

六フッ化ウラン空容器の洗浄処理

Clean Out of Empty Uranium Hexafluoride Cylinder

宝徳 忍 森田 泰治

Shinobu HOTOKU and Yasuji MORITA

原子力基礎工学研究部門

燃料・材料工学ユニット

Division of Fuels and Materials Engineering
Nuclear Science and Engineering Directorate

October 2009

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2009

六フッ化ウラン空容器の洗浄処理

日本原子力研究開発機構
原子力基礎工学研究部門 燃料・材料工学ユニット
宝徳 忍、森田 泰治

(2009年8月6日 受理)

六フッ化ウランは、ウラン濃縮工程及び乾式再処理法の一つであるフッ化物揮発法の研究などで使用されており、核燃料サイクルにおいて重要なウランの化学形の一つである。六フッ化ウランは、通常シリンダー型の容器に固体状で封入されており、温度及び圧力を調整することによって気体状で取り扱われるのが一般的である。しかし、六フッ化ウランは化学的に活性であり、空気中の水分によっても反応し、白煙状のフッ化ウラニル及び腐食性の強いフッ化水素が発生するため、その取り扱いには十分な注意が必要である。

本報告は、六フッ化ウランを安全に取り扱うために有効な手法を示すことを目的としてまとめたものであり、そのために必要なウランの物理的性質及び化学的性質について整理し、シリンダー型の六フッ化ウラン空容器の洗浄処理作業を再処理試験室の工学フード内に設置した、塩化ビニル製の簡易グローブボックスを使用して行った結果について報告するものである。

Clean Out of Empty Uranium Hexafluoride Cylinder

Shinobu HOTOKU and Yasuji MORITA

Division of Fuels and Materials Engineering,
Nuclear Science and Engineering Directorate,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 6, 2009)

The uranium hexafluoride (UF_6) is one of the most important uranium chemical forms in nuclear fuel cycle, which is used in the uranium enrichment process and in the study of fluoride volatility process, one of the dry reprocessing methods. Normally, UF_6 is confined in the solid state in the cylinder type container and handled as gas by adjusting the temperature and pressure. Since it is highly reactive with water vapor in the air, it must be carefully handled. By the reaction with water vapor, particle of UO_2F_2 appeared as a white cloud and corrosive HF gas are released to the atmosphere.

The purpose of this report is to describe safety handling for clean out of empty UF_6 cylinder and to summarize physical and chemical properties of uranium compounds in relation to treatment for UF_6 . The clean-out of the UF_6 cylinder was carried out successfully by trapping the generated UO_2F_2 and HF adequately in a temporary globe box made of the polyvinyl chloride that set up in a laboratory hood.

Keywords: Uranium Hexafluoride, Uranium, Cylinder, ADU, Uranyl Fluoride, Hydrogen Fluoride, Clean Out

目 次

1. 序論	1
2. 金属ウラン及びウラン化合物の特性	1
2.1 金属ウラン (U)	1
2.2 酸化物	1
2.3 フッ化物	2
2.4 その他の化合物	2
3. 六フッ化ウラン空容器の洗浄処理方法の検討	3
3.1 六フッ化ウランの回収方法の検討	3
3.2 容器内に残留するウラン量及び発生するフッ化水素酸濃度の推定	4
3.3 洗浄処理作業の方法	4
4. 洗浄処理時の作業状況	6
4.1 容器内の残留圧力の確認	6
4.2 容器内部の洗浄処理	6
4.3 洗浄後容器及び廃液の処理	7
5. まとめ	7
謝辞	8
参考文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Characterization of uranium metal and uranium compounds	1
2.1 Uranium metal (U)	1
2.2 Oxides	1
2.3 Fluorides	2
2.4 Other compounds	2
3. Discussion on clean-out method of empty uranium hexafluoride cylinder	3
3.1 Discussion on recovery method of uranium hexafluoride	3
3.2 Estimation of uranium amount in the cylinder and the concentration of generated hydrogen fluoride	4
3.3 Procedure of clean-out of cylinder	4
4. Detail of clean-out of uranium hexafluoride cylinder	6
4.1 Confirmation of remained pressure in the cylinder	6
4.2 Clean-out of cylinder	6
4.3 Treatment of cleaned cylinder and liquid waste	7
5. Summary	7
Acknowledgements	8
References	8

1. 序論

六フッ化ウランは、ウラン濃縮工程及び乾式再処理法の一つであるフッ化物揮発法^{1),2)}の研究などで使用されており、核燃料サイクルにおいて重要なウランの化学形の一つである。六フッ化ウランは、通常シリンダー型の専用容器内に固体状態で封入されており、温度及び圧力を調整することによって、気体状にして取り扱われる。しかし、六フッ化ウランは化学的に活性であり、空気中の水分によっても反応し、白煙状のフッ化ウラニル及び腐食性の強いフッ化水素の発生があるため、その取り扱いには十分な注意が必要である^{3),4)}。このため使用して空となった六フッ化ウランの容器は、安全に保管するために内部を水または炭酸アンモニウム等のアルカリ性水溶液によって洗浄処理をした後、再使用もしくは廃棄することとなる。しかしながらその方法・手順について記載された報告例はほとんどない。そこで本報告では、六フッ化ウラン空容器の洗浄処理を再処理試験室の工学フード内で行うに当たって、核燃料サイクルの工程で取り扱われる六フッ化ウランをはじめとする代表的なウラン化合物についての物理的性質及び化学的性質についてまとめ、作業方法の検討に反映させるとともに、実際に洗浄処理を行った結果について報告する。本報告は、実験室規模における六フッ化ウランの取り扱い及び空容器の洗浄処理作業を安全に行うために有効な手法の一例を示すものである。

