

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001. 6. -6

[技術情報室]

# 空気中における六フッ化ウランエアロゾルの 挙動に関する研究(Ⅲ)

Studies on the Behavior of  $UF_6$  Aerosol in a Test Chamber (Ⅲ)

1979年2月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

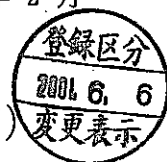
この資料は、社内における検討、周

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



## 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(Ⅲ)

実施責任者	平山昭生*
報告者	石田順一郎*
	坂本源二**
	竹田誠一*

期間: 1977年8月 ~ 1978年12月

要旨: 報告書(I), (II)では空気中に漏洩した六フッ化ウランを対象とする, 放射性物質濃度, フッ化水素濃度, 粒度分布等測定法の検討結果を述べた。本報では, これら基礎技術をふまえ, 大型の密封容器(30 m<sup>3</sup>)ならびに小型の密封容器(3 m<sup>3</sup>)中へ漏洩した六フッ化ウランエアロゾルを対象として, 漏洩の状況, 空気汚染と表面汚染の関係, 粒度分布の経時変化等について調べた結果を報告する。

六フッ化ウランが空気中に漏洩する際には, ウランの娘核種の大部分を容器中に残し, 親核種だけが漏洩する。これら空気中に漏洩した六フッ化ウランは直ちに空気中の水分により加水分解され, 粒子状物質とフッ化水素が生じる。粒子状物質の粒度分布は, 発生条件により異なるが, 空気力学的放射能中央径で0.6~1.8 μmのものが得られた。顕微鏡写真との対比により, 密度は2.9 g/cm<sup>3</sup>と求まった。放射性物質濃度とフッ化水素濃度の関係はほぼ反応式通りの値が得られた。

\* 安全管理部

\*\* 常陽産業(株)



FN841-79-16

February, 1979

## Studies on the Behavior of $UF_6$ Aerosol in Test Chambers ( III )

### Abstract

A number of experiments have been done to clarify unsolved problems regarding the behavior of uranium hexafluoride ( $UF_6$ ) aerosol and to obtain basic data necessary for establishing the radiation control technique in the case of  $UF_6$  release to the working environment. The experimental results are summarized as follows:

- (1) When  $UF_6$  is released into air, uranium remains its daughter nuclides in containers. Therefore  $\alpha$ -activity control should be performed for the released  $UF_6$ , and  $\beta$ -activity control for the left  $UF_6$ .
- (2) The relation between the concentration of hydrogen fluoride (HF) and that of uranium is almost similar to the hydrolyzed equation ( $UF_6 + 2H_2O \rightarrow UO_2F_2 + 4HF$ ). But in the range of higher release concentration, the former concentration is lower than the expected value compared with the latter concentration.
- (3) When ventilation number is more than two times per hour, the deposition ratio to the glove box is less than 10% of the total released quantity. More than 90% of it is led to the exhaust duct.
- (4) In the case of no ventilation, 70% of  $UF_6$  aerosol in a large glove box deposits on the linoleum floor, 29% of it on the acrylic resin wall and 1% of it on the SUS ceiling.
- (5) The surface contamination of non-conductors differs from that of conductors. The former is 2.8 times higher than the latter even though they are on the same position.
- (6) The size distribution of  $UF_6$  aerosol depends on the release conditions. The higher is the release concentration and the lower is the humidity, the larger is the size. In this experiment, activity median aerodynamic diameter changes from  $0.6\mu m$  to  $1.8\mu m$  on the release conditions at the beginning, increases about 40% of initial diameter in an hour, and attains equilibrium after that. The standard deviation is reducing in process of time.
- (7) When sampling flow rate is set at about Reynolds number 1,000, the deposition loss of  $UF_6$  aerosol in sampling conduits is minimum.

## 目 次

1.	はじめに	1
2.	試験装置の製作ならびに試験条件の設定	2
2.1	試験装置	2
2.1.1	UF <sub>6</sub> 発生部	2
2.1.2	UF <sub>6</sub> 漏洩部	5
2.1.3	サンプリング部	7
2.1.4	流量制御部	7
2.1.5	排気処理部	7
2.2	試験条件	8
3.	UF <sub>6</sub> エアロゾルの性状	10
3.1	UF <sub>6</sub> 漏洩時の娘核種同伴率	10
3.2	UF <sub>6</sub> の加水分解	10
4.	空気汚染と表面汚染の関係	16
4.1	空気汚染評価のモデル化	16
4.2	測定結果	19
5.	UF <sub>6</sub> エアロゾルの粒度分布	31
5.1	測定法	31
5.2	測定結果	32
6.	サンプリング配管への沈着率	41
6.1	測定法	41
6.2	測定結果	41
7.	ま と め	45
8.	今後の課題	46
9.	謝 辞	47
	参考文献	48

写 真 · 表 · 图 目 次

Photo-1	Overall view of operational area for UF <sub>6</sub> release experiments.....	3
Photo-2	Uranium particles settled or adsorbed on aluminum plate at each place of GB <sup>#</sup> 3.....	23
Photo-3	Uranium particles settled or adsorbed on each material in GB <sup>#</sup> 3.....	24
Photo-4	Uranium particles adsorbed on each material at wall of GB <sup>#</sup> 3.....	25
Photo-5	Uranium particles adsorbed on acrylic resin at wall of GB <sup>#</sup> 3.....	26
Photo-6	Uranium particles on the glass plate of Andersen non-viable sampler.....	35
Photo-7	Uranium particles on the sampling plate of Andersen non-viable sampler.....	36
Photo-8	Uranium particles on the each sampling plate of Andersen non-viable sampler.....	37
Table-1	Measurement results by $\gamma$ -spectroscopy.....	13
Table-2	Characteristics of Andersen non-viable sampler.....	34
Table-3	Density of uranium particles.....	38

Fig-1	Configuration of the experimental set-up.....	4
Fig-2	Schematic diagram of glove box.....	6
Fig-3	Schematic diagram of the sampling tube measuring concentrations...	6
Fig-4	UF <sub>6</sub> which can react with steam water in air.....	9
Fig-5	Decay schemes for uranium.....	11
Fig-6	γ-spectroscopy of the filtered UF <sub>6</sub> .....	12
Fig-7	Radioactivity concentration vs. Hydrogen fluoride concentration in air.....	14
Fig-8	Particle size vs. Residence half time and settling velocity.....	18
Fig-9	Reduction of activity concentrations in GB <sup>#</sup> 1.....	21
Fig-10	Reduction of activity concentrations in GB <sup>#</sup> 3.....	22
Fig-11	Reduction of hydrogen fluoride concentrations in GB <sup>#</sup> 3.....	27
Fig-12	Reduction of activity and hydrogen fluoride concentrations in GB <sup>#</sup> 3 by ventilation.....	28
Fig-13	Ventilation number per unit time vs. Residence half time.....	29
Fig-14	Sedimentation vs. Ventilation number per unit time (I).....	30
Fig-15	Sedimentation vs. Ventilation number per unit time (II).....	30
Fig-16	Eight-stage Andersen non-viable sampler.....	34
Fig-17	Size distribution of UF <sub>6</sub> aerosol depending on humidity.....	39
Fig-18	Size distribution of UF <sub>6</sub> aerosol depending on time.....	40
Fig-19	Schematic diagram of sampling equipment.....	42
Fig-20	Deposition of uranium particles in polyvinyl chloride pipe.....	43
Fig-21	Deposition of uranium particles in polyvinyl resin pipe.....	44

## Nomenclature

- $A_{01}, A_{02}$  :  $t = 0$  における  $^{238}\text{U}$  と  $^{234}\text{Th}$  の放射能強度  
 $A_1, A_2$  :  $t = t_1$  ならびに  $t = t_2$  における  $^{234}\text{Th}$  の放射能強度  
 $A_f, A_w, A_c$  : 汚染が発生した室内の床面積, 壁面積, 天井面積  
 $C$  : カニンガムのスリップ補正係数  
 $D_A$  : 空気力学的放射能中央径 (cm)  
 $D_c$  : ジェットノズルの直径 (cm)  
 $D_g$  : 幾何学的径 (cm)  
 $dp_{50}$  : 実効分離径 (cm)  
 $E$  : 排気容量 ( $\text{m}^3/\text{min}$ )  
 $g$  : 重力加速度 ( $980 \text{ cm}/\text{sec}^2$ )  
 $h$  : 汚染が発生した室内の高さ (cm)  
 $\ell$  : 気体分子の平均自由行程 (20°C, 1気圧で  $6.54 \times 10^{-6} \text{ cm}$ )  
 $N$  : ジェットノズルの数  
 $Nv^0$  : 汚染発生が止んだ際の空気汚染濃度  
 $Nv$  : 空気中の平均汚染濃度  
 $Nvd$  : 排気ダクトでの平均空気汚染濃度 ( $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ )  
 $N_s$  : 床表面汚染密度 ( $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ )  
 $Q$  : 吸引流量率 ( $\text{cm}^3/\text{min}$ )  
 $R$  : 沈着割合  
 $r$  : エアロゾルの半径 (cm)  
 $S$  : 単位時間あたりの汚染発生率  
 $T_u$  :  $^{238}\text{U}$  の半減時間  
 $t_1, t_2$  : 時刻  
 $V$  : 汚染が発生した室内の体積  
 $v_s$  : 重力沈降速度  
 $\lambda_a$  : 単位時間あたりの換気回数  
 $\rho_p$  : エアロゾルの密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )  
 $\rho$  : 気体の密度 (20°C, 1気圧で  $0.001205 \text{ g}/\text{cm}^3$ )  
 $\mu$  : 空気の粘度 (20°C, 1気圧で  $1.813 \times 10^{-4} \text{ g}/\text{cm} \cdot \text{sec}$ )  
 $\phi$  : 無次元慣性パラメータ (衝突効率 50% :  $\phi_{50} = 0.144$ )



## 1. は じ め に

動燃事業団では、大量の六フッ化ウランを取り扱ってきているが、当安全管理部では、これら六フッ化ウランが作業環境中へ漏洩した際に放射線管理上問題となる項目について、種々の実験をおこなってきた。本報では、作業室に模擬した大型のグローブボックスを製作し、このグローブボックス内に漏洩した六フッ化ウランについて、(1)その娘核種の同伴率、(2)加水分解の状況、(3)加水分解して生成された粒子の粒度分布、(4)これら粒子のサンプリング配管中への沈着割合、(5)空気汚染と表面汚染の関係を調べたので報告する。

## 2. 試験装置の製作ならびに試験条件の設定

### 2.1 試験装置

試験装置の概観ならびにフローシートを Photo - 1, Fig - 1 に示す。その概略仕様を以下に示す。

#### 2.1.1 UF<sub>6</sub>発生部

UF<sub>6</sub>発生部は、UF<sub>6</sub>の物性上、配管内への固着を防ぐため、すべてリボンヒーターにて50～60℃に保温し、万一のUF<sub>6</sub>の系外漏洩にそなえてカルホルニア型フード内におさめられている。

##### (1) UF<sub>6</sub>発生槽

通常、UF<sub>6</sub>発生槽内には500g程度のUF<sub>6</sub>を保持しているため、耐食性SUS27により作られている。気密度： $1 \times 10^{-6}$  Atm<sup>cc</sup>/sec以下、使用温度範囲：-80～+100℃、容量：2ℓ、耐圧：5 kg/cm<sup>2</sup>・Gを設計基準とした。また発生槽上部には容器内圧力を指示する隔膜式圧力計（指示範囲：-1.0～+1.0 kg/cm<sup>2</sup>）を有している。本装置の温度コントロールは、急激な温度上昇を防ぐため、ヒーターによる直熱方式を避け、本装置を収納している水槽内温度の調節によりおこなわれている。UF<sub>6</sub>放出後に発生槽の温度を下げるため、水槽はリフトにより昇降できる構造となっている。

##### (2) バラストタンク

材質：耐食SUS27、気密度： $1 \times 10^{-6}$  Atm<sup>cc</sup>/sec以下、耐圧：3 kg/cm<sup>2</sup>・G、最高使用温度：100℃、容量：3.5ℓを設計基準値とした。本部分でのUF<sub>6</sub>充填量は、UF<sub>6</sub>発生槽部と同様、隔膜式圧力計（指示範囲-1～+0.5 kg/cm<sup>2</sup>）にて指示される。当初、UF<sub>6</sub>の発生は温度コントロールで大気圧以上にしてグローブボックス内へ漏洩するはずであったが、リボンヒーターにて保温しているにもかかわらず予想以上のUF<sub>6</sub>が配管、バルブ、圧力計ならびにUF<sub>6</sub>吐出部に固着したため、以後、少量のUF<sub>6</sub>を窒素ガスにて大気圧以上に加圧し、放出する方法を採用した。不純物の混合を防ぐため、窒素ガスとしては純度99.9995%以上（純ガスN<sub>2</sub>〔A〕不純物規格：O<sub>2</sub><0.5ppm、CO<sub>2</sub><1ppm、CO<1ppm、CH<sub>4</sub><1ppm、NO<sub>x</sub><0.1ppm、水分<-70℃）のものを用いている。

##### (3) コールドトラップ

設計基準はUF<sub>6</sub>発生槽と同一である。本装置はUF<sub>6</sub>漏洩終了後に配管内に残留しているUF<sub>6</sub>を回収するためのもので、装置運転時にはドライアイスにより冷却されている。本装置にUF<sub>6</sub>が蓄積されてきた場合には、発生系としても使用できる様に、UF<sub>6</sub>発生槽と同一仕様で製作してある。

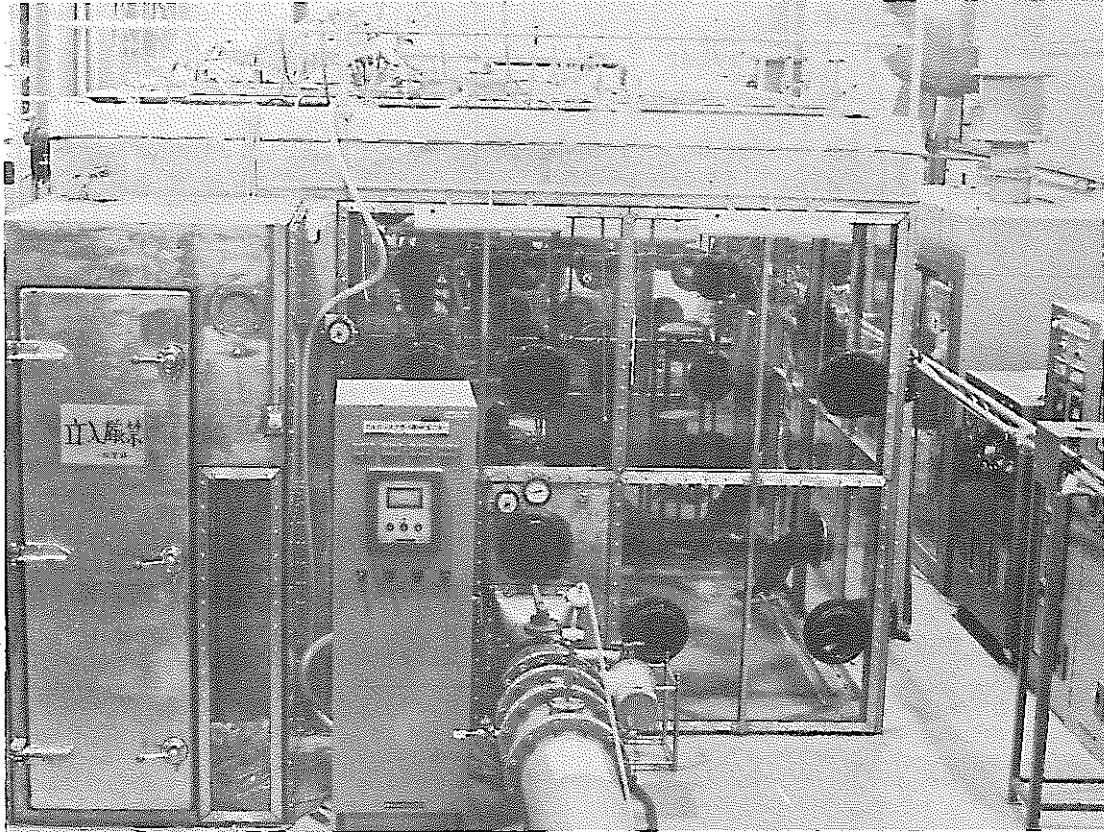


Photo-1 Overall view of operational area for  $UF_6$  release experiments

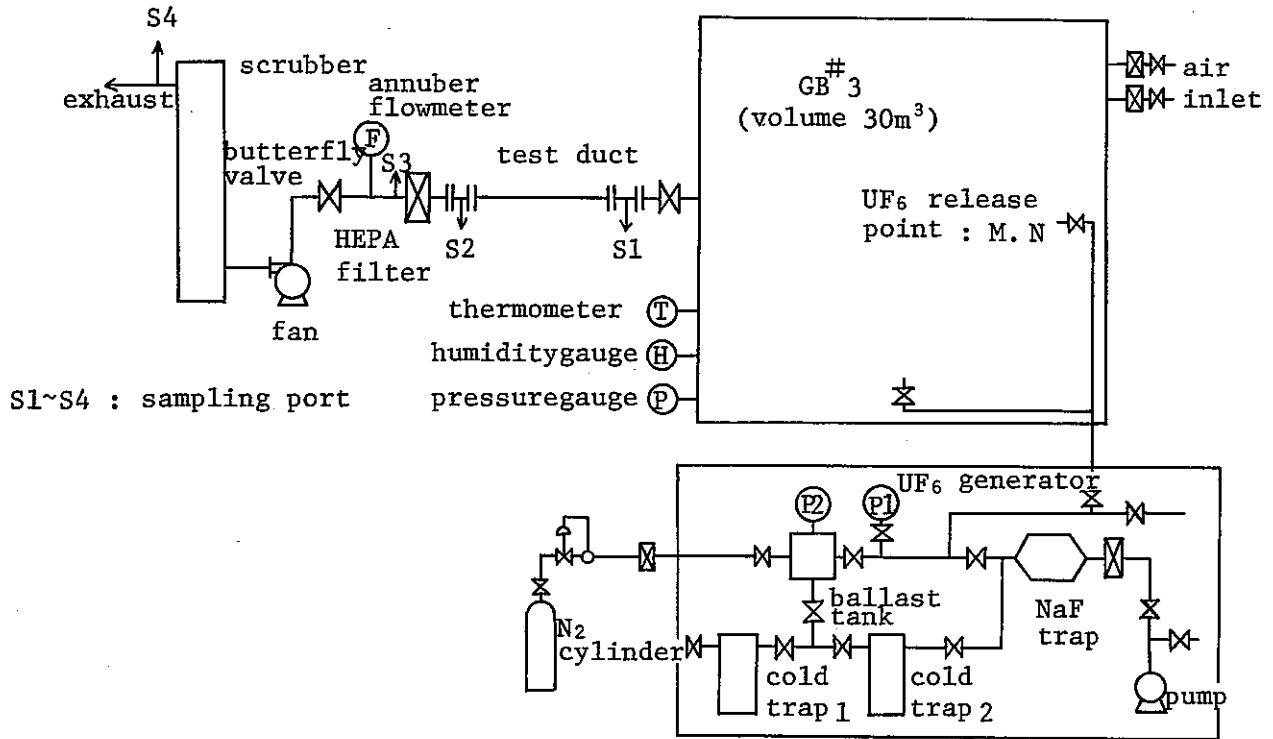


Fig-1 Configuration of the experimental set-up

## (4) NaFトラップ

設計基準は、材質：SUS27、気密度： $1 \times 10^{-6}$  Atm<sup>CC</sup>/sec以下、容量：2.25ℓである。UF<sub>6</sub>漏洩後に、配管内に残留しているUF<sub>6</sub>あるいはコールドトラップを通過するUF<sub>6</sub>を捕集するために使われる。充填しているNaFは直径3mm程度の球状粒子で、装置の運転状況にもよるが、1年を目安に交換している。なお、交換の便宜をはかるため、NaFはトラップ内の内筒に充填しており、内筒を抜き出し、NaFを交換することができる。

## (5) フィルター

NaFの粉じんが真空ポンプへ引かれるのを防ぐため、粒子径0.3μmの粒子に対し捕集効率99.97%以上の性能を有するフィルターをNaFトラップ後段に設置してある。本体はSUS-304で、フィルター戸材のみが交換できる構造となっている。交換頻度はNaF同様1年を目安としている。

## (6) バルブ

流体仕様として、流体名：ガス状UF<sub>6</sub>、使用圧力： $10^{-4}$  Torr ~ 2 kg/cm<sup>2</sup>G、最高使用温度：80℃で、気密度： $1 \times 10^{-7}$  Atm<sup>CC</sup>/sec以下を保証するものである。従って、接ガス部はすべてSUS304、デスク及びボンネットガスケットはパーフロンCXとしている。

