

公開資料  
PNC TN6410 91-97

回収ウランのUF<sub>6</sub>転換試験

The Conversion Test of Recovered-Uranium to UF<sub>6</sub>

1991年6月

動力炉・核燃料開発事業団  
環境資源開発部  
転換技術開発課

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

☎ 708-06

岡山県苫田郡上斉原村1550

動力炉・核燃料開発事業団

人形峠事業所 (Ningyo Toge Works)

ウラン濃縮工場・技術課

(Engineering Section)

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to : Engineering  
Section and Ningyo Toge Works Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation 1550, Kamisaiharamura Tomatagun Okayama 708-06, Japan

## 回収ウランのUF<sub>6</sub>転換試験

### The Conversion Test of Recovered-Uranium to UF<sub>6</sub>

実施責任者 環境資源開発部 転換技術開発課長  
安田 式郎  
実施担当者 岡本 正文  
高信 修  
菊池 俊明  
山下 孝幸

試験期間： 昭和63年度～平成2年度

目的： 今後、大量に発生することが予想される回収ウランの再濃縮利用に備えた回収ウランのUF<sub>6</sub>への転換技術を開発するため、以下の項目について検討評価を行う。

- ① 転換プロセス及び回収ウラン転換特性。
- ② 微量不純物核種の転換挙動。
- ③ 転換に関する安全性評価。

要旨： 東海再処理工場で回収されたウラン約40トンを用い、乾式転換試験設備にてUF<sub>6</sub>への転換試験を「国内回収ウラン利用実証試験研究」として電力10社との共同研究として実施した。

試験設備は、単体機器の設計処理能力が140mol/hrであり、フッ化工程には流動床炉とフレームタワー炉にのタイプの異なる反応炉を有している。また、回収ウランに含まれる微量不純物除去のためフッ化炉の後段にはケミカルトラップ(MgF<sub>2</sub>)を設けている。転換製品は、全て仕様を満足し、転換処理速度は、ほぼ設計能力を満足することを確認した。

回収ウランに含まれるRu, Np, Puの転換工程での挙動(除染係数)をほぼ把握した。また、回収ウラン転換時の従事者被曝、機器線量当量率を評価し、回収ウラン転換に関する安全性を確認した。

— 目 次 —

1	転換試験	1-1
1.1	試験概要	1-1
1.2	転換プロセス	1-1
1.3	運転結果	1-3
2	核種挙動評価	2-1
2.1	転換工程における不純物核種の除染係数評価	2-1
2.2	F2フッ化工程内の不純物核種の蓄積分布評価	2-1
2.3	F2フッ化炉における不純物核種分離の評価	2-2
3	安全性評価	3-1
3.1	概要	3-1
3.2	機器等の線量当量率	3-1
3.3	各種安全管理データ	3-2
4	まとめ	4-1

# 1 転換試験

## 1.1 試験概要

今後、国内の再処理施設からは、回収ウランが大量に発生することが予測され、近い将来、本格的に回収ウランを利用する必要性が生じるものと予想される。しかし、回収ウランには、極微量ではあるが天然ウランには含まれないウラン同位体（ $U^{232}$ 、 $U^{236}$ 等）や核分裂生成物、超ウラン元素が含まれているので、回収ウランの利用に際してはこれらの元素の挙動や安全性を含めたその特性を把握しておく必要がある。

本試験は、これまでの小規模試験の成果を踏まえ実証規模にてUF<sub>6</sub>転換工程における回収ウランの諸特性把握を目的として実施した。

東海再処理工場で回収されたウラン約40トン（PWR系、BWR系それぞれ約20トン）を使用し、動燃・人形峠事業所のUF<sub>6</sub>転換試験設備を用いて、転換特性や主要なF・P、TRU等不純核種の転換工程に於ける挙動を調べた。また、回収ウラン処理量と線量当量率、従事者被ばく等回収ウラン転換時の安全性についてU<sub>232</sub>及び娘核種との関連で検討した。

