

平成 29 年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業
英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

多核種高除染性空気浄化システム開発による
作業被曝低減化研究

成果報告書

平成 30 年 3 月
国立大学法人 北海道大学

本報告書は、文部科学省の英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業による委託業務として、国立大学法人 北海道大学が実施した平成 27－29 年度「多核種高除染性空気浄化システム開発による作業被曝低減化研究」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	xi
1. はじめに	1-1
1.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究	1-1
1.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	1-1
1.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）	1-1
1.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	1-2
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 各年度計画	2.2-1
2.2.1 平成 27 年度	2.2-1
(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究	2.2-1
① 被曝低減技術の基本コンセプトの立案	2.2-1
② 実験装置の仕様検討と実験装置発注	2.2-1
(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	2.2-1
① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成	2.2-1
② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定	2.2-1
(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）	2.2-1
① バッチ式吸着実験装置の製作	2.2-1
② ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測	2.2-2
(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	2.2-2
(5) 研究推進	2.2-2
2.2.2 平成 28 年度	2.2-2
(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究	2.2-2
① 被曝低減技術のコンセプトの検討	2.2-2
② 吸着実験と評価解析モデルの作成	2.2-2
(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	2.2-3
① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成	2.2-3
② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定	2.2-3
(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）	2.2-3

① バッチ式吸着実験装置の製作	2. 2-3
② ¹²⁵ I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測	2. 2-3
(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	
	2. 2-3
(5) 研究推進	2. 2-3
2. 2. 3 平成 29 年度	2. 2-4
(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究	2. 2-4
① 被曝低減技術の基本コンセプトの検討	2. 2-4
② 吸着実験と評価解析モデルの作成	2. 2-4
(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	
	2. 2-4
① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成	2. 2-4
② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定	2. 2-4
(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）	
	2. 2-4
① ¹²⁵ I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測	2. 2-4
(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	
	2. 2-4
(5) 研究推進	2. 2-5
3. 業務の実施内容及び成果	
3. 1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究（H27～H29）	3. 1-1
3. 1. 1 被曝低減技術の基本コンセプトの立案（H27）	3. 1-1
3. 1. 2 実験装置の仕様検討と実験装置発注（H27）	3. 1-1
3. 1. 3 被曝低減技術のコンセプトの検討（H28～H29）	3. 1-1
3. 1. 4 吸着実験と評価解析モデルの作成（H28～H29）	3. 1-6
(1) 平成 28 年度の吸着実験と評価解析モデルの作成の成果の概要	3. 1-6
(2) 平成 29 年度の吸着実験の実施項目と評価解析モデルの改良	3. 1-7
(3) 吸着実験	3. 1-8
① 吸着実験装置	3. 1-8
② 吸着実験に用いたフィルターとフィルター収納容器	3. 1-9
③ 吸着実験方法と実験パラメータの選定	3. 1-11
④ 吸着実験結果	3. 1-13
1) 綿状フィルター（WF）の実験結果	3. 1-13
2) 焼結フィルター（NF）の実験結果	3. 1-15
(4) 吸着実験結果の考察	3. 1-17
(5) 電子顕微鏡を用いた粒径分布の測定	3. 1-17
① 粒径分布の測定	3. 1-17
② FE-SEM による観察	3. 1-18
③ 画像解析ソフトによる解析	3. 1-20

(6) 評価解析モデル用粒径ごとの吸着係数の取得	3. 1-23
① 供試フィルターの実験条件	3. 1-23
② 粒径分布ごとの CF 測定	3. 1-23
(7) 多層複合フィルターの高性能化実験	3. 1-26
① 高性能化実験の基本的考え方	3. 1-26
② 複合フィルターを用いた DF 測定	3. 1-29
③ 粒径分布観測	3. 1-27
(8) 湿式・乾式統合フィルターシステム実験	3. 1-31
(9) 最高性能複合フィルターの決定	3. 1-33
3. 2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	
(H27～H29)	3. 2-1
3. 2. 1 吸着剤設計法構築の目的	3. 2-1
3. 2. 2 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成 (H27～H29)	3. 2-2
(1) MFI 型ゼオライト (H27～H28)	3. 2-2
(2) FAU 型ゼオライト (X 型・Y 型) (H27～H29)	3. 2-3
(3) MTW 型ゼオライト (H28)	3. 2-8
(4) 希ガス吸着 (H29)	3. 2-9
3. 2. 3 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定 (H27～H29)	3. 2-12
(1) 拡散係数測定 (H27～H29)	3. 2-12
(2) ゼオライト膜合成とヨウ化メチル吸着特性評価 (H29)	3. 2-19
3. 3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究 (再委託先：東北大学)	
(H27～H29)	3. 3-1
3. 3. 1 バッチ式吸着実験装置の製作 (H27)	3. 3-1
3. 3. 2 ¹²⁵ I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測 (H27)	3. 3-3
3. 3. 3 銀ゼオライト吸着剤バッチ試験の実施、吸着性能評価 (H28～H29)	3. 3-5
3. 3. 4 ヨウ素脱離特性評価に用いる TG- MS の動作確認 (H28)	3. 3-10
3. 3. 5 TG- MS を用いた銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性評価 (H29)	3. 3-11
3. 4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	
(H27～H29)	3. 4-1
3. 4. 1 はじめに	3. 4-1
3. 4. 2 計算理論 (H27～H29)	3. 4-1
(1) 事故直前の放射性核種インベントリの評価 (H27～H28)	3. 4-1
(2) 事故後の放射性核種インベントリの評価 (H27～H28)	3. 4-1
(3) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される事故後の放射性核種インベントリの評価 (H29)	3. 4-3
(4) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能の評価 (H29)	3. 4-3
3. 4. 3 計算条件の設定 (H27～H29)	3. 4-4
(1) 事故直前の放射性核種インベントリの評価 (H27～H28)	3. 4-4
(2) 事故後の放射性核種インベントリの評価 (H29)	3. 4-4

(3) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される事故後の放射性核種インベントリの評価 (H29)	3.4-8
(4) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能の評価 (H29)	3.4-9
3.4.4 計算結果 (H29)	3.4-9
(1) 廃炉作業時点での放射性核種インベントリ (H29)	3.4-9
① 単一燃料ノードモデル	3.4-10
② プラントノーディングモデル	3.4-12
(2) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される放射性核種インベントリ (H29)	3.4-16
(3) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能 (H29)	3.4-17
3.4.5 フィルターエレメントの保管・処分に関する検討 (H27)	3.4-20
3.4.6 おわりに	3.4-22
3.5 研究推進 (H27～H29)	3.5-1
3.5.1 平成 27 年度の研究推進実績	3.5-1
(1) 平成 27 年度第 1 回技術検討会 (於北大)	3.5-1
(2) 平成 27 年度第 2 回技術検討会 (於北大東京オフィス)	3.5-2
(3) スイス PSI 研究所の調査	3.5-3
(4) 米国出張調査 (Zion 発電所)	3.5-4
3.5.2 平成 28 年度の研究推進実績	3.5-5
(1) 平成 28 年度第 1 回技術検討会 (於北大)	3.5-5
(2) 平成 28 年度第 2 回技術検討会 (於北大)	3.5-6
(3) 平成 28 年度第 3 回技術検討会 (於東北大)	3.5-7
(4) 平成 28 年度第 4 回技術検討会 (於北大)	3.5-9
(5) 第 14 回放射線防護国際会議 (IRPA14) での基調講演	3.5-11
(6) 第 24 回原子炉工学国際会議 (ICONE24) での発表	3.5-11
(7) 保全科学技術国際会議 (ICMST 2016)	3.5-12
3.5.3 平成 29 年度の研究推進実績	3.5-12
(1) 平成 29 年度第 1 回技術検討会 (於北大)	3.5-12
(2) 平成 29 年度第 2 回技術検討会 (於北大)	3.5-15
(3) 平成 29 年度第 3 回技術検討会 (於北大)	3.5-17
(4) 平成 29 年度第 4 回技術検討会 (於東北大)	3.5-21
(5) ICAPP2017 での特別講演	3.5-24
(6) 第 25 回原子炉工学国際会議 (ICONE25) での発表	3.5-24
(7) Post-SMiRT24Conference での発表	3.5-24
(8) NURETH-17 での発表	3.5-25
(9) 2018 North American ISOE ALARA Symposium での招待講演	3.5-25
4. 結言	4-1
4.1 まとめ	4-1
4.1.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究	4-1

4.1.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究	4-1
4.1.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）	4-1
4.1.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	4-2

表一覧

表 2.1-1 年度別全体計画	2.1-1
表 3.1.3-1 実機廃炉作業用多核種高除染性空気浄化システムの仕様	3.1-3
表 3.1.4-1 実験に使用した各センサーの規格一覧表	3.1-8
表 3.1.4-2 電子天秤の仕様	3.1-12
表 3.1.4-3 充填率 1%のときの DF	3.1-14
表 3.1.4-4 充填率を変化させたときの DF	3.1-14
表 3.1.4-5 条件 2 におけるフィルター前後の粒子質量	3.1-24
表 3.1.4-6 複合フィルターCF 予測値	3.1-25
表 3.1.4-7 複合フィルターの粒径ごとの CF	3.1-28
表 3.1.4-8 CF の予測値と実測値の比較	3.1-29
表 3.1.4-9 M_0 の算出	3.1-29
表 3.1.4-10 各条件での風速	3.1-30
表 3.1.4-11 条件 6 と条件 10 の比較	3.1-34
表 3.2-1 Scherrer 式から得られた合成したゼオライトの粒子径	3.2-7
表 3.3-1 ガラス製吸着実験装置を用いた実験条件	3.3-5
表 3.3-2 金属製吸着実験装置を用いた実験条件	3.3-7
表 3.4.1 燃料から移行する元素の移行半減期（単位は秒）	3.4-7
表 3.4.2 移行する元素の分類	3.4-7
表 3.4.3 遮蔽材の原子個数密度（単位：[cm/barn]	3.4-9

図一覧

図 3.1.3-1 多核種高除染性空気浄化システムの基本コンセプト	3.1-2
図 3.1.3-2 多核種高除染性空気浄化システム試験装置の主要部	3.1-4
図 3.1.3-3 多核種高除染性空気浄化システムの全体のシステム構成	3.1-4
図 3.1.3-4 多核種高除染性空気浄化システムの実機コンセプト	3.1-5
図 3.1.3-5 実機多核種高除染性空気浄化システムの 3D-CAD 図	3.1-5
図 3.1.4-1 模擬粒子の硫酸バリウムの粒径分布	3.1-6
図 3.1.4-2 多層フィルターの概念図	3.1-6
図 3.1.4-3 乾式フィルターシステムの実験計装線図	3.1-8
図 3.1.4-4 実験に使用した送風機	3.1-9
図 3.1.4-5 微粒子連続供給装置	3.1-9

図 3.1.4-6	30 μ m 綿状フィルター	3.1-9
図 3.1.4-7	12 μ m 綿状フィルター	3.1-19
図 3.1.4-8	8 μ m 綿状フィルター	3.1-10
図 3.1.4-9	2 μ m 綿状フィルター	3.1-10
図 3.1.4-10	焼結フィルター (NF)	3.1-10
図 3.1.4-11	フィルター装着治具	3.1-10
図 3.1.4-12	電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM)	3.1-11
図 3.1.4-13	WF の SEM 観測画像	3.1-11
図 3.1.4-14	焼結フィルター装着時の装着治具	3.1-11
図 3.1.4-15	装着治具 WF 挿入時	3.1-11
図 3.1.4-16	装着治具 WF 挿入時の断面模式図	3.1-12
図 3.1.4-17	HEPA フィルター	3.1-12
図 3.1.4-18	電子天秤	3.1-12
図 3.1.4-19	損失係数 ζ の算出方法	3.1-13
図 3.1.4-20	容器底部の及ぼす影響	3.1-14
図 3.1.4-21	WF-8 の充填率と DF	3.1-15
図 3.1.4-22	WF-2 の充填率と DF	3.1-15
図 3.1.4-23	NF-2 の DP02 の時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)	3.1-15
図 3.1.4-24	NF-2 の損失係数時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)	3.1-16
図 3.1.4-25	NF-20 の DP02 時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)	3.1-16
図 3.1.4-26	NF-20 の損失係数時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)	3.1-16
図 3.1.4-27	試料台を乗せた HEPA フィルター	3.1-18
図 3.1.4-28	実験後の硫酸バリウムが付着した試料台	3.1-18
図 3.1.4-29	通常の FE-SEM 画像	3.1-19
図 3.1.4-30	調整した FE-SEM 画像	3.1-19
図 3.1.4-31	倍率 200 倍での粒子画像	3.1-19
図 3.1.4-32	倍率 2000 倍での粒子画像	3.1-19
図 3.1.4-33	倍率 20000 倍での粒子画像	3.1-19
図 3.1.4-34	A 像くんによる画像解析-1	3.1-20
図 3.1.4-35	A 像くんによる画像解析-2	3.1-20
図 3.1.4-36	観察倍率による観察範囲の面積比	3.1-21
図 3.1.4-37	倍率 20000 倍での粒径分布の比較	3.1-22
図 3.1.4-38	倍率 2000 倍での粒径分布の比較	3.1-22
図 3.1.4-39	倍率 200 倍での粒径分布の比較	3.1-22
図 3.1.4-40	粒径質量割合分布図 条件 1	3.1-23
図 3.1.4-41	粒径個数分布図 条件 1	3.1-23
図 3.1.4-42	粒径質量分布図 条件 2 における投入分	3.1-24
図 3.1.4-43	複合フィルターCF 概念図	3.1-25
図 3.1.4-44	条件 6 複合フィルター組成	3.1-26

図 3.1.4-45	条件 7 複合フィルター組成	3.1-26
図 3.1.4-46	条件 8 複合フィルター組成	3.1-26
図 3.1.4-47	追加したフィルター装着治具	3.1-27
図 3.1.4-48	フィルターを多段にした状態	3.1-27
図 3.1.4-49	フィルター目詰まり模式図	3.1-30
図 3.1.4-50	湿乾複合フィルターシステム図	3.1-32
図 3.1.4-51	湿式フィルター概要図	3.1-32
図 3.1.4-52	湿式フィルター作動時	3.1-32
図 3.1.4-53	複合フィルター 条件 10	3.1-33
図 3.2-1	粉末 X 線回折パターン(MFI 型ゼオライト合成)	3.2-3
図 3.2-2	合成した MFI 型ゼオライトの FE-SEM 像	3.2-3
図 3.2-3	異なる Si 源を用いた合成により得られた試料の X 線回折パターン	3.2-4
図 3.2-4	低温合成における水熱合成時間の影響	3.2-5
図 3.2-5	低温合成により得られた試料の電子顕微鏡写真	3.2-5
図 3.2-6	Na/Al=10 及び 20 の条件で合成した試料の X 線回折パターン	3.2-6
図 3.2-7	Na/Al=10 及び 20 の条件で合成した試料の電子顕微鏡写真	3.2-6
図 3.2-8	Na/Al=6 の条件で合成した試料の電子顕微鏡写真	3.2-7
図 3.2-9	異なる構造規定剤を用いて合成した試料の X 線回折パターン	3.2-7
図 3.2-10	異なる構造規定剤を用いて合成した試料の電子顕微鏡写真	3.2-8
図 3.2-11	イオン交換金属種の異なる FAU 型ゼオライトを用いたキセノン吸着等温線 (25℃)	3.2-9
図 3.2-12	Ag イオン交換した FAU、MFI、LTA のキセノン吸着等温線 (25℃)	3.2-10
図 3.2-13	Ag イオン交換した FAU、MFI、LTA のクリプトン吸着等温線 (25℃)	3.2-10
図 3.2-14	イオン交換金属種の異なる MFI 型ゼオライトを用いたクリプトン吸着等温線 (25℃)	3.2-11
図 3.2-15	粒子径の異なる FAU 型ゼオライトを積層させた膜を用いたキセノンの破過曲線 (100℃)	3.2-11
図 3.2-16	気相ゼオライト結晶内拡散係数測定装置概略図	3.2-13
図 3.2-17	ヨウ化メチル吸着量の経時変化の一例 (200℃、X 型ゼオライト)	3.2-13
図 3.2-18	ヨウ化メチルの吸着等温線 (H-MFI、H-FAU)	3.2-14
図 3.2-19	ヨウ化メチルの拡散係数のアレニウスプロット (H-MFI、H-FAU)	3.2-15
図 3.2-20	silicalite-1、ZSM-5、X 型ゼオライト、AgX のヨウ化メチル吸着等温線	3.2-16
図 3.2-21	Ag イオン交換 FAU 及び Na-FAU 結晶内におけるヨウ化メチルの拡散係数のアレニウスプロット	3.2-16
図 3.2-22	Ag イオン交換濃度の異なる FAU (Si/Al=1.7) 結晶内におけるヨウ化メチルの拡散係数のアレニウスプロット	3.2-17
図 3.2-23	Si/Al 比の異なる Ag イオン交換 FAU 結晶内におけるヨウ化メチルの拡散係数のアレニウスプロット	3.2-17
図 3.2-24	Ag イオン交換 FAU (Si/Al=1.7) を用いたヨウ化メチルの昇温脱離による生成物分析	

