69. 3インチ直径流動層による酸化ウランの 低温フッ素化

前田 充*, 鏡 八 留 雄*, 宮 島 和 俊*, 八 木 英 二**

(1978年 5月17日 受理)

Low Temperature Fluorination of Uranium Oxides in 3-inch Diameter Fluidized Bed

By Mitsuru MAEDA,
Haruo KAGAMI, Kazutoshi MIYAJIMA and Eiji YAGI

In the R & D program of the fluoride volatility process, fluorination characteristics of UO_2 under low temperature have been studied in batch and semi-continuous operation with 3 inch diameter fluidized bed. Fluorination rates and technical experiences in handling kilogram quantities of fluorine and UF_6 were obtained. Major characteristics of low temperature fluorination around 350°C and 20 % (F_2) are as follows:

- (1) The fluorination rate is not only lower, but the reaction behavior is more complex than that in high temperature over 400°C , where it could be approximated with a single step fluorination of UO_2F_2 , a rate-controlling intermediate.
- (2) The high acceleration effect of simulated fission products on the reaction rate is observed and the reaction behavior is simplified to the similar pattern to that in high temperature.
- (3) On a technical problem, unstable fluidizability of the reactor results from the accumulation of complex intermediates in the reactor.

KEYWORDS: fluorination, uranium oxides, fluoride volatility process, conversion, low temperature, fission products, catalytic effect, fluidized beds, chemical reactions, fluidization

1. はじめに

フッ化物揮発法は、湿式再処理法に比べていくつかの基本的な利点を有しているが、種々の技術的問題のために今なお実用化に至っていない。日本原子力研究所では、この乾式再処理法の技術評価を目的として、高速炉燃料を対象に研究開発を行ってきた。本報は、そのうち酸化ウランのフッ素化に関する研究結果をまとめたもので、主として $300\sim 350^\circ\text{C}$ 、20% (F_2) 以下の条件における回分操作、半連続操作でのフッ素化特性および関連する技術的経験について報告する。

流動層によるUのフッ素化は、国外において、 UF_6 製造を目的とするプラント規模での技術が確立されているが、わが国では研究開始当時(1969年)このような技術経験はなかった。また、 UF_6 製造プロセスでは、 F_2 コストを下げるために UF_4 を出発原料とする場合が多く、かつ高い F_2 利用率を得るために通常 $450\sim$

500°C 以上の高温で行われる。フッ化物揮発法における「 F_2 2段フッ素化プロセス」⁽¹⁾では、本研究のように、低温低濃度条件下でUのフッ素化を行うことが、Puの回収率を上げる上で重要とされている。この条件でのフッ素化は、ANL⁽²⁾、CEA⁽³⁾などで試みられたが、Puの回収率に力点が置かれたために、Uの低温フッ素化特性は十分に明らかにされなかった。高温における酸化ウランのフッ素化については、熱天秤による実験^{(4)~(6)}を通じ、その挙動はかなり明らかにされている。しかし、低温反応とくに流動層のような複雑な気固接触を伴う反応器における挙動については、実験的に確認することが重要と思われる。また、使用済み燃料中の放射性核分裂生成物(F.P.)の影響について、これまで充分な関心が払われなかったが、その著しいフッ素化促進作用が関連の実験で認められており⁽⁷⁾、同一試料

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

** 三菱金属(株) (Mitsubishi Metal Corp.)

でのデータの対比が望まれる。

一方、本研究を通じ、以下に報告する工学規模装置において、 F_2 90kg, UF_6 65kg に及ぶ取扱い経験が得られた。これら取扱い技術ならびに耐フッ素機器の使用経験は、 UF_6 製造技術と共通部分を有し、わが国におけるこの技術の実用化に有用と思われる。