2. 金属ウラン及びウラン化合物の特性

核燃料サイクルにおけるウランの取扱いは、それぞれの工程によってウランの化学形が変化しており、その化学形によって特性は異なるため、取り扱いを行うウランの化学形をあらかじめ把握しておくことは、作業を安全に行ううえでも重要である。このため、六フッ化ウラン空容器の洗浄処理作業に先立ち、金属ウラン及び核燃料サイクルで取り扱われる代表的なウラン化合物についての式量、密度及び溶解性などをまとめた^{5)~10)}。それを表1に示す。なお、これらのデータにおいて、式量は各元素の原子量表の値¹⁰⁾をもとに計算し、小数点第2位の数値にまとめた。U含有比は、ウランの式量値を算出した化合物の総式量の値で除して算出した。その他、密度、融点などのデータは最新のものを記載した。

2.1 金属ウラン (U)

銀白色の金属で酸化しやすく、空気中で加熱すると発光して燃え、微細な粉末状のものは空気中で自然発火して酸化ウランとなる。密度 19.050g/cm³、融点 1,132.3℃、沸点 3,800℃である。

2.2 酸化物

(1) 二酸化ウラン (UO₂)

褐黒色の粉末で、空気中では比較的安定である。密度 10.96 g/cm³、融点 2,878℃ (±20℃) であり、水に不溶であるが硝酸には溶ける。一般的には焼結して焼き固め、ペレットにして軽水炉などの燃料として使用されている。

(2) 八酸化三ウラン (U_3O_8)

褐色～緑黒色の粉末（製造方法の違いによって色が異なる）で、酸化物の中では一番安定である。密度 8.38 g/cm^3 、融点 $1,450^\circ\text{C}$ で分解し、二酸化ウランとなる。水に不溶であるが、硝酸には溶ける。

(3) 三酸化ウラン (UO_3)

橙黄色の粉末で、密度 7.29 g/cm^3 、 450°C で分解し、八酸化三ウランとなる。水に不溶であるが酸には溶けやすい。

2.3 フッ化物

(1) 六フッ化ウラン (UF_6)

常温・常圧では無色の揮発性の固体である。密度 5.060 g/cm^3 (25°C)、大気圧状態では 56.4°C で昇華し気体となる。 64.02°C (151.6kPa) に融点（三重点：気相、液相、固相）がある。核燃料サイクルのウラン濃縮に先だっては、重ウラン酸アンモニウム（Ammonium Diuranate：以下、ADU と記する）から四フッ化ウランを経て六フッ化ウランに転換されている。

六フッ化ウランは、酸素、窒素あるいは乾燥した空気とは反応しないが、空気中に水分が含まれていると激しく反応（加水分解）して白煙状のフッ化ウラニル及びフッ化水素が発生する。なお、六フッ化ウラン自体は不燃性であるが、可燃物がある場合には支燃剤となる。また、炭化水素などの有機物と接触すると爆発的に反応が起るため、六フッ化ウランの取扱いに際しては、これらについても十分な配慮が必要になる。

(2) 四フッ化ウラン (UF_4)

緑色の粉末で常温では比較的安定である。密度 6.70 g/cm^3 、融点 $1,036^\circ\text{C}$ 、水に不溶で、酸にも溶解しにくい。ADU を六フッ化ウランに転換する際の間生成物として取り扱われ、グリーンソルトとも呼ばれる。

(3) フッ化ウラニル (UO_2F_2)

薄黄色の粉末で吸湿性があり、水に溶解すると黄色の溶液となる。密度 6.37 g/cm^3 、六フッ化ウランを二酸化ウランに再転換する時の中間生成物で取り扱われ、六フッ化ウランを加水分解させることによって生成するが、この際に腐食性の強いフッ化水素（フッ化水素酸溶液）が発生するので、その取扱いには注意が必要である。

2.4 その他の化合物

(1) 重ウラン酸アンモニウム (ADU : $(NH_4)_2U_2O_7$)

ウラニルイオン (UO_2^{2+}) を含んだ酸性溶液にアンモニアを加えることによって生じる沈殿であり、橙色である。鉱石から精錬された中間生成物で得られるイエローケーキは一般に ADU であり、水及び酸に不溶である。比較的安定な化合物である。

(2) 硝酸ウラニル六水和物 ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$)

淡黄色の柱状晶の結晶であり、ウラン濃度の高いウラニル溶液を冷却し結晶として析出させることで生成させることができる。密度 2.81 g/cm^3 、融点 60.2°C 、沸点 118°C である。潮

解性があり、水、酸などに容易に溶ける。

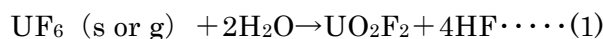
3. 六フッ化ウラン空容器の洗浄処理方法の検討

3.1 六フッ化ウランの回収方法の検討

今回の作業は、再処理試験室の廃止措置計画の準備作業として、施設内に保管されたシリンダー型の六フッ化ウランの空容器を安全に処分するために、容器内に残留している可能性がある六フッ化ウラン粉末を回収・安定化处理し、最終的に容器内を水で洗浄することを目的とする。しかし、六フッ化ウランは、前項で述べたとおり常温・常圧においては固体状の物質であるが、室温（18.2℃）においても13.3kPaの蒸気圧⁶⁾があるため徐々に昇華する。このため、空気中の水分（気体）との反応は、固体状の六フッ化ウランと気体状の六フッ化ウランによる反応が考えられる。六フッ化ウランと空気中の水分との反応は激しい加水分解反応であり、その結果フッ化ウラニル及びフッ化水素が発生する。この反応によって発生するフッ化ウラニルは白煙状で放出し、吸湿性があるため装置や配管内に付着する可能性がある。また、フッ化水素は腐食性が強く、人体に対しては化学火傷を生じさせるなど有害なものであるため注意が必要な物質である。このため、六フッ化ウランを回収し容器内を水で洗浄処理する作業の実施にあたっては、六フッ化ウランのみならずこれら反応生成物を安全に処理することを考慮した方法によって作業を行う必要がある。