2.1.2 UF<sub>6</sub>漏洩部

## (1) 大型グローブボックス (GB#3)

気密度：0.5 vol%/hr以下、最高使用圧力：0.006 kg/cm<sup>2</sup>で設計してある。主要材質は本体：SUS304、窓板：アクリライト板、床：FRPライニング及びリノリウムである。UF<sub>6</sub>漏洩時に同時に発生するHFに耐え得る材質は余りないが耐酸、耐アルカリ性に優れたFRPを床面材質として選んだ。なお、UF<sub>6</sub>エアゾルの沈着を調べる都合上、FRP床面上にリノリウムを敷いて用いている。また、耐HF性が優れていることから、窓板材質を通常使用されているガラス板からアクリライト板へ変更した。

グローブボックス本体の大きさは3.5たて×3.5横×2.4高(m) (内容積~30m<sup>3</sup>)で、天井面近くに給気口2ヶ、床面近くに排気口1ヶが設置されている (Fig 2)。ポンプの運転により、0~20回/hrの換気回数を得られる。

UF<sub>6</sub>発生部とは $1/2$ B SUS27配管と結ばれており、GB#3内の4カ所から、バルブ操作により窒素ガスで大気圧以上に加圧されたUF<sub>6</sub>を放出することができる。漏洩雰囲気の状態は、温、湿度計ならびに圧力計により監視される。

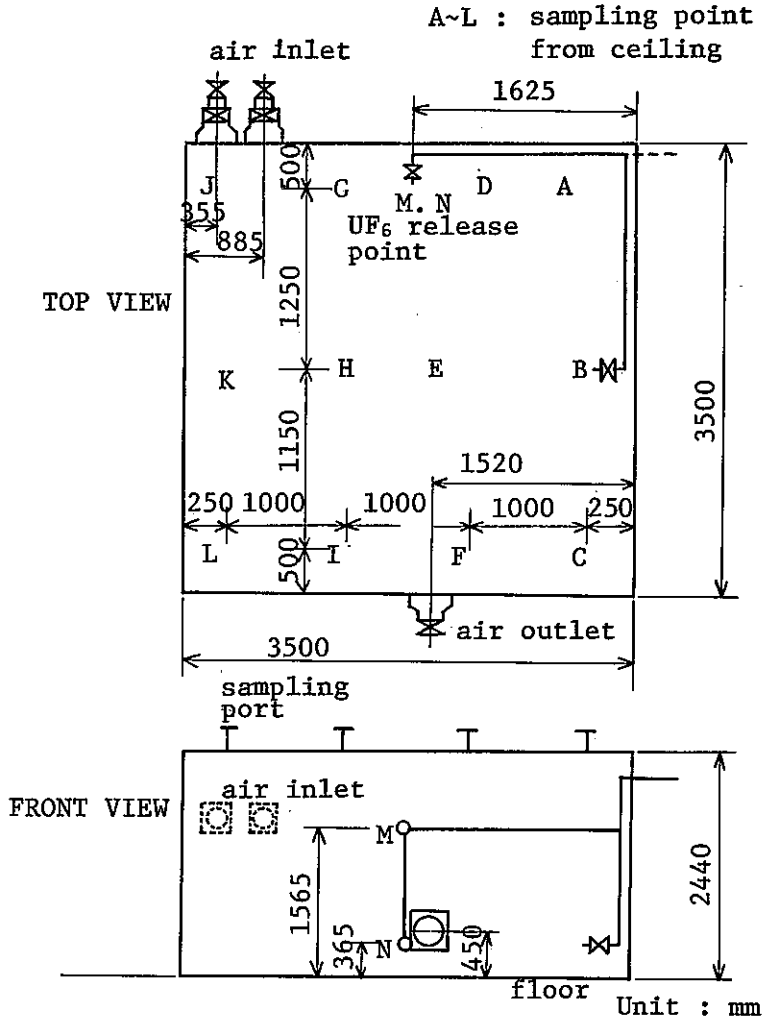


Fig-2 Schematic diagram of glove box

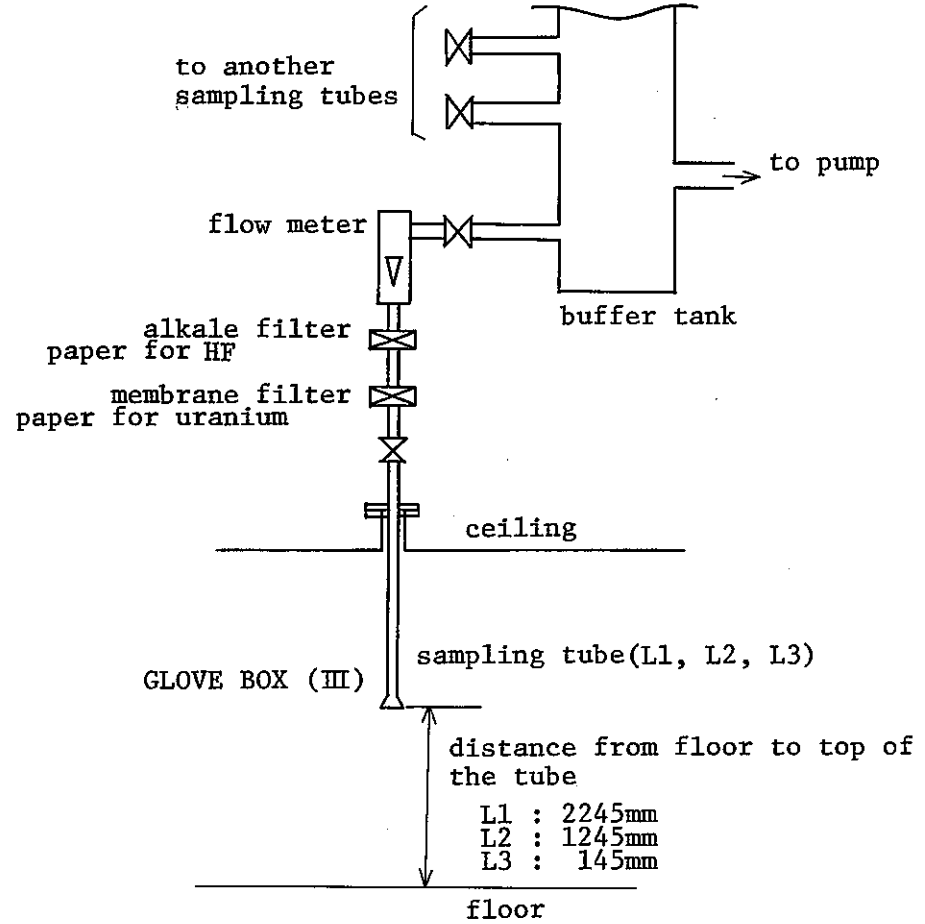


Fig-3 Schematic diagram of the sampling tube measuring concentration

## (2) 小型グローブボックス (GB#1)

気密度 0.1 vol%/hr 以下, 最高使用圧力 0.006 kg/cm<sup>2</sup> の設計である。主要材質は GB#3 と同様であるが, この GB#1 では床面も SUS304 を用いている。

UF<sub>6</sub> の漏洩は, GB#1 直前の混合ノズルで湿度調節した空気 (33~90% RH) と混合後なされる。

## 2.1.3 サンプリング部

GB#3 内雰囲気放射物質濃度ならびにフッ化水素濃度はすべて天井面に設置されたサンプリング用紙に捕集後各測定法により求める。

水平配管ではサンプリング中に粒子が配管に沈降付着する恐れがあるため, ここではすべて垂直配管とした。垂直配管の長さは, 高さをパラメータにした濃度の経時変化を調べるため, 床面からの高さ 14.5cm, 124.5cm, 224.5cm の三種類の配管を準備した。口径は  $\frac{1}{4}$  B である。天井面でのサンプリングは, 用紙二段及び流量計からなり, 前段の用紙, Millipore AA (pore size 0.8 $\mu$ m) で粒子状物質 (ウラン) を, 後段の用紙, アルカリ用紙 (ギ酸ナトリウム 10% 溶液を含浸, 乾燥させたもの) でガス状物質 (フッ化水素) を捕集する (Fig 3)。

GB#1 では, 幅が 1m と短いため, 水平配管によりサンプリングをおこなう。他は GB#3 と同様である。

## 2.1.4 流量制御部

GB#3 の流量制御はアニューバー流量計とバタフライ弁にておこなう。アニューバー流量計は SUS316 製で, 動圧と静圧の測定により, 1~10<sup>3</sup> m<sup>3</sup>/min の範囲の測定が可能である。バタフライ弁の調節により前述の様に 2~20回/hr の換気回数を得られる。

## 2.1.5 排気処理部

GB#3 の排気処理部は高性能フィルターと排ガス洗浄装置からなる。

## (1) 高性能フィルター

0.3 $\mu$ m の DOP にて捕集効率 99.97% 以上の性能を有するもので, 前段にフェルドン製のプレフィルターが挿入されている。交換は, 初期圧損の 2 倍程度 (50mm Aq) を目安としている。ここで粒子状物質の除去をおこなう。

## (2) 排ガス洗浄装置 (スクラバー)

最大 100ppm のフッ化水素が流入した際に 99.5% 以上の除去率を有する設計である。粒子状物質はすべて前段の高性能フィルターにより除去されるとしての設計である。湿式

充填向流方式で、主材質はデュラコール（耐食FRP）、改良S型テラレットが充填されており、ガスとの接触面積が多くとれる様になっている。平均20ppmのフッ化水素に対して、5wt%のKOH洗浄液を用いた場合、98時間の連続運転が可能である。

GB#1の排気処理部は、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系へ接続されている。

## 2.2 試験条件

試験条件は次の通りである。

温度，圧力：常温，常圧

湿度：13～80%RH

放射性物質濃度：最大 $5 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$

UF<sub>6</sub>は空気中の水分に加水分解される。各露点におけるUF<sub>6</sub>の最大加水分解され得る量を、計算にて求めたものをFig-4に示す。現在までの実験は、すべて、この量以下での放出実験である。



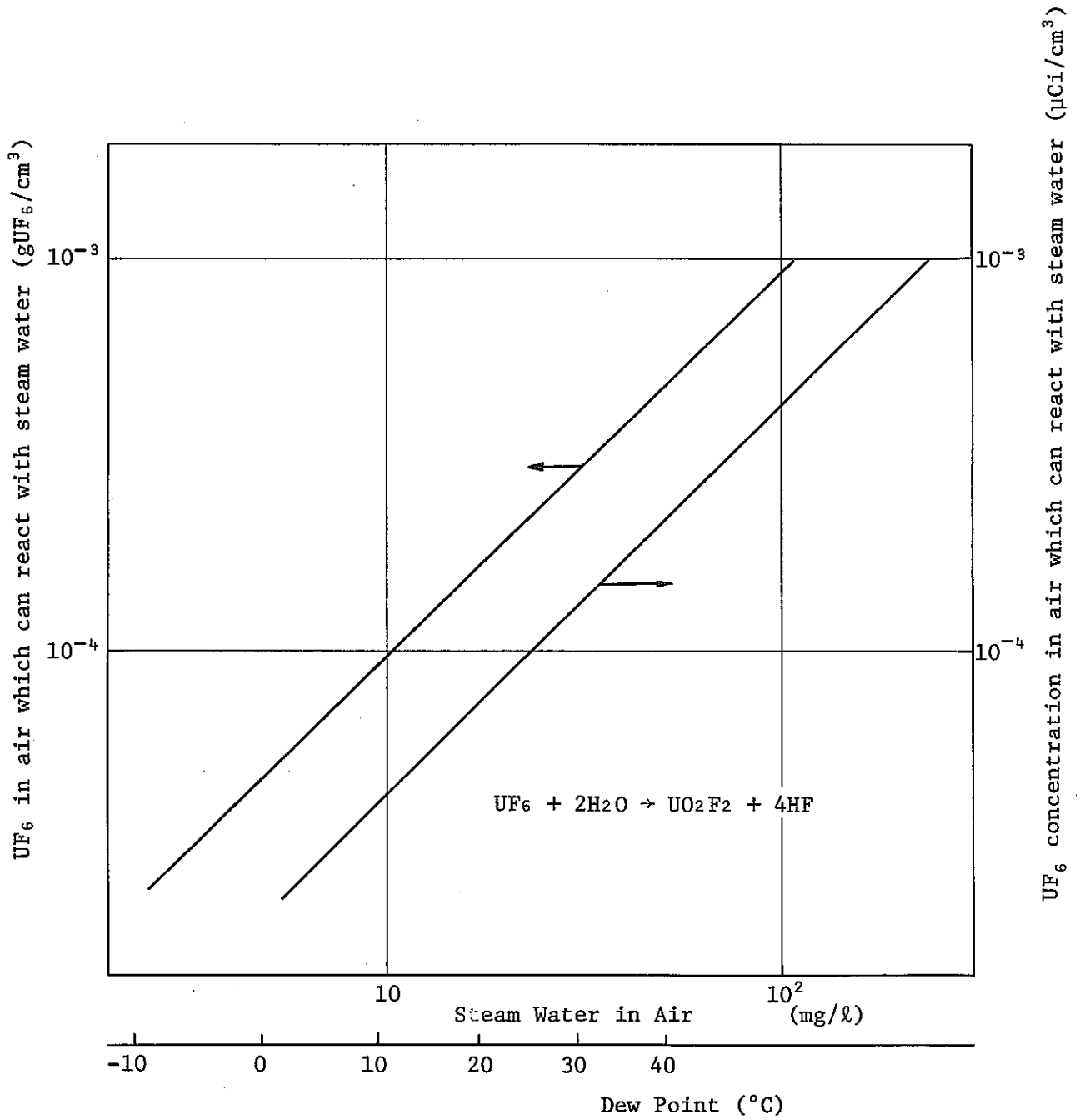


Fig-4  $UF_6$  which can react with steam water in air

### 3. UF<sub>6</sub> エアロゾルの性状

#### 3.1 UF<sub>6</sub>漏洩時の娘核種の同伴率

UF<sub>6</sub>はその生成過程で娘元素から分離されるので自然界に存在するウランと異なり、放射平衡には達していないと言われている<sup>(1)</sup>。しかし、一般に事業所内で取り扱われているUF<sub>6</sub>は生成してから大部日数が経過しており、ほぼ放射平衡に達しているものと思われる。これらUF<sub>6</sub>が取り扱い装置系より作業環境中へ漏洩した際の、その娘核種の同伴率を $\gamma$ スペクトル分析により調べた。

ウランの崩壊系列をFig-5に示す。核種の壊変が $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{Th} \rightarrow ^{234}\text{Pa}$ と進行する場合は、時間 $t$ における $^{234}\text{Th}$ の放射能強度を $A$ とおけば、

$$A = \frac{T}{T_u} A_{01} \left( 1 - e^{-\frac{0.693 t}{T}} \right) + A_{02} e^{-\frac{0.693 t}{T}} \quad \dots\dots(1)$$

と表わされる。ここで $T$ は $^{234}\text{Th}$ の半減期、 $t$ はUF<sub>6</sub>漏洩後の経過日数、 $A_{01}$ 、 $A_{02}$ はそれぞれ $t = 0$ における $^{238}\text{U}$ と $^{234}\text{Th}$ の放射能強度である。従って、時間 $t_1$ 、 $t_2$ での放射能強度 $A_1$ 、 $A_2$ を測定し、連立方程式を解いて、 $A_{02}/A_{01}$ を計算すれば、UF<sub>6</sub>が空気中にガス状で放出された際の娘核種の同伴率が求まる。 $^{234}\text{Th}$ の63.3 KeVの $\gamma$ 線に着目して計算した。

Fig-6に代表的な $\gamma$ 線エネルギースペクトル測定結果を示す。 $^{234}\text{Th}$ の計数値の増加が著しい。(1)式に $^{234}\text{Th}$ (63.3 KeV)の計数値を代入して、Table-1の結果を得た。ほぼ完全に娘核種が分離されていることがわかる。従って、漏洩したUF<sub>6</sub>に対しては $\alpha$ 線に着目したモニタリングを、容器については、 $\beta$ 線を主とした管理を行うのが適切であると考えられる。

#### 3.2 UF<sub>6</sub>の加水分解

UF<sub>6</sub>が空気中へ漏洩すると空気中の水分により直ちに加水分解され、フッ化ウラニル(UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>)とフッ化水素(HF)が生成されるといわれているが、どのような条件下での現象かを明確にしておく必要がある。UO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>については本試験第一報でも報告した様に空気中に漏洩したものを濾紙に捕集しX線回折法で調べた結果ではASTMに記載のUO<sub>2</sub>F<sub>2</sub>結晶系は確認できていない。

本実験ではサンプリング濾紙二段法(前段: Millipore-AA, 後段: アルカリ濾紙, Fig. 3)にて粒子状物質とガス状物質を分離、捕集し、空気中のウラン濃度とフッ化水素濃度を求め、第一報図-14を拡張した。UF<sub>6</sub>漏洩源直前での両者の関係をFig-7に示す。実験結果と計算値との間には全体的にはほぼよい相関がみられるが、ウラン濃度に比較してフッ化水素濃度が若干低めではある。その理由として、フッ化水素の空気中での存在形態とサンプリン