II. 実験装置および操作の概要

実験装置は Fig. 1 に示すように、粉体供給系、プロセスガス供給系、フッ素化塔、 UF_6 回収系およびオフガス処理系より成る。

主反応装置であるフッ素化塔は、反応部内径 8 cm, 同高さ 120cm, 分離部内径 22cm, 同高さ 78cm の Ni 製流動層で、分離部には焼結フィルタが内蔵されてい

る。整流器には、上部 Ni 線片、下部アルミナ粒子から成る 2 層充填床型式のものを主に用いたが、半連続操作のフッ素化ではテーバ型式も用いた。コールド・トラップは管内凝縮方式の多管型熱交換器、 UF_6 捕集オフガス・トラップは NaF, フッ素捕集オフガス・トラップはソーダライムまたは活性アルミナをそれぞれ充填した吸着塔(または反応塔)、アルカリ・スクラバはランシリング使用の充填塔である。粉体供給はテーブルフィーダを用い、ガス移送により行なった。なお、放射能汚染拡大防止およびフッ素の安全取扱いのため、上記の機器は高さ 3.4 m, 幅 3.2 m, 奥行 1 m のフード内に設置して使用した。

使用した試料は、原子炉級ペレットを機械的に粉砕した UO_2 粉末で、BET 比表面積 (Kr) $0.09 \text{ m}^2/\text{g}$, 平均

Fig. 1 Schematic flowsheet of equipments

径 $11.5 \mu\text{m}$ の特性を有する。フッ素は、純度 99.8%, 高圧容器(充填圧 28 kgw/cm^2 ゲージ)入りの Air Products 社製ガスを使用した。その他の化学薬品、原料はすべて市販の工業用材料によった。

実験は、実験のつど加圧法による機器の気密度の確認および内壁などのフッ素化処理の後に実施した。実験条件は、温度 $280 \sim 400^\circ\text{C}$, フッ素濃度 $5 \sim 40\%$ (F_2) (ほぼ大気圧), 空塔線速度 $10 \sim 30 \text{ cm/s}$, 酸化ウラン処理容量 $0.5 \sim 5.0 \text{ kg/バッチ}$ (回分操作) または $0.5 \sim 1.0 \text{ kg/h}$ (半連続操作), また流動化媒体 (80 メッシュ電融アルミナ) 装荷量は (UO_2 /アルミナ) 重量比で $0.5 \sim 3$ の範囲をカバーする。しかし、前述した「 F_2 2 段フッ素化プロセス」における Pu 回収上の最適プロセス条件から、 350°C , 20% (F_2) を標準条件とした。空塔線速度、流動化媒体量、整流器構造などは、予備実験により、

その最適条件を選択した⁽⁸⁾。

分析は実験開始当初、回収 U の計量、反応塔内残渣およびオフガス・トラップ試薬中の U 分析などを実施したが、物質収支の精度 ($88 \sim 95\%$) が確認されてからは、差動型熱伝導度セル⁽⁹⁾、インライン・ガスクロマトグラフ⁽¹⁰⁾ によるフッ素化塔出口ガス中の UF_6 , F_2 の連続分析のみにとどめた。

これらの実験装置、実験操作の詳細は、別に報告されている⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。

III. 回分操作によるフッ素化

1. UF_6 生成パターン

回分操作における UF_6 生成パターンを Fig. 2 に示す。高温 (380°C) に比べ、 350°C 以下の反応では誘導期間が長く、また反応すべき UO_2 が経時的に減少し

Fluorine: 20V/o, Gas velocity: 20 cm/s
Initial inventory of UO_2 : 1.5 kg
Inventory of Al_2O_3 : 1.5 kg

