

N 841-77-45

(配布限定)

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。
2001. 6. - 6

[技術情報室]

空気中における六フツ化ウランエアロゾルの 挙動に関する研究(I)

Studies on the Behavior of UF₆ Aerosol in a Test Chamber (I)

1977年8月

動力炉・核燃料開発事業団
東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

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

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

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

T
SN 841-77-45
1977年8月



空気中における六フッ化ウランエアロゾルの挙動に関する研究 (I)

* 実施責任者 加藤 仁三
* 報告者 石田 順一郎
** 坂本 源二
* 吉崎 裕一
* 野村 幸広
* 竹田 誠一
*** 石黒 秀治

要 旨 小型の密封容器 ($3 m^3$) 中へ漏洩した六フッ化ウランエアロゾルを対象として、放射性物質濃度、粒子径分布等の測定をおこなった。これらの結果を報告する。

-
- * 安全管理部 放射線管理課
 - ** 常陽産業株式会社
 - *** 本社 安全管理室

目 次

1. まえがき	1
2. 六フッ化ウランエアロゾルの特長	1
3. 試験項目	2
4. 試験の方法	5
4. 1 試験装置	5
4. 2 UF ₆ エアロゾル発生法	6
4. 3 試験条件	7
5. 試験結果ならびに考察	8
5. 1 UF ₆ 空気中漏洩状況	8
5. 2 UF ₆ エアロゾルに対するサンプリング用汎紙の捕集効率	20
5. 3 アルカリ汎紙のフッ化水素に対する捕集効率	21
5. 4 空気中放射性物質濃度とフッ化水素濃度の関係	25
5. 5 UF ₆ エアロゾルの粒度分布	32
5. 5. 1 測定方法	32
5. 5. 2 測定結果	32
6. まとめ	39
7. 今後の検討課題	40
 表-1 UF ₆ の主な物性値	2
表-2 UF ₆ , HF の許容値等	3
表-3 放射能測定器	3
表-4 天然ウランの同位体 α 効率	12
表-5 ウラン系列の放射平衡	12
表-6 UF ₆ エアロゾルに対する各種サンプリング汎紙の捕集効率	21
表-7 HF 測定法比較表	22
表-8 イオンメータ仕様	23
表-9 電子顕微鏡仕様	33
表-10 画像解析装置仕様	34
表-11 静電型微粒子分析装置仕様	35

写真 - 1	UF ₆ 空気中挙動試験装置全景	6
写真 - 2	UF ₆ 漏洩状況	13
写真 - 3	電子顕微鏡	33
写真 - 4	画像解析装置	34
写真 - 5	静電型微粒子分析装置	35
写真 - 6	Millipore - AA に捕集された UF ₆ エアロゾル	36
写真 - 7	HE-40T に捕集された UF ₆ エアロゾル	36

図 - 1	UF ₆ の蒸気圧	4
図 - 2	UF ₆ 空気中挙動試験装置概略図	5
図 - 3	UF ₆ エアロゾル発生部	7
図 - 4	混合ノズル断面図	11
図 - 5	UF ₆ エアロゾル白煙濃度測定法	11
図 - 6	UF ₆ ガス放出後の床表面汚染密度分布	14
図 - 7	換気回数 v.s.沈着比	15
図 - 8	空気中放射性物質濃度 v.s. 表面汚染密度	16
図 - 9	(α 放射能) / (β 放射能) の経時変化	17
図 - 10	サンプリング戸紙に捕集した UF ₆ エアロゾルのアスペクトル	18
図 - 11	サンプリング戸紙に捕集した UF ₆ エアロゾル等の X 線回折図	19
図 - 12	イオンメータ校正曲線	24
図 - 13	イオン電極法によるフッ化水素連続測定装置	26
図 - 14	空気中放射性物質濃度 v.s. フッ化水素濃度	27
図 - 15	空気中放射性物質濃度 v.s. 時間	28
図 - 16	換気回数 v.s. 空気中放射性物質濃度半減時間	29
図 - 17	空気中放射性物質濃度 v.s. フッ化水素濃度	30
図 - 18	UF ₆ エアロゾル濃度 v.s. 時間	31
図 - 19	静電型微粒子分析装置概略図	35
図 - 20	UF ₆ エアロゾル個数粒度分布 (電子顕微鏡)	37
図 - 21	UF ₆ エアロゾル粒度分布 (静電型微粒子分析装置)	38

1. まえがき

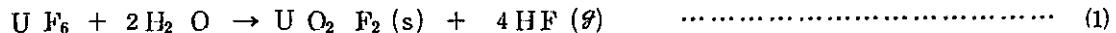
動燃事業団では、四フッ化ウランから六フッ化ウランへの転換試験施設、遠心分離法によるウラン濃縮のための研究開発施設等、六フッ化ウランを取り扱う施設が、数多く運転、操業されている。これら施設における六フッ化ウランの安全管理について、約10年の経験を得て来た。この間、各種安全上の問題に対し措置が講じられ、特に施設が大型化し、多量のUF₆ガスを取扱う場合の問題を検討して来た。

本報は、六フッ化ウランが、装置系より空気中へ漏洩した場合の挙動を小規模の実際の漏洩試験を行なうことにより調査し、報告したものである。本報の内容としては、1) 六フッ化ウランの放射線管理や保健物理上で重要と考えられる事項、2) 小漏洩試験装置、3) 本試験結果について述べたものである。

2. 六フッ化ウランエアロゾルの特徴

六フッ化ウラン（以下 UF₆）は、反応性の高い物質であり、水、エーテル、アルコール等と化学反応をおこして、可溶性の物質を生成する。また、ほとんどの有機化合物や、数多くの金属とも反応する。しかし、ほぼ飽和しているフッ化炭素との反応性は低く、酸素、窒素、乾燥空気等とは反応しない。アルミニューム、銅、モネル、ニッケル、アルミ金（アルミニュームと銅の合金）等に対する侵食性も小さい。UF₆ の主な物性値を表-1に、UF₆ の蒸気圧を図-1に示す。⁽¹⁾⁽²⁾

通常、UF₆ は気密度の高い密封系で、適切な温度コントロールのもとで取扱かわれるが、系からのリーク等により、UF₆ が空気と接触すると、空気中の水分と激しく反応して、フッ化ウラニル（以下、UO₂F₂）、フッ化水素（以下HF）の白煙を生じる。その反応式は、



である。UO₂F₂ は、放射性物質であり、また重金属であることによる化学毒、フッ化物であることによる高反応性等が考えられる。HFも、また、腐食性が強く、化学性の高い物質である。これらの許容値等を表-2に示す。

3. 試験項目

U F₆ 単独あるいはH F単独の物性等に関する試験は、数多くなされているが、これら両者の混合系の挙動に関するデータは非常に少ない。これら混合系について次のテーマで、試験をおこなった。

- 1) 白煙としての目視可能な最低濃度の測定
- 2) サンプリング用汎紙の U F₆ エアロゾルに対する捕集効率
- 3) アルカリ汎紙の H F に対する捕集効率
- 4) 空気中放射性物質濃度と H F 濃度
- 5) 空気中放射性物質濃度と表面汚染密度
- 6) U F₆ エアロゾルの粒度分布

(1)~(6)

表-1 U F₆ の主な物性値

外観	常温で無色の揮発性固体	
密度	固体	5.09±0.06 g/cc (20.7°C)
		4.87 g/cc (62.5°C)
	液体	3.64 g/cc (64.052°C)
		3.41 g/cc (100°C)
	气体	0.0199 g/cc (70°C, 1.5気圧)
昇華点	56.54°C (大気圧)	
三重点	64.052°C, 1137.47 mmHg (64.02±0.05)	

表-2 UF₆, HFの許容値等

UF ₆	HF
告示値、空气中 $2 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	排出基準（大気汚染防止法） $1 \text{mg}/\text{m}^3$ (最小値)
水 中 $6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	排水基準
最大許容摂取量	(水質汚濁防止法) $15 \text{mg}/\ell$
吸 入 $2.5 \text{ mg}/\text{日}$	(上積条件) $8 \text{ mg}/\ell$
経口摂取 $150 \text{ mg}/2\text{日}$	環境基準（条例） p p b レベル
	作業環境中許容濃度 (AOGIH) 3 ppm

表-3 放射能測定器

検出部	測定線種	検出限界	較正
ZnS(Ag) 5.0 cm ϕ	α	1 pCi	頻度：1回/6月 線源： U_3O_8 , $1.21 \times 10^4 \text{ dpm}$ B.G.： $\sim 0.2 \text{ cpm}$ 効率： $\sim 40\%$
GM管 5.0 cm ϕ	$\beta + \gamma$	50 pCi	頻度：1回/6月 線源： U_3O_8 , $3.0 \times 10^3 \text{ dpm}$ B.G.： 30 cpm 効率： $\sim 35\%$

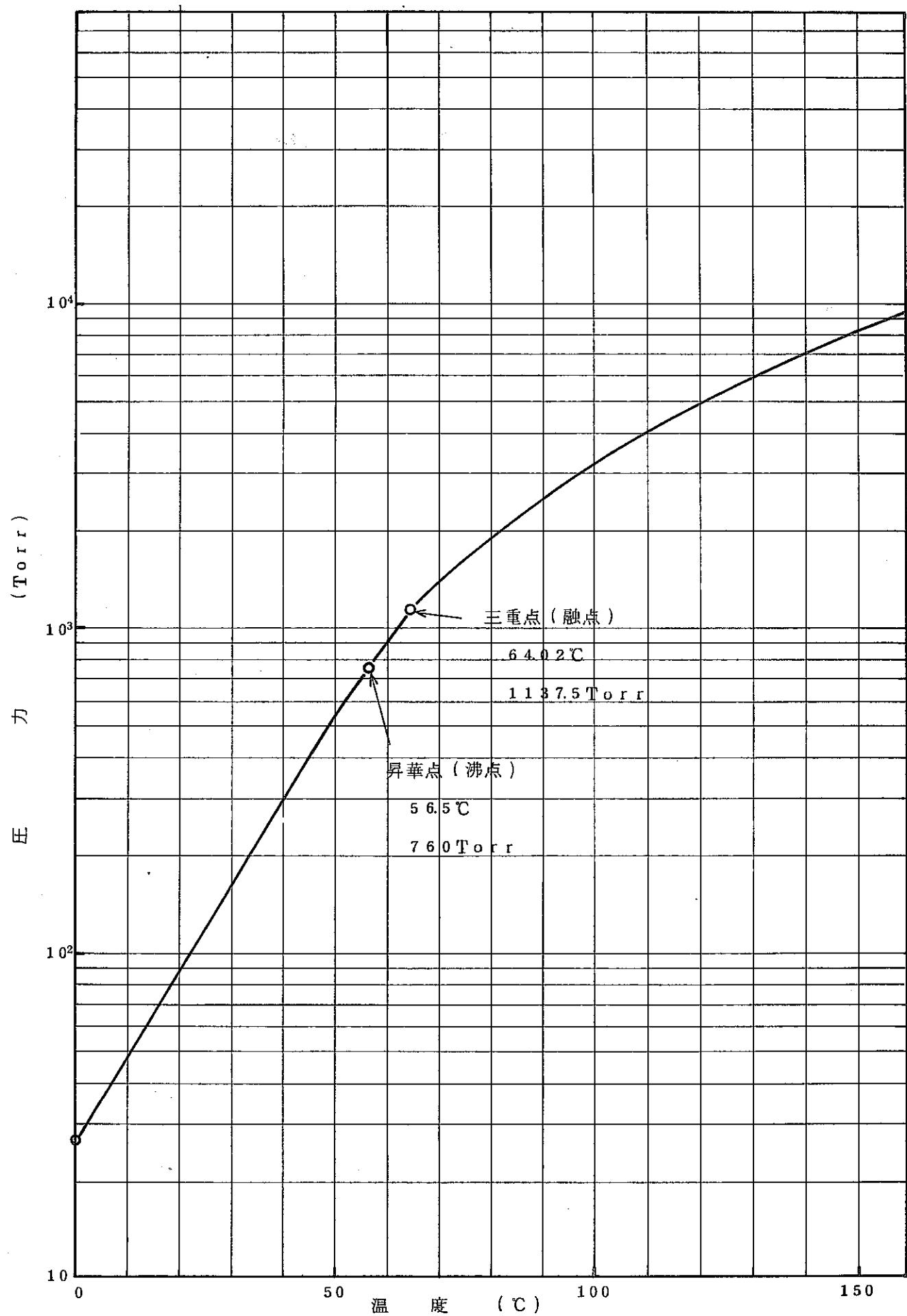


図-1 UF_6 蒸 気 壓

4. 試験の方法

4.1 試験装置

装置の製作にあたっては、種々の文献を参考にした。^{(4)～(7)}

試験装置の概略を、写真-1、図-2に示す。装置は、大きくわけて、UF₆エアロゾル発生部、テストチャンバー部および排気処理部から構成されている。

UF₆エアロゾル発生部は、UF₆発生槽、バラストタンク、ミキシングノズル、UF₆回収槽、アルミナトラップ、N₂ガス供給部、供給空気湿度調整器、混合ノズルから構成される。UF₆接触部は、すべてSUS製、耐圧2kg/cm²Gの設計基準で製作した。UF₆発生槽、回収槽は5kg/cm²Gの耐圧を基準とした。

テストチャンバー部は、大きさ3(W)×1(L)×1(H)mのSUS及び透明アクリライト板製の容器で、内部での状況が目視できる構造となっている。また、ネオプレン製のグローブをアクリライトパネル面に装着してあるので、UF₆漏洩中も、チャンバー内での作業がおこなえる構造となっている。

排気処理部は、プレフィルター、NaFトラップ、スクラバー、高性能フィルターからなり、最終的には、建家の排気ダクト系に接続されており、処理された排気は、建家スタックから大気中に排出される。建屋スタックには、ZnSシンチレーション型α線ダストモニタが設置され、環境への放出は、バックグラウンドレベル以下であることが確認されている。

