

JAERI-M

6 4 8 8

ウランフッ素化実験装置の使用経験

1976年3月

八木英二<sup>\*</sup>・前田 充・宮島和俊・鏡八留雄

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

ウランフッ素化実験装置の使用経験

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

八木英二<sup>\*</sup>・前田充・宮島和俊・鏡八留雄

(1976年2月13日受理)

日本原子力研究所再処理研究室では、フッ化物揮発法による燃料再処理研究の一環として、kg 規模フッ素および六フッ化ウランの取扱い技術を確立し、流動層におけるウランのフッ素化データを把握するため工学規模の「ウランフッ素化実験装置」を製作し、1969年以来、現在まで回分および連続操作によるフッ素化実験を行って来た。

この報告書は、上記装置に関する使用経験をまとめたもので、機器の性能および工程毎の操作法について評価検討するとともに、設計・操作上の注意事項について述べた。

---

\* 現在、三菱金属(株)

Technical Experiences in an Engineering-scale Facility  
for Uranium Fluorination Studies

Eiji YAGI\*, Mitsuru MAEDA, Kazutoshi MIYAJIMA and Haruo KAGAMI

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received February 13, 1976)

In the research program of power reactor fuel reprocessing by fluoride volatility process, an engineering-scale facility for uranium fluorination has been operated batchwise and semi-continuously since 1969 in Fuel Reprocessing Laboratory, JAERI, to establish the techniques of handling kilogram quantities of fluorine and uranium hexafluoride and to obtain engineering data on the uranium fluidized-bed fluorination.

The experiences gained with the facility are described, giving some evaluations and recommendations for the equipment design, its performance and operation of the system.

---

\* Present address, Mitsubishi Metal Corp. Inc.

## 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 実験装置の概要 .....	2
2.1 装置の概要 .....	2
2.1.1 プロセスガス供給系 .....	2
2.1.2 フッ素化系 .....	2
2.1.3 六フッ化ウラン回収系 .....	7
2.1.4 オフガス系 .....	7
2.1.5 分析系 .....	7
2.1.6 フードおよび換気系 .....	8
2.1.7 実験装置の改造 .....	8
2.2 実験の概要 .....	12
2.2.1 操作の概要 .....	12
2.2.2 実験内容 .....	13
3. プロセスガス供給系の使用経験 .....	14
3.1 フッ素ガス供給系 .....	14
3.1.1 操 作 .....	14
3.1.2 機 器 .....	15
3.2 窒素・空気供給系 .....	18
3.2.1 操 作 .....	18
3.2.2 機 器 .....	18
4. フッ素化系の使用経験 .....	20
4.1 操 作 .....	20
4.1.1 ケーキング .....	20
4.1.2 放射性微粉体の取扱い .....	22
4.1.3 フッ素化塔分離部の解体 .....	23
4.2 機 器 .....	24
4.2.1 予熱器 .....	24
4.2.2 フッ素化塔 .....	24
4.2.3 粉体供給系 .....	31
4.2.4 計 装 .....	32
5. 六フッ化ウラン回収系の使用経験 .....	35
5.1 操 作 .....	35
5.1.1 六フッ化ウランの移送・ボンベ充填 .....	35
5.1.2 コールドトラップの解体 .....	36
5.1.3 閉塞六フッ化ウランボンベの処置 .....	38
5.2 機 器 .....	38

5. 2. 1 コールドトラップ	38
5. 2. 2 ボンベおよび六フッ化ウラン移送系	39
5. 2. 3 冷却系	39
5. 2. 4 計装	40
6. オフガス系の使用経験	42
6. 1 操作	42
6. 1. 1 使用基準	42
6. 1. 2 充填物の交換	43
6. 2 機器	43
6. 2. 1 NaF トラップ	43
6. 2. 2 ソーダライムトラップ・活性アルミナトラップ	43
6. 2. 3 アルカリスクラバー	44
7. 材料・配管部品および電気計装部品の使用経験	46
7. 1 材料	46
7. 1. 1 材料選定の目やす	46
7. 1. 2 使用経験	46
7. 2 配管部品	51
7. 2. 1 バルブ	51
7. 2. 2 継手	52
7. 3 計器・電気部品	56
7. 3. 1 流量計	56
7. 3. 2 圧力計・差圧計	56
7. 3. 3 ヒーター	56
8. 気密検査および洗浄・フッ素化処理の経験	58
8. 1 洗浄	58
8. 1. 1 実施基準と方法	58
8. 1. 2 実施経験	58
8. 2 気密検査	58
8. 2. 1 漏洩検査	58
8. 2. 2 気密度の測定	58
8. 2. 3 気密度の基準と実績	59
8. 3 フッ素化処理	59
8. 3. 1 実施の基準と方法	59
8. 3. 2 実施経験	60
9. 安全管理および事故例	63
9. 1 安全管理	63
9. 1. 1 異常報告記録	63
9. 1. 2 安全解析	63
9. 1. 3 安全対策	63

9.2 事故例 .....	65
9.2.1 フッ素ヘッダーからのガスの噴出 .....	65
9.2.2 フッ素化塔からのU <sub>3</sub> O <sub>8</sub> 粉末の噴出・飛散 .....	66
10.結言 .....	70
謝辞 .....	70
参考文献 .....	71
付録 .....	72
A Air Products社製フッ素ガスの標準仕様 .....	72
B 耐フッ素性機器の市販品調査 .....	72

## Table of Contents

1.	Introduction .....	1
2.	Summary of the facility and the experiments .....	2
2.1	Summarized description of the facility .....	2
2.1.1	Process gas supply system .....	2
2.1.2	Fluorination system .....	2
2.1.3	Uranium hexafluoride recovery system .....	7
2.1.4	Off gas treatment and disposal system .....	7
2.1.5	Analytical system .....	7
2.1.6	Hood and ventilation system .....	8
2.1.7	Remodeling of the equipments .....	8
2.2	Summary of experiments .....	12
2.2.1	Operational procedure .....	12
2.2.2	Experiments .....	13
3.	Experiences on reactant gas supply system .....	14
3.1	Fluorine supply system .....	14
3.1.1	Operation .....	14
3.1.2	Equipments .....	15
3.2	Nitrogen and dehumidified air supply system .....	18
3.2.1	Operation .....	18
3.2.2	Equipments .....	18
4.	Experiences on fluorination system .....	20
4.1	Operation .....	20
4.1.1	Cake formation .....	20
4.1.2	Radio-active power handling .....	22
4.1.3	Opening the flange in disengaging section of the fluorinator .....	23
4.2	Equipments .....	24
4.2.1	Preheater .....	24
4.2.2	Fluorinator .....	24
4.2.3	Powder charge system .....	31
4.2.4	Instrumentation .....	32
5.	Experiences on recovery system of uranium hexafluoride .....	35
5.1	Operation .....	35
5.1.1	Transfer of uranium hexafluoride and container filling ..	35
5.1.2	Disassembling of cold trap .....	36

5.1.3 Treatment of inlet logged cylinder .....	38
5.2 Equipments .....	38
5.2.2 Cylinder and transfer system of uranium hexafluoride ...	39
5.2.3 Refrigeration system .....	39
5.2.4 Instrumentation .....	40
6. Experiences on off gas treatment and disposal system .....	42
6.1 Operation .....	42
6.1.1 Capacity limitation .....	42
6.1.2 Exchange of chemicals .....	43
6.2 Equipments .....	43
6.2.1 Sodium fluoride trap .....	43
6.2.2 Soda-lime trap and activated alumina trap .....	43
6.2.3 Caustic scrubber .....	44
7. Experiences on material, tubing parts, instrumental and electrical comporments .....	46
7.1 Materials .....	46
7.1.1 Criteria for material selection .....	46
7.2 Tubing parts .....	51
7.2.1 Valve .....	51
7.2.2 Fitting .....	52
7.3 Instrumental and electrical comporment .....	56
7.3.1 Flow meter .....	56
7.3.2 Pressure gauges and differential pressure gauges .....	56
7.3.3 Electrical heaters .....	56
8. Experiences on cleaning, leak-testing and fluorine conditioning.	58
8.1 Chemical cleaning and degreasing of equipments .....	58
8.1.1 Cleaning criteria and procedure .....	58
8.1.2 Experiences .....	58
8.2 Leak testing .....	58
8.2.1 Leak detection .....	58
8.2.2 Measurement of leak rate .....	58
8.2.3 Criteria and experiences on leak rate .....	59
8.3 Fluorine conditioning .....	59
8.3.1 Conditioning criteria and procedure .....	59
8.3.2 Experiences .....	60
9. Safety control and examples of incidents .....	63
9.1 Safety control .....	63

9.1.1 Records on safety trouble .....	63
9.1.2 Safety analysis .....	63
9.1.3 Safety counter plan and its evaluation .....	63
9.2 Examples of incidents .....	65
9.2.1 Blow-out of fluorine from the supplying header .....	65
9.2.2 Overflow of U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> powder from a open nozzle of the fluorinator .....	66
10. Conclusion .....	70
Acknowledgements .....	70
References .....	71

## Appendix

A Data on Air Products fluorine gas .....	72
B Surveys on commercial parts and equipments for fluorine handling .....	72

## 表 リ ス ト

- Table 1 ウランフッ素化実験装置の設計基準  
 Table 2 ウランフッ素化実験装置における主な改造項目  
 Table 3 ウランフッ素化実験装置における実験内容  
 Table 4 フッ素ガス通気操作手順  
 Table 5 フッ素化塔におけるケーキング  
 Table 6 フッ素化塔整流器の使用経験  
 Table 7 フッ素化塔分離部の使用実績  
 Table 8 フッ素化塔フィルターおよびプローバック系の使用実績  
 Table 9 フッ素化塔フィルターの圧損  
 Table 10 フッ素化塔における熱収支の例  
 Table 11 コールドトラップの使用実績  
 Table 12 NaF トラップの使用実績  
 Table 13 フッ素除去トラップの使用実績  
 Table 14 アルカリスクラバーの使用実績  
 Table 15 フッ素取扱用材料選定指針 1. (タンク, 配管, 接手, 計測器接ガス部など機械的摩擦の少ない場所)  
 Table 16 フッ素取扱用材料選定指針 2. (バルブ)  
 Table 17 耐フッ素機器における材料の使用経験  
 Table 18 配管材料の使用経験  
 Table 19 弁の仕様と選定上の指針  
 Table 20 弁の使用経験  
 Table 21 継手の使用経験  
 Table 22 流量計の使用経験  
 Table 23 圧力計・差圧計の使用経験  
 Table 24 機器および配管の洗浄に関する経験  
 Table 25 漏洩検査法に関する経験  
 Table 26 気密度の基準と実績  
 Table 27 フッ素化処理の実施基準と方法  
 Table 28 ウランフッ素化実験における異常報告  
 Table 29 安全対策と評価  
 Table 30 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 粉末噴出事故における除染作業日程  
 Table 31 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> 粉末噴出事故において使用した除染用資材  
 Table A1 Air Products 社のフッ素ガス仕様  
 Table B1 モネル製ダイヤフラム弁及びベローズシール弁  
 Table B2 黄銅製ベローズシール弁  
 Table B3 フレヤレス型継手

Table B4 耐フッ素性焼結金属フィルター

Table B5 モネル製ブルドン管圧力計

Table B6 耐フッ素用減圧弁

Table B7 モネル製差圧計

Table B8 モネル製流量計

## 図 リ ス ト

- Fig 1 ウランフッ素化実験装置のプロセスブロック図および物質収支（設計基準用）
- Fig 2 ウランフッ素化実験装置のエンジニアリングフローシート1.（設計時）
- Fig 3 ウランフッ素化実験装置のエンジニアリングフローシート2.（改造付加後）
- Fig 4 実験操作手順
- Fig 5 フッ素ボンベロッカー
- Fig 6 酸化時におけるケーキングの例（UF-08b）
- Fig 7 安定流動化のためのアルミナ・燃料比
- Fig 8 透明模擬フッ素化塔における流動層膨脹比の例
- Fig 9 粉体供給孔の改造
- Fig 10 ブローバックノズル
- Fig 11 フッ素化塔におけるヒーターの分布
- Fig 12 フッ素化塔への粉体連続供給法
- Fig 13 テーブルフィーダーの特性曲線
- Fig 14 フッ素化塔の温度制御の例
- Fig 15 六フッ化ウランの移送・ポンベ充填手順
- Fig 16 六フッ化ウランの移送操作におけるコールドトラップ内圧の変化
- Fig 17 六フッ化ウランポンベの元弁交換作業図
- Fig 18 寒剤槽投入孔の改造

## 写 真 リ ス ト

Photo 1 フッ素取扱時の防護仕度

## 1 緒 言

日本原子力研究所・再処理研究室では、1966年以来主として高速炉燃料を対象としたフッ化物揮発法に関する開発研究を行ってきており、このためまず3インチ直径の流動層を主反応器とするウランフッ素化実験装置、ついで2インチ直径流動層を主反応器とするプルトニウムフッ素化実験装置を製作し、さらにフッ素化工程以降の精製・転換工程についても実験装置を製作し、工程上の問題点の把握とその解決のための努力を払ってきた。

ウランフッ素化装置は、工学規模装置における酸化ウラン粉末・フッ素および六フッ化ウランの取扱いと関連機器の使用経験を得るとともに、流動層反応器における酸化ウランのフッ素化特性を把握することを目的として製作された。この装置による本格的な実験は、1969年末より開始され、その後幾度かの改造を経たが、これまでに20ラン以上に及ぶ実験に使用され、当初の製作および実験目的を達成した。

最近、国内においては六フッ化ウランの製造やウラン濃縮技術の開発などに関連して、工学規模装置におけるフッ素や六フッ化ウランの取扱い、関連機器における使用経験についての関心が高まりつつある。この報告書は、フッ化物揮発法の開発研究だけでなく、上記のような関連分野における同種の設備を設計し、製作・運転する場合に役立てる目的として作成したものである。

実験装置及びプロセスデータの詳細は、別に報告<sup>1)5)</sup>されているので、この報告書では実験を通じて得られた機器ならびに操作方法に関する使用経験を中心にまとめた。記述の内容は、製作した実験装置の性能および構造に対する評価と実験実施上の操作方法に関する経験を中心となっているが、この装置や実験内容に個有な理由に基づく項目は省くよう努めた。

現在ウランフッ素化実験装置は、改造により粉体供給装置が付加され、半連続操作でのフッ素化実験に使用されると共に、別の報告書<sup>2)</sup>にまとめられる流動層型連続凝縮器と組み合わせても運転されてきたが、この報告書の内容は1966年以来上記を含む1975年9月までの実験を通じて得られた全ての経験に基づいてまとめられている。

## 2 実験装置の概要

### 2.1 装置の概要

本装置の詳細は、別の報告書に示されているので、その概要についてのみ述べる。

装置は、3インチ径流動層を主反応器とし、回分操作において最大5 kg・ウラン/バッチの酸化ウラン粉末（またはペレット）を酸化およびフッ素化することを目標に設計された。設計基準に関する実験装置の主要な諸元をTable 1に示す。

実験装置は、プロセスガスおよびコーティリティガスの供給系、酸化ウラン粉末（またはペレット）の酸化およびフッ素化を行うフッ素化系、生成した六フッ化ウランをプロセスガスより除去し、容器に充填するUF<sub>6</sub>回収系、および未反応のフッ素・未捕集の六フッ化ウランを除去するオフガス処理系より構成される。装置の主要な操作条件と機器の構成をプロセスプロック図およびP&Iフローシートとして、それぞれFig 1, 2に示す。

Table 1 ウランフッ素化実験装置の設計基準

主反応器寸法	3インチ径流動層
最大処理容量	5 kg/バッチ（酸化ウラン粉末またはペレット）
最大フッ素化速度	3.5 kg UO <sub>2</sub> /dm <sup>2</sup> ・hr
フッ素利用率	30%
コールドトラップにおけるUF <sub>6</sub> 捕集率	95%
オフガス中のフッ素濃度	アルカリスクラバー出口において最大100 ppm
フッ素化塔の設計温度	600°C
フッ素化塔の設計圧力	5 Kg/cm <sup>2</sup> ・G

#### 2.1.1 プロセスガス供給系

プロセスガスとして、酸化時には空気が、フッ素化時には窒素または空気により稀釈されたフッ素が使用される。フッ素は、充填圧28Kg/cm<sup>2</sup>・G、容量2.2kg F<sub>2</sub>のポンベに充填されたAir Products社製ガスを使用し、実験室屋外に設けた専用のフッ素庫より供給される。窒素は、充填圧130~150Kg/cm<sup>2</sup>・Gのポンベ入り一般工業用ガスを使用し、空気は再処理特別研究棟施設より供給される露点-20°Cの乾燥ガスをモレキュラーシーブおよびシリカゲル充填のトラップに通じた後使用される。これらのガスは、減圧弁を経て流量計により所定濃度となるよう混合され、フッ素化系へ供給される。

#### 2.1.2 フッ素化系

プロセスガスは、フッ素化塔下部に供給され、80メッシュの電融アルミナ粉末とともに装荷された二酸化ウラン粉末（またはペレット）と接触する。フッ素化塔は、流動部80<sup>Φ</sup>I.D.×1200<sup>H</sup>、分離部220<sup>Φ</sup>I.D.×780<sup>H</sup>の大きさを有するニッケル製流動層反応器で、ガスは下部の整流部を経て、流動部において酸化またはフッ素化反応を行い、分離部で同伴した微粉を除去した後、UF<sub>6</sub>回収系へ送られる。

酸化反応は、400~500°C、フッ素化反応は300~400°Cで行われ、これらの温度維持

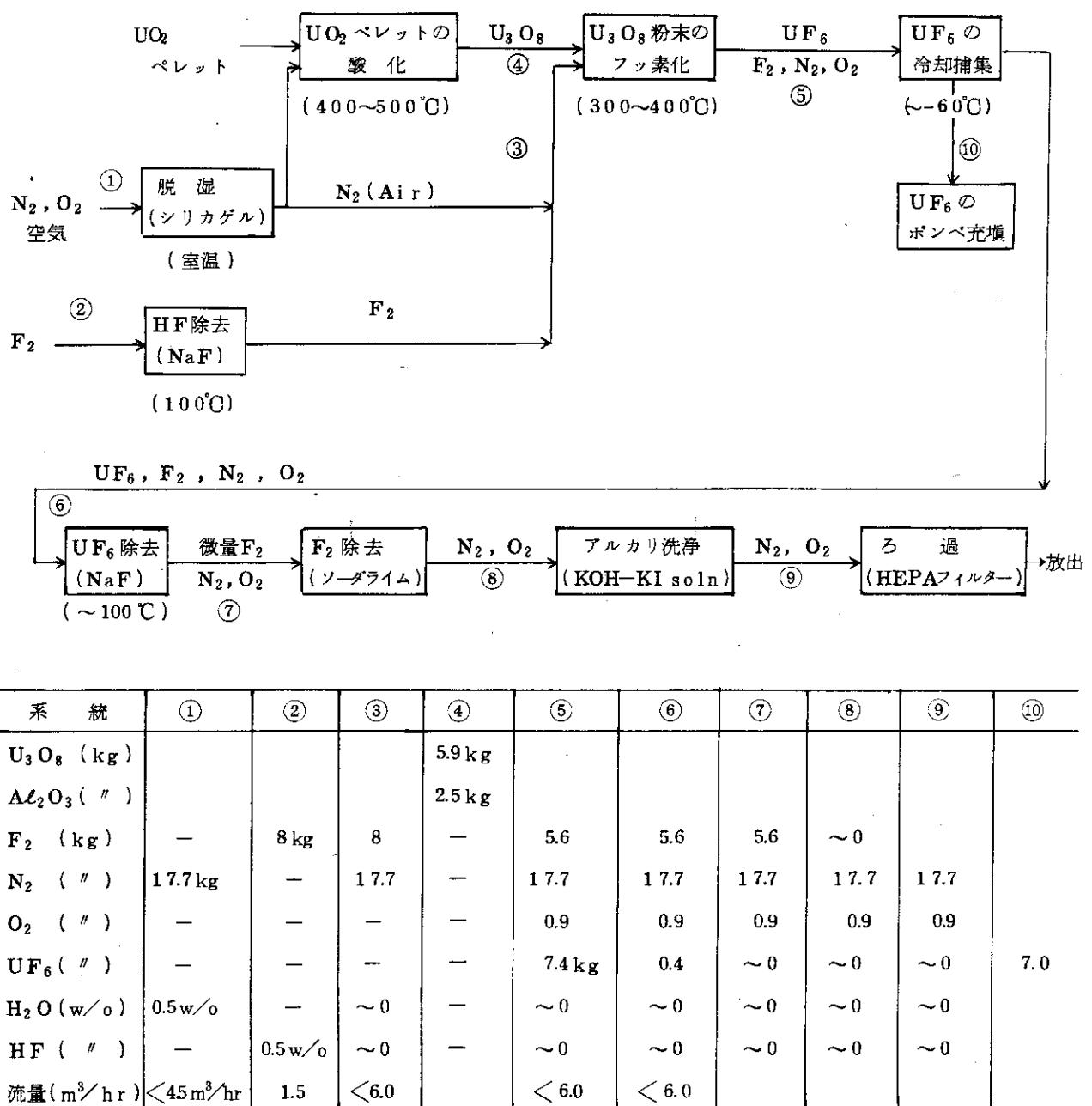


Fig 1 ウランフッ素化実験装置のプロセスブロック図および  
物質収支（設計基準用）

## フッ素ボンベ置場

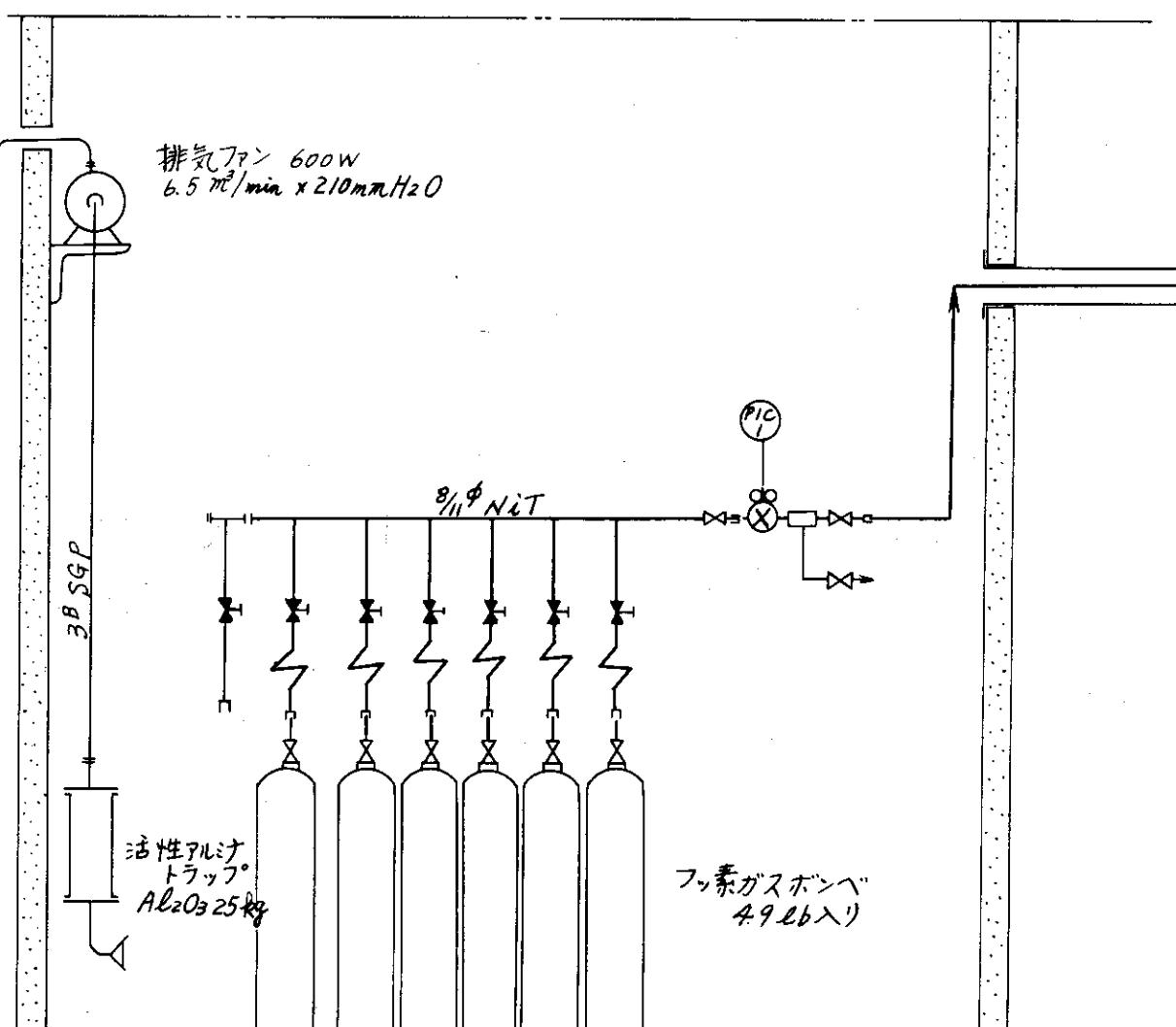


Fig. 2 (1) ウランフッ素化実験装置エンジニアリングフローシート  
(フッ素ガス供給系), 1 (設計時)

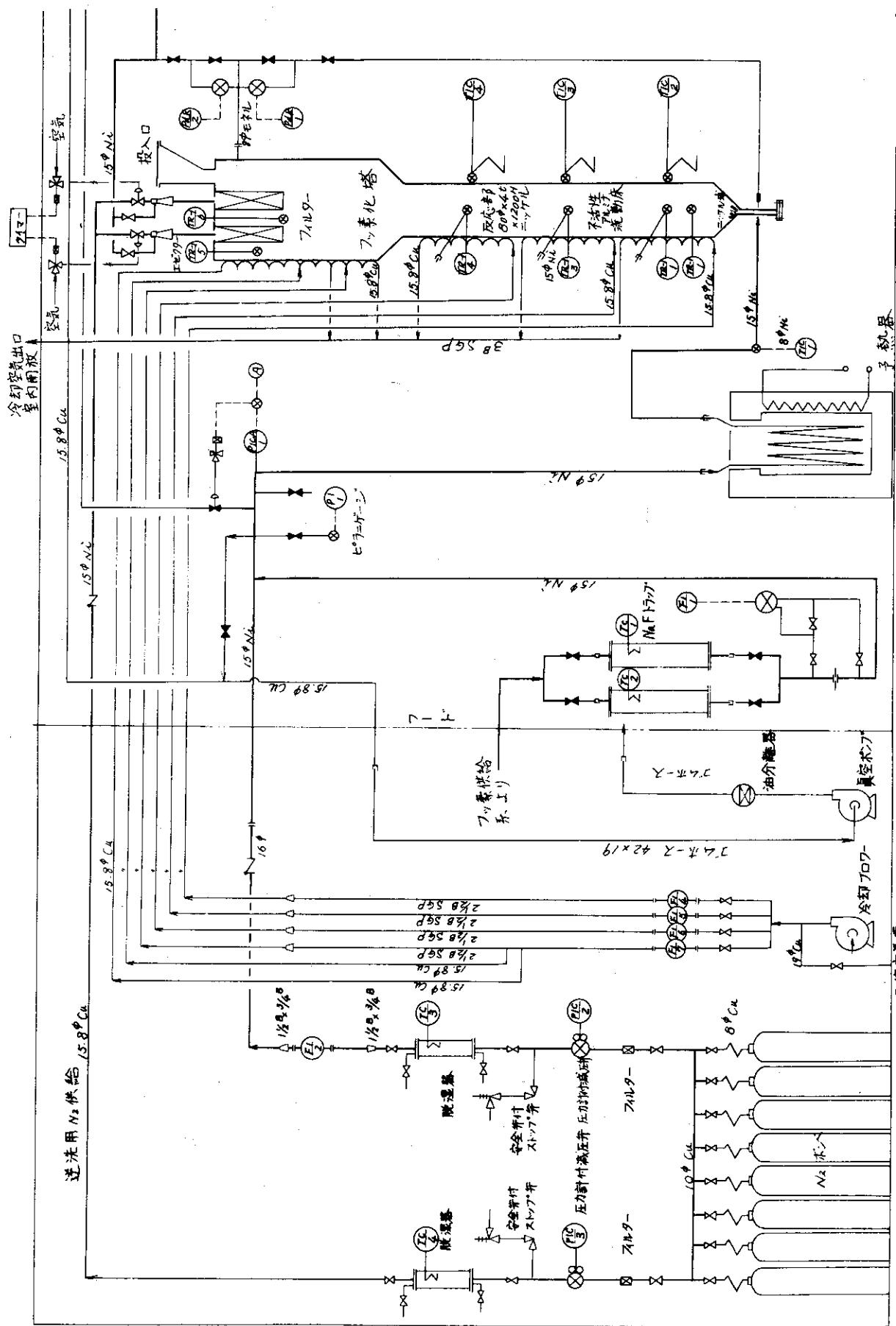


Fig. 2 (2) ウランフッ素化実験装置エンジニアリングフローシート  
(フッ素化系, 窒素ガス供給系), 1 (設計時)

