



ウラン濃縮遠心分離機の化学除染法の開発

美田 豊 遠藤 裕治 山中 俊広 大橋 祐介

人形峠環境技術センター 環境保全技術開発部

Development of the Chemical Decontamination Process of Uranium Enrichment Gas Centrifuges

Yutaka MITA Yuji ENDO Toshihiro YAMANAKA Yusuke OOHASHI

Environmental Research and Development Division, Ningyo-Toge Environmental Engineering Center

人形峠環境技術センターには、ウラン濃縮試験に供した遠心分離機が大量（約6,000t）に保管されており、今後、適切な処理・処分を実施していく必要がある。この使用済み遠心分離機について、「放射性物質として扱う必要のないもの」に適用することにより放射性廃棄物発生量を低減化することを目的とし、湿式処理（希硫酸）によるウランの除染試験を実施した。

その結果、回転胴については、想定する「放射性物質として扱う必要のないもの」のレベルを満足したがケーシングについては、効果にバラツキが生じた。今後の課題として最適処理方法の検討等があり、そのために継続して基礎試験等を行い、処理時間及び経済性等を評価し、合理的な処理方法を検討する。

In Ningyo-Toge Environmental Engineering Center, many of the centrifuges that were tested for uranium enrichment are kept in storage. In the future, it will be necessary to dispose of them properly.

By categorizing these centrifuges as "items that are not required to be treated as radioactive waste", chemical decontamination tests were conducted with the wet process (diluted sulfuric acid) to reduce the amount of such radioactive waste.

As a result, concerning the rotors, the assumed radioactive level was attained as "items that are not required to be treated as radioactive waste", but the effectiveness of the casings varied. As a future subject, in order to find the optimal decontamination process, the basic test shall be conducted continuously. By taking economical efficiency and the processing time into consideration, the decontamination process will be evaluated and a rational method examined.

キーワード

除染，ウラン濃縮，化学除染，遠心分離機，パイロットプラント，原型プラント，廃棄措置

Decontamination, Uranium Enrichment, Chemical Decontamination, Gas Centrifuges, Pilot Plant, Model Plant, Waste Measure

1. はじめに

人形峠環境技術センターは、1995年にウラン鉱床が発見されてから採鉱、製錬転換及びウラン濃

縮の核燃料サイクルのフロントエンドにかかわる技術開発を実施してきた。

この中でウラン濃縮は、東海事業所で開発され



遠藤 裕治

遠心機処理技術課所属
遠心機処理に関わる全体計
画策定及び遠心機処理設備
設計に従事



山中 俊広

遠心機処理技術課所属
遠心機処理の基礎試験及び
遠心機処理設備設計に従事



美田 豊

遠心機処理技術課所属
遠心機処理の基礎試験に従
事



大橋 祐介

遠心機処理技術課所属
遠心機処理の基礎試験に従
事

た遠心分離機及び六フッ化ウラン（以下、UF₆）のハンドリング技術等についてウラン濃縮プラントとしての技術を実証するため、ウラン濃縮工場（パイロットプラント及び原型プラント）において1979年9月からウラン濃縮試験を開始し、2001年3月に所期の目的を達成し、運転を終了した。特にウラン濃縮原型プラントは、13年間に及ぶ長期無停止運転を達成し、この成果は、日本原燃㈱が実施したウラン濃縮工場の建設、運転に反映し、サイクル機構の使命である民間への技術移転を果たした。

ウラン濃縮工場の使用済み遠心分離機は、約6,000tonであり、これらは、放射性廃棄物低減化及び資源の有効利用を目的として「放射性廃棄物」、「放射性物質として扱う必要のないもの」に区分し、「放射性物質として扱う必要のないもの」は、適切にリサイクルすることが望まれている。「放射性物質として扱う必要のないもの」への適用を目的として、パイロットプラントから事業展開により名称を変更した濃縮工学施設（以下、EEF）において使用済み遠心分離機を用いた放射性物質の分離・除染に関する技術開発を実施している。以下に、ウラン濃縮遠心分離機の化学除染試験の結果と考察について報告する。