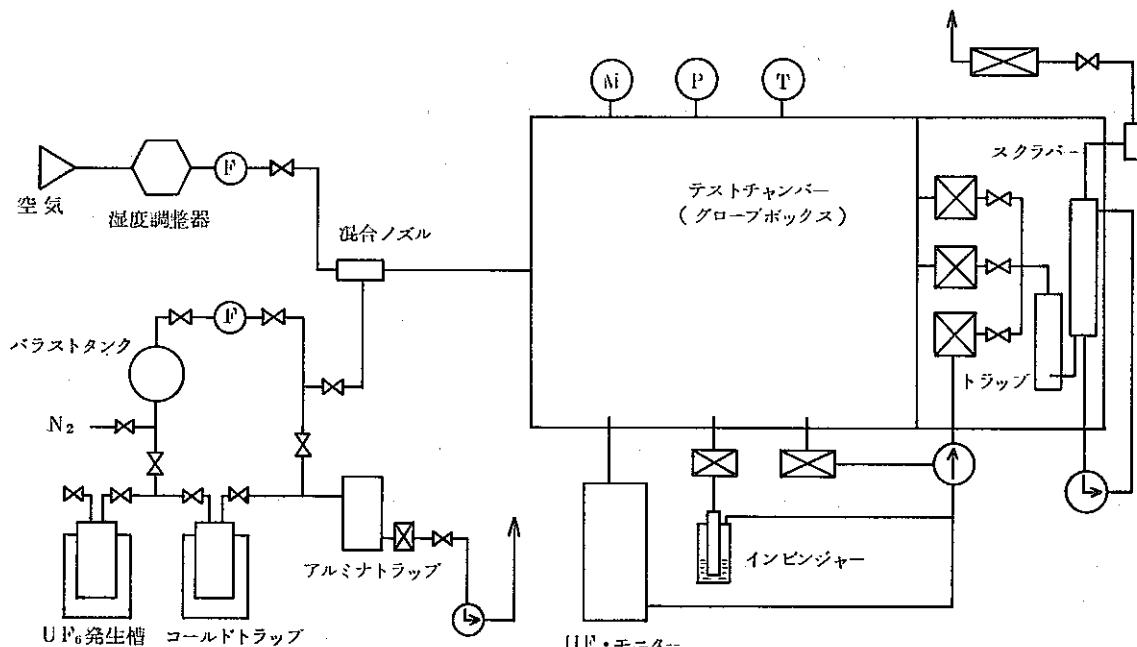


図-2 UF₆ 空気中拳動試験装置概略図

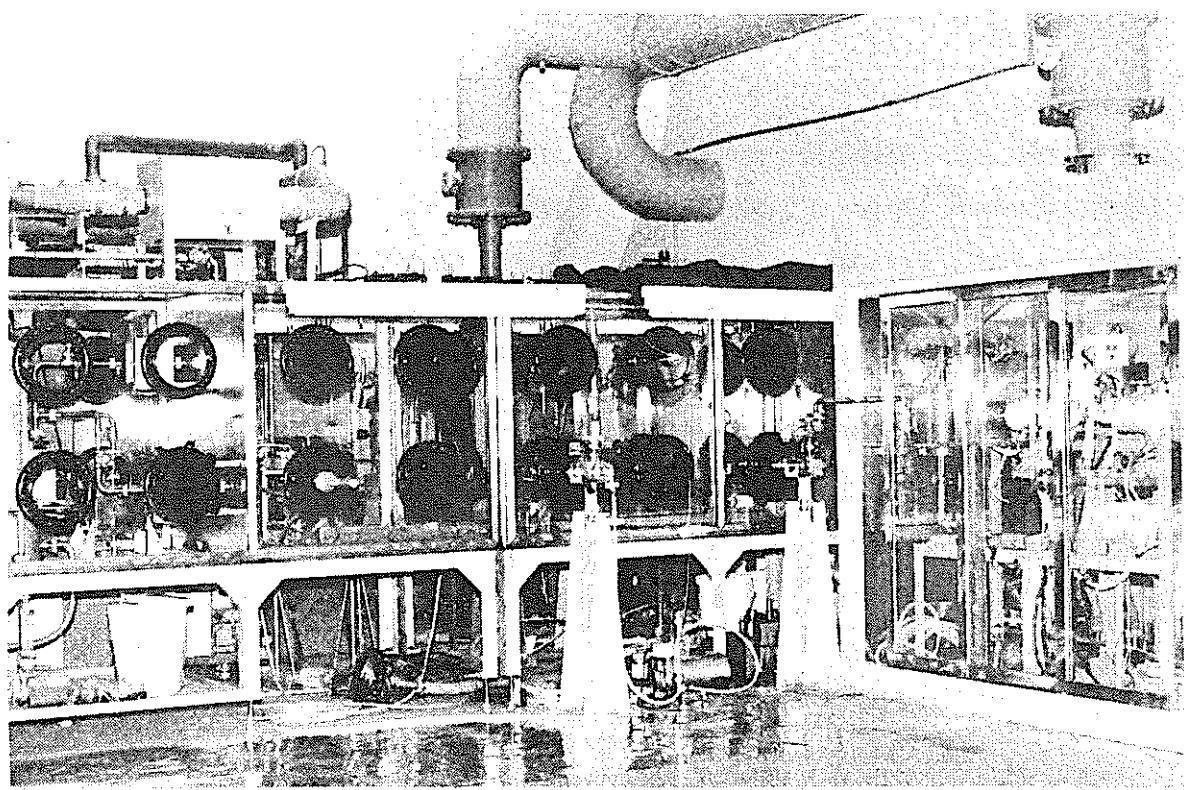


写真1 UF₆ 空氣中挙動試験装置全景

4.2 UF₆ エアロゾル発生法

UF₆ エアロゾルの発生法について、図-3を用いて説明する。

試験終了時には、すべてのバルブを閉じ、発生部の配管内を真空状態にして放置する。従がって、試験をはじめるにあたっては、この状態で再度真空度を測定して、十分気密性があることを確認のうえで、開始する。まず、排気ポンプを動かし、バラストタンクの真空度を更に高める。次に、V-8を閉じ、V-2を開放して、バラストタンク付属の圧力計をみながら、所定の圧力まで、UF₆ をバラストタンクへ移送する。この配管系統は、UF₆ の配管での凝固を防ぐため、移送開始前にリボンヒーターで60℃前後に加温されている。移送が済むと、V-5を閉じ、V-6を開けることにより、バラストタンク内圧力が、0.5 kg/cm²Gになるまで、N₂ ガスを封入する。0.5 kg/cm²Gになったことを確認のうえ、V-6を閉じ、V-9を開けて、[UF₆ + N₂]ガスを混合ノズルに導く。混合ノズルは図-4に示す構造のもので、この部分で、[UF₆ + N₂]ガスは、湿度調整された空気と十分混合され、テストチャンバーへ放出される。これら放出ガスを試験対象エアロゾルとした。

UF₆ の放出量は、次の様にして求めた。UF₆ 充填圧を P_{UF6} Torr, N₂ 充填圧を

P_{N_2} Torr で、バラストタンク内圧力が、 P_{end} Torr になるまで $[UF_6 + N_2]$ ガスを放出したとすれば、 $[UF_6 + N_2]$ ガス充填部の容積が 4 l であるので、テストチャンバーへの放出量は

$$352 \times \frac{P_{UF_6}}{760} \times \frac{4}{27.3} \times \frac{P_{UF_6} + P_{N_2} - P_{end}}{P_{UF_6} + P_{N_2}} \dots \dots \dots \quad (2)$$

となる。27.3は、60°Cの気体1モルが占める容積であり352は、UF₆の分子量である。バラストタンク内では、UF₆とN₂が均一に混合され、テストチャンバーへの放出は、両者が、バラストタンク内での混合比と同一の割合でなされるものとした。一例として、

$P_{UF_6} = 20$, $P_{N_2} = 1080$, $P_{end} = 900$ とすれば、テストチャンバーへの放出量は、 $0.25 \text{ gr } UF_6$ となる。今回の試験は、ほぼ、この程度の放出量でおこなった。

また、本装置 UF_6 発生部を用いるかわりに、 UF_6 を封入した Monel 製 75 cc ボンベをテストチャンバー内に持ち込み、同ボンベを、リボンヒーターで 60 ℃ 前後に加熱し、バルブ開放により UF_6 エアロゾルを発生させる手法も用いた。

4.3 試験条件

試験条件は、次の通りである。

温 度、压 力：常温、常压

湿 度 : 30~95% RH

放射性物質濃度 : 最大 $5 \times 10^{-8} \mu\text{Ci/cm}^3$ 程度

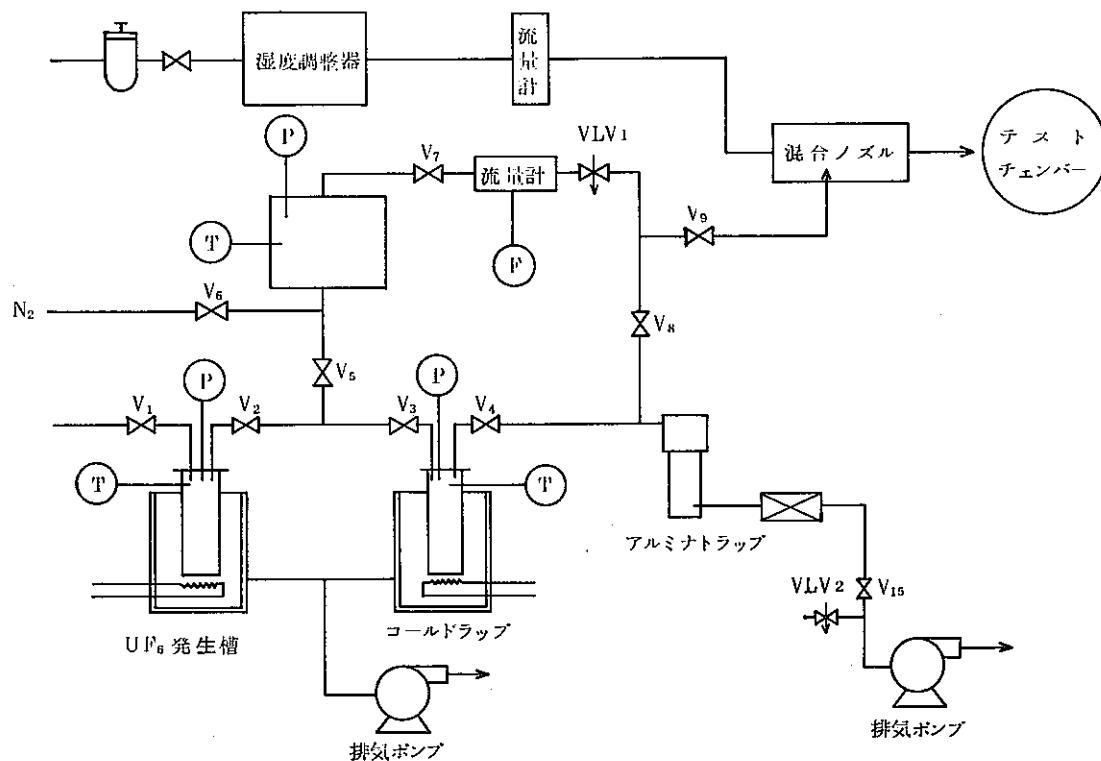


図-3 UF₆ エアロゾル発生部

5. 試験結果ならびに考察

5.1 UF₆ 空気中漏洩状況

UF₆ ガスは空気中の水分と反応して、 UO₂ F₂ の白煙を生じるが、この白煙は、 1 mg UO₂ F₂ / cm³ の濃度で目視可能であるとされている。⁽¹⁸⁾ ウランの空气中放射性物質濃度に換算すると、 $5.22 \times 10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。

放射性物質濃度の差による白煙発生状況の違いを見い出すため、 UF₆ 放出量だけを段階的にかえ、その他の放出条件は一定に保ったままで、放出実験をおこなった。放出は、 N₂ ガスをキャリアガスとして、常温、常圧のテストチャンバー空気中へおこなった。図-4 の混合ノズルで [UF₆ + N₂] ガス出口先端部のノズル内径は 4 mm 中であり、またテストチャンバーへ導びかれる湿度調整空気流量率は 150 l/min に調整した。放出に際し、バラストタンク内 UF₆ 分圧を種々にかえたが、 N₂ ガスを同タンクへ導入し、同タンク内圧力を、常に、 0.5 kg/cm² G とした。ここで、図-3 の V-9 を、約 15 秒間、開放して、 [UF₆ + N₂] ガスを混合タンクよりテストチャンバーへ放出した。最大放出量は、 4.2 で計算したように、ほぼ 0.25 g UF₆ であるので、吐出率は、 1 g UF₆ / min である。混合ノズルはテストチャンバーパネル面に取り付けられており、ここより放出された UF₆ エアロゾル（既に、加水分解反応が生じていると思われる所以、エアロゾル状態である）を、反対側パネル面側の同じ高さの所に設置されたサンプリングヘッドより、 25 l/min で、 10 秒サンプリングし、 Millipore-AA 沢紙に捕集して、白煙の放射性物質濃度を求めた。サンプリングヘッドは、テストチャンバー内に 30 cm 插入されており、混合ノズルより吹きだした白煙の先端が、サンプリングヘッドに到達した時点よりサンプリングを開始した（図-5）。サンプリングヘッドは、白煙発生とほぼ同時に、その中に包みこまれた。写真撮影は、サンプリング開始 5 秒後におこなった。結果を写真-2 に示す。湿度調整空気の湿度が 80% RH、流量率 150 l/min の条件下では、 $10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ オーダー以上で、 UF₆ の漏洩が、白煙として、認知できることがわかる。しかし、漏洩した UF₆ がテストチャンバー内に拡散し、 $10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の濃度になった状態でも、淡い煙状のものの存在が認知できるが、当初に述べた、 $10^{-10} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ のオーダーでは、白煙としては、とらえがたい。

$10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ のウラン濃度をつくりだしたときの吐出率は、計算より、 0.2 g UF₆ / min である。吐出率がこの十分の一で、キャリアガスを伴なわない場合の漏洩状況を次に示す。UF₆ ガスの発生は、 UF₆ 封入小型ポンベをリボンヒーターで 60 °C 前後に加熱し、ポンベのバルブを開放することによりおこなった。漏洩前後のポンベの重量差（1 μCi 天然ウラン = 1.5 g, 表-4) と漏洩時間より、吐出率は 0.02 g UF₆ / min であった。

このときは、加熱ポンベ温度から判断して、900 Torr の UF₆ ガス（漏洩初期の状態）が空気中へ放出されたものと思われる。ポンベより、空気中へ出たものは、すぐに、白煙として目視できたが、この白煙は、いったん下降し、途中で、上下二方向に分かれた。HF検知計を用いての測定結果では、HF濃度は、ポンベ直上で50~60 ppm、ポンベ直下で0.5 ppm という値を得たので、重い UO₂F₂ は下方へ、軽い HF は上方へ拡散されたものと思われる。

UO₂F₂ は下方へ拡散されるが、常に漏洩源直下の床表面汚染密度が、最大値を示すわけではない。テストチャンバーの換気回数、漏洩高さを、種々に変えた場合の床表面汚染密度分布を表わしたものが図-6である。吐出面は、水平方向を向いているが、漏洩状況から判断して、水平方向への吐き出し速度は、ほぼ0であり、テストチャンバー内での拡散は、主に、内部に存在する微小気流によるものと思われる。ポンベ据付位置はテストチャンバーの中央である。床表面汚染密度は、50 mmの紙片をチャンバー内にしきつめ、内部の空气中放射性物質が十分排気されてから外へ取り出し、測定することにより求めた。最大の表面汚染密度を検出した箇所を100として、他を換算した。床上40 cmよりの放出では、換気回数が～0回/hrであってもチャンバー内に若干の空気の流れが存在するようで、漏洩源直下が最大値を示していない。換気回数が増加していくと、チャンバー内に空気の循環流が生じ汚染は、他の部位までひろがる。放出高さが4 cmとなると、換気回数がいくらかあつても、汚染は放出源直下に限られ、他部分へのひろがりは少ない。

沈着比を、総放出量に対するチャンバー床面への沈着量の比と定義して、換気回数をパラメータにした場合の関係を図-7に示す。床上40 cmからの放出では、換気回数が1回/hr以上の場合には、沈着比は余り変化せず20%前後となる。放出源の高さが低くなると、床面への沈着量は増大するが、換気回数が一定以上あれば、放出源が高い場合と同様の結果を生じる。これらの点から、UF₆ エアロゾルが、空気の流れとともに運動しやすい微粒子であることがわかる（粒度分布については、5.5 UF₆ エアロゾルの粒度分布参照）。

空气中放射性物質濃度と表面汚染密度との関係を図-8に示す。試験条件は、漏洩した UF₆ がテストチャンバー内に均一に拡散し、チャンバー内空气中放射性物質濃度が $10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 前後のオーダーである。UF₆ エアロゾルへの曝露時間は、漏洩初期より3～13分の10分間である。漏洩初期より3分間は、チャンバー内の濃度分布が不均一で、濃度測定をおこなっても、場所によるバラツキが大きく、濃度の代表性がとれないため、沈静期間として放置した。テストピースにはSUS、アクリライト、リノリュームを用いた。非常にバラツキが大きいが、付着しやすさは、リノリューム、アクリライト、SUSの順で、汚染密度は、平均で $4 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ ($\sim 15 \text{ dpm}/17.3 \text{ cm}^2$) となつた。

空気中の放射性物質濃度と表面汚染密度との関係は、1) 放出源と着目地点の距離、

2) 放射性物質濃度、3) 放出高さ、4) 換気回数、5) 着目地点の材質等が考えられ、更に試験容器内雰囲気の動きまでが大きく関与していくと思われる。この実験では、これら諸条件をパラメータとして、両者の関係を定量づけるまでには、まだ至っていない。

空気中に放出された UF_6 及びその分解生成物の物理的ならびに化学的性質を知ることは、重要である。白煙状のものを沪紙に捕集して、X線分析、 γ 線スペクトル分析をおこなった。

白煙捕集は、図-5の様にサンプリングヘッドをテストチャンバー内に挿入し、吸引法により沪紙に付着させた。後段には、インピンジャーを設置し、75ccの水を吸収液とした。吸引流量率は 25 l/min である。

試料捕集後に、インピンジャーの吸収液を、蒸発乾固して放射能を測定したが、有意値は検出できなかった。ウランの水への溶解度が大きいにもかかわらず有意な値が検出できなかったことより、 UF_6 が空気中で、ほぼ 100% 加水分解が進行し、放射性物質は粒子状物質となり、沪紙上に捕集されたものと思われる。この時のテストチャンバー空気中の放射性物質濃度は、 $5 \times 10^{-8} \mu Ci/cm^3$ 前後である。放出量が更に増大した条件下においては、反応に関与する空気中の水分量が、相対的に減ることになるため、反応がどの程度進行するかは、今後の試験にゆだねたい。

次に、沪紙に捕集された物質の α 線と β 線の比の経時変化を図-9に示す。 UF_6 の漏洩直後にサンプリングされたものは α 線のみで、 β 線はバックグラウンドレベルでしか検出できなかった。それが、日が経つにつれて β 線が徐々に増加していく、20日程で、その比が 3まで減少した。このことは、文献等に見られるように、 UF_6 の漏洩が、トリウム、プロトアクチニウムの様なウランの娘核種を切り離したかたちでなされ、以後、時間の経過とともに放射性壊変が進行し、再度、トリウム、プロトアクチニウムが生成されてくるためと思われる。ウランの娘核種のうち、 ^{234}Th の β 線は 0.19 MeV と低く、通常の測定器には検出されにくく、 ^{234}Pa の β 線が測定器で検出される。表-4より ^{238}U の α 放射能と ^{234}Pa の β 放射能の比を、時間に従がって求めたものを、図中に、実線で示した。実線と測定結果が一致しないのは、娘核種の分離が 100% なされていないためと思われる。放射平衡には、半年ほどで到達する。