## 1.2 転換プロセス

東海再処理工場で回収されるウラン（ $UO_3$ ）は、比表面積が小さく化学的反応性に乏しいためUF<sub>6</sub>転換プロセスでは、初段に反応性の改善を目的として水和処理工程を設けている。水を付加された $UO_3$ は、約550℃の $N_2-H_2$ 雰囲気下で脱水・還元し $UO_2$ とする。得られた $UO_2$ をHFガス雰囲気下に置きUF<sub>4</sub>とする。操作温度は約400℃である。次に、UF<sub>4</sub>にフッ素ガスを作用させUF<sub>6</sub>とする。操作温度は約420℃である。生成した気体状のUF<sub>6</sub>は、コールドトラップで冷却・捕集する。揮発性不純物除去のためUF<sub>6</sub>反応炉とコールドトラップ間にケミカルトラップを設けている。本プロセスでは、フッ素に対する耐蝕性の観点から機器材料にはモネルを使用している。反応炉型は、流動床炉を主体としている。ふっ化工程には反応炉として、流動床型炉とフレームタワー型の炉の2つのタイプの炉を有している。単体機器の設計上の処理能力は、140mol/hrである。図1.2-1には転換プロセスフローを示す。

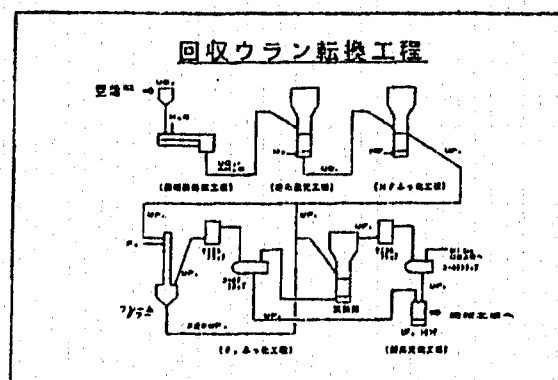


図1.2-1 転換プロセスフロー

### 1.3 運転結果

#### (1) 運転条件と処理速度

本試験でのプロセス条件を図1.3-1に示す。本試験では、不純物の挙動評価精度向上のため運転条件は変化させていない。図1.3-2には、転換処理速度を設計値と比較して示す。処理速度の実績値は、ホッパ交換、機器整備、機器昇温等の運転に付帯し必要な時間は含まず、定常的に転換されている時の処理速度をtU/Dayの単位に換算したものである。ほぼ、設計値に近い領域での運転ができた。F2フッ化工程では、付帯設備であるフッ素昇圧機がトラブルを起こしたため低い値となった。

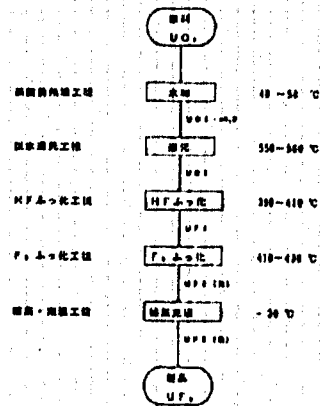


図1.3-1 プロセス条件

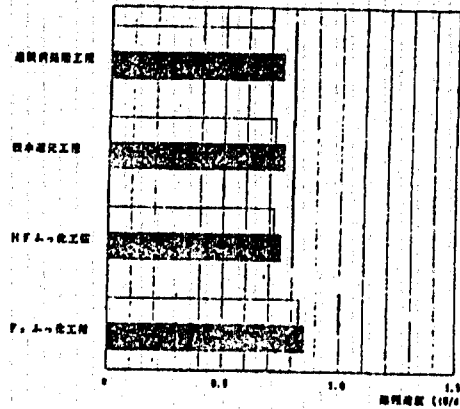


図1.3-2 転換処理速度

#### (2) 物質収支

図1.3-3に、ウランの物質収支を示す。ウラン回収率は、約95%であった。損失分は、流動媒体への残留分と排気系に設けているNaFトラップでの吸着分の割合が高い。流動媒体への残留については、流動媒体交換時のフッ素洗浄時間を長くすれば少なくすることが可能である。NaFトラップへの移行量はコールドトラップの捕集温度を低下させることで減少させることができる。NaFトラップに吸着したウランはNaFを加熱させることで回収できる可能性がある。