Fig. 2 Behavior of batch fluorination of UO_2 in fluidized bed

ているにもかかわらず反応速度はほぼ一定である。400°C以上における UO_2 粉末のフッ素化に対しては、①表面反応律速、②その反応速度が粒子表面積に比例するとした仮定に基づく球減少モデル⁽¹²⁾が適用できるとされている⁽⁴⁾⁽⁶⁾⁽¹³⁾。このモデルでは、未反応率(重量基準)($1-F$)と反応時間 t との間に

$$(1-F)^{1/3} = 1 - k't$$

ここで、 k' : 見掛けの速度定数

の関係が成立する。Fig. 3は、Fig. 2の結果についてこのモデルを適用したもので、低温では未反応率の3乗乗値が時間に対して直線で表わすことができず、このモデルが適用できないことを示している。

Fig. 3 Application of diminishing sphere model to batch fluorination of UO_2

F_2 による UO_2 のフッ素化反応は、次の2段階で進行すると考えられている⁽⁴⁾⁽⁸⁾。

しかし400°C以上では、 UO_2F_2 の生成速度は十分に早く⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾、反応(2)が律速であると考えられており、この(2)の反応パターンに対し、前述の球減少モデルが適用されるものと思われる。一方、流動層のような気固接触の良好な反応器では、次のような還元反応も考え得るであろう。

しかし、生成自由エネルギーの点からは、上記反応は低温では起りにくいと予想される。

350°C近くで行なった本実験においては、まず反応器内試料に関するX線分析より、反応器内には大量の UF_4 が存在しないことが確認された。また、フッ素収支により、反応器内試料に関する(F_2/U)モル比の経時的な変化を求めたところ、その値はゆっくり増加し、350°Cでは反応率がほぼ50%の時に1となることがわかった。これは、350°C近くの低温では、反応(1)の速度は必ずしも充分には早くなく、したがって、 UO_2 のほとんどが UO_2F_2 に転化され、反応(2)のみが支配的となるのは、反応率50%以降の後半においてのみ実現されることを示しているものと思われる。Fig. 3で球減少モデルが適用できなかった理由も、低温では、反応(1)、(2)が逐次的に進行する複合反応となっているためと推定される。しかし、きわめて長い誘導期間の定量的説明が困難であり、特に330°C以下の低温では、良好なフッ素収支が得られないこともあって、反応機構を明らかにすることができなかった。

以上の事実とFig. 2に示される反応パターンの形から、低温フッ素化では単純な時間平均反応速度がより実際のと考えられ、以下の議論では、初期装荷 UO_2 量を誘導期間を除く総反応時間で除した、平均反応速度を用いた。

2. 回分反応特性

温度、フッ素濃度、初期装荷量をパラメータとする反応速度の結果をFig. 4～6に示す。見掛けの活性化エネルギー $\Delta E_a = 29 \text{ kcal/mol}$ 、フッ素濃度に関する反応次数 $n=0.9$ で、これらの反応特性に関する限り熱天秤によって得られた350°C以上の結果⁽⁴⁾⁽⁶⁾と見掛け上同程度である。また、 UO_2 を酸化して得た U_3O_8 を出発原料としてフッ素化を行なった場合にも、反応速度に有意の差は認められなかった。

Fluorine: 20 %
Initial inventory of UO_2 : 1.5 kg
Inventory of Al_2O_3 : 1.5 kg

Fig. 4 Effect of temperature on batch fluorination of UO_2

Temperature: 350°C, Fluorine: 20 %
Gas velocity: 10~30 cm/s
Inventory of Al_2O_3 : 1.5~2.0 kg

Fig. 6 Effect of initial inventory of UO_2 on batch fluorination

Temperature: 350°C, Gas velocity: 20 cm/s
Initial inventory of UO_2 : 1.5 kg
Inventory of Al_2O_3 : 1.5 kg