娘核種の分離度を調べるため、現在、 γ スペクトル分析を実施中である。図-10に、 UF_6 エアロゾル捕集後、半日ほど経過した試料、1カ月経過した試料ならびに天然ウランのスペクトル結果を示す。放出直後のものは、天然ウランのスペクトルと比較して、63.3 keV の Th-234, Th-231, 92.8 keV の Th-234, 93.4 keV の U-235 の計数値が異常に低いことがわかる。1カ月後の測定結果ではこれらエネルギーの γ 線の計数値の増加が著しい。同スペクトルより、試料に含まれている核種の定量を試みたが、データブックに記載されている各核種の γ 線のエネルギーと放出割合のデータが本試験で得られた値と一致

せず、定量は困難であった。これはデータブック記載の数値の信頼性が乏しいためによるものと思われる。本試験での試料を1年ほどねかせ、ほぼ放射平衡に達した時点で、再度スペクトルを測定し、このデータに半減期等を考慮して、 UF_6 が空気中に放出された際の娘核種の分離度を求めるつもりである。

空気中に放出された物質の化学形態を明らかにするため、試料を捕集してX線回折を試みた。しかし、得られたデータが、ASTM Cardに記載の化学物質 ($UO_2 F_2$ その他のウランの酸化物) のデータと一致せず、結局化学形態についても明確にならなかつた。得られたデータを、図-1-1に示す。

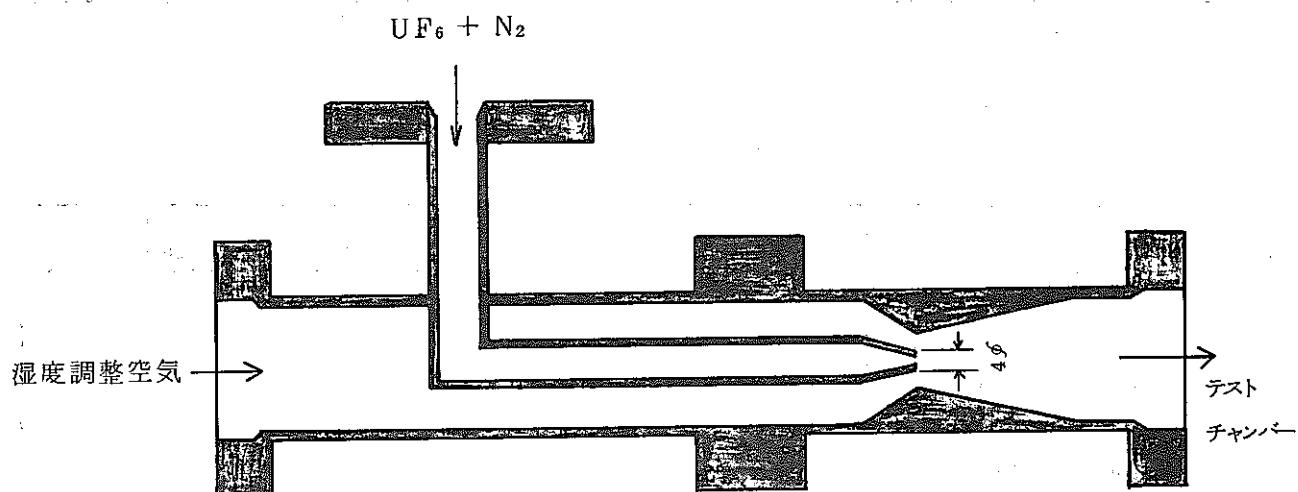


図-4 混合ノズル断面図

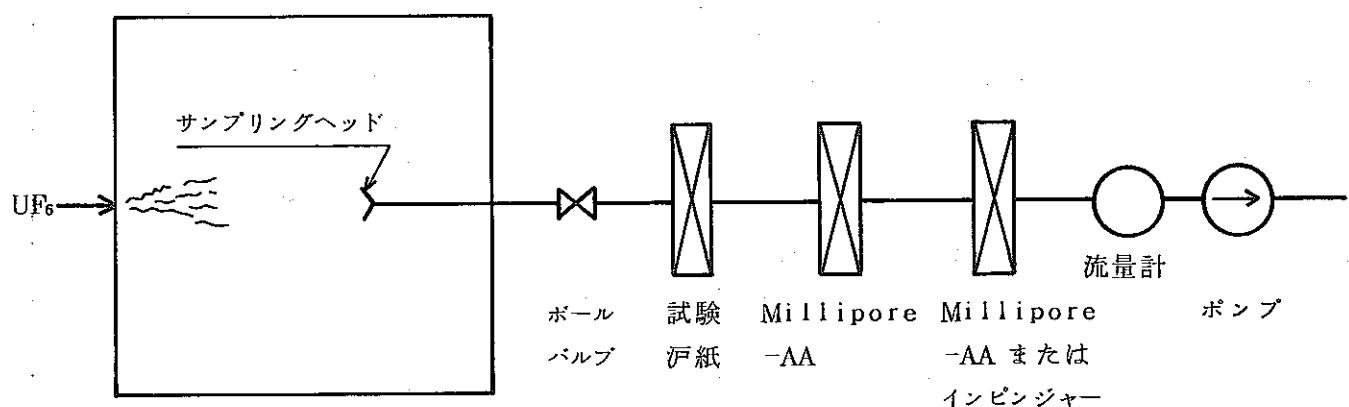


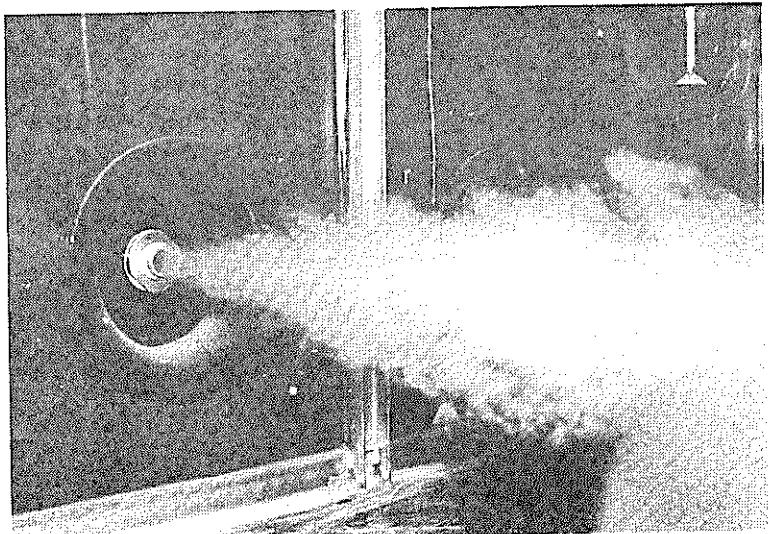
図-5 UF_6 エアロゾル白煙濃度測定法 (サンプリング沪紙捕集効率測定法)

(6)
表-4 天然ウランの同位体 α 効率

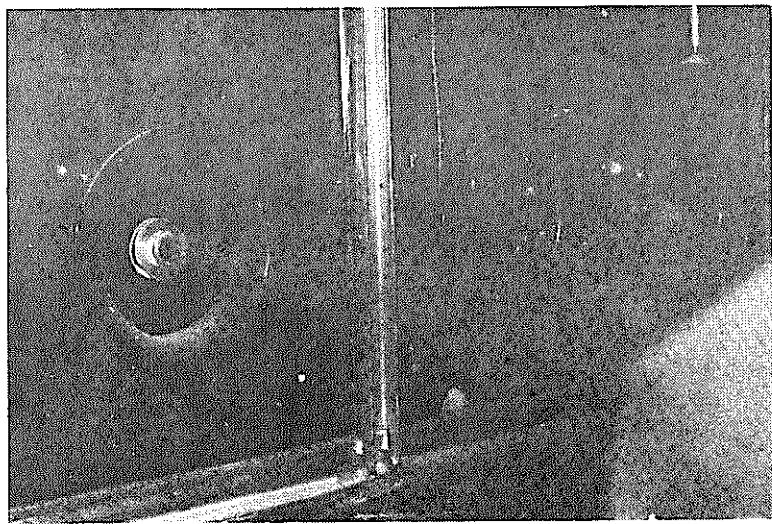
同位体	組成 (%)	比放射能 (dpm/ μg N)	比放射能比率 (%)
U - 234	0.0054	0.737	49.07
U - 235	0.7115	0.028	1.86
U - 236			
U - 238	99.283	0.737	49.07
	100.000	1.502	100.00

(19)
表-5 ウラン系列の放射平衡

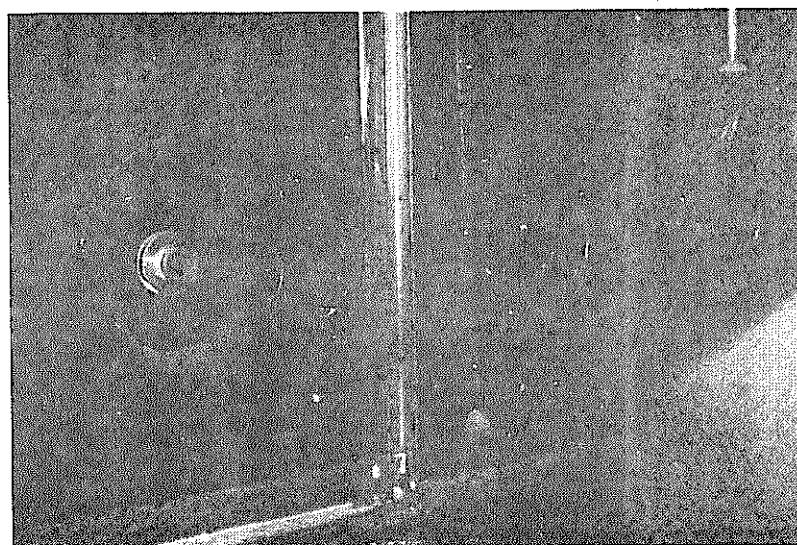
経過時間	^{238}U $4.508 \times 10^9 \text{ y}$	^{234}Th 24.10 d	^{234}Pa 6.702 h	^{234}U $2.502 \times 10^5 \text{ y}$	^{230}Th $8.00 \times 10^4 \text{ y}$
1 d	1.000×10^0	2.838×10^{-2}	1.796×10^{-2}		
2 d	1.000×10^0	5.601×10^{-2}	4.502×10^{-2}		
3 d	1.000×10^0	8.267×10^{-2}	7.193×10^{-2}		
4 d	1.000×10^0	1.089×10^{-1}	9.844×10^{-2}		
6 d	1.000×10^0	1.585×10^{-1}	1.486×10^{-1}		
8 d	1.000×10^0	2.056×10^{-1}	1.963×10^{-1}		
10 d	1.000×10^0	2.501×10^{-1}	2.413×10^{-1}		
15 d	1.000×10^0	3.515×10^{-1}	3.439×10^{-1}		
20 d	1.000×10^0	4.381×10^{-1}	4.315×10^{-1}		
30 d	1.000×10^0	5.781×10^{-1}	5.731×10^{-1}		
2 m	1.000×10^0	8.220×10^{-1}	8.199×10^{-1}		
3 m	1.000×10^0	9.251×10^{-1}	9.243×10^{-1}		
6 m	1.000×10^0	9.943×10^{-1}	9.942×10^{-1}	1.092×10^{-6}	
1 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	2.499×10^{-6}	
2 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	5.287×10^{-6}	
4 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	1.082×10^{-5}	
6 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	1.636×10^{-5}	
8 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	2.190×10^{-5}	
10 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	2.745×10^{-5}	
15 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	4.133×10^{-5}	
20 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	5.523×10^{-5}	
50 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	1.387×10^{-4}	
100 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	2.767×10^{-4}	
1000 y	1.000×10^0	1.000×10^0	1.000×10^0	2.766×10^{-3}	1.195×10^{-5}



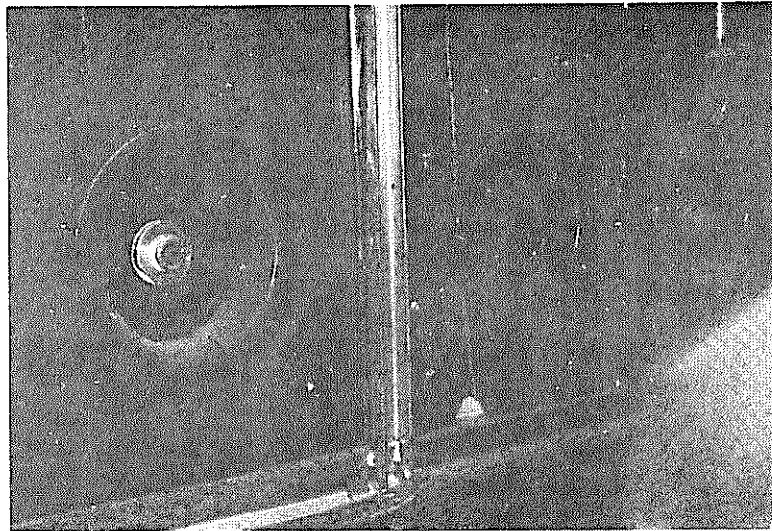
(1) $1.2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$



(2) $3.0 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$



(3) $2.0 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$



(4) $1.3 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$

写真 2 UF_6 漏洩状況

(1)	17	13	23	58	46	27	17	33	21
	15	21	30	100	⑨8	24	21	20	17
	15	30	17	28	21	26	27	15	19
(2)	36	40	38	55	41	43	41	46	55
	24	38	51	100	⑩6	59	54	50	27
	41	35	49	50	46	75	59	50	49
(3)	72	60	54	66	57	63	74	68	57
	50	60	87	86	60	84	62	84	38
	68	100	47	90	56	60	63	50	84
	47	72	57	62	54	69	60	69	47
	74	87	100	60	63	75	66	78	54
(4)	15	18	8	30	30	32	20	20	49
	7	15	14	8	38	37	34	31	41
	14	16	23	24	30	23	42	②4	31
	30	26	27	39	16	26	38	28	47
	41	30	35	37	37	30	37	39	34
(5)	33	56	7	56	41	44	59	59	52
	52	48	11	26	52	22	56	56	59
	52	52	48	70	26	59	41	③7	85
	59	48	37	52	81	33	74	70	100
	56	44	26	85	59	41	81	100	56
(6)	0.13	0.17	0.07	0.11	0.24	0.11	0.15	0.26	0.22
	0.15	0.09	0.20	0.07	⑩0	0.22	0.13	0.22	0.22
	0.09	0.15	0.13	0.13	0.26	0.19	0.09	0.17	0.17
(7)	0.13	0.17	0.09	0.09	0.16	0.09	0.24	0.15	0.16
	0.17	0.13	0.15	0.13	⑩0	0.17	0.19	0.15	0.19
	0.22	0.24	0.32	0.19	0.23	0.16	0.24	0.27	0.21

◎ : UF₆ ポンベ位置

(1)	換気回数 (回/hr)			放出高さ (cm)		
	～ 0			床 上 40 cm		
(2)	〃			〃		
(3)	〃			〃		
(4)	1.0			〃		
(5)	1.7			〃		
(6)	1.5			床 上 4 cm		
(7)	3.0			〃		