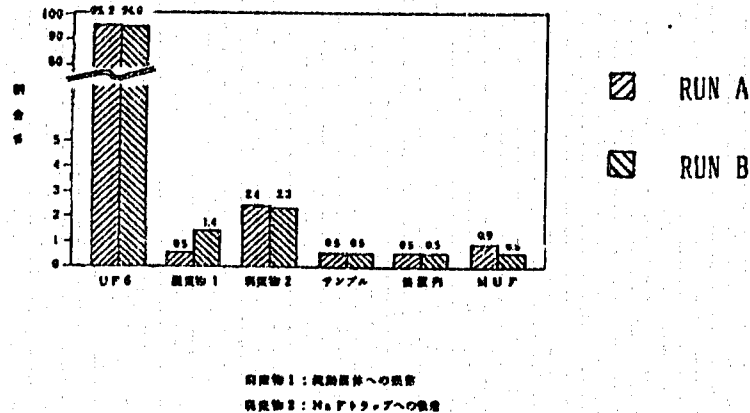


図1.3-3 ウランの物質収支

## 2. 核種挙動評価

### 2.1 転換工程内における不純物核種の除染係数評価

転換工程におけるF<sub>2</sub>ふっ化工程の運転は、主反応装置に流動床のみを用いた流動床単独系と流動床とフレームタワーの2基の反応装置を用いた併用運転の2種類の運転モードがある。

原料のUO<sub>2</sub>と製品のUF<sub>6</sub>を分析し、不純物核種を定量することにより、転換工程内における除染係数を評価した。

再処理工場から発生する回収ウランは工場内においてよく精製されており、放射性不純物の多くは分析を実施しても検出されないが、精密分析を実施し定量された核種について除染係数を計算した。表2-1に結果を示す。

表2-1 不純物核種の除染係数

核種	除染係数	
	流動床単独系	併用系
Np237	約 $4 \times 10^{-1}$	> 約 $2 \times 10^{-2}$
Pu239, 240	約 $7 \times 10^{-3}$	約 $1 \times 10^{-2}$
Am241	> 約 $1 \times 10^{-1}$	> 約 $3 \times 10^{-3}$
Cm244	> 約 $2 \times 10^{-3}$	> 約 $3 \times 10^{-2}$
Ru106	約 $6 \times 10^{-1}$	約 $4 \times 10^{-1}$

### 2.2 F<sub>2</sub>ふっ化工程内の不純物核種の蓄積分布評価

図2-1に(1)で除染係数を求めることのできたNp237, Pu239+240, Ru106の原料から製品に至る間の濃度変化を示す。これより、UF<sub>6</sub>がUF<sub>4</sub>に転換される工程(F<sub>2</sub>ふっ化工程)で大きな除染が起こることが明らかになった。

したがって、これらの核種の転換工程の除染係数は、F<sub>2</sub>ふっ化工程の除染係数と見なされる。

また、Np237とPu239+240は、F<sub>2</sub>ふっ化工程の中において、流動床の流動媒体及びケミカルトラップの充填物中から定量され、Ru106はケミカルトラップの充填物中から定量された。

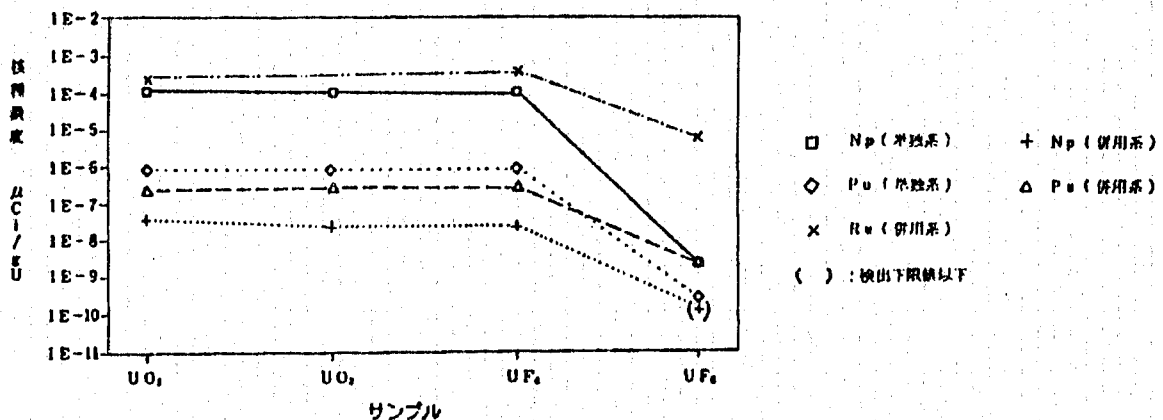
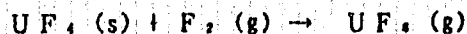


図 中間製品中のNp, Pu, Ru濃度の推移

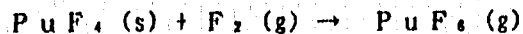
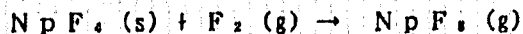
### 2.3 F<sub>2</sub> ふっ化炉における不純物核種分離の評価