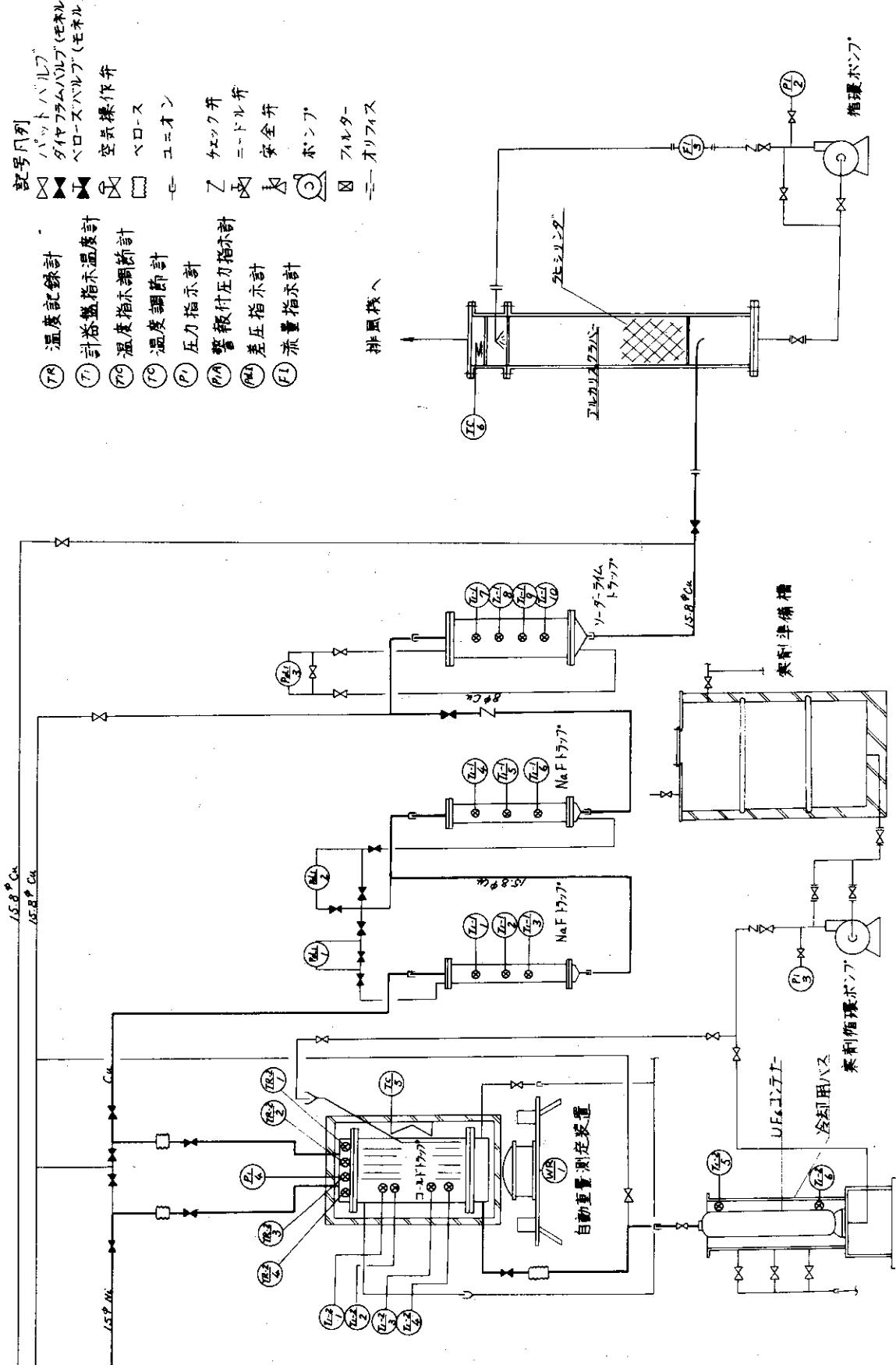


Fig. 2 (3)ウランフッ素化実験装置エンジニアリングフローシート  
(UF<sub>6</sub>回収系, オフガス系), 1 (設計時)

は主として反応塔外壁に巻きつけられた電熱ヒーターの負荷制御で行い、補助的に同じく塔外壁に巻き付けられた冷却管への冷却ガス流量の調節によってカバーされる。

粉体の供給は、分離部フランジに設けられた粉体供給ノズルより、回分的に行われる。未反応試料、流動媒体アルミナの抜出しは、塔下部のフランジを外して行われる。

分離部には、プロセスガスに同伴した微粉を除去するため二基のニッケル製焼結フィルターが取り付けられているが、これらのフィルターは、エゼクターを介して  $3 \sim 4 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$  の窒素または空気により周期的に逆洗され、フィルターの圧損増加が防止されている。

### 2.1.3 六フッ化ウラン回収系

フッ素化塔からのガスはコールドトラップに入り、約  $-50^\circ\text{C}$  に冷却された管内壁に六フッ化ウランガスが、凝結してプロセスガスより除去される。コールドトラップは  $60\phi \text{ I.D.} \times 550\text{H}$  の伝熱管 10 本を有し、伝熱面積  $1 \text{ m}^2$ 、管内凝縮・管外冷却の多管式熱交換器である。凝結した六フッ化ウランは、回分的に  $\text{UF}_6$  コンテナーに移送され、回収される。

このため、コールドトラップは胴外壁よりバンドヒーターで加熱すると共に、管外側に加熱空気を供給することができる。また  $\text{UF}_6$  コンテナーを冷却するための冷却バス、および  $\text{UF}_6$  回収系を真空引きするための排気ポンプが設けられている。

コールドトラップおよびコンテナー用バスの冷却は、 $-78^\circ\text{C}$  に冷却したトリクロールエチレン（商品名トリクレン）を冷媒として行われる。このため寒剤と冷媒循環ポンプが設けられ、冷媒は寒剤槽内でドライアイスと直接接触して冷却される。

### 2.1.4 オフガス系

コールドトラップを出たオフガスは、まず未捕集の六フッ化ウランが粒状のフッ化ソーダを充填した  $\text{NaF}$  トラップにおいて吸着除去され、ついで未反応のフッ素がソーダライム粒または活性アルミナ粒を充填せるトラップにおいて除去される。オフガスはさらに  $\text{KOH-KI}$  溶液を用いるアルカリスクラバーにおいて洗浄された後、再処理試験室施設内の排気系に合流し、アブソリュートフィルターを経て、スタックより屋外へ放出される。

$\text{NaF}$  トラップは、 $80\phi \text{ I.D.} \times 500\text{H}$ 、容量  $3 \text{ kg} \cdot \text{NaF}$  の黄銅製充填塔で二基直列に使用され、 $80 \sim 100^\circ\text{C}$  に加熱するためリボンヒーターが巻かれている。ソーダライムトラップは  $220\phi \text{ I.D.} \times 600\text{H}$ 、容量  $14 \text{ kg} \cdot \text{ソーダライム}$  の黄銅製充填塔であり、下部に約  $0.5 \text{ l}$  の液溜がある。アルカリスクラバーは、 $36$  インチ磁製ラシヒリング  $0.13 \text{ m}^3$  を充填せる  $330\phi \text{ I.D.} \times 2250\text{H}$  の吸収塔である。吸収液はポンプにより循環再使用され、スクラバー塔下部に溶液貯槽を兼ねた約  $20 \text{ l}$  の液溜めが設けられている。

### 2.1.5 分析系

反応の経過は、フッ素化塔出口ガスを連続的にサンプリングし、熱伝導度計（TCC）を使用して、六フッ化ウラン濃度または未反応フッ素濃度を測定することにより知ることが出来る。この分析計の使用経験を含む詳細は、別に報告されている。<sup>3)13)</sup>

### 2.1.6 フード及び換気系

ウランフッ素化実験装置は、再処理試験室10号室に設置され、インライン測定機器および化学分析のための設備は、隣接する11号室に設けられている。またフッ素化系よりオフガス処理系に至る装置の主要部は、 $3,150^L \times 1,050^W \times 3,360^H$  の工学フードに収納されており、その換気は建屋の排気系に直結して行われ、アブリュートフィルターを経てスタックより排気される。

### 2.1.7 実験装置の改造

前述の実験装置は使用経験の蓄積と実験の進捗により改造がなされた。主要な改造内容と最終的なP&IフローシートをそれぞれTable 2, Fig 3に示す。

改造の理由や詳細な内容は、使用経験に関するそれぞれの項で述べるた、主要な系についてのみ改造後装置の概要を以下に述べる。

Table 2 ウランフッ素化実験装置における主な改造項目

系	改 造 項 目	本文中の参照項目
ガス供給系	(1) フッ素ポンベロッカーの新設	3.1.2
	(2) 脱湿器、脱HF器の撤去	3.1.2, 3.1.3
	(3) パルス流発生設備の付加	4.1.1
	(4) フッ素ヘッダー配管系の変更	3.1.2
	(5) 稀釈ガスヘッダー配管系の変更	3.2.2
	(6) 窒素ポンベ置場の移設	"
	(7) フッ素庫換気ファンの交換	3.1.2
フッ素化系	(1) プロセスガス予熱器の撤去	4.2.1
	(2) 粉体供給孔の改造	4.2.2
	(3) ブローバックフィルター取付部の改造	"
	(4) 差圧測定配管系の変更	( " )
	(5) ヒーター容量の増加	4.2.2
粉体供給系(新設)	(1) 粉体定量供給器の付加	4.2.3
	(2) 粉体移送配管系の付加	"
UF <sub>6</sub> 回収系	(1) コールドトラップ重量計の撤去	5.2.4
	(2) UF <sub>6</sub> 回収配管系の変更	5.2.2
	(3) 寒剤槽の改造	5.2.3
	(4) 寒剤配管系の変更	"
オフガス系	(1) NaFトラップの交換	6.2.1
	(2) ソーダライムトラップの交換(活性アルミナトラップの使用)	6.2.2
	(3) アルカリスクラバーの撤去とバックアップトラップの付加	( 6.2.3 )
凝縮実験装置との接続に伴う改造	(1) プロセスガス配管系の変更	-
	(2) FPフッ素化速度測定系の付加	-
フードなど	(1) フード窓わくの交換(密閉性の強化)	9.2.2
	(2) フッ素化塔フランジ吊り上げ装置の付加	4.1.3

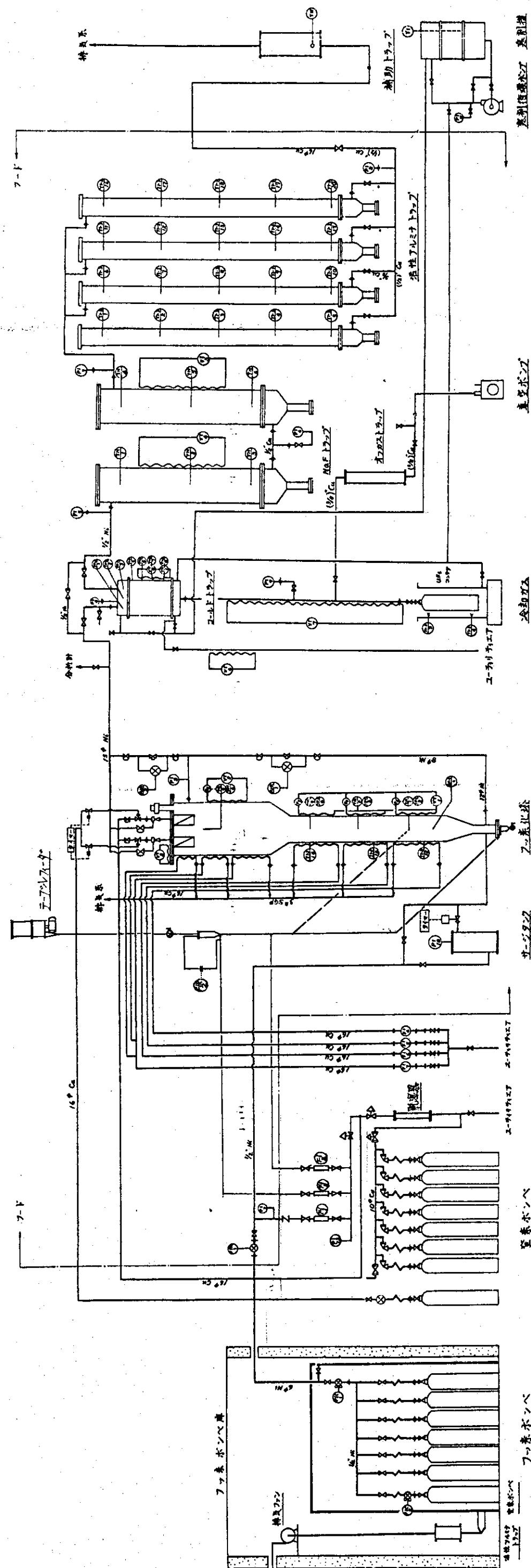


Fig. 3 1. ヴランフッ素化実験装置のエンジニヤリングフローシート, 2. (改造, 付加後)

## (1) 粉体供給系

フッ素化塔へ酸化ウラン粉末を定量的に供給するためのシステムで、定量供給機としてのテーブルフィーダーとこれより落下せる粉末を空気により塔内へ送入するための移送系より構成される。

テーブルフィーダーは、可変供給速度  $0 \sim 3.0 \text{ kg/hr}$  ホッパー容量  $10\ell$  の性能を有し、小容量、高精度（流量精度  $\pm 3\%$ ）かつ気密保持の確実さの点から、市販の工業用供給器を調査し、大盛工業（株）製・スムースオートフィーダーを購入した。粉体の移送系には、フィーダーより自重で落下せる粉体の供給速度を測定するガスバージ式粉体流量計<sup>4)</sup>と粉体のブリッジを防止する自動ハンマーが設けられている。塔への供給は、塔側壁に設けられた粉体サンプリング孔より行うことも出来るが、塔下部のコーン部より流動化ガスと共に送入されるよう特別な構造を有するミキシングポットが設けられている。

## (2) オフガス系

改造後のNaFトラップは、 $300\phi \text{ I.D.} \times 1,500^{\text{H}}$  の黄銅製充填塔（充填容量  $105\ell$ ）で、二基直列に設置されている。塔下部には  $50\phi \text{ I.D.}$  の充填物抜出しノズルがあり（垂直より  $30^\circ$  の下向き）、また胴部には加熱のためのバンドヒーターが取付けられている。

フッ素を除去するためソーダライムトラップの代りに活性アルミナを充填する4基のトラップが並列に設置された。このトラップは、 $110\phi \text{ I.D.} \times 2,000^{\text{H}}$  のBS製充填塔（充填容量  $19\ell$ ）である。

アルカリスクラバーは撤去され、ソーダライムを充填する  $200\phi \text{ I.D.} \times 650^{\text{H}}$  のバックアップトラップが設けられた。

## 2.2 実験の概要

### 2.2.1 操作の概要

実験の手順は、実験内容に応じてそれぞれ部分的に変更されてきたが、基本的には (i)試料及び試薬などの充填、(ii)装置気密度の確認、(iii)フッ素化処理、(iv)酸化・フッ素化などの反応と共に、生成した六フッ化ウランをボンベに回収する場合には、(v)六フッ化ウランのボンベへの移送などの操作が、上記の順序で実施される。この手順をFig. 4に示す。

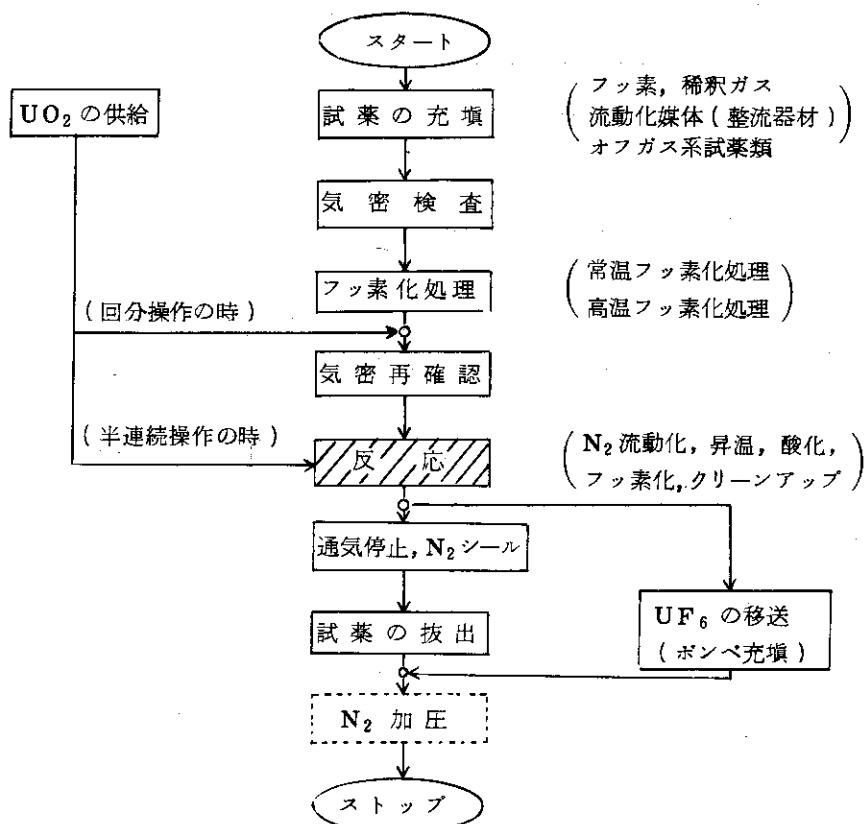


Fig. 4 実験操作手順

準備すべき試薬類には、酸化ウラン、流動媒体アルミナなどの試料と共にフッ素、窒素などのプロセスガス、さらにオフガス系で使用される化学トラップ用吸着剤とアルカリスクラバー用溶液などがあり、これらの取扱いのうち特別な考慮を要する操作については、第3章以下のそれぞれの項目で述べる。

装置気密度の確認は、安全およびプロセス上重要であり、特別な注意を払いつつ必ず実施される操作の一つである。ソープテストで漏れ箇所を探した後、全系をフッ素供給系、フッ素化系、六フッ化ウラン回収系、オフガス処理系などに分割孤立化させ、イナートガスで加圧しその圧力降下速度より漏洩量を推定し、それぞれの系における基準値と比較する。これらの詳細は8.2項で述べる。

フッ素化処理は、主として (i)機器内の異物（油脂、ごみなど）を予め除去すること、(ii)材料表面にフッ素化被膜を形成して耐フッ素性を増すことを目的としたものであるが、通常は主として(i)の目的で実施される。この処理法には、常温フッ素化処理と高温フッ素化処理の二つ

があり、いづれの方法を用いるかは事前の装置の使用状態と実験内容に基づいて判断される。これらフッ素化処理についても、その詳細は 8.3 項で述べる。

実験は、稀釈ガスだけによる流動化、昇温をへた後フッ素などプロセスガス導入の順序で行われる。フッ素の初期送入は、安全上の理由から特に注意して行う必要があり、1~2 vol.% 程度の濃度より開始される。シャットダウンは、反応の終点を六フッ化ウランおよびフッ素の濃度、また流動層差圧変化などより判断し、フッ素の供給を停止して全系を十分にページして完了する。

六フッ化ウランの回収は、フッ素化が終了したのち回収系のみを孤立化させ、バッチ的に行う。操作の詳細は第 5 章で述べる。

## 2.2.2 実験内容

実験装置は昭和 44 年 5 月荏原製作所より納入され、約一年間の装置作動試験を経た後、昭和 45 年 2 月よりフッ素化実験に使用された。これまで、この装置で実施された実験の概要を Table 3 に示す。実験内容は、フッ素・六フッ化ウランの取扱経験を得るために作動実験、酸化ウラン粉末のフッ素化特性を得るために回分操作フッ素化実験、酸化ウラン及び模擬 FP を混合せる試料による半連続操作フッ素化実験、流動層連続凝縮実験装置と結合して行った FP のフッ素化・精製挙動を確認するための実験などに大別される。これらの結果の詳細は別の報告書<sup>5)</sup>にまとめられている。

上記の実験を通じて、現在までに酸化ウラン 50 kg, F<sub>2</sub> 90 kg がこの実験装置で使用され、延べ運転時間は約 200 時間に達した。操作条件については、フッ素化塔反応部で最高 400°C (短時間では 550°C)、分離部で 350°C までの使用実績がある。

Table 3 ウランフッ素化実験装置に於ける実験内容

実験系列	実験目的	ラン #	実験条件
I	(1) 装置、分析系の作動試験 (2) フッ素化、F <sub>2</sub> /UF <sub>6</sub> 取扱法などの使用経験の入手	UF-01 ~06	- 試料; U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> 粉末、UO <sub>2</sub> ベレット (0.5~5 kg) - 操作方式; 回分操作 - 温度; ~350°C - フッ素濃度; 7~20 vol %
II	(1) UO <sub>2</sub> 粉末のフッ素化速度データの入手 (特に低温、低濃度条件を中心として)	UF-07 ~16	- 試料; UO <sub>2</sub> 粉末 (~1.5 kg) - 操作方式; 回分操作 (パルス流動化) - 温度; 320~400°C - フッ素濃度; 10~30 vol %
III	(1) 半連続操作に於ける UO <sub>2</sub> 粉末のフッ素化特性の把握	UF-101 ~103	- 試料; UO <sub>2</sub> 粉末 - 操作方式; 半連続操作 - 温度; ~350°C - フッ素濃度; ~20 vol %
IV	(1) 模擬 FP を混合せる系に於ける UO <sub>2</sub> 粉末のフッ素化速度データ (2) 模擬 FP のフッ素化挙動の把握 (3) 振発性 FP の部分凝縮挙動の把握 (流動層型部分凝縮器と接続)	UR-01 ~07	- 試料; UO <sub>2</sub> 粉末 - 模擬 FP - 操作方式; 半連続操作 - 温度; <400°C - フッ素濃度; <20 vol %

### 3 プロセスガス供給系の使用経験

#### 3.1 フッ素ガス供給系

##### 3.1.1 操作

フッ素ガス、とくに高圧のフッ素ガスを安全に取扱うためには、適切な設備の設計とともに操作上特別な注意が必要である。そのための取扱手引が作成され利用されて来た。<sup>9)12)</sup>

###### (1) フッ素取扱時の服装

フッ素ボンベを取扱う場合の防護服装の例を Photo 1 に示す。これらの主要仕様は下記の通りである。

防護衣 鹿皮製エプロン

手袋 鹿皮手袋または溶接用皮手袋

保護面 透明プラスチック製半面

上記の他に、臭気などから明らかに大きな洩れがある場合には、エアボンベ付き全面マスクを着用した。

###### (2) フッ素ボンベの取扱い

フッ素ボンベは、専用の貯蔵庫に一括保管し、必要量をフッ素庫へ運搬し使用する。

ボンベには、弁の保護キャップと盲キャップが装着されており、これらの取外し作業に留意を要する。保護キャップについては腐食により取外し困難なボンベが時々あり、また盲キャップの袋部に元弁より漏れたガスが蓄積しているボンベが多いためである。故に、この作業は風通しの良い場所を選び、風向に注意して行う。

マニホールドに接続する場合、ガスケット(アルミ)をトリクレン液に浸して脱脂洗浄処理したものを使用する。取付後、窒素ガスで 500 psig まで加圧し、ソープテストを行い、さらに加圧放置して気密度の確認を行う。気密度の基準は 8.2 項に示す。

ボンベの取外しは、ヘッダーを真空引きした場合を除いて残留フッ素臭が相当強く感じられるので、接続部のユニオンを緩める場合には長い柄のラチェットスパナなどの使用が勧められる。

空ボンベの処置は、ボンベ残圧が無い(大気圧程度、真空引きする必要はない)場合には、現在のところ国内のフッ素ガス取扱い業者に引取ってもらえるので、未使用ボンベとの区別を明示し、一定量貯るまで先に述べた貯蔵庫に保管される。

###### (3) ガスの通気と停止

ガスの通気における留意点は、(i)ボンベとマニホールドが接続する部分へ最初にフッ素を通気する際に注意を払うこと、(ii)急激なフッ素の流れを生じさせないことである。このためには、操作手順を遵守すると共に、ヘッダーに接続されているボンベの内圧が偏らない様にボンベの使用を考えることが重要と思われる。操作手順を Table 4 に示した。

ガスの供給を停止する場合、ボンベの元弁を閉じた後換気回数で 500~1000 程度までヘッダーをページする。しかし、この場合でもボンベを取り外す際ピッグティル部からのフッ素臭はかなり強い。ボンベ取外し作業が予定される場合には、ヘッダーを真空引きしておいた方が良い。

Table 4 フッ素ガス通気操作手順

	手 順	備 考
1	フッ素減圧弁、同出口弁、フッ素流量計出口弁が閉であることを確認する。	
2	ポンベ室N <sub>2</sub> ポンベよりヘッダーをN <sub>2</sub> で充満し300 psig (~20Kg/cm <sup>2</sup> ・G)とする。	
3	フッ素ポンベヘッダー弁を開き、ピックティル部分にもN <sub>2</sub> を充満させ再び閉とする。	
4	N <sub>2</sub> ポンベ元弁、及びそのヘッダー弁を閉とする	
5	ヘッダー内圧が維持されていることを確認後フッ素ポンベ元弁を開・閉し、ピックティル部分にフッ素を入れる。新しく取付けたポンベについて順次これを行う。	(1) 臭気により元弁、継手、ヘッダー弁からの漏れを確認する。 (2) 異常のないことを確認後、次のポンベに移る。
6	1ポンベの元弁を開く。	ゆっくり
7	次いで、ヘッダー弁をゆっくり、慎重に開きヘッダー内圧が一定になったあと閉とする。	臭気によりヘッダー部での漏洩の有無をチェック
8	約10分間放置後、フッ素減圧弁、出口弁、フッ素減圧弁を開きフッ素流量計バルブまでフッ素を入れ、20 psig で調節する。	臭気により、低圧フッ素ラインでの漏洩の有無をチェック
9	使用予定のポンベにつき元弁、ヘッダー弁の順で1本づつ開く。	
10	フッ素流量計出口弁を開き、フッ素を系内に流す。	