2. 遠心機処理設備の概要

EEFに設置している使用済み遠心分離機の処理設備（以下、処理設備）は、1993年から詳細設計に着手し、1998年に完成した。

図1に遠心分離機の概略図を示す。なお、遠心分離機は、密閉容器（以下、ケーシング）とその中に設けた高速回転する円筒（以下、回転胴）、UF₆

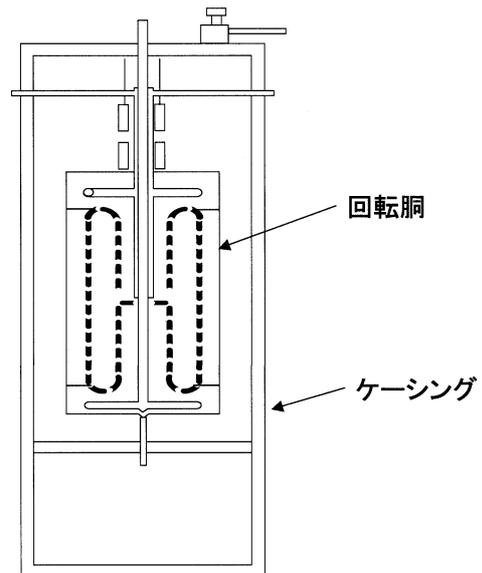


図1 遠心分離機の概略図

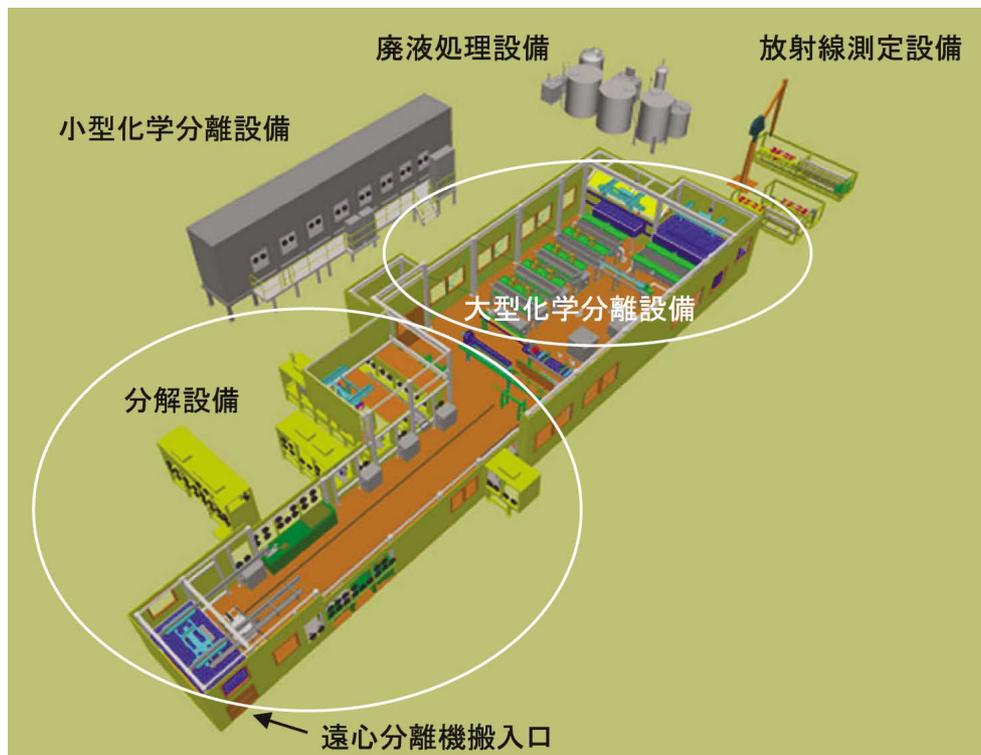


図2 遠心機処理設備の鳥瞰図

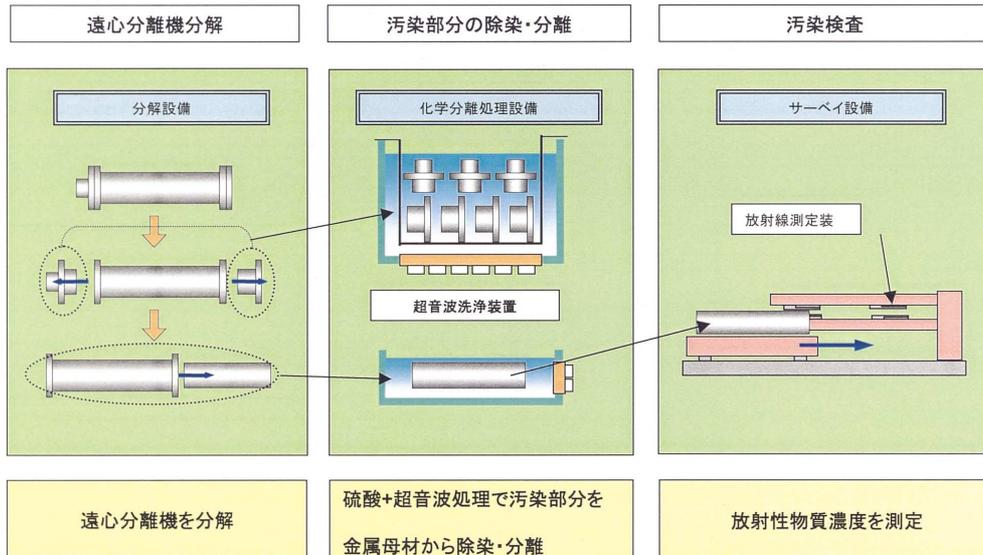


図3 遠心分離機の処理フロー

ガスを供給する配管及び抜き出す配管，回転性能を保持するモーター 軸受け等で構成されている。

図2に処理設備の鳥瞰図，図3に遠心分離機の処理フローを示す。なお，処理設備は，分解等で発生する放射性物質等の飛散を封じ込めるために，各装置をハウス内に設置し，作業員は外部からグローブ操作により作業する構造である。

遠心分離機の処理フローは，搬送台車により処理設備に運ばれ，分解設備でケーシング上下のフランジを取り外した後，内部の回転胴等の部品が引き抜かれる。ケーシング，回転胴等の大形部品は，大形化学分離設備により放射性物質が除染・分離された後，ハウスから搬出される。