F<sub>2</sub> ふっ化工程では、固体のUF<sub>4</sub>が気体のUF<sub>6</sub>にF<sub>2</sub> ふっ化されるが、その際に揮発性のふっ化物となる不純物はUF<sub>6</sub>に同伴するのに対し、不揮発性のふっ化物となる不純物はF<sub>2</sub> ふっ化炉内に残留する。

Np, Puは、ウランが、



の反応でふっ化される際に、



の反応に従ってふっ化されると考えられる。

それぞれの反応のふっ化反応のおこりやすさを判断するために各反応式の標準生成自由エネルギー変化を比較した。



ウランが最もふっ化されやすくNpがそれに次ぐことがわかる。Puは標準生成自由エネルギーの値が正となり、6ふっ化物への反応は進行しにくい。また、ふっ化されてPuF<sub>6</sub>になっても気体雰囲気中のF<sub>2</sub>分圧、温度等の条件で容易に不揮発性のPuF<sub>4</sub>に還元される特性を持つ。

また、ふっ化炉で生成したNpF<sub>6</sub>及びPuF<sub>6</sub>が、ふっ化炉の反応ゾーンに大量に存在する大量のウランの存在により固体に還元される性質も持つ。

以上のことから、Np, Puはふっ化物の化学的性質がウランと似ているにもかかわらず、F<sub>2</sub> ふっ化反応の反応性、生成した6ふっ化物の安定性の相違等により、ウランと一部が分離されるものと考えられる。

また、RuはF<sub>2</sub> ふっ化反応で生成すると考えられるRuF<sub>5</sub>, RuOF<sub>4</sub>がF<sub>2</sub> ふっ化工程の運転条件では揮発性が強いいため、ふっ化炉には残留しない。



### 3. 安全性評価

#### 3.1 概要

約2年間にわたり実施された「国内回収ウラン利用実証試験研究（転換等評価研究）」では回収ウランのUF<sub>6</sub>への転換中、種々の安全性に関するデータを採取した。本報はこれらのデータを用いて回収ウランの転換施設に対する安全評価について述べる。

#### 3.2 機器等の線量当量率

##### (1) 単体機器等の線量当量率

回収ウラン中に含まれている不純物による線量当量率の増加が予想されるため、各機器の線量当量率を測定した。特に外部被ばくに大きく起因するU-232（U-232の娘核種にはBi-212及びTl-208などγ線エネルギーの高い核種が存在する。）の含有量と表面の線量当量率との関係を1例として、原料であるUO<sub>3</sub>の収納容器の場合について図3-1に示す。U-232の含有量が増加するにつれて線量当量率も増加する傾向がみられる。また、再処理後の経過日数の比較的長いペーンのもの（PWR82-2及びPWR82-1）ではより多くのウラン娘核種が生成するため比較的高い線量当量率となっており、U-232の含有量のみならず、再処理後の経過日数にも依存していることがわかる。

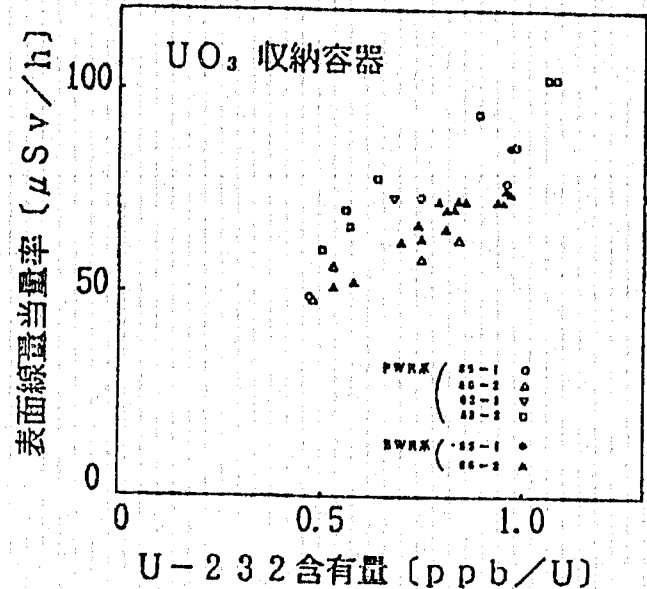


図3-1 U-232含有量と線量当量率の関係

##### (2) 機器内への不純物の蓄積

転換は①水和（UO<sub>3</sub> ⇒ UO<sub>3</sub>・水和物）、②還元（UO<sub>3</sub>・水和物 ⇒ UO<sub>2</sub>）、③UF<sub>4</sub>ふっ化（UO<sub>2</sub> ⇒ UF<sub>4</sub>）、④F<sub>2</sub>ふっ化（UF<sub>4</sub> ⇒ UF<sub>6</sub>）及び⑤捕集充填（捕集：UF<sub>6</sub>、固体／充填：UF<sub>6</sub>、液体）の5工程で構成されている。