### 3.1.2 機 器

#### (1) フッ素ポンベ

米国Air Product社の他に、Matheson社ガスについても僅かの使用経験がある。ともにBS製アングル弁(CGA 670弁、テフロン製グランドパッキン使用)があり、この接続ユニオンは、1.030"-14LH EXT. の平型で、両ポンベに共通である。ポンベ規格はDOT<sup>6)</sup>(Domestic of Transportation)で規制されている。

腐食により、弁保護キャップの取外し困難なものが比較的多い。ポンベ肩の刻印よりポンベの製造月日に関する情報は得られるが、充填、容器検査日の情報は判らない。このため、納入後3年以内にガスを使用する様に購入計画に注意が払われるようになった。

Air Product社製ガスの標準仕様を、Appendix Aに示す。

#### (2) フッ素庫

通常の場合、フッ素庫内は換気ファンの運転・停止によらずフッ素臭が認められない。従って換気の性能は事故時の評価から決められるべきと思うが、これに関する使用経験は得られていない。ファンは、フッ素漏洩時に軸受部がフッ素にさらされ、軸受オイルが劣化し、短時間で運転不能となった。フッ素化グリースに交換したが、潤滑性が悪く良い結果が得られなかつた。3.1.2(3)項に述べるポンベロッカーの新設に伴い、負圧度の大きい遠心式ターボファンに交換した。

フッ素漏洩に備えて50kgの活性アルミナを充填したトラップがファンに接続して設けられているが、これに関する使用経験はない。漏洩時にファンが運転されていなかったり、漏洩

によりファンが自動的に運転不能に陥ったりしたためである。

(3) フッ素ヘッダー

ポンベ立ては、フッ素噴出時の作業者に対する防護が確実な構造にすべきである。初期には、ポンベ元弁部の高さ（作業者の顔の位置に相当）にアルミ製遮蔽板（約 1.5 t）を設けた簡単な構造であったが、後にポンベ立て全体を鋼製のロッカーに収納する方式に変更した。この改造では、ポンベ元弁も含む大半の高圧系バルブをロッカー外部より操作する構造が採られ、作業者の安心感が高まった。このポンベロッカーの構造をFig. 5 に示す。

ヘッダーを窒素バージする目的で独立した専用の窒素ポンベが設けられているが、この方式によりフッ素の逆流によるトラブルを最小限に抑えることが出来るので適切な設計であった。しかし庫内での事故時に外部からの操作が可能な様、このポンベは庫外に設けた方が良い。

HF トランプはフランジ部での気密不良により撤去されたため、使用経験はない。HF トランプを使用せる他の実験装置（プルトニウムフッ素化実験装置<sup>7)</sup>など）における使用経験と対比して、機器及びプロセスデータ上明らかな差異は認められなかった。

(4) フッ素ヘッダーの計装

高圧マニホールドにはトラブルを避けるために複雑な計装は一切設けられていないが、経験上下記の計装は望ましい。

1° 大きな見易い圧力計

2° フッ素稀釈ガスの流量低下で作動するフッ素供給停止のインターロック

事故時の遠隔操作緊急停止弁は、特に設けられていない。この理由は、フッ素ヘッダー部とフッ素化系がそれぞれ独立した建屋内にあり、いずれの場所にトラブルがあっても速やかに手動操作でフッ素の供給を停止することが出来ると判断されたからである。

計器コンポーネントの使用経験は、7.3 項で述べる。

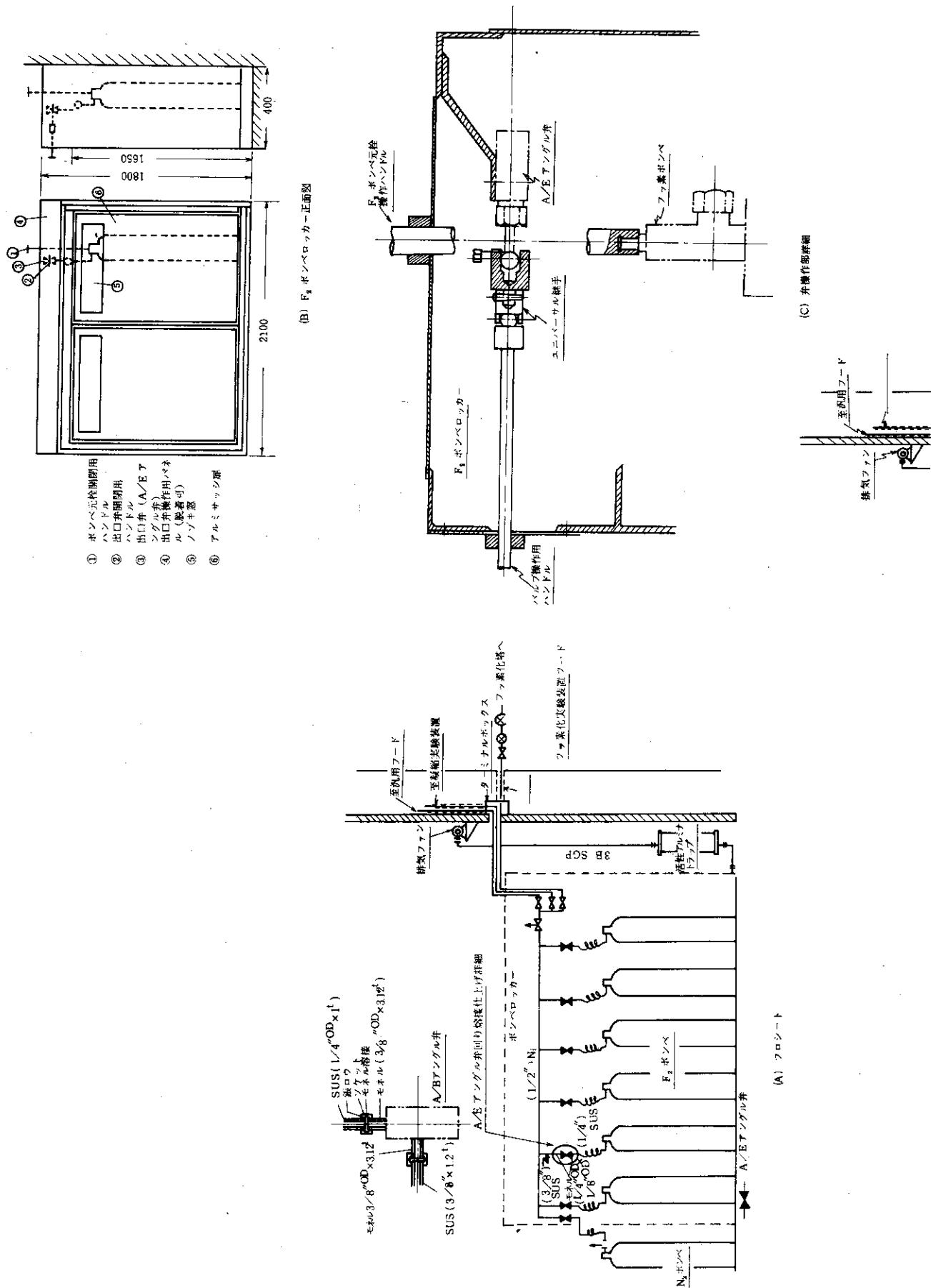


Fig. 5 フッ素ボンベロックア-

### 3.2 窒素・空気供給系

#### 3.2.1 操作

##### (1) 稀釈ガス流量の低下とフッ素の逆流

ポンベの切替え忘れによる内圧低下で稀釈ガスの流量が低下し、高濃度のフッ素が装置に流れたり、フッ素が窒素供給系に逆流するというトラブルを何回か経験した。ポンベの使用法をマニュアル化すると共に、3.2.1(4)項で述べる装置上の配慮が望ましい。

UF-04では、オフガス系配管の閉塞が起り系内圧が上昇し、逆流したフッ素により窒素供給系のゴム管が冒され、ガスが噴出した。この経験よりフッ素の逆流を考慮し下記の注意が払われるようになった。

1° 窒素供給系の配管、部品であっても、全て耐フッ素性材料を使用する。

2° 窒素減圧弁の設定圧をフッ素の値より高目に選ぶ。

##### (2) 粉体の逆流

粉体流量計のパージガスラインに粉体が逆流して、ラインを閉塞させ、流量調節弁が締切り不能となつた。

停止の誤操作と共に、フィルター・逆止弁の付け忘れによるものである。微粉体の存在する機器に直結するラインには、ノズル部にニッケルウールなどの詰め物をすると共に、上記の様な配慮が不可欠と思われる。

#### 3.2.2 機器

##### (1) 窒素ポンベ

窒素ガスは、 $6 \sim 7 \text{ Nm}^3$  充填の“一般用”規格ガスを使用した。その後ポンベ交換の負担が大きいので、稀釈ガスとして施設から供給される圧縮空気が使用されるようになった。

##### (2) 窒素ヘッダー

窒素ガスはフッ素の稀釈、フッ素化塔フィルターのプローバックおよびフッ素ヘッダーのパージに使用している。稀釈用とプローバック用は共通のヘッダーに改造し、フッ素ヘッダーのパージ系のみ独立のまゝ残した。

プローバックラインにはサージタンクが設けられていないが、プローバックのガス圧を $3.0 \sim 3.5 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$ 以上に選ぶことによってプロセスガス系に外乱を持たらすことなく、有効にフィルターの圧損を回復させることが出来る。

ポンベ架台が当初管理区域内に設けられていたので、屋外に移設した。また施設圧縮空気をプロセスガスとして使用できるよう、窒素ヘッダーの配管替えを行った。

##### (3) 脱湿器

シリカゲルを充填した当初の脱湿器は、気密不良のため撤去され、この使用経験は得られなかつた。

プロセスガスとして、圧縮空気を使用するようになってからは、改造前の $\text{NaF}$ トラップ( $80\phi \times 600^{\text{H}}$ ,  $23^{\ell}$ )にシリカゲルとモレキュラーシーブ $5\text{A}$ を充填した脱湿器を再び使用するようになった。充填剤の再生はバッチ的に抜出し、行っている。

脱湿器の必要性を判断する使用経験は得られず、また使用に伴う特別なトラブルもなかつた。



Photo 1 フッ素取扱時の防護仕度

## (4) 計 装

マニホールドには流量計、圧力計の他に特別な計装はなく、使用上問題もない。

安全弁が設けられているが実質的には一度も使用しなかった。ポンベ圧は、二つの減圧弁で  $150\text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G} / 5\text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$  (下流機器の設計圧)、 $5\text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G} / 2\text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$  と二段に調圧されているので同時に破損する可能性は小さく、また下流機器のホールドアップが十分大きいので、圧力警報の吹鳴後十分に処置できると考えられたからである。

4.2.1-(1)項で述べた経験より、下記のような計装は勧められる。

- 1° 流量低下警報（またはフッ素ガス停止インターロック）
- 2° ポンベ圧低下警報（またはポンベバンクの自動切替）

## 4 フッ素化系の使用経験

### 4.1 操作

#### 4.1.1 ケーキング

ケーキングは、フッ素化塔での最も多いトラブルの一つである。経験したケーキングをTable 5に示す。

Table 5 フッ素化塔におけるケーキング

実験	操作内容	条件			推定原因*
		$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{ウラン}$	流速	通気様式	
UF-04	$\text{UO}_2$ ペレットの酸化	0.5	18~37 cm/s	連続	c, a
	上記の酸化粉末のフッ素化	0.4	20	同上	a
UF-08	$\text{UO}_2$ 粉末の酸化	1.0	~20	同上	a
-08a	同上	1.0	~20	同上	a
-08b	同上	1.0	~20	同上	a
-08c	同上	1.0	~20	同上	a
UF-101	半連続操作による $\text{UO}_2$ 粉末のフッ素化	~1	20	パルス	b(a)

\* a : 塔下部でのチャネリング

b : 流動媒体と燃料粉末との層内分離 (Segregation)

c : 局部加熱によるシンタリング

発生原因は、見掛け上 (i) 塔下部でのチャネリング、(ii) 局部加熱によるシンタリング、(iii) 流動媒体アルミナとウラン粉末との層内分離 (Segregation) などと推定されるが、(i)の場合が大半を占めた。

典型的な発生の経過をFig.6に示す。ケーキングの発生を早期に発見できた場合、流動化ガスをパルス状に流したり、フッ素濃度を下げるなどの処置を探ることによって正規の流動化状態に回復し得た経験もあるが (UF-08, UF-102), 多くはこれも有効でなく、抜出しの困難を回避するために即座に実験を中止している。

ケーキングの発生を予防する上で、つきの二つの方法は有効である。

1° 流動媒体用のアルミナ量を増す。

2° 流動化ガスをパルス状に流す。

二酸化ウラン粉末の酸化反応において得られたケーキング限界に関する経験を、〔アルミナ/酸化ウラン〕比を尺度としてFig.7に示す。酸化反応の場合、パルス流動化法によって、上記の比を0.5まで下げ得ることが判った。<sup>5)</sup>

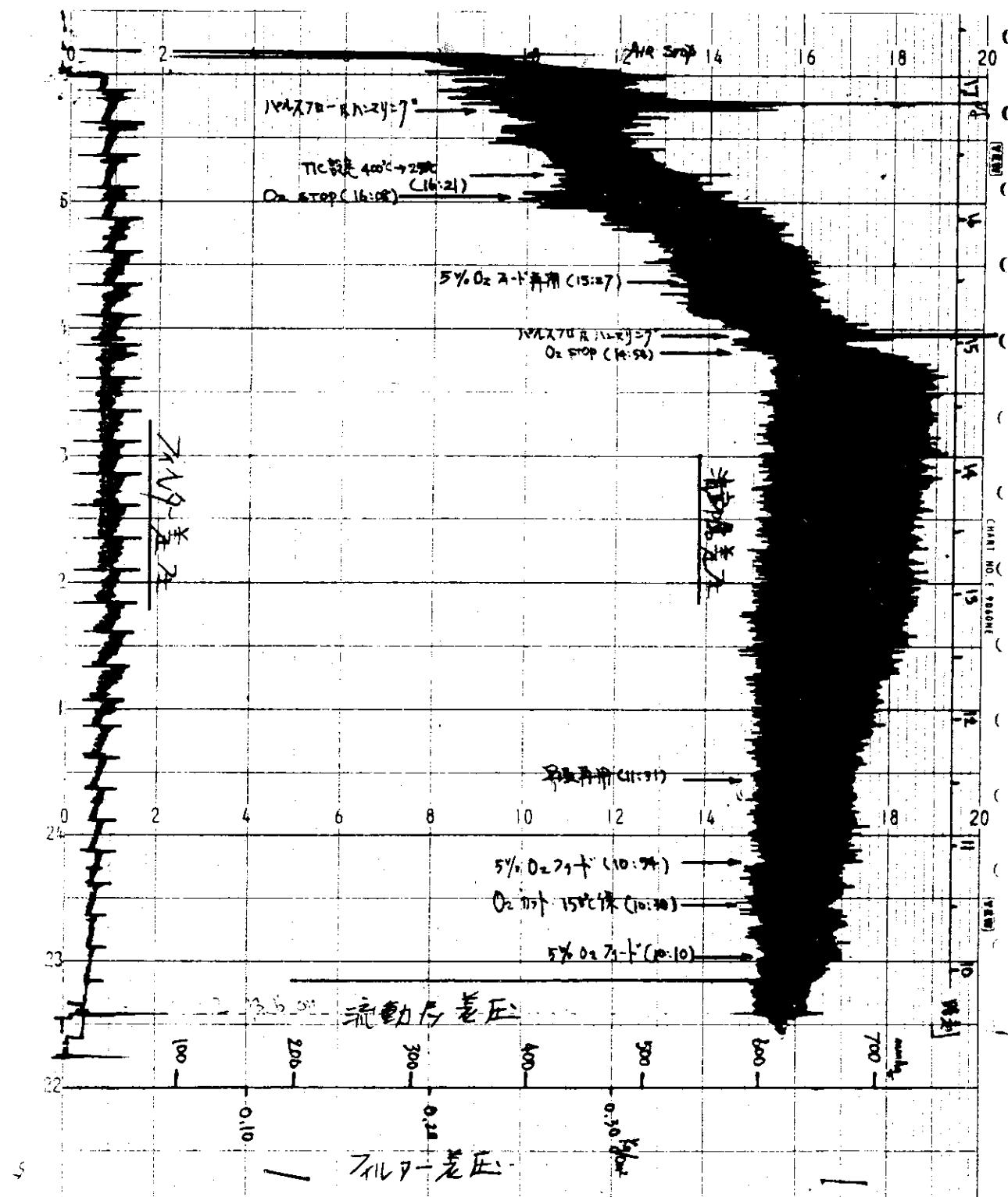


Fig. 6 酸化時におけるケーキングの例  
(UF-08b)

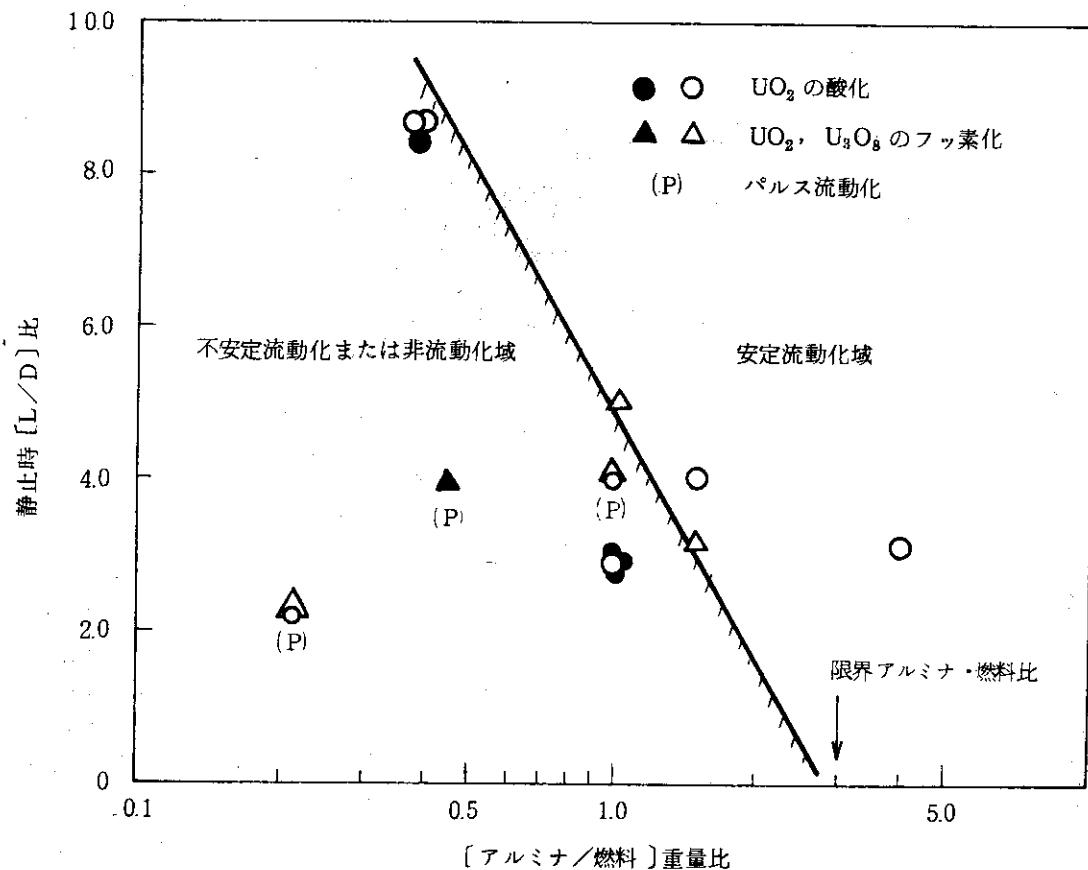


Fig. 7 安定流動化のためのアルミナ・燃料比

#### 4.1.2 放射性微粉体の取扱い

実験に供する試料の調製、塔への供給、未反応物質の抜出、縮分分析など放射性微粉体を取扱う操作に対する装置上の工夫が、安全管理及び実験の進捗の上で特に重要であると感じられた。

試料の調製、試料の縮分などの操作は、主に上下窓付き片面操作の化学フード( $3\text{ m}^3$ )内で行ったが、その後R Iを用いる実験(UR-01~07)では上記のフードにグローブポートを設けソルボンヌ型に改造して使用した。このフードでは化学処理とともに、V型混合器、縮分器、篩いなどの機器が使用されたが、その操作・保守には少なからぬ労力を要し、粉体処理用の専用フードが必要であると感じられた。

フッ素化塔への供給および抜出しは、それぞれ粉体供給孔、塔下部フランジを開放し $\alpha$ マスクを着用して行ったが、作業性と周辺汚染の危険から改善すべき点が多い。4.2.3項で述べる粉体連続供給化の改造における経験から、ボールバルブを備えた供給(または抜出し)容器などを利用したConfinement操作が可能な方式が勧められる。供給・抜出し用のノズルは、1インチ径以上の寸法が望まれる。

ケーキングを起した試料は、下部のフランジより棒で突きくずすことによって除去し得るが、閉塞部のハンマリングだけでは不十分な場合が多い。

#### 4.1.3 フッ素化塔分離部の解体

分離部フランジの解体作業は、放射性微粉末の飛散の恐れが伴いかつ労力を要する。これまでもに8回開放した経験があるが、機器保守上の要求によるものは2回で、いずれも焼結フィルター取付部からの微粉の漏れによるトラブルを処理するために行われた。

分離部に蓄積する微粉は、反応の後半において分離部温度を上げフッ素化により除去（クリーンアップ）すると共に、実験終了後木槌でハンマリングすることによって塔下部より回収される。この操作により粉末の滞留量は一定値（約50g）以下に保ち得る。故に分離部を開放する必要性はフィルター交換の場合を除いてとくに考えられず、4.2.2(3)で述べるように取付方法に問題がなければその頻度は極めて小さいであろう。UF-07実験以降、解体作業のために滑車付きのフランジ吊り上げ設備がフードの架台を利用して付加されたが、その後の使用頻度は余り多くなかった。

## 4.2 機 器

### 4.2.1 予熱器

蛇管（伝熱面積  $0.11\text{m}^2$ , Ni管）を環状炉（6 KW）内で外部加熱する初期の型式は、500~550°C（予熱器出口ガス温度基準）で約50時間使用した結果、大気側管表面で腐食割れが起ったので撤去された。温度の上げ過ぎが原因と推定される。塔入口部1mに0.5 KWのシーズヒーターを巻くことにより解決した。使用条件は予熱ガス温度350°C，熱負荷約5000kcal/ $\text{m}^2 \cdot \text{hr}$ である。

さらにその後、流動層内での伝熱速度が高いこと。整流部での予熱効果が大きいことなどの理由により予熱器の必要性はない判断され、上記ヒーターも使用されなくなった。この場合整流器部と流動層入口部との温度差は、層内温度350°C、線流速20 cm/sの時、約100°Cである。

### 4.2.2 フッ素化塔

#### (1) 整流器

使用した整流器の型式とその特性などをTable 6に示す。主に充填型を使用し、コーン型は半連続フッ素化実験の一部において使用した。

充填型整流器における構造決定は、(i)粉末の整流器内への落下、(ii)未反応粉末の抜出手法、(iii)流動化ガスによる整流器の破壊、(iv)高温時の耐フッ素性、(v)価格などを考慮し、ガラス塔による予備実験の結果をもとに行ったものである<sup>5)</sup>。充填材は抜出した後粉末を分離し、繰返し使用された。

この型式の問題点は、整流器面が水平になるよう装荷時に注意してレベリング（木槌で該当部をたたくなど）する必要があること、再使用する場合には回収・分離操作が面倒であることである。微粉末が充填層内に落下し、整流材を棒でつつかないと落下しない例を1~2回経験している。しかし粉末の落下が実験中に起つたものか、整流器材を装荷する際壁の付着粉末を同伴したものか明らかでない。整流器面が傾斜したり、粉末が整流器内に混入した場合、整流器直上で非流動化部が発生し易いことが、予備実験で認められている<sup>5)</sup>。

コーン型整流器は前述の充填型式の問題点を解決するとともに、半連続操作における粉末の供給を下部より行って気固の接触効率を増すというプロセス上の要求と、抜出し操作を改善するという観点から使用された。アルミナについて測定したチャネリングファクターの対比より、整流性能上の問題はなく3インチ径以下の流動層では十分適用可能な型式と考えられる。連続操作の場合には上に述べたプロセス上の利点がとくに大きいであろう。

#### (2) 本 体

実験に供した $\text{U}_3\text{O}_8 - \text{Al}_2\text{O}_3$ 混合試料の場合、静止層高は次の実験式で表わされ、両成分について加成性のあることが判った<sup>5)</sup>

$$L_0 = (12.6W_{\text{Al}_2\text{O}_3} + 8.85W_{\text{U}_3\text{O}_8}) / A$$

ここで、 $L_0$ は静止層高 [cm],  $W_{\text{U}_3\text{O}_8}$ ,  $W_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ はそれぞれ八酸化ウラン、媒体アルミナの装荷量 [kg] であり、Aは流動層断面積 [ $\text{cm}^2$ ] である。また室温における上記試料の膨脹比としてFig. 8の結果が得られた<sup>5)</sup>

Table 6 フッ素化塔整流器の使用経験

	充 填 型	コーン型(整流器なし)
構 造		
充填材	上部 $1.5\phi \times (2 \sim 5)^L$ Ni 線片 $150 \sim 250 m\ell (30 \sim 50^H)$ 下部 $-6 + 14$ メッシュ不活性 アルミナ粒子 $800 m\ell$ (直管部 $150^H$ )	充填剤なし コーン部角度 (a部) $60^\circ$ (垂直より) (b部) $75^\circ$ ポット容積 $18 m\ell$
特性 a)	(1) 全圧損 ( $\Delta p_d$ ) $\sim 80 \text{ mmAq}$ (2) $\Delta p_d / \Delta p_{bed}$ $\sim 0.1$ (3) $\Delta p_d / H$ $\sim 3.0 \text{ mmAq/cm}$ (4) チャネリングファクター b) $\sim 1.1$ (C.F.)	— — — $\sim 1.0$
使用経験上の問題	(1) 少量の微粉末の落下が認められる (2) 充填面が水平でないとチャネリングが促進される (3) 整流器充填材の再使用が面倒	(1) 特にない (2) 特にない (3) 特にない

a) 流動層に於ける見掛けのガス流速  $u = 20 \text{ cm/sec}$  且つ室温, 窒素ガスによる特性b) C.F. =  $\Delta p_{obs} / \Delta p_{cal}$ 。ここで  $\Delta p_{obs}$  は実測される流動層差圧,  $\Delta p_{cal}$  は充填量を流動層断面積で除した計算値。不活性アルミナ ( $\sim 80$  メッシュ) を  $3000 \text{ g}$  充填した時の特性で示す。