その後，シンチレーション式放射能測定器で表面密度を検査し，人形峠環境技術センター内規で定められた管理区域からの持ち出し管理目標値〔法令の1/10， $0.04\text{Bq}/\text{cm}^2$ ，（ \quad ）： $0.4\text{Bq}/\text{cm}^2$ 〕を満足していることを確認した後，EEF内の非管理区域に保管する。また，表面密度検査が定量的にできない複雑形状の小物部品は，分解後，小形化学分離設備で除染された後，ドラム缶に保管するシステムとしている。

3. 「放射性物質として扱う必要のないもの」の想定値

3.1 「放射性廃棄物でない廃棄物」

放射性廃棄物でない廃棄物の基本的な考え方は，放射性物質で汚染された範囲がクロスコンタミネーションを起こさないで分離除去できること

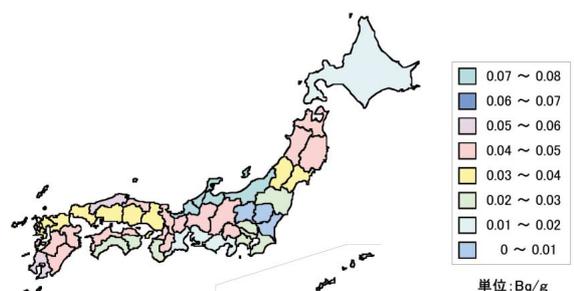
である。

遠心分離機は，ガス状の UF_6 を用いウランの濃縮試験を実施しているため，汚染核種は濃縮ウランから劣化ウランである。ウランは，図4に示すとおり土壌中にも微量にあり，天然に存在する放射性物質である。「放射性廃棄物でない廃棄物」は，汚染を分離除去後に表面のウラン濃度が未使用材のウラン濃度レベル（以下，天然レベル）まで低下したことを確認することにより，検認できるものと考えられる。