Fig. 5 Effect of fluorine concentration on batch fluorination of UO_2

一方、流動層反応においては、一般にガス流速、層高などの物理的操作因子が反応成績上重要であるとされている。本実験系の場合、流速は酸化ウラン・アルミナ混合系の完全流動化条件⁽⁸⁾およびフッ素化中間生成物の飛出速度より、ほぼ 10~30 cm/s (空塔基準)に限定されたが、この範囲内では反応速度に影響を及ぼさないことがわかった。また、層高や除熱能力に関係するアルミナ充填量についても、(UO_2 /アルミナ)重量比 0.5~3 (流動化時層高 50~20 cm/kg- UO_2) の範囲内で、ほとんど反応速度に変化のないことが確かめられた。さらに、後述する流動化維持のために行なったパルス流

による反応においても、その反応速度は非パルス流(連続流)における値と差のないことが認められた。反応速度がこれらの物理的操作因子にあまり依存しない基本的な理由は、低温ではフッ素化速度が遅いことによると考えられ、したがって、流動化状態に強く影響される反応器除熱能力や、反応ガスの供給過程が律速因子となっていないためと思われる。反応速度が遅いために、平均のフッ素利用率(=化学量論フッ素所要量/供給フッ素総量)は、350°C, 20%(F_2)、処理量 1.5 kg- UO_2 /バッチ時、約 20% の低い値であった。

以上の反応特性より、平均フッ素化速度 R (kg- UO_2 /h)、平均フッ素利用率 $\bar{\eta}$ (%) は、次式で表わされる。

$$R = 1.4 \times 10^{10} (W_0)^{0.8} (C_F)^{0.9} \exp(-E/RT) \quad (4)$$

$$\bar{\eta} = 1.6 \times 10^{10} \left[\frac{(W_0)^{0.8}}{(C_F)^{0.2} G} \right] \exp(-E/RT) \quad (5)$$

ここで、 W_0 : 初期装荷 UO_2 量 (kg)

C_F : フッ素濃度 (モル分率)

G : 全ガス供給速度 (mol/h)

T : 温度 (K)

上式は、直径 3 in. の流動層において、第 II 章で述べた実験条件の範囲内で適用されるが、別に行われた実験結果⁽¹⁰⁾との対比から、直径 2 in. の流動層に対しても外挿して使用できることが確かめられた。

IV. 半連続操作によるフッ素化

1. UO_2 単体の半連続操作フッ素化

本章で報告する半連続操作とは、試料 UO_2 は連続的に供給するが、流動層から抜き出しを行わない反応

操作と定義する。UO₂の場合、最終的に固体生成物を伴わないので、Uの流れにのみ着目すれば、完全連続操作と同様に供給量と反応量とが等しくなる定常状態が存在するはずである。再び球減少モデルを仮定し、層内粒子は完全混合、ガス側押し出し流れの特性を有する流動層に、均一径 d_0 の粒子を一定速度 I_0 でフィードした場合、 I_0 は定常状態における層内U滞留量 W と次式の関係がある⁽¹²⁾。

$$I_0 = 4Wk'_0 \Delta C_{im} \quad (6)$$

ここで、 ΔC_{im} : 層入口、出口に関する対数平均フッ素濃度

k'_0 : フッ素濃度項 C_F を含まぬ見掛けの速度定数で、前記 k' と $k' = k'_0 C_F$ の関係があることを仮定している。

Fig. 7 は、380°CにおいてUO₂を一定速度(0.34 kg/h)で供給した場合の反応の様子を示す。滞留量は徐々に増加するが、滞留Uがある値を超すと温度制御不可能な異常反応を繰り返し、ついには流動化が停止して反応の進行が不可能となる。流動化停止時の滞留量は2 kgで、回分操作ではこの程度の初期装荷量の反応は容易に進行させ得たことを考慮すると、連続供給操作においては、流動化性の悪い中間生成物が蓄積されることを示している。350°Cでのフッ素化でも同様の経過を経た。これらの粉末はX線分析よりUO₂、UO₂-F₂の混合物と推定され、熱天秤による反応性試験の結果では初めのUO₂と大きな差異は認められなかった。回分操作の場合、380°Cでは球減少モデルなど単純な反応機構として取り扱い得た事実と比較すると、半連