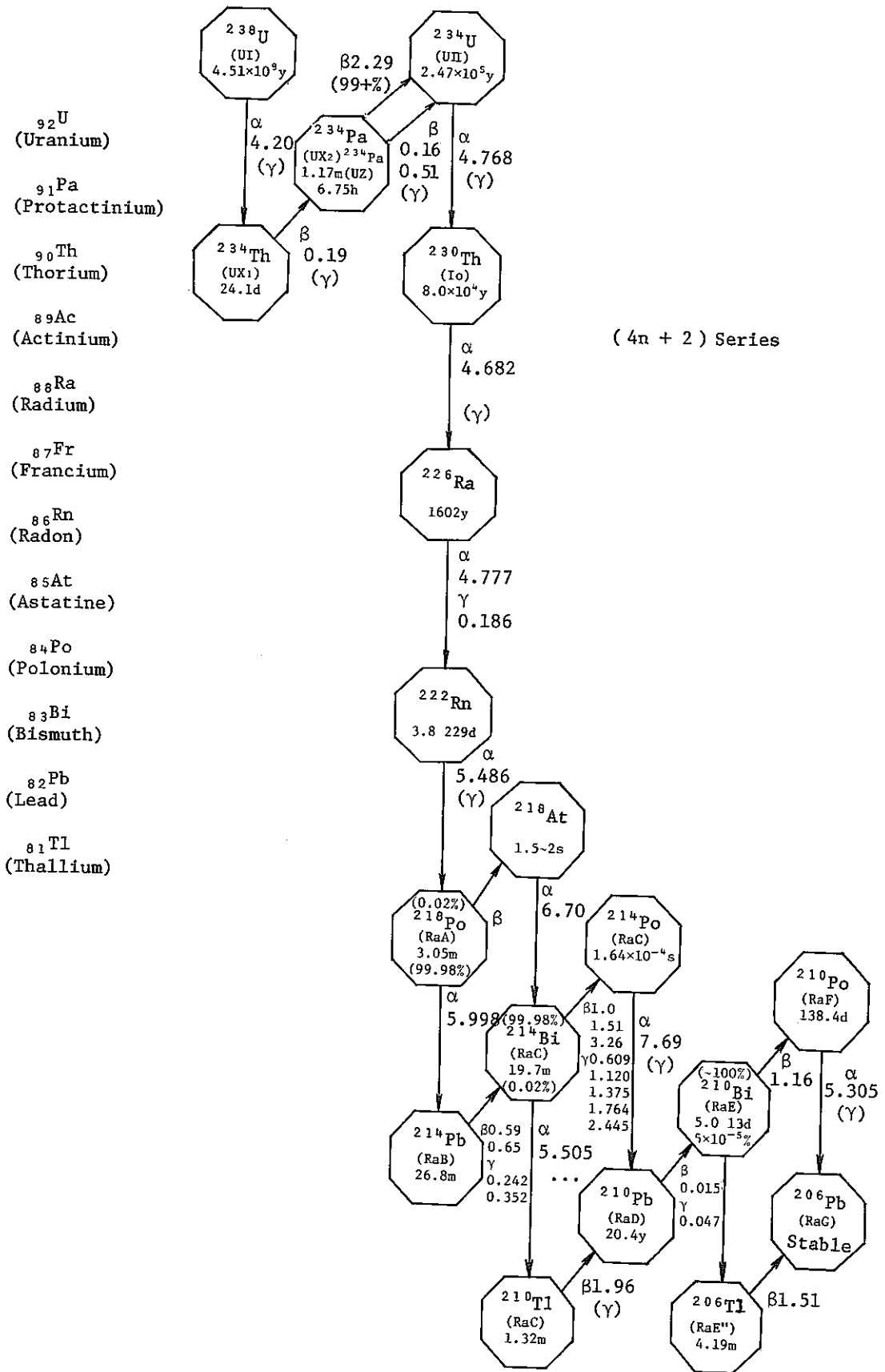
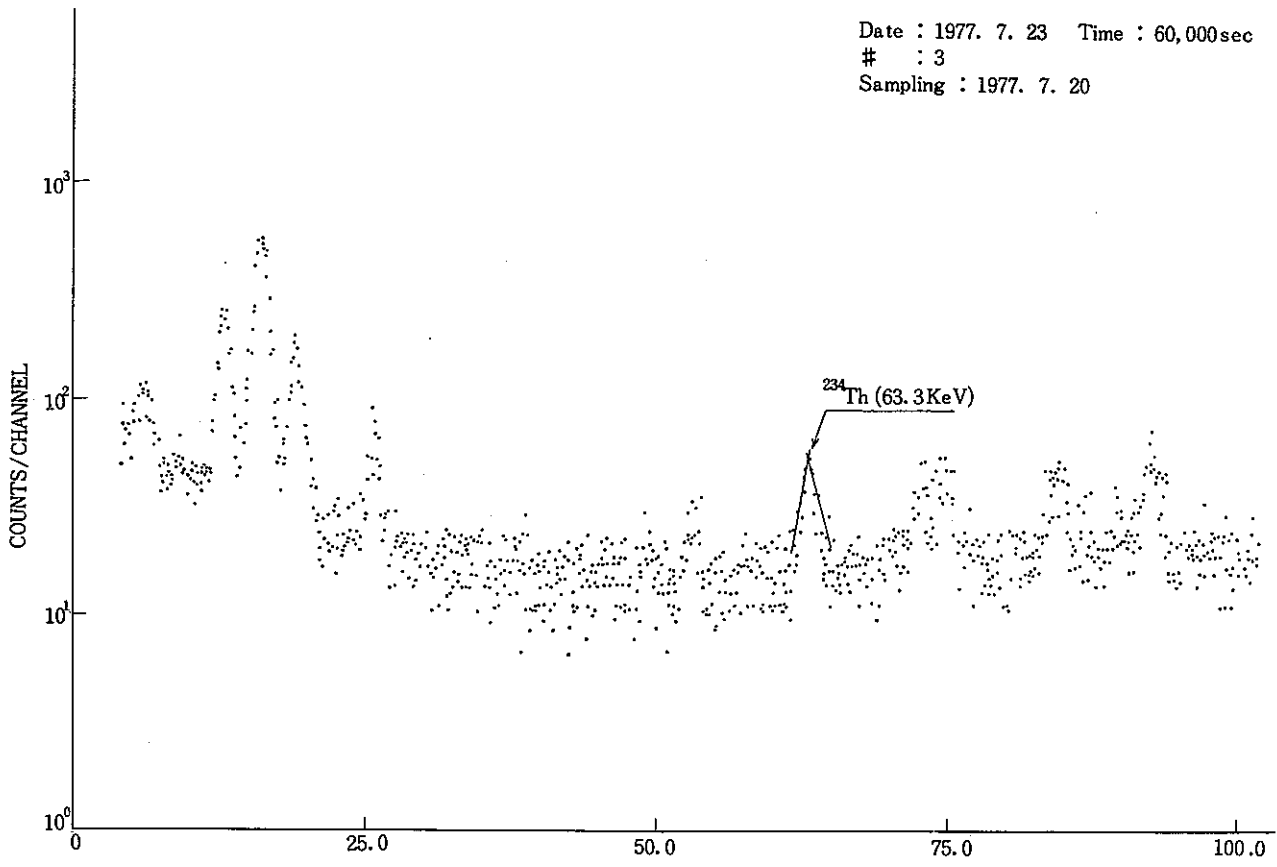


Fig-5 Decay schemes for uranium.

Date : 1977. 7. 23 Time : 60,000sec  
# : 3  
Sampling : 1977. 7. 20



Date : 1977. 12. 7 Time : 60,000sec  
# : 3  
Sampling : 1977. 7. 20

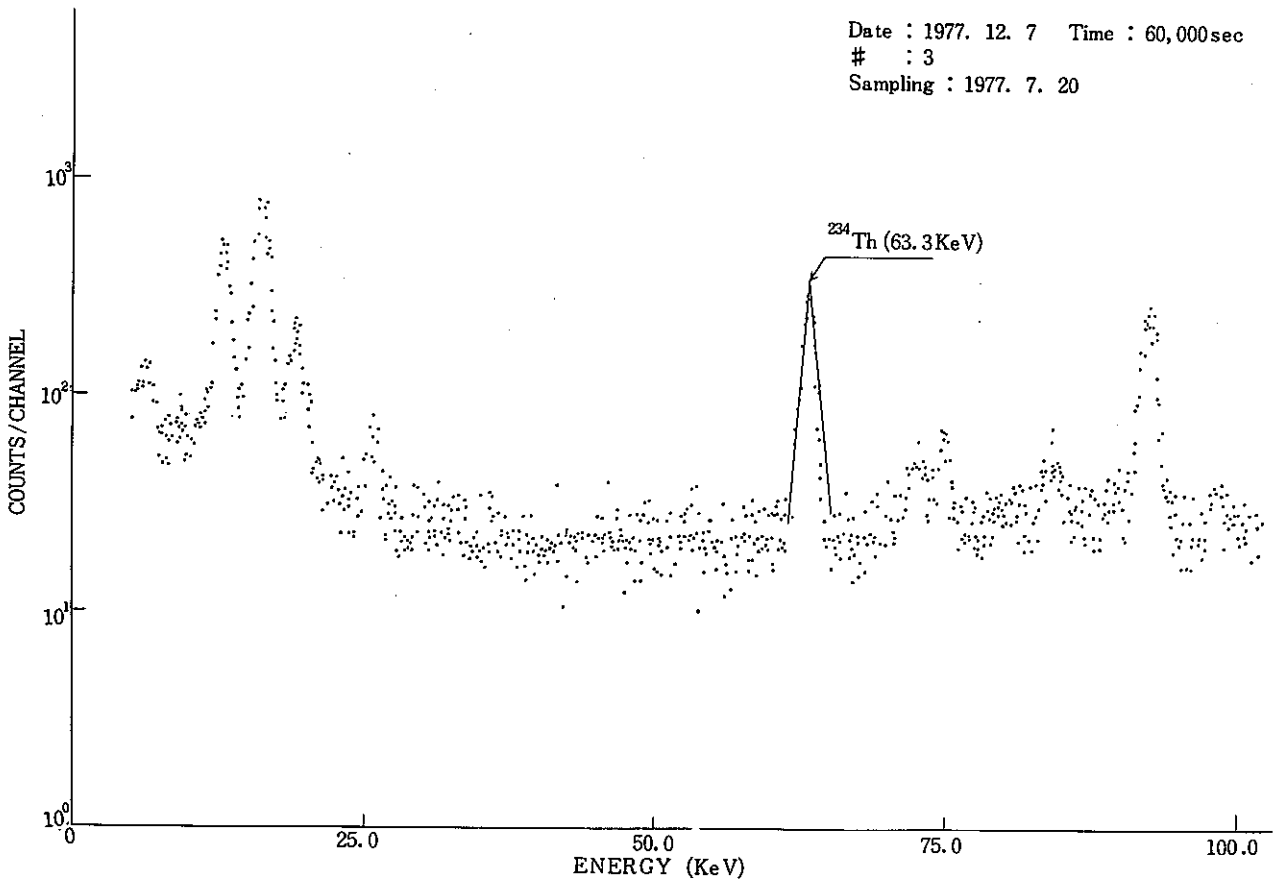


Fig-6  $\gamma$ -spectroscopy of the filtered UF<sub>6</sub>

Table-1 Measurement results by  $\gamma$ -spectroscopy

Specimen No.	First measurement after UF <sub>6</sub> releasing (Day)	Second measurement after UF <sub>6</sub> releasing (Day)	A <sub>02</sub> /A <sub>01</sub>
1	30	120	$9.5 \times 10^{-13}$
2	0.5	141	$1.5 \times 10^{-10}$
3	3.5	142	$8.2 \times 10^{-13}$
4	5.5	143	$4.5 \times 10^{-9}$

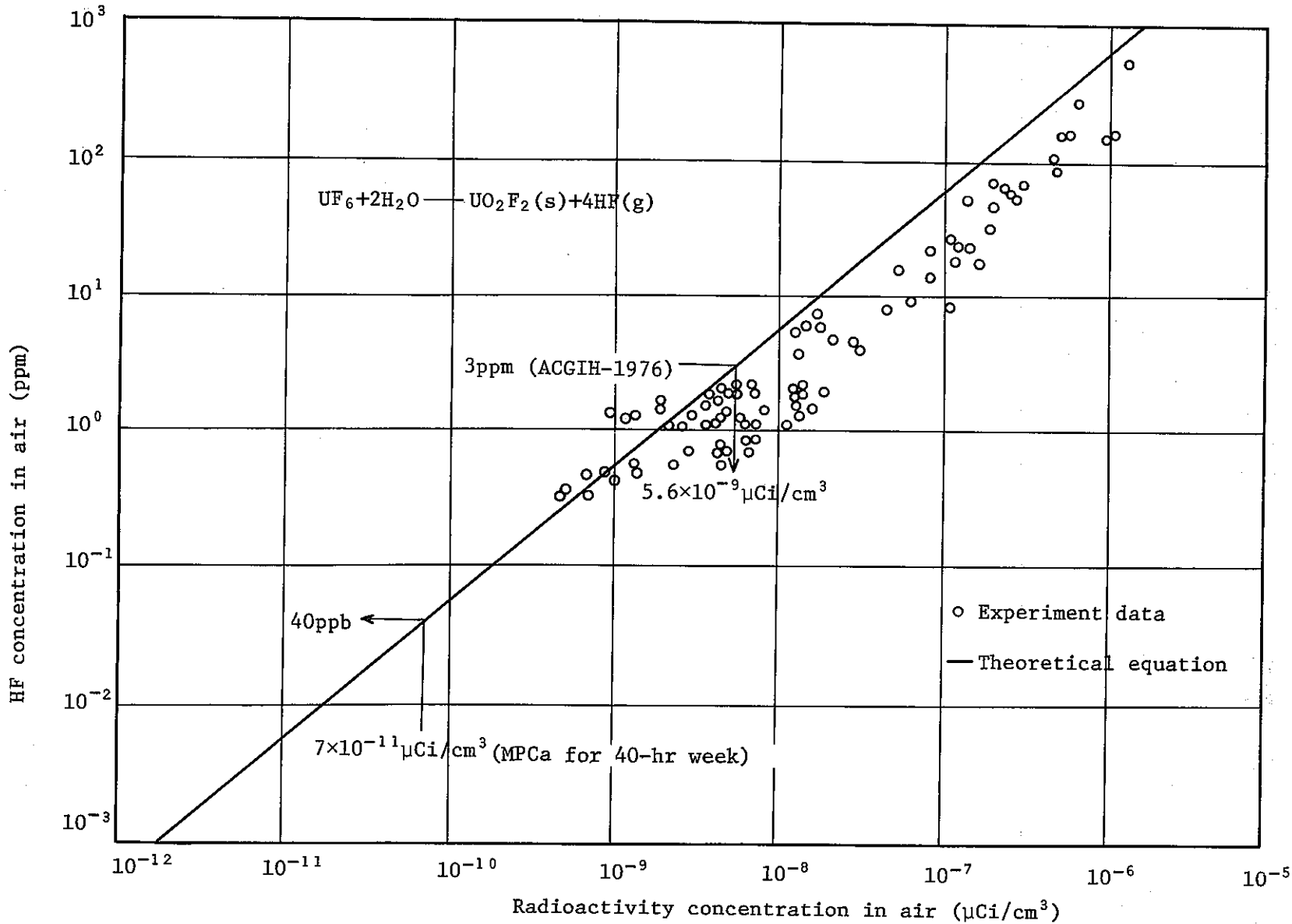


Fig-7 Radioactivity concentration vs. Hydrogen fluoride concentration in air.

グ時の状況が考えられる。すなわち、 $UF_6$ が加水分解されて生成されたフッ化水素が空気中の水分と反応してミスト状となり、これが前段の濾紙に捕集され、後段のアルカリ濾紙に捕集される量が少なくなり濃度が低めの値を与えるのか、あるいは、清浄な条件下ではMillipore-AA 濾紙はガス状のフッ化水素を通過させるが、粒子状物質が捕集されるに従い、その物質がフッ化水素ガスを吸着し、低めの評価を与えているものと考えられる。現在は、粒子状物質、ミスト状物質、ガス状物質を分離、測定する装置<sup>\*</sup>がないのでそこまではおこなっていない。

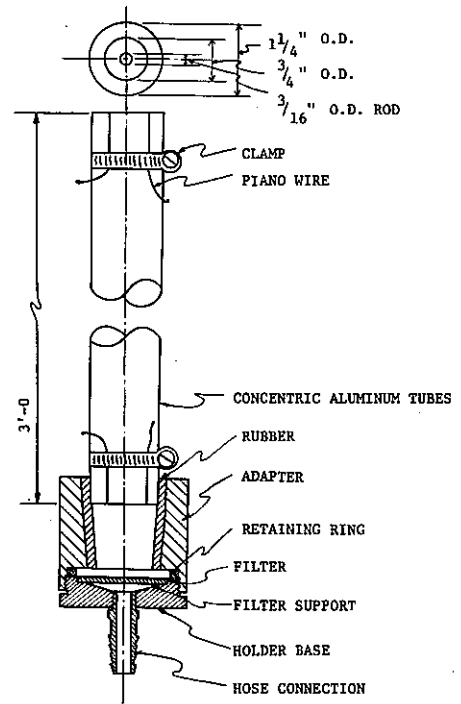
また、ウラン濃度 $10^{-10} \mu Ci/cm^3$ 以下の濃度での漏洩実験は放出量調節が困難なためおこなっていない。

(2)  
\* ガス状フッ化物と粒子状フッ化物の分離法 :

フッ化水素の様なガス状フッ化物は、粒子状フッ化物と比較して、植物に容易に吸収される。従って、フッ化物の存在形態毎にその濃度を求めることが重要となる。その分離方法としては、M.R.Packらがおこなったアルミ管を通しての吸引方法がある。これは右図に示すように、アルミ管をサンプリング濾紙前に装着したもので、空気を吸引する際、空気中に含まれるガス状のフッ化水素はアルミ管に吸着され、粒子状成分は吸着されずにサンプリング濾紙に捕集される。従って、アルミ管を装着しないサンプリング濾紙と並行してサンプリングすることにより、その差からガス状成分と粒子状成分を分離測定することができる。

これらの測定法を通してM.R.Packらは、粉じんがある場合には平均して37%のフッ化水素がダストに吸着され、濃度の過小評価になる恐れがあるとしている。

$UF_6$ の加水分解生成物のサンプリングにおいても、粒子状成分とガス状成分両者が共存する空気が対象であるため、従来の測定法(サンプリング濾紙二段法: MilliporeAAとアルカリ濾紙)では問題があり、現在、M.R.Packが使用したものと同等のサンプリング装置を準備中である。



Aluminum tube assembly with adapter for attaching to filter holder.

## 4. 空気汚染と表面汚染の関係

### 4.1 空気汚染濃度の経時変化を評価するためのモデル

何らかの原因により空気汚染が生じた場合、その汚染濃度が減少する要因として、二つの機構が考えられる。

- (a) 汚染が発生した室内の床、壁等に沈降、付着する。
- (b) 換気により、希釈、除去される。

以下の用語を用いて、単位時間当たりSの汚染発生が生じた場合の挙動を解析してみる<sup>(3)</sup>。

$N_v$  : 空気中の平均汚染濃度 (1/cm<sup>3</sup>)

S : 単位時間あたりの汚染発生率 (1/sec)

$v_s$  : 粒子の沈降速度 (cm/sec)

V : 汚染が発生した室内の体積 (cm<sup>3</sup>)

$A_f, A_w, A_c$  : 汚染が発生した室内の床面積, 壁面積, 天井面積 (cm<sup>2</sup>)

h : 汚染が発生した室内の高さ (cm)

$\lambda_a$  : 単位時間あたりの換気回数 (1/sec)

ここでは、取り扱いを簡単にするため、S及び $v_s$ を一定し、空気汚染濃度も均一なものとして仮定する。室内の粒子数濃度の時間変化は、静電効果、拡散、対流そして粒子の凝集効果が無視できる場合には、次の微分方程式で書き表わされる。

$$V \frac{dN_v}{dt} = S - A_f N_v v_s - \lambda_a N_v V \quad \dots\dots(2)$$

従って、汚染の発生による室内の空気汚染濃度は次式となる。

$$N_v = \frac{S}{A_f (v_s + \lambda_a h)} \left[ 1 - \exp \left\{ - \left( \frac{v_s}{h} + \lambda_a \right) t \right\} \right] \quad \dots\dots(3)$$

ここで、汚染の発生が十分に長く続き、定常状態になった場合には次の濃度式を得ることができる。

$$N_v = \frac{S}{A_f (v_s + \lambda_a h)} \quad \dots\dots(4)$$

更に、汚染の発生が止んだ場合には、空気汚染濃度の減少を表わす式として次式が与えられる。

$$N_v = N_v^0 \exp \left\{ - \left( \frac{v_s}{h} + \lambda_a \right) t \right\} \quad \dots\dots(5)$$

$N_v^0$  は汚染発生が止んだ際の空気汚染濃度である。

以上の式より、最大濃度に到達する時間は、 $\left( \frac{v_s}{h} + \lambda_a \right)$  に依存し、汚染発生が止んだ後の



汚染濃度の減衰は、時間に対して対数的になされ、その半減時間は  $\frac{0.693}{(v_s/h) + \lambda_a}$  であることが示される。

また、沈降速度  $v_s$  は初速度の大小にかかわらず、重力と媒質から受ける抵抗力の釣り合いによりある平衡速度となり、これは Stokes 及び Cunningham により次の様に与えられている。

$$v_s = \frac{2(\rho_p - \rho)}{9\mu} r^2 g \left\{ 1.25 + 0.42 \exp\left(-\frac{0.87r}{\ell}\right) \right\} \quad \dots\dots(6)$$

ここで、各記号は次のものを表わす。

$r$  : 微粒子の半径 (cm)

$\rho_p$  : 微粒子の密度 ( $\text{g/cm}^3$ )

$\rho$  : 気体の密度 (20℃, 1気圧で  $0.001205 \text{ g/cm}^3$ )

$\mu$  : 気体の粘性係数 (20℃, 1気圧で  $1.813 \times 10^{-4} \text{ g/cm} \cdot \text{sec}$ )

$\ell$  : 気体分子の平均自由行程 (20℃, 1気圧で  $6.54 \times 10^{-6} \text{ cm}$ )

$g$  : 重力加速度 ( $980 \text{ cm/sec}^2$ )

換気がない場合の、沈着速度と濃度半減時間を、密度1の粒子について求めたものを Fig 8 に示す。1  $\mu\text{m}$  以下の粒子については、初期の仮定がなりたたない場合があるため、Fig 8 の関係をもって粒子径を求めることは一般的にはむずかしい。

以下の実験結果を評価するため、用語を次の様に定めた。

$t$  : 換気時間 (min)

$N_s$  : 床表面汚染密度 ( $\mu\text{Ci/cm}^2$ )

$N_{ud}$  : 排気ダクトでの平均空気汚染濃度 ( $\mu\text{Ci/cm}^3$ )

$E$  : 排気容量 ( $\text{m}^3/\text{min}$ )

$$R : \text{沈着割合}(\%) \left( = \frac{N_s (A_f + A_w + A_c)}{N_{ud} E t + N_s (A_f + A_w + A_c)} \times 100 \right) \quad \dots\dots(7)$$

$$\lambda_a : \text{単位時間あたりの換気回数} \left( = \frac{E \times 60}{V} \right) \quad \dots\dots(8)$$