したがって，遠心機部材が「放射性廃棄物でない廃棄物」として処分できる想定値を設定する必要がある。このため，未使用材のウラン濃度を以下のとおり分析した。

(1) 分析法

未使用の遠心機部材のウラン濃度が極めて微量



参考文献: 環境放射線モニタリング
編集発行: (財)原子力安全研究協会

図4 日本各地の土壌中のウラン濃度

と予測されるため、高感度、高分解能の高周波誘導結合プラズマ質量分析計（以下、ICPMS）を用いた。ICPMSの原理を図5に示す。分析試料の形態は水溶液が対象であり、ネプライザーで霧化した試料が、高周波とアルゴンガスにより発生したプラズマ中へ導入されて、溶存元素がイオン化する。イオン化した元素は、レンズへ導入されマグネットで質量分離しやすい形状の長方形に成形されて、マグネットにより着目元素を質量分離し、イオン検出器により元素量に応じたカウントが計数される。定量法は、あらかじめ標準試料（濃度既知溶液）を分析し、カウントと濃度により検量線を作成する方法をとった。

手順は、試料を材質に応じた酸（鉄材：王水、非鉄材：塩酸）により溶解した後、ICPMSでウラン濃度を定量分析した。なお、分析におけるクロスコンタミネーションを防止するため、高純度試薬及びPFA製の容器を用いる等、細心の注意を払った。

(2) 分析結果

未使用の遠心機部材と一般部材について分析し、得られたウラン濃度を天然ウランの比放射能（約 2.6×10^4 Bq/g）で換算した結果を図6に示す。回転胴材及び鉄材は、 10^{-4} Bq/gのレベルであった。ステンレス材は、ばらつきが大きいが平均値は鉄材とほぼ同様な濃度であった。一方、ケーシング材及び非鉄材は、 10^{-2} Bq/gのレベルであり、鉄材より約2桁高い濃度であった。

以上の分析結果から「放射性廃棄物でない廃棄物」の想定値は、回転胴で 7.8×10^{-5} Bq/gから 4.2×10^{-4} Bq/g、ケーシングで 5.8×10^{-3} Bq/gから 9.3×10^{-2} Bq/g（分析結果にバラツキがあった

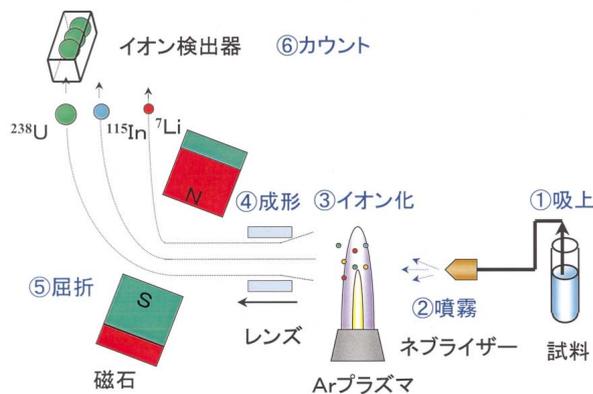


図5 ICPMSの概略原理図

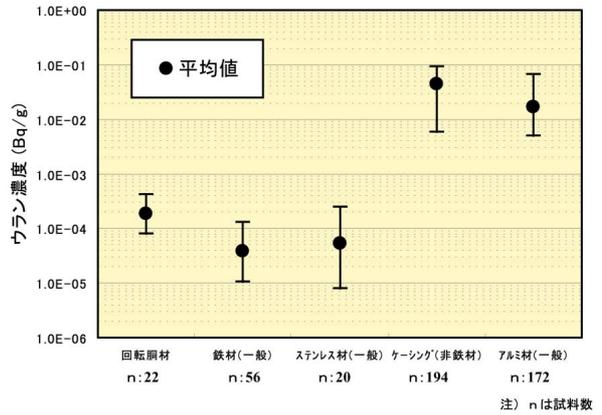


図6 部材表層のウラン濃度

め幅を持った値とした)とする。

3.2 「想定クリアランスレベル以下のもの」

国内におけるウラン系廃棄物のクリアランスレベルは、設定されていないが、国際原子力機関（IAEA）は、TECDOC 855においてクリアランスレベルの参考値を定めており、その内、最小値は、0.1 Bq/gである。この0.1 Bq/gを参考に想定クリアランスレベルを設定した。