六フッ化ウランを回収する際の排気を洗浄処理するには、5～10%水酸化カリウム水溶液、フッ化ナトリウム、ソーダライムなどを使用する方法³⁾があるが、反応によって発生する酸性物質であるフッ化水素の回収に有効であること及び六フッ化ウランを化学的に安定なADUに変えることが可能であることから、ここでは排気の洗浄処理方法としてアンモニア水溶液（濃度約5%）を使用し、洗浄処理によって発生する反応生成物（フッ化ウラニル、フッ化水素）及び容器内に残留する微量の六フッ化ウラン粉末をガス洗浄瓶内で反応させて、ADUの沈殿として回収することで安定化处理することとした。これらの作業に関係する化学反応式を以下に示す。

(1) 六フッ化ウランと水（空気中の水分）の反応¹⁾



(2) 六フッ化ウランとアンモニア水の反応



(3) フッ化ウラニルとアンモニア水の反応¹⁾



(4) フッ化水素とアンモニア水の反応



今回洗浄処理を行った六フッ化ウラン空容器（シリンダ型）の形状を以下に示す。また、概要図及び写真をそれぞれ図1、写真1に示す。

- ・容器寸法：高さ 720mm、直径 200mm^φ
- ・容器の材質：ニッケルあるいはモネル（参考文献³⁾に記載の容器の規格による推定）
- ・重量：25kg
- ・昭和 48（1973）年 5 月の表示
- ・容器表面の線量当量率：最大で 1 μ Sv/h（容器の底部分）
- ・ウランの濃縮度：天然

3.2 容器内に残留するウラン量及び発生するフッ化水素酸濃度の推定

容器内に残留しているウラン量の推定を容器の表面線量当量率の最大値（1 μ Sv/h）から、天然ウラン及びその娘核種（²³¹Th、²³⁴Th、²³¹Pa、^{234m}Pa、²³⁴Pa）の γ 線エネルギーを考慮し、以下に示すような前提条件によって計算を行った。また、計算に必要な各核種の定数¹²⁾を表2に示す。

ウラン量を推定するための計算に係わる前提条件

- ・線源条件：点線源とする
- ・²³⁴U、²³⁵U、²³⁸U は天然ウランの同位体組成にて計算する。
- ・天然ウランの娘核種として、²³¹Th、²³⁴Th、²³¹Pa、^{234m}Pa、²³⁴Pa を考慮する。
（それぞれの核種の生成放射エネルギーの計算、半減期のデータは「アイソトープ手帳」¹²⁾及び γ 線エネルギー及びその放出率は、「放射線データブック」¹³⁾より引用）
- ・ウランは精製後 30 年経過したものとする。
- ・容器材質（遮へい体）は鉄、厚さは 3.2mm として計算する。
- ・線源からの距離：容器本体の厚さ 3.2mm を線源からの距離とする。

以上の計算の結果が、表面線量当量率の測定値である 1 μ Sv/h となるウラン及び娘核種の使用数量の総量から、容器内に残留していると思われるウラン量を計算¹⁴⁾した（表3参照）。その結果、ウラン量として 0.38g（六フッ化ウランとしては 0.56g）が残留しているものと算出された。

また、計算によって推定された六フッ化ウラン量 0.56g（1.6mM）から発生するフッ化水素は、上記の反応式(1)より 0.13g（6.4mM）であり、これが液量 100cm³の第1トラップで全量回収されたとすると、フッ化水素酸濃度は 0.13%となる。この濃度は、試薬瓶にて市販されているフッ化水素酸（46～50%）を約 400 倍に希釈した濃度であり、取り扱う濃度としては低いものであることがわかった。

3.3 洗浄処理作業の方法

作業は再処理試験室の実験室に設置された工学フード（寸法：4,000mm^w×1,200mm^d×4,000mm^h）内に市販の塩化ビニル（軟質 PVC）製簡易型グローブボックス（寸法：700mm^w×500mm^d×500mm^h、塩化ビニル厚さ：0.5mm；以下、簡易 GB と記す）を設置し、容器洗

浄時に発生するフッ化ウラニル及びフッ化水素の工学フード内での拡散防止対策を講じた。また、簡易 GB 内の空気及び発生するフッ化ウラニル及びフッ化水素の排気を真空ポンプによって吸引し、5%-アンモニア水溶液の入ったガス洗浄瓶を4本設置することによって、排気の洗浄処理により回収したウランを ADU の状態になるようにした。なお、真空ポンプは最大風量 5dm³/min、最高吐出圧力 0.08MPa のイワキ製エアーポンプ APN-085 を使用した。