図-6 UF₆ ガス放出時の床の表面汚染密度分布

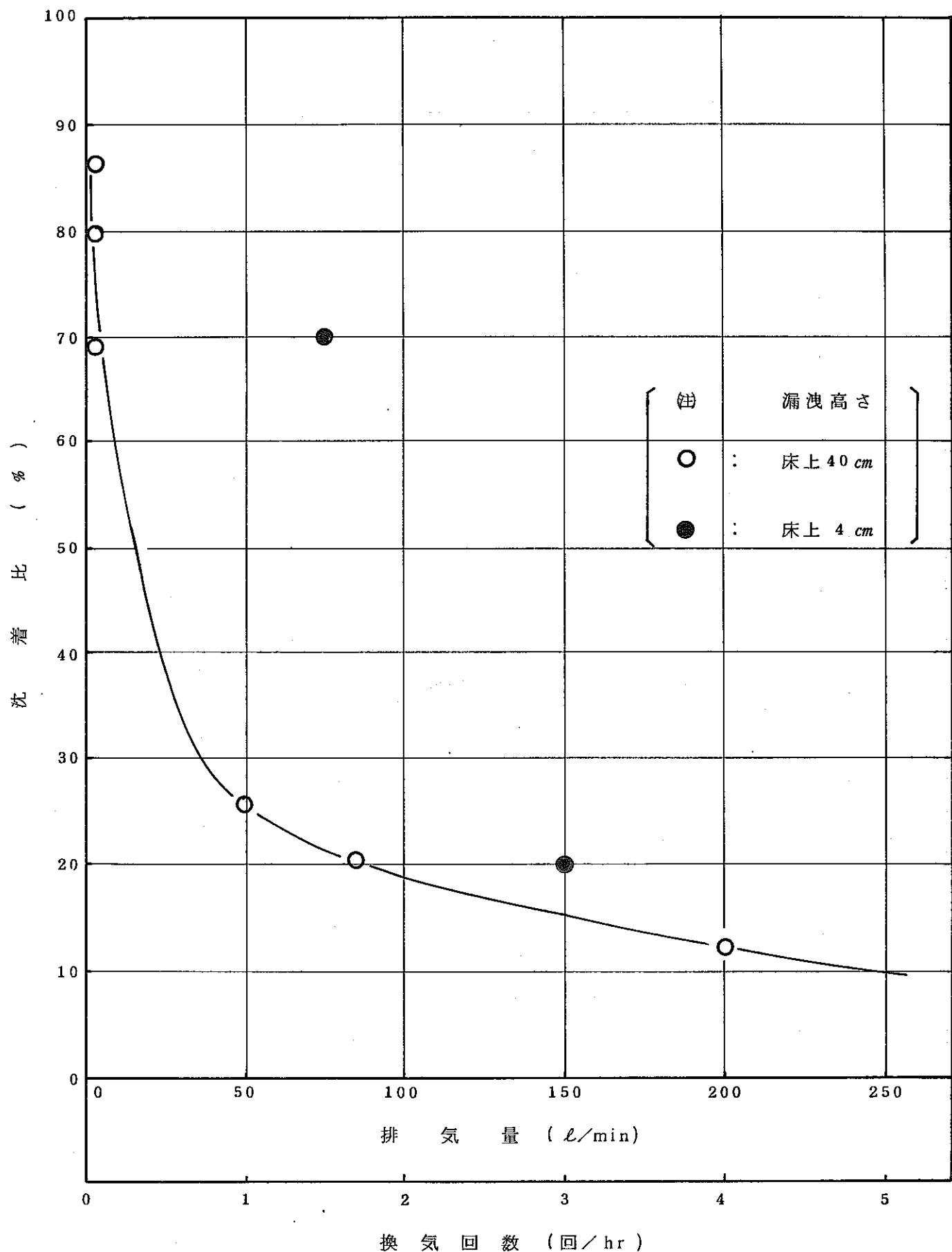


図-7 換気回数 VS 沈着比

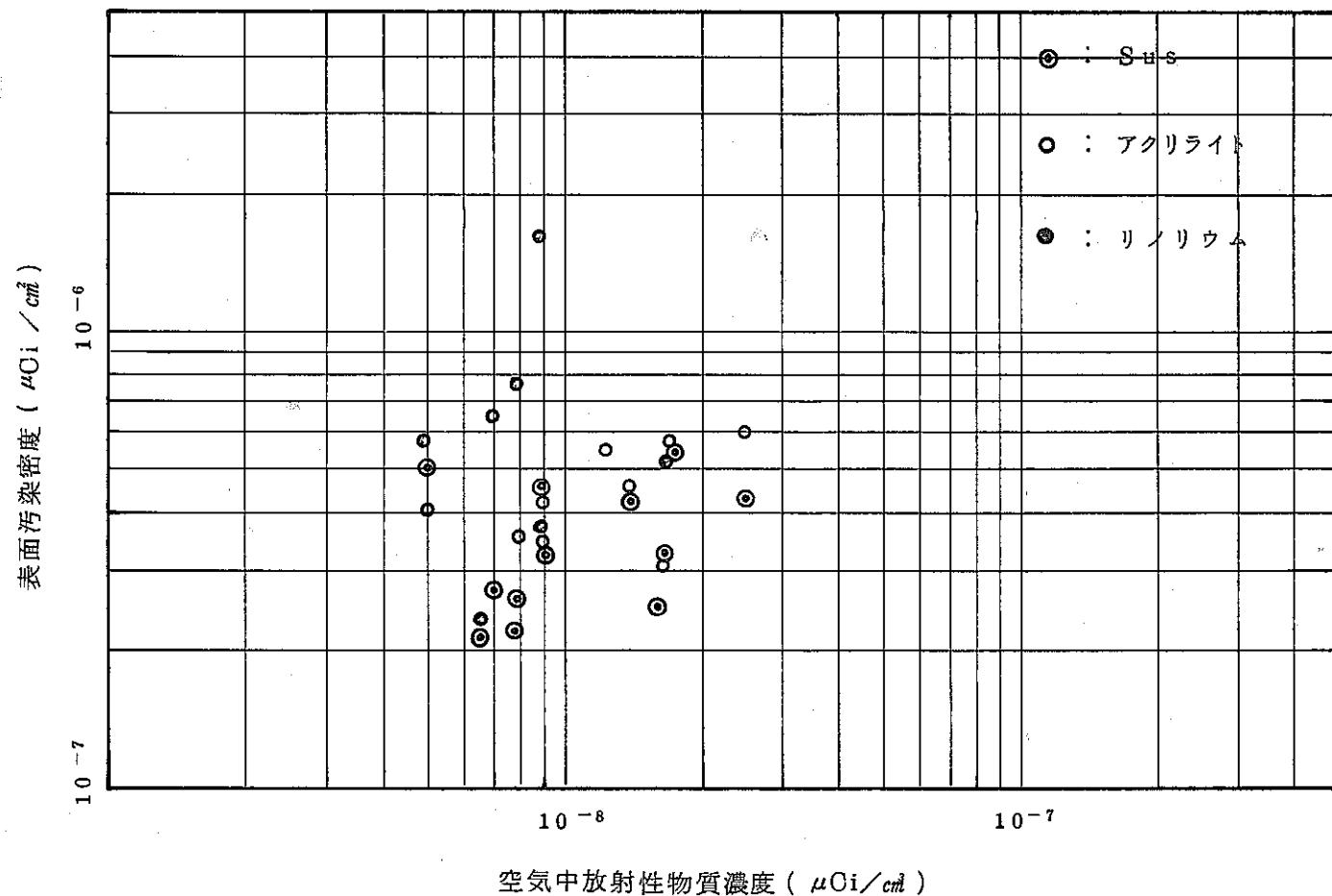


図-8 空気中放射性物質濃度V S表面汚染密度

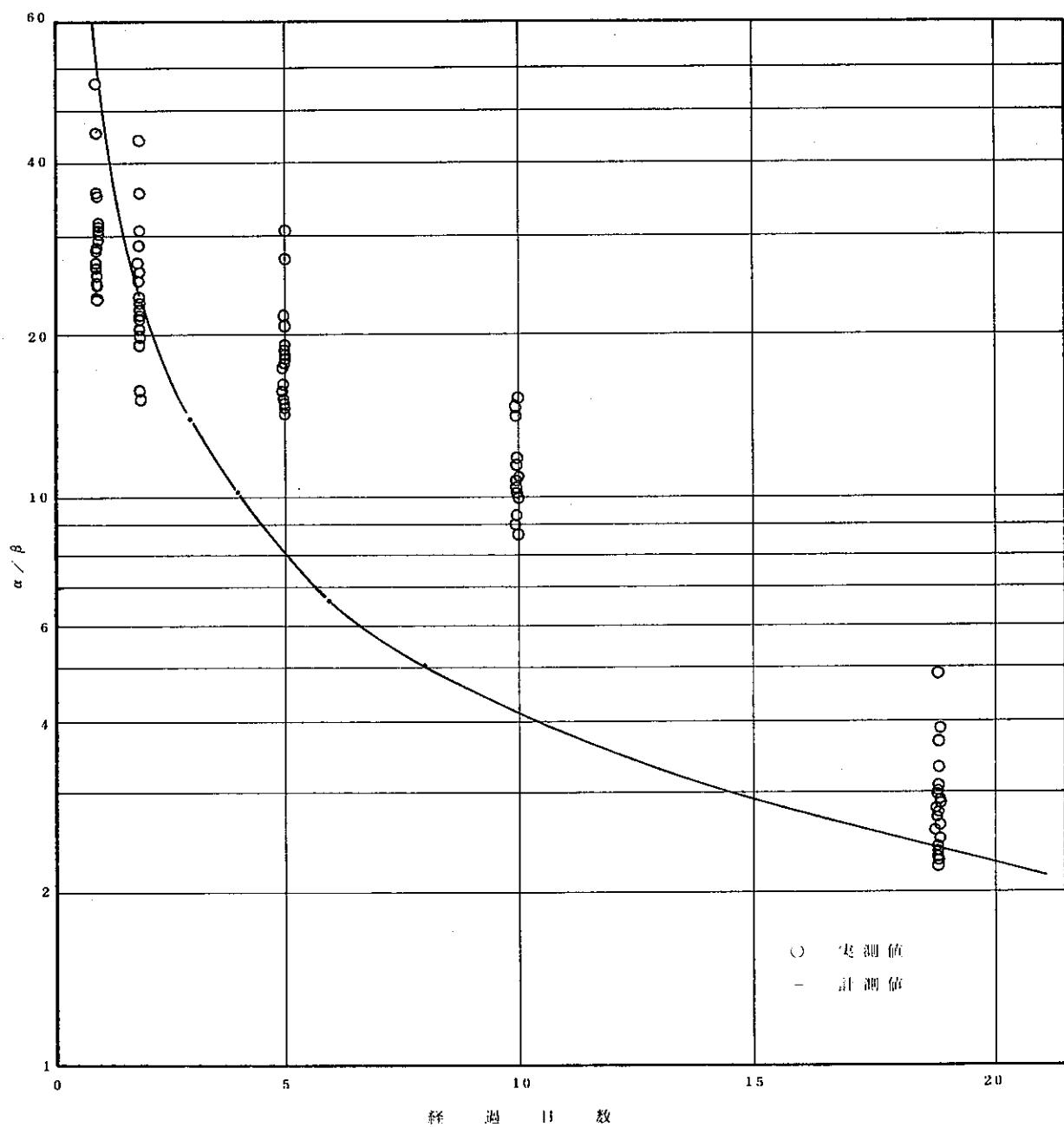
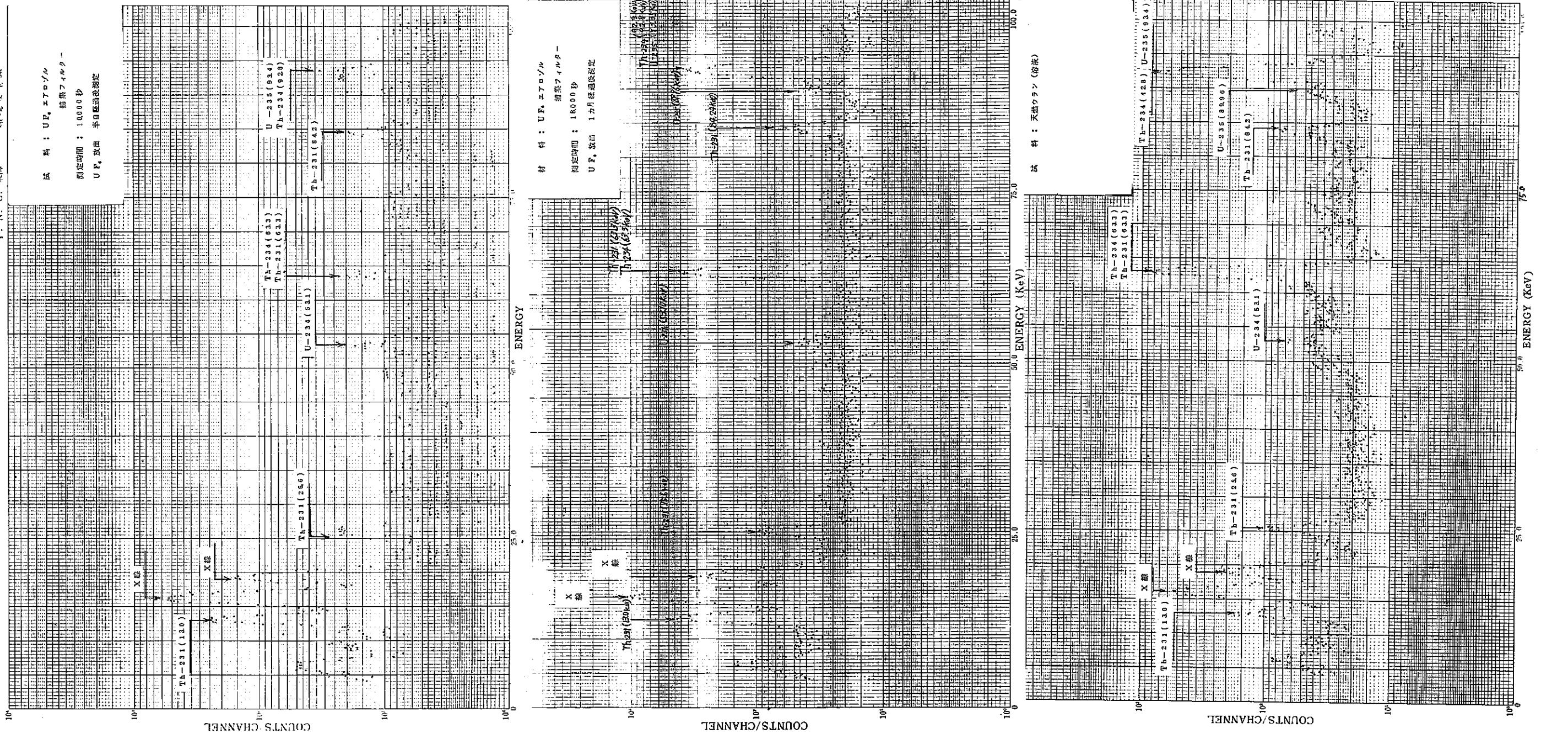


図 - 9 $(\alpha\text{放射能}) / (\beta\text{放射能})$ の経時変化

図-10 サンプリング滤紙に捕集したUF₆ エアロゾルのスペクトル

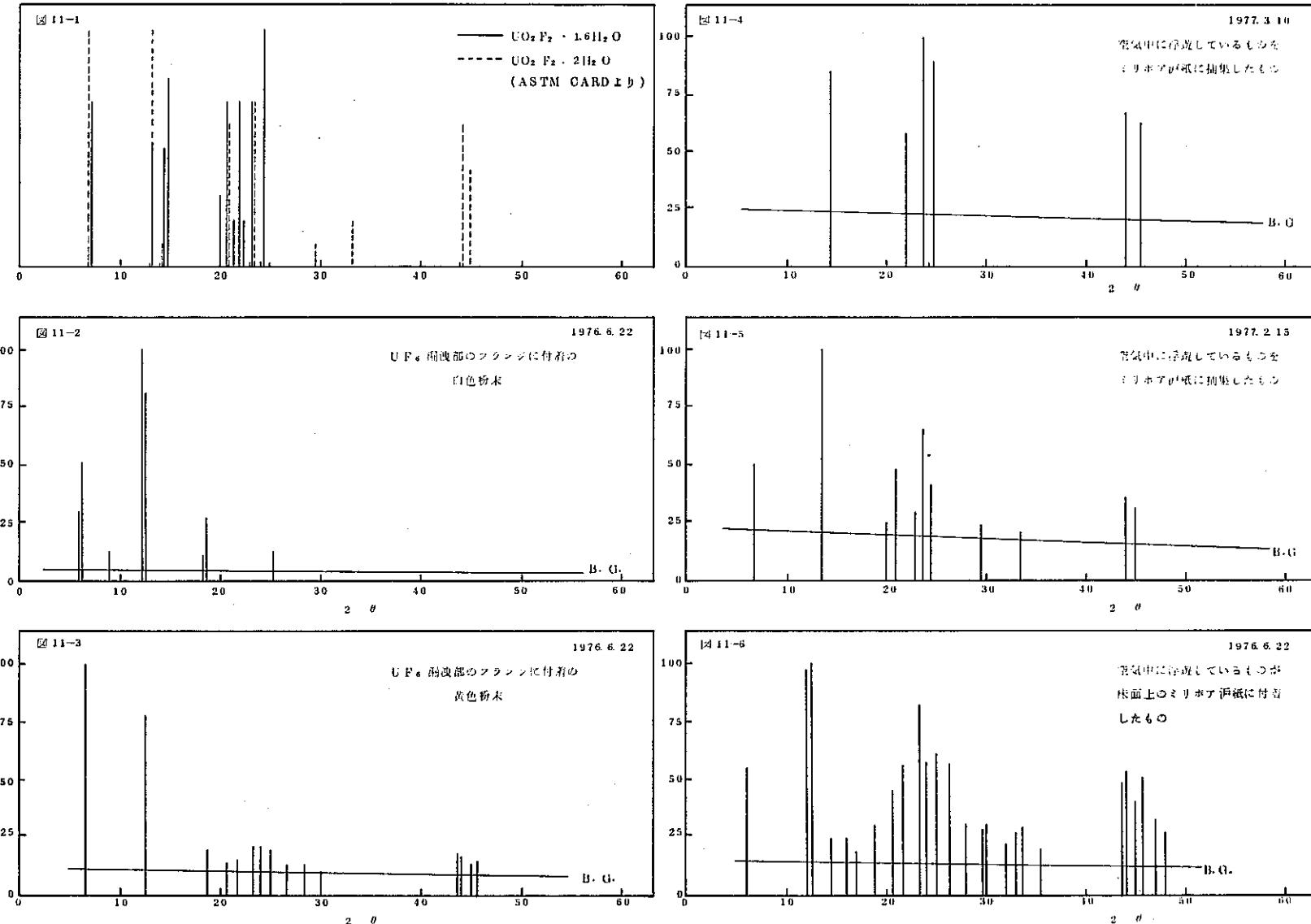


図-11 サンプリング用紙に捕集したUF₆エアロゾル等のX線回折図

5.2 UF₆ エアロゾルに対するサンプリング用沪紙の捕集効率

テストチャンバー内の放射性物質濃度測定ならびに放射線管理に適する沪紙を選択するために、次の条件で、沪紙の捕集効率を測定した。

試験沪紙

セルロース系 : No.5 A
セルロース、ガラスファイバー系 : HE-40T
ガラスファイバー系 : GF-D, GB-100
メンプラン系 : Millipore AA