回転胴の想定クリアランスレベルは、管理区域の持ち出し管理目標値と同様の安全裕度（一桁）を持たせた0.01 Bq/gとした。一方、分離・除染効果は、ICPMSにより表層のウラン濃度を測定する。このため、想定クリアランスレベルの単位の重量密度で評価するには溶融により、母材の未汚染領域で希釈される量を考慮して表面濃度を設定する必要がある。表層領域のウラン濃度による想定クリアランスレベルは、分析領域と回転胴肉厚から希釈率を求め、使用したウランの最大比放射能（約 4.8×10^4 Bq/g）から算出した0.3 Bq/gと設定した。

ケーシング（非鉄材）は、「放射性廃棄物でない廃棄物」で示したとおり 10^{-3} Bq/gから 10^{-2} Bq/gオーダーであり、天然レベルの0.1 Bq/gに近接しているため、クリアランスレベルの想定はしない。

放射性物質として扱う必要のないものと想定するレベルを表1に示す。

4. 化学除染

4.1 試験方法

供試体は遠心分離機部品のうち、UF₆ガスに常時曝露されて汚染の激しい回転胴と重量の多いケーシングを選定した。なお、供試体の運転履歴

表1 放射性物質として扱う必要のないもの(想定)

部品名	濃度 放射性廃棄物でない廃棄物の想定濃度(未使用部材のウラン濃度)(Bq/g)	クリアランスレベル(想定)	
		全体の濃度(Bq/g)	表層の濃度(Bq/g)
回転胴	$7.8 \times 10^{-5} \sim 4.2 \times 10^{-4}$	1.0×10^{-2}	3.0×10^{-1}
ケーシング(非鉄材)	$5.8 \times 10^{-3} \sim 9.3 \times 10^{-2}$	—	—

は、EEF遠心分離機でカスードの位置(濃縮段,供給段,減損段)にかかわりなく,約20万時間から約50万時間(ホット運転時間)である。

分離・除染剤には,取り扱い及び装置への腐食性等を考慮し,希硫酸を選定した。

分離・除染の試験条件を表2に示す。

回転胴は,希硫酸による超音波洗浄,水による超音波洗浄,ジェット洗浄,乾燥の順で処理した。

水による超音波洗浄は,希硫酸による超音波洗浄の際に表層に形成する鬆層(スポンジ状の母材の溶け残り)を分離除去するための処理である。

また,「放射性でない廃棄物」を目的とした試験では,徹底的に放射性物質を分離する必要があることから,希硫酸による超音波洗浄,水による超音波洗浄,ジェット洗浄を繰り返し実施するとともに,装置のクロスコンタミネーションを防ぐため,その都度,装置を洗浄した。

ケーシングは,希硫酸による超音波洗浄,ジェ

ット洗浄,乾燥の順で処理した。

希硫酸による超音波洗浄及び水による超音波洗浄は,最適条件を検討するために洗浄時間をパラメータとした。

分離・除染効果は,放射線管理に用いられている及び()の表面密度測定及び表層領域のウラン濃度をICPMSにより評価した。

二次廃棄物の低減を目的とした希硫酸の繰り返し利用可能回数の確認は,想定クリアランスレベル以下に除染するため繰り返し処理を行い,希硫酸中のウラン濃度をICPMSにより定量分析し,表層領域のウラン濃度との関係を検討することにより評価した。

4.2 試験結果

表面密度の測定結果は,いずれの試験条件においても測定器の検出下限値〔 : $0.02 \text{ Bq/cm}^2 \sim 0.03 \text{ Bq/cm}^2$, (): 0.1 Bq/cm^2 〕以下であり,人形峠環境技術センター内規で定めている管理区域からの持ち出し管理目標値〔 : 0.04 Bq/cm^2 , (): 0.4 Bq/cm^2 〕を十分下回るものであった。