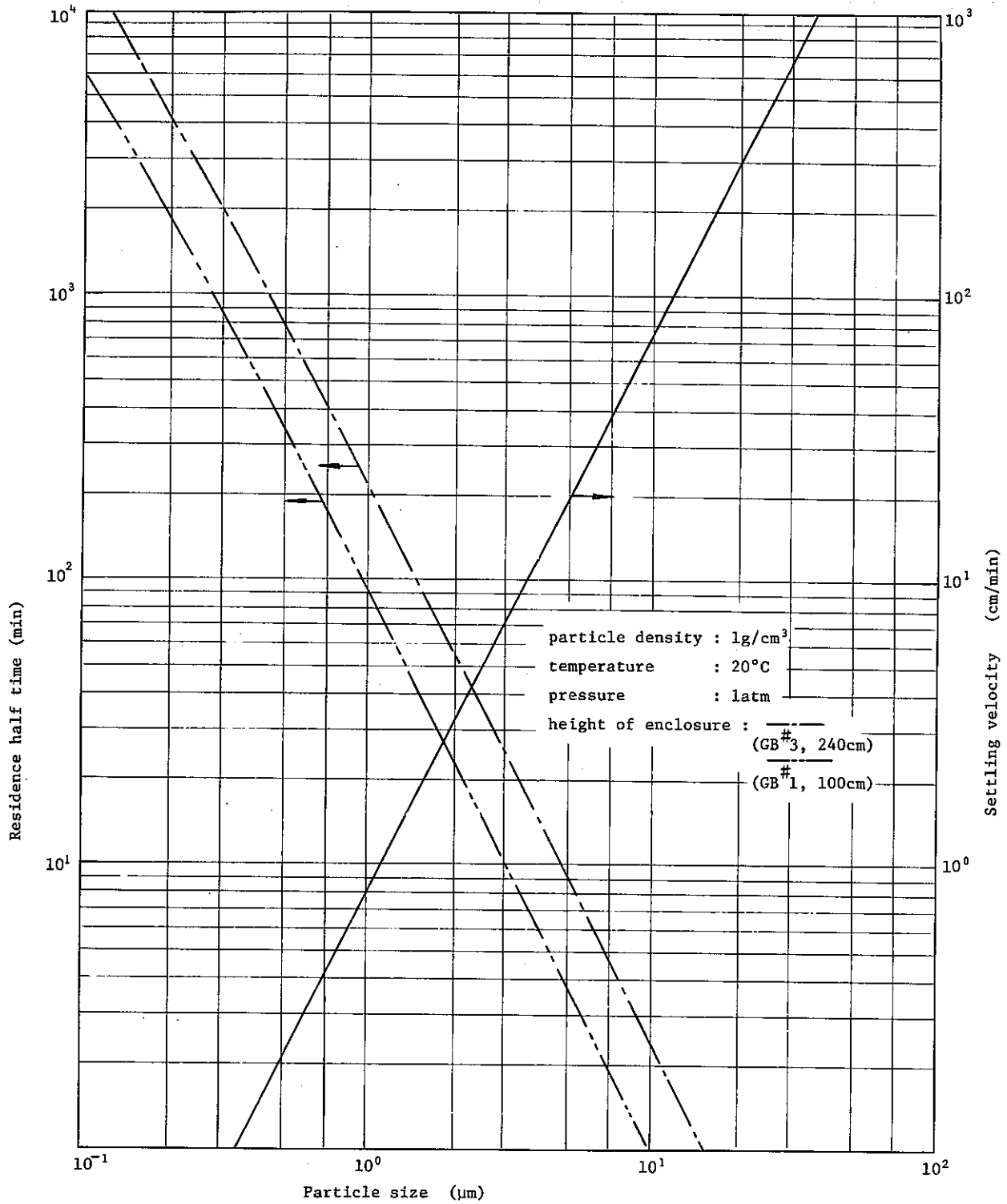


Fig-8 Particle size vs. Residence half time and settling velocity

## 4.2 測定結果

### (1) 換気がない場合

GB#1ならびにGB#3を用いて放射性物質濃度の経時変化を調べた。その結果をFig-9, Fig-10に示す。各濃度半減時間はGB#1の場合が188分、GB#3の場合が252分である。Fig-8よりこの濃度半減時間に相当する粒子径は、それぞれ、 $0.68\mu\text{m}$ 、 $0.91\mu\text{m}$ (密度1の球形粒子相当)となる。しかし、実際の濃度の減少にはFig-8を求める際に無視し得た効果も働いていることが考えられ、実粒子径は若干前述の値より大きくなるものと考えられる。また実密度を出すためには幾何学的形状を知らなければならないが、床面に沈着した粒子の電子顕微鏡写真はPhoto-2に示す様に鎖状になっており、その形状が一義的に定まらず、この点については、5. UF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布の項で述べることにする。

Fig-10を得た実験条件下で床、壁、天井の各位置に、各材質に対応する50mmφの円板をはりつけ、UF<sub>6</sub>に暴露後その汚染密度を調べた。各試料の捕集状況をPhoto-3～5に示す。総ウラン量3.2μCiのうち70.2%が床面へ( $1.85 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ )、28.7%が壁面へ( $1.89 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ )、残り1.1%が天井面へ付着( $2.86 \times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ )するとの結果が得られた。また、材質による表面汚染の差もPhoto-4に見る様に顕著に表われており、壁面にはりつけたアクリライト板では同部分にはりつけたSUS板の2.8倍も汚染密度が高いとの結果であった。これはアクリライト板表面に帯電している静電気のためと考えられ、材質の差異による表面汚染の差異を示唆するものであり留意する必要がある。

UF<sub>6</sub>が加水分解して発生するフッ化水素については(5)式は適用できないが、Fig-11に示す様にその濃度は時間とともに減少する。ガス状のフッ化水素がGB内面に吸着されたり、空気中の水蒸気あるいは粒子状物質と結合、沈降して濃度が減少するものと思われる。

現在まで、400gr相当のUF<sub>6</sub>漏洩実験をおこなってきているが、目視による観察ではGBパネル表面に何ら異常は観察されていない。

### (2) 換気がある場合

換気がある場合の代表的な濃度変化をFig-12に示す。放射性物質濃度は、図に見る様に時間に対して対数的に減少しており、(5)式にあてはまることがわかる。種々の換気回数について、濃度半減時間を求め、グラフにしたものがFig-13である。図中、実線で示したのは(5)式より計算にて求めた値である。換気回数1回/hr以上では沈着による効果はほとんど無視し得る。UF<sub>6</sub>放出口が床上1.56mの位置にあるものをM点、床上0.36mの位置にあるものをN点で示している。放出高さによる濃度半減時間の差異は、本図では見出し得ない。

また、換気がある場合にも、換気がない場合と同様、各部分材質に対応する50mmφの円

板をはりつけ、各部分での表面汚染密度を測定した。その結果、換気回数が2回/hrで、最大空気汚染濃度 $\sim 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ の範囲内では床表面汚染量が95%以上をしめた。従って、沈着割合Rを求める際には、室内全表面汚染量が床表面汚染量で近似できるものとしてデータを取り扱った。各換気回数に対応する沈着割合と、放出点M、Nについて求めた結果を、Fig-14～15に示す。本実験条件範囲内では、換気が2回/hr以上あれば、室内沈着割合は全放出量の10%以下であり、90%以上のものは換気されて排気ダクト系へ導びかれている。これら排気ダクト系へ導びかれたものは、高性能フィルターならびに排ガス洗浄装置により処理され、排気処理系後段での放射性物質濃度、フッ化水素濃度は検出限界以下となり排気される。

換気回数4～5回/hr、表面汚染密度 $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ のGB#3で円板回収作業をおこなったが、その際の排気ダクト空気汚染濃度は検出限界以下であった。UF<sub>6</sub>分解生成物表面汚染の再浮遊係数は、非常に小さいといえる。

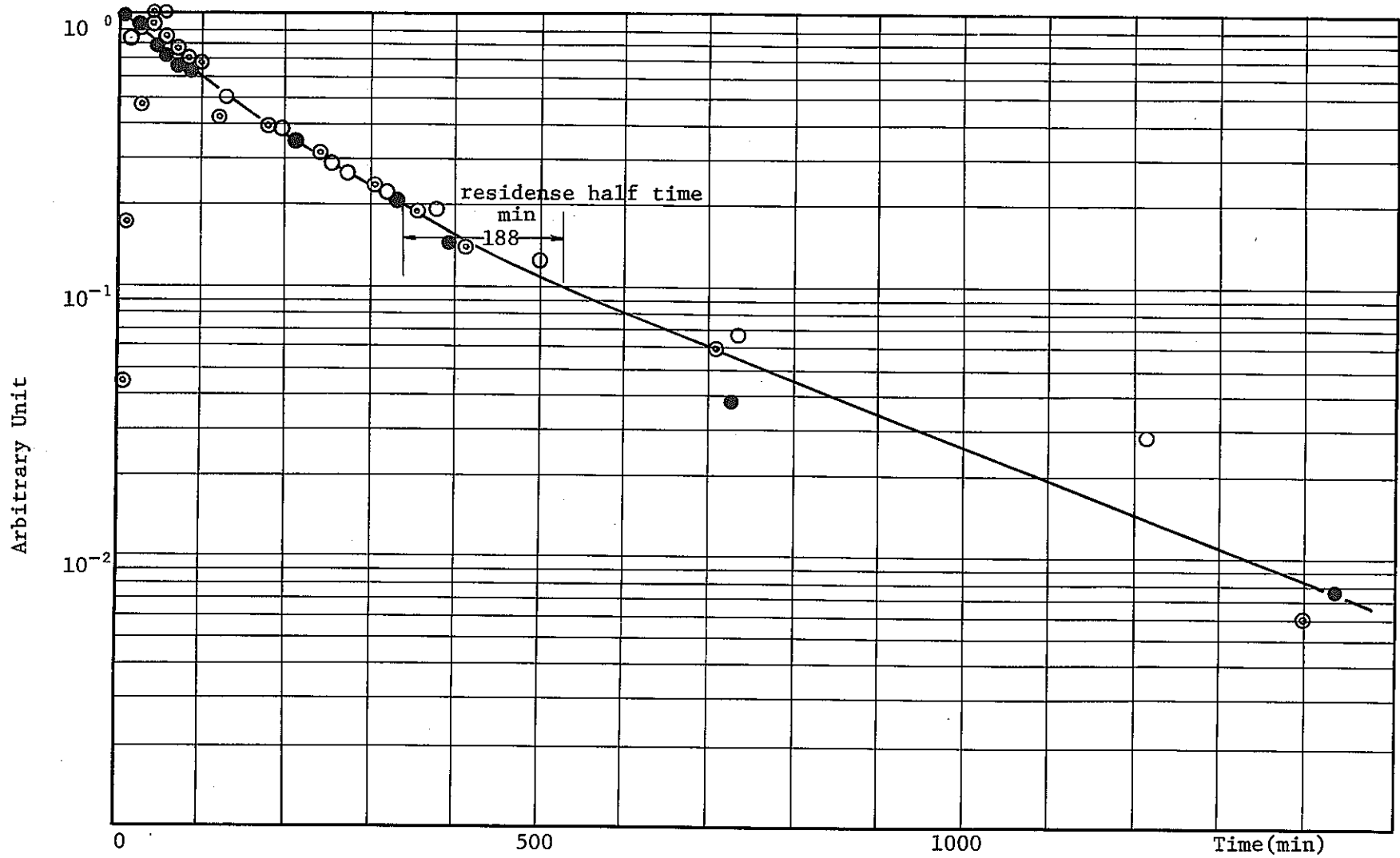


Fig-9 Reduction of activity concentrations in GB<sup>#1</sup>

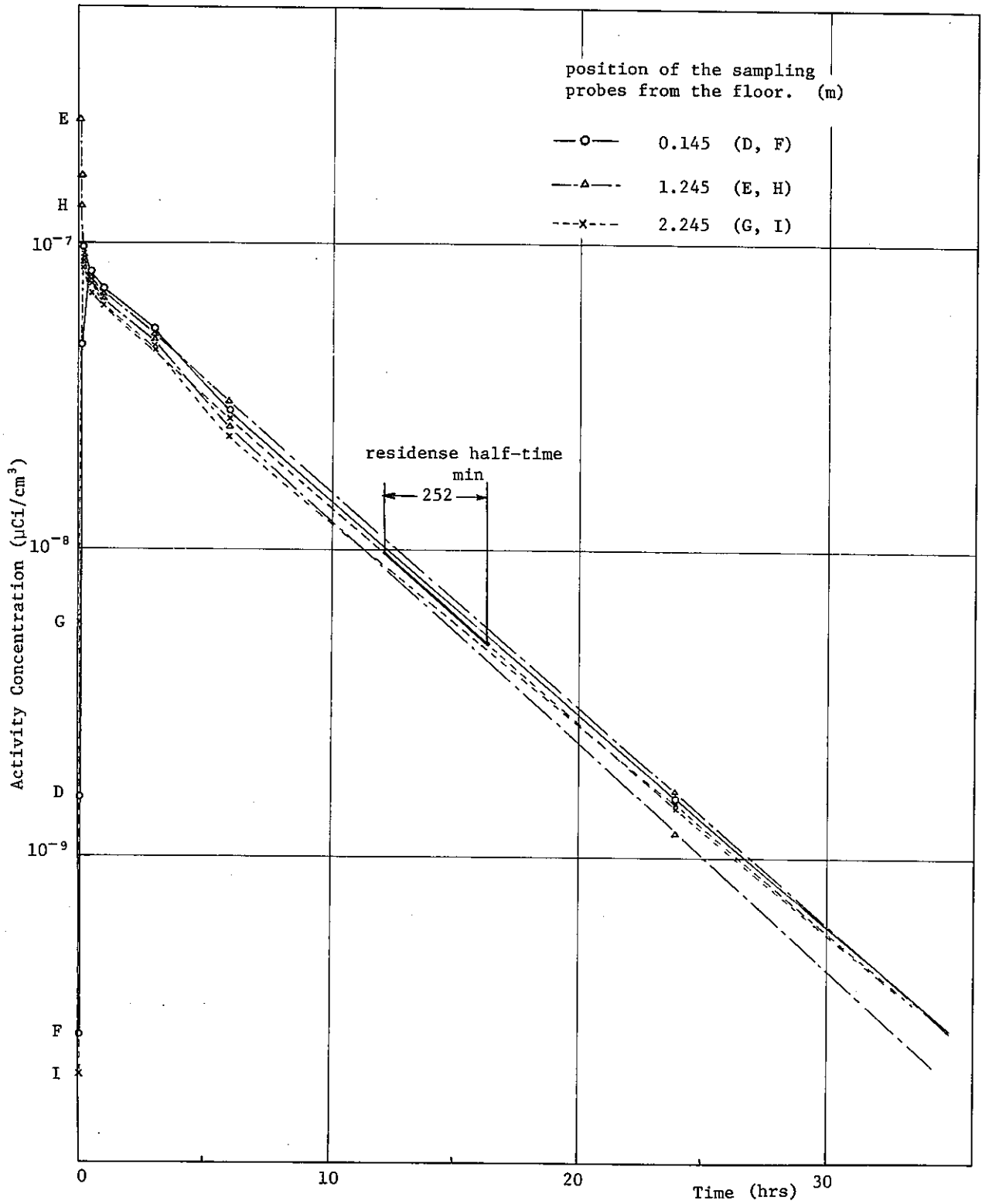


Fig-10 Reduction of activity concentrations in GB<sup>#3</sup>

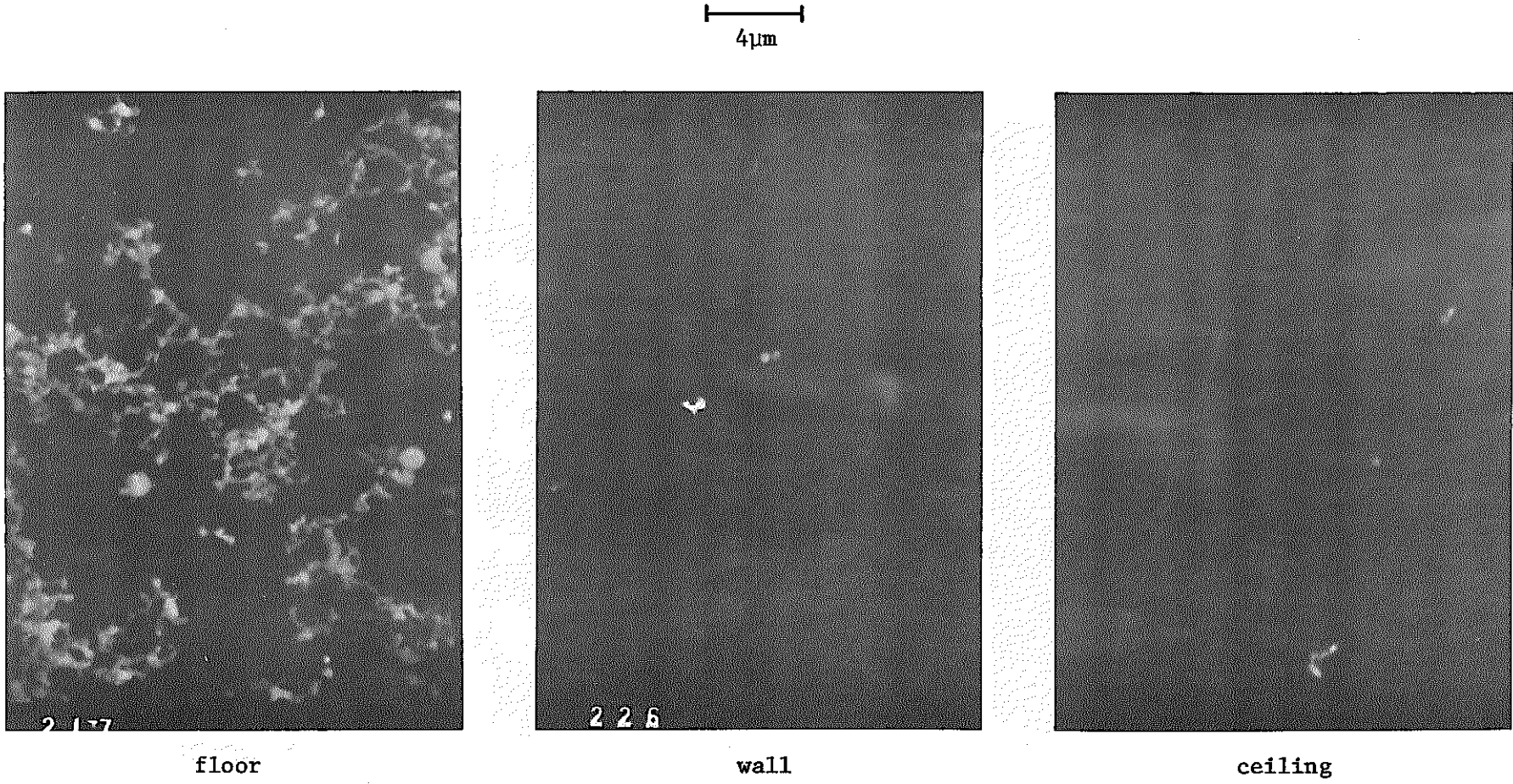
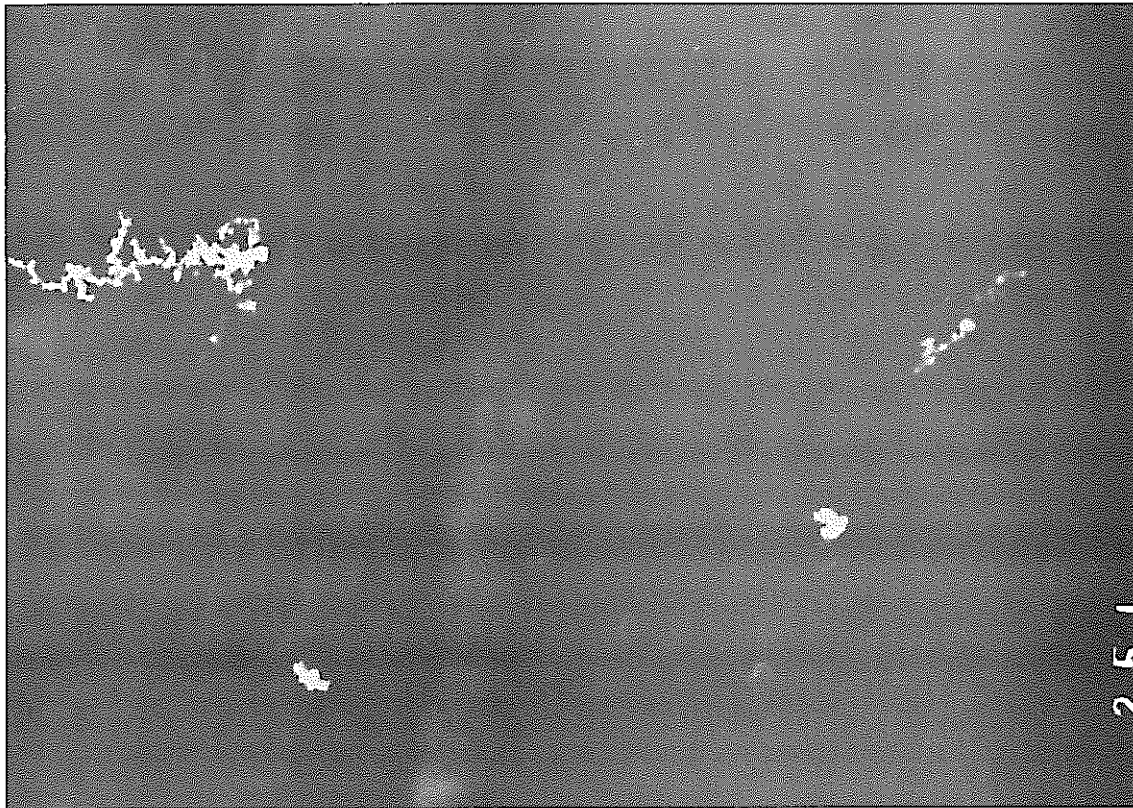
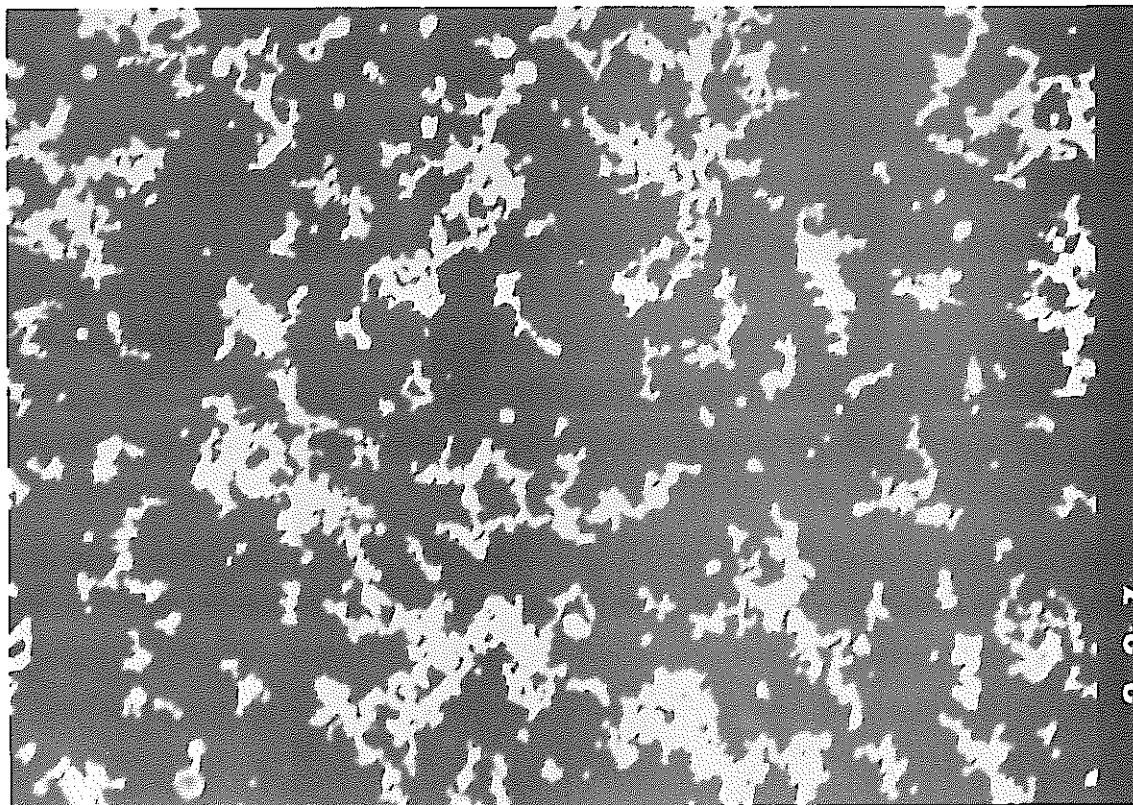