$\text{U}_3\text{O}_8$  5 kg (設計処理量), 媒体アルミナ 2 kg を装荷した場合, 静止時基準, 膨張時基準の  $L/D$  (層高/直径比) はそれぞれ 9, 13 となる。ガラス塔での観察よりこの値以上ではスラッギングが大きく, 限界の  $L/D$  と考えられる。これは一般の流動層に比べ相当に大きい層高比となるが, 設計処理量で行った 2 回の実験 (UF-05, 06, 回分操作,  $350^\circ\text{C}$ , 20 vol.% フッ素濃度) では特別な異常は認められなかった。

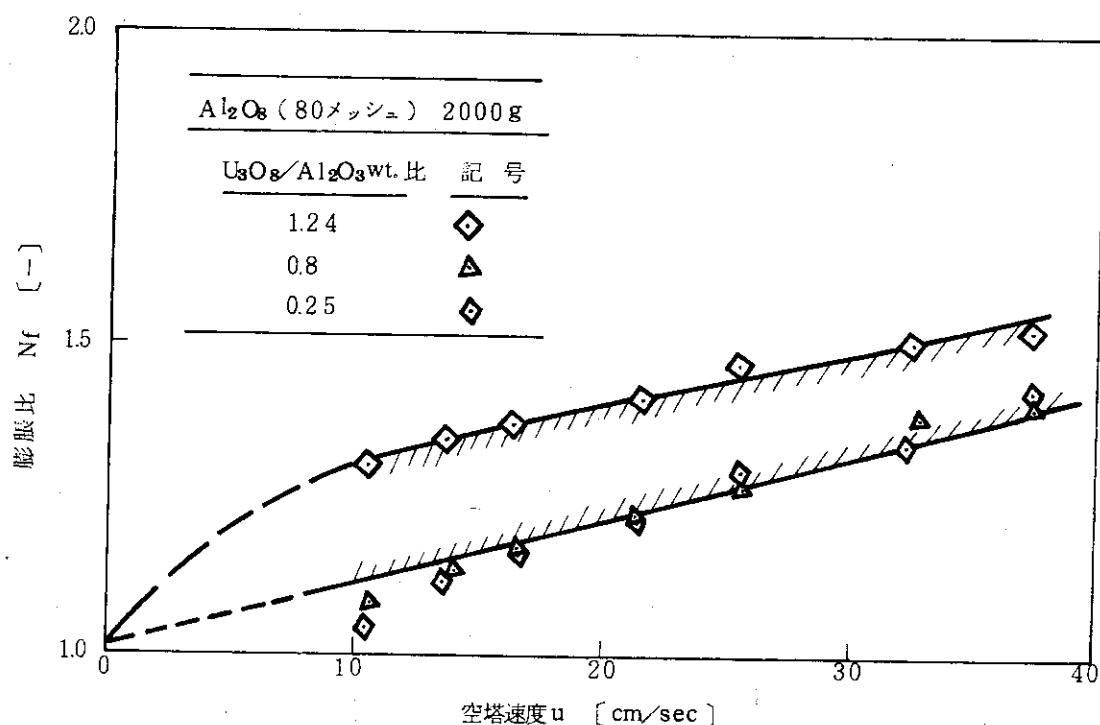


Fig. 8 透明模擬フッ素化塔における流動層膨脹比の例

Table 7 フッ素化塔分離部の使用実績

条件	実績
設定温度	Nor. 250~350°C Max. ~350°C
線速度	~2 cm/sec
分離高さ	~53 cm
T. D. H	30 <sup>a)</sup>
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> 粉末の飛出速度	K=0.092 l/hr <sup>b)</sup>
粉体輸送濃度	
フッ素化時	0.1~0.6 (g/min)/(Nℓ/min) <sup>c)</sup>
酸化時	1~2.5
粉体付着量	~0.4 kg/m <sup>2</sup> 壁面
使用経験	(1) 放熱面積が大きく加熱に時間を要す (2) 表面積が大きく粉体付着が多い (3) テーパ部に粉体の堆積なし

a) Zenz-Weilの線図より計算

b) Levaの式による係数、ただし  $u \neq 20 \text{ cm/sec}$ 

c) フィルターの付着量に基づく計算値

分離部の使用状況をTable 7に示す。粉末の分離性能に関する経験は得られなかった。粉末の付着はフィルター表面・フィルター取付部上面と共に、壁面でのスケール状のものが大半を占めるが、拡管部の肩で特に大量に堆積することはない。

フランジはSUS-27材( $22^t$ )にニッケルを内張りし、水素焼鈍脱酸銅平型ガスケットを使用するナイフエッジ型シール構造となっているが、大口径のためにこの部分での気密確保が最も困難である。さらにフランジからの放熱が特に大きいため、昇温時の律速部となっている。以上より分離部の大きさはT.D.H.以上の高さが確保されれば、フィルターの収納部としての容量を考慮しつつ、余り大きくしない方が良いと思われる。

塔には、プロセスガス入口・出口ノズル、試料供給用ノズル、粉体サンプリング用ノズル、差圧測定用ノズル、温度測定用ノズルなどがある。

試料供給用ノズルは、Fig. 9(B)のように改造されたが、4.1.2項で述べたように粉末のConfinementを考慮して(C)の型式がより好ましいであろう。

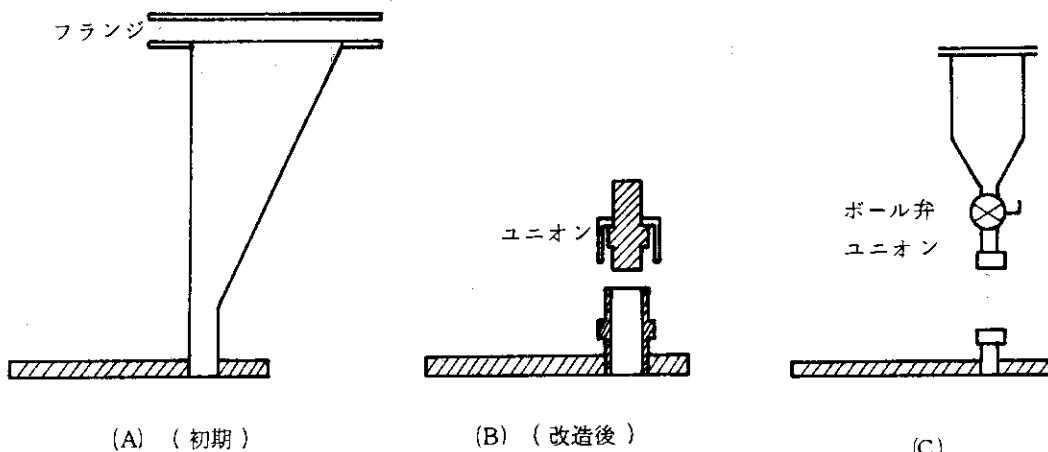


Fig. 9 粉体供給孔の改造

粉体サンプリングノズルは、テーブルフィーダーからの連続供給孔として使用した。熔接部のバリで粉体の閉塞が起り易く、内面の仕上げが特に重要である。

差圧測定配管に特にバージガスを流してはいない。しかし分離部のノズルが特に閉塞し易いので、これらのノズルおよびプロセスガス入口ノズルには、ニッケルウールなどの充填が必要である。

温度測定用ノズルの挿入長さは、反応部で $4\text{ cm}$ ,  $\ell/d$  ( $\ell$ は挿入長さ,  $d$ は保護管径) ÷ 7である。スキン温度の測定に基づく温度分布の解析から、ノズルが流動層内部にある場合は真値との偏倚は小さいと推定される。

### (3) フィルターおよびプローバック系

プローバックフィルターの使用実績をTable 8に示す。

ニッケル製焼結フィルターは、輸入品(Pall社製ほか)と共に、国内においても製作可能

である。この実験装置では、使用経験に基づく改良の余地を考慮して、日本粉末合金（株）製を採用した。

使用条件がおだやかであったため耐久性を評価するに足る使用経験は得られなかつたが、性能上特別な問題は認められなかつた。粉末のものは取付部より起り易く、取付方法が重要である。ビスによるフランジへの直付け（ガスケットなし）法では当面より粉が洩れたので、ノズルを設けねじ込み型に変更したが、テフロン・シールテープを使用したためこの部分より再び粉がもれた。フレヤレス継手などの使用により解決されようが、上部に粉がたまり易い欠点がある。

フィルターでの圧損は、飛出し微粉の蓄積により経時的に増加するので、飛出し速度との対比で評価すべきであろう。予備実験より、発生圧損とフィルターでの付着量には比例関係のあることが判つた。<sup>5)</sup>主な実験における発生圧損の結果をTable 9に示す。無負荷時のフィルター圧損は、経時的に増加しているが、負荷時の値に比べ無視できる。

プローバックの効果はフィルター差圧の変化より確認できる。圧損が回復しない場合には、プローガス圧を高めることによって解決できる。

プローバックガスの流入量は系内圧とプローガス圧で決る<sup>5)</sup>。この流入量はTable 8の条件下たかだか  $2 \text{ Nl/Blow}$  程度であり、インライン分析系へのノイズおよび塔内圧が一時的に若干 ( $0.3 \sim 0.5 \text{ Kg/cm}^2$ ) 上昇することを除いて、主プロセスに大きな外乱をもたらすことはない。

エジェクターの機能はプローバックガスを確実にフィルター部に導くことと考えられる。エジェクターノズルはFig. 10の改造を経た。(a)ではプロセスガス出口部での圧力は正圧 ( $600 \text{ mmAq}$ ) となり、(b)の改良によりブロー圧  $3.5 \text{ Kg/cm}^2 G$  に対し  $-400 \text{ mAq}$  の負圧度が得られた。発生負圧度と逆洗効果との関係について使用経験は得られていない。

#### (4) 加熱・冷却系

加熱系のトラブルでは、ヒーターの断線が最も多い。断線の原因は、取付け施工の曲げ部及び端子取出し部での絶縁不良によるバーンアウトである。これらヒーターに関する使用経験は7.3.3項で述べる。シーズヒーターによる加熱は、断線時の保守、局所加熱による機器の腐食昇温速度、温度の調節性などに問題が残されており、別の方針が勧められる。

冷却コイルの上に熔射被覆したSUS-27鋼材は、腐食により大半が鱗片状にはがれてしまつた。

ヒーター容量は、設計時の3KWでは不足で昇温に時間を要する。ヒーターの分布と熱収支の一例をFig. 11, Table 10に示した。放熱が出熱の大半を占め、特に分離部での損失が大きい。表の容量で、 $120 \sim 150^\circ\text{C}/\text{hr}$  の昇温速度が得られる。

冷却はフッ素化塔に巻き付けた冷却管に空気を流すことによって行う。上述の如く分離部での放熱が大きいので、焼結フィルターを保護する観点から反応ガスを冷却する必要はない。急激な反応の発生に対し温度の暴走を防ぐ目的で冷却を行つた。しかし応答性が悪く温度制御が困難である。温度制御については4.2.4項で述べる。冷却コイル管での圧損が大きく十分な冷却空気を流し得なかつたので、空気源をブロワーより施設圧縮空気に変更した。

Table 8 フッ素化塔フィルターおよびプローバック系の使用実績

1 仕様		
1) フィルター	寸法形状	テーパ円筒, $(39 \sim 50)\phi \times 180\ell \times 2t$
	公称孔径	$1 \sim 10 \mu$
	全フィルター面積	$260 \text{ cm}^2 \times 2\text{基}$
2) プローバック系	オリフィスノズル径	$2\phi$
	サージ容積	$1.4\ell$ ( $12\phi \text{ ID} \times 1200\ell$ の配管)
2 使用条件		
1) フィルター	温 度	$250 \sim 350^\circ\text{C}$
	ガス流量	$2.2 \text{ Ncc/cm}^2 \cdot \text{sec}$
2) プローバック系	プローバックガス圧	$3.5 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$ (max $4.0 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$ )
	パルス時間	$0.5 \text{ sec}$ ( $0.5 \sim 1 \text{ sec}$ )
	パルス頻度	$10 \sim 15 \text{ min}$
3) 1 プローバックにおける流入ガス量	$\sim 1.5 \text{ NL}/0.5 \text{ sec}$ (プロセスガス量 = 0, 且つプローバックガス圧 = $3.5 \text{ Kg/cm}^2$ の時)	
4) プロセスガス流量に対するプローバックガス流量の比	$\sim 5$	
3 微粉の付着速度と最大フィルター圧損		
1) 回分フッ素化(連続流) a)	$5 \sim 10 \text{ g/min}, \sim 0.05 \text{ Kg/cm}^2$	
2) 回分フッ素化(パルス流) b)	$\sim 10 \text{ "}, \sim 0.1 \text{ "}$	
3) 回分酸化(パルス流) b)	$30 \sim 75 \text{ "}, \sim 0.4 \text{ "}$	
4) 連続フッ素化(連続流)	$5 \sim 20 \text{ "}, \sim 0.1 \sim 0.35 \text{ "}$	

a) UF-05,-06 (設計容量での実験) の結果

b) UF-15,-16 の結果

c) UF-102,-103 の結果

Table 9 フッ素化塔フィルターの圧損

使 用 条 件	フィルター圧損		
無負荷時 ( $u = \sim 2 \text{ cm/sec}$ $80 \text{ メッシュ Al}_2\text{O}_3$ 装荷)	初 期	$0.01 \text{ Kg/cm}^2$	(0.17)
	$\sim 100 \text{ hr}$ 使用後	$\sim 0.03$	(0.5)
	$\sim 200 \text{ hr}$ "	$\sim 0.04$	(0.7)
負荷時 ( $u = \sim 2 \text{ cm/sec}$ )			
(1) フッ素化, 正常フロー時	$0.1 \sim 0.25 \text{ Kg/cm}^2$	b)	(1.7 ~ 4.2)
(2) フッ素化, パルスフロー時	$\sim 0.1 \text{ "}$	b)	(~1.7)
(3) 酸化, パルスフロー時	$\sim 0.4 \text{ "}$	b)	(6.7)

a) ()内は、流動層インペントリーを  $3 \text{ kg}$  と仮定した時の  $\Delta p_{\text{Filter}} / \Delta p_{\text{Bed}}$ b) プローバックサイクル =  $10 \text{ min}$  に於る逆洗直前の最大差圧

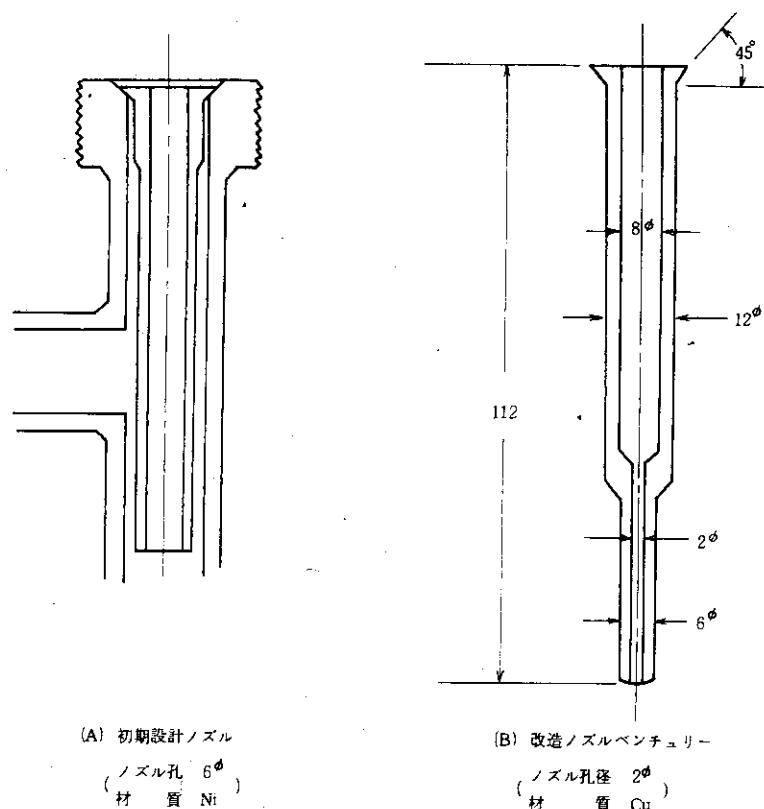


Fig. 10 プローバックノズル

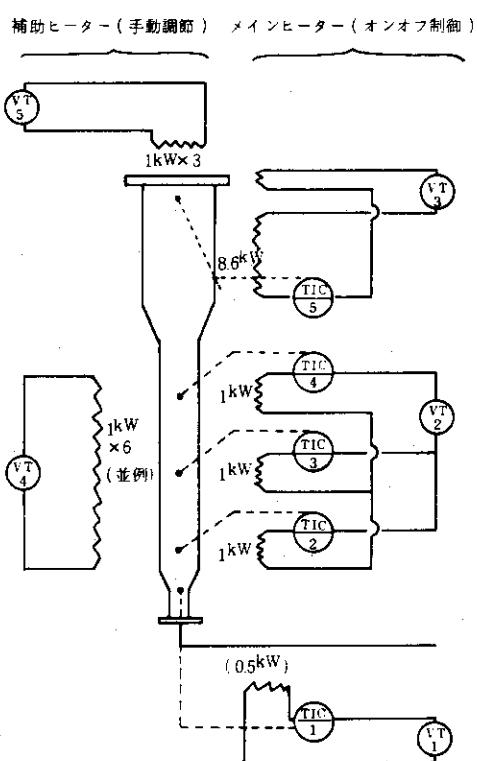


Fig. 11 フッ素化塔におけるヒーターの分布

Table 10 フッ素化塔における熱収支の例

操作条件； ラン	UF-103	(連続供給フッ素化)
温 度	(流動部)	395~405°C
	(分離部)	~200°C
流 量	25 Nℓ/min	
UF <sub>6</sub> 生成速度	~0.55 kg • UF <sub>6</sub> /hr	
入 热； 反応热	400 kcal/hr	
	ヒーターからの入熱	400 "
出 热； ガスによる顯熱変化	110 kcal/hr	
	冷却空気による除熱	~0 "
保温材表面からの放熱	690 "	

#### 4.2.3 粉体供給系

##### (1) 供給システム

連続供給のために実施したシステムをFig. 12に示す。いずれもテーブルフィーダーより定量落下する粉末を空気移送で塔内に送入する。システム(A)(B)より(C)に変更した理由は、移送ガスによるプロセスガスの稀釈を実験目的上回避する必要があったためである。このため前項4.2.2(1)項で述べた整流器の変更を必要とした。

システム(A)では、流動層上面に粉体を供給する場合に粉体の飛出しが大きく、フィルター負荷が増すので流動層内部に送入する方式(B)が採られた。

##### (2) テーブルフィーダー

アルミナ、小麦粉による初期の試験では0.2~2.5%の高い定量精度が得られた。しかしアルミナ(80メッシュ)を長時間使用した後では定量性も低下し、特性曲線も変化していた。さらに特性曲線が使用中突然変化することも経験し、特性曲線が粉体供給速度の尺度とならないことが判った。ウラン粉末における特性曲線の例をFig. 13に示す。

気密度は2 Kg/cm<sup>3</sup> G加圧下で $2 \times 10^{-1}$  atm•cc/sec(全系)で、これ以上の改善が困難であった。

##### (3) 移送ライン

移送管は、内径10φの銅管で10~20 g/minの移送量に対し、1.5~3.0 m/secの移送ガス流速を採用した。

粉体の閉塞はテーブルフィーダー出口のコーン、継手、熔接面の凹凸部および粉体流量計(内蔵の整流部)などで起り易い。上記の部分では粉体が付着して蓄積し易く、振動によりこれらが一度に落下し結局配管部で閉塞を起すものと推定される。このため、移送系内面の凹凸を除去し、またコーン部円周方向に高速ガスを噴射させると共に振動機を取付けるなどの改造を行った。これらの中、振動機が最も効果的であったと推定される。振動機には手製の自動式エアーハンマー、市販の空気式バイブレーター<sup>10)</sup>を利用した。

閉塞は移送ガスラインでの圧力上昇によって判断される。早目に閉塞に気付くよう圧力警報計を設置し有効であった。

#### 4.2.4 計 装

##### (1) 流動部の温度制御

フッ素化塔の温度制御は、ヒーターのオンオフ調節および冷却空気量の手動調節によった。この方法は層内の粉末量が少い場合には有効だが、大量になると制御が困難である。

温度制御の例をFig.14に示す。

冷却空気量を層内温度により比例制御することを試みたが、機器（制御弁）の特性が悪く良い結果が得られなかった。手動操作の経験よりフッ素流量による温度制御が最も有効と考えられるが、自動制御の経験はない。

##### (2) 塔内圧上昇に対する保安回路

初期に次の計装が検討されたが、現在は使用していない。

1° 圧力警報計（フッ素化塔入口）

2° ラプチャーディスク（フッ素化塔入口ガスのオフガス系へバイパス）

オフガス系、コールドトラップ、フッ素化塔フィルターなどでの詰りによる内圧上昇を経験した。しかしこれらの場合には圧力の上昇が緩慢だったので、処置をするまでに十分な時間的余裕があった。流動層内でのケーキングによる圧力上昇は1回だけ起った。4.1.1項で述べたように多くの場合は圧力上昇に至る前にフッ素の通気を停止できる。以上より1°の計装があれば、2°の必要性は認められない。

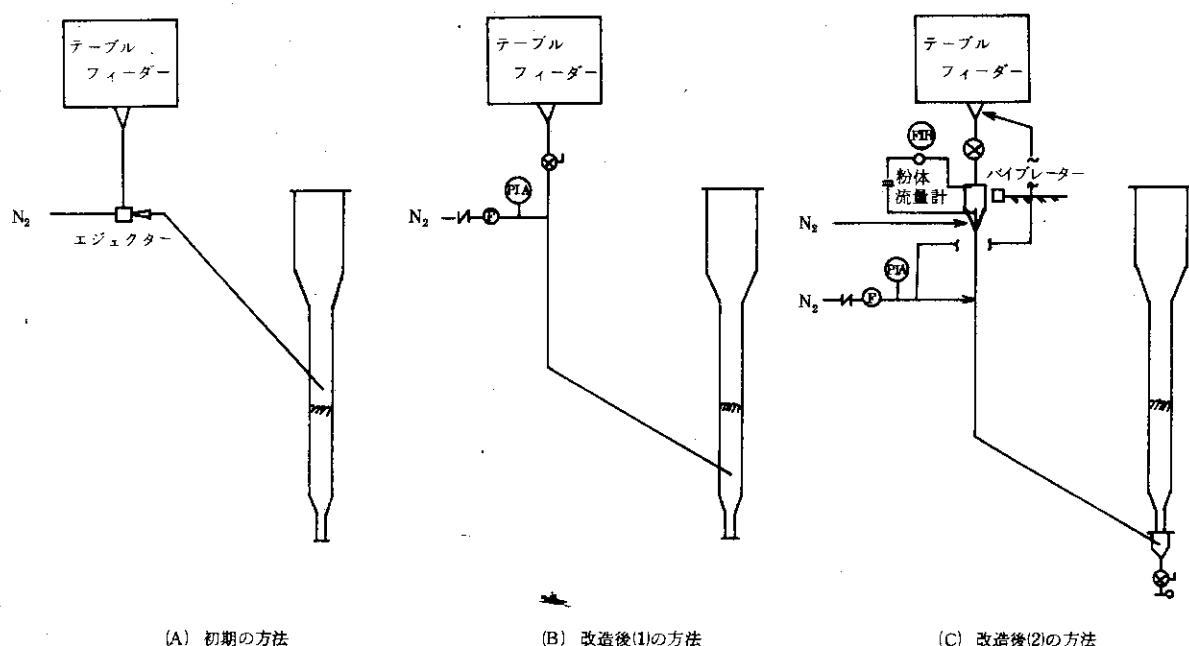


Fig. 12 フッ素化塔への粉体連続供給法

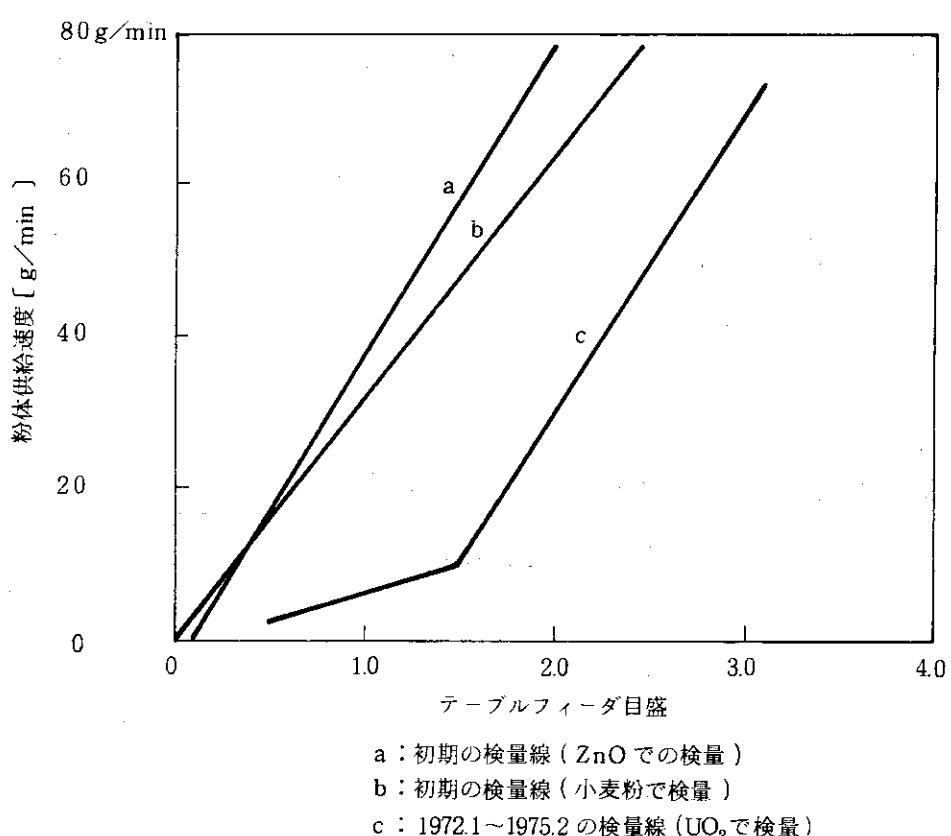
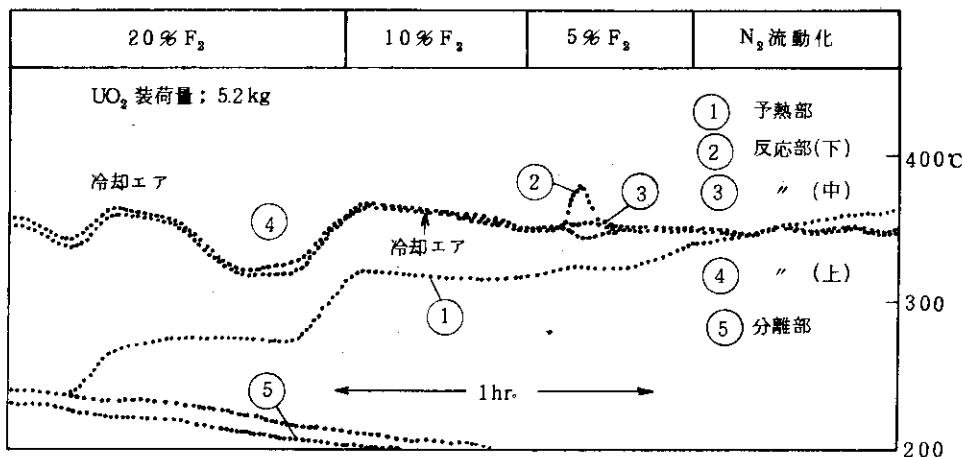


