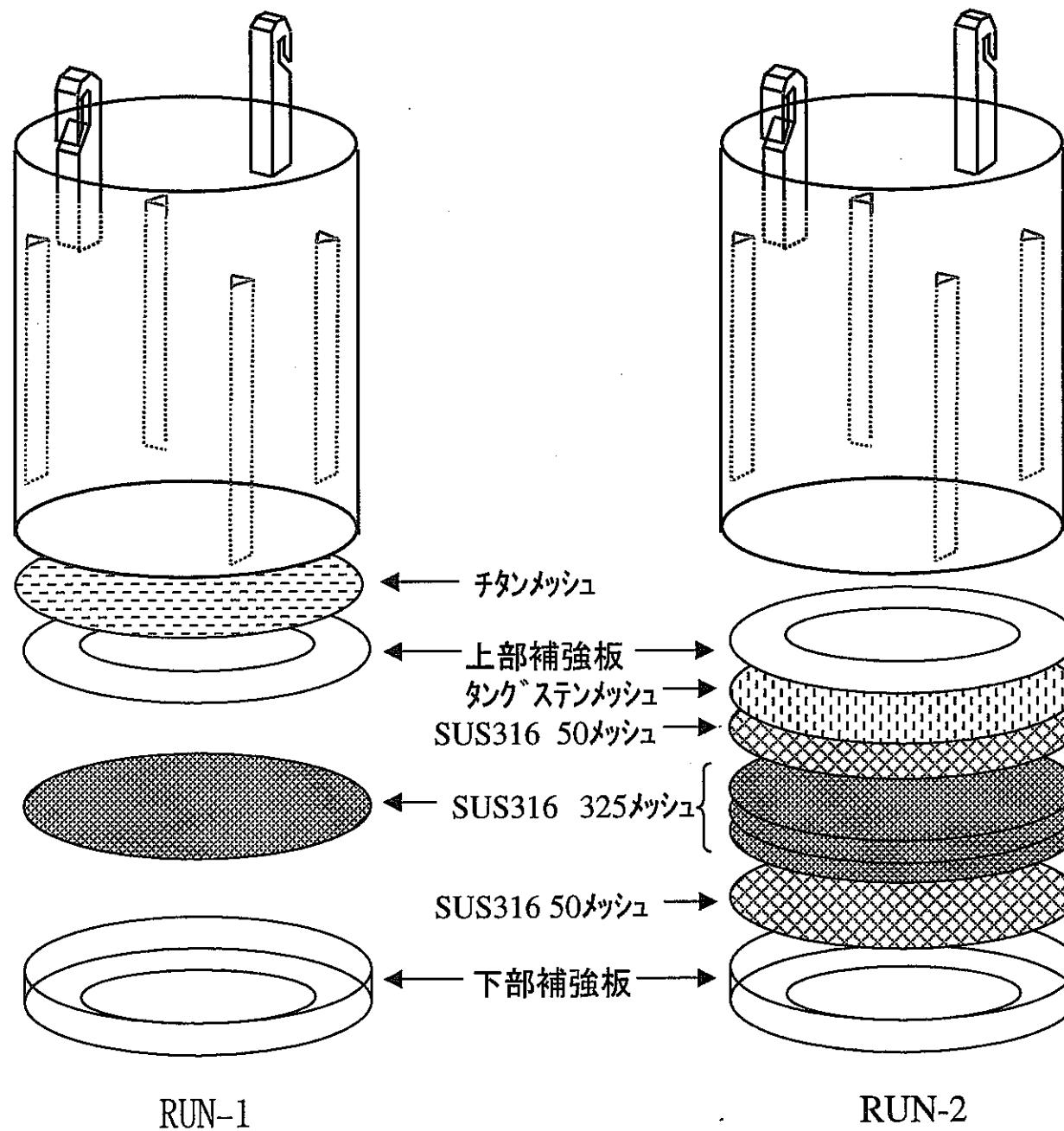


図2-2 メッシュバスケット底部のメッシュ装荷状態

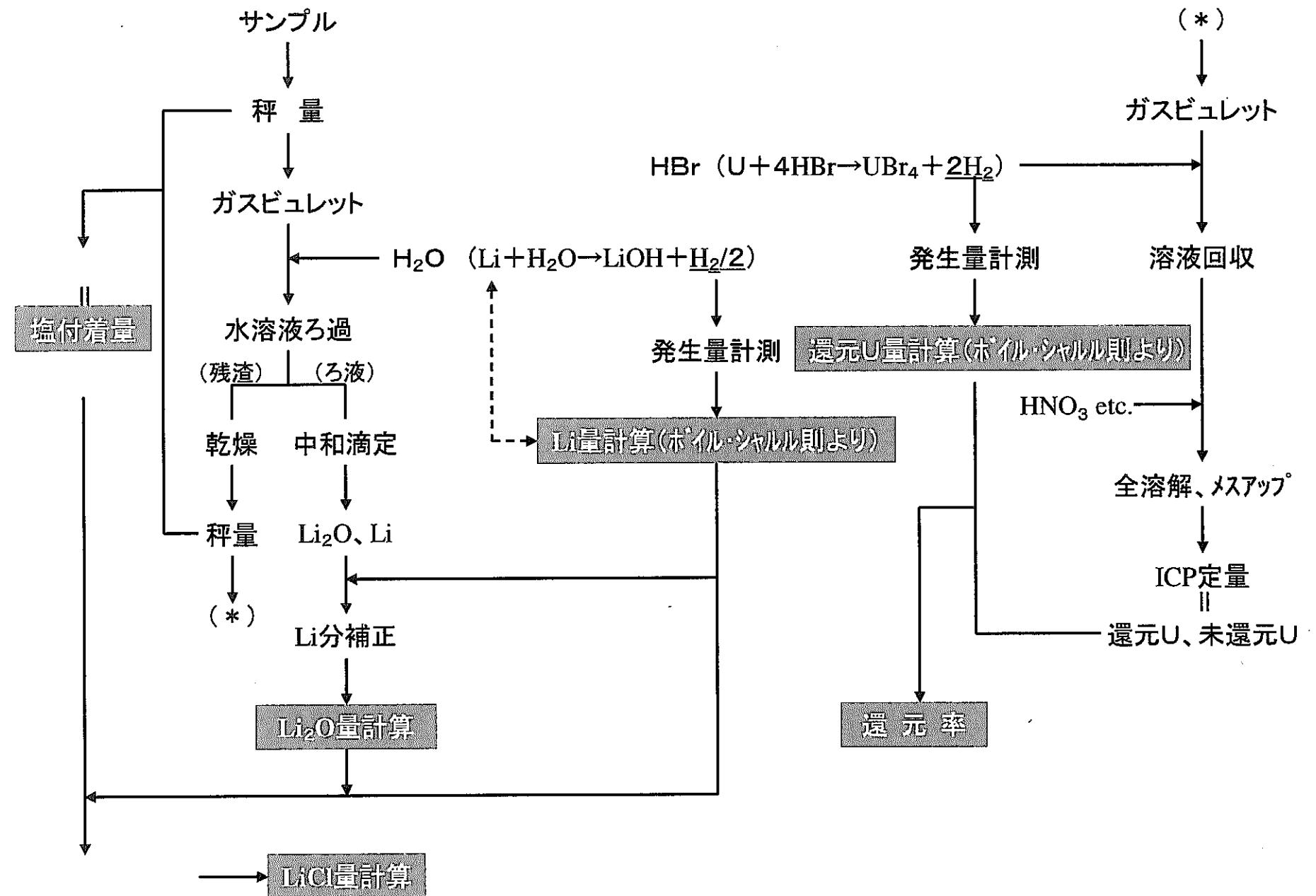


図2-3 Li還元試験 化学分析操作フロー（ガスビュレット法）

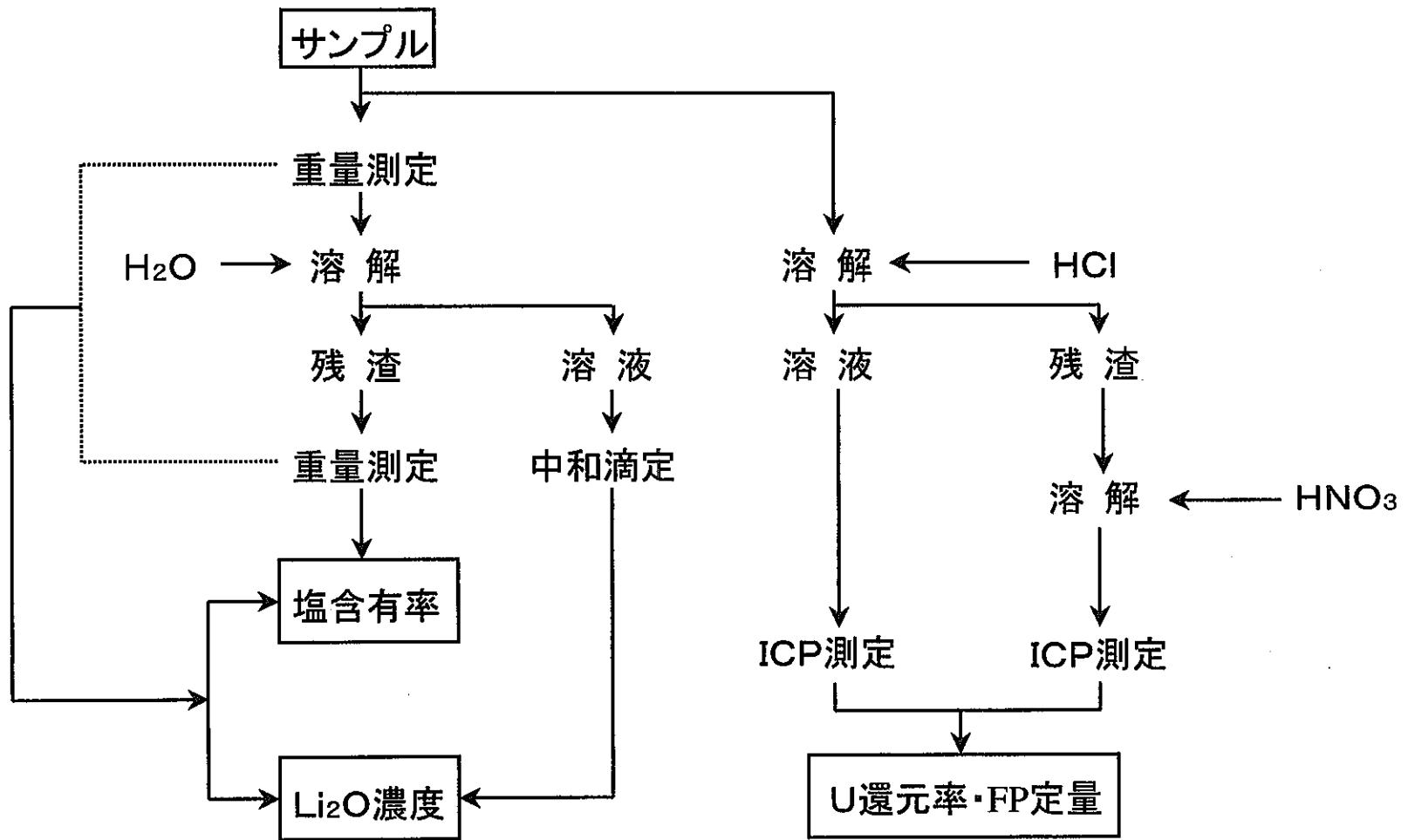