Fig. 7 Fluorination behavior of pure UO₂ in semi-continuous fluidized bed

続操作でのフッ素化挙動はより複雑であると考えられる。

2. 非放射性模擬 F.P. 添加 UO₂ の半連続操作フッ素化

熱天秤による実験から、UO₂ 粉末に非放射性模擬 F.P. を添加すると、U のフッ素化速度が著しく加速され、また見掛け上球減少モデルが適用できることが確認された⁽⁷⁾。そこで高速炉炉心燃料(燃焼度 100,000 MWd/t) 相当の模擬 F.P. を添加した UO₂ 試料を用い、この半連続操作フッ素化挙動について調べた。

Fig. 8 に反応経過の例を示す。短時間で定常に達し、また Fig. 7 に示した UO₂ 単体の場合に比べて温度制御がきわめて容易である。UF₆ の生成速度が定常になったのち試料の供給を停止し、以降排出される UF₆ 量より層内滞留U量 W を求め、(6)式により k'_0 を求めた。

Fig. 8 Fluorination behavior of UO₂ added with simulated F.P. in semi-continuous fluidized bed

これを熱天秤による結果⁽⁷⁾およびUO₂単体についての文献値⁽⁴⁾⁽⁵⁾と対比してFig. 9に示す。模擬F.P.による著しい速度促進作用が明らかである。また熱天秤、流動層反応における k'_0 の差異は、両系における取り扱い試料量や反応様式の大きな差異を考慮すれば、むしろ小さいと考えられ、(6)式に関する仮定がほぼ妥当であることを示しているものと思われる。

3. 半連続操作反応特性

非放射性模擬 F.P. 添加 UO₂ の半連続操作フッ素化における主要な反応特性を総括してTable 1に示す。Fig. 9により得られる活性化エネルギーは20kcal/molで、これはUO₂、U₃O₈ など酸化ウラン単体についてこれまで報告されている値に比べてやや低いとその差

Fig. 9 Fluorination rates of UO_2 added with simulated F.P. in semi-continuous fluidized bed

は小さい。350°C 近傍で比較した場合、速度定数が大きい理由は前指数部にあることは明らかである。フッ素濃度に対する依存性については、(6)式の導出に際しすでにその1次比例性を仮定しているが、入口濃度10~20%の範囲内で k_0' に有意の差が認められないので、この仮定はほぼ妥当であると考えられる。ガス流速についても、流動化特性上パラメータの変動範囲が15~25 cm/s の狭い領域に限定せざるを得なかったが、この範囲で速度に及ぼす顕著な影響は認められなかった。

Table 1 Summarized characteristics of semi-continuous fluorination of UO_2 added with simulated F.P.

Effect	Parameter range	Results
Temperature	285~400°C	$\Delta E_a = 20 \text{ kcal/mol}$
Fluorine	9.5~18.7%†	Proportional to F_2 concentration
Gas velocity	15~25 cm/s†	Not affected
Feed position of powder	Bottom, In-bed†	Not affected

† At 350°C with feed of 10~20 g/min

粉体の供給位置の選択は、整流器型式など塔下部構造の設計上重要と思われ、流動層内への直接供給(In Bed Feed)と整流器(コーン型整流器⁽¹⁷⁾)下部からの供給(Bottom Feed)の2方式について対比した。後者では流動化の安定性、反応試料残渣の排出性、温度制御性など全体としてより優れた操作性が認められたが、反応速度それ自身には有意の差は認められなかった。