Fig. 13 テーブルフィーダーの特性曲線



(A) 回分操作によるフッ素化 (UF-06)

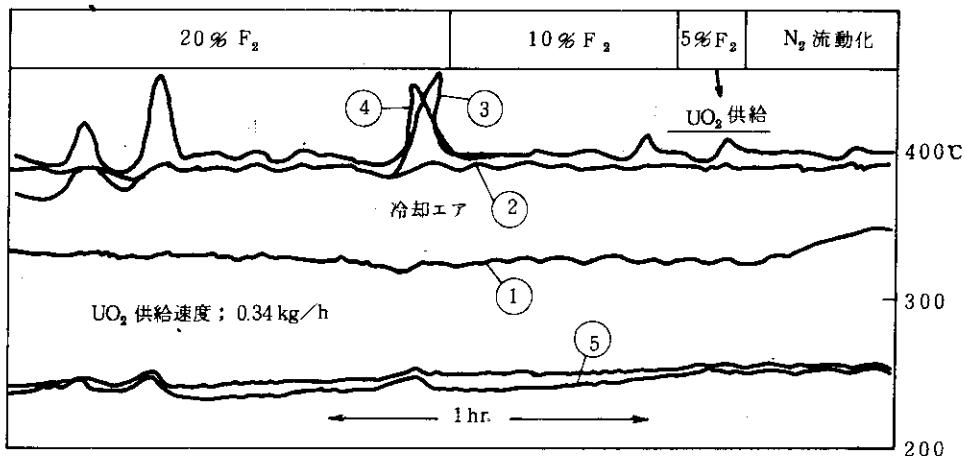
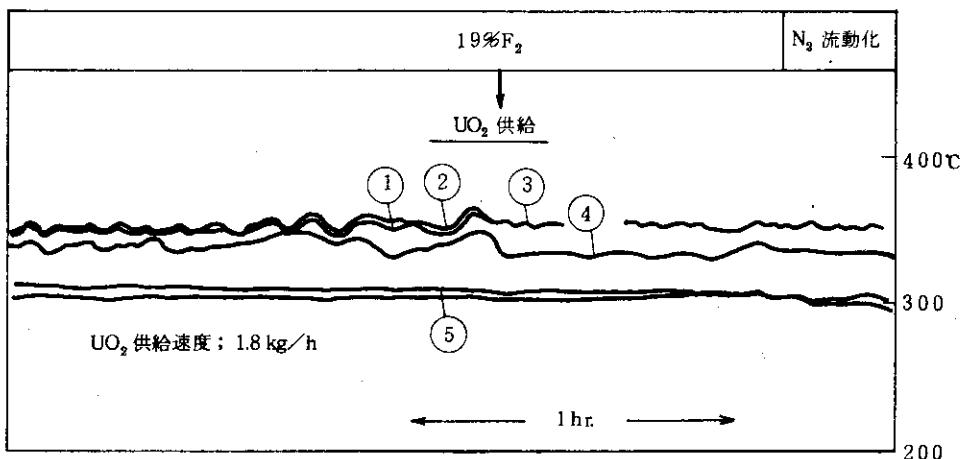
(B) 半連続操作によるフッ素化 (UO<sub>2</sub> 粉末, UF-103)(C) 半連続操作によるフッ素化 (UO<sub>2</sub>-FP粉末, UR-06)

Fig. 14 フッ素化塔の温度制御の例

## 5 六フッ化ウラン回収系の使用経験

### 5.1 操作

六フッ化ウランも安全に取扱うための特別な注意が重要である。フッ素と同様に安全取扱手引が作成され利用されてきた。<sup>11)12)</sup>

#### 5.1.1 六フッ化ウランの移送・ポンベ充填

この操作は、コールドトラップの管内に捕集された六フッ化ウランを融解・移送してポンベに充填するために行う。操作の手順をFig.15に示した。

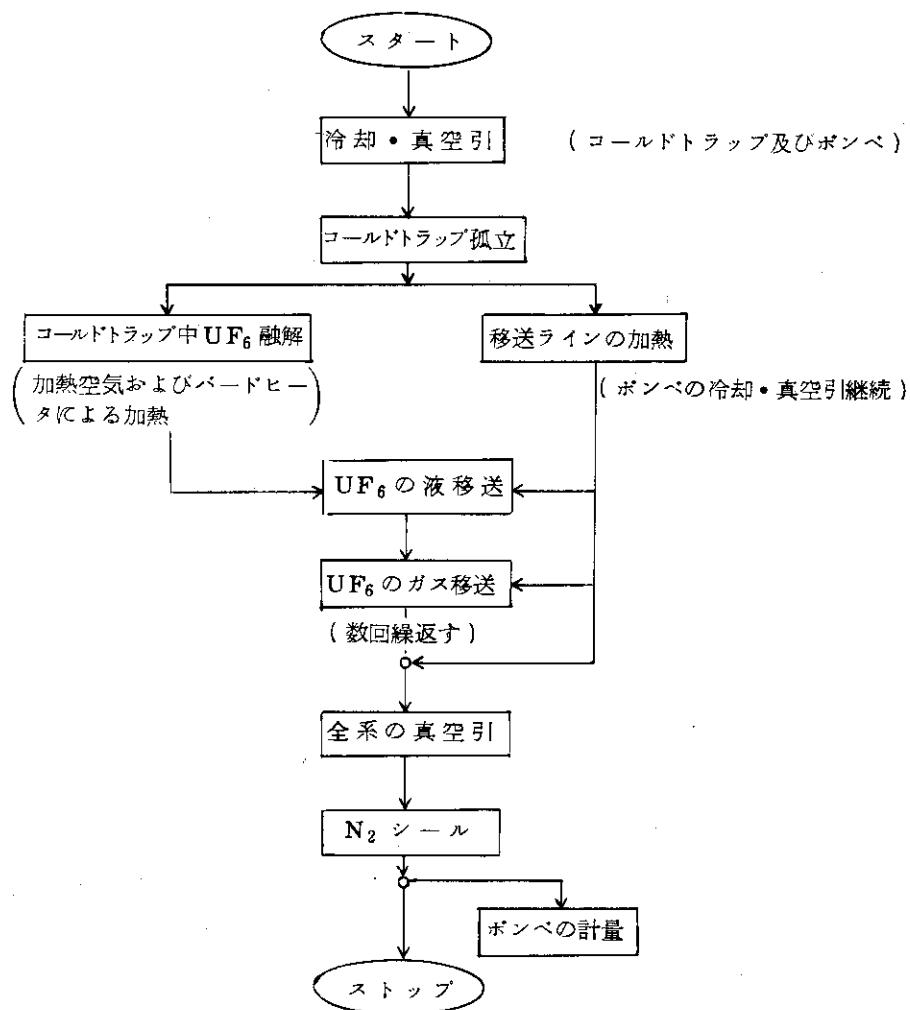


Fig.15 六フッ化ウランの移送・ポンベ充填手順

気密度の確認、フッ素化処理が必要なことは、フッ素化の場合と同様である。また過充填にならないようポンベ重量と残存容量を確認する。

全系を冷却した後排気してコールドトラップ内圧が約10mmHg以下まで下ったら、下記の操作によりコールドトラップを加熱し、六フッ化ウランを融解させる。

- 1° 寒剤のコールドトラップからの排出
- 2° 加熱空気による管外からの加熱

### 3° バンドヒーターによる胴壁からの加熱

通常この操作が最も時間を要する。コールドトラップ内の温度が不均一であり、どの温度に対してもトラップ内圧が六フッ化ウランの蒸気圧と一致しない。また温度・圧力の経時的な記録から融解開始の時期を推定することも困難である。そこで系内圧 2000mmHg または壁温の最高部が 150°C に達したことによって移送開始の判断をした。

ポンベを冷却する場合、元弁部で六フッ化ウランが凝結することを防止しました底部から充填させるため、寒剤の液レベルを調節すると共にポンベ頭部はリボンヒーターで加熱した。移送ラインの加熱においては、弁・継手でのトラブルが多いのでこの部分の加熱に特に注意を払う必要がある。温度調節は特に厳密に行ってないが、過熱に留意した。

移送は激しい流れ音で確認でき、短時間（数分）でトラップとポンベが均圧する。この差圧が 20 torr 以下になら、最初の移送が完了したものと判断して、移送弁（コールドトラップ出口弁）を閉じる。低温部に付着した UF<sub>6</sub> を回収するため再びコールドトラップの昇圧を待ち移送操作を繰返す。この操作は圧力の時間変化を記録し昇圧速度が 10 torr/10min 以下程度になるまで繰返す。

以上の操作によりコールドトラップ内の六フッ化ウラン残量が無視できる程度にまで回収し得る。

移送操作におけるトラップ内圧の変化の例を Fig. 16 に示す。

#### 5.1.2 コールドトラップの解体

コールドトラップは二回解体した。解体の理由はフッ素化塔フィルターから粉末が漏れたため（UF-01）と移送操作中コールドトラップフランジ周辺より UF<sub>6</sub> が漏れたためガスケットなど機器の破損を確認するため（UF-06）である。

##### (1) 解体

解体作業は、コールドトラップをフード外に出し、作業場内に設けたビニールハウス内で行った。

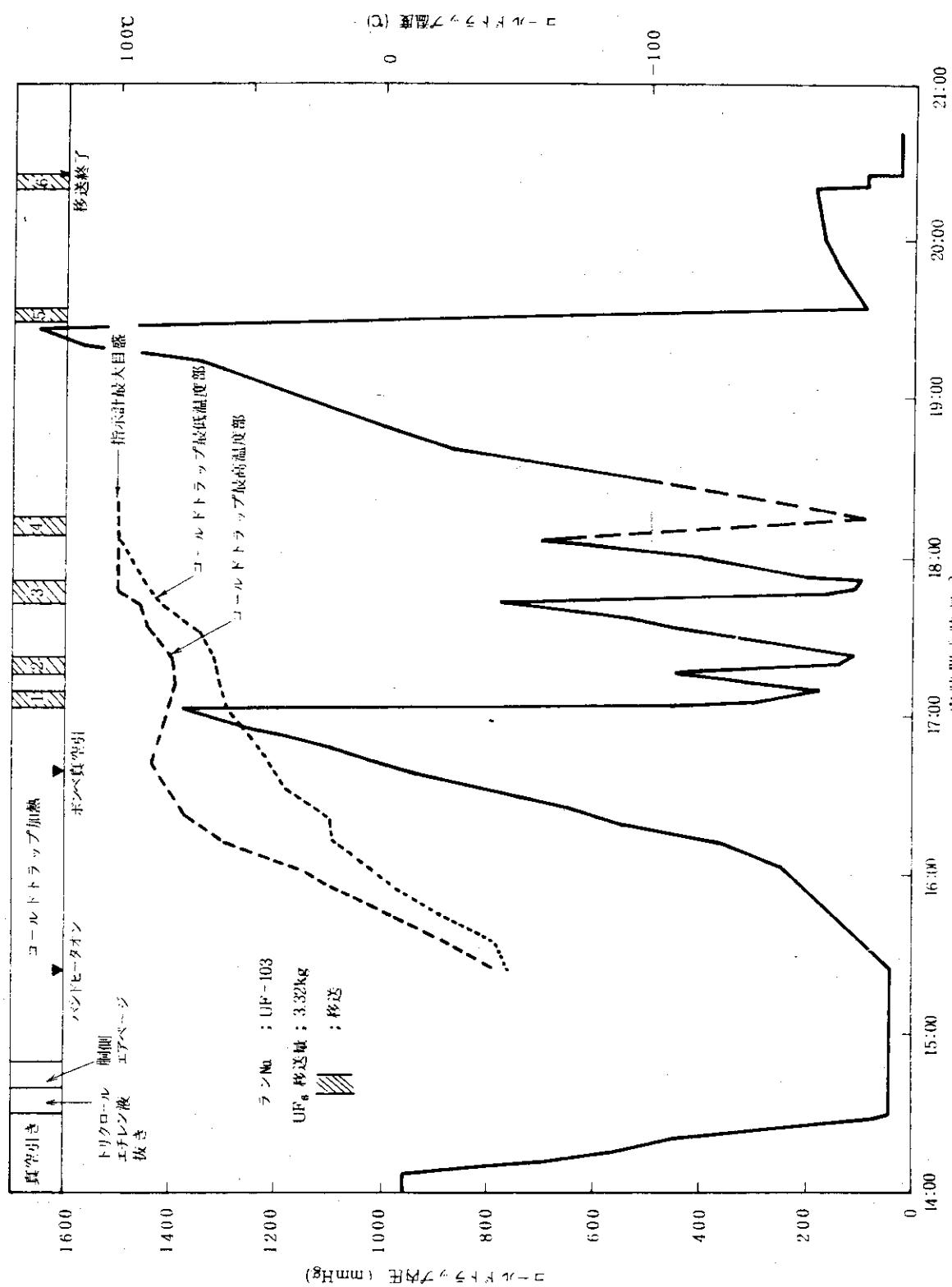
残留六フッ化ウランを不活性化するため、排気系に接続したラインより大気を導入し、さらに 10~20L の水を注入して一夜放置させた。この処理により胴部の鏡板を取り外しても六フッ化ウランの加水分解による白煙の発生は全く認められなかった。

##### (2) 内部の観察および除染

付着物の分布は鏡板のガス入口部および伝熱管内壁が主で、底部は少ない。UF-01 後の解体では、 U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> と思われる暗緑色微粉が相当量認められたが、これはプローバックフィルターを通過して来たためであろう。UF-06 における付着量は数 g 以下と推定される。またこの解体では、上部フランジの周辺（外壁）に UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> の付着が認められ、移送時に UF<sub>6</sub> ガスの漏洩があったことが確認された。

鏡板ガスケットのフッ素ゴム（バイトン）は硬化している部分が多く、下部フランジガスケットの硬化が著しい点から、バンドヒーターによる過熱が原因と推定される。

除染は水を通じながら UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> (U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>) を洗い流したあと、さらに漏れウエスおよびモップを用いてぬぐい取った。



### 5.1.3 閉塞六フッ化ウランポンベの処置

$\text{UF}_6$  ポンベの元弁部は閉塞し易い。 $\text{UO}_2\text{F}_2$  が弁部に沈着するためで、弁の気密不良または操作ミスが原因と考えられる。これらのポンベに関する経験について述べる。

#### (1) 六フッ化ウランポンベの洗浄

このポンベは容量 10 kg, 推定残量は約 400 g  $\text{UF}_6$  であった。残量が少なかったので、化学フード内で金鋸により弁継手部を切断した。洗ビンより、白煙の発生がなくなるまで水を注入した。排出液が清澄になるまで洗浄・排水を繰返し計量したところ、g 以下の範囲で容器風袋量 ( $\sim 6 \text{ kg}$ ) に一致した。

銀ロウ付けで新しい弁を接続し、以降の実験に使用した。

#### (2) 大量 $\text{UF}_6$ の充填されたポンベの元弁交換

このポンベには、約 5.8 kg の六フッ化ウランが充填されていたので、Fig. 16 の方法で閉塞弁を取り外し、新しい弁に交換した。

フード内にドライアイスを満したバス A を設け、この中にポンベの大半部を埋め十分冷却させた。閉塞した弁部に乾燥窒素をノズル B より約 100 l/min の流量で流し、雰囲気を窒素置換した。バーナーで、ロウ付け部を加熱して弁を取り外し、新しい弁と交換した。この操作で白煙の発生は殆んど認められなかった。

## 5.2 機 器

### 5.2.1 コールドトラップ

設計上、次の事項が問題点として指摘された。

- 1° 凝縮層生長による伝熱管の閉塞
- 2° 凝縮ミストの下流ライン(弁)における閉塞
- 3° 伝熱係数

Table 11 にコールドトラップの使用実績を示す。フッ素化速度が計画値に比べ小さく余裕のある条件で使用されて来ている。コールドトラップ内部での圧損は認められず、伝熱管閉塞の恐れは全くなかった。コールドトラップ出口弁に於る閉塞は二回経験した。この中 1 回は  $\text{UO}_2\text{F}_2$  による詰りであることが確認されている。一方  $\text{NaF}$  トラップの分析から、コールドトラップを破壊した六フッ化ウラン量は出口ガス温度における蒸気圧に対応した値には  $\pm$  一致することが確認された<sup>5)</sup>。これよりミスト生成量は少ないと推定される。

コールドトラップの加熱は 6.1.1 で述べた二つの方法で行ったが、それぞれ問題がある。バンドヒーターによる加熱の場合にはガスケット(フッ化ゴム)の劣化と加熱の不均一性が指摘され、加熱空気による方法では加熱速度と最高加熱温度の点で欠点があった。これらの経験より液体熱媒を循環させる加熱方法が最も好ましいと考えられる。また加熱速度を上げるための障害として、大きな機器熱容量、残留するトリクロレン液の気化および圧力計・ノズルなどからの放熱などの問題が指摘される。故に機器構造上およびノズルなど保温上の配慮も重要であろう。

Table 11 コールドトラップの使用実績

管内ガス線速度(出口)	1.0~1.2 cm/s
入口UF <sub>6</sub> 濃度	1.5~2.0 vol %
全凝縮UF <sub>6</sub> 量	5.84 kg UF <sub>6</sub>
ガス温度 入 口	測定値なし(大気温以上)
第4管	-30~-50°C
第4管と第6管との温度差	4~6 deg
出口(第10管)	第6管と同じ
冷媒の温度	-45~-55°C
	( 出口ガス温度との温度差 ) = 1.0~1.3 deg
総括伝熱係数	< 2 kcal/m <sup>2</sup> ·deg·hr
コールドトラップへの全供給量に対する 未捕集率 <sup>b)</sup>	8.0 %
平均出口UF <sub>6</sub> 濃度(計算値)	~ 0.15 vol %

a) UF-0.5における結果

b) 下流のオフガストラップにおけるウランの分析値に基づく。捕集ロスが大きいのは、コールドトラップの冷却系が不調で温度変動が大きかったためと推定される。

### 5.2.2 ボンベ及び六フッ化ウラン移送系

六フッ化ウラン用ボンベとして、試作容器(充填容量 10 kg·UF<sub>6</sub>, 耐圧 5 Kg/cm<sup>2</sup>·G, SUS-27 製)および Allied 社製輸入容器(AEC 規格相当品, ICC Spec. 4 BA 300, 充填容量 50 lb·UF<sub>6</sub>, 耐圧 300 PSIG, Bureau of Explosives Approved Steels)を使用した。いずれも材質、強度上の問題はなかった。元弁での UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub> 閉塞については既に述べた。これらの経験より上の容量のボンベにおいても弁の閉塞、ボンベの洗浄を考慮し、二弁付き容器(例えば AEC ボンベ Model 5A など<sup>8)</sup>)などの使用が勧められる。

真空排気系のトラブルとしてフッ素および六フッ化ウランの破過による油の劣化がある。分解・オイル交換により解決して来た。オフガストラップの容量を十分に採ること、排気速度を十分小さく選ぶことが重要である。

### 5.2.3 冷却系

六フッ化ウラン回収系の冷却は、寒剤槽内でドライアイス片とトリクロレン液を直接接触させ、この冷媒を循環して行う。定格送液量 0.1 m<sup>3</sup>/min (揚程 13.6 m 時) のポンプを使用した場合、コールドトラップ出口液温度が -50°C 以下になるまでに約 1.5~2 hr を要する。発生寒冷の大半が大気からの入熱に消費されているが、冷却能力上特別な問題はない。

寒剤槽については、ドライアイスを投入する際気化する炭酸ガスに同伴して大量のトリクロレン液の蒸発が起り、作業への影響が大きかったので、投入孔を Fig. 18 のような二重ブタ構造

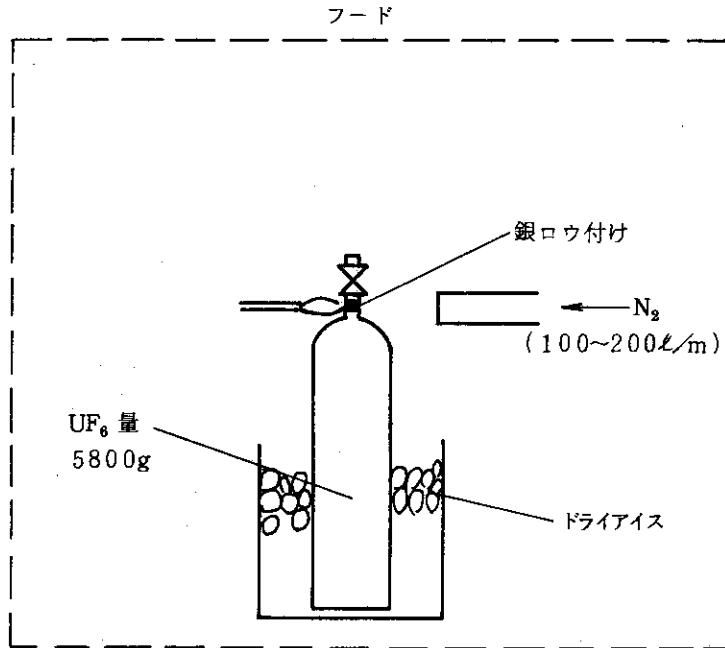


Fig. 17 六フッ化ウランボンベ元弁の交換要領

に改造した。

ポンプに関しては上述の様に直接冷却方式を探っているため、トリクレンに溶解した炭酸ガスがケーシング内で蒸発し、ポンプが冷却されるまで送液量が上らないという問題が指摘された。冷機運転のためのバイパスラインを設け徐々に冷却してカバーしているが、上記の冷却方式ではポンプ型式、N P S Hなどの選定が重要であろう。グランドからの液洩れを除いて腐食・エロージョンなどは認められなかった。

#### 5.2.4 計 装

##### (1) コールドトラップ重量測定装置

この設備は、外部からのノイズ・ゼロ点のずれなどの問題が解決されず、初期の使用経験よりその使用が断念された。

配管・架台からの振動、寒剤液の脈動、フード排気による振動などが原因と考えられ、このため寒剤循環系の改造、台秤へのショックアブソーバーの取付け、杆先端部へのオイルダンパー設置などの改善を試みたが十分な性能が得られなかった。

##### (2) 六フッ化ウラン回収系の計装

移送配管の壁温用温度計を除いて、実験設備に設けられている以上の特別な計装は不要と思われる。

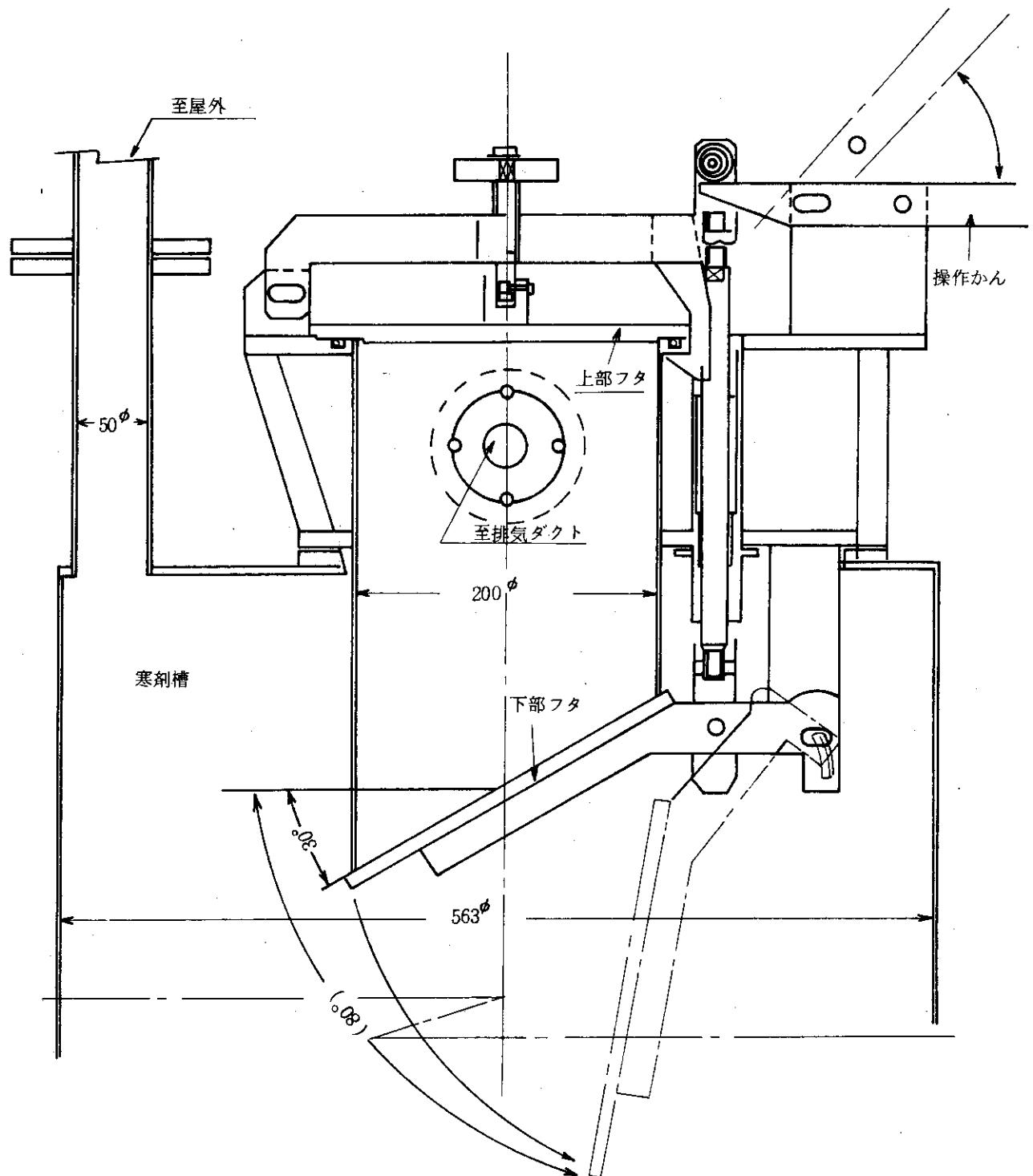


Fig. 18 寒剤槽投入口の改造

## 6 オフガス系の使用経験

### 6.1 操 作

#### 6.1.1 使用基準

使用開始前、つぎの確認を行う。

1° 気密度

2° トランプ・アルカリスクラバーの捕集容量

気密度の基準は8.2項に示すがUF<sub>6</sub>, F<sub>2</sub>の濃度が小さくプロセス上の重要度も低いので他の系統に比べ1~2桁緩い基準でよい。