転換で初めてウランの状態が変化（粉末⇒気体）するF<sub>2</sub>ふっ化の主反応装置の1つである流動床での累積のウラン処理量と線量当量率の関係を図3-2に示す。

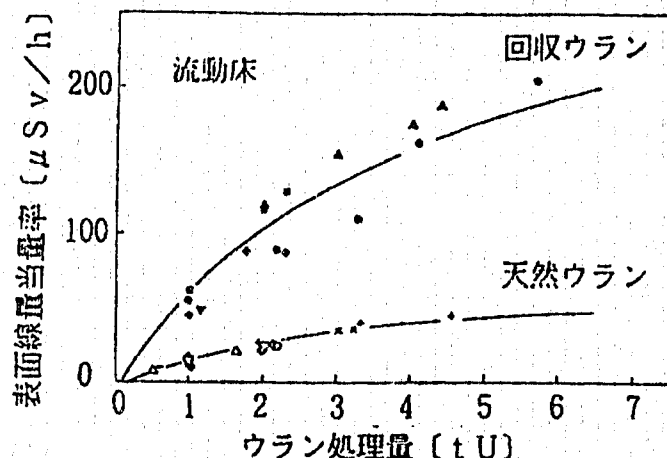


図3-2 ウラン処理量と線量当量率の関係

不揮発性の不純物が流動層（流動媒体：不活性アルミナ）内に蓄積し、ウラン処理量とともに線量当量率が増加していることがわかる。

流動媒体の分析からはBi-212, Tl-208, Pa-234mなどのウラン娘核種が検出されている。

また、天然ウランの処理時と比較し、ウラン処理量約5トンでは約6倍の高い値であり、回収ウラン中のU-232の寄与がうかがえる。しかし、運転操作上の必要性により約5tU処理毎に流動媒体を交換するため、これ以上に線量当量率が増加することはない。

転換のもう1つの主反応装置であるフレームタワーにおいては、装置内壁に付着したと考えられる不純物等により若干の線量当量率の上昇がみられたが、流動床のように増加する傾向は差ほどみられなかった。付着した不純物等としては、Bi-212, Tl-208, Pa-234mなどが考えられる。

また、④と⑤の工程間に設置されている吸着塔（吸着剤： $MgF_2$ ）により揮発性の不純物を除去するが、この吸着塔では前述の流動床及びフレームタワーに比べ低い値（ $\sim 4 \mu Sv/hr$ ）であった。吸着剤の $MgF_2$ の分析により吸着核種としてPu-238, Np-237, Ru-106等が検出されているが、線量当量率に寄与するほどではないと推定される。

なお、 $F_2$ ふっ化工程以前の3工程の主反応装置である連続水和機、脱水還元塔及びHFふっ化塔での線量当量率の増加はみられなかった。

### 3.3 各種安全管理データ

回収ウランの転換中の試験施設について、管理区域内における①線量当量率、②表面密度、③空気中放射性物質濃度、④放射線業務従事者の線量当量、試験施設からの⑤排気・排水中放射性物質濃度及び⑥周辺監視区域境界での線量当量率を測定した。

この結果、①の線量当量率及び④の放射線業務従事者の線量当量の2つの項目について、流動床やフレームタワーへ接近する作業等により天然ウラン処理時よりも高い値となったが、最高線量当量該当者の年間換算値（運転期間は6箇月/年）は法令値に比べ約10分の1であり、問題はなかった。

他の4項目についても天然ウランの処理時と同等の値であり、いずれも基準値等を下回っており、回収ウランによると思われる差異はみられず、安全上問題はなかった。

#### 4 まとめ

回収ウラン40トンを使用した実証規模の転換試験により、転換条件、微量含まれるFP、TRU不純物の転換挙動を把握し、また、転換時の安全性を確認した。