図2-4 Li還元試験 化学分析操作フロー（塩酸法）

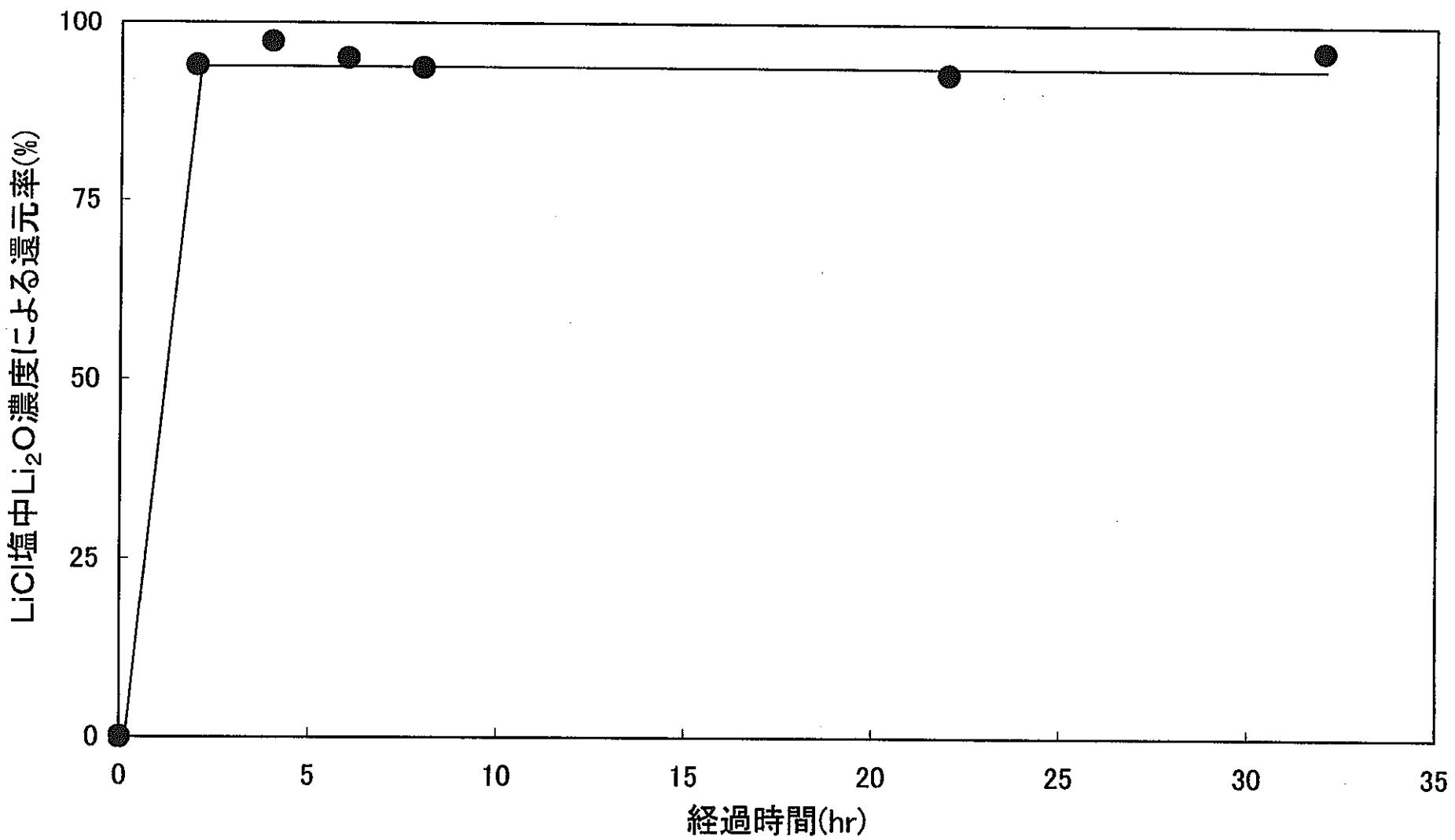
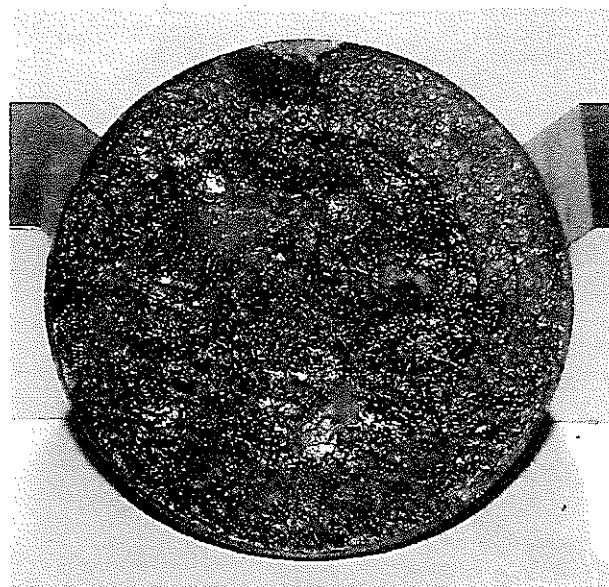


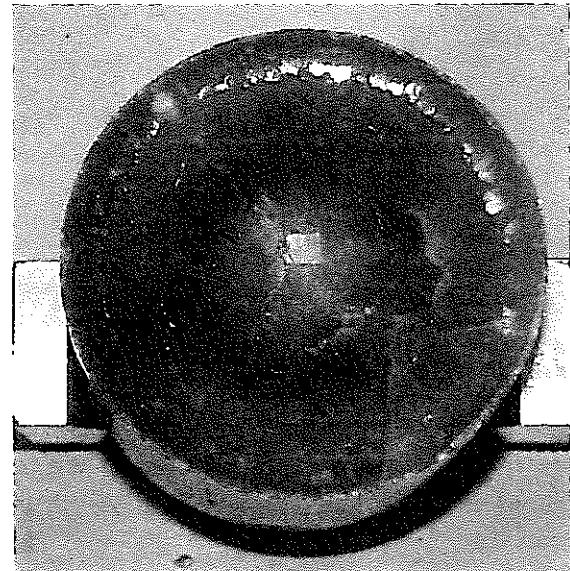
図3-1  $\text{LiCl}$ 中の $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度による $\text{UO}_2$ 還元率の経時変化 (Run-1)



還元試験後のルツボ内部



還元試験後のメッシュ



還元試験後のLiCl

図3-2 Li還元後のメッシュホルダー外観 (Run-1)