フッ素の捕集容量は、ソーダライム（または活性アルミナ）トランプおよびアルカリスクラバー（またはバックアップトランプ）において、それぞれ独立に使用予定の100%量の能力が具備されていることを前提とした。六フッ化ウランについては供給予定量に対し単に100%以上の捕集能力を有するNaFがあれば良いとしたが、これはフッ素のためのオフガス系が六フッ化ウランに対しても共通だからである。捕集容量の推定は、トランプの使用履歴を考慮し下記の吸着容量を仮定して行った。

1° NaF（森田化学製） 0.2 kg UF<sub>6</sub>/kg・NaF

2° ソーダライム 0.5 kg F<sub>2</sub>/kg・ソーダライム

3° 活性アルミナ 0.5 kg F<sub>2</sub>/kg Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

4° アルカリスクラバー 0.4 mol F<sub>2</sub>/mol KOH

#### 6.1.2 充填物の交換

##### (1) NaF トランプ

フッ化ソーダ（以下NaF）の充填は、上部フランジを開放して行う。焼結板の目詰りを防ぐため、ベッドサポートとして約5 cmの高さに3~14メッシュのアルミナ粒子を詰める。NaFは、微粉を篩い分けで除去した後使用する。NaFは粉化し易く、微粉が飛散し易いのでマスクを着用して作業する必要がある。

抜き出しあは、先ず下部側壁に設けられている抜出し孔（50φ, 傾斜角度垂直より60度）より行う。抜出し孔と廃棄物容器をビニール筒で連結し、微粉の飛散がないよう注意して行う。

NaFの場合は、粒子の焼結が少く、吸着後の粒子は硬化して球状を保持しているので排出性は比較的良いが、棒でつきくずす操作が必要である。初期に使用した内径の小さなトランプ（内径80φ I.D.）では、高濃度の六フッ化ウランと接する入口部（上部）でブリッジを形成し易く、壁部を木槌でハンマリングする必要があった。

上記抜出孔からの操作では約1/4量が塔内に残るので、完全に交換する場合には下部のフランジも解体する必要がある。このような操作は汚染の危険と共に、少なからぬ労力を要するので、プラント規模の設備では交換の頻度に応じ、抜出しのための構造上の配慮が重要と考えられる。

抜き出された廃棄物は小型ドラム缶（50ℓ）に入れ、複塩（NaF・nUF<sub>6</sub> (n=1~3)）のまゝ固体廃棄物として処理場へ送られる。この容器はドラム缶に入れ、コンクリート固化の後保管される。

## (2) ソーダライムトラップまたは活性アルミナトラップ

充填の方法は基本的に  $\text{NaF}$  と同様である。微粉の篩い分けは必要ない。

抜き出しは液溜め部に  $\text{HF}$  を含む水がたまっているので先ずこれを液抜きする。

粉体の取り出しは  $\text{NaF}$  に比べ焼結が激しいので容易に落下せず、操作はより面倒である。

ハンマリングや棒で突きくずす操作が必須である。ソーダライムに比べアルミナの排出性はやや良い。

## (3) アルカリスクラバー

張液は  $2 \text{ mol KOH} - \frac{1}{3} \text{ mol KI}$  液を調製後バッチ的に行う。KOHの濃度は必要とする捕集容量に応じ変更し、また KI の使用を省略することもあった。

液抜きはドレン孔よりポリビンに受け、中和稀釀後低レベル廃液系へ排水した。初期の実験結果から液中のウラン量は十分に低いことが確認されている。

改造の目的でラシヒリングを交換した。この操作の必要性は一般には頻度が少ないと考えられる。塔を傾斜させ頂部のフランジよりリングの抜き出しを行ったが、リングにウランの付着があり、これが剥離し易いので(6.2.3項)飛散を考慮し、リングの乾きなどに注意を要する。

## 6.2 機 器

6.2.1  $\text{NaF}$  トラップ

トラップの使用実績を Table 12 に示す。

前述のごとく  $\text{NaF}$  粒子は微粉化しやすく、この粒子は整流器の焼結板で詰るか、整流器を通過して下流のバルブなどで詰って、系内圧增加の原因になる。初期の小塔径のトラップ(線流速  $10 \text{ cm/sec}$ )ではこのトラブルが最も多かった。2.1項で述べたトラップの大型化により線流速を下げると共に焼結板の上部に不活性アルミナをベッドサポートとして充填することにより、上記のトラブルは全く認められなくなった。塔径と共にベッドサポートの構造選定が重要と考えられる。

充填物の抜き出し法、抜き出し構造の重要性について 6.1.2 項で指摘した。使用経験から、側面からの抜き出しに比べ、下部から抜き出す構造が勧められる。

トラップの加熱は、側壁のみリボンヒーター(初期のトラップ)またはバンドヒーター(改造後トラップ)により行ったが、大塔径となった改造後のトラップでは昇温速度が遅く、また均一加熱性にも問題があると推定されるのでこのような方式は勧められない。この実験設備では微量の六フッ化ウランは、フッ素用のトラップでも除去されるので、吸着速度・容量などを若干犠牲にして、特に加熱せず使用してきた、抜き出し時の状況から、このような使用方法でも良く捕集されていると思う。

## 6.2.2 ソーダライムトラップ・活性アルミナトラップ

使用実績を Table 13 に示す。

ソーダライム・活性アルミナは共に、フッ素と反応時大きな発熱を伴うので、トラップ中心部の温度上昇が著しい。新しい試薬では  $\sim 450^\circ\text{C}$  (初期トラップにおけるソーダライム)  $\sim 750^\circ\text{C}$  (改造トラップにおける活性アルミナ) に達した経験がある。冷却面積の確保と中

Table 12 NaF ト ラッ プ の 使用 実 繕

ト ラッ プ		初期設計機器	改 造 機 器
NaF	仕 様	工業用 粒状(3~5Φ)	工業用 粒状(5~10Φ)
	製 造 元	森田化学	森田化学
充 填 量		2.7 (kg/基) × 2	97 (kg/基) × 2
使 用 条 件	温 度	80~100°C	< 40°C
	ガス流速	10~15 cm/s	< 1 cm/s
	UF <sub>6</sub> 濃度	< 0.5 vol %	< 3 vol %
吸着容量		~0.2 kg UF <sub>6</sub> /kg・NaF	> 0.3 kg UF <sub>6</sub> /kg・NaF
压 損		20~(2000) mmAq	僅 少

心部にある温度計保護管材料の選定が重要である。

保護管先端が銀ロウ付けされていた初期のトラップでは、この部分が焼損してフッ素の漏洩がたびたび起り、管壁を空冷または水冷する改造を行ったが有効でなかった。このため放冷面積を大きく採り(小塔径化)かつ保護管材質を変更する(Ni管、先端部のみNi溶接)という考え方のもとに、2.1項の如きトラップの再製作を行った。この改造によりフッ素洩れのトラブルは著しく少なくなったがなお先端部よりの洩れ1回、保護管ートラップ取付部にロウ付けを使用したことによる洩れ1回を経験している。

ソーダライムトラップでは反応水の蓄積があり、液溜が必要である。活性アルミナでも若干の滯水があるが、これは吸着水と推定され、長時間の使用で揮発してしまう。これらの水はHFを含むので機器の腐食を起し、またエントレインメントされた液が微粉体を溶解させて下流弁で閉塞を起す。従って高濃度のフッ素を捕集するには活性アルミナの使用が勧められる。

NaF ト ラッ プ に 比べ充填物の排出がより困難であることは既に述べた。これは、前述の焼結によるもので、焼結体が温度計などのインターナルズにひっかかり易い。この様なトラブルに対処し得る抜出構造の設計は困難であろう。工業設備では、焼結を防ぐ観点から充填塔以外の型式について検討することが勧められる。

整流板にはNaF ト ラッ プ と同様にBs 製の焼結板を使用したが、HF水による腐食が著しい。充填部の焼結が著しいためトラップ全体の圧損に比較して大きな割合とならないが、充填物の抜出時に適宜交換した。

### 6.2.3 アルカリスクラバー

スクラバーの使用実績をTable 14に示した。この機器は化学トラップのバックアップを目的として設置されており、大きな負荷で長時間使用されることとはなかった。液替の手間、後述する腐食による液もれなどの理由から、この機器は撤去され、ソーダライムを充填した化学トラップに置換された。

塔径は液循環量に比べ大きく、ローディングに対しては十分余裕がある。ガスの滞留時間も同様である。分散板はスプレー式で、円周部への落下が多く、偏流の恐れが指摘されたがその

Table 13 フッ素除去トラップの使用実績

トラップ		初期設計機器	改造機器
充填剤	試薬	ソーダライム	活性アルミナおよびソーダライム (下部に充填) a)
仕様	CO <sub>2</sub> 吸收用 粒状(～3φ)		工業用 b) 球(～5φ)または円筒状(～2φ×5ℓ)
充填密度	0.9		1.1 b)
製造元	和光純薬		住友化学 b)
充填量	1.4 kg		活性アルミナ 8 (kg/基) × 4 ソーダライム 8 (kg/基) × 4
使用条件	温度(初期)	室温	室温
	反応開始後の最高温度 c)	>450°C	>750°C
	ガス流速	2～4 cm/s	2～6 cm/s
	入口F <sub>2</sub> 濃度	max. 20 vol %	max. ~30 vol %
	平均F <sub>2</sub> 負荷	0.1～0.15 kg•F <sub>2</sub> /dm <sup>2</sup> hr	0.15～0.2 kg•F <sub>2</sub> /dm <sup>2</sup> hr
	平均反応容量	>0.4 kg F <sub>2</sub> /kg・ソーダライム	>0.7 kg F <sub>2</sub> /kg・Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
	出口F <sub>2</sub> 濃度	10～30 ppm	測定値なし

a) ソーダライムの仕様は、初期設計機器におけるものと同じ。

b) 活性アルミナについて示す。

c) 新しい試薬における一例である。

まゝ使用して来た。塔下部の液溜めはサージタンクを兼ねており、循環量に比べ小さいが使用上特別な問題はなかった。分離部のデミスターを補助する目的で電熱ヒーターが内蔵されているが使用しなかった。開放時の観察から、大量のミスト同伴はないと推定される。

循環ポンプに関しては、ラシヒリングの破片がケーシングにかみ込むトラブルを経験した。

リングの抜出しについて 6.1.2 項で述べた。この観察結果より、リングの破損は少ない。またリングに黄色状ウランが付着していたが、アルカリスクラバーの性能に影響を及ぼす程ではないと推定された。塔壁部へのウランの付着は極めて少なかった。

アルカリスクラバーに関する最も大きなトラブルは、溶接部(または銀ロウ部)からの液もれである。これらについては別項 7.1 で述べる。

Table 14 アルカリスクラバーの使用実績

溶液	2 mol KOH - 1/2 mol KI
溶液循環量	4.0～5.0 ℥/min
溶液装荷量	～30 ℥
ガス流量	2.5～3.5 Nℓ/min
入口F <sub>2</sub> 濃度	1.0～3.0 ppm
ガスの滞留時間	7.0～8.0 sec
充填部における液ホールドアップ	0.06 m <sup>3</sup> /m <sup>3</sup>
缶液時空隙率(ε <sub>w</sub> )	～0.4
出口フッ素濃度	< 3 ppm
圧損	< 2 mmAq

## 7 材料・配管部品および電気計装部品の使用経験

### 7.1 材 料

#### 7.1.1 材料選定の目やす

耐フッ素材料の使用に関し、これまで参考にしてきた選定基準をTable 15（構造材料、配管材料）およびTable 16（バルブ）に示す。

#### 7.1.2 使用経験

機器および配管材料の使用の状況とこれに関する使用経験をそれぞれTable 17, 18に示す。

表より7.1.1に示した選定基準で問題はなく、主要な結論は下記の通りである。

- 1° 高圧フッ素を扱う系では、有機材料の使用は極力避けるべきであろう。銀ロウ・鉄・プラスなども使用を避けるように心がけてきた。しかしフッ素ボンベにはプラス製（テフロンガスケット）のバルブが使用されている。
- 2° 低圧（～2 Kg/cm<sup>2</sup> G以下）、低温（～100°C以下）では、高濃度（～100%）のフッ素・六フッ化ウランに接する場合でも、鉄・プラス・銅・フッ素樹脂・フッ素ゴムなど広範囲の材料が使用可能である。
- 3° 200°C以上の高温では、ニッケル・モネルなどの使用が必要と考えられる。100～200°Cではcase by caseで判断せざるを得ないが、多くの場合、安全側に選定してきた。しかし有機材料の使用は避けるべきであろう。

使用経験より7.1.1項の選定基準に次の様な考慮を払うのが望ましいと考えられる。

- 4° HFの生成する系では、銅・プラス、銀ロウなどの腐食が著しく、これらの使用は避けるべきである。とくにアルカリスクラバーにおいては、F<sub>2</sub>/KOH比が十分小さな値で操作されているにも拘わらず、腐食が著しかった。下部のフランジ、曲げ加工した胴接続部など、銀ロウ付箇所の腐食が最も激しく、前述の如く使用を中止した。
- 5° ラインを加熱する場合には、加熱方法によっては局所的なオーバーヒートにより腐食が進むのでこのような場所では、安全側に選定すべきであろう。
- 6° 使用する継手の型式（特に8.2(2)項で述べるフレヤレス継手）によっては、銅・プラスなどの場合長期の使用により気密度が下る傾向があるので、高い気密度を必要とする場合には、材料腐食上問題はなくともSUSやニッケル管の使用が望まれる。
- 7° 有機材料は、脱脂洗浄の程度あるいは流速など不確定な要素によりその耐食性が著しく異なることがある。また腐食が進むと反応熱により焼損に至るので、漏洩が急激に生じることがありその使用には注意を要する。

Table 15 フッ素取扱用材料選定指針 1.  
(タック、配管、接手、計測器接ガス部など機械的摩擦の少ない場所)

(記号)	○	使用適
a) 高温の場合は低炭素のものを使用すること	△	他に適材がなければ使用可
b) 水分、HFが共存した場合は腐食著しく進む	×	使用不可
c) 完全乾燥でHFを含まぬ場合に限る		
d) ( ) マスケットとして使用する場合に限る		

Table 16 フッ素取扱用材料選定指針 2

(バルブ)

	圧 力	< 0.3 Kg/cm <sup>2</sup> G						0.3~30 Kg/cm <sup>2</sup> G						
		F <sub>2</sub> 濃 度			0~30 %			30~100 %			0~30 %			
		温 度 °C	<100 250	100 ~ 250	250 ~ 350	<100	100 ~ 250	250 ~ 350	<100	100 ~ 250	250 ~ 350	<100	100 ~ 250	250 ~ 350
本体	モネル	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	18-8系ステンレス鋼	○	△	×	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×
	青銅 <sup>a)</sup>	○	○	△	○	△	△	○	△	×	○	△	×	×
	黄銅	○	△	×	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×
プラスチック、ポリマー、ゴム、シリコン	ジュラニッケル	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	モネル	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	18-8系ステンレス鋼	○	△	×	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×
	テフロン；Ke 1-F	○	×	×	○	×	×	△	×	×	×	×	×	×
ベーダー、アイアーフラム	モネル	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	インコネル <sup>a)</sup>	○	○	×	○	△	×	○	△	×	○	×	×	×
	18-8系ステンレス鋼 <sup>a)</sup>	○	△	×	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×
	青銅 <sup>a)</sup>	○	○	△	○	△	△	○	△	×	○	△	×	×
ガスケットシート	18-8系ステンレス鋼 <sup>a)</sup>	○	○	×	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×
	銅	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	△
	黄銅 <sup>a)</sup>	○	△	×	○	△	×	○	△	×	○	△	×	×
	アルミニウム	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	△
	テフロン；Ke 1-F	○	×	×	○	×	×	○	×	×	×	×	×	×
テフロンパッキング		○	×	×	○	×	×	○	×	×	×	×	×	×

〔記号〕 ○ 使用適

a) 使用経験なし

△ 他に適材がなければ使用可

× 使用不可

Table 17 耐フッ素機器における材料の使用経験

機 器	使 用 条 件	本 体	溶 接	使 用 材 料	経 験
プロセスガス サージタンク	室温, $2\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 30% $\text{F}_2$	カーボン スチール	Tig溶接	—	バイトン 問題なし
反応部	40°C, $2\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 30% $\text{F}_2$	ニッケル	—	a) Niショット 電融アルミニナ b) SUS-27	水素焼鈍鉄 同上(ノズル, SUS溶射部, 冷却コイルの 腐食(酸化)が著しい。内側は問題ない)
フッ素化塔 分離部	300°C, $2\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 30% $\text{F}_2$	ニッケル (フランジは, Niを内張し たSUS)	Ni Tig溶接	粉末焼結 Ni (フィルター)	同 上 同 上
コールドトラップ	150°C~(-60°C) $2\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 100% $\text{UF}_6$	(管側) Ni (胴) SUS-27	Tig溶接	—	バイトン a) $\text{UF}_6$ 移送時, 上部フランジより漏洩あり b) ガスケットの硬化が著しい
NaF トラップ	初期品 改造品	100°C, $0.5\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 30% $\text{F}_2$	Niメッキ 黄銅	銀口ウ付け ガス溶接	粉末焼結黄銅 テフロン a) Niメッキは, 使用後もなはがれ生地が 出て来る b) 整流板の腐食著しい( HF )
ソ イ ダ ト ラ ブ ム ア ル カ リ ス タ ラ バ ー	~450°C(中心部) $0.5\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ max 30% $\text{F}_2$	Niメッキ 黄銅	ガス溶接及び 銀口ウ付け	粉末焼結黄銅 テフロン 2Sアルミ	問題なし a) 温度計保護管先端部の腐食が著しい。 b) 整流板の腐食著しい( HF )
六フッ化 ウラン容 器	室温, 大気圧 KOH溶液	~90°C, $2.5\text{Kg}/\text{cm}^2\text{G}$ 100% $\text{UF}_6$	温度計保護管 (ノズル先端は Ni)	温度計保護 (管ノズル先 端はNi溶接) ガス溶接及び 銀口ウ付け	テフロン 2Sアルミ a) 温度計保護管先端部及び本体取付部(ロウ付 け)よりガス漏洩あり b) 整流板の腐食著しい
試作品 購入品	—	—	PVC多孔板磁製 リング	ネオプレン	a) 溶接部における腐食著しい b) 弁交換のため銀ロウ付け c) 問題なし

Table 18 配管材料の使用経験

プロセス		使用条件(max)	使用材料			使用経験
			管継手	ガスケット	弁	
フッ素供給系	マニホールド (高圧側)	室温, 100% F <sub>2</sub> 30Kg/cm <sup>2</sup> G	ニッケル, モネル 銀ロウ*	アルミ, 鉛	モネル	一弁材料に伴うトラブル あり(詳細は8.2項) ＊溶接部の気密補修のために使用
	供給系 (低圧側)	室温, 100% F <sub>2</sub> 2Kg/cm <sup>2</sup> G	SUS, 銅 銀ロウ付け	同上	SUS, プラス	一問題なし
フッ素化塔		100°C以下, 30% F <sub>2</sub> 2Kg/cm <sup>2</sup> G	(a)ニッケル (b)銅, SUS	(a)焼鈍銅, アルミ (b)テフロン, シール テープ	(a)モネル (b)プラス	一塔に直結するノズルは (a), 差圧測定系, 粉体 供給系は(b) 一問題なし
UF <sub>6</sub> 回収系	コールド トラップ	150°C, 100% UF <sub>6</sub> 2.5Kg/cm <sup>2</sup> G	ニッケル	焼鈍銅	モネル	一問題なし
	移送ライン, シリンダー	<150°C, 100% UF <sub>6</sub> <2Kg/cm <sup>2</sup> G	ニッケル 銅	同上	モネル プラス	一弁材料に伴うトラブル あり(詳細は7.2項)
オフガス系		室温, 30% F <sub>2</sub> 0.5Kg/cm <sup>2</sup> G	銅, 銀ロウ付 け	焼鈍銅, アルミ	プラス (モネル)	ソーダライム(アルミ ナ)トラップ出口ライ ンの腐食が著しい(洩 れはなし)

## 7.2 配管部品

### 7.2.1 バルブ

選定上注意を要する仕様とその考え方をTable 19に、またその使用経験をTable 20に示す。

#### (1) ストップ弁

ステムシールの方法により分類するとこの装置では下記の三種を使用した。

- |                         |   |        |
|-------------------------|---|--------|
| 1° ベローズシール弁             | } | パックレス弁 |
| 2° ダイヤフラムシール弁           |   |        |
| 3° パックド弁 (大半がテフロンパッキング) |   |        |

ベローズシール弁は高価だが、ステムシールが確実なこと、リフトが大きく採れるので異物のかみ込みに対し安定など最もトラブルの少いバルブの一つである。主なトラブルは、ベローズ部のクラックである。

ダイヤフラム弁も比較的トラブルが少い。ダイヤフラム取付銀ロウ部の腐食、弁座での粉末・ $\text{UO}_2$ ,  $\text{F}_2$  の閉塞などのトラブルを経験した。これらのバルブは、Hoke 社と共に大野ベローズ工業(株)の製品も使用したが、初期を除いて現在では特に品質上の遜色はなく、十分使用に耐える。

パックド弁は、フッ素マニホールド(高压部)で使用せるAuto Clave Engr (A/E)社のバルブおよびフッ素ポンベの元弁を除いていずれも穏やかな条件下でのみ使われている。この型式のバルブの欠点は、長期の使用によりグランドがゆるみ気密度が低下することである。この漏れは増締めにより止るが、安全上高濃度のフッ素を扱う系で使用することは好ましくないであろう。厳しい条件下で使用せる唯一の例外は、A/E社のアングル弁である。このバルブはステムの上下が非回転動作により行われ、極めて気密性の高いバルブと考えられるが、フッ素ポンベの切替え時誤操作により高流速で空ポンベへフッ素の逆流が起ったとき、このバルブのテフロンガスケットが焼損した。この詳細は 9.2 項で述べる。

#### (2) 遠隔操作弁

フッ素と接するラインでは下記を使用した。

- 1° 空気操作弁；プローバックガス制御用、パルス流動化ガス発生用
- 2° 電磁弁；パルス流動化ガス発生用

1°には、大野ベローズ工業社製ベローズ弁(アクチュエータにもベローズ使用)とHoke社製ベローズ弁(アクチュエータはネオプレン製ダイヤフラム)を使用したが、前者は初期にモネル製ベローズ山部でクラックが発生し二回交換した。その後SUS製ベローズに交換後トラブルは認められなくなった。後者はアクチュエータダイヤフラムが短時間の使用で破損し、使用を中止した。

2°は、国産のパイロット式電磁弁を使用した。今まで特別なトラブルは経験していない。

#### (3) 減圧弁

フッ素用減圧弁としてマチソン社製B15F-679Kを使用してきた。

このバルブは、外部リークのトラブルはないが一次圧の変動に対し二次圧の調圧特性の遅れが大きい。弁座部にKe1-Fが使用されているが、異物の咬み込みによるためか経日的に内部

リークが増加する。

#### (4) 逆止弁・安全弁

フッ素の逆流を考慮し、プロセス窒素（空気）ラインに逆止弁（大野ベローズ工業製、ケレップメタルーバイドン弁座）を使用した。フッ素化塔フィルターの詰りによるトラブル（3.2.1項参照）から、僅かな差圧（ $\sim 0.5 \text{ Kg/cm}^2$  以下）でも、リークの起ることが判った。

安全弁はプロセス窒素マニホールドに設けられているが、 $5 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$  の使用条件下でリークが無視できなかったので以後使用を中止した。

#### 7.2.2 継手

この実験装置ではユニオン、フレヤレス継手、溶接または銀ロウなどの継手が使用された。実験装置における継手の選定は、保守・改造の因子を考慮することが重要であろう。初期には必要とされる気密度、継手の信頼性に関する知識が不足していたため溶接が主に使用されたが、これらの経験が蓄積するにつれ後述するフレヤレス継手とくにHoke社製Gyrolok（商品名）継手が多用されるようになった。継手の使用経験をTable 21に示す。

ユニオン型式では、ナイフェッジ型、テーパ型、平型など各種のものが使用されて来た。平型を除いて  $10^{-3} \text{ atm} \cdot \text{cc/sec}$  以上の高い気密度が容易に得られる。ナイフェッジ型がとくに気密性の点で秀れているが、粉体の咬み込みにより損傷され易い。平型は有機材料のOリングまたは鉛ガスケットと共に使用しているが、使用箇所は少ない。ユニオン継手の欠点は、配管変更や交換時に溶接を要する点である。

ねじは計器との接続部で使用されることが最も多い。シールテープを使用することにより  $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ atm} \cdot \text{cc/sec}$  以上の高い気密度が得られる。フッ素化塔分離部においてブローバックフィルターの取付にも使用してきた。

フレヤレス継手では、パーツが豊富で互換性が高いこと、これを用いたバルブの利用が可能なことの理由から、輸入品であるGyrolok（Hoke Co., Inc., USA）またはSwagelok（Crawford Fitting Co., USA）を数多く使用してきた。両者の性能上の差は余りないものと推定されるが、外観上似ているので混同使用を避けるためにGyrolokを主に使用している。いずれの場合にも管について外径基準の真寸法が問題となるので、配管寸法系を統一すること、引抜管の購入にあたり寸法公差、硬度、外面無傷などの仕様を規定する必要がある。Gyrolokでは、初期には  $10^{-6} \sim 10^{-9} \text{ atm} \cdot \text{cc/sec}$  の高い気密度が得られるがゆるみにより経日に低下する欠点がある。この傾向は銅管を使用した場合に最も顕著で、SUS、ニッケル管では問題が少ない。このため、高い気密度を要する部分では、耐フッ素性だけでなく上記の点も考慮して管材料を選定する必要があることは既に述べた。

以上の継手が利用できない場合には、ニッケルの現場溶接は簡単でないので銀ロウ付けを用いてきた。気密度の高い利点はあるが、現場作業の困難な箇所があること、使用条件に制約があることなどの問題がある。（7.1項参照）ニッケル溶接は一般の化学装置について経験を有する地元の業者に発注している。フッ素マニホールド、フッ素化塔周辺、六フッ化ウラン回収系などで現場溶接の経験があり、これらの検査は外観検査、加圧法による漏洩検査（82項参照）のみである。X線検査は、shop作業の場合でも特別な場合を除き実施していない。溶接、ロウ付

けともに、原則として工事終了後管内の洗浄を行う必要がある（8.1項参照）。

Table 19 弁の仕様と選定上の指針

仕 様	種 類	選 定 上 の 指 針
接ガス部材質	モネル, プラス, テフロン, アルミ etc	- 7.1項による。ただしボディ, ステム弁座, ガスケットなどの接ガス部全材質を考慮すること
ステムシール	パックレスシール (ベローズシール, ダイヤフラムシール)	- 高フッ素濃度で確実な気密度を要求する場合にはパックレス弁が良い（高価） -しかし, 上記の Body to stem seal の方法にも注意を要す（溶接型, ガスケット型） -ベローズシールは, リフト大（異物のかみ込みの恐れ小）
	グランドパッキングシール（テフロン）	- グランドのゆるみ（気密度の低下による漏れ）
弁 座	メタルタッチ	- 耐フッ素性大, 異物のかみ込みによる損傷
	Ke 1-F など有機材料使用	- 内部リーク小（異物のかみ込み）, 高圧, 高濃度フッ素の条件では使用不可
孔 径	Cv 値による	- 異物のかみ込みの恐れ大の所では大孔径使用
接 続	フレヤレス継手 溶接（銀ロウ）	- フレヤレスは互換性大 - 溶接は特に気密の確保が困難な時, フレヤレス継手が利用できない時のみ