.....	3. 2-19
図 3. 2-25 FAU 型ゼオライト積層膜の断面 SEM 像	3. 2-20
図 3. 2-26 膜透過したヨウ化メチル濃度 (Ag-FAU 積層膜、ヨウ化メチル : 1%、100°C)	3. 2-20
図 3. 3-1 ガラス製吸着実験装置	3. 3-2
図 3. 3-2 金属製吸着実験装置	3. 3-2
図 3. 3-3 $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ の γ 線スペクトル測定結果	3. 3-4
図 3. 3-4 接触時間と同位体交換率の変化	3. 3-4
図 3. 3-5 吸着部 (銀ゼオライト) 温度と CH_3I 吸着率の関係	3. 3-6
図 3. 3-6 ガラス製吸着実験装置を用いたガス流量と吸着率の関係	3. 3-6
図 3. 3-7 金属製吸着実験装置を用いた $\text{Ar}+100\text{ppmCH}_3\text{I}$ ガス流量と吸着率の関係	3. 3-7
図 3. 3-8 金属製吸着実験装置を用いた $\text{Ar}+1000\text{ppmCH}_3\text{I}$ ガス流量と吸着率の関係	3. 3-8
図 3. 3-9 金属製吸着実験装置を用いた空気中での吸着剤 AgX の量と吸着率の関係	3. 3-8
図 3. 3-10 $\text{Ar}+\text{CH}_3\text{I}$ ガス流速と吸着率の関係	3. 3-10
図 3. 3-11 標準物質 ($\text{CaC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) の TG-MS 測定結果	3. 3-11
図 3. 3-12 AgX の TG-MS 測定結果	3. 3-12
図 3. 3-13 AgI の TG-MS 測定結果	3. 3-12
図 3. 3-14 ヨウ素吸着 AgX の TG-MS 測定結果	3. 3-13
図 3. 3-15 $\text{He}+100\text{ppmCH}_3\text{I}$ 中における SUS304 の TG-DTA 測定結果	3. 3-14
図 3-4-1 福島第一原子力発電所のノーディングの概念図	3. 4-2
図 3. 4. 3-1 Type-A (事故直後)	3. 4-5
図 3. 4. 3-2 Type-A (事故直後以外)	3. 4-5
図 3. 4. 3-3 Type-B (事故直後)	3. 4-5
図 3. 4. 3-4 Type-B (事故直後以外)	3. 4-6
図 3. 4. 3-5 Type-C (事故直後)	3. 4-6
図 3. 4. 3-6 Type-C (事故直後以外)	3. 4-6
図 3. 4. 3-7 各フィルター部の放射性核種インベントリを計算するプログラムの概念図	3. 4-8
図 3. 4. 3-8 計算プログラムの概念図	3. 4-9
図 3. 4. 4-1 燃料内で自発核分裂のみが発生している場合のヨウ素の放射能の比較	3. 4-10
図 3. 4. 4-2 自発核分裂と放射性物質の移行が発生している場合のヨウ素の放射能の比較	3. 4-10
.....	3. 4-10
図 3. 4. 4-3 ^{129}I (移行半減期 30 日)	3. 4-11
図 3. 4. 4-4 ^{131}I (移行半減期 30 日)	3. 4-11
図 3. 4. 4-5 ^{129}I (移行半減期 180 日)	3. 4-11
図 3. 4. 4-6 ^{131}I (移行半減期 180 日)	3. 4-11
図 3. 4. 4-7 ^{129}I (移行半減期 1 年)	3. 4-12
図 3. 4. 4-8 ^{131}I (移行半減期 1 年)	3. 4-12
図 3. 4. 4-9 中性子増倍係数が 0. 50 の場合 (健全燃料領域)	3. 4-13
図 3. 4. 4-10 中性子増倍係数が 0. 99 の場合 (健全燃料領域)	3. 4-13

図 3.4.4-11	中性子増倍係数が 0.50 の場合 (全領域)	3.4-13
図 3.4.4-12	中性子増倍係数が 0.99 の場合 (全領域)	3.4-13
図 3.4.4-13	極端に移行する場合 (^{137}Cs) (全領域)	3.4-14
図 3.4.4-14	極端に移行しない場合 (^{137}Cs) (全領域)	3.4-14
図 3.4.4-15	^{134}Cs	3.4-14
図 3.4.4-16	^{137}Cs	3.4-14
図 3.4.4-17	^{131}I	3.4-15
図 3.4.4-18	^{129}I	3.4-15
図 3.4.4-19	^{89}Sr	3.4-15
図 3.4.4-20	^{90}Sr	3.4-15
図 3.4.4-21	ヨウ素の各領域での放射能	3.4-16
図 3.4.4-22	セシウムの各領域での放射能	3.4-16
図 3.4.4-23	ストロンチウムの各領域での放射能	3.4-16
図 3.4.4-24	健全燃料解体時の放射能	3.4-17
図 3.4.4-25	損傷燃料外側解体時の放射能	3.4-17
図 3.4.4-26	中性子増倍係数が 0.99 の場合の損傷燃料外側解体時の放射能	3.4-17
図 3.4.4-27	燃焼後の冷却期間の変化によるガンマ線エネルギースペクトルの比較	3.4-18
図 3.4.4-28	アルミニウムで遮蔽した場合	3.4-19
図 3.4.4-29	鉄で遮蔽した場合	3.4-19
図 3.4.4-30	鉛で遮蔽した場合	3.4-19
図 3.4.4-31	コンクリートで遮蔽した場合	3.4-19
図 3.4.4-32	健全燃料	3.4-20
図 3.4.4-33	損傷燃料 (外側)	3.4-20
図 3.4.5-34	放射性廃棄物埋設所「ブリヤコフカ」の塹壕配置図	3.4-20
図 3.4.5-35	放射性廃棄物埋設所敷地内の被曝線量強度分布図	3.4-21
図 3.4.5-36	α 放射性核種濃度と $\beta\gamma$ 放射性核種濃度による放射性物質の分類	3.4-21
図 3.4.5-37	放射能レベルによる廃棄物の処分方法	3.4-22

略語一覧

AgX	： 銀ゼオライト	
DF	： Decontamination Factor	(除染係数)
ENDF/B-VII.0	： Evaluated Nuclear Data File Version B-VII.0	(米国の評価済核データライブラリ)
FP	： Fission Products	(核分裂生成物)
HEPA フィルター	： High Efficiency Particulate Air Filter	(高効率粒子空気フィルター)
ICMST	： International Conference on Maintenance Science and Technology	(保全科学技術国際会議)
ICONE	： International Conference on Nuclear Engineering	(原子炉工学国際会議)

ICRP : International Commission on Radiological Protection (国際放射線防護委員会)

ICSBEP : International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project
(国際臨界安全ベンチマーク評価プロジェクト)

IRID : International Research Institute for Nuclear Decommissioning
(国際廃炉研究開発機構)

IRPA : Congress of the International Radiation Protection Association
(放射線防護国際会議)

ISOE : Information System on Occupational Exposure (職業被曝情報システム)

JAEA : Japan Atomic Energy Agency (日本原子力研究開発機構)

JEFF : Joint Evaluated Fission and Fusion (共同評価済核分裂及び核融合ファイル)

JENDL : Japanese Evaluated Nuclear Data Library (評価済核データライブラリ)

JENDL/DDF-2015 : JENDL Decay Data File 2015 (JENDL 崩壊データファイル 2015)

JENDL/FPD-2011 : JENDL FP decay data file 2011
(2011 年版 JENDL FP 崩壊データファイル)

JENDL/FPY-2011 : JENDL FP fission yields data file 2011
(2011 年版 JENDL FP 核分裂収率データファイル)

MF : メタルファイバーフィルター

NF : 焼結フィルター

OECD/NEA : Organisation for Economic Co-operation and Development/
Nuclear Energy Agency (経済協力開発機構原子力機関)

OSDA : Organic structure-directing agent (有機構造規定剤)

PSI : The Paul Scherrer Institute (スイス ポール・シェラー研究所)

ROI : Region of Interest (対象領域)

TMAOH : Tetramethylammonium Hydroxide Pentahydrate
(テトラメチルアンモニウムヒドロキシド・有機構造規定剤)

TPD : Temperature-Programmed Desorption (昇温脱離法)

TG-DTA : Thermogravimetry - Differential Thermal Analysis (熱質量・示差熱同時分析)

TG-MS : Thermogravimetry - Mass Spectrometer (熱質量・質量同時分析)

WF : 綿状フィルター

XRD : X-ray Diffraction (X 線回折)

XRF : X-ray Fluorescence (蛍光 X 線)

日本 RI 協会 : Japan Radioisotope Association (日本アイソトープ協会)

(原則的にアルファベット順とする。)

概略

1. 研究の背景

福島第一原子力発電所の廃炉においては、原子炉建屋や格納容器内の汚染は深刻で、廃炉作業を実施するためには、作業者の被曝低減と敷地外の放射性物質の漏洩防止を徹底しなくてはならない。原子炉建屋は排風機で負圧に維持し、排気中に含まれる放射性物質を除去する高除染性空気浄化システムの設置が必須で、しかも長期運転する必要がある。

2. 解決すべき課題

各地の原子力発電所に設置される過酷事故対策用のフィルターベントの運転は 10 日足らずであるが、廃炉においては、その作業が終了するまで長期運転する必要がある。また、プラズマやレーザ加工、壁面のドライアイス除染などでは、多核種の粉塵やエアロゾルの発生が不可避であり、炉内や格納容器内の状況把握から燃料デブリ取出しに至るまでの全工程で被曝低減に貢献する技術である。米国 Zion 発電所の廃炉作業では、プラズマカッターなどの熱が入る作業は格納容器内の線量が上がり断念し、ワイヤカッターに切り替えたとのことであり、福島第一原子力発電所の廃炉作業では、高除染性空気浄化システムのニーズが高い。

3. 本研究の目的

本研究では、提案代表者らが開発した高除染性フィルターベントの技術を基に、多核種除染性能の向上によるフィルターエレメントの減容、遮蔽性能の向上、汚染されたフィルターエレメントの廃棄物処分評価技術の開発を実施することを研究目的とする。

具体的には、福島第一原子力発電所の廃炉においては、原子炉建屋や格納容器内の汚染は深刻で、廃炉作業を実施するためには、作業者の被曝低減と敷地外の放射性物質の漏洩防止を徹底しなくてはならない。これが開発すべき課題である。格納容器の開閉やデブリの切断加工に伴い発生する放射性物質を吸引し、排気中に含まれる放射性物質を除去する高除染性空気浄化システムの開発を研究目標とする。

4. 本研究の実施内容及び成果

本研究では、多核種高除染性空気浄化システムの開発に必要な基礎研究を実施している。

特に、多核種の濾過・吸着技術の高性能化を目的に、湿式フィルターや乾式のメタルファイバーフィルター、銀ゼオライトなどの各種フィルターのフィルター分離メカニズムの解明や多様な組み合わせによるフィルターの総合性能の向上を目指している。

また、濾過・吸着したフィルターエレメントやゼオライトにトラップされた多核種の放射性物質の放射能評価の基礎研究として、多核種解析評価プログラムを整備している。

以下に平成 27 年度から 29 年度の 3 年間実施した研究成果を述べる。

4.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

4.1.1 被曝低減技術の基本コンセプトの立案（平成27年度研究成果）

北海道大学にて開発した「ゼオライトを用いたヨウ素・セシウム高除染性フィルターベントシステム」の湿式フィルターと、メタルファイバーフィルター、高除染性銀ゼオライト

AgXなどを組み合わせた格納容器内の空気浄化システムについて検討した。

特に、最も除染係数（DF：Decontamination Factor）を上げることが困難とされる、ヒューム（プラズマカッターやレーザー切断装置などで発生するナノサイズエアロゾル）に対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入により表面凝縮させるフィルターなどの吸着特性等についての基礎実験を実施し、メタルファイバーの線径と充填率がキーパラメータであることが明らかとなり、除染係数 DF の向上に向けた研究の糸口を見いだした。

4.1.2 実験装置の仕様検討と実験装置の準備（平成 27 年度研究成果）

4.1.1 にて実施したコンセプト検討に基づき実験装置の仕様の検討と実験装置の準備を実施した。実験装置は、湿式フィルターについてはスクラビングノズルの形状パラメータを、またメタルファイバーフィルターについてはファイバー径やファイバーの充填率を変えることが可能な装置とし、フィルター機能の多様な組み合わせによる総合試験と基本的な機能が備わっていることを予備実験及び据え付けられた実験装置の調整運転により確認した。このような構成の多核種高除染性空気浄化システムは世界初である。

4.1.3 被曝低減技術のコンセプトの検討

(1) 平成 28 年度研究成果

「多核種高除染性空気浄化システム」の基本コンセプトのブラッシュアップを実施した。

特に、最も除染係数 DF を上げることが困難とされるヒュームに対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集させる手法について設備に機能を追加し、試験によりナノサイズエアロゾルの除染係数 DF の向上の糸口を見いだすことができた。フィルターに収着物質が多量に付着した場合にフィルター部において目詰まりが起り収着能力が失われる限界を試験により確認した。

メタルファイバーの除染係数を粒径別に測定するために、走査型電子顕微鏡で粒径分布を測定することとした。数十 nm の最小粒径で除染係数が小さい可能性があるので、メタルファイバーフィルターの性能向上を図ると共に、前段の湿式フィルターでの水溶性 FP の除去と、加湿器と蒸気注入によりヒュームを凝集させ粒子を大粒化してメタルファイバーフィルターでの DF 向上を図るコンセプトの詰めと実験装置の構成を検討した。高除染性銀ゼオライト AgX は最終段とした。特に、ヒュームを凝集させるには、加湿器だけでは水分が供給しきれず、フィルター直上流で蒸気注入を行う必要性が明らかになった。

(2) 平成 29 年度研究成果

メタルファイバーフィルターに加えて湿式フィルターと高除染性銀ゼオライト AgX などを組み合わせた空気浄化システムの基本コンセプトの、実機での運用方法も含めたブラッシュアップを実施した。特に、最も除染係数を上げることが困難とされるヒュームに対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集させる手法も加えて、ナノサイズエアロゾルについても捕集性能を向上させた。またメーカーに加え、エンドユーザのニーズ把握や製品化のために多核種高除染性空気浄化システムの総合検討を実施した。

4.1.4 吸着実験と評価解析モデルの作成

(1) 平成 28 年度研究成果

4.1.3(1)にて実施したコンセプト検討に基づき平成 27 年度に導入したメタルファイバー試験装置を用いて、高除染フィルター実験を実施した。加えて、この試験に対応した n 個の区間における粒径試験評価解析モデルを作成した。

次に導入済みのメタルファイバー試験装置に、ナノサイズのヒュームを蒸気凝集により粒子径を大きくする実験装置（ヒューム凝集装置）を追加設置した。ヒューム凝集装置を追加設置したメタルファイバー試験装置の前段に接続された湿式フィルターについてはスクラビングノズルの形状パラメータを、またメタルファイバーフィルターについてはファイバー径やファイバーの充填率を変えることにより、フィルター機能の多様な組み合わせによるエアロゾル及びヒュームの吸着特性実験を行った。更にこれらの実験データを用いて実験評価解析モデルを改良した。

メタルファイバーの線径、充填率、充填方法を変えて除染係数を向上できた。走査型電子顕微鏡の粒径画像から、粒径分布を測定するソフトウェアを用いて粒径分布を測定できた。数十 nm の最小粒径で除染係数は予想通り小さくなった。ただし、1 粒当たりの質量が小さいために、質量の分布では、 $1\mu\text{m}$ 以上のところにピークが来た。前段の湿式フィルターの作動は順調であった。更に、加湿器と蒸気注入によりヒュームを凝集させる実験を実施した所、微細粒子が凝集して、粒子が大粒化することを確認した。これにより、実用化に必要なフィルターシステムの基本構成と評価解析モデルがほぼ決定した。

(2) 平成 29 年度研究成果

4.1.3(2)のコンセプト検討に基づき、実機での運用を想定した高除染性空気浄化システムのフィルターの吸着（捕集）実験を実施した。メタルファイバー試験装置にナノサイズのヒュームを蒸気凝集により粒子径を大きくする実験装置を併用し、前段の湿式フィルターについてスクラビングノズルの形状をパラメータとして、多様な組み合わせによるエアロゾル及びヒュームの捕集性能総合試験を実施した。得られた捕集実験データを分析して、評価解析モデルを作成し、フィルターの総合除染係数とフィルターの圧力損失を予測可能とした。

4.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

4.2.1 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成

(1) 平成27年度研究成果

ゼオライト細孔内へ迅速に拡散物質を吸着させる上で、結晶サイズをナノレベルで合成する必要があるため、北海道大学にて開発した「逆ミセルを利用したゼオライト合成法」を応用して、銀ゼオライトの担体となるゼオライト合成を実施した。A 型を主な対象としたが、MFI 型等他のゼオライトについてもナノサイズのゼオライト結晶合成の条件を明らかにした。

炭化水素やエアロゾルが共存する実プロセスでは、A 型ゼオライト使用により、その細孔径と同程度の分子径を有するヨウ化メチルを選択的に吸着できると想定した。しかし、銀 (Ag) イオン交換ゼオライトにヨウ化メチル (CH_3I) が吸着した際にヨウ化メチルが分

解しヨウ化銀 (AgI) が生成すること、水蒸気共存下における吸着プロセスなのでヨウ化メチルが Ag 上で分解する際に吸着水との反応によりヨウ化水素が生成して酸性条件となること、A 型ゼオライトはその酸性条件下で構造が崩壊することが判明した。そのため、酸性条件下でも構造を維持した MFI 型ゼオライト及びヨウ化メチルの吸着に実績のある FAU 型ゼオライトを新たに主対象として検討を行った。

(2) 平成 28 年度研究成果

X 型、Y 型、MFI 型並びに MTW 型のゼオライトを対象として異なる結晶サイズを有するゼオライトの合成を本年度に導入した水熱合成装置を用いて実施した。各ゼオライトに対し、結晶サイズの異なるゼオライト合成 (ナノサイズ～マクロサイズ) ができることを確認した。また、通常の合成法に比べ疎水化の進んだ MTW 型ゼオライトを合成した。更に、Y 型ゼオライトを対象にゼオライト膜合成の予備検討を実施し、アルミナのフィルタ上に Y 型ゼオライトの結晶が合成できていることを確認した。

(3) 平成 29 年度研究成果

イオン交換ゼオライトを用いて希ガス (キセノン、クリプトン) の吸着等温線を測定し、分離剤の探索を行った。また、Ag-FAU を積層させた膜によりキセノン吸着を行い、Ag-FAU 粒子サイズによらずキセノン吸着速度は同等であることが示唆される結果を得た。

4.2.2 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定

(1) 平成27年度研究成果

既有的拡散係数測定装置を用いて、定容法により希ガス、C1からC3炭化水素及びヨウ化メチルの拡散係数を実測した。ゼオライトとして、A型、Ag/A型に加えて他の候補ゼオライトであるMFIなどの試料を用いた。測定により、ゼオライト細孔内を拡散する分子一つの移動度と、ゼオライト細孔内とゼオライトが接する気相中の濃度比を測定することで、細孔内拡散の機構解析を解明した。