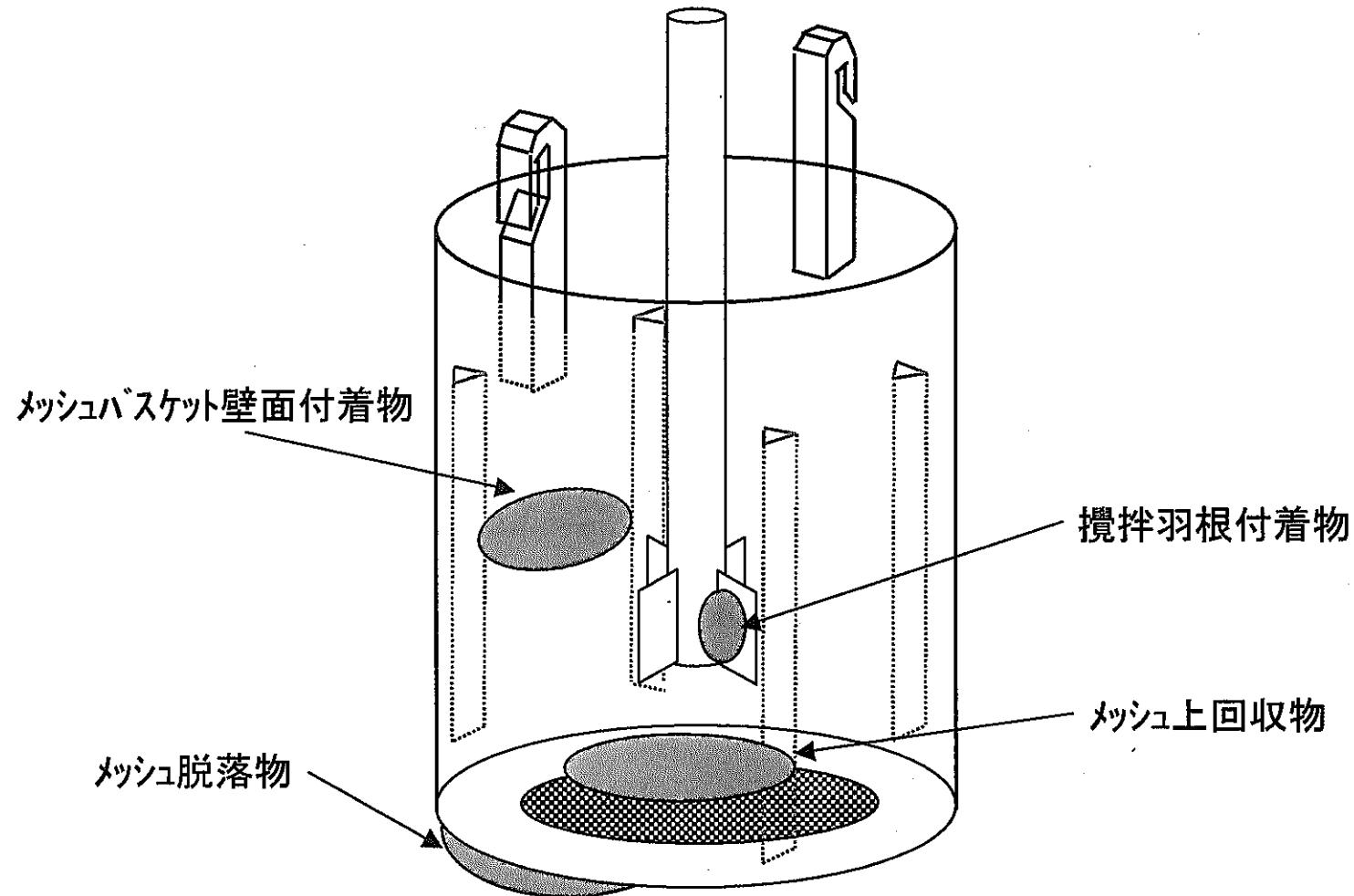


図3-3 L<sub>i</sub>還元生成物サンプルのサンプリング箇所 (Run-1)

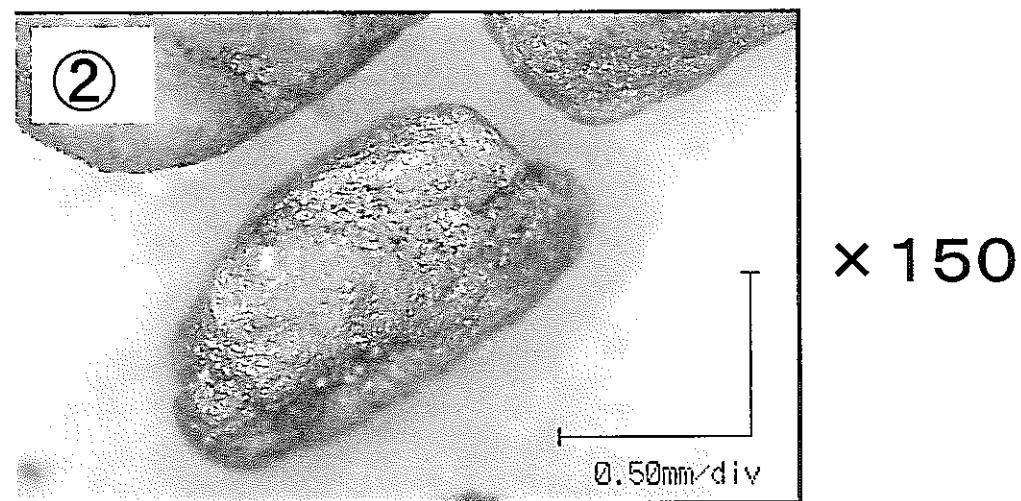
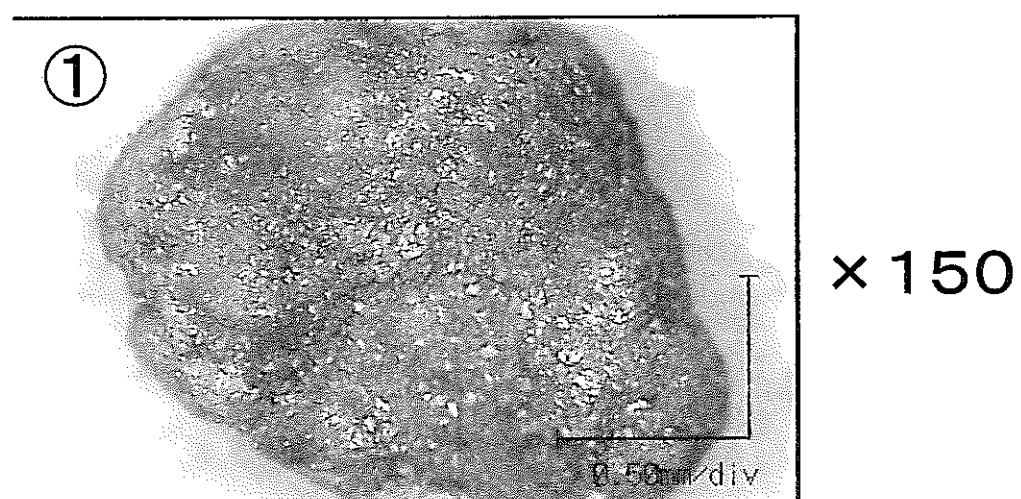
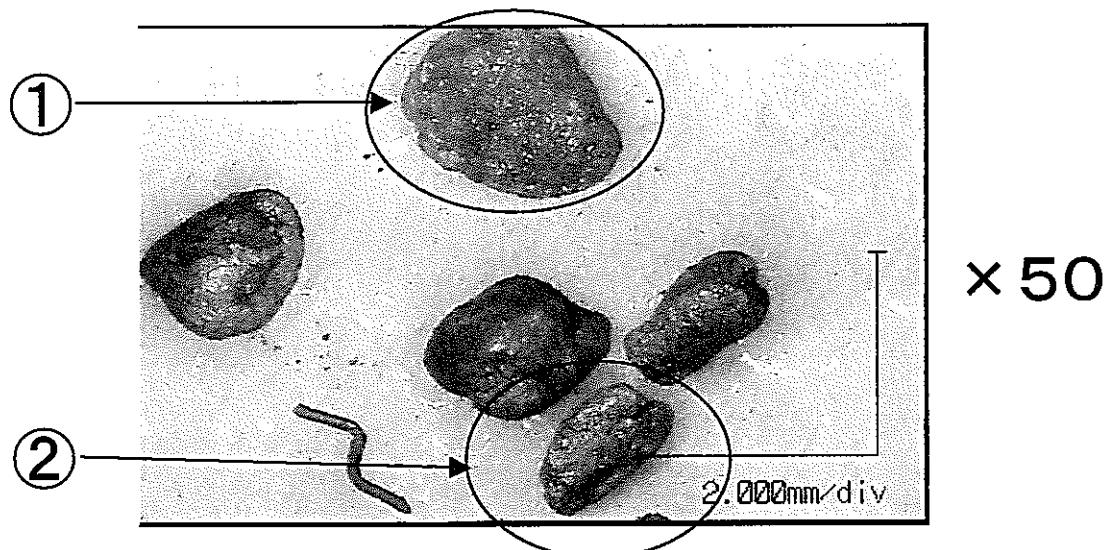
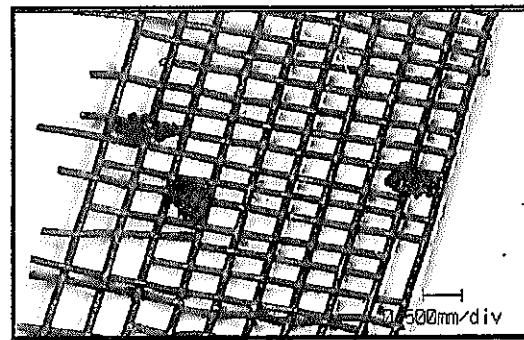
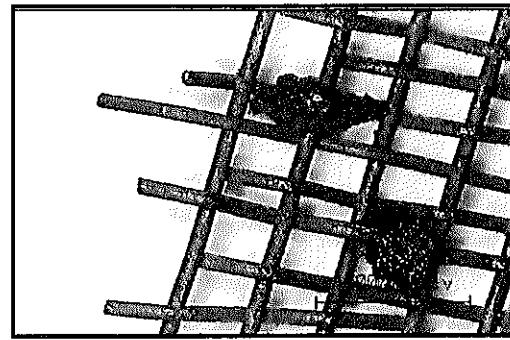