V. 低温フッ素化反応に関する技術経験

以上の実験を通じ、工学規模流動層におけるフッ素化反応に関し、種々の装置・操作上の経験が得られた⁽¹¹⁾。本章では主として低温反応に関連する経験について報告する。

1. 非流動化現象

高温でのフッ素化操作では、反応物の焼結などによるケーキングが流動化操作上の問題とされている。前述のように低温のフッ素化挙動は複雑であるが、回分操作では UO_2 /アルミナ比0.5~3の範囲内で流動化上とくに問題は認められなかった。むしろ、 UO_2 の酸化反応や模擬F.P.を添加しない UO_2 の半連続フッ素化操作において、層の流動化が維持できなくなり、反応の継続が困難となることを経験した。しかし、実験終了後のフッ素化塔内および排出物の観察では、これらはケーキングというよりも、むしろ著しいチャネリングまたは非流動化であると認められた。 $\text{UO}_2 \rightarrow \text{U}_2\text{O}_5$ の過程での粉体物性の変化や、 UO_2F_2 など中間生成物の蓄積によるものと推定され、Uのフッ素化では、このような粉体性状の変化が流動層の安定性に影響するものと思われる。

上のような非流動化現象に対し、流動化媒体であるアルミナの充填量を増すことは有効な対策である。本研究を通じ、最も流動化の維持が困難であった UO_2 の酸化反応の場合においても、(アルミナ/ UO_2)比を3以上とすることにより、安定に反応を継続することができた。一方、パルス状に流動化ガスを流すことも有効であり、周期1.0 Hz、フロー時間0.5 sで通気した場合、上記反応において(アルミナ/ UO_2)比を1/3に減じても、非流動化が起らないことが確認されている。

2. 温度制御

UO_2 のフッ素化は、 UF_4 を出発原料とする転換反応に比べて反応熱が約4倍も大きく、装置の除熱性能が重要である。本実験の場合、温度制御は反応器外壁ジャケットからの手動空冷操作で行なった。模擬F.P.が添加されない系ではフッ素化速度が遅いために、最大処理量5 kg/バッチまでの回分操作では問題がなかった。しかし、前述のように半連続操作では、その温度制御はきわめて困難であった。模擬F.P.を添加した試料では、半連続操作でも層内滞留量が少ないので、結果的に大きな(アルミナ/ UO_2)比が可能となって、処理速度1.5 kg/h(アルミナ装荷量3 kg)まで温度制御上まったく問題は認められなかった。

3. 装置の腐食

使用したフッ素化塔はフッ素化温度 450°C で設計されており、運転時間 200 h の範囲では塔本体、フィルタ、整流器など腐食上なら問題が認められなかった。トラブルはむしろ高圧フッ素ヘッダーの弁、加熱した UF₆ 移送配管、オフガス・トラップなどで認められたが、適切な材料の選択により解決できた。原則として、① ゲージ圧 28 kgw/cm² 以上の高圧フッ素取扱い部では、ガスケットも含め、室温でも有機材料の使用を避ける。② 低圧(ゲージ圧 1 kgw/cm² 以下)の場合、100°C 以下では、鉄、プラスチック、銅、フッ素樹脂、フッ素ゴムなど種々の材料が使用できるが、200°C 以上では Ni、モネルなどの使用が望ましい。③ これ以外の条件ではケースバイケースとなるが、金属材料の使用が勧められる。

フッ素化処理は、機器の耐食上重要な操作とされているが、処理条件の最適化や効果の比較を行わなかったため、その有効性が確認できなかった。原則として、未使用機器および長時間大気に開放した機器に対してのみ、計画の最高操作条件もしくはそれ以上に装置を加熱する「高温フッ素化処理」を行い、それ以外の場合には、10~20%(F₂)のガスを流通または加圧法により約 1 h 程度接触させる「室温フッ素化処理」ととどめた。室温フッ素化処理の場合、この処理により、ゴミ、油脂などの異物および器壁水の除去も期待されるが、気密度など装置の安全性を確認するための操作としての意義が大きいのと思われる。