ガス洗浄瓶の材質は、真空ポンプの吸気側（上流）の第1トラップはガラス製、真空ポンプの排気側（下流）の第2トラップ以降は、プラスチック製またはテフロン製のガス洗浄瓶を使用した。なお、最後の第4トラップのガス洗浄瓶には pH 指示薬であるフェノールフタレインを添加し、その色を監視することによって、トラップ内の液が酸性側に変化しないこと（反応によって発生するフッ化水素等の酸性物質が流入されていないこと）を確認できるようにした。また、真空ポンプ及びガス洗浄瓶の接続に使用した配管類は内部の状態が確認でき、耐薬品性にも優れたフッ素樹脂のテトラフルオロエチレンパーフルオロアルキルビニルエーテルコポリマー（以下、PFA と記す）製のものを使用した。なお、洗浄処理に際してポンプ及び配管の加熱・保温あるいは六フッ化ウランの加水分解反応（ガス洗浄瓶で使用したアンモニア水溶液）の温度調整は実施せず、作業はすべて常温にて行うこととした。また、作業者は安全のためフッ化水素吸収缶を取り付けた半面マスクを装着して作業を実施した。

作業では、最初に保管状態であった容器の内部で六フッ化ウランが反応等を起こしたことによって、容器の内圧が上昇していないかを確認する必要があるため、容器に圧力計を取り付け、内圧の確認を行った。その概要図を図2に示す。その結果、容器内部の残留圧力がないことが確認できた後、六フッ化ウランの加水分解反応をできるだけ抑制するため、容器の内部と空気の接触を最小限になるように容器弁の上部のみを取り外し（図3参照）、ガス取り出し用の穴に外径 4mm^φ のテフロンチューブを容器の底部分まで挿入して、容器内に残留する六フッ化ウラン粉末及び容器内の雰囲気を実験ポンプによって可能な限り回収した。そして、六フッ化ウランと空気中の水分の反応によって生じるフッ化ウラニルの白煙が弱まったことを確認した後、容器内部を水によって洗浄することとした（図4参照）。以下にその作業手順の詳細を記す。

(1) 容器の残圧確認

- ① 工学フード内に簡易 GB を設置し、容器の上半分を簡易 GB 内に入れる。
- ② 簡易 GB 外の真空ポンプを起動し、簡易 GB 内の空気を吸引する。
- ③ 容器弁に圧力確認用の圧力計を取り付ける。
- ④ 容器のガス取り出し用元栓をゆっくりと開ける（残圧の確認）。
- ⑤ 圧力計によって残圧のないことを確認し、元栓を閉じる。

(2) 容器内の洗浄処理

- ① 容器弁の上部を取り外し、空気を容器内に接触させる。
フッ化ウラニルの白煙が生じる・・・反応式(1)
- ② 発生したフッ化ウラニル及びフッ化水素を実験ポンプで回収するとともに、容器内にチューブ（テフロン製）を挿入し、内部に残留している六フッ化ウラン粉末を実験ポンプで回収した。
- ③ 六フッ化ウランの粉末がチューブ内に付着し、蓄積するようであればチューブ内に付

着した粉末を水で追い出し・洗浄を行う。

- ④. 空気中の水分と六フッ化ウランの反応（白煙の発生）が、ほぼなくなるまで、上記②～③の作業を繰り返す。
- ⑤. 容器内部からの反応（白煙の発生）の様子を確認しながら、容器内に水を少しずつ注入し、容器内を洗浄する。
- ⑥. 容器内での反応が終息したのを確認し、容器内の洗浄水を真空ポンプで回収する。
- ⑦. 容器内から回収した洗浄水の pH が中性になるまで容器内を洗浄する。
- ⑧. 容器内の洗浄水を真空ポンプで回収する。
- ⑨. 容器内の洗浄終了後、容器内部の水抜き・乾燥を行う。
- ⑩. 真空ポンプを停止し、スミヤ法によって簡易 GB 内の表面密度を確認して、必要に応じて除染作業を実施した後、簡易 GB を解体する。

4. 洗浄処理時の作業状況

4.1 容器内の残留圧力の確認

使用後のバルブの閉止及び容器の保管が適切に行われ、容器内において空気との接触がなければ六フッ化ウランが反応を起こすことはないため、圧力が上昇することはない。ここでは、容器内部の圧力が上昇していないことを確認し、洗浄作業開始時に容器内部からの噴出が起きないようにした。そのため容器に圧力計を取り付け、容器内部の圧力確認を行った。その結果、容器内部に残留圧力はないことが確認された。

4.2 容器内部の洗浄処理

容器弁上部を取り外し、外径 4mm^φ のテフロンチューブを挿入し、真空ポンプによって容器内部に残留している六フッ化ウラン粉末の回収を試みた。この作業において、容器弁上部を取り外したことによって容器内に存在する微量の六フッ化ウラン粉末が空気と接触し、空気中の水分との反応によって発生したフッ化ウラニルの白煙が確認された。その後、容器内を空気と接触させながら真空ポンプによる吸引を継続し、フッ化ウラニルの白煙の発生がほぼ終息するまで粉末の回収作業を実施した。洗浄処理時の状態を写真 2 に示す。

今回の作業で真空ポンプによる吸引及び排気の洗浄に使用した配管は、視認性の良い PFA 製であったため、内部の状態を確認することができた。このため、吸引によって配管内に蓄積した六フッ化ウラン粉末及び反応によって生じたフッ化ウラニルを随時、水で洗浄処理して作業を実施することができたが、同様の作業を金属製配管にて行う場合には、配管の径が細く十分な余裕がない場合、配管内部が閉塞する可能性があるため、注意が必要である。

真空ポンプの前段に設置した第 1 トラップで使用したガラス製のガス洗浄瓶には、5% アンモニア水との反応によって生じた ADU の沈殿が付着し、ガラス管内を閉塞する現象が見られた。ADU の沈殿は粒子が細かく、水を含んでいると粘性もあるので、ガラス管内に