湿度 : 40, 80 %RH

吸引面速 : 2.9, 14.5, 26.1 m/min

捕集効率測定法は、図-5に示す様に、前段に試験沪紙、後段にMillipore AA を装着した。捕集効率の算出にあたっては、Millipore AA の捕集効率を100%と仮定し、次式によって決定した。

$$[\text{捕集効率}] = \frac{(\text{試験沪紙放射能強度})}{(\text{試験沪紙放射能強度}) + (\text{Millipore-AA の放射能強度})} \times 100 \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

放射能強度の測定は、表-3に示す放射能測定器を用いた。

試験結果を表-5に示す。ガラスファイバー、メンプラン沪紙については、流量率、湿度にかかわりなく、99.9%以上と高い捕集効率を示し、セルロース系、セルロースガラスファイバー系については、流量率、湿度のどちらについても、高くなるに従い、捕集効率が増加する傾向がみられた。

以上のことより、日常の放射線管理には、捕集性能、使い勝手、価格等を考慮して、UF₆エアロゾルについても、従来から使用されているHE-40Tで十分であると考える。テストチャンバー内の濃度測定には、ガラスファイバーのGB-100、メンプラン系のMillipore-AA がサンプリング条件にかかわらず高い捕集効率を有するので、これら沪紙が適當と思われる。

表-6 UF₆ エアロゾルに対する各種サンプリング汎紙の捕集効率

テストフィルター	湿度 %RH	吸引面速度 (cm/sec)		
		4.8	24.2	43.5
セルロース <i>M</i> -5 A	40	—	99.1	99.9
	80	99.4 %	99.6	"
セルロース・ガラスファイバー HE-40T	40	97.7	98.4	99.1
	80	98.9	98.9	98.9
ガラスファイバー GF-D	40	99.7	99.8	99.7
	80	"	99.9以上	99.9以上
ガラスファイバー GB-100	40	99.9以上	"	"
	80	"	"	"
メンブラン Millipore-AA	40	"	"	"
	80	"	"	"

5.3 アルカリ汎紙のフッ化水素に対する捕集効率

UF₆ が空気中で加水分解すると、HFが同時に生成されることは、前にも述べた。HFの濃度を適切に測定するため、まず2~3の測定方法について比較、検討した結果を以下に示す。HFの測定には、1) ガス検知管、2) 比色法、3) イオン電極法等があるが、これら各方法の長所、短所を表-7にまとめて掲げる。我々の試験室では、試料の前処理が簡単で、迅速な分析が可能なイオン電極法を採用することとした。使用するイオンメータの仕様は表-8に示す通りである。このフッ素イオンメータは、図-12の様に、各種濃度のNaF溶液に対するフッ素イオン起電力の大きさが求めてある(校正曲線)。そして、測定をはじめる前に、10mg/lのNaF溶液(10ppm)に対するフッ素イオン起電力の値が、この校正曲線上の値と一致することを確認のうえ、測定を開始した。

試料空気の捕集は、当初、アルカリ汎紙法とインピングジャー法を開いたが、インピングジャー法においては内部吸収液(ギ酸ナトリウム水溶液あるいは炭酸ナトリウム水溶液)がミストとなって飛散するため、現在は、サンプリング流量率が広範囲で、試料交換の容易なアルカリ汎紙法のみでおこなっている。

試験に用いたアルカリ汎紙は、無機分を含有しない東洋ろ紙*M*-51Aに、ギ酸ナトリウム10%水溶液を含浸させた後、60~70℃のエアバス中で約2時間乾燥させたものである。乾燥したアルカリ汎紙はビニールに包み、デシケータの中で保管した。これら一連の作業中、アルカリ汎紙を他の化学物質、水分等と接触しない様、注意を払った。ギ酸ナトリウム10%水溶液に決定するまでに、炭酸ナトリウム、水酸化ナトリウム含浸汎紙を作製して、HFに対する捕集効率を測定したが、効率がよくなかったため、最終的に、ギ酸ナトリウム10%水溶液に決定した。

捕集効率は、次の様にして測定した。サンプリングは図-5の様に、第1段目にMilli-

pore-AA、第2段目にアルカリ沪紙、第3段目に同種のアルカリ沪紙ないしはインピングジャーを設置しておこなった。HFを吸着した沪紙は、放射能強度測定後、細片とし、蒸留水20mlを加え、沸とう水上で20分間、加温抽出した。その後、自然放冷し、沪過をおこない、沪紙上に残った細片は、蒸留水10ml、TISAB10mlで洗浄し、更に蒸留水を加え、沪液の全量を50mlに調整した。この沪液をイオンメータにかけ、スタークで2~3分かくはん後、測定した。沪紙の捕集効率は次式によって算出した。

ここで W_1 : 1段目のアルカリ涙紙に捕集されたHF量

W₂ : 2段目のアルカリ涙紙ないしはインピンジャーに捕集されたHF量

以上の方針により、ギ酸ナトリウム 10% 水溶液含浸沪紙の捕集効率として、92.8% (21ヶの平均) が得られた。

表 - 7 HF 测定法比較表

	Gas 検知管	比 色 法	イオン電極法
長 所	<ul style="list-style-type: none"> 操作が容易で、熟練がない。 測定結果が直ちにわかり、後処理が不用 軽量で、携帯、取り扱いに便利 	<ul style="list-style-type: none"> 精度がよい。 分析対象物がひろい。 操作が比較的簡単であり、再現性がよい。 	<ul style="list-style-type: none"> 操作が簡単 妨害イオンの影響が比色法と比較して少ない。
短 所	<ul style="list-style-type: none"> 測定範囲が狭く、許容濃度付近の測定にしかむかない。 妨害ガス、温度の影響を受ける。 	<ul style="list-style-type: none"> 前処理に時間がかかる。 測定範囲が狭い。 妨害イオンの影響大 試料が混合物の場合には分離定量が困難な場合が多い。 	<ul style="list-style-type: none"> pH 5.0 ~ 5.5 の範囲でしか使用できない。

表-8 イオンメーター仕様

指示範囲

ppm 0.01~20000 ppm

pX 0.00~14.00 pX

mV -1000 mV~+1000 mV (零点移動により±1500 mV)

価数 1価，2価陽イオン；1価，2価陰イオン

指示器精度

ppm ±1% rdg ±1 digit

pX ±0.01 pX ±1 digit

mV ±0.1% rdg ±1 digit

使用温度範囲 0~40 °C

記録計用出力

ppm 200 mV/F.S

p 10 mV/pX

mV 100 mV/V

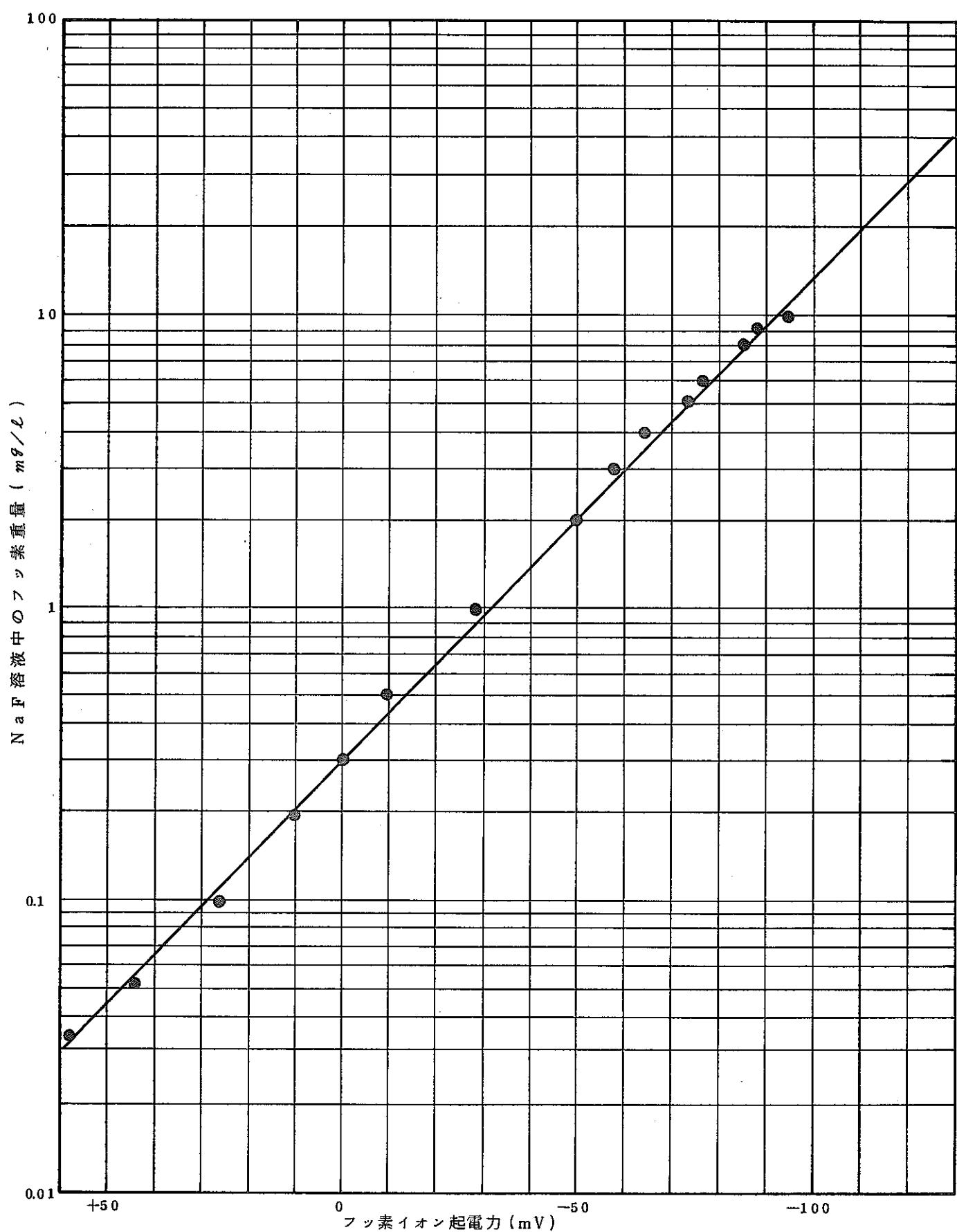


図-12 イオンメータ校正曲線

5.4 空気中放射性物質濃度とフッ化水素濃度の関係

5.2 および 5.3において示したように、空気中の放射性物質濃度測定には、Millipore - AA 沔紙を用い、HF濃度測定には、ギ酸ナトリウム10%水溶液含浸済紙を用いることとした。

捕集は、前段に Millipore-AA、後段にアルカリ沪紙を設置しておこなった。Millipore-AAは放射性物質濃度測定のほかに、アルカリ沪紙に達するダスト状物質除去の役割も果たしている。

また、テストチャンバーには、連続測定型のフッ化水素測定装置を装着して、チャンバー内のHF濃度を常時測定している。これは図-13に示すもので、ダスト状物質を除去した試料空気と反応液（酢酸、酢酸ナトリウム、塩化カリウムの混合水溶液）を吸収部にて混ぜ合せ、フローセル部において、イオン電極により測定をおこなうものである。測定範囲0～1.0 ppm、最小可検量0.1 ppmを有する。

以上の測定法により、空気中の放射性物質濃度とフッ化水素濃度を測定した結果を図-14に示す。試験条件は、湿度が40~90%RHで、UF₆をテストチャンバーに放出3分後より10分間、サンプリングをおこなって得た結果である。放出後、3分程経過すると、チャンバー内で目視できる白煙が、ほぼ均一の濃度となる。グラフ中、実線で示されているものは、UF₆の加水分解が化学量論的におこったとした場合の放射性物質濃度とフッ化水素の濃度の計算値である。試験結果をみると、計算値と比較して、全般的に、放射性物質濃度の割合が、フッ化水素の割合より大きい。原因として、UF₆の加水分解反応が100%進行しなかつたか、あるいは、発生したフッ化水素がテストチャンバー器壁等へ吸着されてしまい、測定にからなかつたのではないかと思う。湿度の影響については、当初の予想に反し、低湿度の方がフッ化水素濃度が高いとの結果が得られた。これは、UF₆の加水分解反応過程よりも、反応が終了しサンプリング系にいくまでの過程に何らかの問題があつたのではないかと思う。この点に関しては現在、検討中である。

また、空気中の放射性物質濃度が低い場合にはフッ化水素濃度が計算値より高い値を示しているが、これは以下の実験により、フッ化水素の蓄積のためであることがわかつた。実験は、1日に何度もおこなったわけであるが、1回UF₆を放出した後、次の放出のために、数時間テストチャンバーを換気した。そして、放射性物質濃度が十分低くなつてから次の放出をおこなつた。放射性物質濃度と換気回数の間には、図-15の様な関係を見い出しているため、換気回数と換気時間がわかれば、初期濃度がどれだけ減衰するかわかるわけである。半減時間をT(min)、換気回数をX(回/hr)とすると、

となる(図-16)。しかし、テストチャンバーに放出したUF₆について、放射性物質濃度の減衰と同時にフッ化水素濃度の減衰を、パラメータに換気回数をとり、時間に対してグラフ化してみると、フッ化水素の濃度減少が、放射性物質濃度の濃度減少と同一でないことがわかった。その結果を図-17に示す。グラフは、本実験装置の両極端をとり、換気回数が7回/hと、ほとんどない場合の2条件について得られた結果である。放射性物質濃度の減衰については図-15の通りであるが、フッ化水素濃度減少は比較的ゆるやかである。このグラフをより整理したかたちのものが、次の図-18である。同一換気回数に対する放射性物質濃度減衰とフッ化水素濃度減衰の差が、よくわかる。換気回数7回/hについては、フッ化水素濃度半減時間は、放射性物質濃度半減時間の4~5倍である。換気がほとんどない場合の漏洩初期においては、フッ化水素濃度半減時間の方が短いが、2時間程経過後には、両者の減衰速度が一致し、以後、時間の経過とともに、フッ化水素濃度の半減時間は、放射性物質濃度半減時間より大きくなっている。つまり、換気率の差による濃度減衰は、フッ化水素についても認められるが、放射性物質濃度の減衰と比較すればゆるやかなものである。従がって、前記の測定において、放射性物質濃度が低い領域におけるフッ化水素濃度が高めに出たことは、放射性物質濃度の減衰には十分であった換気時間であっても、フッ化水素については十分でなく、残留していたフッ化水素に、新たに加水分解して生成されたフッ化水素が加わって、やや高めのフッ化水素濃度が出たものと思われる。

しかし、いずれにしても、UF₆の加水分解反応は、本試験の条件下において、100%近くなされているものと考えられる。

また、(5)式を作業環境等の広い空間に適用する際には、これら空間自体の空気の流れ、吹きだまりなどを考慮しなければならないが、UF₆の異常放出の濃度減衰の目安として有効であると考える。