Photo-2 UF<sub>6</sub> aerosol settled or adsorbed on aluminum plate at each place



8 μm

Stainless steel at wall



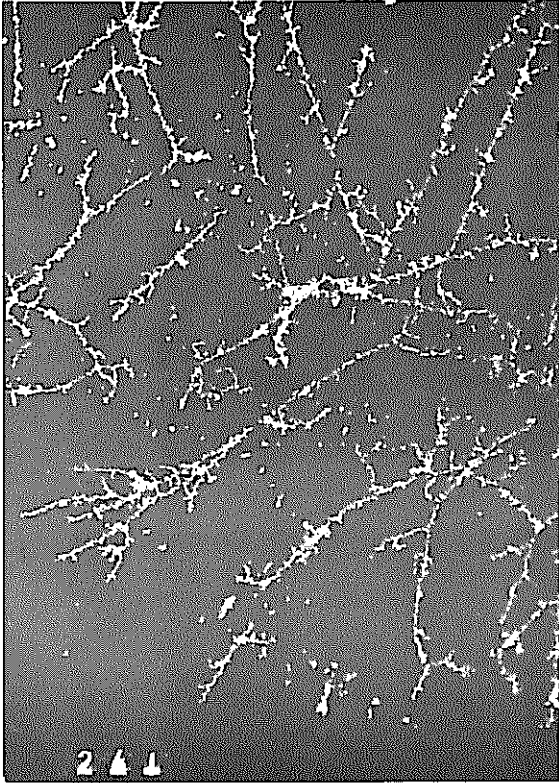
Aluminum at floor

Photo-3  $UF_6$  aerosol settled or adsorbed on each material

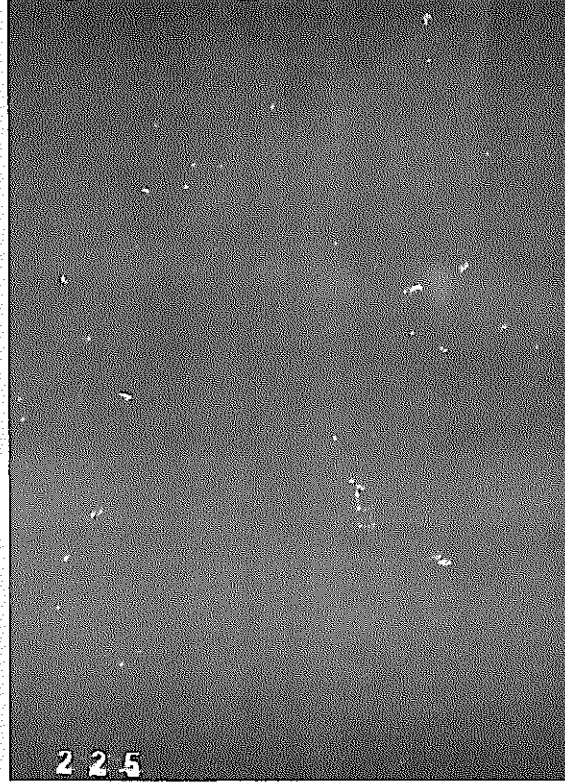


- 25 -

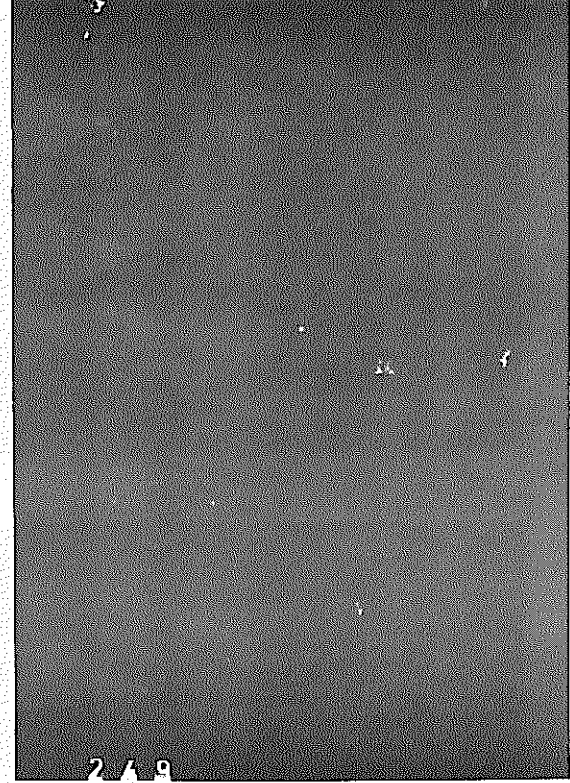
20μm



acrylic acid resin



aluminum



stainless steel

Photo-4 UF<sub>6</sub> aerosol adsorbed on each material at wall

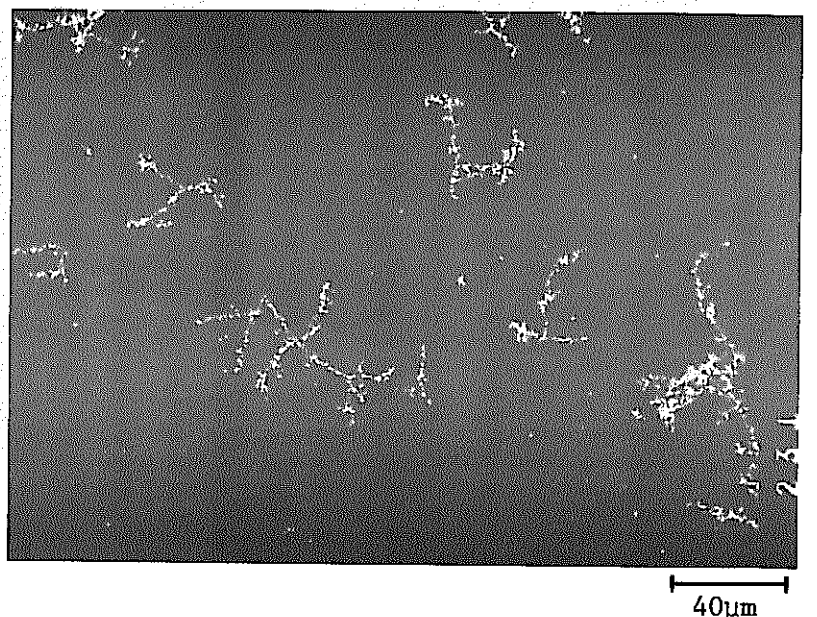
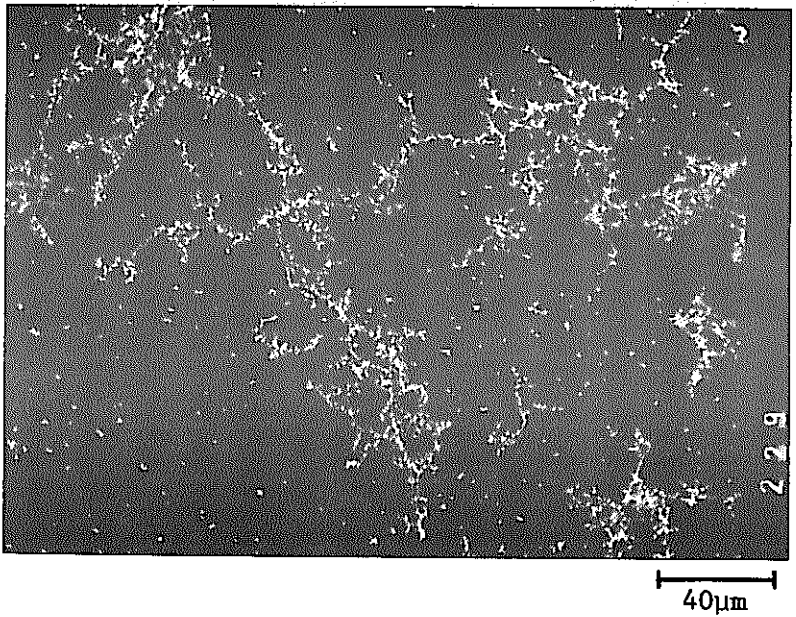
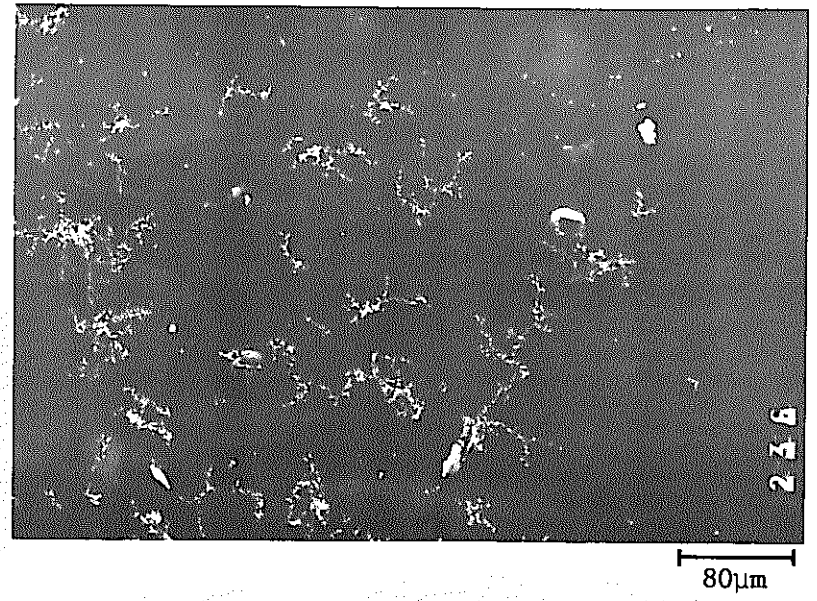
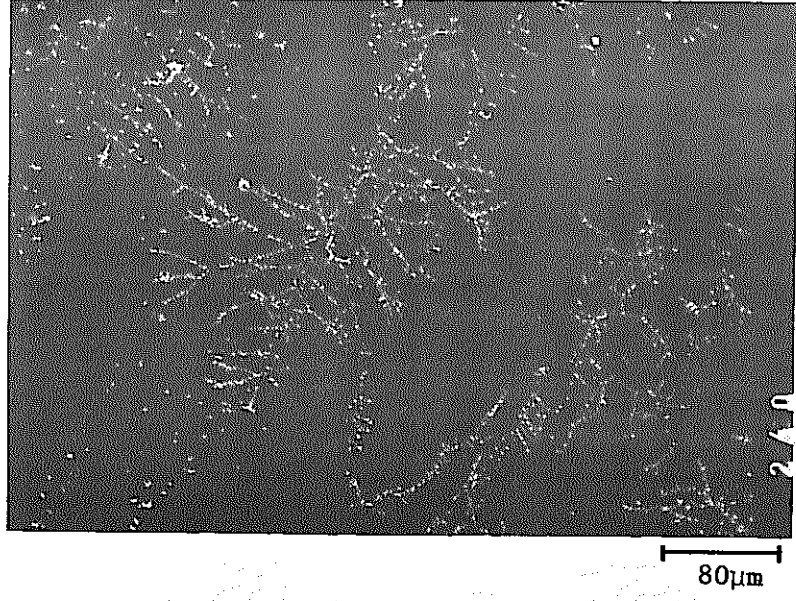