回転胴の化学除染のうち,ケース1(硫酸を繰り返し使用)は,硫酸超音波洗浄時間の増加に伴い表層のウラン濃度が 10^{-1} Bq/g から 10^{-2} Bq/g まで低下した。しかし, 10^{-2} Bq/g に飽和する結果となり,これが限界と考えられる。なお,硫酸超音波洗浄時間を30分以上かける処理により,想定クリアランスレベルを下回るウラン濃度を示した。

表2 試験方法(分離・除染試験の条件)

ケース(No)	試験条件
ケース1	SAU(t:15m, 30m, 60m, 90m) → WU(t:30m, 80m) → JW(t:3m)
ケース2	SAU(t:90m) → WU(t:80m) → JW(t:3m) SAU(NSA, t:60m) → WU(t:80m) → JW(t:3m)
ケース3	SAU(t:10m) → JW(t:3m) → WU(t:30m) SAU(NSA, t:40m) → JW(t:3m) → WU(t:30m) SAU(NSA, t:50m) → WU(t:30m) → JW(t:3m)
凡例	SAU:硫酸溶液による超音波洗浄 WU:水による超音波洗浄 JW:水によるジェット洗浄 NSA:新しい硫酸溶液 t:処理時間(分)

ケース2（硫酸を新しい物と交換し2回処理）は、表層のウラン濃度がケース1より1桁低い 10^{-3} Bq/gまで低下した。

ケース3（硫酸を1回ごとに新しい物と交換し3回処理）は、処理した後に、各処理槽をその都度洗浄した。その結果、表層のウラン濃度が想定する放射性廃棄物でない廃棄物のレベルの 10^{-3} Bq/gまで低下した。

ケーシングについては、硫酸超音波洗浄時間の増加に伴い表層のウラン濃度が数Bq/gから 10^{-3} Bq/gまで低下した。硫酸超音波処理時間が60分から90分で表層のウラン濃度が想定する放射性廃棄物でない廃棄物のレベルまで低下するものもあったが、同時間及び150分の処理においても想定する放射性廃棄物でない廃棄物のレベルより大きいものもあった。

ICPMSによる回転胴及びケーシングの表層ウラン濃度と硫酸超音波処理時間との関係を図7並びに図8に示す。

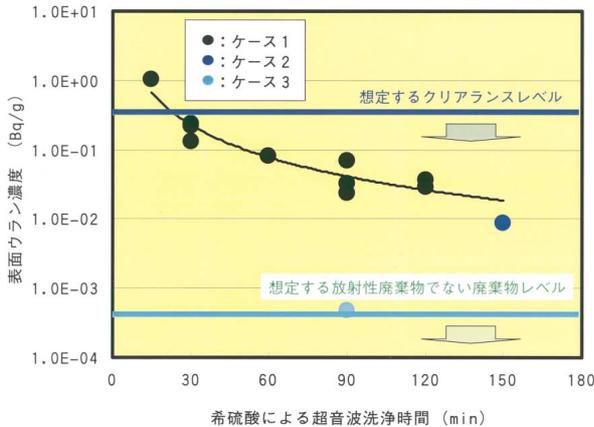


図7 回転胴表層のウラン濃度と硫酸超音波処理時間

表層のウラン濃度は、硫酸溶液のウラン濃度按比例増加する傾向を示した。回転胴のケース1における処理後の表層のウラン濃度と硫酸溶液のウラン濃度の関係を図9に示す。

4.3 考察

(1) 処理不良要因

回転胴の処理不良要因を検討するため、ケース2で処理したテストピースをグロー放電質量分析装置により表面から深さ方向のウラン濃度を分析した。ウラン濃度は、表面が 10^{-2} Bq/gで深さ方向に低下し、表面の極浅い領域（約 $0.8 \mu\text{m}$ ）で想定する放射性廃棄物でない廃棄物のレベルに到達した。これは、処理後の表面観察（薄いねずみ色）から、硫酸との溶解反応時に残留する難溶性元素から成るスポンジ状の層が表面の極浅い領域に残留しているところに要因があるものと考えられる。表面から深さ方向のウラン濃度を図10に示す。