Table 20 刃の使用経験

工 程	使 用 条 件 (max)	型 式	材 料			メー カー	使 用 経 験
			本 体	ス テ ム シ ャ ー ル	ブ ラ グ		
フ ツ 素 供 給 系	室温, 30Kg/cm <sup>2</sup> G 100% F <sub>2</sub>	ペローズ弁 バクトラト弁	モネル モネル	モネル, テフロン ガスケット テフロン	テフロン モネル	Hoke <sup>a)</sup> A/E <sup>b)</sup>	直ちにテフロン焼損(使用中止) 誤操作でテフロン焼損
フ ツ 素 供 給 系	室温, 2Kg/cm <sup>2</sup> G 100% F <sub>2</sub>	バクトラム弁 バクトラム弁 ペローズ弁 (空気操作)	プラス モネル SUS モネル	モネル, 銀ロウ テフロン モネル, テフ ロンガスケット ト	テフロン モネル SUS モネル	Hoke Hoke Hoke	シールより洩れ, 増締めで解決 問題なし シールより洩れ, 増締めで解決 バ尔斯ガス発生用 空気操作用ダイヤフラム(ネオブレン)が短 時間で破損 内部リード増加
フ ツ 素 供 給 系	プロセスガス 出口部	200°C, 2Kg/cm <sup>2</sup> G 30% F <sub>2</sub>	ペローズ弁 同上(空気操作弁)	モネル モネル	モネル, 密接 モネル	Hoke Hoke	問題なし ペローズ破損
フ ツ 素 供 給 系	差圧測定系	<100°C, 2Kg/cm <sup>3</sup> G 30% F <sub>2</sub>	ダイヤフラム弁 バクトラト弁	モネル プラス	モネル, アルミガスケ ット テフロン	Kel-F Hoke	問題なし 問題なし 間
フ ツ 素 供 給 系	粉体供給系 F <sub>2</sub> なし	室温, 2Kg/cm <sup>2</sup> G	ボルト弁	プラス	テフロン	Whitey <sup>e)</sup>	有用ただし内部リード増加
U F <sub>6</sub> 回収系	コールドトラップ <sup>f)</sup>	150°C, 2.5Kg/cm <sup>2</sup> G 100% UF <sub>6</sub> (30% F <sub>2</sub> )	ダイヤフラム弁 ペローズ弁 ペローズ弁	モネル モネル モネル プラス	モネル, アルミ ガスケット モネル, 密接 モネル, 銀ロウ モネル, 密接	大野 大野 大野 Kel-F	UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> で閉塞(コールドトラップ出口弁)
U F <sub>6</sub> 回収系	シリンダー	100°C以下, 2.5Kg/cm <sup>2</sup> G 100% UF <sub>6</sub>	ペローズ弁 バクトラト弁 (アンクル弁)	モネル モネル モネル プラス	モネル, 密接 モネル, 密接 モネル, 密接 モネル, 銀ロウ モネル, 密接	Hoke ? *	問題なし 銀ロウより洩れ(ライン加熱時) UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> による閉塞
オ フ ガ ス 系		室温, 0.5Kg/cm <sup>2</sup> G <30% F <sub>2</sub>	ダイヤフラム弁 ペローズ弁	モネル モネル	モネル, アルミ ガスケット モネル, 密接	大野	問題なし(米購入容器のため仕様不明) 試験粉末, UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> により閉塞 活性アルミニナトラップの直出口で使用 HFによりベローズが激しく腐食 (弁の使用停止)

a) Hoke Inc., USA  
d) 中京電機(株)

b) Autoclave Engrs. Inc., USA

c) 大野ベローズ工業(株)  
e) Whitey Research Tool Co., USA

Table 21 継手の使用経験

継 手	型 式	使 用 場 所	使 用 経 験
ユニオン	ナイフエッジ型	—フッ素マニホールド(ポンベとの接続部) —フッ素化塔入口 —UF <sub>6</sub> 移送ライン	(1) 粉体接触部では、ナイフエッジが損傷され易い (2) 互換性なし (3) 気密確保容易 (4) 片側ナイフエッジの時は、厚いガスケットの使用は不可
		—テーパ型	—フッ素化塔回り(各所) —コールドトラップ回り
		平 型	—フッ素マニホールド(減圧弁との接続)
ね じ	テーパねじ (NPT)	—流量計、差圧計、圧力計など 計器との接続部 —プローバックフィルター(フッ素化塔内)	(1) シールテープの使用が必要(高圧フッ素、高温部では使用不可、低圧なら100% F <sub>2</sub> 使用可能) (2) 気密性高い(10 <sup>-4</sup> ~10 <sup>-7</sup> atm·cc/sec以上、耐久性も悪くない)
		—低圧フッ素供給系 —フッ素化塔回り(各所) —UF <sub>6</sub> 回收系 —オフガス系 —ガスサンプリング、TCC系	(1) インチ外径管(1/8~1インチ)を使用する必要がある (2) 経時的に気密度の下ることもある(増締めで解決) (3) 互換性良い。バーツも豊富 (4) Gyrolokは、Hoke のバルブが利用できる
フレヤレス継手	Gyrolok(またはSwadgelok)	—フッ素化塔差圧計 —ガスサンプリング系	(1) 気密度は特に悪くない(10 <sup>-3</sup> atm·cc/sec以上)
	そろばん珠	—低圧フッ素供給系 —オフガス系	(1) 場所により現場作業困難 (2) 互換性悪い
銀 口 ウ			

### 7.3 計器・電気部品

#### 7.3.1 流量計

耐フッ素用流量計として、マスフローメーター、オリフィスマーター、ローターメーター（塩素用）などを使用した。これらの使用経験をTable 22に示す。

この中マスフローメーターを最もよく使用した。軽量、使用法が簡便で、清浄ガスを通氣する場合には信頼性も高い。しかし、沈着性の恐れのあるガスに対し使用する時は感度の著しい低下があるので、粗い精度の場合でもその使用は適当でないと思われる。

ローターメーターはHFが存在しなければ高濃度フッ素または塩素ガスに適用しても特別な問題はないと推定される。

Table 22 流量計の使用経験

型 式	仕 様		使 用 場 所 ( 条 件 )	使 用 経 験
	接ガス部材質	精 度、指 示 な ど		
質 量 型	モ ネ ル	一±2% (公称) 一直読及び記録 (5V) 一リニヤ目盛	一フッ素供給系 (室温, 100% F <sub>2</sub> ) 一TCC検量用 UF <sub>6</sub> 供給系 (~100°C, 100% UF <sub>6</sub> ) 一オフガス系 (室温, 微量 HF?) <sup>a)</sup>	一指示の遅れ大 (~30 sec 以上) 一粉末、異物の沈着する系では性能曲線が著しく変化 (150~500%以上) 一検量方法は比熱比で補正して良い
オリフィス型	S U S	一精度 ; 一般用 一指示計及び記録 一対数目盛	一フッ素化塔オフガス (室温, ~20% F <sub>2</sub> , 他UF <sub>6</sub> , 撥発性FPs共存)	一十分な使用経験なし (UR-01でのみ使用) 一特別な問題ないと推定される
ローターメーター (塩素用)	ルビー, SUS, プラスパイトン	一1~2% 一直読	一TCC (~50°C, 20% Cl <sub>2</sub> ) 一サンプリングガスオフガス系 (室温, 微量HF?) <sup>b)</sup>	一経日的に管が白色化 (HF 存在時) 一オフガス系で使用する場合は、水分、異物の沈着があり、ローターが作動不能となつた

a) フッ素、UF<sub>6</sub>をソーダライムで除去し、かつ生成水をシリカゲルで除いたガスを通気

b) a)と同じ、ただしシリカゲルを使用せず

#### 7.3.2 圧力計・差圧計

フッ素存在下で使用した圧力計・差圧計に関する使用経験をTable 23に示す。結論として計器自体に関する特別な問題はない。

#### 7.3.3 ヒーター

ヒーターはフッ素取扱いに個有な部品ではないが、フッ素化塔におけるトラブルのうち最も多いうる原因の一つであった。シーズヒーターを主に用い、分離部において一部バンドヒーター、プレートヒーターを使用した。

Table 23 圧力計・差圧計の使用経験

計 器	仕 様		M F R.	使 用 場 所	使 用 経 験
	接ガス材質	指示・精度			
Helicoid 圧力計	モネル	—アソソリュート計 —精度；フルスケールの±1%	Am. Chain & Cable Co. ( USA )	—フッ素化塔 —コールドトラップ —UF <sub>6</sub> 移送系 —TCC検量用 —UF <sub>6</sub> 供給系	—機器上のトラブルなし —UF <sub>6</sub> の沈着により指示不良となる —高価
ブルドン管圧力計	リン青銅	—ゲージ圧力計 —J I S規格	国産品名種 (一般工業計器)	—低圧フッ素供給系 —オフガス系	—特に問題なし
d/pセル差圧計	モネル (ダイヤフラム)	—記録型出力 —スパンの1/2%	北辰電機	—フッ素化塔	—特に問題なし
ブルドン管差圧計	リン青銅またはSUS —27	—指示計 —J I S規格	国産品 (一般工業計器)	—オフガス系 (NaFトラップ, ソーダライムトラップ)	—UF <sub>6</sub> による閉塞, 指示不良 —使用取り止め

シーズヒーターの仕様は外径1.6～3φ, 出力密度1～2W/cm<sup>2</sup>, 被覆管材質SUS-27またはインコネル600, エレメント数单芯または2芯など種々の製品を試用したが, インコネル600を被覆材とする(株)岡崎製作所製ヒーター(商品名マイクロヒーター)を除いた悉くが比較的短期間(数ラン以内)に焼き切れた。焼き切れ場所はヒーターを固定せる発熱部, 端子取出部などが多く, これらより固定を含むヒーターの使用方法とともに, 仕様の選定が特に重要と考えられる。

シーズヒーターによる加熱は, 断線による交換作業だけでなく, 升温速度, 加熱の均一性, 温度調節性などに問題があるのでスケールアップを考える場合には好ましい方法ではないと思われる。

## 8 気密検査および洗浄・フッ素化処理の経験

### 8.1 洗 浄

新しい機器・配管・パーツ類は、原則として洗浄を行ってから使用することにしてきた。大別して油脂類を除去する脱脂洗浄と金属酸化物層を除去する酸洗浄またはホスコート洗浄の二つを実施している。これらの使用経験をTable 24に示す。

#### 8.1.1 実施基準と方法

脱脂洗浄は初期には比較的ていねいに実施して来たが次第に省略され、現在は上表の基準で行っている。これは購入パーツ類の油脂付着に関する信頼性が経験的に判って来たためである。バルブ類を解体せずに浸漬する場合、十分なエアブローを行うよう注意しているが弁などについては問題があろう。

酸洗浄、ホスコート洗浄の実施基準と方法はさらに厳密でない。ロウ付け、配管の曲げ加工などのため加熱した部分については必ず実施している。

#### 8.1.2 実施経験

実施基準および方法と実施効果との関係について、経験的に明らかでない。脱脂洗浄はそのあとのフッ素化処理の手順と密接に関係するので、この処理を穏やかな条件から丁寧に実施する場合には、簡略化できる部分は増そう。

酸洗浄、ホスコート洗浄についても実施の方法と効果の関係が明らかでない。これはとくにモネル、ニッケルの機器、パーツなどの場合、酸化被覆の除去速度が遅いためである。銅、プラス材料などの場合は酸化物の生成量が多く、除去も簡単なので必ず実施した方がよいであろう。洗浄不足が原因と思われるバルブの詰りはなかったと推定される。

### 8.2 気密検査

#### 8.2.1 漏洩検査

本実験設備および熱天秤装置、分析系など関連補助装置での経験を含む漏洩検査法をTable 25に示した。

種々の方法が試みられたが、ソープ法が最も簡便で必要な気密度を達し得るので、この方法が多用された。分析系の一部ではハロゲン検出器を利用したスニッファー法も併用されて来たが、この方法はソープ法による一次検査が終了して目標値に達しない場合に適用される。

#### 8.2.2 気密度の測定

漏洩検査の後、基準値との判定を行うため気密度の測定を行う。

測定は加圧法で行い、基準値に応じ系を分割して求める。測定法は次の通りである。

##### 1° 加圧方法；窒素または空気を使用

(i) フッ素供給系；約  $3.0 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$

(ii) その他；約  $2 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$

##### 2° 計算式；

(a) 単位容積あたりの洩れ量が大きい場合；

$$Q = \alpha \cdot V \cdot p_0$$

$$\alpha = - \left( \frac{4p_s}{p_0} \right) \cdot \left\{ \frac{\ell_n (4p_t / 4p_i)}{t} \right\}$$

ここで  $Q$  : 漏洩速度 [atm·cc/sec],  $\alpha$  : 容積比漏洩速度 [1/sec],  $V$  : 系容積 [cc],  $p_0$  : 系外圧力 [atm],  $4p$  : 系内外差圧 [ata],  $t$  : 測定時間 [sec], 添字  $i$  : 初期, 添字  $s$  : 漏洩基準条件を示す。

(b) 単位容積あたりの洩れ量が少ない場合

$$Q = V \cdot \frac{(4p_i - 4p_t)}{t} \cdot \left( \frac{4p_s}{p_0} \right)$$

記号は(a)と同じである。

大半の系では、(b)式が使用できる。測定時間が1~2時間以上に及ぶことが多いのでその間の系の温度変化に対する補正が重要である。

### 8.2.3 気密度の基準と実績

使用経験から次第に収束した基準と実績をTable 26に示す。これらの基準は次の様な考えに基づいている。

- 1° プロセスデータ上、フッ素・六フッ化ウランの漏洩が無視できる。
- 2° 操作上、フッ素・六フッ化ウランの漏洩に対し安全である。
- 3° ソープテストなどによる検査法で達成できる。
- 4° 使用前の機器、装置に関する基準については、使用後の経日的な気密度の低下を考慮し高い値を選ぶ。

実績より表の基準で、フッ素臭や六フッ化ウランの白煙などは認められないが、解体時にフッ素化塔上部フランジや試料供給孔の周辺一部に漏洩痕 ( $UO_2F_2$  と思われる白色痕) の発見される場合があった。加熱時にゆるむ場合があると推定されるので、可能であれば高温状態で増締めを行った方がさらに良いであろう。

## 8.3 フッ素化処理

### 8.3.1 実施の基準と方法

室温フッ素化処理、高温フッ素化処理の二つの方法を行っており、これらの実施基準とその方法をTable 27に示す。

室温フッ素化処理は、(i)器内の異物(ごみ、油脂など)除去、(ii)装置気密度の再確認および(iii)付着水の除去などを意図して行い、高温フッ素化処理に於ては(iv)機器表面における被覆形成なども想定して実施して来た。しかし(iii)、(iv)のような目的がどの程度達成されているか使用経験上明らかでないので、上の実施基準には曖昧さが残されている。従ってその方法も、実験目的、装置の使用状態に応じて変更される場合があり一定したものではない。

これらの処理はランの前日もしくはそれ以前に実施しており、処理後窒素または空気で全系を加圧したまゝ実験日まで保持する。回分実験の場合は、実験日当日試料(酸化ウラン)を装

荷するため短時間フッ素化塔を開放することになるが止むを得ない。

### 8.3.2 実施経験

前述のごとく経験上の不明な部分が多い。安全操作上およびプロセス上許容できる範囲で成る可く処理を軽減化することが望まれるが、少なくとも室温でのフッ素化処理を実施することは必要であろう。フッ素の洩れや装置の異常はこの操作で発見されるので、装置がフッ素の通気に耐える状態にあることが確認されるからである。

高温フッ素化処理は、余り実施されることはなかったが、この装置の使用時間の範囲では腐食など装置材料上の問題は認められなかった。微量成分を取扱う場合には油脂、器壁水などを十分に除き実験条件を均一に保つことによって再現性のあるプロセスデータを得る上で有意義と思われるが、定量的に確認されていない。

Table 24 機器および配管の洗浄に関する経験

洗 净	実 施 の 基 準	洗 净 方 法	使 用 経 験
脱 脂 洗 净	(1) 高圧フッ素ヘッダーで使用する新しいパーツ(弁など), ガスケット (2) ニッケルウール (3) ガス流量の小さい系のパーツ (4) 機器, パーツの購入時(仕様書に明記)	(1) トリクロールエチレン(アセトンを使用することもある)に浸し, エアブローする (2) 浸漬時間は任意 (3) パーツを解体することは稀である	(1) 効果の程度は不明。フッ素化処理の手順と関連がある (2) 低圧フッ素系でも, 実施することがある (3) 配管類は省略している
酸 洗 净	(1) 配管; 一銀ロウ付部 —加熱して加工した部分 (2) 機器, パーツ; 購入時(仕様書に明記)	(1) $\text{HNO}_3$ (任意, 10~30%) 溶液に室温で10~30分浸漬 (2) 十分水洗後, エアブローする	(1) 銅管類は必ず実施 (2) 効果の程度は不明, 溶接部に特に付着物が多いことはない (3) フレヤレス継手を使用する部分の洗浄には注意を要する。
ホスコート洗浄	(1) 主にニッケル, モネル機器の溶接部に対して適用	(1) ホスコート #1300 を原液のまゝ室温で比較的長時間(~半日)浸漬 (2) 十分水洗後, エアブローする	(1) フッ素化学研究室における使用経験に基づいている (2) 効果の程度不明

Table 25 漏洩検査法に関する経験

分類	方 法	最 小 検 知 量 (推定)	適 用 例	評 価
1) ノープテスト	イナートガスを1~2Kg/cm <sup>2</sup> ・G加圧し、石鹼液をかけ、発泡の有無を見る	atm·cc/sec $10^{-3} \sim (10^{-4})$	(1) 装置システム(フッ素供給系も含む)の検査 (2) 単体機器の検査	(1) 簡便な割合で、実用的気密度達成可能 (2) ねじ、継手部、大きな漏洩部、乾燥雰囲気では検出が困難
2) ハロゲンリーカ法	主にフレオンを稀釈(10~50%任意)し、1~2Kg/cm <sup>2</sup> ・Gに加圧、ハロゲン検出器を用い、漏洩部をプローブ	$\sim 10^{-5}$	(1) 分析系、サンプリング系など小量ガスを取り装置システムの検査 (2) 表面にフッ素物、フッ素の吸着のある系へはバッカグランドのノイズが高く、検出困難 (3) 雰囲気がハログレン汚染した場合、掃気が必要	(1) 検出感度の割に簡便 (2) 表面にフッ素物、フッ素の吸着のある系へはバッカグランドのノイズが高く、検出困難 (3) 雰囲気がハログレン汚染した場合、掃気が必要
3) フッ素ガス加圧法	1.0~1.5 psig にて F <sub>2</sub> 加圧後、漏洩部を KI・スタチ液のしめた紙で包み青色変化を確認	1) 法で100 psig (加圧した場合に相当すると報告されている)	(1) 使用経験なし	(1) ORNLの経験に基づき、初期に標準検査法として検討された (2) 簡便だが、未使用機器に適用する場合は問題がある
4) pH試験紙法 (減圧法)	フッ素使用中機器にて pH試験紙をはりつける 被検査体を真空引きし、He検出器を接続、外部より He ガスを吹きつけ検出器の振れを測定	$< 10^{-9} \sim 10^{-10}$	(1) フッ素供給系 (2) 運転中、フッ素臭が感じられた時、漏洩部を発見するために使用	(1) 簡便だが、小漏洩には時間が必要 (2) 経日的にたい色する
			(1) 単体機器、部品類の購入検査 (2) 微量試料(50~100 mg 以下)を扱う系	(1) 操作が面倒なので装置、システムの検査には不適当 (2) 高気密度を要する機器にのみ使用

Table 26 気密度の基準と実績

系	容 積	気密基準 <sup>a)</sup>	気 密 実 績	測 定 法	主な漏洩箇所
フッ素供給系	0.5 ℥	$<10^{-4}$ atm·cc/sec ( $7 \times 10^{-4}$ l/hr)	$\sim 10^{-5}$ atm·cc/sec 以下	加圧法 (40Kg/cm <sup>2</sup> G) 48 hr 以上保持	ピックティルとポンベとの取付部 減圧弁ユニオン(一次圧側)
プロセス空気 または窒素供 給系(一次側)	3 ℥	— <sup>b)</sup>	( $10^{-1}$ atm·cc/sec) (以上と推定)	特に測定せず	ポンベ接続部
フッ素化系	37 ℥	$<10^{-2}$ atm·cc/sec ( $10^{-3}$ l/hr)	初期: $\sim 10^{-3}$ atm·cc/sec 現在: $10^{-1} \sim 10^{-2}$ atm·cc/sec	加圧法 (2Kg/cm <sup>2</sup> G) 12 hr 以上保持	フッ素化塔上部フランジ(粉体供給ライン)
UF <sub>6</sub> 回収系	31 ℥	$<10^{-2}$ atm·cc/sec ( $10^{-3}$ l/hr)	$10^{-3}$ atm·cc/sec 以下	加圧法 (2Kg/cm <sup>2</sup> G) 48 hr 以上	UF <sub>6</sub> ポンベ接続部
オフガス系 (改造後)	300 ℥	$<1$ atm·cc/sec ( $10^{-2}$ l/hr)	0.1~1atm·cc/sec (一夜放置して、残圧がある程度)	加圧法 (0.5 kg/cm <sup>2</sup> G)	トラップフランジ部
分析系		$<10^{-4}$ atm·cc/sec	$10^{-4} \sim 10^{-6}$ atm·cc/sec	加圧法 ハロゲンリーク法	TCCフィラメント の接続部(TCCト ラップ継手部)

a) ( )内は、体積比漏洩速度αで表示したもの

b) プロセスガスとして窒素を使用する場合は、ポンベガスの減少が問題にならない程度

Table 27 フッ素化処理の実施基準と方法

フッ素化処理法	実施の基準	フッ素化処理条件					備 考
		温 度	系 壓 力	F <sub>2</sub> 濃度	時 間	方 法	
室温フッ素化 処理	(1)原則として実験の都度	室 温	$\sim 1000$ mmHg	10 %	30~60 min	ワансルー	(1)F <sub>2</sub> 分析計(TCC)の検量も兼ねることが多い (2)実験日の前日または高温フッ素化処理の前日に行う
				20 %	15~(60)	ワансルー または ため込み	
高温フッ素化 処理	(1)新しい機器を 使用する時	予定され る実験条 件の温度	$\sim 1000$ mmHg	10 %	~15 min	ワансルー	(1)実施の基準は原則を示す。省略されることも多い
	(2)長期間実験装置を開放した時			20 %	min 30~60	ワансルー	
	(3)FPフッ化物などの微量成分を扱う時						

## 9 安全管理および事故例

### 9.1 安全管理

#### 9.1.1 異常報告記録

この実験装置の運転に関連して起った主な事故を研究室で管理している異常報告表よりリストアップし、Table 28に示す。

表より事故は(i)フッ素または六フッ化ウランの漏洩によるもの、(ii)ウラン粉末の漏洩・飛散によるものに大別されるが、(i)は初期を除いて次第に減少し、(ii)による異常が大半を占める。

#### 9.1.2 安全解析

実験装置の使用に先立ち、ウラン、フッ素およびフッ化物の取扱いに関する障害対策および事故に関する安全対策について検討を行い、これらの危険性について事前評価がなされた。その詳細は別に報告されている<sup>1)</sup>。

結論的には、ウラン、フッ素、フッ化物の取扱いに伴う障害上の問題は小さく、また事故として(i)フッ素または六フッ化ウランの漏洩によるもの、(ii)オフガス系からのフッ素または六フッ化ウランの漏出、(iii)フッ素の逆流、(iv)過圧による装置の破裂、(v)六フッ化ウランまたはフッ素と油脂類との反応による火災などが想定され、この中コールドトラップの破裂またはフッ素化塔からのフッ素および六フッ化ウランの漏洩が最大の事故に当ると想定された。

#### 9.1.3 安全対策

9.1.1に述べた異常事故の経験、安全解析の結論、作業者の不安感などに基づいて、幾つかの障害および安全対策が実施された。これらは装置上の対策（改造）と共に作業管理方法上の対策とに大別されるが、その項目と実施後の評価をTable 29に示す。

フッ素または六フッ化ウランに関してはフッ素ボンベの取扱いを除き、気密確認、服装・マニュアルの遵守などが励行されれば大きな問題はない。むしろウラン粉末など放射性粉粒体の取扱に伴う障害および汚染事故がより重要であろう。しかし、これは非定常操作を伴う研究実験に個有な理由による部分が大きい。

Table 28 ウランフッ素化実験における異常報告

発生年月日	事故内容	原因	障害、汚染など
45年2月19日	コールドトラップ継手からのF <sub>2</sub> 洩れ	ペローズの破損	なし(室内でフッ素臭)
3月31日	インラインガスクロリーケースト中のUF <sub>6</sub> の洩れ	誤操作	微量UO <sub>2</sub> F <sub>2</sub> 吸収の恐れ (6×10 <sup>-6</sup> μCi以下)
5月22日	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> 粉末のフード外洩れ	差圧検量用仮配管(ピニール)の気密不良	内部吸入(9×10 <sup>-6</sup> μCi以下) 床汚染(avg 300 dpm/100 cm <sup>2</sup> ) フード内周辺部の汚染
7月3日	UO <sub>2</sub> ペレット酸化中、試料投入孔からの粉末洩れ	気密不良(昇温に伴うゆるみか)	
7月14日	N <sub>2</sub> 供給ラインから逆流F <sub>2</sub> 洩れ	材料選定ミス(ゴム管)	室内F <sub>2</sub> 洩れ
7月29日	フッ素化塔からのU <sub>3</sub> O <sub>8</sub> 粉末飛散、フード外への洩れ	詳細 9.2.2 項参照	
45年9月3日	フッ素庫マニホールドよりのF <sub>2</sub> 洩れ	詳細 9.2.1 項参照	
47年2月28日	UO <sub>2</sub> 供給ラインからの粉末の洩れ	閉塞した部分に残圧のあることを気づかずに継手をゆるめた	フード内周辺部汚染
50年5月20日	テーブルフィーダーへの試料装荷中粉末の飛びはね (~1mg以下の粒)	試料供給孔の構造不備	作業者の眼に入った

Table 29 安全対策と評価

事故原因	安全対策	評価	内容参考項目
フッ素ポンベの取扱い	(1) フッ素庫改造 (2) フッ素通気停止操作マニュアルの作成 (3) ポンベ盲キャップ取外し設備	作業者の安心感高まった 初期のみ利用された 机上検討のみ	3.1.2 3.1.1 (3.1.1)
装置からのフッ素、UF <sub>6</sub> の漏洩	(1) フッ素モニター調査	使用されず(鼻で検知可能)	—
放射性粉末の漏洩・飛散	(1) 装置用大型フードの改造 (2) 化学フードの改造 (3) フード換気量の調査とマニュアル作成	余り有効でなかった(改造内容に問題) 有効 不明	9.2.2 4.1.2 —
過圧による装置の破裂	(1) フッ素化塔、コールドトラップバイパス破裂板の設置 (2) 窒素ヘッダーにおける安全弁	撤去(必要はない) 使用されず	4.2.4 3.2.2
トリクロールエチレンの取扱い	(1) 寒剤槽の改造 (2) 作業マスクの購入	有効 時々使用	5.2.3 —
オフガス系からのF <sub>2</sub> またはUF <sub>6</sub> の漏出	(1) アルカリスクラバーの設置	ソーダライム充填トラップに交換	6.2.3