沈着してしまったものとする（写真3参照）。このため、これを防止するための方法として、真空ポンプの前段のトラップを水による洗浄とアンモニア水による洗浄の2段を設けることで、最初の水によるトラップで六フッ化ウランと水との反応によって生じたフッ化ウラニル（水溶性）を溶液状で回収し、次のアンモニア水によるトラップでフッ化水素酸を回収する方法が望ましいと思われる。また、第1トラップで回収した溶液中から緑色の粒子があるのが確認された（写真3、左上上部のガラス管参照）。六フッ化ウランは金属との反応によって四フッ化ウランを生成するといわれており⁵⁾、最終的に容器内部を水で洗浄し、その洗浄水を回収したときに茶色い錆が確認されたことから、おそらく容器内部で六フッ化ウランと容器内部の金属との反応によって、四フッ化ウランが生成していたのではないかと思われる。

4.3 洗浄後容器及び廃液の処理

空容器内部の洗浄で使用したオフガスの洗浄瓶の液及び容器内部の洗浄液から、本作業によって回収されたウラン量は、ADU及び四フッ化ウランでおよそ5g（ウラン含有比0.76として計算するとウラン量で3.8g）であった。六フッ化ウラン容器の規格³⁾から計算によって推定すると、本容器の最大充填量は約50kg-UF₆であることから、残留していた六フッ化ウランは全体のおよそ0.01%であった。

3.2項にて表面線量当量率から計算によって推定した容器内の六フッ化ウランの残留量の値と実際の値は10倍の差があった。このことは容器の大きさ（内部の表面積）にも関係するが、容器上部に付着している微量の六フッ化ウラン粉末は容器本体によって遮へいされてしまう程度の量である可能性があり、このため表面線量当量率の値はバックグラウンドレベルとなっていたが、実際には内壁に微量の六フッ化ウラン粉末が付着しているため、表面線量当量率の数値としては現れない部分による影響によってこのような差が出たものと思われる。

洗浄後の空容器は、洗浄液を容器内から抜き取り容器内を乾燥した後、容器の表面密度を測定して容器本体を酢酸ビニール製シートで梱包、フードから搬出し、放射性廃棄物として処理した。また、作業によって発生した液体廃棄物はおよそ13dm³であり、オフガス洗浄瓶の第1トラップ以外の洗浄瓶（液量：約10dm³）にはウランの移行はほとんど認められなかった。この廃液は、別途行った再処理試験室に存在するウラン廃棄物のセメントによる固化処理用の液として使用した。残りのオフガス洗浄瓶の第1トラップで回収された液3dm³は、中和処理を行った後、ウラン廃棄物としてセメント固化処理を施し、放射性廃棄物として処理した。

5. まとめ

今回の作業では、容器の形状が大きく取り回しが困難であったことから、温度調整を行うことなく常温にて処置を行ったが、容器の形状が小さい少量の試料で手元での操作が可能な場合

は、六フッ化ウランの分析で使用されている方法のように、加水分解反応によって生じるフッ化ウラニル及びフッ化水素の発生を抑制するため、六フッ化ウランを冷水（4℃以下）と反応をさせる方法¹⁵⁾が適用可能であると思われる。しかし、この場合においても反応によって生じるフッ化ウラニル及びフッ化水素の拡散防止対策を考慮しておく必要があるため、作業者の安全を考えると本作業で使用したような簡易 GB または局所排気装置などの設置が必要であると考える。

今回の場合は、保管中の施設内においてそのまま処理を行うことができ、作業で使用した簡易 GB 等の資材もすべて市販品で対処することができた。このため、空容器を一度施設外に搬出（移動）することなく作業を実施することが可能であったが、他の施設あるいは他の事業所において処理を行う場合は、一度施設から搬出することとなるため、容器の健全性の確認及び運搬時の漏えい防止対策等の安全対策についての処置が必要となる。また、六フッ化ウランを取り扱うことが可能な事業所は限られており、作業の安全確保を考えると空容器の洗浄処理・処分を外部に依頼する場合、多額の費用が必要となる可能性がある。以上のことを考慮すると作業を行うためには、期間及び費用の問題等について十分な検討を行う準備期間が必要であると思われる。

最後に本作業は、平成 20 年 10 月から開始された再処理試験室の廃止措置作業を円滑に着手することに貢献できたことをここに記しておきたい。

謝 辞

本作業の実施に当たっては、財団法人放射線利用振興協会の飯嶋孝彦氏、八木敏夫氏及び原子力エンジニアリング株式会社の樫村次夫氏、柳田佳徳氏の協力をいただいた。また、作業における放射線防護対策についての助言及び設備周辺の表面密度の測定について、放射線管理部放射線管理第 2 課関島光昭氏の協力をいただいた。ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Gunther. W.H, *et al.* : "Laboratory Investigations in Support of Fluid-Bet Fluoride Volatility Processes", ANL-7241 (1966).
- 2)再処理研究室：“乾式再処理における F₂ 二段フッ素化法の開発”, JAERI-M 6393(1976).
- 3)再処理研究室：“六フッ化ウラン安全取扱手引”, JAERI-M 6486 (1976).
- 4)E.L.Keller *et al.* : "Uranium Hexafluoride Handling Procedures and Container Criteria", ORO-651 Rev.2, (1968).
- 5)日本原子力産業会議：“核燃料の取扱技術 I”, pp.134-251 (1996).
- 6)長倉三郎ら（編）：“岩波 理化学事典 第5版”, 岩波書店 (2001).
- 7)原子力用語辞典編集委員会（編）：“原子力用語辞典”, コロナ社 (1991).