既有的拡散係数測定装置を用いて、定容法により希ガス、C1からC3炭化水素及びヨウ化メチルの拡散係数を実測した。ゼオライトとして、A型、Ag/A型に加えて他の候補ゼオライトであるMFIなどの試料を用いることを予定していたが、前記4.2.1-1に記載の理由から、A型、Ag/A型での検討が不可能となったため、他の候補ゼオライトであるMFI型ゼオライトの試料を用いた。測定により、ゼオライト細孔内を拡散する分子一つの移動度と、ゼオライト細孔内とゼオライトが接する気相中の濃度比を測定することで、細孔内拡散の機構解析を行い、解明した。

前記4.2.1(1)に記載のように、A型ゼオライトはヨウ化メチルの選択的吸着が可能であると想定されたことから、A型、Ag/A型を主な対象としていた。しかし、これらのゼオライトでは前記4.2.1(1)に記載した通り、ヨウ化メチルの吸着過程でゼオライトの崩壊が起こることが分かった。そこで他の候補ゼオライトであるMFI型ゼオライトを主な対象として検討を行った。

(2) 平成 28 年度研究成果

MFI 型、X 型、Y 型ゼオライト並びに Ag イオン交換した X 型ゼオライトを用い、定容法によりヨウ化メチルの拡散係数測定を実施し、X 型、Y 型ゼオライトに比べ MFI 型ゼオライト結晶内のヨウ化メチル拡散が速いことを明らかにした。また、Ag イオン交換することで拡散が遅くなることを確認した。更に、C1-C3 炭化水素の測定を 150℃で実施し、ヨウ化メチルに比べゼオライト結晶内拡散が極めて速く吸着剤設計においてこれらの影響は無視し得るほど小さいことを明らかにした。得られた吸着・拡散の結果から拡散機構を検討した。

(3) 平成 29 年度研究成果

Ag イオン交換した FAU 型ゼオライトを用い、定容法によりヨウ化メチルの拡散係数測定を実施した。Na 型から Ag 型へイオン交換した FAU 型ゼオライトでは、イオン交換率が上がるにつれてヨウ化メチル吸着量が増加する一方で結晶内の拡散係数はほぼ等しいことが分かった。吸着剤設計に用いる有効拡散係数は吸着サイト数の増加に伴い大きくなることから、吸着サイトを多くすることは拡散の観点からも有効であると示唆された。また、粒子径の異なる Ag-FAU、Ag-MFI を積層させたゼオライト膜合成を行い、ヨウ化メチル吸着特性評価を行った。

4.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

4.3.1 バッチ式吸着実験装置の製作

(1) 平成27年度研究成果

銀ゼオライト吸着剤を用いる高除染性空気浄化システムは一年を通していろいろな環境の下で使用されるため、銀ゼオライトの放射性核種吸着能を評価するには、流量、温度、湿度等の幅広い条件下において吸着実験を行う必要があり、流量、温度、湿度が調整可能な実験装置を製作した。

(2) 平成 28 年度研究成果

平成 27 年度に作製した流量、温度、湿度等の幅広い条件下における吸着実験装置を用いてヨウ化メチルに対する銀ゼオライト吸着剤の吸着性能評価を行った。更に、大流量かつ水蒸気を導入した系で実験を行うため、金属配管を用いた装置を作製し、試験を行った。

4.3.2 ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測

(1) 平成 27 年度研究成果

本実験では主要な放射性核種として ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルを用いた。これは Na^{125}I と CH_3I を所定時間攪拌させることによる同位体交換反応により調製した。放射能測定は NaI シンチレーションカウンターを用い、試料調製のための最適な攪拌時間を評価した。

(2) 平成 28 年度研究成果

銀ゼオライトからのヨウ素脱離特性を評価するために、既存の熱質量・示差熱同時測定 (TG-DTA) に質量分析装置である Mass アタッチメントを取り付けた TG-MS の動作確認を行い、より詳細なヨウ素の脱離特性評価を可能とした。

(3) 平成 29 年度研究成果

ヨウ化メチルを吸着した銀ゼオライトを TG/DTA（熱質量分析／示差熱分析）及び平成 28 年度に動作確認を行った MS（質量分析）を行うことで、銀ゼオライトの熱的安定性やヨウ素の脱離挙動について調べ、銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性評価を行い、高除染性空気浄化システムの性能を評価した。

4.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

4.4.1 平成 27 年度研究成果

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントに捕捉される多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラムを開発するにあたって、その基本構想を検討した。また、フィルターの保管・処分方法についての検討の一環として、ウクライナのチェルノブイリ原子力発電所 4 号炉の廃棄物処分の調査を行い、その知見に基づいて基礎的な検討を実施した。

4.4.2 平成 28 年度研究成果

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントに捕捉される多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラムの開発を行い、試解析を行った。

4.4.3 平成 29 年度研究成果

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントに捕捉される多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラムの開発を完了した。また、フィルターの保管・処分方法の検討のため、放射線源及びガンマ線遮蔽の数値計算を実施した。

4.5 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めると共に、研究実施計画等を協議するため委員会を開催した。また、国際廃炉研究開発機構（IRID）等が開催する会議やワークショップに参加し、広く意見を聴きながら研究を推進した。また、寺井 P0 殿ご指示に対応し、エンドユーザである東京電力 HD に対する技術開発を統括する IRID にてメーカーも参加する形で本研究の成果の一部を紹介し、意見交換を実施し、研究を推進した。

5. 特筆すべき成果

平成 30 年 1 月 8 日～12 日に米国 Fort Lauderdale にて開催された IAEA と OECD/NEA が共同で運営する職業被曝情報システム（ISOE: Information System on Occupational Exposure）の北米シンポジウムにて招待講演を行った。講演に先立ち、Outstanding Professor of the Year Award を受賞した。フィルターベントの開発により事故時の被曝低減と安全性を向上させたこと、その技術を福島第一原子力発電所の廃炉作業の被曝低減技術に結び付け空気浄化システムを開発したことなどが表彰理由である。関係各位のご支援に深謝する次第である。

1. はじめに

福島第一原子力発電所の廃炉においては、デブリ取り出し工法として、ダイヤモンドワイヤーカッター、ホールソーや掘削機などの機械的切断に加え、レーザーやプラズマなどの加熱切断も検討されている。このような原子炉の廃炉作業及びデブリ取り出しは、熔融固化した燃料デブリの機械加工に伴う切断屑や粉塵、レーザー加熱切断時に発生する気体や液体、固体の多核種の放射性物質の混合流体に対してフレキシブルに対応できる多核種の空気浄化システムが必要である。

本研究では、多核種高除染性空気浄化システムの開発に必要な基礎研究を実施した。

特に、多核種の濾過・吸着技術の高性能化に研究資源を集中し、湿式フィルターや乾式のメタルファイバーフィルター、銀ゼオライトなどの各種フィルターのフィルター分離メカニズムの解明や多様な組み合わせによるフィルターの総合性能の向上を目指した基礎研究に取り組んだ。

また、濾過・吸着したフィルターエレメントやゼオライトにトラップされた多核種の放射性物質の放射能評価の基礎研究として、多核種解析評価プログラムを整備した。

1.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

廃炉作業を実施するためには、作業者の被曝低減と敷地外の放射性物質の漏洩防止を徹底しなくてはならない。格納容器の開閉やデブリの切断加工に伴い発生する放射性物質を吸引し、排気中に含まれる放射性物質を除去する高除染性空気浄化システムの開発を研究目標とした。

そこで、最も除染係数 DF を上げることが困難とされるヒュームに対する対策として、湿式フィルターとメタルファイバーフィルター、銀ゼオライトフィルターの3段構成とし、フィルター機能の多様な組み合わせによるエアロゾル及びヒュームの吸着特性試験を実施する機能を有する高除染性空気浄化システムを設置することになる。更にスクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集して粒子径を大きくする機能を装置に追加することで、多核種対応でかつ高除染性を達成した。更にこれらの試験データを用いて試験評価解析モデルを作成して、フィルターの総合除染係数とフィルターの圧力損失を予測可能とし、システムの基本コンセプトをまとめ、設計の最適化を可能とした。

1.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

ゼオライトの吸着サイトのほとんどがゼオライト結晶内に存在しており、分子はゼオライトの細孔内を拡散して吸着サイトに到達する。そのため、ゼオライト結晶内の拡散速度が吸着速度に強く影響する。ゼオライト結晶内の拡散速度は拡散係数と拡散距離の二乗の比で表される。よって、ゼオライト内の拡散速度制御は多核種分離吸着剤設計の上で重要であり、本研究項目においてはゼオライト内拡散係数測定と拡散距離制御の観点からのゼオライト結晶径制御、ゼオライト膜の合成とヨウ化メチル吸着特性評価に取り組んだ。また、イオン交換ゼオライトを用いた希ガス吸着特性評価についても実施した。

1.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

高除染性空気浄化システムは一年を通しての使用が想定されるため、幅広い温度、湿度条件下においても性能が保障される必要があるため、流量、温度、湿度が調製可能な実験装置を製作し、放射性有機ヨウ素を用いた吸着実験を行う。放射性有機ヨウ素は調製を行い、調製した

放射性有機ヨウ素と非放射性の有機ヨウ素を用いて吸着実験を行い、流量、温度、湿度が吸着性能に与える影響について評価する。また、TG-MS を用いて銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性について評価を行なった。

1.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

空気浄化システムの開発及びその運用を考える際には、廃炉作業における放射性核種の挙動を把握し、最終的に空気浄化システムのフィルター部に捕捉される放射性核種のインベントリを評価する必要がある。そのためには、福島第一原子力発電所の事故発生直前の核燃料中の放射性核種のインベントリ、及び事故発生後の放射性核種の放射壊変による核変換とプラント中の移行、更には廃炉作業中の放射性核種の空気浄化システムへの移行を、可能な限り正確に把握する必要がある。以上の観点から、福島第一原子力発電所の各プラント部位における放射性核種のインベントリを簡易的に評価するコードシステムを開発した。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画を表 2.1-1 に示す。

表 2.1-1 年度別全体計画

年度 項目	平成 27 年度	平成 28 年度	平成 29 年度
(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究			
①被曝低減技術のコンセプトの検討	基本コンセプトの立案	ヒュームの吸着性能向上検討	
②吸着実験と評価解析モデルの作成	実験装置の製造条件の使用検討と発注	実用概念の創出 エアロゾル・ヒューム吸着特性試験	システム総合検討 湿式・乾式・吸着性能総合試験
(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究			
①異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成	結晶合成検討	異なる結晶サイズのゼオライト合成	希ガスフィルター試験・評価
②銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定	予備測定	フィルター設計用拡散データ取得	炭化水素フィルター設計法確立
(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（東北大学）			
①バッチ式吸着実験装置の製作	装置製作・予備試験	吸着性能試験・評価	
② ¹²⁵ I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測	調製と予備計測	TG-DTA 装置の動作確認	銀ゼオライトからのヨウ素脱離特性評価
(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究	解析手法の検討	多核種放射能評価解析コードの作成	実用化検討
(5) 研究推進	検討会の開催 まとめ・評価	検討会の開催 まとめ・評価	検討会の開催 まとめ・評価

2.2 各年度計画

本研究は、作業被曝低減化や環境への飛散を防止することを目的とした多核種高除染性空気浄化システムの開発に必要な基礎研究を実施することである。

以下に各年度の研究計画の概要を記す。

2.2.1 平成 27 年度

(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

① 被曝低減技術の基本コンセプトの立案

北海道大学にて開発した「ゼオライトを用いたヨウ素・セシウム高除染性フィルターベントシステム」の湿式フィルターと、メタルファイバーフィルター、高除染性銀ゼオライト AgX などを組み合わせた格納容器内の空気浄化システムについて検討する^{(1), (2)}。

特に、最も除染係数 DF を上げることが困難とされる、ヒュームに対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入により表面凝縮させるフィルターなどの基礎実験を実施し、除染係数 DF の向上に向けた研究の糸口を見いだす。

② 実験装置の仕様検討と実験装置発注

①にて実施したコンセプト検討に基づき実験装置の仕様検討と実験装置発注を実施する。特に、湿式フィルターについてはスクラビングノズルの形状パラメータ試験と、メタルファイバーフィルターについては、ファイバー径やファイバーの充填率を変えることが可能な装置とし、エアロゾルやヒュームの除去性能を向上させる基礎試験を可能とする。

(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成

ゼオライト細孔内へ迅速に拡散物質を吸着させる上で、結晶サイズをナノレベルで合成する必要があるため、北海道大学にて開発した「逆ミセルを利用したゼオライト合成法」を応用して、銀ゼオライトの担体となるゼオライト合成を実施する。A 型を主な対象としたが、MFI 型等他のゼオライトについてもナノサイズのゼオライト結晶合成の条件を明らかにする。

② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定

既存の拡散係数測定装置を用いて、定容法により希ガス、C1 から C3 炭化水素及びヨウ化メチルの拡散係数を実測する。ゼオライトとして、A 型、Ag/A 型に加えて他の候補ゼオライトである MFI などの試料を用いる。測定により、ゼオライト細孔内を拡散する分子一つの移動度と、ゼオライト細孔内とゼオライトが接する気相中の濃度比を測定することで、細孔内拡散の機構解析を解明する。

(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

① バッチ式吸着実験装置の製作

銀ゼオライト吸着剤を用いる高除染性空気浄化システムは一年を通していろいろな環境の下で使用されるため、銀ゼオライトの放射性核種吸着能を評価するには、流量、温度、湿度等の幅広い条件下において吸着実験を行う必要があり、流量、温度、湿度が調

整可能な実験装置を製作する。

② ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測

本実験では主要な放射性核種として ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルを用いる。これは Na^{125}I と CH_3I を所定時間攪拌させることによる同位体交換反応により調製する。放射能測定は NaI シンチレーションカウンターを用い、試料調製のための最適な攪拌時間を評価する。

(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントにトラップされた多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラム開発とフィルターの保管・処分方法についての検討を行う。平成 27 年度は特にフィルターエレメントにトラップされた多核種放射性物質の放射能の評価解析プログラムの基本構想と解析システムのハードウェアを検討する。

なお、フィルターエレメントの保管・処分については、ウクライナのチェルノブイリ原子力発電所 4 号炉の廃棄物処分の調査結果を踏まえて基礎的な検討を実施する。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めると共に、研究実施計画等を協議するため委員会を開催する。また、国立研究開発法人科学技術振興機構や原子力損害賠償・廃炉等支援機構が主催する会議やワークショップに参加し、広く意見を聴きながら研究を推進する。

2.2.2 平成 28 年度

(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

① 被曝低減技術のコンセプトの検討

平成27年度に設置した「ゼオライトを用いた高除染性フィルターベントシステム」の湿式フィルターと、メタルファイバーフィルター、高除染性銀ゼオライトAgXなどを組み合わせた空気浄化システムの基本コンセプトのブラッシュアップを実施する。

特に、最も除染係数 DF を上げることが困難とされる、ヒュームに対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集させる手法について検討し、ナノサイズエアロゾルの除染係数 DF の向上の糸口を見いだす。

② 吸着実験と評価解析モデルの作成

①にて実施したコンセプト検討に基づき平成 27 年度に導入したメタルファイバー試験装置を用いて、高除染フィルター実験を実施する。加えて、この実験に対応した実験評価解析モデルを作成する。

次に導入済みのメタルファイバー試験装置に、ナノサイズのヒュームを蒸気凝集により粒子径を大きくする実験装置（ヒューム凝集装置）を追加設置する。ヒューム凝集装置を追加設置したメタルファイバー試験装置の前段に接続された湿式フィルターについてはスクラビングノズルの形状パラメータを、またメタルファイバーフィルターについてはファイバー径やファイバーの充填率を変えることにより、フィルター機能の多様な

組み合わせによるエアロゾル及びヒュームの吸着特性実験を行う。更にこれらの実験データを用いて実験評価解析モデルを改良する。

(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成

ゼオライト細孔内へ迅速に拡散物質を吸着させる上で、結晶サイズをナノレベルで合成する必要がある、ナノサイズ積層膜合成のために、ゼオライトの核発生速度と結晶成長速度を制御し、銀ゼオライトの担体となる各種サイズのゼオライト合成を実施する。平成 27 年度に検討した X 型に加え、Y 型、MFI 型等、いくつかのゼオライトについてナノサイズからマクロサイズのゼオライト結晶合成実験により、合成条件を検討する。また、ナノサイズゼオライトを積層させたゼオライト膜合成に関する予備検討を行う。

② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定

既有の吸着測定装置及び拡散係数測定装置を用いて、定容法によりヨウ化メチルを中心に C1 から C3 炭化水素の吸着特性評価並びに拡散係数を実測する。平成 27 年度において予備測定した MFI 型ゼオライトに加え、X 型、Ag/X 型及び①で合成する他の候補ゼオライト（例えば Y 型ゼオライト）を用いる。測定により、ゼオライト細孔内を拡散する分子一つの移動度と、ゼオライト細孔内とゼオライトが接する気相中の濃度比を測定することで、細孔内拡散の機構解析を解明する。得られる拡散の情報をゼオライト膜の設計にフィードバックする。

(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

① バッチ式吸着実験装置の製作

銀ゼオライト吸着剤を用いる高除染性空気浄化システムは一年を通していろいろな環境の下で使用されることから、流量、温度、湿度等の幅広い条件下における吸着実験装置を製作し、ヨウ化メチルに対する銀ゼオライト吸着剤の吸着性能評価を行う。

② ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測

銀ゼオライトからのヨウ素脱離特性を評価するために、既存の示差熱 - 熱質量 同時測定 (TG-DTA) に質量分析装置である Mass アタッチメントを取り付けた TG-MS の動作確認を行い、より詳細なヨウ素の脱離特性評価を可能とする。

(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントにトラップされた多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラム開発と試解析を行う。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めると共に、研究実施計画等を協議するため委員会を開催する。また、原子力損害賠償・廃炉等支援機構等が開催するワークショップ、国際会議などに参加し、広く意見を聴きながら研究を推進する。