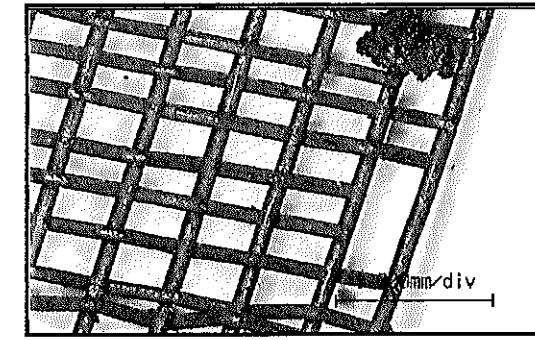
図3-4 還元生成物の外観 (Run-1)



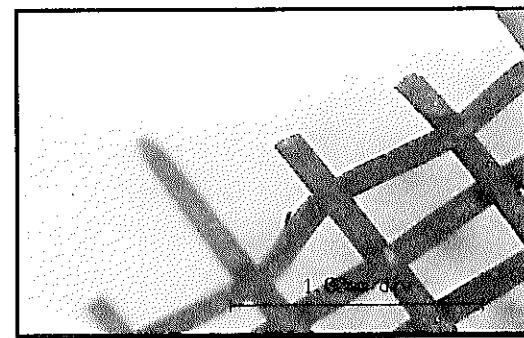
× 50



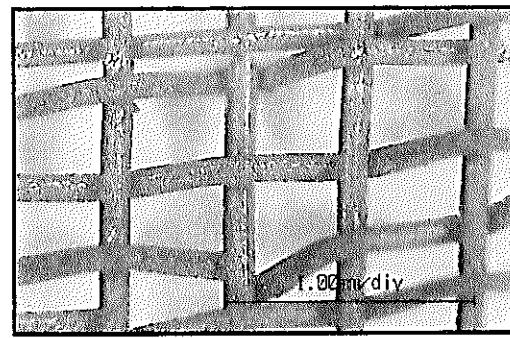
× 100



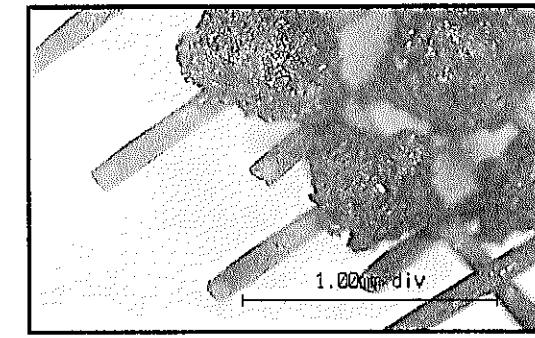
× 100



× 150



× 150



× 150

図3-5 メッシュ上に回収した破損Tiメッシュの外観1 (Run-1)