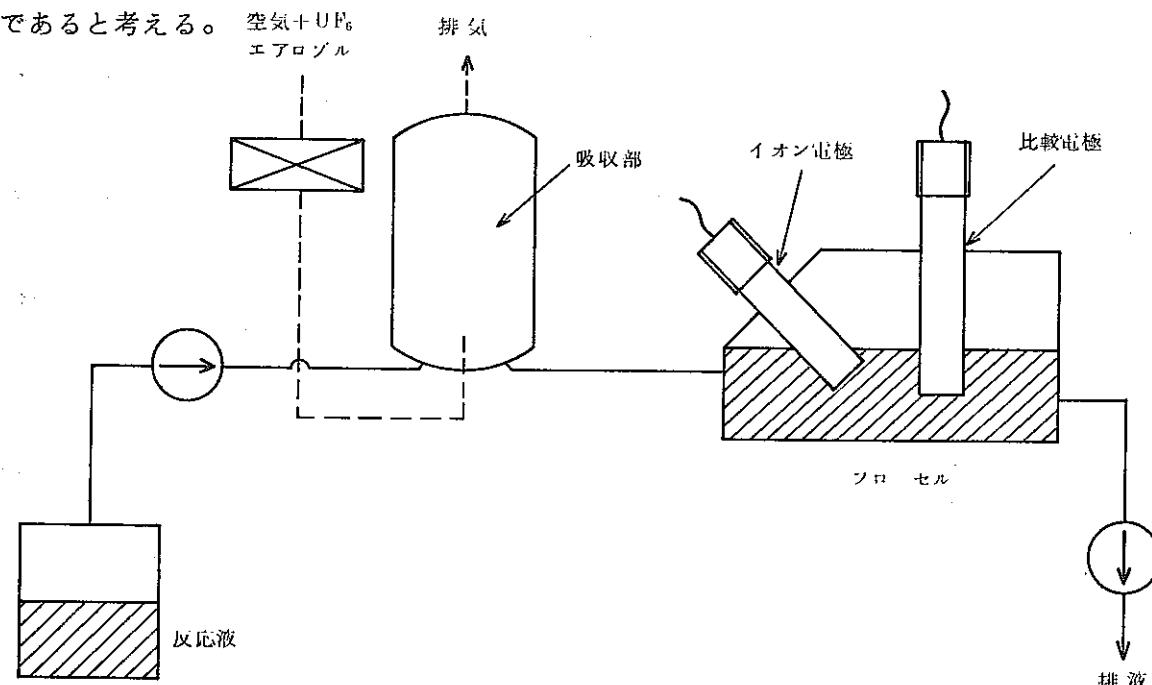


図-13 イオン電極法によるフッ化水素連続測定装置

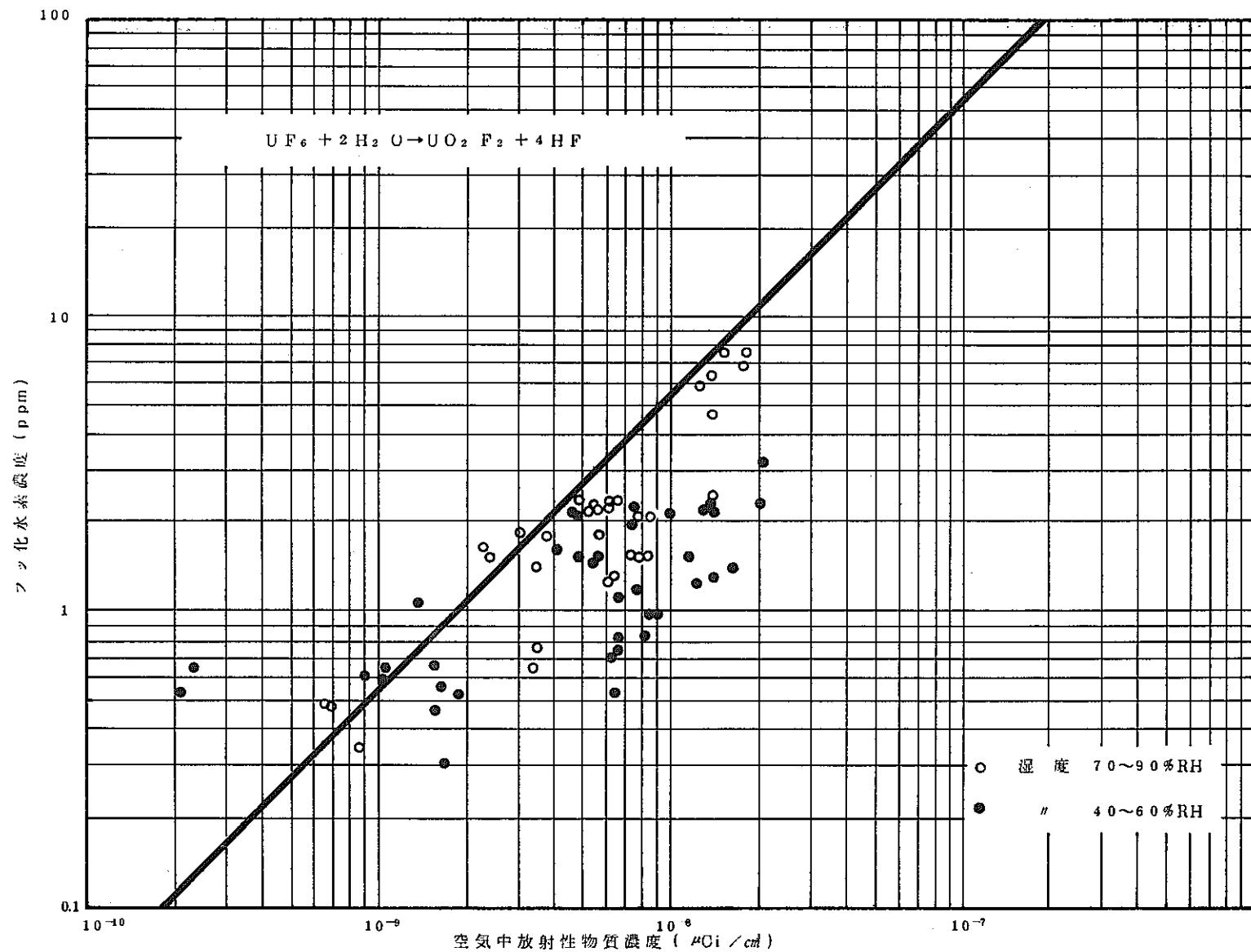


図-14 空気中放射性物質濃度 VS フッ化水素濃度

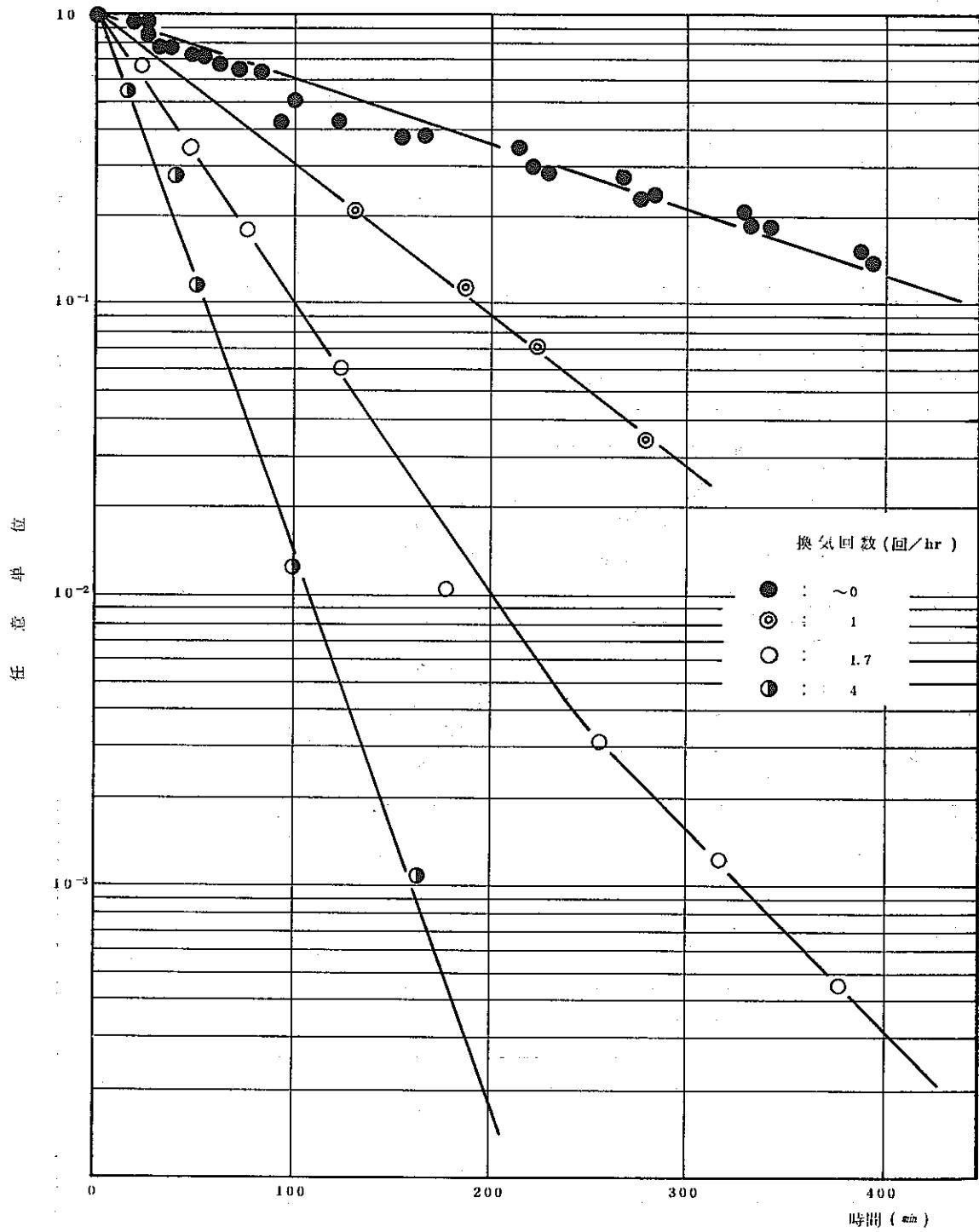


図-15 空氣中放射性物質濃度 VS 時間

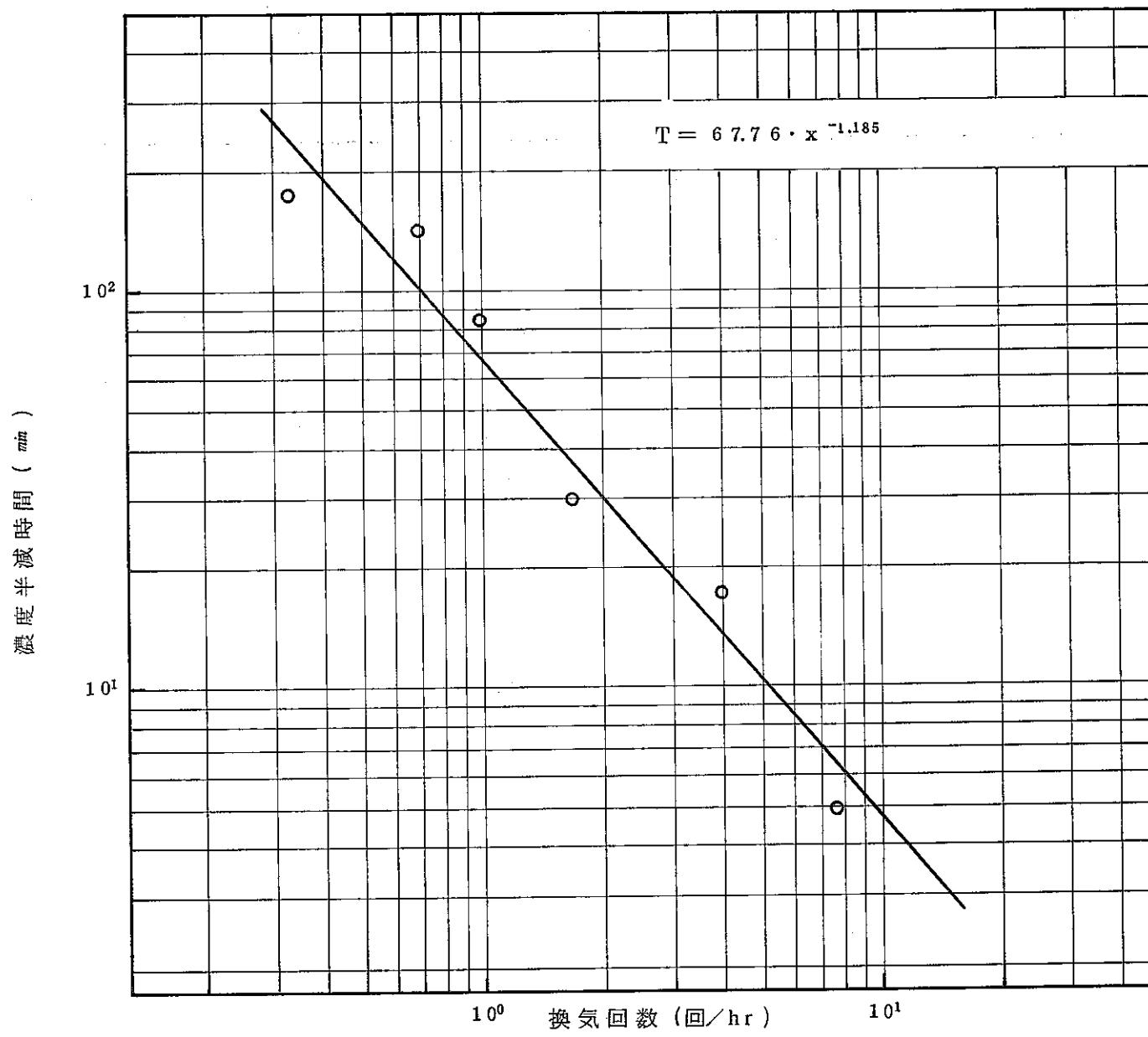


図-16 換気回数 VS 空氣中放射性物質濃度半減時間

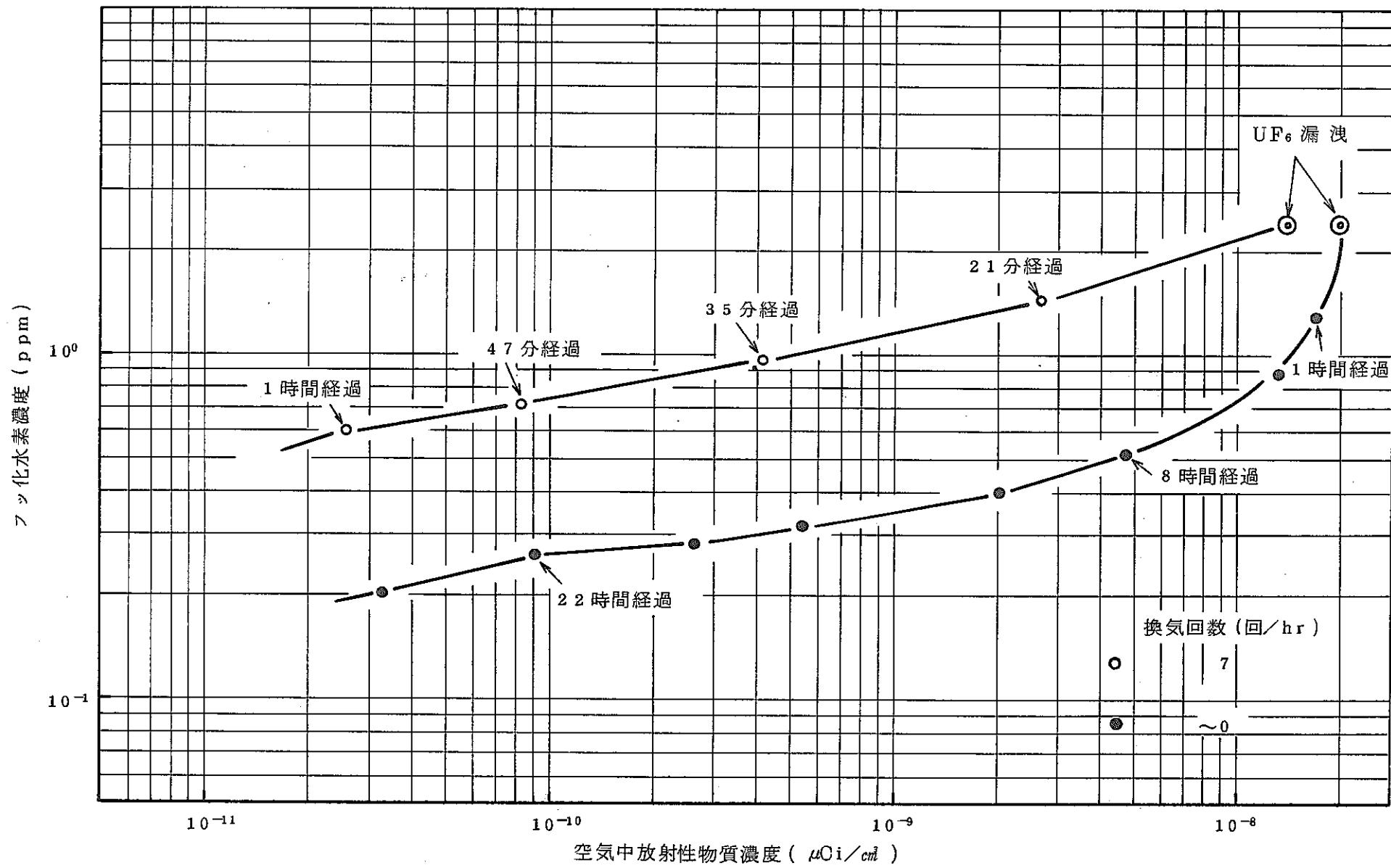


図-17 空気中放射性物質濃度 VS フッ化水素濃度

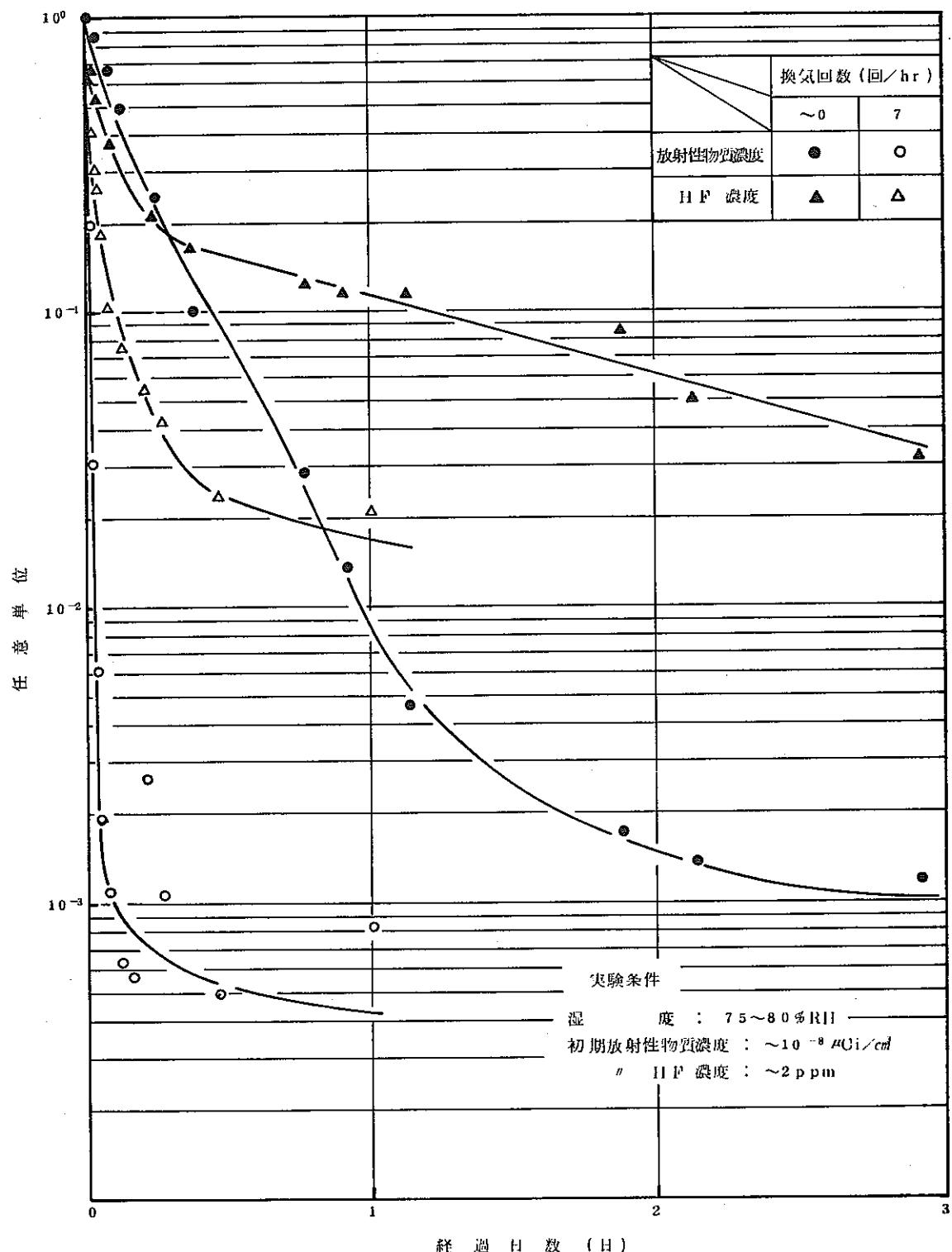


図-18 UF₆ エアロゾル濃度 VS 時間

5.5 UF₆ エアロゾルの粒度分布

5.5.1 測定方法

(1) 捕集測定方法

これは、メンプラン系ないしはファイバー系の汎紙にサンプリングしたもの、あるいは、サーマルプレシピテータにサンプリングしたものに金蒸着を施し、走査型電子顕微鏡にて観察、写真撮影をおこない、画像解析装置により粒度分布を求めるものである。電子顕微鏡および画像解析装置の仕様と外観をそれぞれ、表-9、写真-3および表-10、写真-4に示す。

(2) 浮遊式測定法

測定器は静電型微粒子分析装置を用いた。その仕様を表-11に、概要を図-19、写真-5に示す。図からわかる様に、エアロゾルは、エアロゾルチャージャーにてまず正のイオンを帯電する。次いで、粒子沈着部とエレクトロメータ部とからなる解析部へ導びかれる。解析部においては、集塵用金属ロッドを中心として清浄空気が層流状態で流れしており、この中におくりこまれた帶電エアロゾルは、個々の運動量（質量-粒径）に応じて、中央の金属ロッドに捕集されるか、あるいは、この部分を通過して、下流のエレクトロメータ部において集塵、個数計測される。従がって、中央金属ロッドと外側金属筒間の電圧を段階的にあげていくことにより、通過するエアロゾルによって運ばれる電荷量も段階的に減少するので、粒度分布が測定されることとなる。

5.5.2 測定結果

(1) 捕集測定法での測定

メンプラン系のMillipore-AA、セルロースガラスファイバー系のHE-40TにサンプリングしたUF₆エアロゾルの電子顕微鏡写真を、写真-6、写真-7に示す。Millipore-AAは、pore sizeが0.8 μmで、UF₆エアロゾル粒子と識別しがたいが、同写真より粒度分布を求めると（図-20）、個数中央径（CMD）が0.35 μm、標準偏差（σg）が1.35となる。これはHatch-Chaoteの式（MMD=CMD·e^{3lnσg}）より質量中央径（MMD）を求めると0.46 μmとなる。

一方、HE-40Tに捕集されたUF₆エアロゾル粒子は、ファイバー上に、球形の粒子が凝集して鎖状となって捕集されているのがよくわかる。サンプリング汎紙のファイバー間の距離が、UF₆エアロゾルの粒度分布と比較して相当離れているにもかかわらず、これら汎紙が高い捕集効率を示すのは、写真のように、粒子同上の凝集効果が大きく関与しているためと考えられる。