2.2.3 平成 29 年度

(1) 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

① 被曝低減技術の基本コンセプトの検討

メタルファイバーフィルターに加えて湿式フィルターと高除染性銀ゼオライト AgX などを組み合わせた空気浄化システムの基本コンセプトの、実機での運用方法も含めたブラッシュアップを実施する。特に、最も除染係数 DF を上げることが困難とされるヒュームに対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集させる手法も加えて、ナノサイズエアロゾルについても捕集性能を向上させる。またメーカーのニーズ把握や製品化のために多核種高除染性空気浄化システムの総合検討を実施する⁽³⁾⁻⁽⁶⁾。

② 吸着実験と評価解析モデルの作成

①のコンセプト検討に基づき、実機での運用を想定した高除染性空気浄化システムのフィルターの吸着（捕集）実験を実施する。メタルファイバー試験装置にナノサイズのヒュームを蒸気凝集により粒子径を大きくする実験装置を併用し、前段の湿式フィルターについてスクラビングノズルの形状をパラメータとして、多様な組み合わせによるエアロゾル及びヒュームの捕集性能総合試験を実施する。得られた捕集実験データを分析して、評価解析モデルを作成し、フィルターの総合除染係数とフィルターの圧力損失を予測可能とする。

(2) 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

① 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成

平成 28 年度まで検討した結晶サイズを変えた Ag イオン交換ゼオライトを合成し、希ガスの吸着速度を測定することで、最適な結晶サイズを明らかにする。

② 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定

平成 28 年度までに検討したゼオライトナノ結晶を積層させたゼオライト膜フィルターの合成とそのヨウ化メチル吸着特性評価を実施する。また、ゼオライトへのヨウ化メチル吸着・拡散の情報を用いてフィルターの設計指針を得る。

(3) 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

① ¹²⁵I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測

ヨウ化メチルを吸着した銀ゼオライトを TG/DTA（熱質量分析／示差熱分析）及び平成 28 年度に動作確認を行った MS（質量分析）を行うことで、銀ゼオライトの熱的安定性やヨウ素の脱離挙動について調べ、銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性評価を行い、高除染性空気浄化システムの性能を評価する。

(4) 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントにトラップされた多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラムの開発を完了すると共に、サンプル計算用の入力データを整備する。フィルターの保管・処分方法の検討のため、放射線源と遮蔽計算を実

施する。

(5) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めると共に、研究実施計画等を協議するため委員会を開催する。また、原子力損害賠償・廃炉等支援機構等が開催する会議やワークショップに参加し、実システムへの反映に関してメーカー等のニーズも含め、広く意見を聴きながら研究を推進する。

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究 (H27～H29)

3.1.1 被曝低減技術の基本コンセプトの立案 (H27)

最も除染係数 (DF: Decontamination Factor) を上げることが困難とされる、ヒューム (プラズマカッターやレーザー切断装置などで発生するナノサイズエアロゾル) に対する対策として、スクラビングノズルを改良した湿式フィルターとメタルファイバーフィルター、銀ゼオライトフィルターの3段構成とし、多核種対応でかつ高除染性を達成する。

レーザー加工では、放射性ヒュームが1日で最大1kgのオーダーに達するとのことで、メタルファイバーフィルターを1日に何回も交換する必要があることから、前段にスクラビングノズルとスクラビングプールを用いた湿式フィルターを設置し、発生した汚染水を福島第一原子力発電所の敷地内に既に設置されているサリー、キュリオン、ALPSといった多核種の水浄化システムを活用することとした。これにより、既存の設備の有効活用と多核種空気浄化システムとしての導入コストの低減、メタルファイバーフィルターの交換頻度の低減が見込まれる。

3.1.2 実験装置の仕様検討と実験装置発注 (H27)

フィルターの放射性物質の捕捉性能を評価するために、フィルター性能試験装置に関するJIS規格B9908、Z4812、B9927を参考に作成した。長さ600mmのテーパ管で粒子を均一に落下させている。金属ファイバーフィルターで捕集できなかった粒子の捕集には、デンソー社製のHEPAフィルターを用いている。HEPAフィルターとは直径1～10μm以下のガラス繊維であり、繊維の充填率は10%程度のものである。風速を測定するために送風機からの空気の流れを均一にする必要があるため、風上に風速計の直径の20倍の長さを取り、風下に風速計の10倍の長さをとった。研究室の過去の研究でファイバーフィルターが地面に対して垂直だと粒子が自重でフィルターの下部に集中する問題があり、また粒子を連続的に投入しなければ実機を模擬していないという指摘があった。そこで本研究では、ファイバーフィルターを水平に設置し、連続的に粉を投入するために砂時計を模擬した微粒子連続供給装置を設置した。フィルター部は200mm四方で厚さ30mmである。以上述べた高除染性空気浄化システム試験装置から仕様書を作成して、試験装置を北大の財務部調達課から調達ルールに基づいて発注を行った。

3.1.3 被曝低減技術のコンセプトの検討 (H28～H29)

湿式スクラビングフィルターとメタルファイバーフィルターを組み合わせ、更に高除染性銀ゼオライトAgXの技術による有機ヨウ素吸着フィルター等を組み合わせた、高除染性フィルターによる多核種空気浄化システムにより、原子炉建屋及び格納容器内の空気浄化システムへの適用を図るための基本コンセプトを完成させる。

特に、開発されたメタルファイバーフィルターと銀ゼオライトやHEPAフィルターを組み合わせ、多核種高除染性空気浄化システムの基本コンセプトを開発し、廃炉作業の被曝低減を推進する。

平成29年度には、福島第一原子力発電所の3号機、2号機で、溶融デブリが圧力容器下部を溶融貫通して、格納容器下部のペDESTAL部分に落下したと推定される調査結果をビデオ動画と共に公開した。そこで、溶融燃料が原子炉の下部に溶融して原子炉建屋下部に流下したチェルノブイリ原子力発電所4号機の溶融燃料の調査結果を基に、核種や化学的な形態などについての調査結果が得られている。事故前の炉内の燃料に蓄積されていた主な核種のウラン1g当たりの放射能の一覧であるが、セシウム(Cs)やセリウム(Ce)、ロジウム(Rh)が放射能としては多いことが分かる。

銀ゼオライトとメタルファイバーの除染係数が高いので、被曝低減と空気浄化システムの可搬性を向上させることに注力した。また、プラズマカッターやレーザ切断装置などで発生するナノエアロゾルに対する対策として、蒸気注入表面凝縮式ナノエアロゾルフィルターや湿式フィルターを通過するとヒュームが凝集して、比較的大きな結晶粒へと変化するため、得られた吸着実験データを分析して、評価解析モデルを作成し、フィルターシステムの総合除染係数とフィルターの圧力損失を予測可能とした。システム構成は、図3.1.3-1に示す通り、湿式フィルター＋乾式フィルター＋ヨウ素フィルター＋他の核種用の専用フィルター＋被曝線量評価システムという構成になった。本公募事業の成果を集大成したものである。

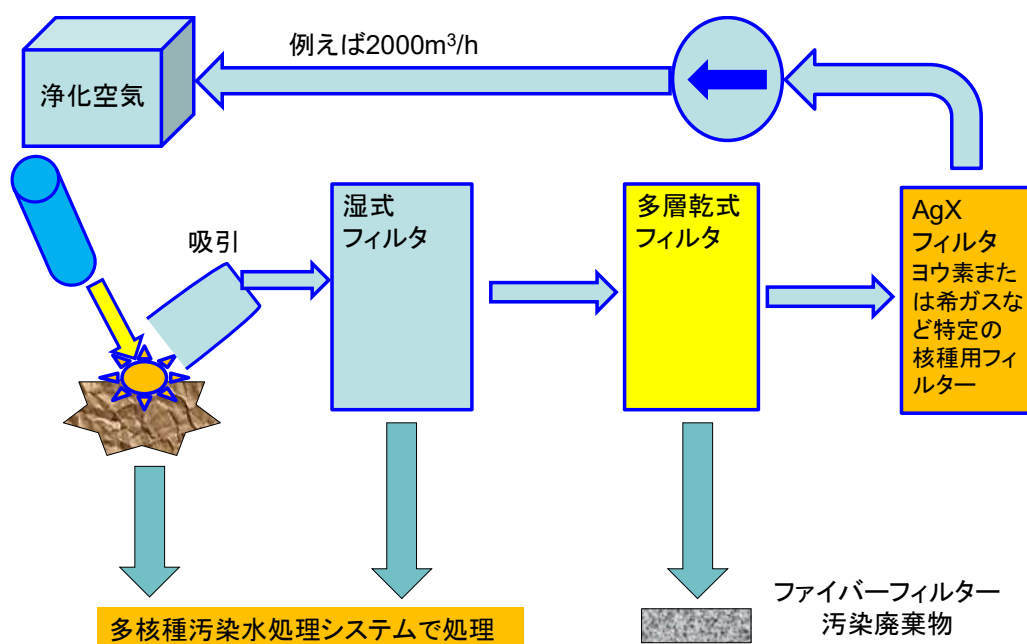


図 3.1.3-1 多核種高除染性空気浄化システムの基本コンセプト

さて、3.1.4 吸着実験と評価解析モデルに述べた成果を基に、実機の空気浄化システムの試設計を行う。平成30年3月29日に開催したIRID及び3メーカーでの技術検討会で、実機仕様についての意見交換をした結果、福島第一原子力発電所の廃炉作業時に必要な格納容器の負圧維持及び被曝防止のための空気浄化システムの定格必要空気流量は、おおむ

ね 2000m³/h あれば良いとのことであった。本事業で用いた空気浄化システムの試験装置では、供試フィルターの流路面積は、一辺 L_{FT}=約 20cm であり、フィルター流入の空気流速 U_{Fi} は、最大で約 2m/s、フィルターに粉体がトラップされてフィルター圧損が増加した場合、0.5m/s の範囲にあった。これを基に空気流量 Q を計算する。

実機のフィルターの一辺の長さ L_{FA}=1m とすると、L_{FA}/L_{FT}=5.0 であるので、

$$U_{Fi}=2.0\text{m/s のとき、} Q=2.0 \times L_{FA}^2 \times 3600 = 2 \times 1 \times 3600 = 7200\text{m}^3/\text{h}$$

$$U_{Fi}=0.5\text{m/s のとき、} Q=0.5 \times L_{FA}^2 \times 3600 = 2 \times 1 \times 3600 = 1800\text{m}^3/\text{h}$$

実機のフィルターの一辺の長さ L_{FA}=0.8m とすると、

$$U_{Fi}=0.5\text{m/s のとき、} Q=0.5 \times (0.8L_{FA})^2 \times 3600 = 2 \times 0.64 \times 3600 = 1152\text{m}^3/\text{h}$$

となる。1 系統で送風機が故障すると空気の供給流量がゼロとなって、安全上や被曝防止の観点から支障をきたすため、1000m³/h の系統を 2 系列用意し、並列運転を行うこととする。1152m³/h であれば、15%の余裕を持つ。フィルターを新品に交換した場合は、

$$U_{Fi}=2.0\text{m/s のとき、} Q=2.0 \times (0.8L_{FA})^2 \times 3600 = 2 \times 0.64 \times 3600 = 4608\text{m}^3/\text{h}$$

となるので、1 系列運転すれば十分である。なお、空気流量調整のためには、空気送風機（ブロワー）の電源はインバーターで可変にしておく必要がある。なお、フィルターの圧力損失は、試験結果より、最大で 12kPa 程度であることが確認されており、これ以上の圧力損失が生じていて更に運転を継続すると、この領域では、フィルターの目詰まりが急速に進んで、空気流量が急速に低下するため、運転を継続するメリットはない。

図 3.1.3-2 に示す多核種高除染性空気浄化システム試験装置のフィルターの 1 辺の長さが 20cm であったので、実機のフィルターの 1 辺の長さを 80cm とすると、L_{FA}/L_{FT}=4.0 となり、試験装置の整流ダクトの形状を相似とする場合、試験装置の 4 倍の大きさにすれば良い。全体のシステム構成は、図 3.1.3-3 に示すようになる。格納容器（PCV）内の汚染された空気を吸引して、PCV 内を負圧に維持すると共に、浄化した空気を原子炉建屋に供給する。システムで浄化した空気は線量を監視しながら大気へ放出する。

空気浄化試験装置の整流ダクトの高さは約 130cm であるので、130cm×4=510cm。高さ約 5m の装置となる。図 3.1.3-4 に多核種高除染性空気浄化システムの実機コンセプトを示す。湿式フィルターのスクラビングプールの内径は 4 倍とするが、高さ方向は重力支配であるので、飛沫が飛ばない十分な高さがあれば良く、高さ約 3.5m とした。図 3.1.3-5 に多核種高除染性空気浄化システムの実機 3D-CAD 図を示す。

表 3.1.3-1 実機廃炉作業用多核種高除染性空気浄化システムの仕様

空気流量 4600～1150m³/h 2 系列（インバータ制御）

フィルター圧損：max 12kPa

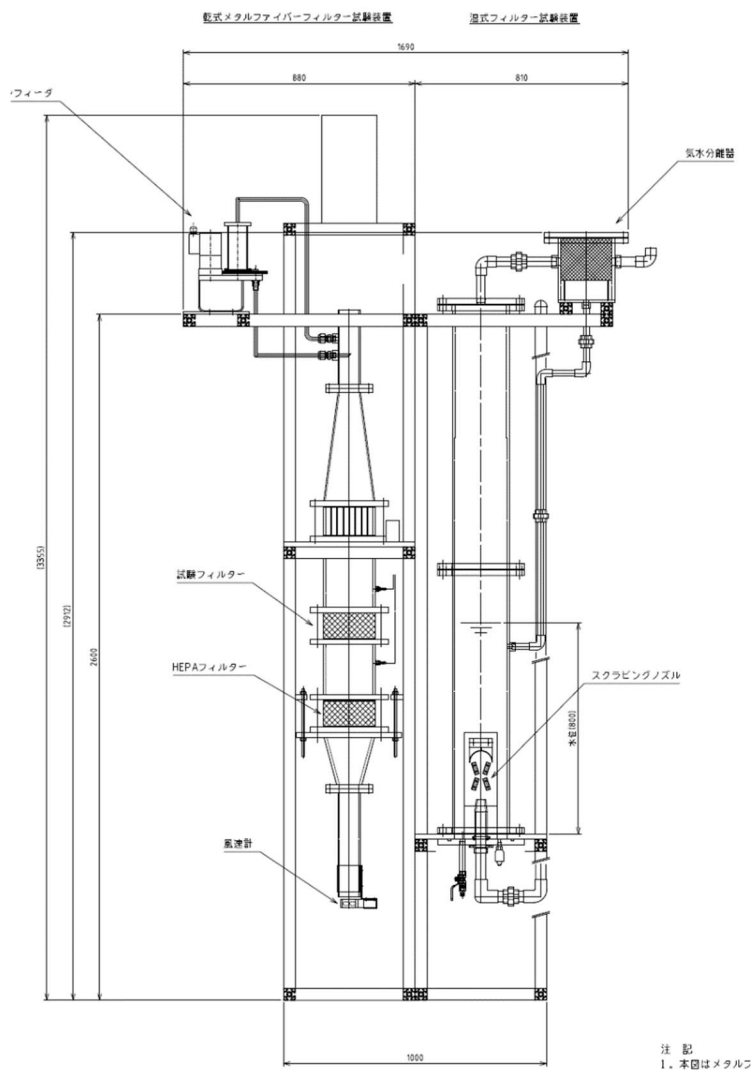
第 1 段フィルター：湿式スクラビング方式（汚染水は ALPS などへ移送）

第 2 段フィルター：乾式多層メタルファイバー方式（フィルター圧損：max 12kPa）

第 3 段フィルター：AgX 有機ヨウ素フィルターまたは、他の核種専用フィルター

湿式フィルターのスクラビングプールの汚染水は、サリーやALPSなどの多核種廃液処理システムに送って処理する。このための廃液移送ポンプが必要である。

なお、乾式フィルターシステムのメタルファイバーフィルターは、多層構造とし、用途や作業内容に応じて、ヨウ素フィルターや他の核種用の専用フィルターを設置する。運転中は、フィルターの圧損と空気流速を測定し、適正な範囲で運転されていることを確認しながら、フィルターの汚染レベルを被曝線量評価システムを用いて監視する。