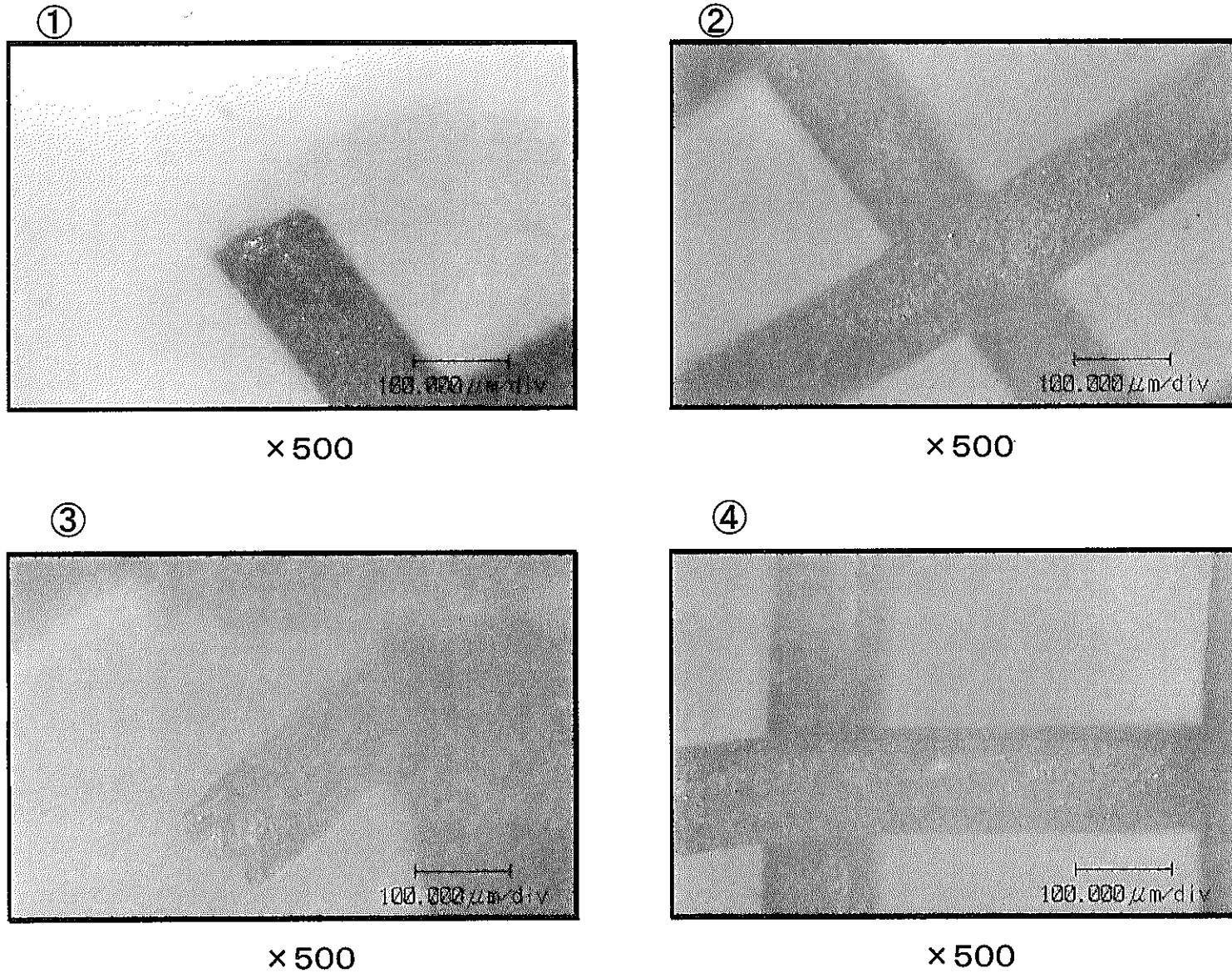


図3-6 メッシュ上に回収した破損Tiメッシュの外観2（Run-1）

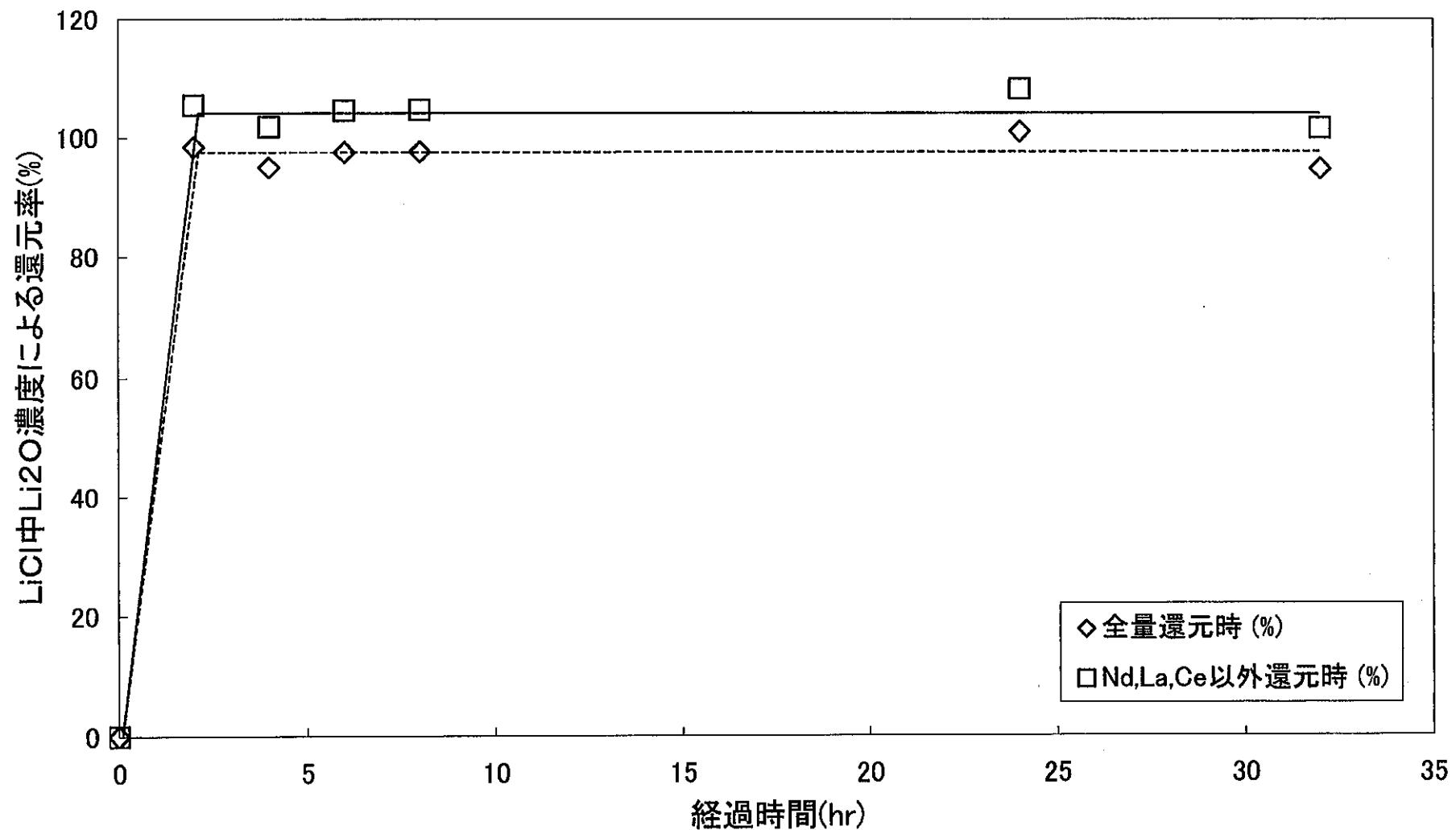
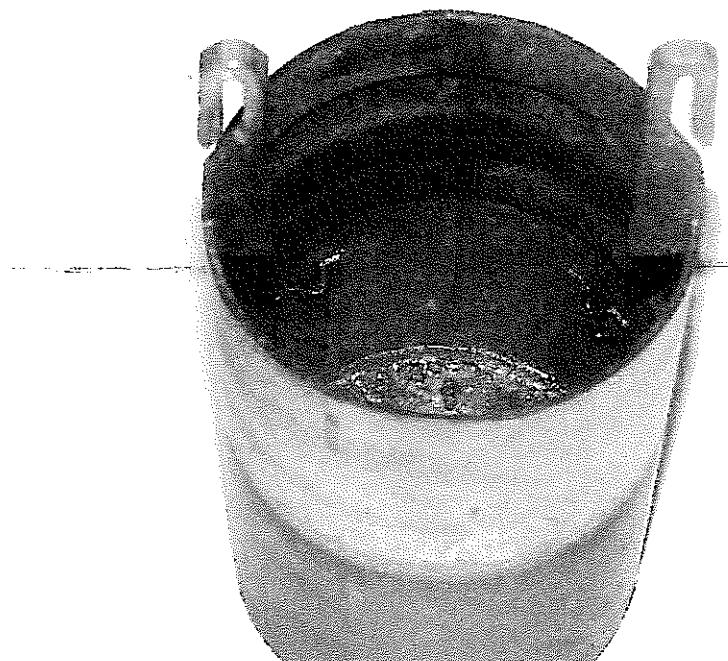
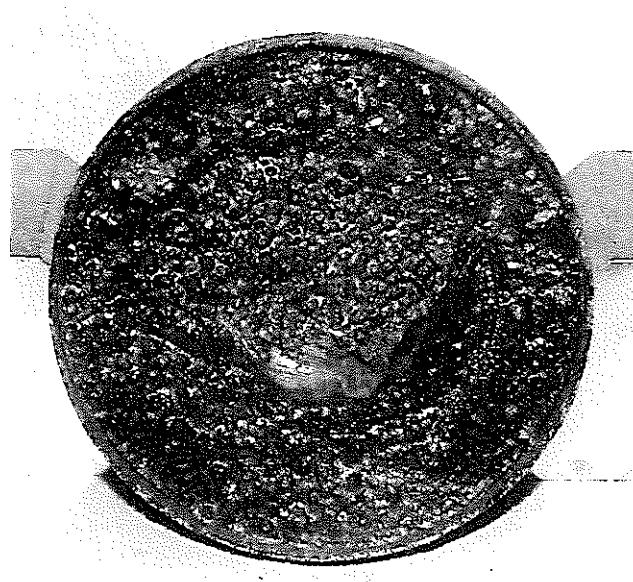