- 8)化学大事典編集委員会（編）：“化学大事典，共立出版（1987）.
- 9)三宅泰雄ら（訳）：“カツ・シーボーグ アクチニドの化学”，朝倉書店，pp.135-166（1962）.
- 10)日本化学会原子量小委員会：“原子量表（2005）”，化学と工業，Vol.59-4，巻末付録（2006）.
- 11)(社)火力原子力発電技術協会（編）：“原子燃料サイクルと廃棄物処理”，p.78（1986）.
- 12)(社)日本アイソトープ協会：“アイソトープ手帳 10 版”，丸善（2005）.
- 13)村上悠紀雄ら（編）：“放射線データブック”，地人書館，pp.264-271（1982）.
- 14)(財)原子力安全技術センター：“放射線施設のしゃへい計算実務マニュアル”，pp.1-7（2000）.
- 15)ASTM International：“Annual Book of ASTM Standards 2005”，Vol.12.01，pp.771-773（2005）.

表 1 金属ウラン及びウラン化合物の物性 5)~10)

	物 [化 式]	色	式量	密度 (g/cm ³)	融 点 (°C)	沸 点 (°C)	U含有比	溶解性	
								水	硝酸
金 属	ウラン[U]	銀白色	238.03	19.050	1132.3	3800	1.0000	×	○
	二酸化ウラン[UO ₂]	褐黒色	270.03	10.96	2878±20	—	0.8815	×	○
酸 化 物	八酸化三ウラン[U ₃ O ₈]	褐色 緑黒色	842.08	8.38	1450(分解)	—	0.8480	×	○
	三酸化ウラン[UO ₃]	橙黄色	286.03	7.29	450(分解)	—	0.8322	×	○
フ ッ 化 物	六フッ化ウラン[UF ₆]	白色	352.02	5.060	64.02 (151.6kPa)	56.4	0.6762	○(激しく反応)	○(激しく反応)
	四フッ化ウラン[UF ₄]	緑色	314.02	6.70	1036	—	0.7580	×	△(溶けにくい)
	フッ化ウラニル[UO ₂ F ₂]	薄黄色	308.02	6.37	—	—	0.7728	○	○
	重ウラン酸アンモニウム[(NH ₄) ₂ U ₂ O ₇]	橙色	624.13	—	—	—	0.7628	×	×
	硝酸ウラニル六水和物[UO ₂ (NO ₃) ₂ ·6H ₂ O]	淡黄色	502.13	2.81	60.2	118	0.4740	○	○

表2 ウラン中に含まれる主要核種の放射エネルギー算出のための定数¹²⁾

核種	U存在比(%)	半減期	壊変定数 (s ⁻¹)
²³⁴ U	0.0055	2.457×10 ⁵ y	8.94×10 ⁻¹⁴
²³⁵ U	0.720	7.038×10 ⁸ y	3.12×10 ⁻¹⁷
²³⁸ U	99.275	4.468×10 ⁹ y	4.92×10 ⁻¹⁸
²³¹ Th	—	25.52 h	7.54×10 ⁻⁶
²³⁴ Th	—	24.10 d	3.33×10 ⁻⁷
²³¹ Pa	—	3.276×10 ⁴ y	6.70×10 ⁻¹³
^{234m} Pa	—	1.17 m	9.79×10 ⁻³
²³⁴ Pa	—	6.75 h	2.85×10 ⁻⁵

表3 容器内に残留するウラン量推定のための計算(3.14)

ウラン 核種	0.38g E1 E2		E線		E1-E2 E線		E線		E線		E線		E線		実効線量率 (μSv/h)
	質量 E1	質量 E2	放出率 (%)	放出率 (%)	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	
234-U	0.05	0.0532	0.06	0.0633	0.07	0.0789	0.07	0.0789	0.07	0.0789	0.07	0.0789	0.07	0.0789	6.65E-14
235-U	0.1	0.1209	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	6.55E-13
	0.1	0.1438	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	1.05E-12
	0.15	0.1857	0.2	0.2428	0.2	0.2428	0.2	0.2428	0.2	0.2428	0.2	0.2428	0.2	0.2428	8.34E-12
	0.2	0.2053	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	5.76E-12
238-U	0.04	0.0496	0.05	0.0532	0.05	0.0532	0.05	0.0532	0.05	0.0532	0.05	0.0532	0.05	0.0532	7.72E-02
ウラン合計															3.48E-14
娘核種															
核種	0.32cm E1 E2		E線		E1-E2 E線		E線		E線		E線		E線		実効線量率 (μSv/h)
	質量 E1	質量 E2	放出率 (%)	放出率 (%)	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	質量 E1-E2	
234-Th	0.08	0.0828	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	2.14E-12
234mPa (分岐比 99.87%)	0.1	0.1128	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	1.29E-11
	0.15	0.17428	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	3.77E-12
	0.15	0.17664	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	0.2	0.2578	2.58E-12
	0.6	0.7663	0.6	0.7663	0.6	0.7663	0.6	0.7663	0.6	0.7663	0.6	0.7663	0.6	0.7663	9.80E-12
234Pa (分岐比 0.13%)	1	1.001	1.5	1.834	1.5	1.834	1.5	1.834	1.5	1.834	1.5	1.834	1.5	1.834	1.31E-01
	0.1	0.131	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	0.15	0.1834	8.67E-02
	0.2	0.227	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	3.10E-01
	0.5	0.5695	0.6	0.7375	0.6	0.7375	0.6	0.7375	0.6	0.7375	0.6	0.7375	0.6	0.7375	4.36E-13
231Th	0.6	0.7375	0.8	0.8927	0.8	0.8927	0.8	0.8927	0.8	0.8927	0.8	0.8927	0.8	0.8927	6.41E-03
	0.8	0.8853	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1.23E-12
	0.8	0.8927	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1.86E-12
	0.8	0.9496	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	1	1.001	2.81E-12
231Pa	0.02	0.0256	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	8.70E-03
	0.05	0.0586	0.06	0.0633	0.06	0.0633	0.06	0.0633	0.06	0.0633	0.06	0.0633	0.06	0.0633	2.18E-12
	0.08	0.0812	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	1.46E-12
	0.08	0.0842	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	0.1	0.1001	8.09E-15
231Bi	0.02	0.0274	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	0.03	0.0323	2.91E-05
	0.2	0.2836	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	1.07E-03
	0.2	0.2899	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	0.3	0.3725	4.68E-04
	0.3	0.3025	0.4	0.3725	0.4	0.3725	0.4	0.3725	0.4	0.3725	0.4	0.3725	0.4	0.3725	1.72E-03
娘核種合計															6.35E-01 μSv/h