注 記
1. 本図はメタルフ

図 3.1.3-2 多核種高除染性空気浄化システム試験装置の主要部

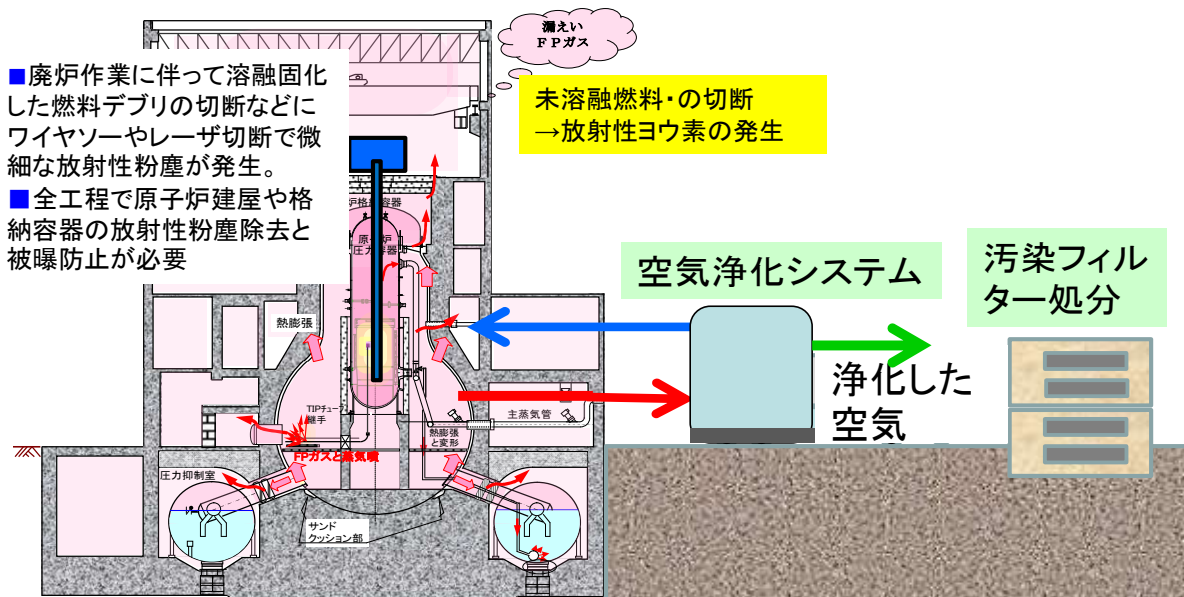


図 3.1.3-3 多核種高除染性空気浄化システムの全体のシステム構成

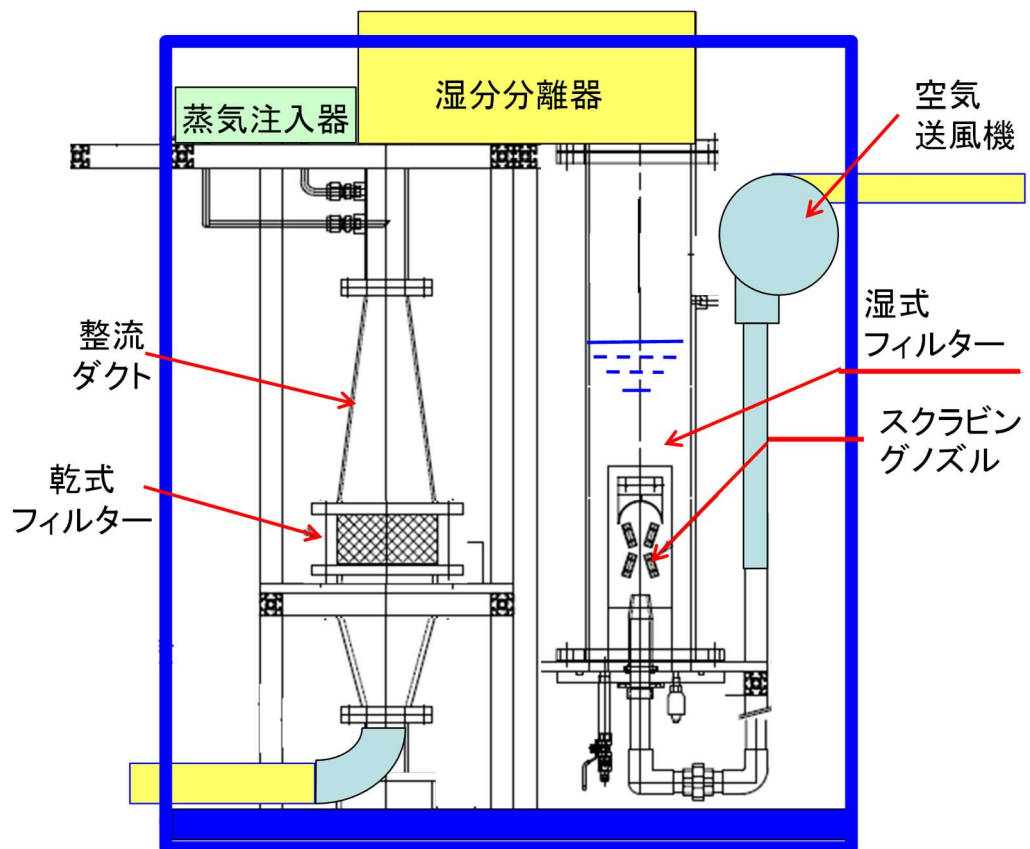


図 3. 1. 3-4 多核種高除染性空気浄化システムの実機コンセプト

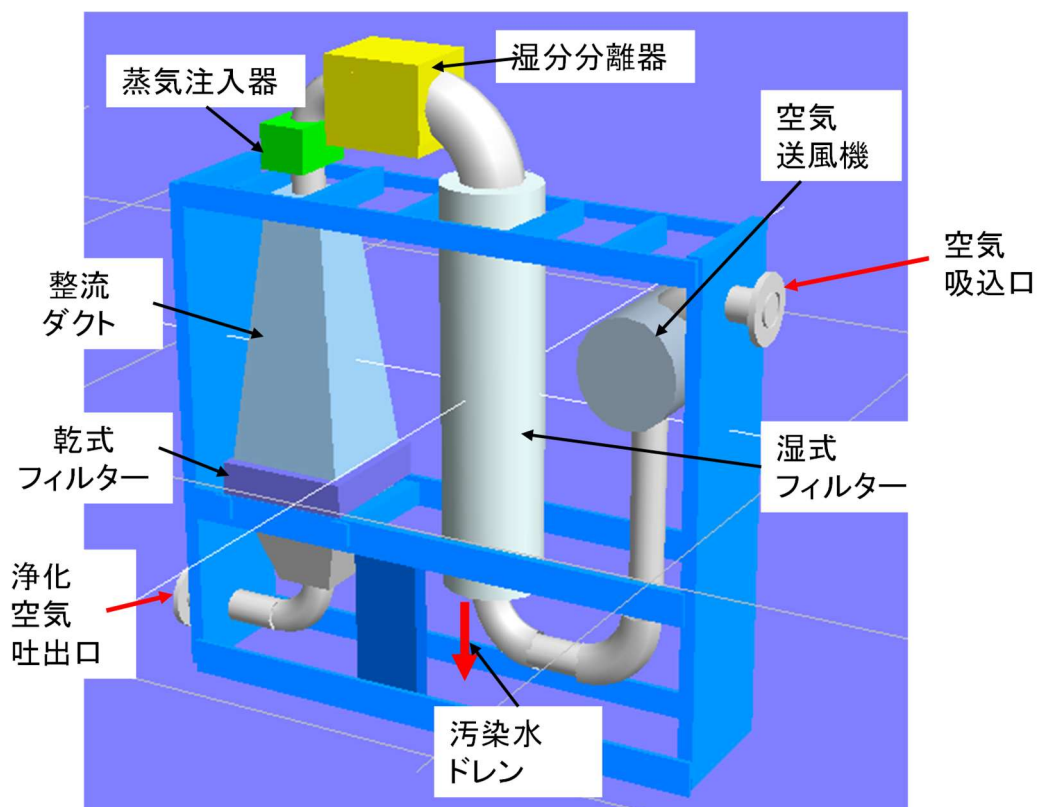


図 3. 1. 3-5 実機多核種高除染性空気浄化システムの 3D-CAD 図

3. 1. 4 吸着実験と評価解析モデルの作成 (H28～H29)

(1) 平成 28 年度の吸着実験と評価解析モデルの作成の成果の概要

平成 28 年度の研究においては、次の事象が明らかになった。

線径 30 μm と 50 μm のメタルファイバー(MF)を用いた場合、充填率を上げたほうが除染係数 (DF) も大きくなるが、70 μm の MF では、充填した際の空隙が大きくなるためこの現象は見られなかった。同様に綿状フィルター (線径 2 μm ～30 μm のステンレスフィルター) を用いた場合、充填率を上げるほどに吸着できる粒子の粒径に変化が生じていた。

電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) を用いて、模擬粒子の測定と粒径分布の解析を行ったところ、硫酸バリウムは図 3. 1. 4-1 のように原子力発電所から放出されるナノサイズの放射性物質の模擬物質として適していることを確認した。また、粒径分布の解析により特定の粒径分布での DF の特性を得た。

最終的に上記の分析結果から、充填率が高く線径が細くなるほど DF が大きくなることを確認できた。また、多層構造の複合フィルターを作成する際には線径 30～70 μm のメタルファイバーを入りに設置し、出口側に最も線径の細い 2 μm の綿状フィルターを用いることで、目詰まりしづらい高除染性のフィルターを作成することができる。図 3. 1. 4-2 に多層フィルターの概念図を示す。

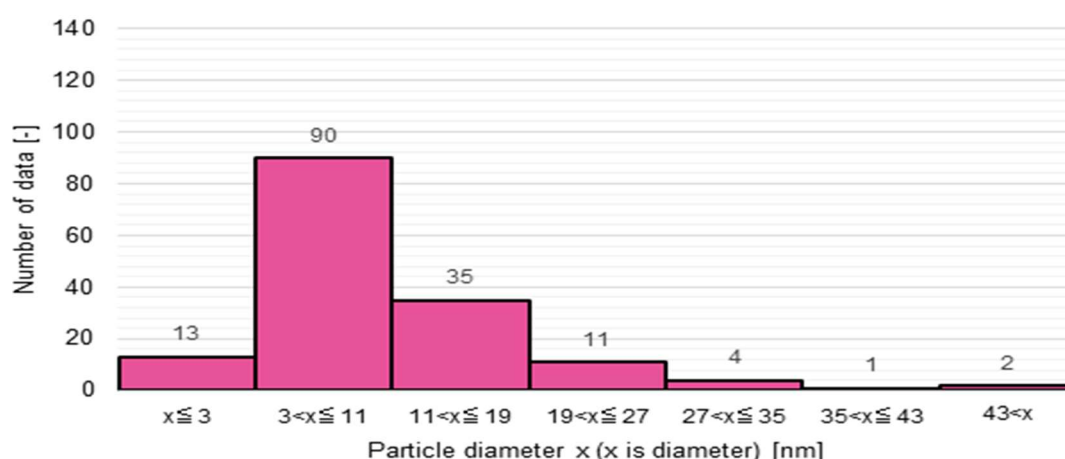


図 3. 1. 4-1 模擬粒子の硫酸バリウムの粒径分布

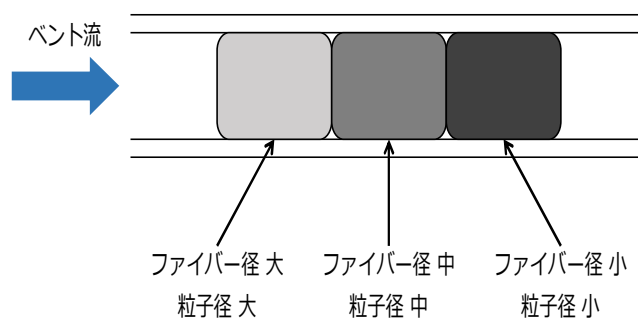


図 3. 1. 4-2 多層フィルターの概念図

これにより、メタルファイバー（MF）を用いたフィルターを作成した際の DF と充填率との関係や、粒径分布を電子顕微鏡で観察することで複合フィルターの性能を予測することが可能となった。

(2) 平成 29 年度の吸着実験の実施項目と評価解析モデルの改良

平成 29 年度は綿状フィルター(WF)に関するデータに関してパラメータ実験を行い、最適なフィルターを組み合わせて、複合フィルターによる高性能フィルターの開発を行うこととした。そこで本研究では、綿状フィルターと複合フィルターの性能試験を実施すると共に、実験データに基づいた複合フィルターの性能予測を行い、乾式フィルターの高性能化を図り、目的とする高除染性フィルターの開発に結びつけることとし、以下の 5 つの項目を実施した。

- ① 綿状フィルター（WF）の高性能化に必要な実験データの取得
- ② 電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM)を用いた粒径の観測と粒径分布図の作成
- ③ 実験データを元にした複合フィルターの作成とその DF の予測値と実測値の比較
- ④ 湿式と乾式乾式フィルターシステムの複合フィルターによる実験データの取得
- ⑤ 得られたデータを用いた乾式フィルターシステムの高性能化

綿状フィルターと焼結フィルターを対象として、ファイバー径、投入枚数、充填率をパラメータとして、(3.1.4-1)式で表される除染係数（以後 DF とする）と式 (3.1.4-2) で表される損失係数の評価式を定義した。

$$DF = \frac{\text{投入した粒子質量}}{\text{フィルターを通過した粒子質量}} \quad (3.1.4-1)$$

$$\zeta = \frac{2\Delta P}{\rho u_{Fi}^2} \quad (3.1.4-2)$$

フィルターの性能を表す指標として、除染係数（DF）が一般的に用いられている。しかし、高性能フィルターの場合、出口に全く汚染物質が出ない場合があり、その場合、DF はゼロ割により無限大となる。先行研究では、汚染物質の模擬物質として、硫酸バリウムを用いた。この硫酸バリウムの粒径分布を測定すると 50nm から 0.1 mm の広範囲にわたり、粒径ごとに DF を求めるとゼロ割が多発して、フィルターの性能予測計算に支障を来すことが分かった。

本研究では以上の通り、多層フィルターの性能予測では(3.1.4-3)式に示した粒径分布ごとの吸着係数 CF_i を用いた。 m_{Ii} は、粒径範囲 i におけるフィルターに投入される粒子で、 m_{Oi} はフィルターを通過した粒子であり、(3.1.4-4)式と(3.1.4-5)式が成立する。それを(3.1.4-6)式を用いて乗じることでフィルターを通過する模擬物質の質量 M_0 を計算し、最終的に(3.1.4-1)式の DF を求めることとした。これにより、計算途中でのゼロ割を回避でき、最終性能は、除染係数 DF（Decontamination Factor）の整数値の大小で評価する。

$$CF_i = (m_{Oi}/m_{Ii}) \quad (3.1.4-3)$$

$$M_I = \sum m_{Ii} \quad (3.1.4-4)$$

$$M_O = \sum m_{Oi} \quad (3.1.4-5)$$

$$M_o = \sum(CF_i * m_{li}) \quad (3.1.4-6)$$

なお、本研究でのメタルファイバーの吸着は、AgX のような化学吸着や静電気による吸着 (Absorption) ではなく、ファイバーにトラップされる、あるいは捕獲される (Capture) という物理概念を表している。あとで述べる電子顕微鏡による模擬物質の吸着 Absorption というより Capture と呼ぶにふさわしい。本研究では、一層のフィルターの粒径分布ごとの吸着率の関数 CF_i を求め、得られた結果から多層にした複合フィルターの性能を予測し、フィルターの目詰まりのしにくさや圧力損失が過度に大きくならない範囲で、最適な組み合わせの複合フィルターを用いるものとした。なお、得られた最適フィルターを用いて、湿式フィルターを前段とする直列接続の湿乾複合フィルターの総合試験を実施した。以下、順次、本研究の成果を述べる。

(3) 吸着実験

① 吸着実験装置

図 3.1.4-3 に示す吸着実験装置を用いて除染係数 DF の測定を行った。各種フィルターとかかれた部分に綿状フィルターを充填し、測定を行った。図 3.1.4-4 の送風機から風を送り、P01 で送風機からの供給圧力、P02 でフィルター入り口圧力、P04 でフィルター出口圧力、DP02 でフィルター間差圧を測定した。P00 では、風速計（柴田科学(株)製、ISA-69）を用いて風速と温度を測定した。

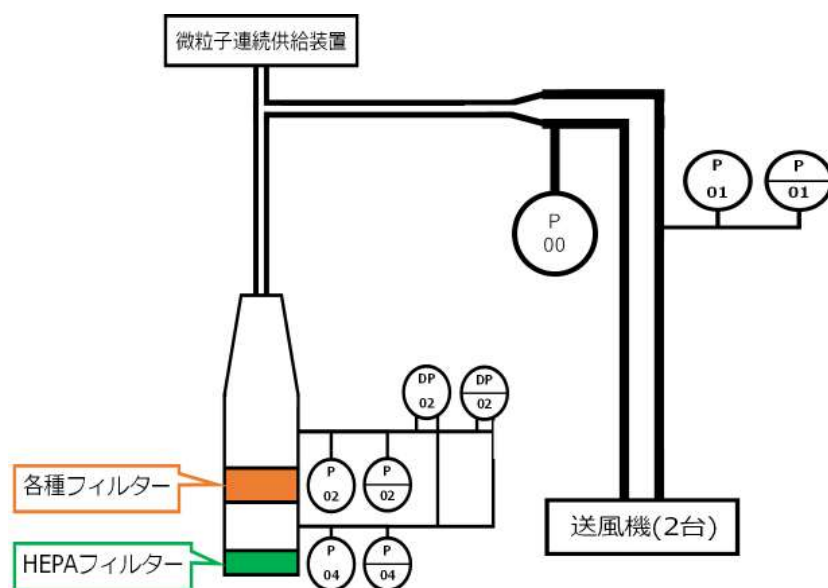


図 3.1.4-3 乾式フィルターシステムの実験計装線図

表 3.1.4-1 実験に使用した各センサーの規格一覧表

測定箇所	名称	製造者	使用センサー	センサーの定格	定格出力
P01	供給圧力	CKD	PPX-R01NH6M	-100~+100kPa	1~5V
P02	フィルター入り口圧力				
P04	フィルター出口圧力				
DP02	フィルター間の差圧	長野計器	GC62	0~20kPa	1~5V(4~20mA)
P00	風速	柴田株式会社	ISA-69	0.05~30.0m/s	0~1V
	温度			0.0~60.0℃	

そのときに用いた計器は表 3.1.4-1 の通りである。得られたデータはデータロガー (GRAPHTEC 製、midi LOGGER GL220) に転送され、記録を取得した。図 3.1.4-5 の微粒子連続供給装置内部に硫酸バリウムを投入することで、一定の間隔で粒子を下部へと投下した。粒子投下前後での HEPA フィルターの質量を測定することで、フィルターを通過し HEPA フィルター上に堆積した粒子の質量を算出した。



図 3.1.4-4 実験に使用した送風機



図 3.1.4-5 微粒子連続供給装置

② 吸着実験に用いたフィルターとフィルター収納容器

実験で用いる綿状フィルターをおよそ 8cm 四方に切断したものを図 3.1.4-6～図 3.1.4-9 に示す。綿状フィルターは日本精線製であり、材質は SUS316L で密度は 7.98g/cm^3 である。また綿状フィルター以外にも、図 3.1.4-10 のような、焼結フィルターと呼ばれる日本精線製の、SUS316L を焼結させることで高密度に圧縮したフィルターも実験に用いた。2 μm の線径のものを用いた焼結フィルターは体積充填率 38.5%に、20 μm の線径のものは体積充填率 17.9%まで圧縮されていた。以下、綿状フィルターを WF、焼結フィルターを NF として表し、線径 2 μm の綿状フィルターは WF-2 のように表すこととする。また、フィルターを挿入する装着器具を図 3.1.4-11 に示した。