図3-7 LiCl中の $\text{Li}_2\text{O}$ 濃度による酸化U還元率の経時変化 (Run-2)



還元試験後のルツボ内部



還元試験後のメッシュ



還元試験後のLiCl

図3-8 Li還元後のメッシュホルダー外観 (Run-2)

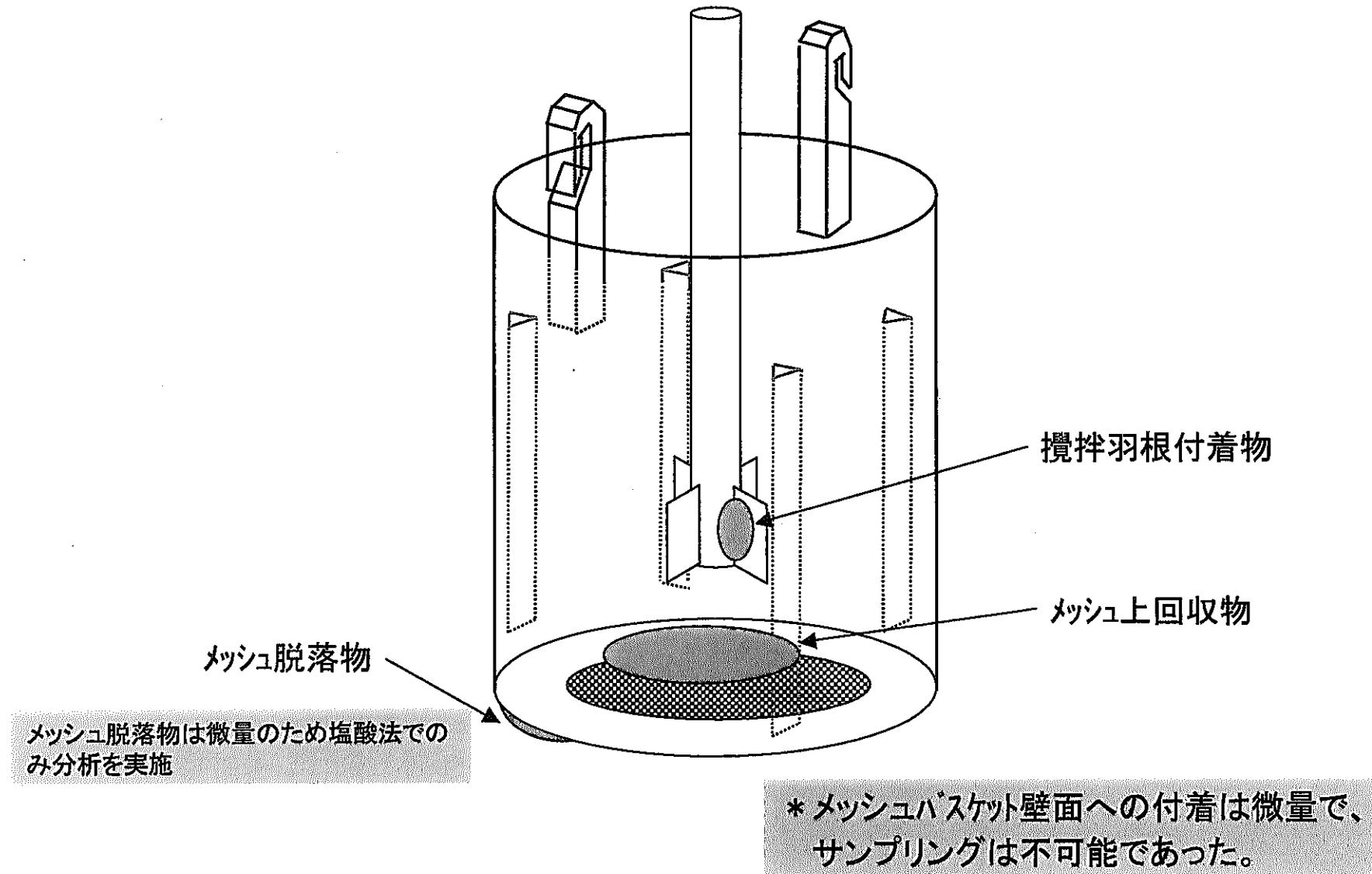


図3-9 L<sub>i</sub>還元生成物サンプルのサンプリング箇所 (Run-2)