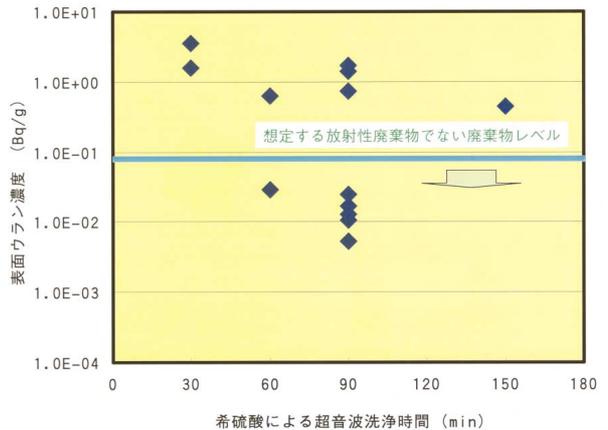


図8 ケーシング表層のウラン濃度と硫酸超音波処理時間

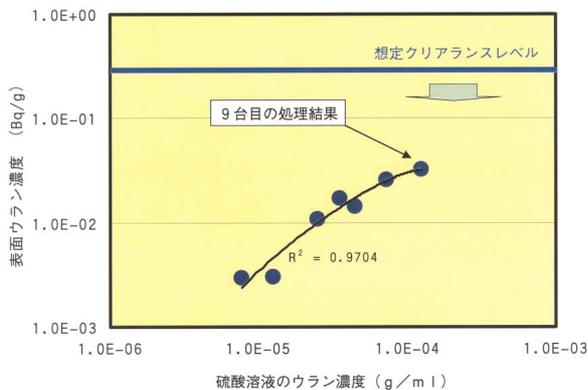


図9 表層領域のウラン濃度と硫酸溶液のウラン濃度の関係

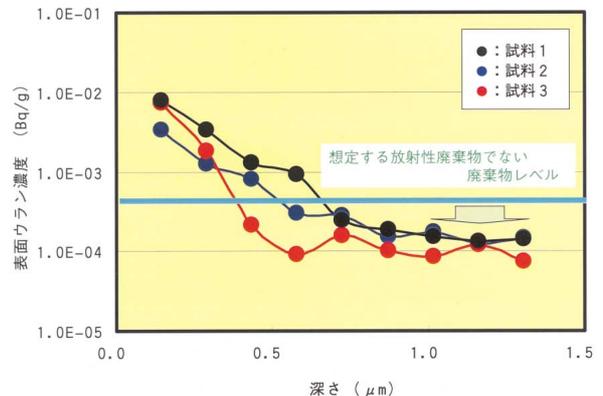


図10 処理後回転胴の深さ方向のウラン濃度推移

(2) 硫酸の繰り返し使用限度

回転胴のケース1における処理後の表層のウラン濃度と硫酸溶液のウラン濃度の関係から、想定クリアランスレベルを目標とした場合に硫酸溶液の繰り返し使用限度は、20回程度と考えられる。また、表層のウラン濃度が硫酸溶液中のウラン濃度と高い相関性(相関係数:0.94)を示したので、硫酸溶液を分析することにより表層のウラン濃度が推定できることから、分析用テストピースの採取作業の低減が期待できる。

5. おわりに

EEFの使用済み遠心機の回転胴とケーシングを用いて除染試験を行った結果、想定する「放射性物質として扱う必要のないもの」のレベルを満足

できる見通しを得ることができた。しかし、ケーシング(非鉄材)は、硫酸による湿式処理では効果にバラツキが生じており、他の分離手法を含めた検討が必要である。

今後は、基礎試験による各種データを蓄積するとともに二次廃棄物の発生量を低減化等の最適処理条件を確立していく。また、国のウラン系廃棄物の処理・処分に関する動向を踏まえ、合理的な遠心機処理システムを構築していく計画である。

参考文献

- 1) INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY: "Clearance levels for radionuclides in solid materials"; IAEA - TECDOC - 855(1996).