Photo-5 UF<sub>6</sub> aerosol adsorbed on acrylic acid resin at wall

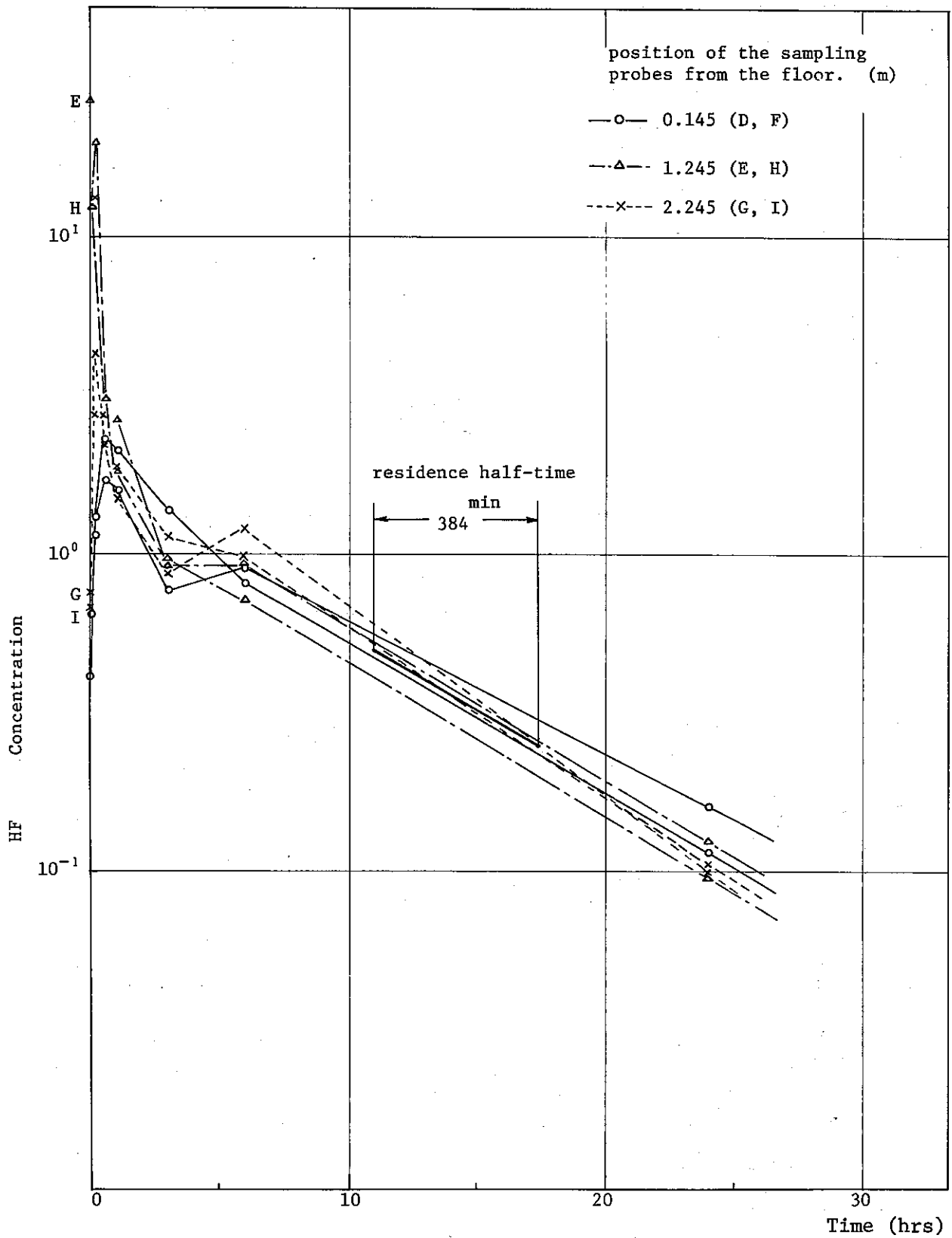


Fig-11 Reduction of hydrogen fluoride concentrations in GB#3

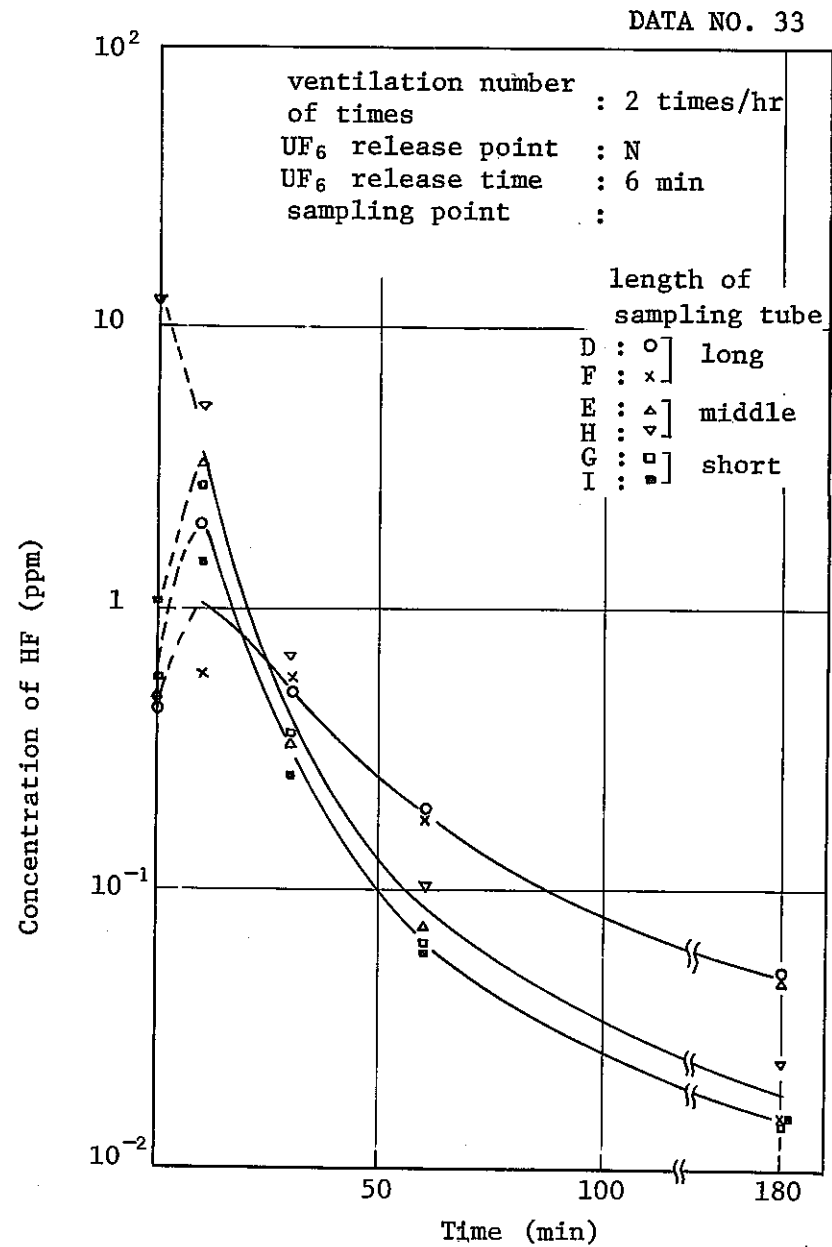
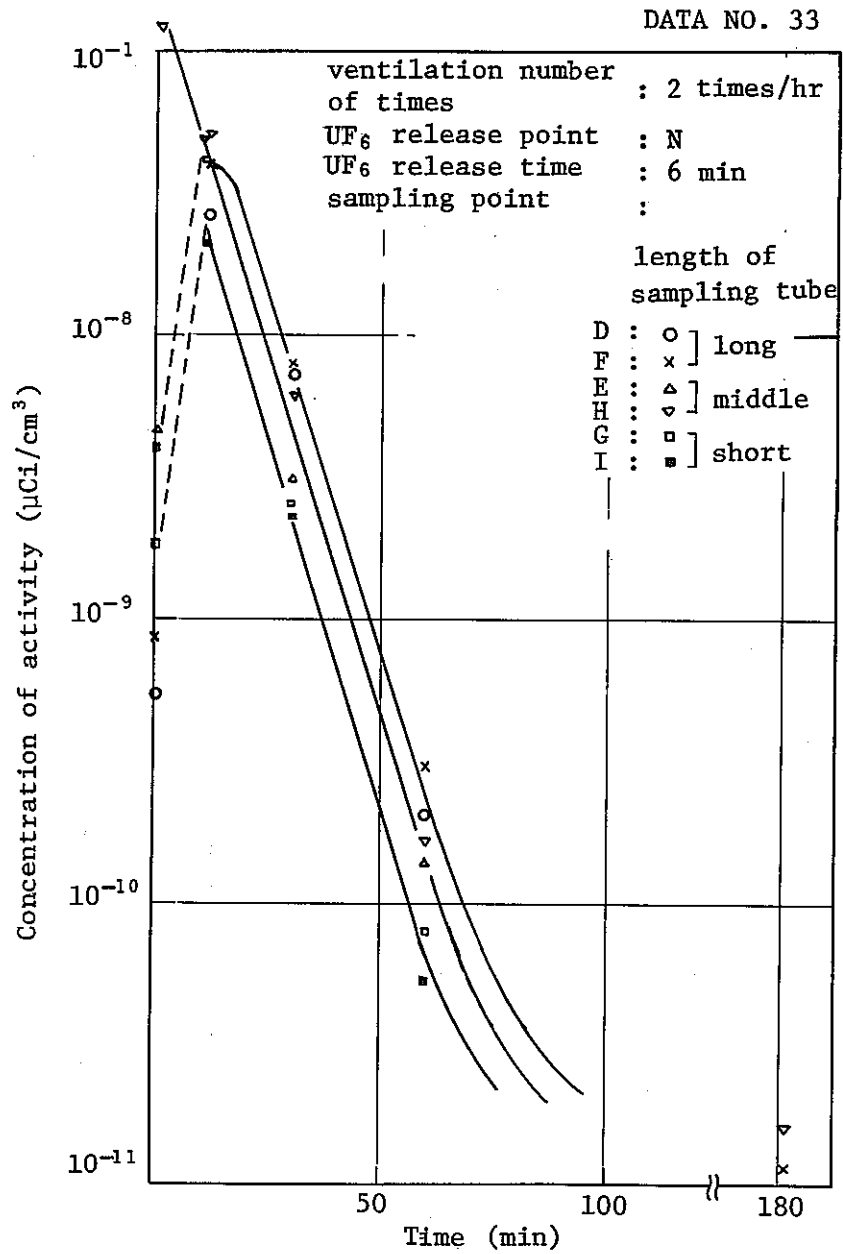


Fig-12 Reduction of activity and hydrogen fluoride concentrations in GB<sup>#</sup>3 by ventilation

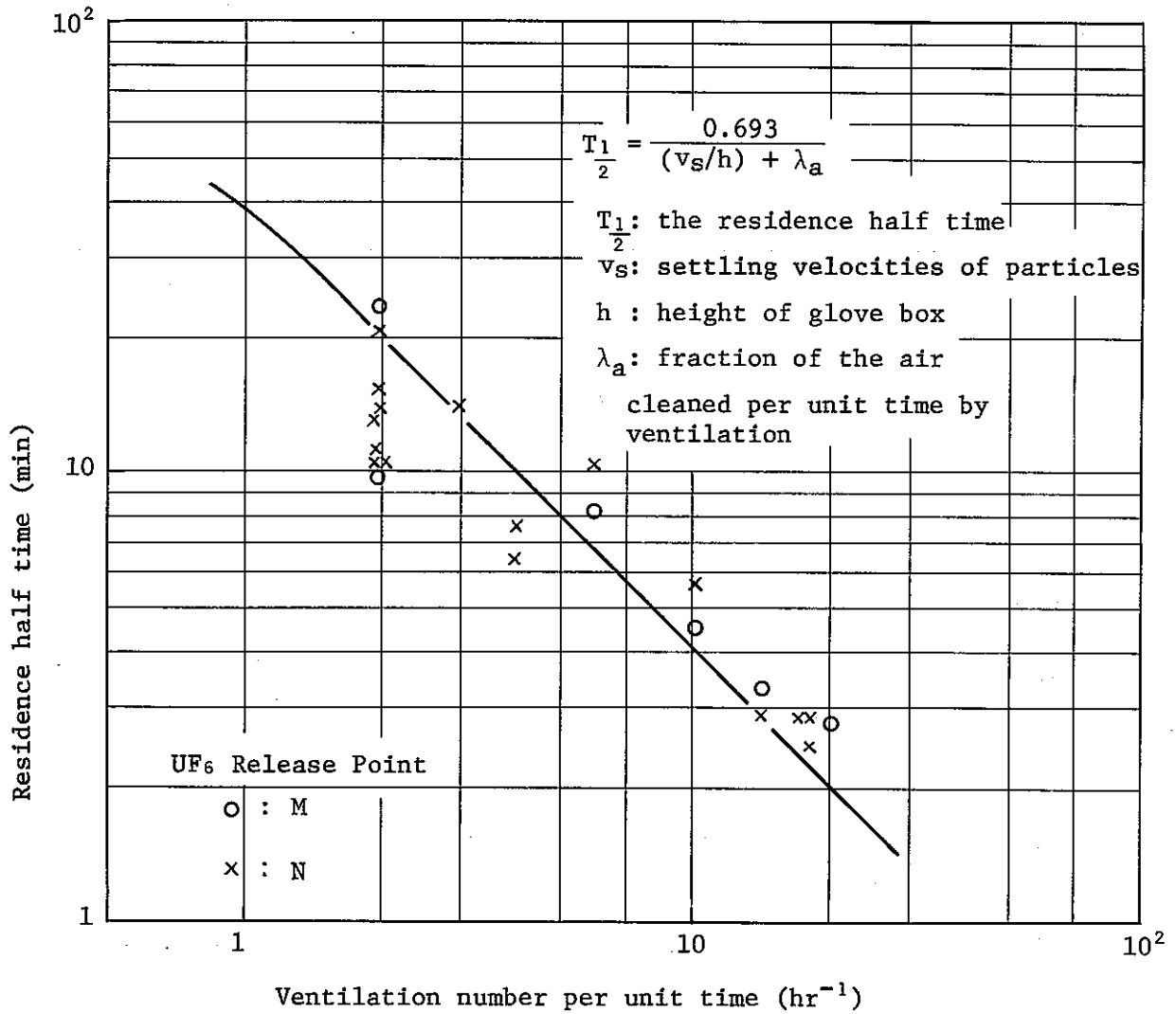


Fig-13 Ventilation number per unit time v.s. Residence half time

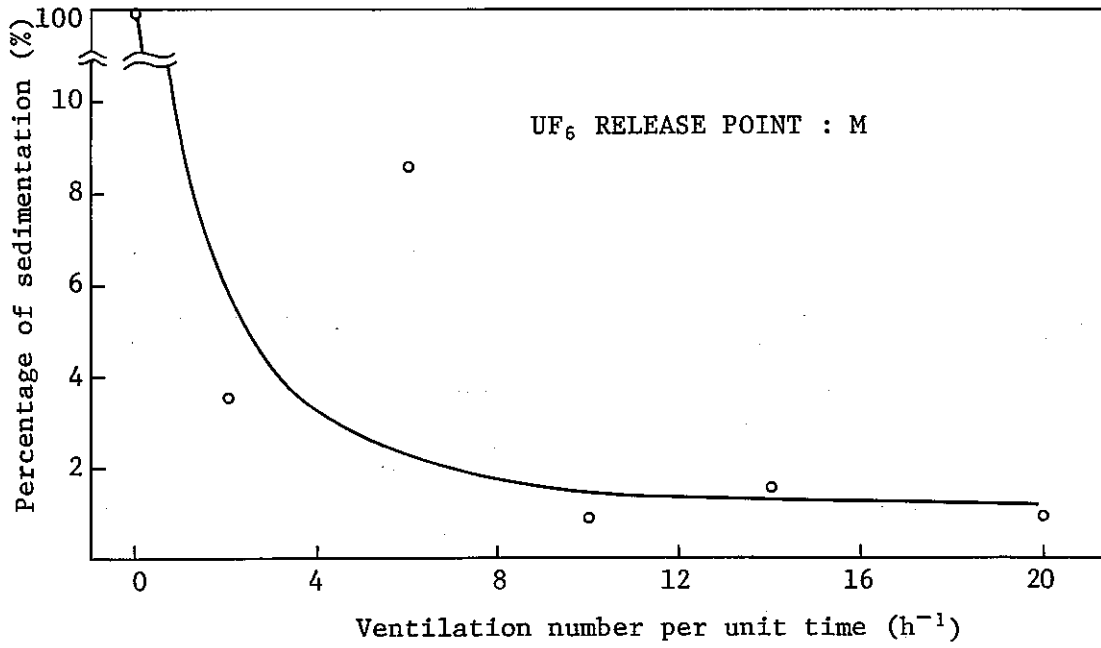


Fig-14 Sedimentation vs. Ventilation number per unit time (I)

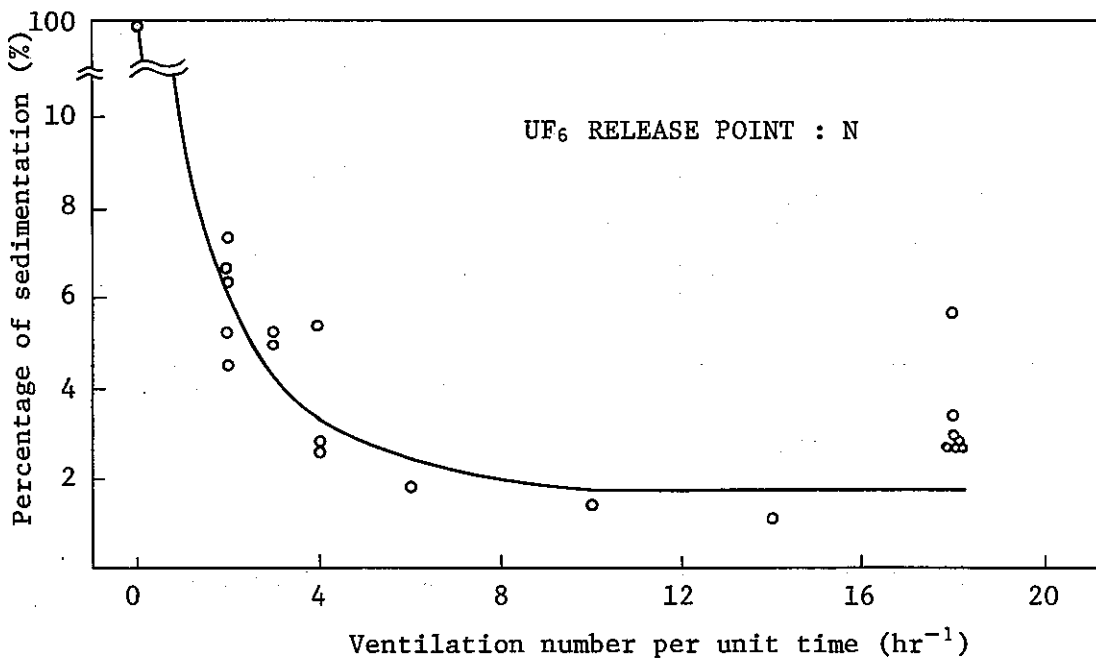


Fig-15 Sedimentation vs. Ventilation number (II)

## 5. UF6エアロゾルの粒度分布

### 5.1 測定法

粒度分布の測定は8段型のアンダーセンノンバーブルサンプラー（高立機器2000INC）を用いておこなった。その外観をFig-16に、仕様をTable-2に示す。この装置は構成が単純かつ操作がたやすく、広範囲の粒子分級ができる。粒子の分級はエアロゾルの慣性力に基づいてなされ、その性能については各所で十分な実証試験がなされている<sup>(4)~(10)</sup>。

捕集原理を以下に示す。サンプラーに流入したエアロゾルは、多孔ノズルを通過して捕集板方向に加速される。この際、流れより離脱可能な十分大きい慣性力を有する大粒子は捕集板に衝突、捕集される。一方、慣性力の小さな粒子は空気の流れとともに次段ステージへ送られる。各ステージに効率50%で捕集される空気力学的な粒子径（実効分離径, Effective Cut-off Diameter 以下ECD）を $d_{p50}$ とすると次の関係式が成立する。

$$d_{p50} = \sqrt{\frac{18 \mu \phi 50 N \pi \times 60 (Dc)^3}{4 C Q \rho}} \quad \dots\dots(9)$$

C : カニンガムのスリップ補正係数  $\left( = 1.00 + \frac{0.16 \times 10^{-4}}{d_{p50}} \right)$

Q : 吸引流量率 (cm<sup>3</sup>/min)

$\rho$  : エアロゾルの比重 (g/cm<sup>3</sup>)

$\mu$  : 空気の粘度 ( $1.813 \times 10^{-4}$  g/cm·sec)

N : ジェットノズルの数

Dc : ジェットノズルの直径 (cm)

$\phi$  : 無次元慣性パラメータ (衝突効率50%:  $\phi_{50} = 0.144$ )

従って、ステージが進むにつれ、捕集板への衝突速度を順次速めれば、(9)式に従って粒子を分級することができる。ECDの実験的な分離特性上、ECDよりも大きな粒子が次段ステージへ移行したり、ECDよりも小さな粒子が捕集されたりするが、ECDでの分離を階段関数と仮定しても十分な精度は保証され得る。

いったん捕集板に捕集された粒子が再飛散することによる粒子解析の誤差についてはEttinger<sup>(8)</sup>やParkerら<sup>(11)</sup>が調査、報告している。Ettingerらはインパクト表面に捕集板として種々の戸紙をおいた場合の再飛散状況について調べているが戸紙の有無、種類の差異による粒度分布のバラツキは認められないとしている。本実験では、放射線測定器の都合上、50mmφのSUS製あるいはガラス製の円板を用いることとした。

また、本装置によりサンプリングされたウランの捕集量は放射能測定より求めたため、指示される粒子径は空気力学的放射能中央径 (Activity Median Aerodynamic Diameter, 以

下AMAD)である。

## 5.2 測定結果

### (1) アンダーセンサンプラーの特性

UF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布を測定するに先だち、まずアンダーセンサンプラーの捕集状況を調べた。Photo-6に各ステージの捕集板を示す。捕集板右下の数字がステージナンバーを示している。各ステージのジェットノズルは同心円状に配列されており、ジェットノズル真下に、写真に示す様に各ECDに応じた粒子が捕集される。本実験では測定器の都合上50mmφの円板を用いたが、一般的には、80mmφの円板が捕集板として用いられ、各ECDも80mmφの捕集板を用いた際のデータが与えられている。5段目ステージについて、80mmφ捕集円板中央部から外周部へ向かうにつれ、その捕集状況がどう変化するかを走査型電子顕微鏡で観察した。その結果をPhoto-7に示す。左側の写真がジェットノズル1ヶに対応する捕集状況を、右側の写真がその拡大したものを示す。左右の写真から外周部に近づくにつれ、捕集形が円形よりずれ、捕集量も少なくなっていくことが判る。しかし、粒度分布は中央部と外周部では大きな差異は認められていない。従って、本実験でのデータ解析においてもあらかじめメーカーより指示されているECDの値を用いることとした。

### (2) UF<sub>6</sub>エアロゾル粒子の密度

各ステージに捕集された代表的な粒子群の写真をPhoto-8に示す。幾何学的な粒子径D<sub>g</sub>と空気動力学的な粒子径D<sub>A</sub>との間には、粒子密度ρを介して次の関係式がある。

$$D_g = \frac{1}{\sqrt{\rho}} D_A \quad \dots\dots(10)$$

各ステージ毎に、(10)式に基づき密度を計算した結果をTable-3に示す。左の欄はアンダーセンサンプラーを定格流量率で運転した際のECD、中央の欄は捕集板上に捕集された粒子の電子顕微鏡写真より求めたCMDである。両者の値より(10)式により右欄のデータが得られた。UF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布がAMADで0.6~1.8μm(次項)であるため、その密度は2.9g/cm<sup>3</sup>程度といえる。

### (3) UF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布

空気中に漏洩したUF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布は、白煙中央部から外縁部へむかうにつれ、中央径は小さく、分散は大きくなるとの結果が得られている。放出直後の白煙中央部の粒度分布について、発生時の放出量及び湿度をパラメータとして調べた。その結果をFig-17に示す。同図より放出量が多く、湿度が低いほど粒子径が大きくなることがわかる。



また、相対湿度40～80%の範囲の粒度分布の経時変化（換気なし）をFig-18に示す。漏洩後1時間程経過するとAMADとして発生時のAMADの20～40%増加し、以後、濃度はFig-18の様に減少するが、粒度分布はさほど変化していない。標準偏差は時間とともに小さくなる傾向を示している。

換気回数4回/hrのとき、1度だけ、同様に粒度分布の経時変化を調べたが、この時にはUF<sub>6</sub>漏洩後10分程度はAMAD 1.8 μmであったものが、1時間経過後にはアンダーセンサンプラー分級範囲外の微小粒子（0.43 μm以下）となってしまった。換気により微小粒子同士の衝突が激しくなり、大粒子となって床面に沈降あるいは排気されたものと考えられる。

排気処理系の高性能フィルターを通過するUF<sub>6</sub>エアロゾルの粒度分布は、3.2.2測定結果に述べている様に、フィルター下流での放射性物質濃度が検出限界以下であったため、測定できていない。

Table.2, Characteristics of Andersen non-viable sampler

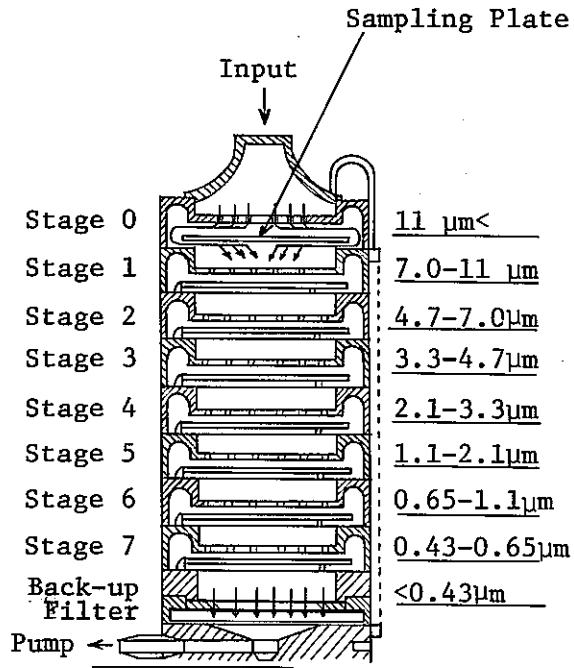


Fig-16 Eight-Stage Andersen non-viable sampler

Stage No.	Diameter of Nozzle (mm)	Number of Nozzle	Flow Velocity in Nozzle (m/sec)	Effective Cut-off Diameter (μm)
0	1.20	800	0.55	11.0
1	1.20	400	1.10	7.0
2	0.90	400	1.75	4.7
3	0.70	400	2.95	3.3
4	0.50	400	5.55	2.1
5	0.35	400	12.40	1.1
6	0.25	400	24.00	0.65
7	0.25	200	48.00	0.43
Back-up Filter	-	-	-	< 0.43