(2) 浮遊式測定法

測定原理上、求められる粒子径は質量中央径（MMD）であり、図-21に示すよ

うに、粒子径は $0.105 \mu\text{m}$ 、偏差は 1.62 であることが求まった。前述の捕集測定法と比較すると、若干、粒子径が小なる方向へずれているが、これは本測定法の最小可検量が $0.0032 \mu\text{m}$ と非常に小さいことに由来すると考えられる。

表-9 電子顕微鏡仕様

分解能	100 \AA° 保証
倍率	$\times 20 \sim 200,000$ (COARSE & FINE)
電子光学系	
フィラメント	プリセンタードヘアピン形フィラメント
バイアス	半固定バイアス方式
ビーム電流	最大 $200 \mu\text{A}$
加速電圧	$1, 2, 5, 10, 15, 20, 25, 30 \text{ kV}$
レンズ系	3段縮小系
スチグマトール	8極電磁方式 (X, Y)
偏向コイル	2段電磁偏向方式
対物レンズ絞り	可動絞り ($0.1, 0.2, 0.3, 0.4 \text{ mm}$ 直径穴)

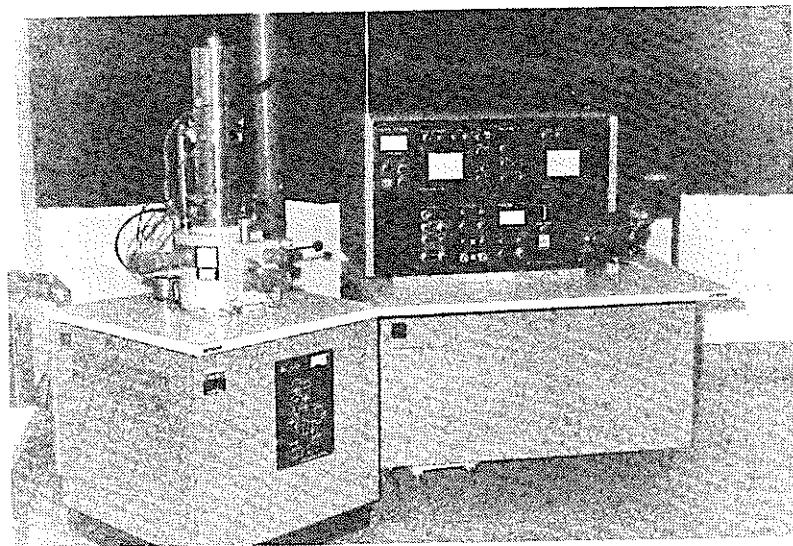


写真-3 電子顕微鏡

表-10 画像解析装置仕様

測定所用時間	1.7秒
最 値	9 9 9 9
総面積測定範囲	0.1 μm^2 ~ 0.8 mm^2
平均面積測定範囲	0.1 μm^2 ~ 9 9 9 9 μm^2
サイズ設定範囲	1 ~ 9 9 0 μm
面積率測定範囲	0.01 ~ 9 9 9 9 %
分 解 能	
面積測定の場合	画面の20万分の1
粒子計数の場合	" 10万分の1
総 合 倍 率	約30×対物レンズの倍率

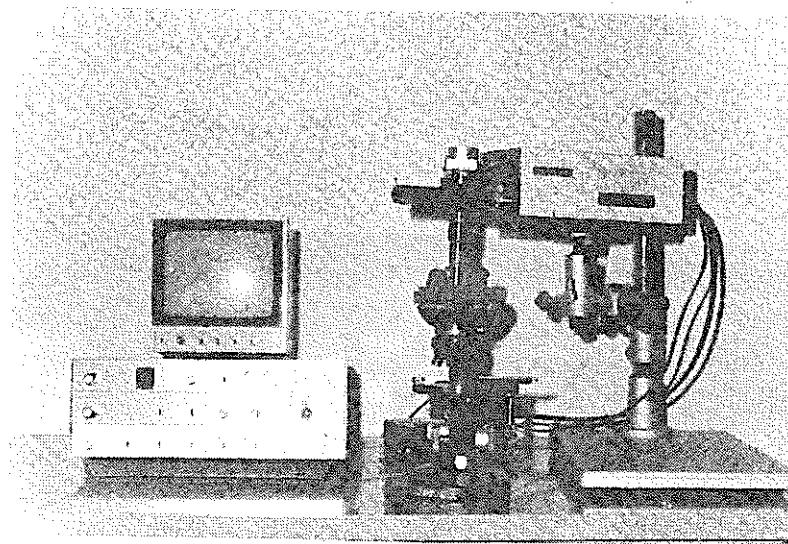


写真-4 画像解析装置

表 - 1 1 静電型微粒子分析装置仕様

分級範囲	0.0032~1.0 μm
分級値	0.0032~0.0056~0.010~0.0178~0.0316~ -0.0562~0.10~0.178~0.316~0.562~ 1.00 μm
濃度範囲	1~1000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
サンプル流量	4 ℓ/min
清浄空気流量	4.6 ℓ/min
エアロゾル温度範囲	-10~50 °C

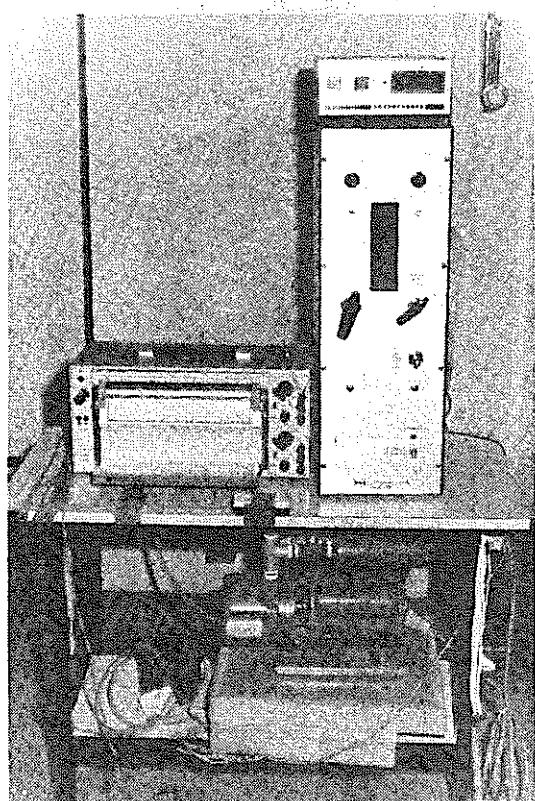


写真 - 5 静電型微粒子分析装置

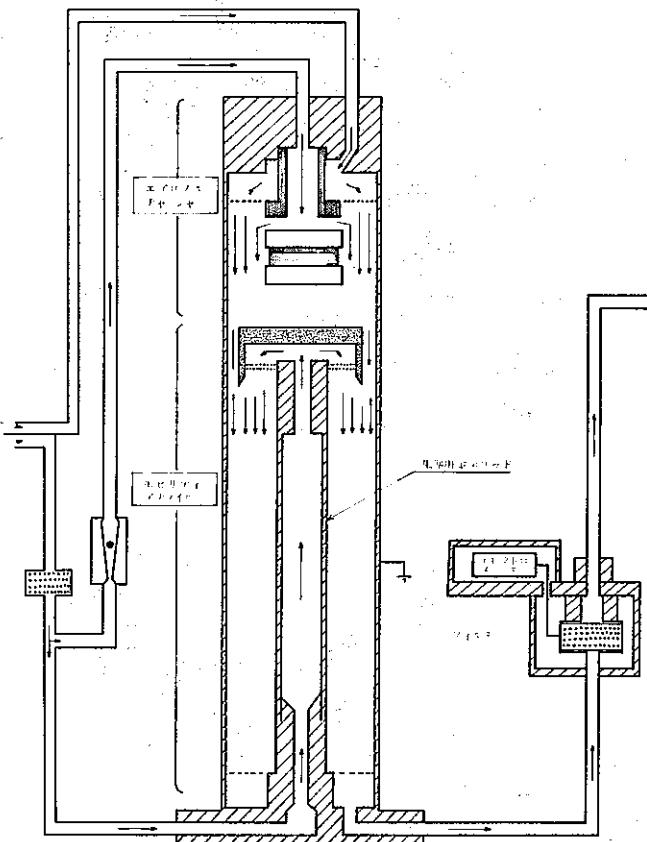


図 - 1 9 静電式微粒子分析装置概要図

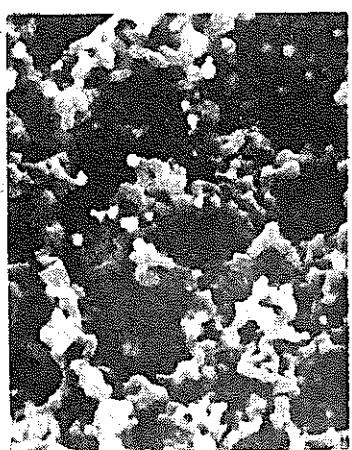


図 140 80% RH
25 l/min 10 sec サンプリング

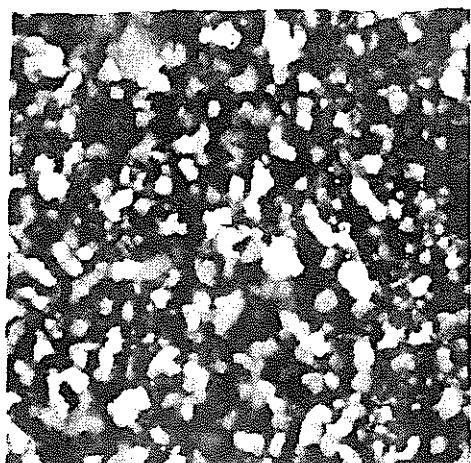
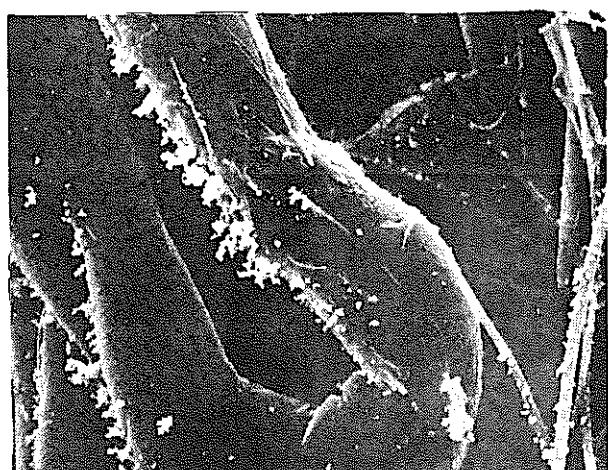
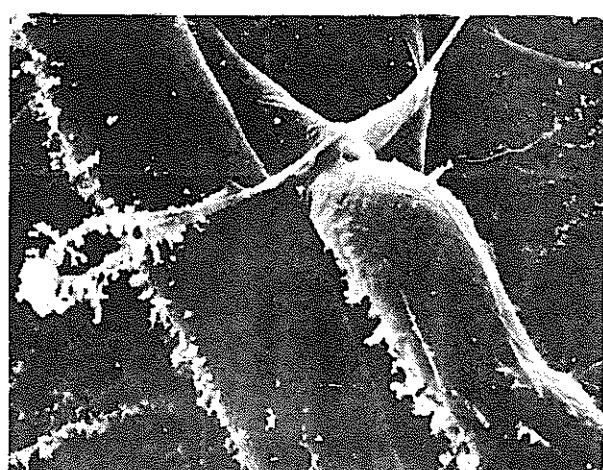