VI. おわりに

「F₂ 2 段フッ素化法」におけるフッ素化工程の基礎的工学データとして、直径 3 in. の流動層により、350°C、20%(F₂)付近でのフッ素化特性を明らかにした。すなわち、① 低温における UO₂ 単体のフッ素化は、単にその速度が遅いばかりでなく、高温反応のように、UO₂F₂ のフッ素化に単純化して取り扱うことができない。② しかし、非放射性模擬 F.P. が存在する場合には、低温でのフッ素化速度は著しく促進され、見掛け上再び高温反応と同様のフッ素化挙動にもどされるので、球減少モデルのような単純なモデルにより、その反応パターンを説明できる。

回分、半連続操作による、これらのフッ素化実験を通じて、UO₂ を UF₆ として定量的に回収できることを示すと共に、kg 規模の大量 F₂、UF₆ 取扱い上の技術知見および関連する耐フッ素機器の使用経験を蓄積した。

これらの結果から、今後フッ化物揮発法の技術開発

を進めるにあたって、模擬燃料による実験が不可欠であり、従来 ANL, CEA で取得されたプロセス・データのうち、U のフッ素化についてもその再評価が必要と思われる。特に、本研究で明らかにできなかった不揮発性 F.P. 蓄積の影響や、除熱容量から決まる反応器処理能力の限界、また模擬燃料と使用済み燃料との反応性の差異についても確認することが望まれる。蓄積された技術上の知見は、UF₆ 製造技術の面からも有用であり、動燃事業団による人形峠でのパイロットプラントにおいても生かされつつある。また、模擬 F.P. の触媒作用については、上記の知見が転換プロセスでのフッ素利用率の向上に適用される可能性もあろう。

本実験装置の計画および設計については斎藤 信一(現在、動力炉・核燃料開発事業団)、堀内正人(現在、東京都庁)両氏に、またその改造および機器の使用経験に関しては西村允宏氏(日本原子力研究所保健物理部)に負うところが多い。フッ素の取扱いについては、辻村重男、岩崎又衛両氏(同所化学部)の指導を受け、当初、三森武男、鴨志田 厚、中島勝利(同所安全工学部)、清水 徳の各氏が担当した。また、研究を進めるにあたって、青地哲男(同所高温工学室)、辻野 毅両氏から再処理研究室室員諸氏からは終始有益な助言・協力を受けた。記して、これらの諸氏に深謝する。

— 参考文献 —

- (1) LEVITZ, N.M., et al.: ANL-7583, (1969).
- (2) ANL 化学技術部スタッフ: "Engineering Development of Fluid-bed Fluoride Volatility Process" シリーズのプログレス・レポート, 例えば ANL-7473, (1969).
- (3) ROCHEDEREUX, Y., et al.: CEA-N 1479, (1970).
- (4) VANDENBUSSCHE, G.: CEA-R 2859, (1966).
- (5) IWASAKI, M.: J. Inorg. Nucl. Chem., 26[11], 1853 (1964).
- (6) JARRY, R.L., et al.: ANL-6763, (1963).
- (7) MAEDA, M., et al.: J. Inorg. Nucl. Lett., 14, 341 (1978).
- (8) 原研再処理研究室: JAERI-M 6664, (1976).
- (9) TSUJINO, T., et al.: J. Nucl. Sci. Technol., 10[2], 118 (1973).
- (10) 八木英二, 他: JAERI-M 6487, (1976).
- (11) 八木英二, 他: JAERI-M 6488, (1976).
- (12) KUNII, D., LEVENSPIEL, O.: "Fluidization Engineering", Chap. 15, p 480 (1969), John Wiley & Sons.
- (13) ANASTASIA, L.J., et al.: Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop., 10[2], 150 (1971).
- (14) SAKURAI, T.: J. Phys. Chem., 78[12], 1140 (1974).
- (15) KATZ, J.J., RABINOWITCH, E.: "The Chemistry of Uranium", p 396 (1960), Dover Publ.
- (16) 原研再処理研究室: JAERI-M 6393, (1976).
- (17) 八木英二, 他: JAERI-M 7064, (1977).