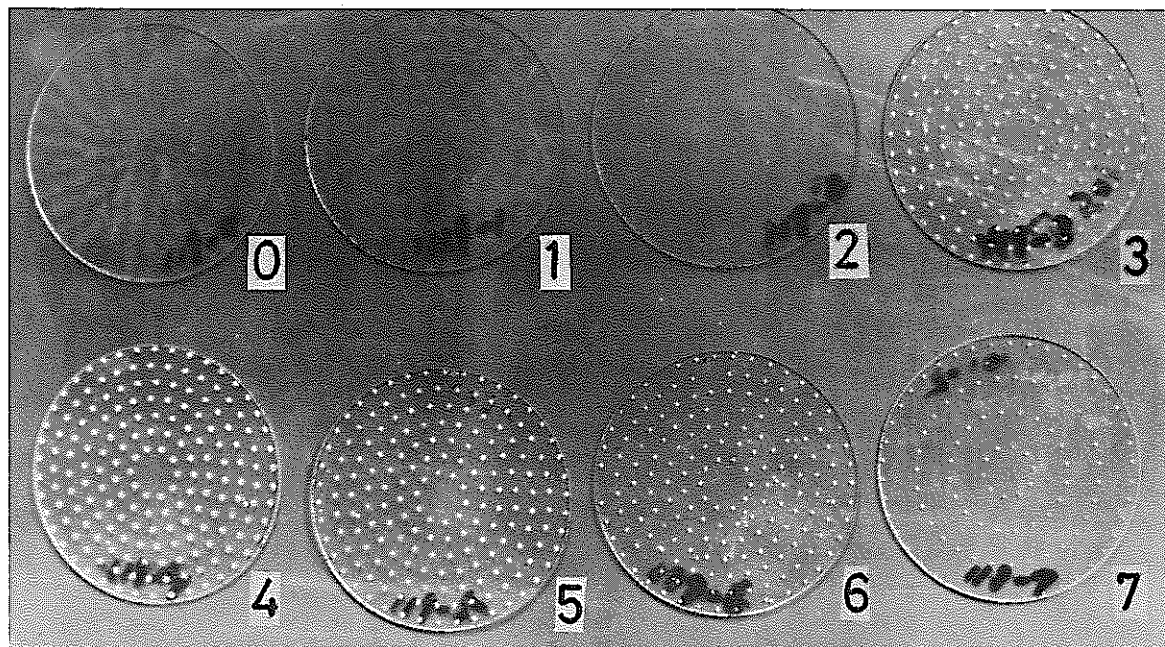


Photo-6 Uranium particles on the glass plate of Andersen non-viable sampler

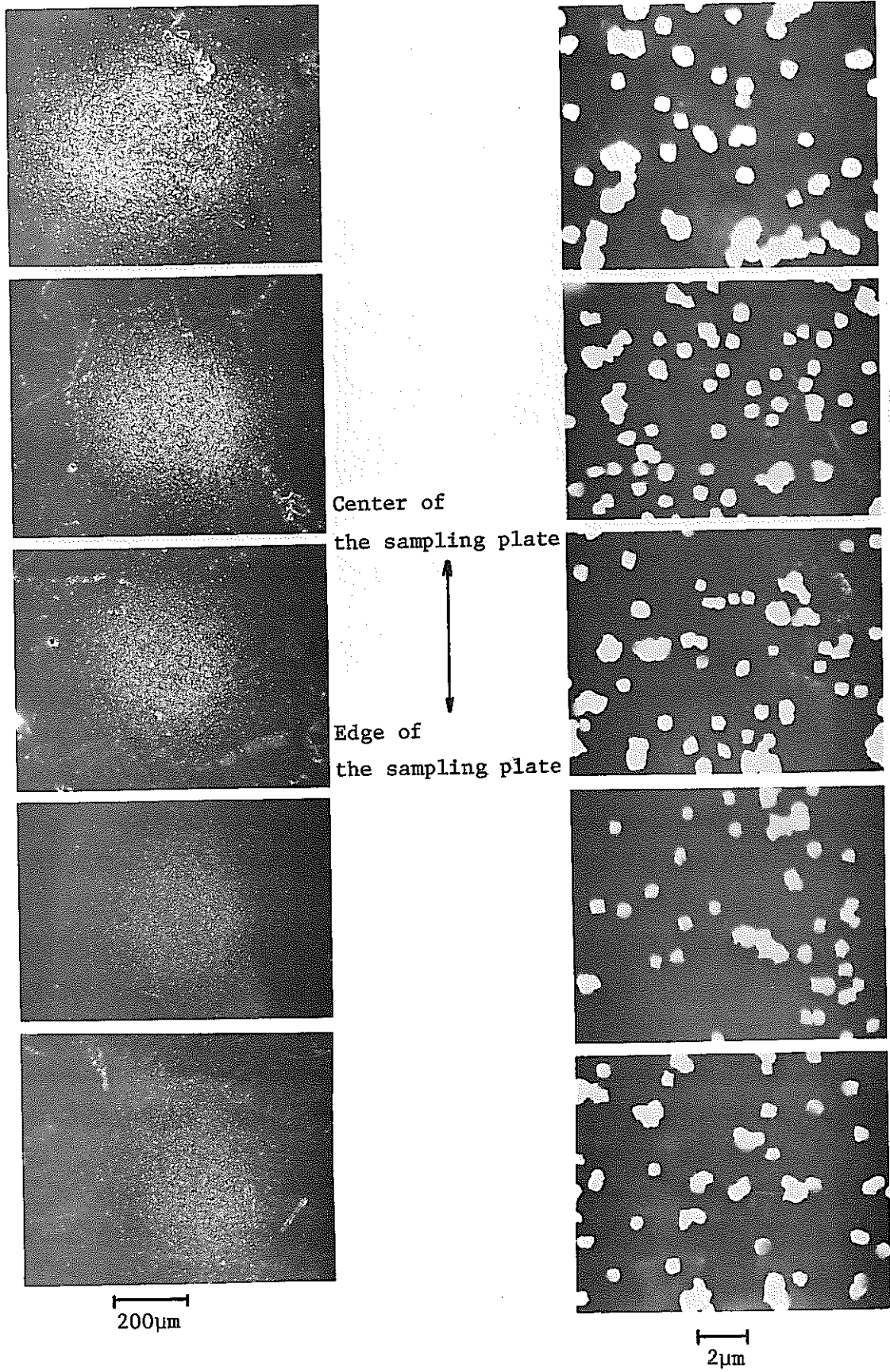
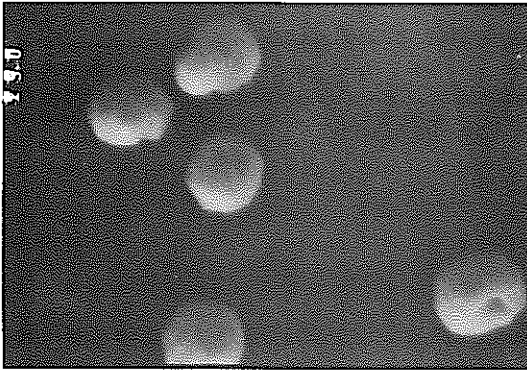
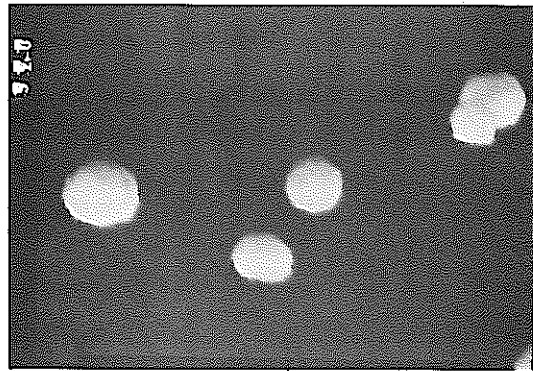


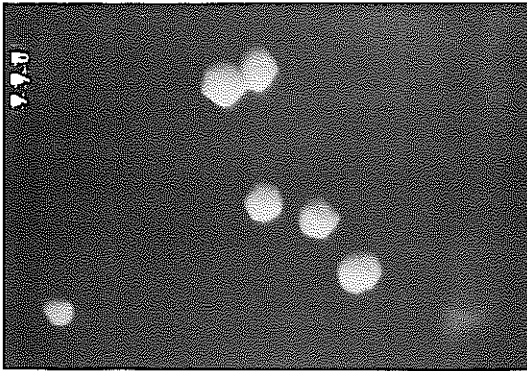
Photo-7 Uranium particles on the aluminum plate of Andersen non-viable sampler



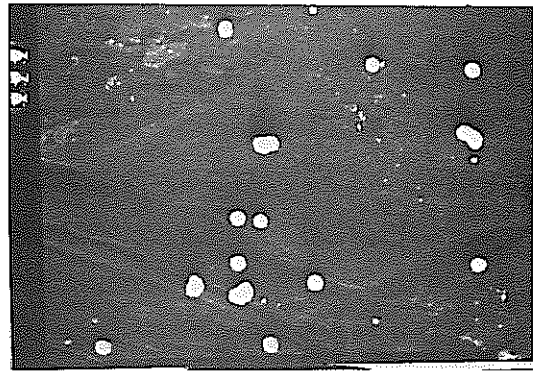
Stage No 1



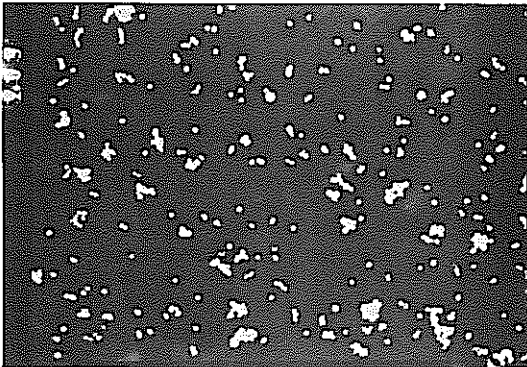
Stage No 2



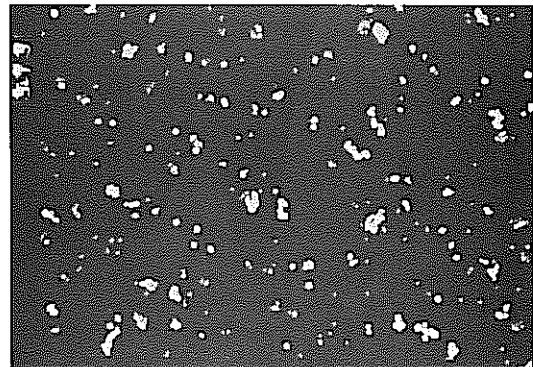
Stage No 3



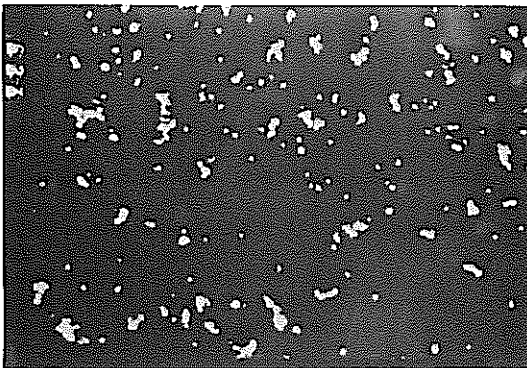
Stage No 4



Stage No 5



Stage No 6



Stage No 7



Photo-8 Uranium particles on the each sampling plate  
of Andersen non-viable sampler

Table-3 The Density of uranium particles

Effective Cut-off Diameter ( $\mu\text{m}$ )	Count Median Diameter ( $\mu\text{m}$ )	Density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )
7.0	4.4	2.5
4.7	3.5	1.8
3.3	2.4	1.9
2.1	0.87	5.8
1.1	0.65	2.9
0.65	0.39	2.8
0.43	0.40	1.1

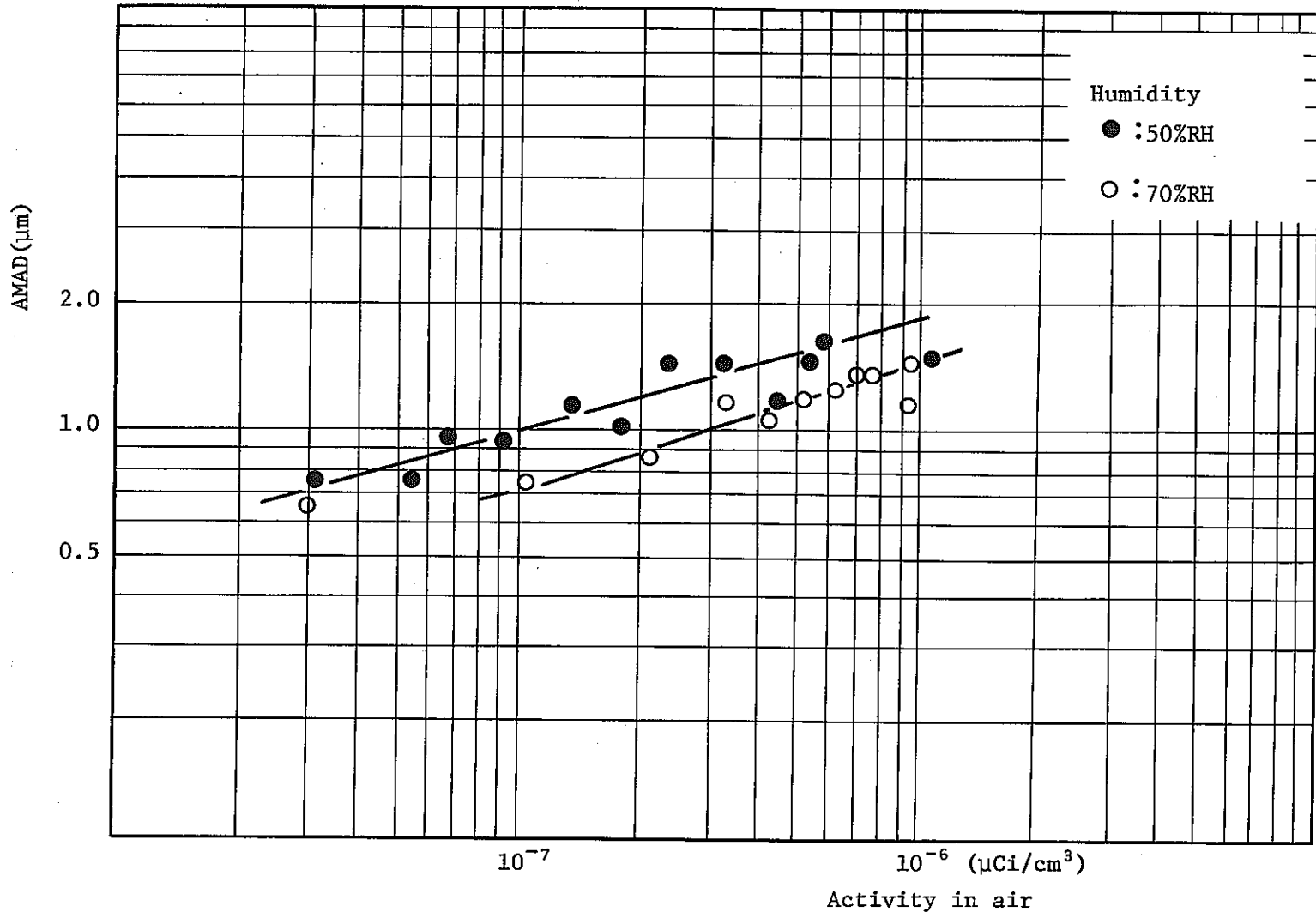


Fig-17 Size distribution of UF<sub>6</sub> aerosol depending on humidity

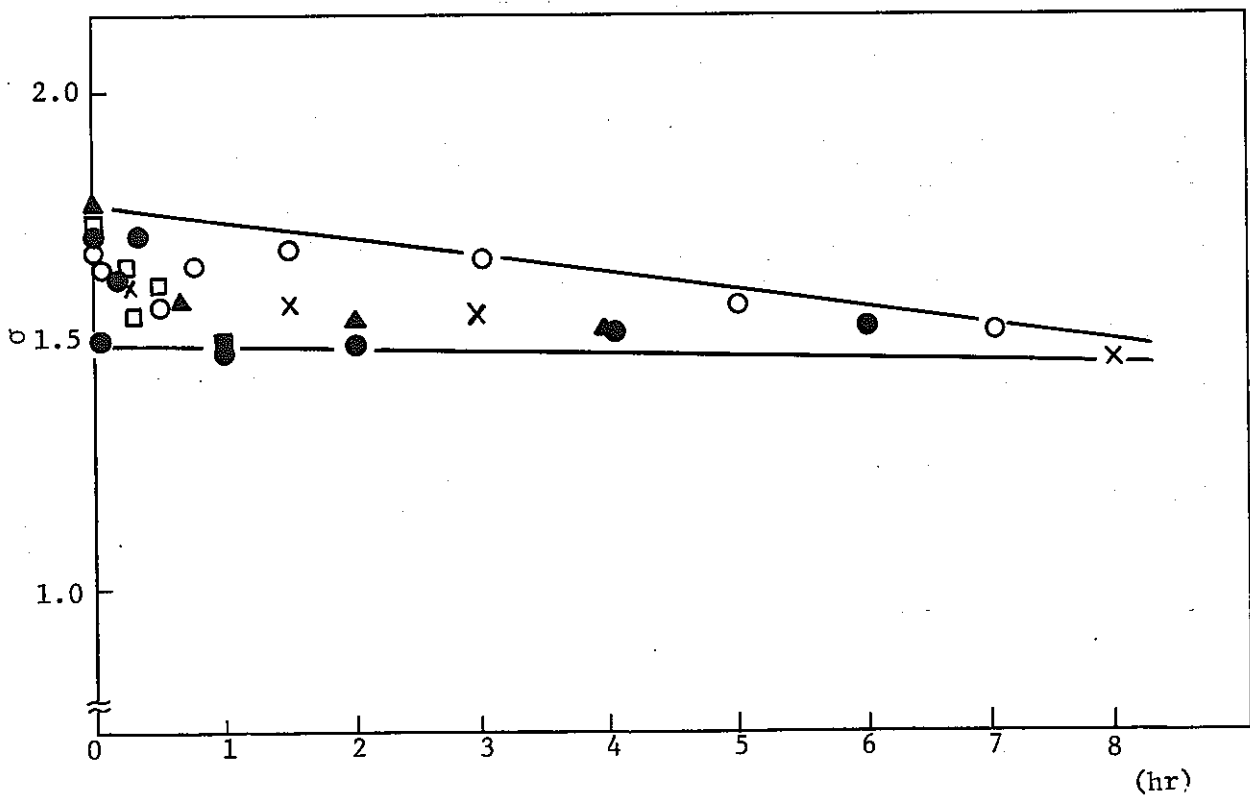
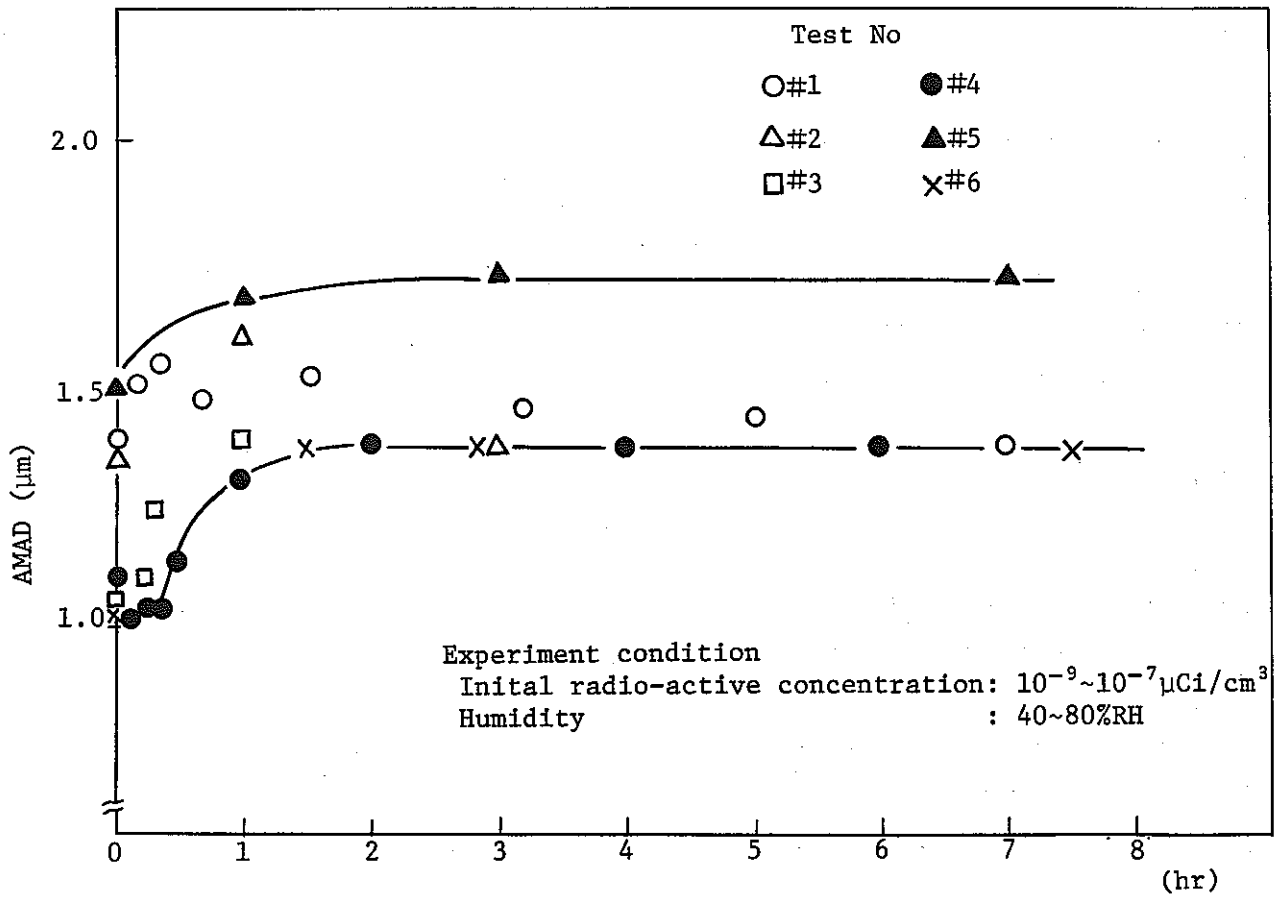