図 142 80% RH
25 l/min 300 sec サンプリング

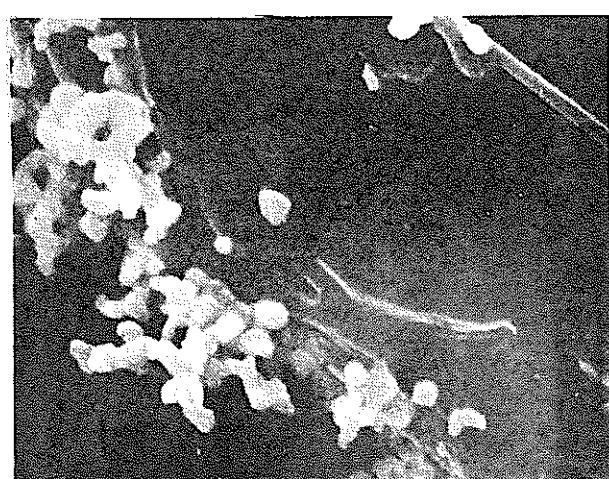
写真6 Milliore-AAに捕集された UF_6 エアロゾル



20 μm

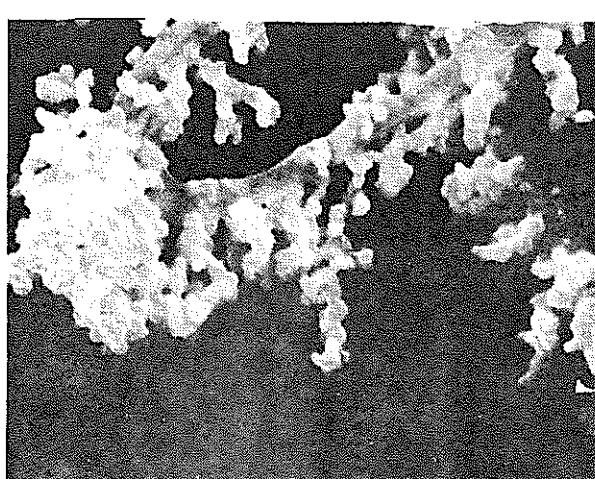


20 μm



4 μm

図 155 80% RH 25 l/min で 300 sec サンプリング



5 μm

写真7 HE - 40 Tに捕集された UF_6 エアロゾル

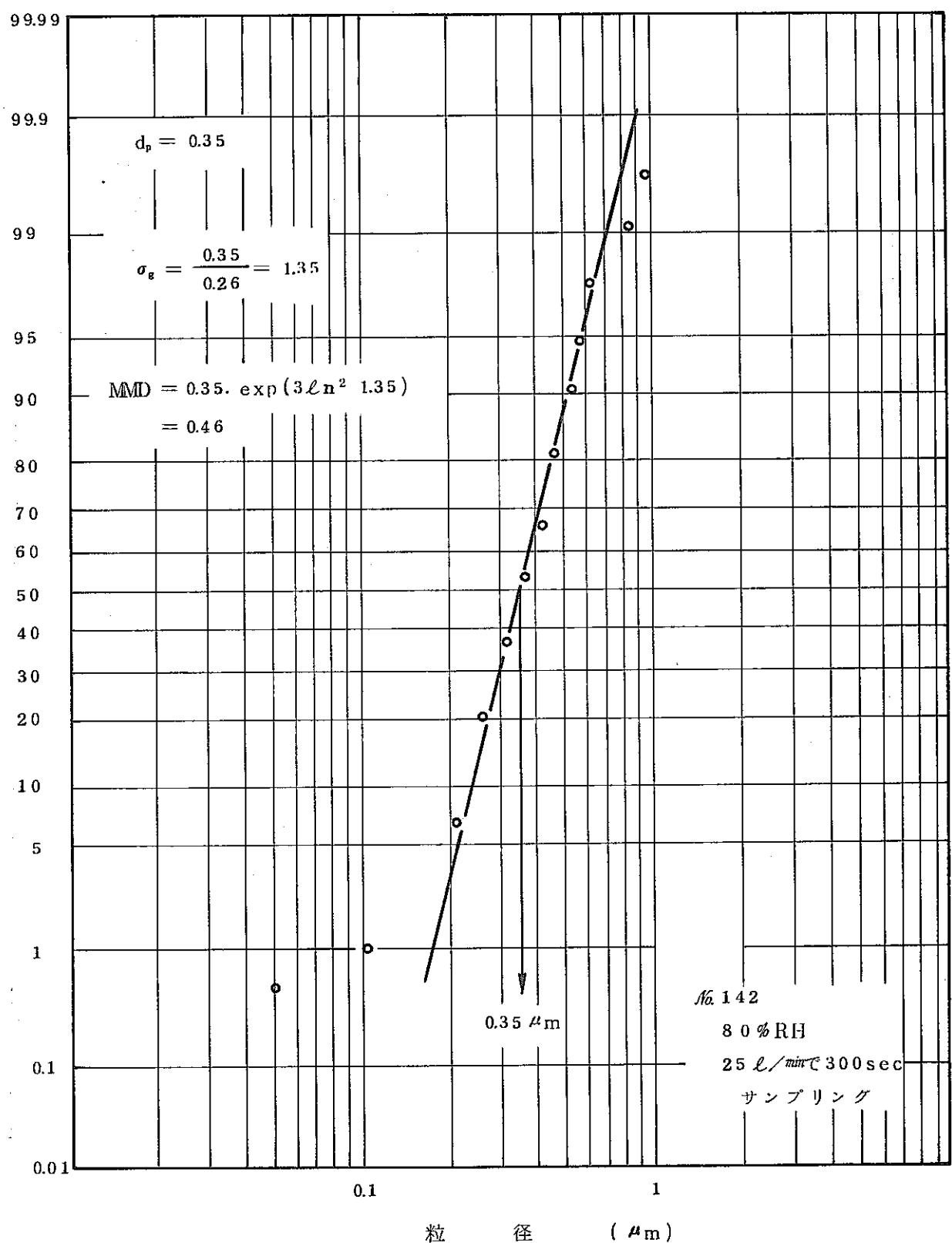


図-20 UF_6 エアロゾル個数粒度分布(電子顕微鏡)

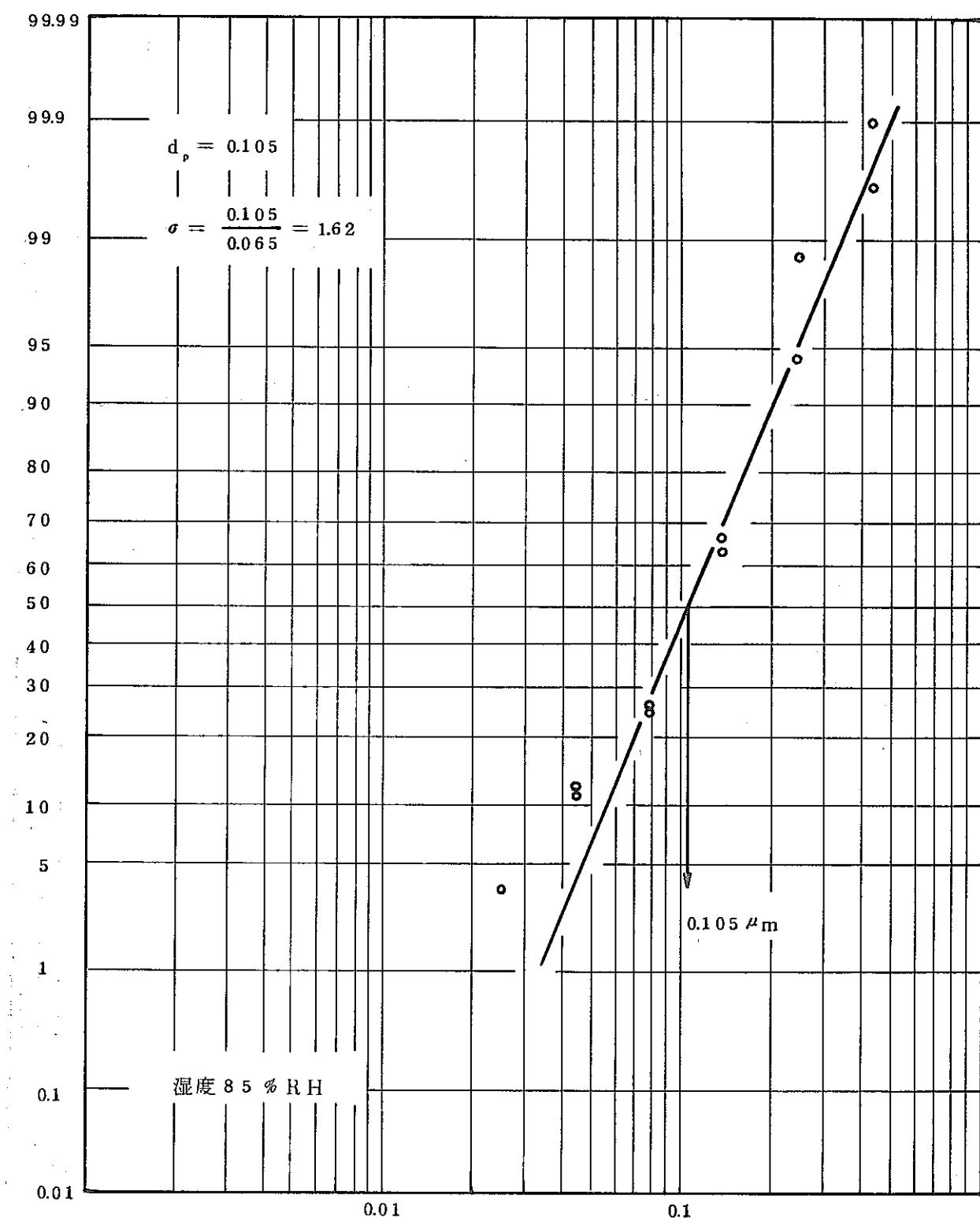


図-21 UF₆ エアロゾル粒度分布(静電型微粒子分析装置)

6. まとめ

以上の結果をまとめてみると、次のようになる。

- 1) UF_6 が空気中に漏洩した際に白煙として認知できる量は、放射性物質濃度にして 500 (MPC) μCi ($1 (\text{MPC}) \mu\text{Ci} = 2 \times 10^{-11} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) 以上である。
- 2) 通常の室内条件においては、 $\text{UF}_6 + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{UO}_2\text{F}_2 + 4 \text{HF}$ なる反応は、 $10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 前後までの実験結果では、瞬時にほぼ 100% 進行し、 UF_6 のガスとしての挙動はみられない。
- 3) UF_6 の放射性の分解生成物は、粒子として取り扱かえるため、 UF_6 に対する日常の空気汚染測定に係る放射線管理には、従来から使用している HE-40T で十分であると考える。
- 4) UF_6 の放射性の分解生成物の粒度分布は、測定法により若干異なるが、 $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ の範囲に分布する。（空気中放射性物質濃度 $10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 付近での測定結果）
- 5) UF_6 の空気中への放出は、ウランの娘核種を分離した形で生じるため、空気中に浮遊している粒子からの放射線は α 線が主体となる。それに対し、固体状残留物では β 線放出が主体となると思われる（試験中）ので、 UF_6 取り扱い施設では、これらの点に十分留意して放射線管理を行う必要がある。
- 6) 空気中の放射性物質（粒子状物質）濃度と HF（ガス状物質）濃度は、 $\text{UF}_6 + 2 \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{UO}_2\text{F}_2 + 4 \text{HF}$ なる反応式から推定される値を示すが、その单一放出後の濃度の減衰の傾向には、粒子状物質ならびガス状物質に起因する若干の差異が認められる。HFの濃度減少は放射性物質濃度の減衰と比較して、換気にに対する依存度が小さいことが見られた。

7. 今後の検討課題

UF_6 の空気中での挙動に関する試験研究において、今後、 UF_6 取り扱い施設での安全対策上重要と思われる項目を、以下、列挙する。

1) UF_6 エアロゾルの粒度分布

UF_6 エアロゾルの粒度分布に関しては、本報告においても、若干、述べたが、 UF_6 漏洩条件（温度、圧力、湿度、濃度等）により、その粒度分布が異なるものと考えられる。これまでにも、湿度が高い条件下においては、かなりの粒子が凝集していることが確認されている。粒度分布は、内部被曝の際の評価、 UF_6 室内漏洩時の挙動評価に対して、重要な因子となるため、今後、漏洩条件を変化させて、走査型電子顕微鏡（フィルター、サーマルプレシピテーター、アンダーセンサンプラー等）、静電型微粒子分析装置を用いて、測定試験を継続する。

2) 高性能フィルターのフッ化物に対する耐久性

UF_6 取り扱い施設での気体廃棄物による施設周辺環境への影響評価を行う際に、排気スタッフからの放射性物質放出量の評価は、重要な因子の一つである。この放出量を求めるにあたり、高性能フィルターの UF_6 エアロゾルに対する除去効率を実験的に把握しておくことは、 UF_6 取り扱い施設の安全評価上、重要である。サブミクロンオーダーのエアロゾルに対する高性能フィルターの除去効率としては、99%以上の値が期待されるが、 UF_6 エアロゾルに対しても、同様の値を示すかどうか、実験的に確認することが、検討課題である。また事故時に、大量に発生した UF_6 エアロゾルが高性能フィルターで除去される場合の構造材質の耐久性能に関するデータも、今後、実験的に求めておく必要がある。

3) 高性能フィルター通過後の UF_6 エアロゾル粒度分布

UF_6 が、野外環境へ放出された際の挙動に関しては、その粒子径が、大きなパラメータの一つとなる。2)の試験の際に、フィルター下流にて、粒度分布を求める必要がある。

4) 空気汚染と表面汚染の関係

空気中への UF_6 放出量を、広い範囲にわたって変化させ、空気汚染と表面汚染の関係をつかむ。また、両汚染測定上の問題点を確実におさえておく必要がある。

5) 多量漏洩時の挙動

UF_6 が大量に漏洩した場合は、小漏洩の場合と異なり UF_6 単独の挙動も考えられるので、この様な場合を想定した試験も、おこなう予定である。

最後に、実験開始当初に、有益な御指導をいただいた本社核燃料開発本部付主任研究員 村野徹氏、環境安全課長 平山昭生氏に、また、種々の実験補助装置を製作していただいた工作

工場の方々、ならびに、その他協力していただいた方々に、深く感謝いたします。

参考文献

- (1) R. Dewitt, "UF₆: A Survey of the Phisico Chemical Properties", GAT-280 (1960)
- (2) J. J. Katz, E. Rabinowititch, ed. "The Chemistry of Uranium", National Nuclear Energy Series, Div. VIII, Vol 5 (1951) (McGraw-Hill)
- (3) J. W. Arendt, ed. "A Brief Guide to UF₆ Handling", K-1323 (1957)
- (4) R. W. Kessie, D. Ramaswami, "Removal of Plutonium Hexafluoride from Cell Exhaust Air by Hydrolysis and Filtration", ANL-7066 (1965)
- (5) "乾式再処理防災手引"
 - I フッ素取扱 JAERI-memo-3204 (1968)
 - II 六フッ化ウラン取扱 " 3662 (1969)
 - III フッ素及び無機フッ化物による障害 " 3663 (1969)
- (6) 提 健 一 "UF₆ の取扱いと関連諸問題", 動燃ウラン濃縮W.G.参考資料 (1969)
- (7) "ウランフッ素化実験装置の概要", JAERI-3636 (1969)
- (8) "乾式法による再処理の工学的研究", JAERI-memo-3638 (1969), JAERI-memo-4389 (1971), JAERI-memo-4490 (1971)
- (9) "フッ化物揮発法再処理の工学的研究", JAERI-memo-4092 (1970)
- (10) "高速炉事故時のプルトニウム、ナトリウム、ヨウ素の挙動、捕集の研究", JAERI-memo-4359 (1971)
- (11) "ウランエアロゾルの捕集およびNa火災時の放射性ヨウ素放出挙動", JAERI-memo-4866 (1972)
- (12) 放射性ナトリウムおよび核分裂生成物による空気汚染測定に関する研究, JAERI-memo-4804 (1972)
- (13) "放射性ナトリウムおよびヨウ素の空気汚染の測定に関する研究", JAERI-memo-5255 (1973), JAERI-memo-5680 (1973), JAERI-memo-6123 (1975)
- (14) "ナトリウムエアロゾルを対象とした多層式エアフィルタの開発(1)", JAERI-memo-5948 (1974)
- (15) Robert W. Kessie, ed. "Filtration of Aerosols from Plutonium Hexafluoride Hydrolysis", ANL-7612 (1969)

- (16) S . E . Devier " On the Coagulation of Aerosols (Part I) " ,
J . Colloid Sci . Vol . 18 (1963) 744-756
- (17) M . A . Greenfield, ed. " Comparison of Experiment and Theory for the
Coagulation of Aerosols " , J . Colloid and Interface Sci . Vol . 35
(1971) -102-113
- (18) " Uranium Hexafluoride : Handling Procedures and Container Criteria " ,
ORO-651 Division 3 (1972)
- (19) 原子力工業 データシート No.7 (1977) 63
- (20) 房村信雄, 高田 劔 " 作業環境測定概論 " , コロナ社 (1976)
- (21) 小林義雄 " 作業環境の有害物質測定法 " , コロナ社 (1976)
- (22) 大喜多敏一 " フィルター法によるフッ化水素測定法およびガス状および粒子状フッ化物
の分離測定法 " , 環境保健レポート No.8 (1972) 19-22