図 3.1.4-6 30 μm 綿状フィルター



図 3.1.4-7 12 μm 綿状フィルター



図 3.1.4-8 8 μ m 綿状フィルター



図 3.1.4-9 2 μ m 綿状フィルター

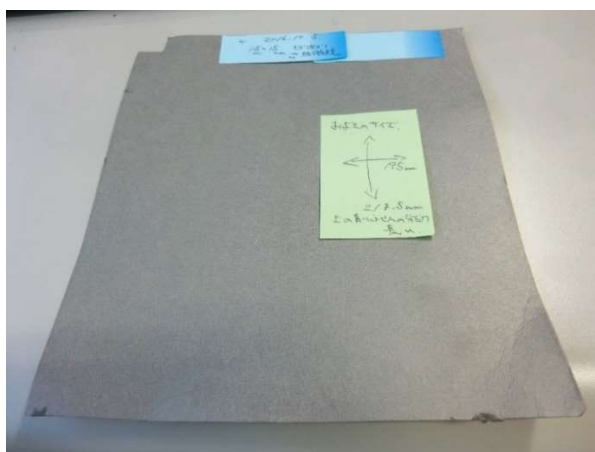


図 3.1.4-10 焼結フィルター (NF)



図 3.1.4-11 フィルター装着治具

粒径分布の測定は、図 3.1.4-12 の電界放出型走査電子顕微鏡(以下 FE-SEM)を用いることで、WF 表面の構造は次の図 3.1.4-13 に示す通りである。

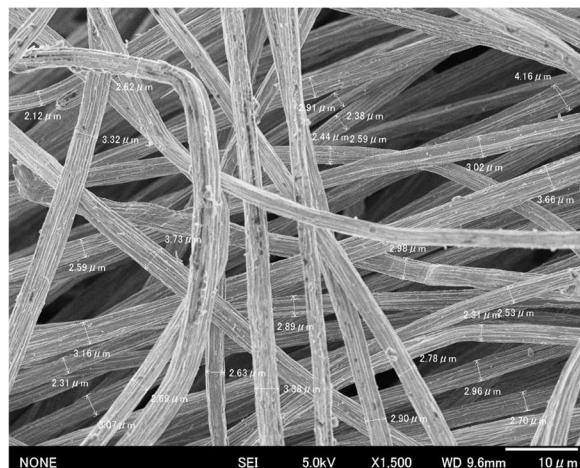


図 3.1.4-12 電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) 図 3.1.4-13 WF の SEM 観測画像

③ 吸着実験方法と実験パラメータの選定

本実験では、図 3.1.4-3 計装線図中の各種フィルターの箇所に WF と NF を充填した。NF を用いる場合は、充填率や投入する質量などを操作することができないので図 3.1.4-14 のように寸法通りに裁断し、フィルター装着治具に乗せた後、空気漏れを防ぐために四隅を不乾性パテによって埋めることで実験を行った。



図 3.1.4-14 焼結フィルター装着時の装着治具 図 3.1.4-15 装着治具 WF 挿入時

WF を用いる場合は、以下の (3.1.4-7) 式で定義される充填率と投入枚数を変更し、除染係数 (DF) の測定を行った。実験時にはフィルター装着治具内に図 3.1.4-15 のようにフィルターを挿入し、同様に空気漏れを防ぐため、四隅に不乾性パテを用いた。図 3.1.4-16 の模式図の通り、パンチングメタル下部分の体積を治具内部の体積とした。WF の体積は、WF の質量を後述の電子天秤を用いて測定し、密度から算出した。

$$(\text{充填率}) = \frac{(\text{WF の体積})}{(\text{治具内部の体積})} \times 100 [\%] \quad (3.1.4-7)$$

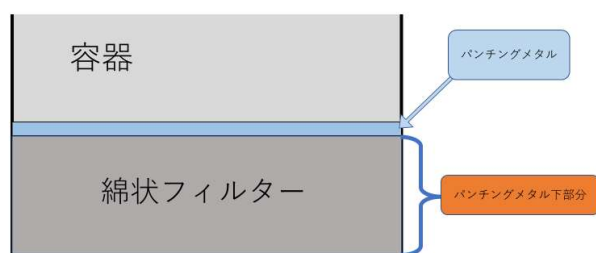


図 3.1.4-16 装着治具 WF 挿入時の断面模式図

各実験は硫酸バリウムを 25g ずつ投入していき、フィルター前後の差圧の変化が見られなくなった時点で終了とした。平成 28 年度までは一律で 100g まで硫酸バリウムを投入していたが、フィルターが目詰まりを起こした後に投入される硫酸バリウムを投入粒子として考えてしまうと、フィルターの除染能力を評価する際に通常よりも DF が大きく算出されてしまうため、平成 29 年度より目詰まり後に投入された硫酸バリウムは評価に含めないこととした。投入した粒子のうち、フィルターを通過した粒子は図 3.1.4-17 の HEPA フィルターに堆積するため、HEPA フィルターの質量の変化から通過した硫酸バリウム質量を測定し、DF を算出した。本実験で質量を測定する際には、図 3.1.4-18 の電子天秤を用いた。その仕様は表 3.1.4-2 の通りである。



図 3.1.4-17 HEPA フィルター



図 3.1.4-18 電子天秤

表 3.1.4-2 電子天秤の仕様

製造元	製品名	秤量	最大表示	最小表示	精度	標準偏差	本体質量
エー・アンド・デイ	上皿電子天秤 GX-203A	220g	220g	0.001g	0.01g	±0.001g	約5kg

本実験では DF 測定に加えて、フィルターの目詰まりの特性の評価も行った。図 3.1.4-3 に示した各センサーで圧力、風速、温度を測定し、それらを用いて後述の (3.1.4-11) 式で表される損失係数 ζ を定義した。これらの変化よりフィルター特性を

評価した。

損失係数 ζ について、下記の図 3.1.4-19 の概念図に基づいて説明する。

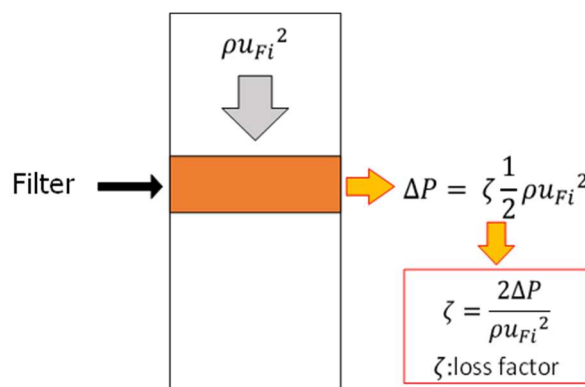


図 3.1.4-19 損失係数 ζ の算出方法

図中のフィルター前後の圧力差を ΔP とした。本実験では、図 3.1.4-3 に示すように送風機直後の箇所では風速、温度を観測した。ここで送風機直後の風速を u_i 、その箇所の断面積を A_i とした。同様に、図 3.1.4-3 中のフィルター入り口の風速を u_{Fi} 、断面積を A_{Fi} とした。ここで空気密度を ρ とすると連続の方程式 (3.1.4-8) より、

$$\rho u_i A_i = \rho u_{Fi} A_{Fi} \text{ [kg/s]} \quad (3.1.4-8)$$

となるので、 u_{Fi} は(3.1.4-9)のように計算することができる。

$$u_{Fi} = \frac{A_i}{A_{Fi}} u_i \text{ [m/s]} \quad (3.1.4-9)$$

また、温度 0 度、大気圧での空気密度は、 1.293kg/m^3 である。本実験では送風機直後時点での温度 $t(^{\circ}\text{C})$ 、圧力 $P01$ (kPa) が計測されているため、空気密度の時間変化を計測することが可能であり、密度 ρ は以下の式 (3.1.4-10) で求められた。

$$\rho = \frac{(P01 + 101.3)}{101.3} \times \frac{273.2}{273.2 + t} \times 1.293 \quad (3.1.4-10)$$

フィルター前後に生じる圧力損失を ζ とすれば、

$$\zeta = \frac{2\Delta P}{\rho u_{Fi}^2} [-] \quad (3.1.4-11)$$

となった。差圧の増大によって空気の流速も低下することが先行研究より分かっているため、この ζ を損失係数として、フィルターの目詰まりを評価する際の指標として用いた。

測定時、データロガーの測定開始ボタンを押した後、5 秒経過時点で送風機の電源を入れ空気の流入を開始し、30 秒経過時点で微粒子連続供給装置の電源を入れて粒子の投下を開始した。測定を終了する際には、微粒子連続供給装置の電源を落とした 25 秒後に送風機の電源を切り、その 5 秒後にデータロガーの測定終了ボタンを押し、測定を終了した。

④ 吸着実験結果

1) 綿状フィルター (WF) の実験結果

WF を、線径、投入枚数、充填率を様々に変化させた場合の DF を、表 3.1.4-3、表

3.1.4-4 にまとめた。この値は、図 3.1.4-18 の電子天秤を用いて測定した値であり、標準偏差±0.001g の誤差を含んだ値である。また、本実験の目的は複合フィルターを作成する際の最適化に必要なデータを得ることであるため、一部条件では実験を行う必要がないと判断した。

表 3.1.4-3 充填率 1%のときの DF

	1 枚		3 枚	5 枚
2 μm	666.69		4105.36	8305.67
8 μm	20.73		52.12	138.31
12 μm	12.55	12.35	51.51	
30 μm	24.27	12.2	14.25	9.74

表 3.1.4-4 充填率を変化させたときの DF

	1%	2%	3%	4%	5%
8 μm 3 枚	52.12	70.73	104.61		109.91
2 μm 5 枚	8305.67		10407.91	6356.51	

表 3.1.4-3 に示す実験結果を見ると、各線径において投入枚数を増加させていったとき DF は大きくなっていくが、30 μm に関してのみ、そのような傾向を読み取ることができなかった。投入枚数を増やしても DF は大きくなり、投入枚数が少ない場合では、先行研究より明らかになっている「線径が細いほど DF は大きくなる」という結論に反する結果となり、12 μm と比較しても大きい DF を記録した。

この現象の理由として以下の図 3.1.4-20 の模式図に示したことが考えられる。大まかに粒子を大、中、小サイズの 3 つに大別して考える。

WF-2、WF-8、WF-12（数値は線径）の DF 測定結果を比較したとき、線径が小さいほど DF が大きくなっていることが分かった。特に WF-2 を用いた際は DF が大幅に上昇していることが分かった。投入枚数を変化させた場合も同様に、投入枚数を増やすほど DF は大きな値を示すが、特に WF-2 の場合は他の線径のものよりも DF の上昇の幅が大きかった。

次に、表 3.1.4-4 より充填率の変化が DF に及ぼす影響をみると、充填率を上げるほど DF も大きくなっていることが分かった。WF-8 を 3 枚投入したときの DF と充填率の関係を折れ線図にすると、図 3.1.4-21 のようになった。

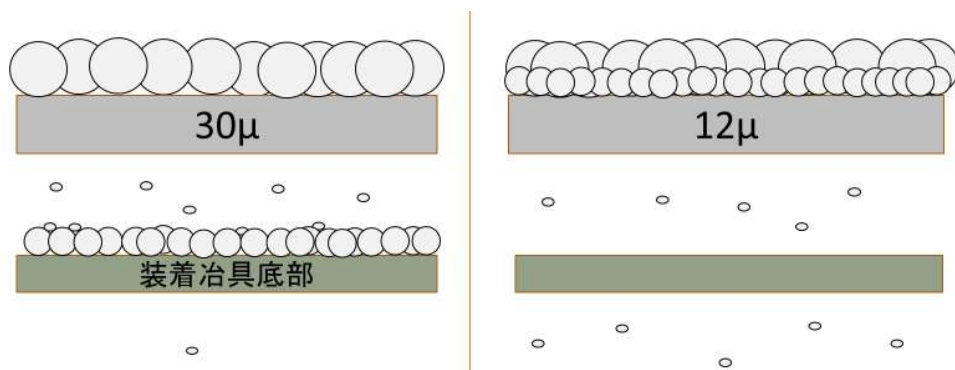


図 3.1.4-20 容器底部の及ぼす影響

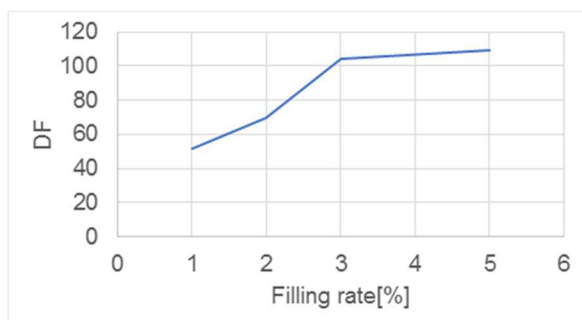


図 3. 1. 4-21 WF-8 の充填率と DF

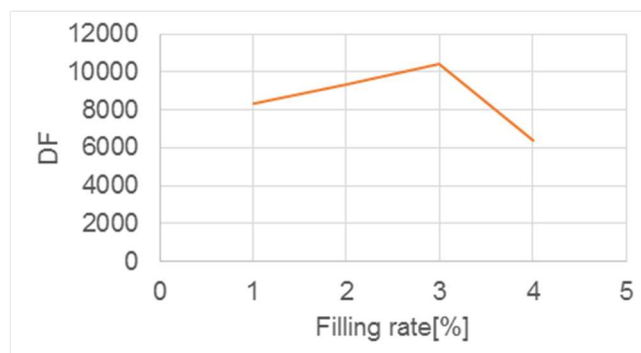


図 3. 1. 4-22 WF-2 の充填率と DF

図 3. 1. 4-21 より分かるように、WF-8 において充填率を上げていくと DF も大きくなっていくが、充填率が 3% よりも大きくなると DF があまり増加しなくなった。

このような特性が他の条件でも当てはまるのか確認するため WF-2 を 5 枚投入し、高い DF が予想される状況で充填率を変化させてその DF を測定した。

その結果を図 3. 1. 4-22 に示した。充填率 3% から 4% に変化した際に DF が減少してしまっているが、DF が高い値を示す場合には、図 3. 1. 4-18 の電子天秤の標準偏差である $\pm 0.001\text{g}$ が誤差として大きな影響を及ぼすので、実験前後の HEPA フィルターの質量変化の最小値を 0.001g として $\pm 0.001\text{g}$ の範囲で変化させたとき、充填率 3% での DF は、

$$\text{DF}=6938\sim 20815$$

充填率 4% での DF は

$$\text{DF}=5142\sim 10284$$

となるため、誤差を考慮すると DF 値はあまり変化していないと見なすことができた。

これより、線径や投入枚数によらず充填率を上げると DF も増加するが、充填率を 3% 以上にすると DF の増加の兆候はなくなる。

2) 焼結フィルター (NF) の実験結果

NF-2 の DP02 の時間変化と損失係数の時間変化はそれぞれ図 3. 1. 4-23 と図 3. 1. 4-24 のようになった。

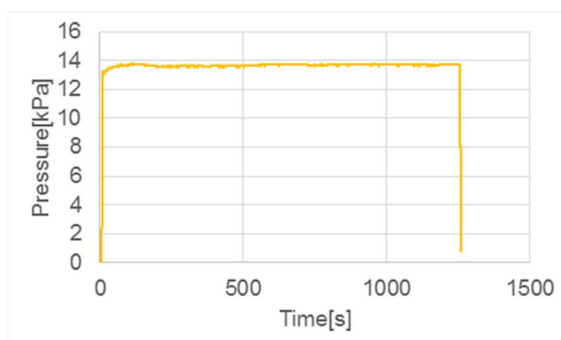


図 3. 1. 4-23 NF-2 の DP02 の時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)

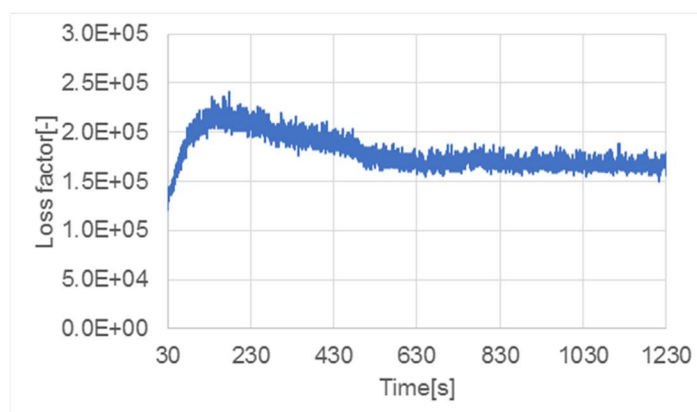


図 3.1.4-24 NF-2 の損失係数時間変化（硫酸バリウム 0～25g 投下）

測定開始直後から DP02 が 12 kPa を上回っており、目詰まりが非常に早いことが読み取れた。同様に損失係数も 150000 をほぼ常に上回っており、非常に高い値を記録していた。同様に、NF-20 の DP02 時間変化と損失係数時間変化のグラフは図 3.1.4-25 と図 3.1.4-26 のようになった。NF-2 と比べて、差圧と損失係数のどちらも比較的緩やかに上昇している。