## 9.2 事故例

### 9.2.1 フッ素ヘッダーからのガスの噴出

#### (1) 事故の発生と状況

発生日 昭和45年9月3日 (UF-05)

発生場所 再処理試験室・フッ素庫（実験室建屋外に隣接して設置）

この実験は、装置の設計容量である5 kg ウラン/バッチ、350°C, 20 vol % フッ素の条件で計画された。

14時にフッ素の通気が行われ、途中オフガス系の圧損増加、寒剤循環系の閉塞など二三のトラブルはあったが、ランの中止に至る程度のものではなかった。

事故は18時45分二番目のポンベの内圧が下ったので3本目のポンベに切替える際起った。マニホールドには6本の新しいポンベが取付けられており、これらは1本づつ順次切替えつつ使用する予定であった。

噴出時の操作は、空になったポンベの元弁およびストップ弁（ポンベに接続するピッグティル配管上にある）を開のまゝ、新しいポンベの元弁を開き、続いてそのストップ弁を操作してヘッダーにガスを張り込むという手順で実施された。圧張と共に急激なガスの流れ音が聞こえ、瞬時に空ポンベと第三のポンベが均圧化された。直後第二のポンベのストップ弁（Auto Clave Engg.社製 30VM 6072, 7.2項参照）よりフッ素の漏洩が始まり、暫時の後漏洩が急激に増した。

以上の経過を認め、作業者は直ちにフッ素庫外へ退避した。フッ素配管を通ずるはつり孔および保護用コンジット管を経て実験装置の設置されている10号室へもフッ素が侵入して來たので、プロセスガスを通気のまゝ実験者全員室外に退避した。

#### (2) 事後処置

噴出部が確認されていること、噴出ガス量がポンベ1本分（2.2 kg フッ素）以下に留まると推定されたこと、プロセス側（実験装置側）が安定であることなどの理由から、実験を継続しガスの噴出停止を待つことが良いと判断した。

フッ素庫外からの観察で、19時45分には噴出は殆んど認められなくなったので、20時05分空気マスクを装備し、実験室内に入り装置の作動状況を点検した。特に異常は認められず、記録計より20時頃にはプロセスへのフッ素流入量が0となっていることが確認された。またポンベの約半量（～1 kg フッ素）がプロセス側へ流入し、残りが外部へ漏洩したと推定された。

21時頃には室内のフッ素臭も殆んど認められなくなったので、保護衣を着用しストップ弁の交換作業を開始した。この間実験装置はフッ素の供給が停止していることを除いてプロセス条件がそのまま維持された。気密確認の後、フッ素の通気を行い実験を再開した。

#### (3) 原因の推定および改善

漏洩した（A/E）社弁を解体した結果、テフロン製グランドパッキングが完全に焼損し失われていた。この弁は原研フッ素化学研究室で長年の使用経験があり、信頼性が高く、高圧フッ素系での使用においても何らの問題も経験されていない。また当該の弁は、既に3回の実験に使用され、フッ素化処理は十分に実施されていると推定された。

以上より理由は不明だが、操作の経緯より高速のフッ素流に接したことがテフロンの焼損を招いたと考えられたので、このような流れを起きない操作が重要であると結論された。フッ素ヘッダーの操作法につき、次の改善が行われた。

- 1° ボンベの切替えは、空になったボンベの元弁およびストップ弁を閉じた後、新しいボンベの操作に移るという手順を遵守する。
- 2° 圧張の手順は、ストップ弁閉のまゝ元弁を開きピッグティルまでガスを満たした後ストップ弁を用いて行うが、この操作は圧力計を確認しつつ出来るだけゆっくり慎重に行う。
- 3° 実験の開始前にそのランで使用の予定される全てのボンベの元弁を開く様にし、ボンベ切替作業の頻度を減らすと共にボンベ間の圧力の偏りを避ける。

一方装置上の改善として、8.2項で述べたように接ガス部に有機材料の使用されていない弁に交換することがより望ましいと考えられたが、フッ素化学研究室での実績を考慮し、この改善は実施に至らなかった。

### 9.2.2 フッ素化塔からのU<sub>3</sub>O<sub>8</sub>粉末の噴出・飛散

#### (1) 事故の発生と状況

発生日 昭和45年7月29日

発生場所 再処理試験室10号室および周辺

14時30分頃、ウランフッ素化実験装置を収容したフード内が黒色状を帯び、塔から黒色粉体がジェット状に漏洩していることをフードに隣接して設置されているガスクロの調整をしていたSが発見、この旨同室内のN<sub>2</sub>供給系の操作をしていたUに通報、Uは直ちに漏洩の直接原因と考えられたN<sub>2</sub>の供給を停止した(この間1~2分)。同室内ではたまたま放管員がダストモニターの修理を行っていたのでその場で事故の発生を知り、周辺のスミヤ検査を行った。この結果10号室内の汚染が認められたので直ちに全員を実験室外へ退避させた。他の放管員の応援を得て事故時に10, 11号室にいた全員の身体および床などの汚染検査を実施した結果、つきの通りであった。

#### a 内部被曝線量の推定

H(再処理研)	鼻孔	$1.1 \times 10^{-4} \mu\text{Ci} (\beta, \gamma)$	, 380mrem/∞
S( " )	"	$7.1 \times 10^{-5}$	" , 240 "
K( " )	"	$1.8 \times 10^{-5}$	" , 60 "
U(実習生)	"	$5.5 \times 10^{-5}$	" , 190 "
T( " )	"	$5.0 \times 10^{-5}$	" , 170 "

その後H, S, U, Tは糞尿検査を、K, Iは尿検査を実施した。この結果、尿検査では検出されず、糞検査ではH, S両名に検査されたがその量は100μg(10mremに相当)以下であった。

#### b 床面および実験台など表面の汚染

$$\beta, \gamma ; \text{max. } 7.0 \times 10^4 \text{ dpm}/100 \text{ cm}^2$$

$$\text{avg. } 3.0 \times 10^3 \text{ "}$$

汚染面積 ; ~ 120 m<sup>2</sup>  
 核種 ; 天然ウラン  
 c ダスト濃度  
 $5.0 \times 10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cc}$

汚染は 10 号室全域および一階廊下にみられたが、ドライエリヤや 11 号室その他のエリヤには発見されなかった。そこで 10 号室に通じる一階廊下にバリヤが設けられ、ここで人の出入りが管理されることになった。

一方、10 号室内全域および一階廊下への汚染拡大は換気流によるものと判断されたので、10 号室への給気が停止され、さらに 10 号室の排気風量を増すために 10 号室排気ダンパーの調整が行われた。そして廊下および 10 号室床面の除染を直ちに行うことにして、このための除染資材の手配がはかられた。

### (2) 除染作業

除染作業は、事故発生当日の 7 月 29 日から 7 月 31 日の 3 日間にわたって行われた。除染作業要領はつきの通りである。

- a 除染法 ; 濡れウエスにより表面を拭きとる。
- b 服装 ; 靴カバー、ゴム手、防じんマスクを着用。  
フード内作業時は必要に応じて汚染除去用防護衣および防じんマスクを着用する。
- c 作業日程 ; Table 30 に示す。
- d 除染資材 ; Table 31 に示す。
- e 作業法 ; A、B 二班に分れ、マスク着用による除染作業と濡れウエスの補給や除染資材運搬などの補助作業をそれぞれ分担し、午前と午後で作業分担を交替した。

2 日後にはフード内を含めて全除染作業を終了、その後の汚染検査で管理基準である 200 dpm/100 cm<sup>2</sup> 以下に除染されていることが確認された。表面のサーベイ検査により  $\alpha$  線が若干高いところが検出されたので（スミヤでは検出されず）、安全のため 10 号室床面およびフード床面全域にペンキ塗りを実施した。

### (3) 事故原因と今後の改善

#### a 事故の原因と問題点

事故当時フッ素化塔内には、80~100 メッシュの  $\text{Al}_2\text{O}_3$  2 kg と  $\text{U}_3\text{O}_8$  5 kg が装荷されていた。この  $\text{U}_3\text{O}_8$  は  $\text{UO}_2$  粉末を約 450°C 下で酸化し調整したもので、事故発生当日この粉末をサンプリングするため塔に設けられていたノズルの盲栓を外し、サンプラーの取付作業を行っていた。一方この作業と並行してマニホールドへのフッ素ボンベの取付け作業を行っていたが、この作業には接続部の気密確認のためチッ素ガスでマニホールドを加圧させる手順が含まれていた。この操作においてフッ素マニホールド用窒素ボンベを開けるところを誤ってプロセス用窒素供給バルブを開いた。この時丁度塔のサンプリングノズルが開放状態であったため、この孔から塔内の  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{U}_3\text{O}_8$  混合粉末がフード内に噴出し、この噴出方向のフード窓が電線を通すため少し開けてあったので、この部を通してフード外へ漏れ、さらに換気流れが 10 号室から一階廊下排気孔へ向っていたので天井方向へ  $\text{U}_3\text{O}_8$  微粉が舞い上り、一階廊下まで汚染が拡った。

$\text{U}_3\text{O}_8$  の漏洩量は塔内充填物の重量測定から  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の混合粉体量として約 2 kg,  $\text{U}_3\text{O}_8$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  との混合比は充填時の混合比と同じ(2.5)とみなして約 1.5 kg の  $\text{U}_3\text{O}_8$  が漏洩したと推定される。フード外への漏出量はフード近辺に堆積した量が支配的であり,  $7 \times 10^4 \text{ dpm}/100 \text{ cm}^2$  の汚染面積が  $3 \text{ m}^2$  として計算すると 30 ~ 40 g と推定される。

以上の状況から汚染事故の発生原因は、(i)作業計画が不適当であったこと、(ii)作業内容の事前打合せが不十分であったこと、(iii)作業時の相互連絡が不十分であったことの三要因が重って生じたものと思われる。さらに汚染の拡大をもたらした要因として(iv)フードの密閉性および排気風量が不足していたこと、(v)部屋の換気流れが不適当であったことが考えられる。

#### b 今後の改善策

- 1° 誤操作または連絡不十分の排除；同一装置に対し、二つ以上の作業を重って行う時は、予め汚染の危険の有無をよく検討しておくと共に、作業内容の事前打合せに時間をかけ、必要な時は手順チェックシートまたは標識類の活用をはかる。
- 2° フードの改造；まず密閉性を増すため、窓および窓枠を交替し開閉を容易にし、側面窓に電気配線用端子をまた必要によって配管用ノズルを取付け、配管配線による隙間をなくする。一方、排気風量は他のフードの使用の有無によってかなり異なるので、原則としてウランフッ素化用フード使用時は他のフードの使用を禁じ、ダンパーを閉として、排気量の増加を図る。
- 3° 10号室換気流れの変更；10号室排気系のダンパーおよび一階廊下排気系吸込口面積を調節することにより、一階から10号室へ向うよう換気流れを変更する。

Table 30  $\text{U}_3\text{O}_8$  粉末噴出事故における除染作業日程

月 日	除 染 作 業			備 考
	内 容	時間(hr)	人員	
7.29	除染；1階廊下, 10号室床	~2	7	1階廊下 除染終了
7.30	除染；10号室床上, フード内	~4	12	窓わく, ダクト, 柵, フード天井その他
7.31	除染；フード内, 10号室床面	~4	10	
8.3	汚染検査	—	—	管理基準( $200 \text{ dpm}/100 \text{ cm}^2$ )以下
8.12~13	10号室床面ペンキ塗り	~6	2	スミヤ, サーベイ共に検出感度以下

Table 31  $\text{U}_3\text{O}_8$ 噴出事故における除染用器材払出し一覧表

物 品	仕 様	数 量
廃棄物容器	紙バケツ	1 0 0
ウエス	白, 4 kg 束	2 5
ペーパーワイパー		5
ビニルシート	0.1 mm × 1,370 × 50 m	2
ポリエチレン袋	0.05 mm × 20 × 40 cm	1 0 0
"	0.05 mm × 50 × 110 cm	1 0 0
マスキングテープ	幅 50 mm	1 2
布テープ	"	3
ゴム手袋	8.5 インチ	3 0 0
布 手 袋		1 2 0
作業用手袋	軍 手	6 0
特殊作業帽	布製手術帽型	1 0
ポリエチレン帽子		6 0
汚染除去用靴下	軍 足	1 2 0
R I 軽作業靴		2 0
靴カバー	短 靴 用	1 5 0
腕カバー	ポリエチレン製	5 0
除染用パンツ		3 0
除染用シャツ		3 0
汚染除去用防護衣	上衣, ブーツ, 靴カバー 塩ビ製	8
塗料用刷毛	白毛, 幅 12 cm	1
シンナー	16 ℥入り	1
ラッカー	16 ℥入り, 原研色	1

(合計 115 (千円))

## 10 結 言

フッ化物揮発法に関する工学的研究に関連して製作されたウランのフッ素化実験装置について、ここで得られたフッ素および六フッ化ウランの取扱法、耐フッ素機器の使用経験などについて述べた。これらの経験に基づく安全操作ならびに機器設計上の技術基準は必ずしも一般性のある最適化された条件ではないが、少くとも同種の工学装置を対象とする場合には十分参考になろう。

実験装置であったために保守および操作性への配慮が不足しており、オフガス系充填物の排出法などの如く使用経験として本来重要な項目でありながら偏った経験しか得られなかつた部分がある。また実験目的としてフッ素化速度の把握に重点が置かれてきたため、周辺工程において使用経験が十分でない部分も多い。コールドトラップ性能、六フッ化ウランの移送法、オフガス系の性能などが特に指摘すべきであろう。さらにHF除去トラップや脱湿器の必要性、高温フッ素化処理、脱脂洗浄基準など積極的に評価データの収集を怠つたために、明確な結論の得られなかつた事柄もあつた。これらについては今後国内で計画されているUF<sub>6</sub>製造技術やウラン濃縮技術の研究開発においてデータや経験が蓄積され、最適な技術基準の確立されることが望まれる。

この実験装置に関する全ての実験計画は1975年9月を以て終了したが、同年11月動・燃・事業団人形峰鉱業所で計画中の六フッ化ウラン製造パイロットプラント運転用員の訓練のために短期間であったが使用された。現在1976年3月を目途に実験装置の解体準備が進められている。

## 謝 辞

本実験装置の計画および設計は、斎藤信一（現在動燃事業団核燃料本部）、堀内正人（現在東京都庁）両氏に負うところが多い。装置の製作は、荏原製作所が行った。本装置によるフッ素取扱いは、最初三森武男、鴨志田厚、清水徳、中島勝利（現在ウラン濃縮研究室）の各氏が担当した。フッ素の取扱いに関しては、辻村重男および岩崎又衛両氏（炉化学部）の指導をうけた。本装置の改造ならびに機器の使用経験に関しては、西村允宏氏（再処理研究室）の助言に負うところが多い。また、青地哲男（現在動力炉開発管理室）および辻野毅（再処理研究室）両氏からは、本装置の使用に関して終始有益な助言をうけた。本報告書を作成するにあたり、これら諸氏に深い謝意を表する。

## 10 結 言

フッ化物揮発法に関する工学的研究に関連して製作されたウランのフッ素化実験装置について、ここで得られたフッ素および六フッ化ウランの取扱法、耐フッ素機器の使用経験などについて述べた。これらの経験に基づく安全操作ならびに機器設計上の技術基準は必ずしも一般性のある最適化された条件ではないが、少くとも同種の工学装置を対象とする場合には十分参考になろう。

実験装置であったために保守および操作性への配慮が不足しており、オフガス系充填物の排出法などの如く使用経験として本来重要な項目でありながら偏った経験しか得られなかつた部分がある。また実験目的としてフッ素化速度の把握に重点が置かれてきたため、周辺工程において使用経験が十分でない部分も多い。コールドトラップ性能、六フッ化ウランの移送法、オフガス系の性能などが特に指摘すべきであろう。さらにHF除去トラップや脱湿器の必要性、高温フッ素化処理、脱脂洗浄基準など積極的に評価データの収集を怠つたために、明確な結論の得られなかつた事柄もあつた。これらについては今後国内で計画されているUF<sub>6</sub>製造技術やウラン濃縮技術の研究開発においてデータや経験が蓄積され、最適な技術基準の確立されることが望まれる。

この実験装置に関する全ての実験計画は1975年9月を以つて終了したが、同年11月動・燃・事業団人形崎鉱業所で計画中の六フッ化ウラン製造パイロットプラント運転用員の訓練のために短期間であったが使用された。現在1976年3月を目途に実験装置の解体準備が進められている。

## 謝 辞

本実験装置の計画および設計は、斎藤信一（現在動燃事業団核燃料本部）、堀内正人（現在東京都庁）両氏に負うところが多い。装置の製作は、荏原製作所が行つた。本装置によるフッ素取扱いは、最初三森武男、鶴志田厚、清水徳、中島勝利（現在ウラン濃縮研究室）の各氏が担当した。フッ素の取扱いに関しては、辻村重男および岩崎又衛両氏（炉化学部）の指導をうけた。本装置の改造ならびに機器の使用経験に関しては、西村允宏氏（再処理研究室）の助言に負うところが多い。また、青地哲男（現在動力炉開発管理室）および辻野毅（再処理研究室）両氏からは、本装置の使用に関して終始有益な助言をうけた。本報告書を作成するにあたり、これら諸氏に深い謝意を表する。

## 参考文献

- 1) 八木英二ら；“ウランフッ素化実験装置の概要”，JAERI-M 6487 (1976)
- 2) 再処理研究室；“連続流動層コールドトラップのフッ化物揮発法への適用”，JAERI-M 6405 (1976)
- 3) T.Tsujino, S.Sugikawa and K.Miyajima ; "Inline Gas Analyzer for UF<sub>6</sub> and F<sub>2</sub> through Differential Thermal Conductivity Measurements", J.Nucl.Sci.Technol., vol.10, No 2, p118 (1973)
- 4) 鏡八留雄ら；化学工学論文集, vol. 1, No 3, p327~329 (1975)
- 5) 八木英二, 前田充, 鏡八留雄, 宮島和俊；“工学規模流動層による酸化ウラン粉末のフッ素化”, JAERI-M レポート(投稿予定)
- 6) DOT規格; Chapter 17837, Specification for Cylinders, Specification 3AA, p196
- 7) 再処理研究室；“流動層によるプルトニウムのフッ素化”, JAERI-M 6392 (1976)
- 8) Keller, E.L.; "Uranium Hexafluoride, Handling Procedures & Container Criteria" Union Carbide Co., (Revised 1967)
- 9) 再処理研究室ら；“フッ素安全取扱手引”, JAERI-M 6485 (1976)
- 10) Martin Engg. Co. カタログ, Ball Vibrator (商品名 Vibrolator), U.S.A
- 11) 再処理研究室；“UF<sub>6</sub>安全取扱手引”, JAERI-M 6486 (1976)
- 12) 再処理研究室；“乾式再処理防災手引, III. フッ素および無機フッ化物による障害”(所内資料)
- 13) 宮島ら；“TCCの使用経験(仮題)”, JAERI-M レポート(投稿予定)

## 付 錄

## A Air Product 社製フッ素ガスの標準仕様

Table A1 に示す。

Table A1 Air Products 社フッ素ガス仕様

仕 様	保 証 値	代 表 値
F <sub>2</sub>	> 98 %	> 99 %
O <sub>2</sub>	< 0.5 %	0.35 %
N <sub>2</sub>	< 1.0 %	0.2 %
CF <sub>4</sub>	< 0.1 %	800 ppm
SF <sub>6</sub>	< 0.1 %	0.1 %
HF	< 0.2 %	0.2 %
CO <sub>2</sub>	< 0.1 %	500 ppm
H <sub>2</sub> O	< 1.0 ppm	< 1.0 ppm
露点 (H <sub>2</sub> O)	< -105°F	< -105°F
充填量	4.9 lb/容器	
充填圧力	400 psig	

## B 耐フッ素性機器の市販品調査

フッ素取扱い実験を能率良くかつ安全に行うためには耐フッ素性機器の選定と入手が重要である。市販されているバルブ、継手、焼結金属フィルター、圧力計、減圧弁、差圧計および流量計についての調査結果をTable B1~B8 にまとめた。

Table B1 モネル製ダイヤフラム弁及びベローズシール弁

メーカー	型式	ボディー	ステム シール	ステムポイント ディスクまたはプラグ	C <sub>v</sub> 値	最高使用 温度	最高使用圧力	継手
Hoke	ダイヤフラム	モネル	インコネル	デュラニッケル	0.2	116°C 177°C 315°C	21°Cで 6.8Kg/cm <sup>2</sup> G	1/4"管 1/8", 1/4" NPT メスネジ
太野	"	Rモネル	Rモネル	Kモネル (3.5φ) (5φ)	(3.5φ) (5φ)	100°C 300°C	20°Cで 5Kg/cm <sup>2</sup> G	任意
Hoke	ベローズ	モネル	モネル	テフロン	0.36	180°C	180°Cで 20Kg/cm <sup>2</sup> G	1/8" NPT メスネジ 1/4", 3/8" ソケット 溶接 1/4" Gyrolok
"	"	モネル	モネル	Ke 1-F	0.21 0.23	120°C	14Kg/cm <sup>2</sup> G	1/4" ニッケル管
"	"	モネル	ブロンズ	Ke 1-F	0.21 0.23 0.70	120°C	14Kg/cm <sup>2</sup> G C <sub>v</sub> =0.70 については 12Kg/cm <sup>2</sup> G	1/4" 銅管 3/8" 銅管
太野	"	Rモネル	Rモネル	Kモネル Ke 1-F	任意	350°C 100°C	100°Cで 30 Kg/cm <sup>2</sup> G 350°Cで 10 Kg/cm <sup>2</sup> G	任意

Table B2 黄銅製ベローズシール弁

メーカー	ボディ	プラグディスク	フロー バタン <sup>a)</sup>	C <sub>v</sub> 値	最高使用 温度	最高使用圧力	継手
Hoke	Bs	Ke 1-F	S	0.21 0.23	120°C	14Kg/cm <sup>2</sup> G	1/8" NPT メスネジ 1/4" 銅管
"	"	Ke 1-F または 303SS	S 0.059 0.34 0.35	0.059 0.34 0.35	120°C 150°C	21°Cで 41Kg/cm <sup>2</sup> G	1/8", 1/4" NPT メスネジ 1/8", 1/4" Gyrolok
"	"	テフロン	A, (5/8") オフセット	(5/8")	120°C	21°Cで 7Kg/cm <sup>2</sup> G	1/2" NPT メスネジ管, 3/4" 管
太野	"	Ke 1-F	A	(8φ)			Oリング付ユニオン 10φ

a) S: Straight, A: Angle

Table B3 フレアレス型継手

商品名	メーカー	適用管	管径	材質	種類	備考
Gy rolok	Hoke( 東陽通商 )	インチ外径基準 軟質管	1/8" ~ 1"	Bs, 316SS アルミ, 炭素鋼 モネル, ナイロン テフロン	約 37 種	一般用 Pu フッ素化実験 装置に使用
Swagelok	Crawford Fitting Co. ( 日機装 )	"	"	"	約 40 種	一般用
Ty lok	Matheson	"	1/8", 1/4"	Bs, 316SS	6 種	一般用 U フッ素化試験裝 置減圧弁取付けに 使用
L.L. ジョイント	日本・エム・シー	J I S 規格管 銅管および ガス管寸法	6~40mm 1/8~1 1/4 B	Bs, SUS-27, 32, 炭素鋼	約 12 種	一般用
R ジョイント KOYO リング式	富士金属工作(株) コーヨー(株)	ガス管	1/8~3/4B 6~12mm	Bs, SUS	約 10 種	計装用
		J I S 規格管	1/8~1/2B	Bs	約 8 種	計装用

Table B4 耐フッ素性焼結金属フィルター(ニッケルまたはモネル)

形状	製法	孔径( $\mu$ )	面積( $\text{cm}^2$ )	製造元	備考
円筒	粉末焼結	~10	200	日本粉末合金	大平金属工業取扱い — U フッ素化試験装置に使用
"	粉末焼結	~10	300	Ugine-Carbone 社 (France)	商品名: PORAL ニューメタルスエンドケミカルスコ — ポレーション社取扱い
"	せんい焼結	~10	—	Huyck Metal 社 (U. S. A.)	最小径 70 $\phi$ 三井造船(株)調査
楕円	粉末焼結	~10	300	焼結金属工業	丸商産業取扱い
"	粉末焼結	~10	300	Pall 社 (U. S. A.)	— Pu フッ素化実験装置に使用予定

Table B5 モネル製ブルドン管型圧力計

精度 ( 目盛に対する% )	寸法( 直径 )	最小指示範囲	商品名または販売元	備考
2 %	2 $\frac{1}{2}$ "	0~100 psig	Matheson ( U.S.A. )	高千穂商事他取扱い
$\frac{1}{2}$ %	4 $\frac{1}{2}$ ", 6"	0~30 psig	"	
$\frac{1}{2}$ %	3 $\frac{1}{2}$ ", 4 $\frac{1}{2}$ " 6", 8 $\frac{1}{2}$ "	0~15 psig	Helicoid ( U.S.A. )	日機装取扱い —U, Pu フッ素化実験装置に使用
$\frac{1}{2}$ %	100, 150	0~8 psig	Bourdon ( France )	国際技術交易社取扱い —Pu フッ素化実験装置に使用予定

Table B6 耐フッ素用減圧弁

メーカー	カタログ番号	吐出側圧力 ( psig )	流量 ( SCFM )	備考
Hoke	640M20	10~125	30	吐出側圧力計含まず。東陽通商取扱い single
	640M10	5~40	16.6	
Matheson	B-15F-F70M	5~50	—	鈴木商館他取扱い —U, Pu 実験装置に使用 single
Air Products	SER #01-2332			鈴木商館他取扱い —フッ素研で使用 double

Table B7 モネル製差圧計

型式	精度	最小差圧 ( mmH <sub>2</sub> O )	メーカー	備考
ダイヤフラム 一力平衡式	スパンの $\frac{1}{2}$ %	0~130	北辰電機	一般工業計器
ペローズ 一差動トランス 式	3°C の温度変 化 F で 0.2mm Hg	任 意	横河電機他 手 製	—U フッ素化試験装置に使用 原研フッ素研で開発、試作品 —材料費のみ、組立て、調整は別精密測定に適す る。 —Pu フッ素化実験装置に使用予定

Table B8 モネル製流量計

型 式	精 度	最 小 流 量	メ ー カ ー	備 考
質 量 式	2 %	0~0.5 cc/min	Hastings	日機装、東陽通商取扱い —加熱管路を通ったガス流の温度差を測定 (熱容量に関係)
"	2 %	0~5 cc/min 0.01 $\mu$ A/cc/min	Matheson 手 製	—U, Puフッ素化実験装置に使用 原研フッ素研で開発、試作品 —ガス流中においてフィラメントの抵抗変化を測定(熱伝導度に関係)
オリフィス	< 5 %	~1 l/min	一般計器メーカー	通常 d/p セルと組合せ