実効線量率合計 (μSv/h) = ウラン + 娘核種 = 0.368 + 0.635
 = 1.003 (μSv/h)

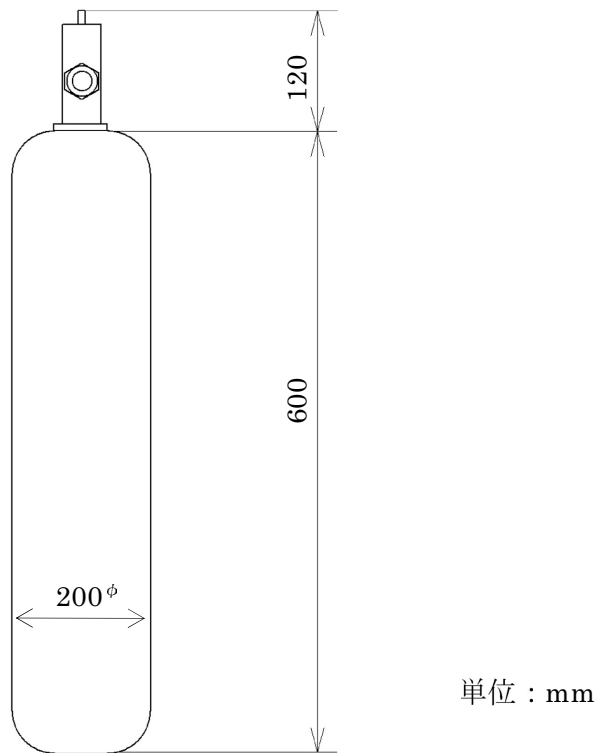


図 1 六フッ化ウラン空容器概要図

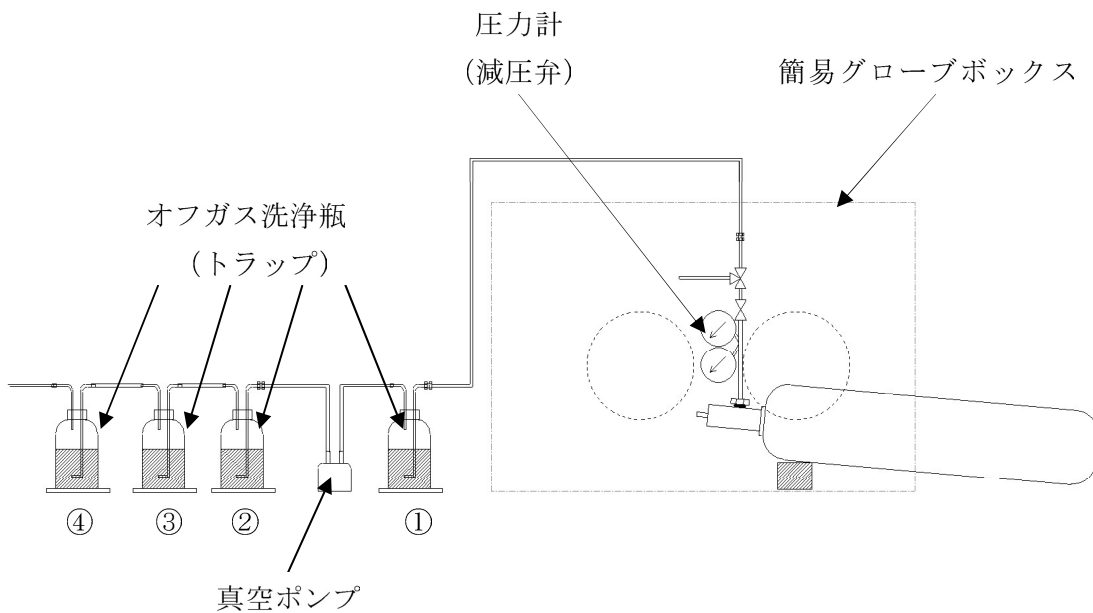


図 2 空容器残圧確認作業概要

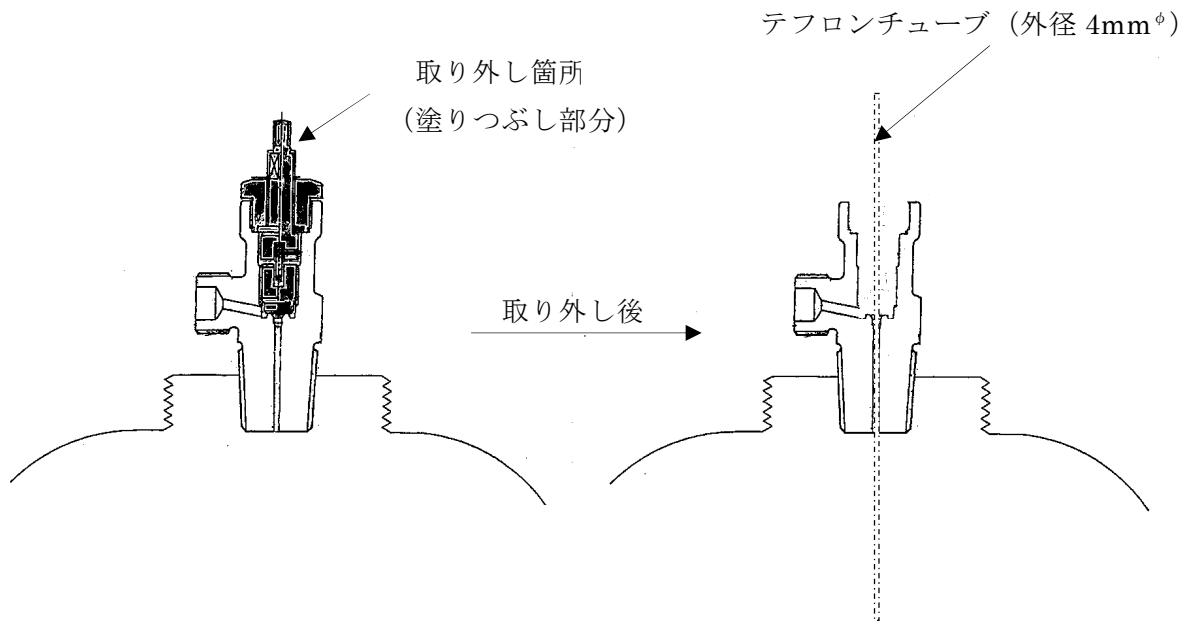


図 3 空容器の容器弁部分詳細図

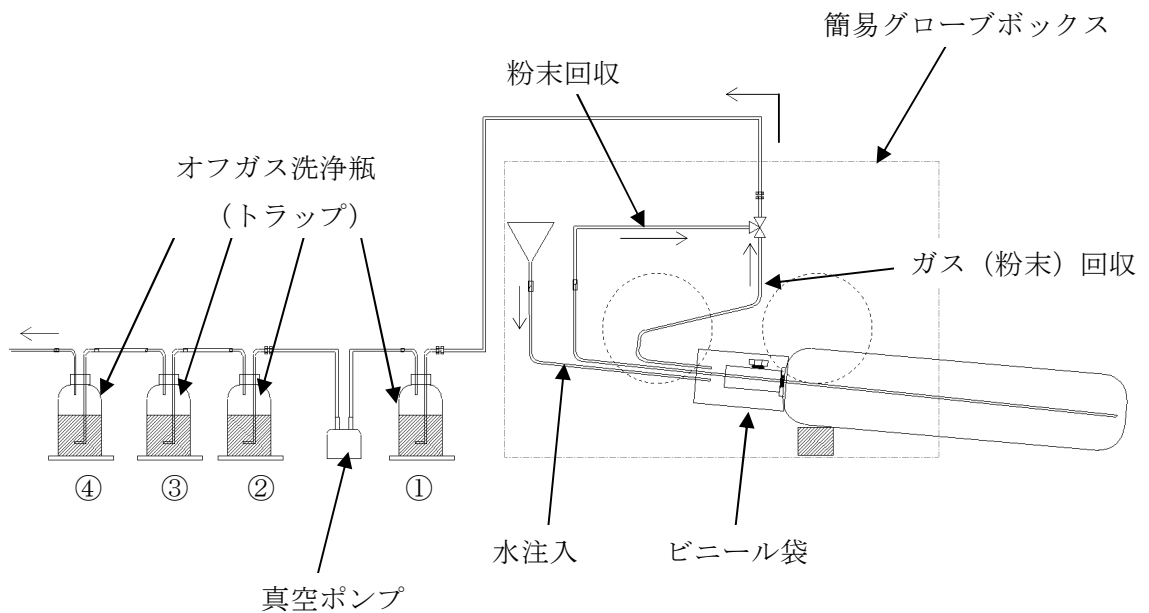


図 4 空容器洗浄処理概要図



写真 1 六フッ化ウラン空容器



写真 2 空容器洗浄処理状態



写真 3 第1トラップガラス管内に沈着した ADU 沈殿及び UF₄ 粒子

国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

基本量	SI基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(c)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電流量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
放射線量	ルクス	lx	lm/m ²	m ⁻² cd
放射線量の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性	カタール	kat		s ⁻¹ mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g) 単位シーベルト (PV,2002,70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘着力のモーメント	パスカル秒 ニュートンメートル	Pa s N m	m ¹ kg s ⁻¹ m ² kg s ⁻²
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ³ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ =kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1 MPa=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322 Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1 nm=100 pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852 m
バイン	b	1 b=100 fm ² =(10 ⁻¹² cm) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600) m/s
ネーバ	Np	SI単位との数値的な関係は、 対数量の定義に依存。
ベール	B	
デジベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1 Pa s
ストークス	St	1 St=1 cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1 cd cm ⁻² =10 ⁻² cd m ⁻²
フオトル	ph	1 ph=1 cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガラ	Gal	1 Gal=1 cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1 Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(c)	Oe	1 Oe ≐ (10 ³ /4π) A m ⁻¹

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「≐」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1 cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 f=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット=200 mg=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1868 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1 μm=10 ⁻⁶ m