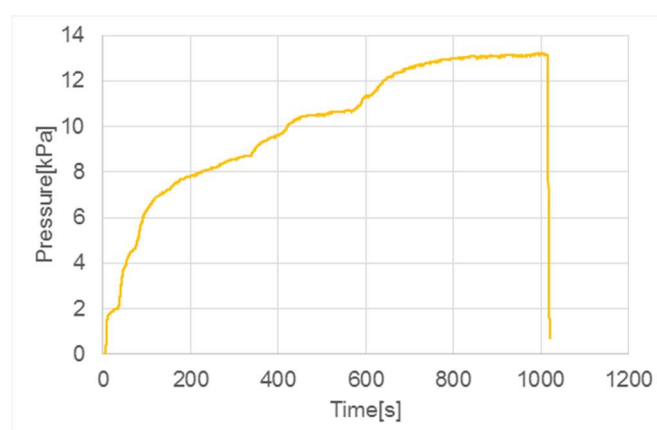


図 3.1.4-25 NF-20 の DP02 時間変化（硫酸バリウム 0～25g 投下）

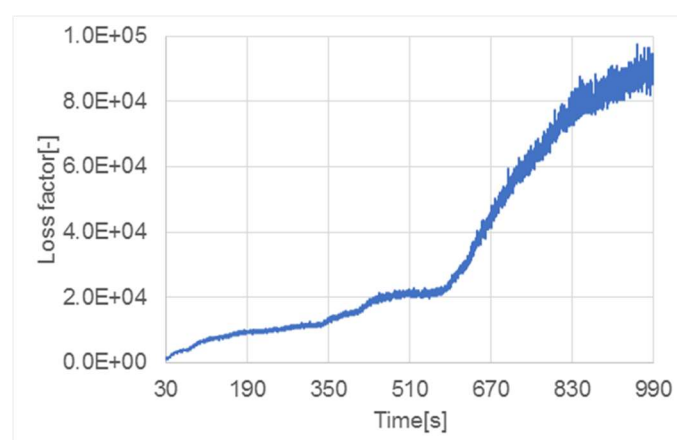


図 3.1.4-26 NF-20 の損失係数時間変化（硫酸バリウム 0～25g 投下）

このときの各 DF は、NF-2 が 3590、NF-20 が 12500 となった。NF-2 NF-20 共に高い DF を記録しているが、線径が大きいにも関わらず NF-20 の方が高い DF を記録していた。この理由として NF-2 は硫酸バリウムが投下される前から目詰まりしているに等しい状況であるため、非常に高い圧力を装置にかけ続けた結果として空気漏れが起こったことにより DF が低く出たことが考えられる。NF-2 は目詰まりを非常に起こしやすく、複合フィルターとして用いることが困難であることが考えられるが、NF-20 に関してはどの WF よりも高い DF を記録しながらも圧力損失は WF-2 と同じくらいであり、他のフィルターとの組み合わせによって非常に高性能なフィルターとなることが考えられる。

(4) 吸着実験結果の考察

充填率と投入枚数が同じ条件の場合、線径が細い WF のほうが高い DF を記録することができるが、フィルター間差圧や損失係数を考慮した場合、線径の細い WF は目詰まりが早く、線径の太い WF と比較して少ない稼働時間でフィルターとしては機能しなくなる。次に、線径と充填率が同じ条件の場合、投入枚数を多くすると DF が大きくなり、差圧と損失係数の変化からも、投入枚数の増加によってフィルター内部の圧力の増加が緩和されていることが分かる。焼結フィルターの NF-2 は差圧が高すぎるために本実験で扱っている送風機では満足な性能を発揮することができず、複合フィルターに用いることはできないが、NF-20 に関しては、高い DF を記録しながら圧力損失は WF と同じくらいであるため、他のフィルターと組み合わせる際にフィルターの最終段に用いることで、高性能なフィルターとなることが予測される。

(5) 電子顕微鏡を用いた粒径分布の測定

本観測では FE-SEM を用いて、3.1.4(3)項で示した実験において HEPA フィルター上に堆積した硫酸バリウムを観測した。フィルターを通過した硫酸バリウムの粒径分布の画像を撮影し、画像処理ソフトを用いる事で粒径分布図を作成した。

① 粒径分布の測定

様々な条件下で、吸着実験装置の最終段の HEPA フィルター上に、図 3.1.4-27 のように試料台を乗せて実験を行った。HEPA フィルターの実験前後の質量差を測定する際、試料台の重さも含めて DF を算出しなければならないため、HEPA フィルターと試料台をひとつとして質量を測定した。試料台は直径 11mm、高さ 5mm の円柱状の金属の上部にカーボンテープを貼り付けたものである。試料台は HEPA フィルターに対して十分に小さいため、試料台を乗せたことによる差圧などの変化は無視した。実験終了後、図 3.1.4-28 のように硫酸バリウムがカーボンテープ上に付着した試料台を用いて、FE-SEM による観察を行った。

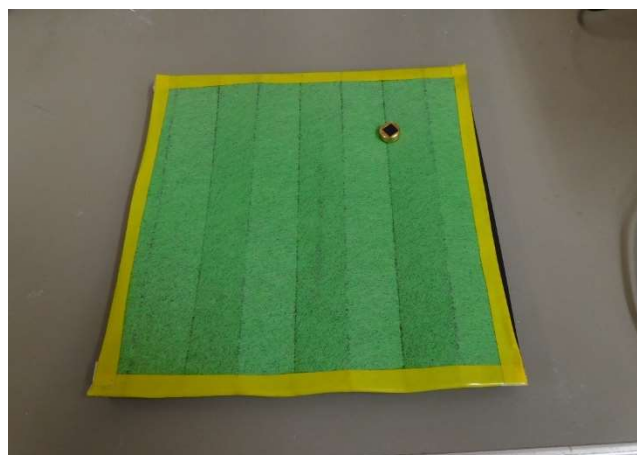


図 3. 1. 4-27 試料台を乗せた HEPA フィルター



図 3. 1. 4-28 実験後の硫酸バリウムが付着した試料台

また、フィルター通過前の硫酸バリウムの粒径分布も観測する必要があるため、フィルターを何もつけない状態で硫酸バリウムの投下を行い、試料台に粒子を付着させた。

② FE-SEM による観察

FE-SEM で観察した画像をデータとして取り込む際、そのまま図 3. 1. 4-29 のように画像を取り込むと画像処理ソフトでの解析が困難になるため、図 3. 1. 4-30 のように明度やコントラストを調節することで白黒がはっきりとした画像として取り込んだ。

また、先行研究より硫酸バリウム微粒子の直径は $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ 程にまで幅広く分布していることが分かっているが、単一の倍率ではこれらを全て同時に観察することができないため、20000 倍、2000 倍、200 倍の 3 つの倍率に分けて観察した。観察をする際は図 3. 1. 4-31～図 3. 1. 4-33 のように倍率のみを変化させ、同じ箇所の子を観察した。

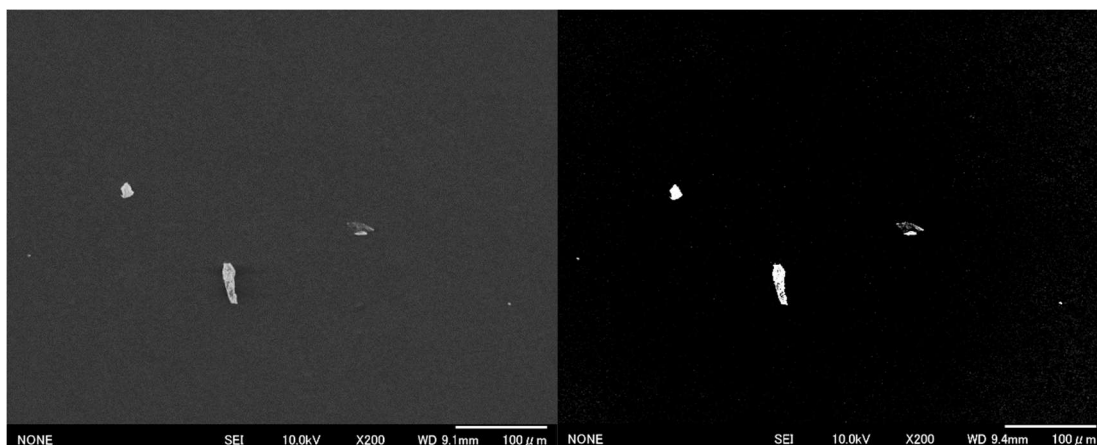


図 3. 1. 4-29 通常の FE-SEM 画像

図 3. 1. 4-30 調整した FE-SEM 画像

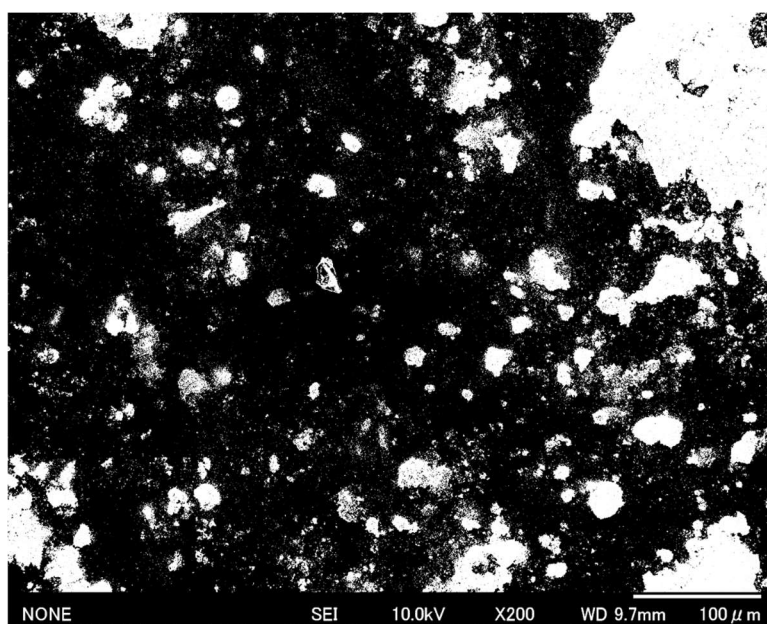


図 3. 1. 4-31 倍率 200 倍での粒子画像

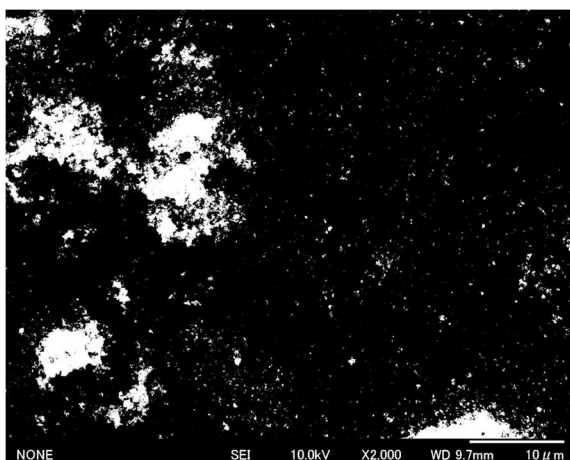


図 3. 1. 4-32 倍率 2000 倍での粒子画像

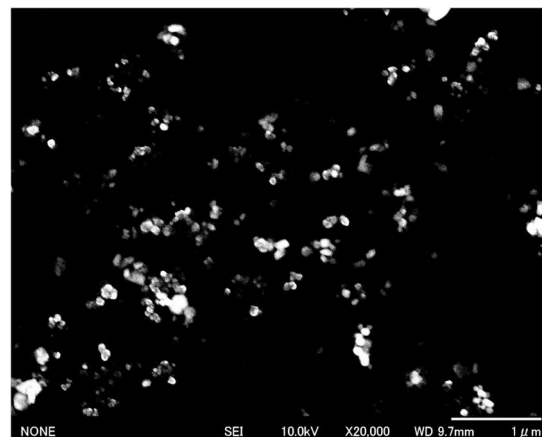


図 3. 1. 4-33 倍率 20000 倍での粒子画像

③ 画像解析ソフトによる解析

FE-SEM から取り込んだ画像を、旭化成エンジニアリング株式会社製の画像解析専用ソフトウェア「A 像くん」を用いて解析した。

「A 像くん」は画像の白と黒のしきい値を手動で設定することによって図 3. 1. 4-34 のように粒子を認識し（粒子画像は図 3. 1. 4-31 のものを使用）、認識した粒子に番号を振り分け、各粒子の最大径や最小径などを図 3. 1. 4-35 のようにテキストファイルとして記録した。

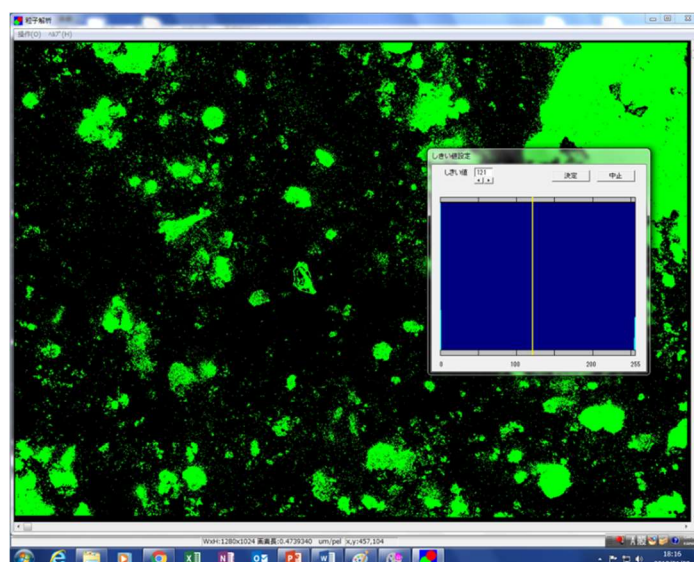


図 3. 1. 4-34 A 像くんによる画像解析-1

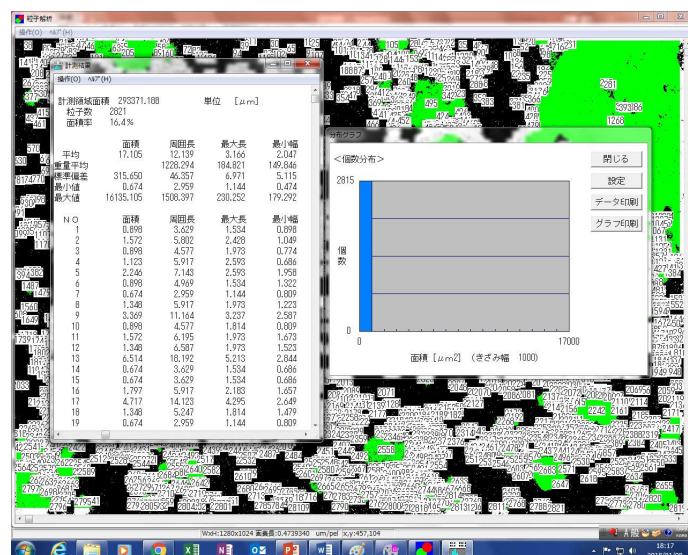


図 3. 1. 4-35 A 像くんによる画像解析-2

得られたテキストファイルを EXCEL に読み込ませることで、粒径分布図を作成する。この時、粒径によっては複数の倍率で粒子として認識され、重複して記録されてしまうため、倍率ごとに記録する粒子を以下のように定め、粒子の重複が起こらないようにした。

倍率 20000 倍 粒径 0.01～0.1 μm
 倍率 2000 倍 粒径 0.1～1.0 μm
 倍率 200 倍 粒径 1.0～10 μm

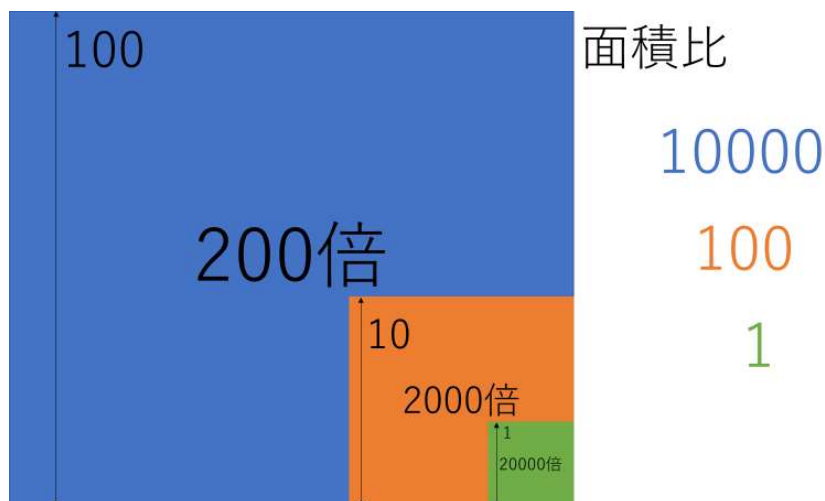


図 3.1.4-36 観察倍率による観察範囲の面積比

また、図 3.1.4-36 の概念図のように倍率を 10 倍上げると、観察している面積は 1/100 になる。そのため、粒子の個数をカウントする際にはこれが与える影響を考慮しなければならないので、20000 倍で観察できた粒子は個数を 10000 倍し、同様に 2000 倍で観察された粒子は個数を 100 倍した。

本実験の粒径分布図作成において、どれほどの誤差が存在するのかを確認するため、同じ条件での倍率ごとに異なる 2 点で粒径を測定しそれぞれ A 点、B 点とした。その倍率内で粒子が、測定した箇所の全粒子質量に対して占める質量の割合を次の図 3.1.4-37～図 3.1.4-39 に示した。

粒径分布図は粒子質量の割合と粒子個数の 2 つの値で比較できるよう 2 種類作成し、それぞれ粒径質量割合分布図、粒径個数分布図とした。粒径質量割合分布図では、各条件の実験でフィルターを通過した硫酸バリウム粒子全質量に対しての、各粒径での質量がそれぞれ占める割合を縦軸に取った。粒径個数分布図では、測定できた粒子数を縦軸に取った。