Fig-18 Size distribution of  $\text{UF}_6$  aerosol depending on time



## 6. サンプリング配管への沈着率測定

### 6.1 測定法

空気中の放射性物質濃度を求める際に、長いサンプリング配管を通して室内あるいはダクト系よりサンプリングすることがあるが、吸引流量率、配管の形状、材質等により、サンプリングされた粒子が配管途中で沈着してしまい、実際の放射性物質濃度を過小評価する恐れがある。本実験では、そのパラメータのうち、吸引流量率と配管材質を変え、 $UF_6$ エアロゾルを対象として、沈着率測定をおこなった。

実験はGB#1に $UF_6$ を放出し、ファンにより攪はんし、内部の濃度がほぼ均一になってからおこなった。実験当初は、試験配管の上、下流からその一部雰囲気をサンプリングし、濃度比をもって配管への沈着を求める方法をとったが、実験結果のバラツキが大きかったため、現在は、Fig-19の様に、二系統のサンプリングラインを設けておこなっている。一方はGB#1 雰囲気をボールバルブ1ヶを介して直接サンプリングするもの、他方はボールバルブ2ヶにはさまれた試験配管を介してサンプリングするもので、両者とも、Millipore-AA 濾紙に捕集している。沈着割合は、上・下流のMillipore-AA 濾紙上の放射能強度の比をもってこれにあてた。

### 6.2 測定結果

実験は1インチの塩ビ管ならびに内径12mmφのビニールホースを用いておこなった。その結果をFig-20～21に示す。いずれも、レイノルズ数1000前後で配管への沈着割合が最小となっている。

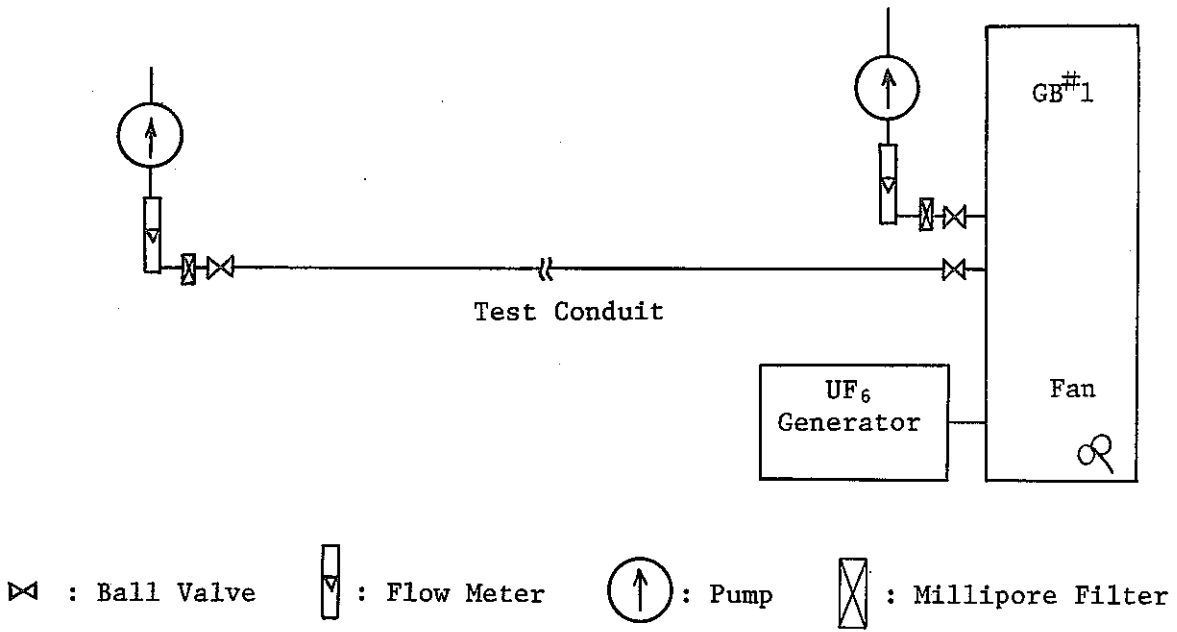
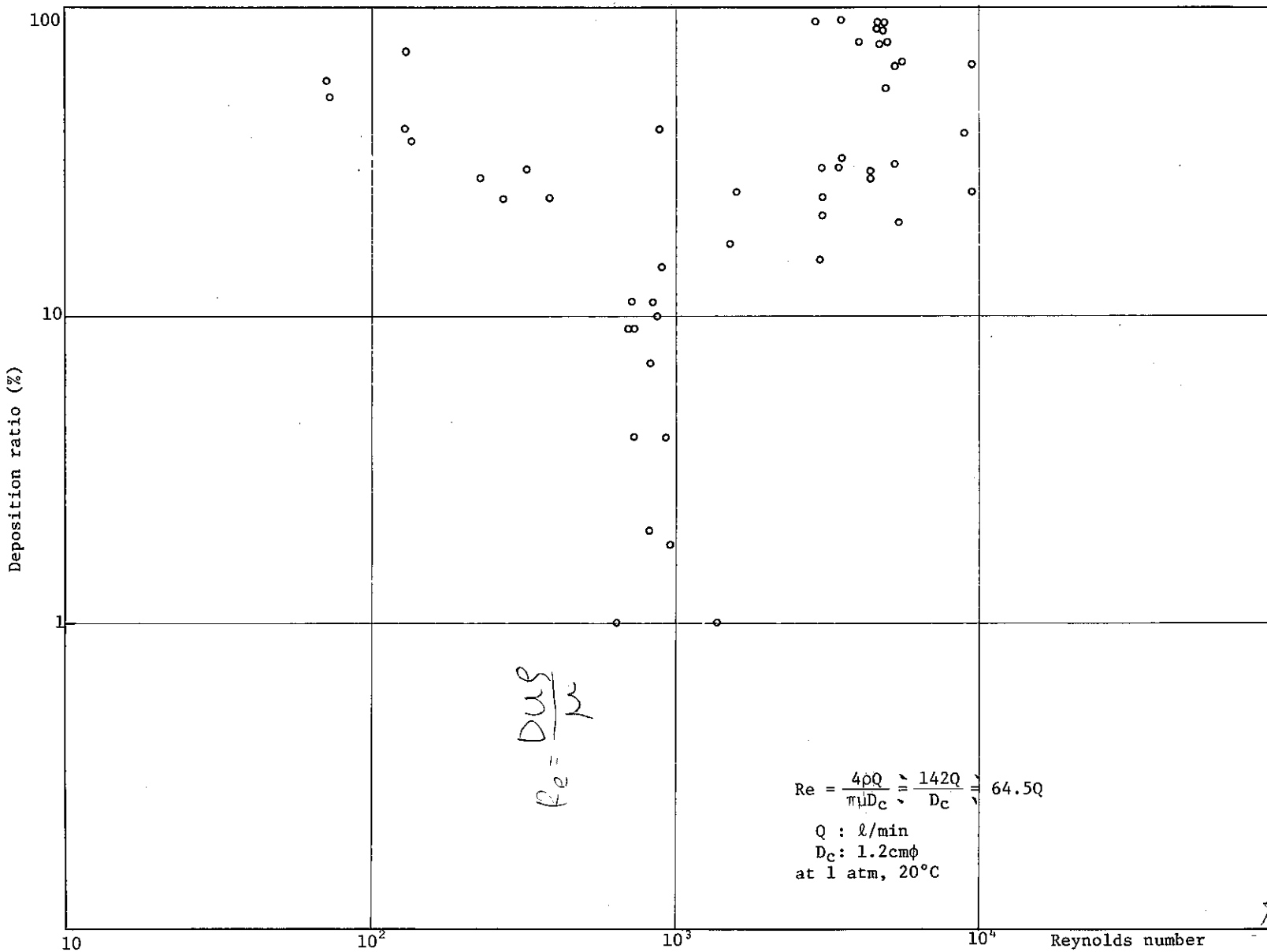


Fig-19 Schematic diagram of sampling equipment



$\frac{10^3 \text{ cm}^3}{60 \text{ sec}} = \frac{\text{cm}^3}{\text{min}}$   
 $\frac{\text{l}}{\text{min}} = \frac{\text{cm}^3}{\text{sec}}$

$\frac{4.9}{D \cdot \pi \cdot D_c}$   
 $\frac{\text{cm}^3 \cdot \text{cm}}{\text{min}}$   
 $\frac{10^3}{60} \frac{\text{l}}{\text{min}}$   
 $\pi \cdot 0.15 \cdot 60$   
 $\frac{\text{cm}^3}{\text{s}}$

$\frac{4 \cdot 10^3}{\pi \cdot 0.15 \cdot 60}$

Fig-20 Deposition of uranium particles in polyvinyl chloride pipe

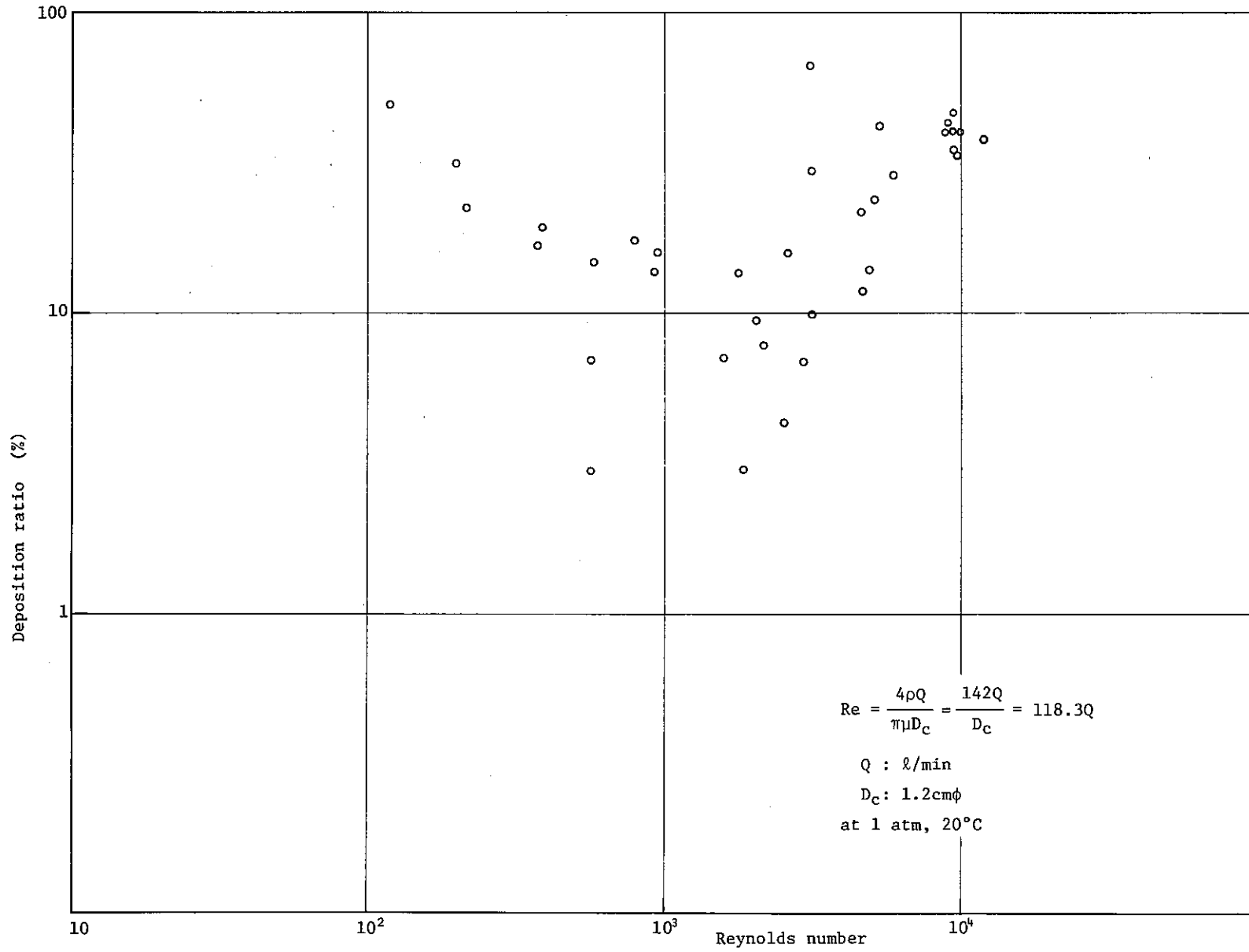


Fig-21 Deposition of uranium particles in polyvinyl resin pipe.

## 7. ま と め

以上の実験結果を要約すると以下の様になる。

- (1)  $UF_6$ が空気中に漏洩した際、その娘核種は装置系内に残留する。従って、漏洩した $UF_6$ に対しては $\alpha$ 放射能管理を、装置系については $\beta$ 放射能管理を主体におこなうのが適切といえる。
- (2)  $UF_6$ が空気中で加水分解して生成されたHF濃度は高濃度漏洩側で、放射性物質濃度と比較して、低めの結果を得た。HFがガス状のみならずミスト状になっている場合には、現在の捕集、測定法では若干問題を含むと考えられるため、今後、検討を加える必要がある。
- (3) 大型のグローブボックス中に漏洩された $UF_6$ を、換気をせずに放置した場合、その漏洩量の70%がリノリウム床面へ、29%がアクリライト壁面へ、残り1%がSUS天井面へ付着するとの結果が得られた（初期空気汚染濃度： $2 \times 10^{-7} \mu Ci/cm^3$ ）。また、表面汚染密度は同一面においても材質により異なり、壁面のアクリライト板上には、同面のSUS板上の2.8倍の汚染密度が検出された。
- (4) 換気回数が2回/hr以上ある場合には、漏洩された $UF_6$ のうちグローブボックス内に沈降付着する量は10%以下であり、90%以上のものが排気ダクト系へ移行する。
- (5)  $UF_6$ エアロゾルの粒度分布は漏洩条件に依存し、漏洩濃度が高く、湿度が低いほど粒子径が大きくなるとの結果であった。本実験範囲ではAMADとして、その発生初期において、 $0.6 \sim 1.8 \mu m$ の範囲に分布した。これら空気中の $UF_6$ エアロゾルは1時間ほどで初期粒子径の40%ほど増加し、以後、平衡となる。標準偏差は時間とともに減少する。
- (6) サンプリング配管への粒子沈着割合は、レイノルズ数1000前後で最小となる。

## 8. 今後の課題

UF<sub>6</sub>が漏れ出た際の、放射線管理技術を高めるために、更に、次の様な実験を遂行する必要がある。

### 1. 加水分解して生成されたフッ化水素のガス状成分とミスト状成分の割合

フッ化水素は、ガス状であるかミスト状であるかにより、その作用が大きく異なるため、漏洩条件（発生濃度、湿度等）をパラメータとして、その割合を求める必要がある。

### 2. 高性能フィルターを通過する粒子の粒度分布

高性能フィルターを最も通過しやすい粒子径は、一般には、0.3 μm 付近の粒子とされているが、実験者によりその数値にバラツキがあるため、UF<sub>6</sub>エアロゾルに限らずとも、このデータを求めておく必要がある。フィルターが粒子径によりろ過特性が異なるのであれば、UF<sub>6</sub>の漏洩がおこった際の、環境へ与える影響評価が異なってくるため、これらは必要なデータである。

### 3. 高性能フィルターの耐フッ化水素特性

UF<sub>6</sub>が加水分解されるとフッ化水素が生じるが、このフッ化水素に対する高性能フィルターの特性が、現在、まだよくわかっていない。フッ化水素の暴露濃度、時間等を変えて、高性能フィルター素材の外観検査（目視、電子顕微鏡観察）、捕集効率及び引張強度の変化等について調べておく必要がある。本データは、フィルター交換時期の目安、大量UF<sub>6</sub>漏洩時の評価の際に必要なデータである。

### 4. 空気汚染発生の迅速測定

迅速測定は二項目に分けられ、一つはUF<sub>6</sub>漏洩が生じた際にできるだけ迅速にその異常を検出するもの、もう一つは空気汚染が生じた場の空気汚染濃度を的確に把握するものである。後者については、天然に存在するラドン等娘核種をいかに除去できるかにより、測定時間を大幅に変えることができる。前者については、第二報<sup>(12)</sup>で高濃度条件下における適切な検知器について報告しているが、更に、濃度の低い条件下（1 MPCa・hr）での迅速測定が可能な機器についても検討する必要がある。

## 9. 謝 辞

本報告を査読し有益な助言を頂いた安全管理部長福田整司氏と、実験期間中色々と御指導いただいた加藤仁三主任研究員に感謝いたします。また実験装置の製作にあたって助言を頂いた現線量計測係長石黒秀治氏ならびに実験に協力頂いた課員の方々に謝意を表します。

また、本報告書には、富士電機製造㈱への昭和52年度委託研究成果も一部とりまとめて収録した ( Fig-10～Fig-15 )。

## 参 考 文 献

- (1) 齊藤信一：「六フッ化ウラン安全取扱手引」JAERI-M 6486 (1976)
- (2) M. R. Pack, A. C. Hill, and H. M. Benedict; "Sampling atmospheric fluorides with glass fiber filters" Journal of the Air Pollution Control Association 13, 374, 1963.
- (3) J. Shapiro; "Tests for the evaluation of airborne hazards from radioactive surface contamination" Health Physics 19, 501, 1970.
- (4) J. C. Couchman; "Use of cascade impactors for analyzing airborne particles of high specific gravity" Conf. 650407, p1162-1203, 1965.
- (5) A. A. Andersen; "A sampler for respiratory health hazard assessment" Am. Ind. Hyg. Assoc. J. 27, 160, 1966.
- (6) J. P. Flesch, C. H. Norris and A. E. Nugent Jr.: "Calibrating particulate air samplers with monodisperse aerosols: application to the andersen cascade impactor" ib. 28, 507, 1967.
- (7) J. C. Elder, M. Gonzales and H. J. Ettinger; "Plutonium aerosol size characteristics" Health Physics 27, 45, 1974.
- (8) M. J. Ettinger, J. C. Elder and M. Gonzales; "Performance of multiple HEPA filters against plutonium aerosols" LA5170 (1973).
- (9) A.K. Rao and K.T. Whitby; "Nonideal collection characteristics of single stage and cascade impactors" Am. Ind. Hyg. Assoc, J. 38, 174, 1977.
- (10) J. C. Elder, M. I. Tillery and H. J. Ettinger; "Calibration of Andersen nonviable impactor under special conditions of high flow and membrane filter surface coating" LA-UR 77-874 (1977).
- (11) G. W. Parker and H. Buchholz; "Size classification of submicron particles by a low-pressure cascade impactor" ORNL-4226 (1968).
- (12) 石田順一郎他：「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(Ⅱ)－六フッ化ウラン漏洩検知のための警報機器の特性試験」 N841-78-63