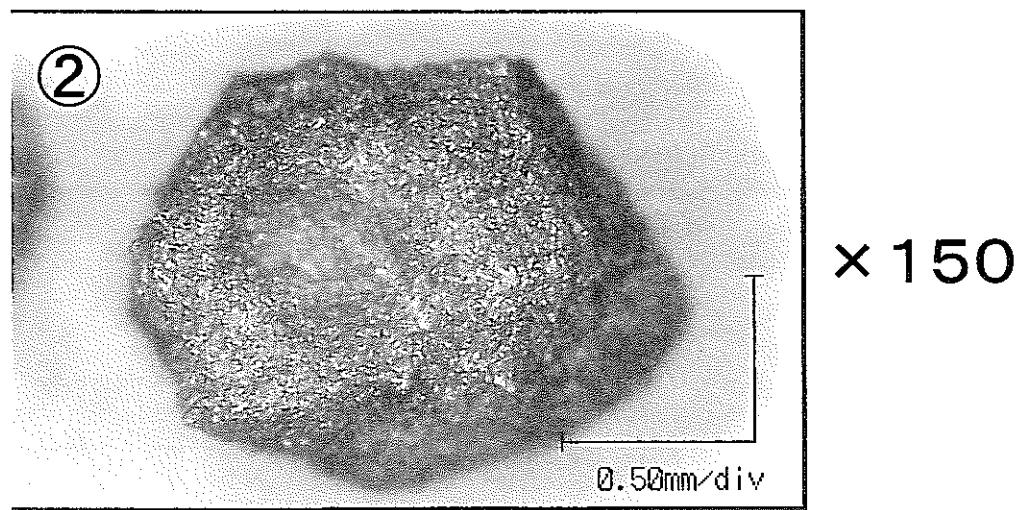
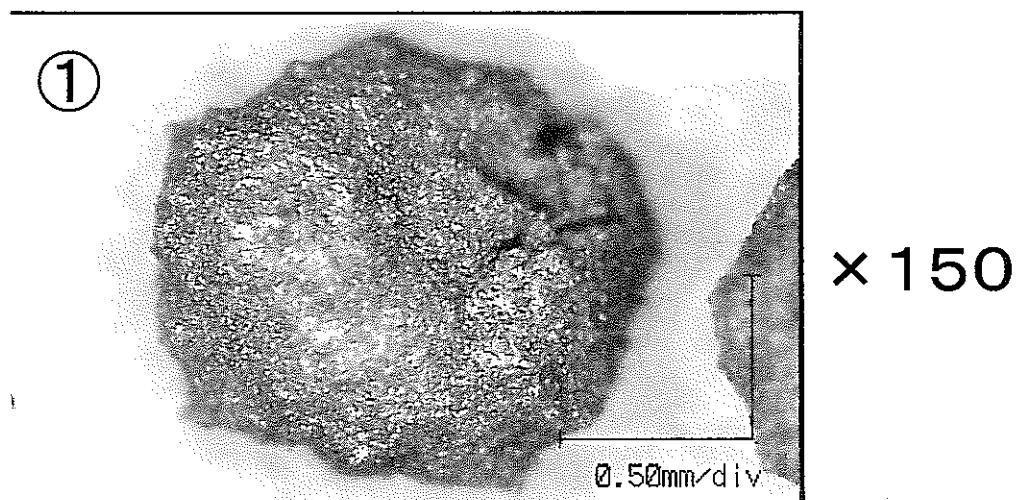
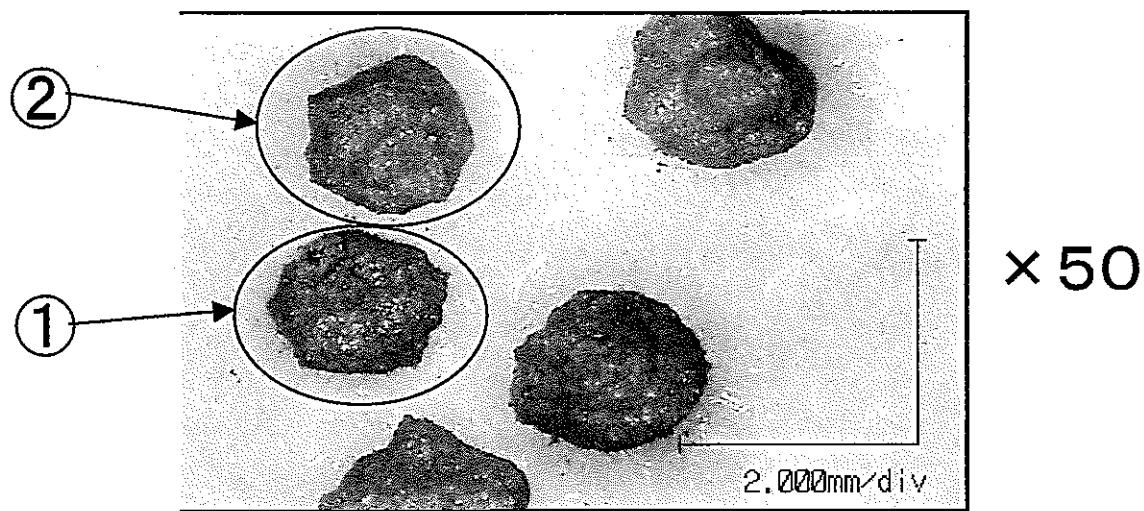
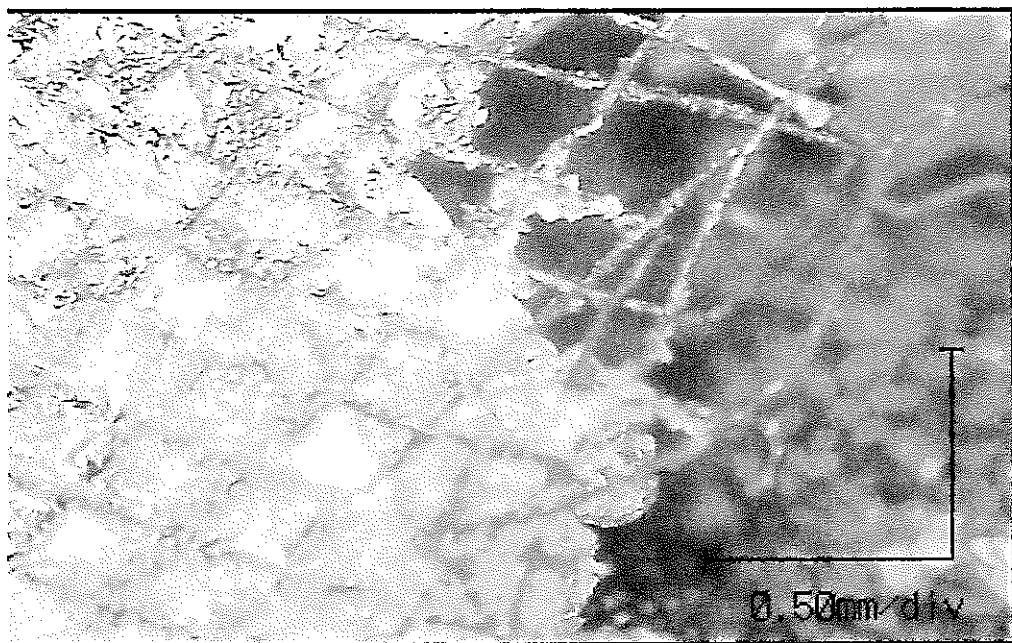
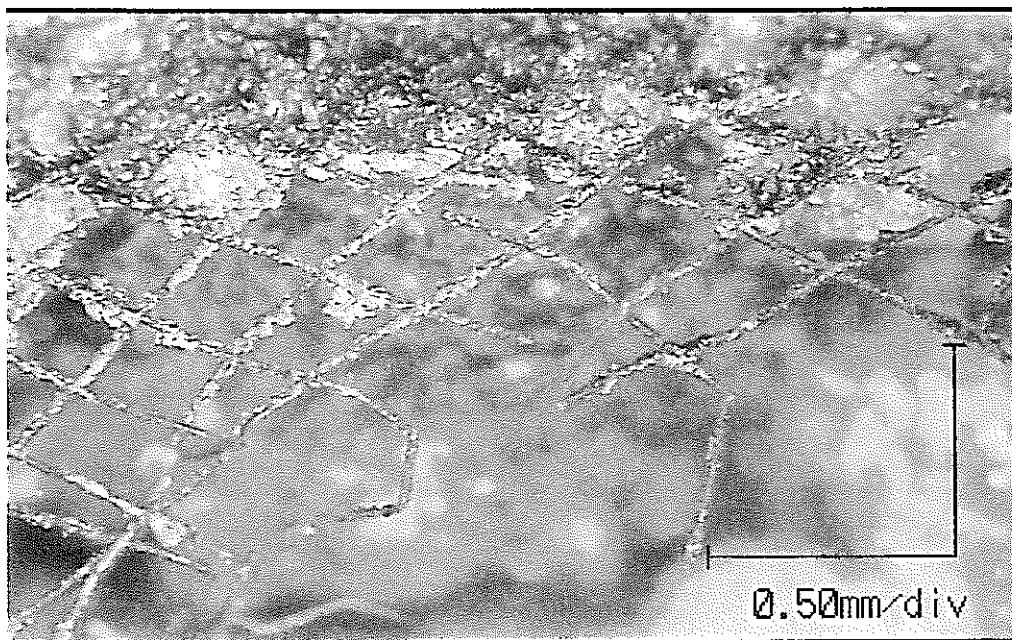


図3-10 還元生成物の外観 (Run-2)



× 150



× 150

図3-11 Li還元後のWメッシュ (Run-2)