その後、得られた粒径分布図を元に粒径ごとの除染係数を算出し、複合フィルターの最適化を図る。その際、後述する粒径質量分布図を新たに作成する。

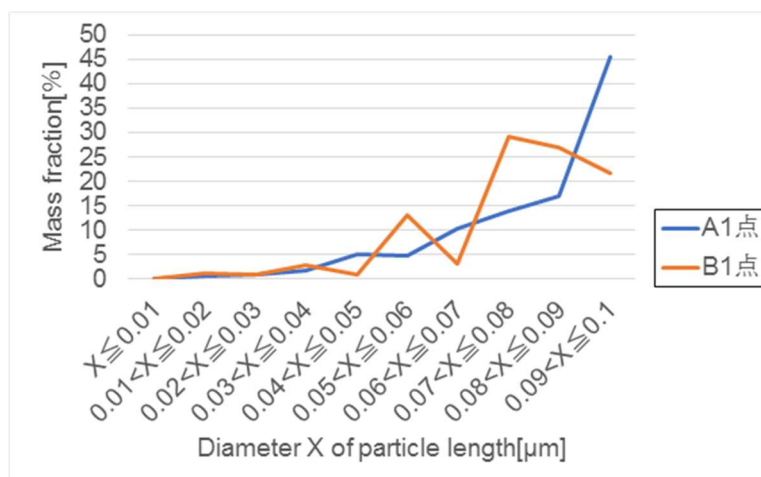


図 3.1.4-37 倍率 20000 倍での粒径分布の比較

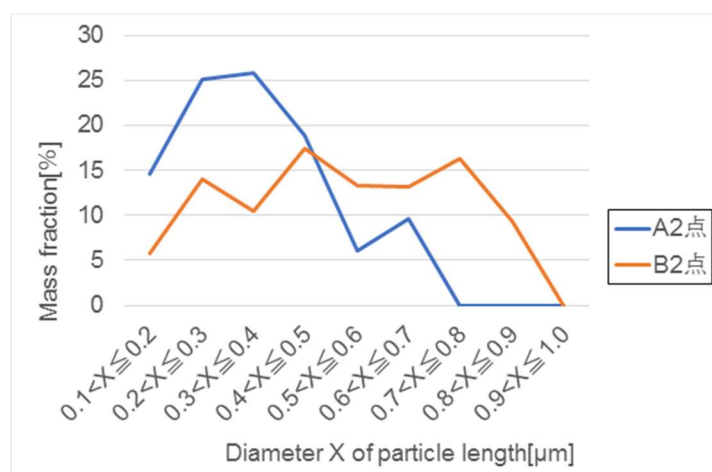


図 3.1.4-38 倍率 2000 倍での粒径分布の比較

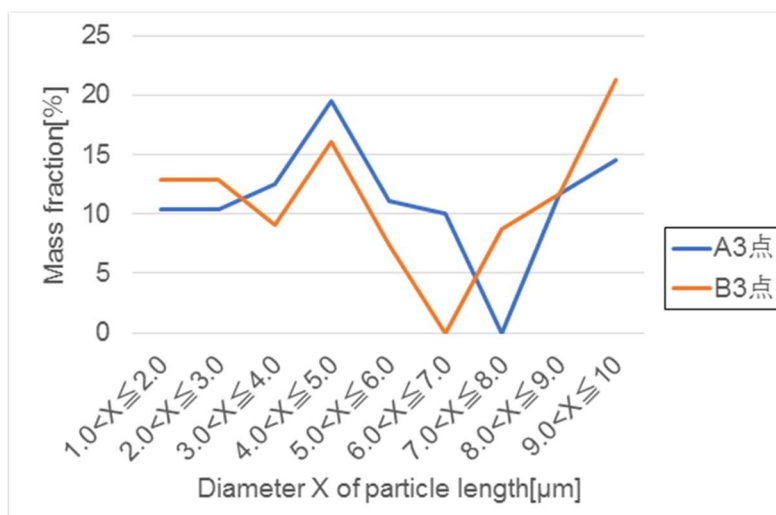


図 3.1.4-39 倍率 200 倍での粒径分布の比較

(6) 評価解析モデル用粒径ごとの吸着係数の取得

① 供試フィルターの実験条件

本実験では、以下の 7 つの実験条件で粒径分布図を作成した。

(実験条件 1) WF 未装着 (フィルター通過前の硫酸バリウム)

(実験条件 2) WF-2 充填率 1% 投入枚数 1 枚

(実験条件 3) WF-2 充填率 1% 投入枚数 5 枚

(実験条件 4) WF-2 充填率 3% 投入枚数 5 枚

(実験条件 5) WF-12 充填率 1% 投入枚数 1 枚

(実験条件 6) 複合フィルター1

(実験条件 7) 複合フィルター2

(以下、条件と略記) 条件 1 で作成した粒径ごとの質量割合 (以下、粒径質量割合分布) と粒径ごとの個数分布 (以下、粒径個数分布) は図 3.1.4-40 と図 3.1.4-41 のようになった。粒径質量割合分布図の縦軸は、HEPA フィルター上に堆積した全粒子質量中に占める割合を示す。

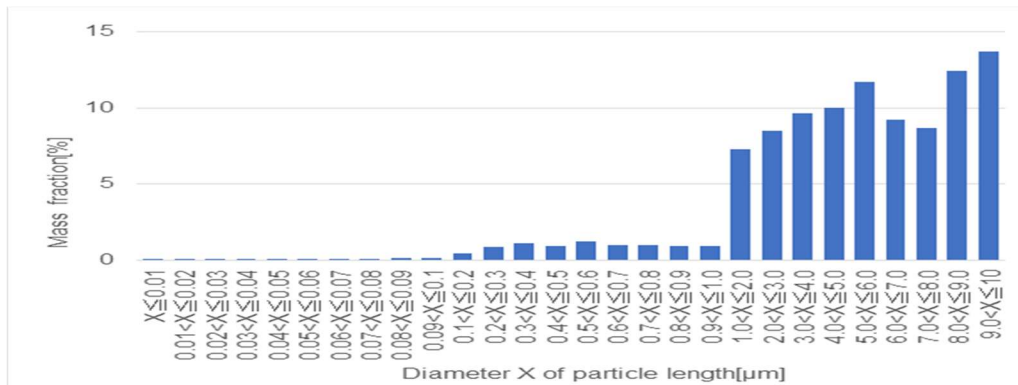


図 3.1.4-40 粒径質量割合分布図 条件 1

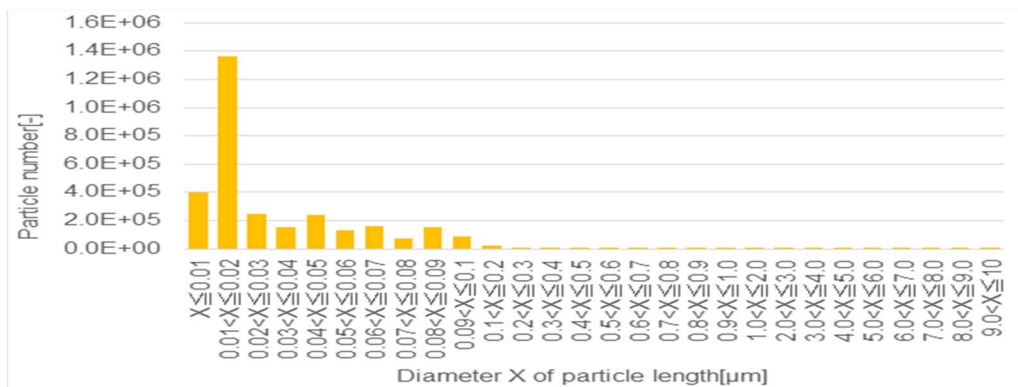


図 3.1.4-41 粒径個数分布図 条件 1

② 粒径分布ごとの CF 測定

先述の 3.1.4(6)①項で得られた粒径質量割合分布図を元に、粒径質量分布図を作成した。各条件での実験において投入した硫酸バリウムの質量を、条件 1 の粒径質量割合分布図に用いて、各実験での投入した硫酸バリウムの粒径質量分布図を得た。このとき、 i 番目の粒径範囲における投入した粒子量を m_{li} 、フィルターを通過した粒子量を m_{oi} とする。このとき、式(3.1.4-4)と式(3.1.4-5)が成立する。

条件 2 を例にして粒径ごとの DF を考える。条件 2 の実験において投入した硫酸バリ

ウム質量は 13.33 g であるので条件 1 での粒径質量割合分布図を元に投入した硫酸バリウムの粒径質量分布図を出すと図 3.1.4-42 のようになり、投入した硫酸バリウムとフィルターを通過した硫酸バリウムを表にまとめると、表 3.1.4-5 のようになった。

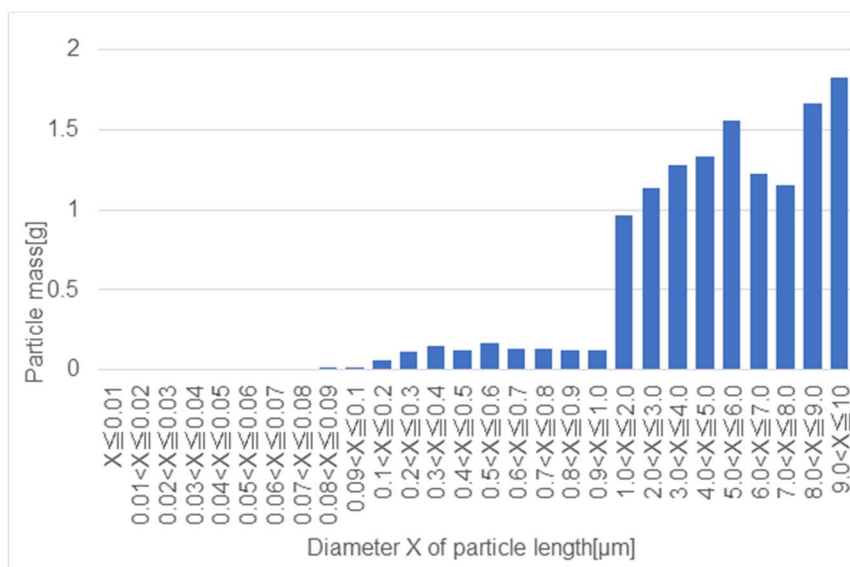


図 3.1.4-42 粒径質量分布図 条件 2 における投入分

表 3.1.4-5 条件 2 におけるフィルター前後の粒子質量

粒径範囲	投入粒子質量(g)	通過粒子質量(g)
X ≤ 0.01	7.7E-05	2.0E-05
0.01 < X ≤ 0.02	8.2E-04	2.3E-04
0.02 < X ≤ 0.03	7.9E-04	2.0E-04
0.03 < X ≤ 0.04	1.4E-03	1.2E-04
0.04 < X ≤ 0.05	4.7E-03	8.9E-05
0.05 < X ≤ 0.06	4.6E-03	1.4E-04
0.06 < X ≤ 0.07	9.0E-03	9.2E-05
0.07 < X ≤ 0.08	6.4E-03	0.0E+00
0.08 < X ≤ 0.09	2.0E-02	1.9E-04
0.09 < X ≤ 0.1	1.5E-02	4.3E-04
0.1 < X ≤ 0.2	6.3E-02	3.3E-03
0.2 < X ≤ 0.3	1.1E-01	3.5E-03
0.3 < X ≤ 0.4	1.5E-01	2.9E-03
0.4 < X ≤ 0.5	1.2E-01	1.7E-03
0.5 < X ≤ 0.6	1.7E-01	1.5E-03
0.6 < X ≤ 0.7	1.3E-01	1.7E-04
0.7 < X ≤ 0.8	1.3E-01	1.6E-03
0.8 < X ≤ 0.9	1.3E-01	2.5E-03
0.9 < X ≤ 1.0	1.2E-01	0.0E+00
1.0 < X ≤ 2.0	9.7E-01	2.2E-04
2.0 < X ≤ 3.0	1.1E+00	3.4E-04
3.0 < X ≤ 4.0	1.3E+00	6.1E-04
4.0 < X ≤ 5.0	1.3E+00	0.0E+00
5.0 < X ≤ 6.0	1.6E+00	0.0E+00
6.0 < X ≤ 7.0	1.2E+00	0.0E+00
7.0 < X ≤ 8.0	1.2E+00	0.0E+00
8.0 < X ≤ 9.0	1.7E+00	0.0E+00
9.0 < X ≤ 10	1.8E+00	0.0E+00
合計	1.3E+01	2.0E-02

粒径ごとの質量を比較すると、0.5～0.6μm の範囲での DF 値は、

$$DF = \frac{1.7E-01}{1.5E-03} = 113.3$$

と DF 値を算出することができるが、例えば粒径が 0.9～1.0μm の範囲での DF 値は、

$$DF = \frac{1.2E-01}{0.0E-00} = \infty$$

となり。数値が∞では正しい評価ができなくなるため、ここで除染係数の逆数である吸着係数 CFi を以下の式(3.1.4-12)で定義する。

$$CFi = \frac{\text{フィルターを通過した粒子質量}}{\text{投入した粒子質量}} \quad (3.1.4-12)$$

異なるフィルターを組み合わせた複合フィルターを作成する際の概念図を図 3.1.4-43 に示した。図 3.1.4-43 に示すように、CF=0.1 と CF=0.01 の二種類のフィルターを組み合わせることで複合フィルターを作成し粒子を 1000g 投入するとき、CF=0.1 のフィルターを通過する粒子は 100 g であり、その 100g のうち CF=0.01 のフィルターを通過する粒子は 1g となり、この複合フィルター全体としての CF は 0.001 となることが分かる。このようにフィルターを組み合わせた際の CF は、それぞれの CF の積となる。

条件 2 と条件 5 のフィルターで複合フィルターを作成した場合、それぞれの CF 値の積を取る事で CF 値を予測することができる。その CF 値は表 3.1.4-6 のようになった。これより、単一では CF 値が大きいフィルターでも、組み合わせによっては CF を小さくできることが予測される。

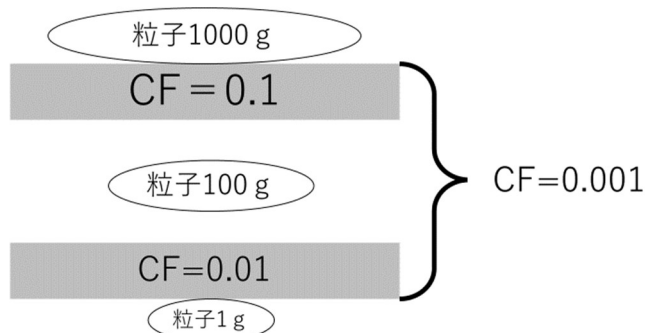


図 3.1.4-43 複合フィルターCF 概念図

表 3.1.4-6 複合フィルターCF 予測値

粒径範囲	CF値
$X \leq 0.01$	2.5.E-02
$0.01 < X \leq 0.02$	2.3.E-02
$0.02 < X \leq 0.03$	1.9.E-02
$0.03 < X \leq 0.04$	3.9.E-03
$0.04 < X \leq 0.05$	1.8.E-04
$0.05 < X \leq 0.06$	1.0.E-04
$0.06 < X \leq 0.07$	8.2.E-05
$0.07 < X \leq 0.08$	0.0.E+00
$0.08 < X \leq 0.09$	6.8.E-05
$0.09 < X \leq 0.1$	1.0.E-03
$0.1 < X \leq 0.2$	3.2.E-03
$0.2 < X \leq 0.3$	1.6.E-03
$0.3 < X \leq 0.4$	1.0.E-03
$0.4 < X \leq 0.5$	8.3.E-04
$0.5 < X \leq 0.6$	4.5.E-04
$0.6 < X \leq 0.7$	5.0.E-05
$0.7 < X \leq 0.8$	6.0.E-04
$0.8 < X \leq 0.9$	7.0.E-04
$0.9 < X \leq 1.0$	0.0.E+00
$1.0 < X \leq 2.0$	1.7.E-05
$2.0 < X \leq 3.0$	2.8.E-05
$3.0 < X \leq 4.0$	4.2.E-05
$4.0 < X \leq 5.0$	0.0.E+00
$5.0 < X \leq 6.0$	0.0.E+00
$6.0 < X \leq 7.0$	0.0.E+00
$7.0 < X \leq 8.0$	0.0.E+00
$8.0 < X \leq 9.0$	0.0.E+00
$9.0 < X \leq 10$	0.0.E+00

(7) 多層複合フィルターの高性能化実験

① 高性能化実験の基本的考え方

得られたデータを元にしていくつかの複合フィルターを作成し、WF や NF 同様に DF 測定と、FE-SEM を用いた粒径分布観測を行った。得られたデータを元に複合フィルターの性能を考察した。3 種類の複合フィルターを作成した。なお、これは 3.1.4(6)①項で述べた条件 6、7 の複合フィルターを含めて 3 種類であり、これに条件 8 を加えての 3 種類とした。それぞれの組成は以下の図 3.1.4-44～図 3.1.4-46 のようになった。

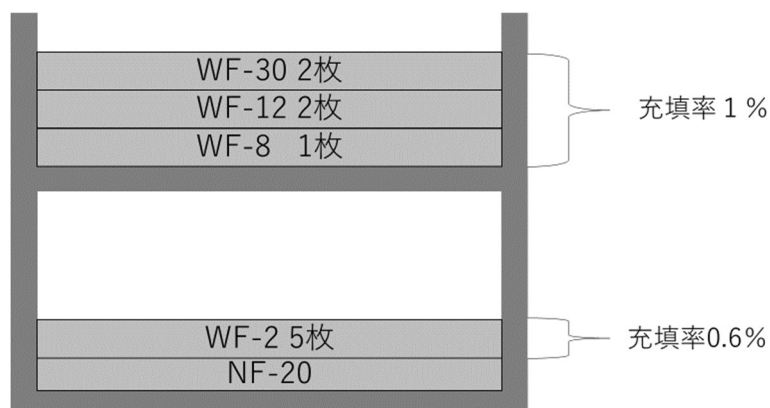


図 3.1.4-44 条件 6 複合フィルター組成

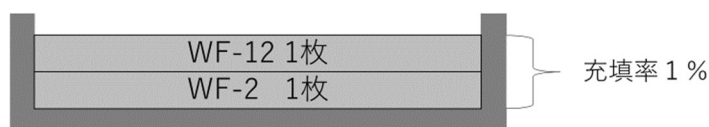


図 3.1.4-45 条件 7 複合フィルター組成

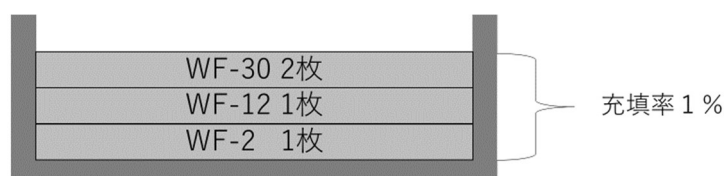


図 3.1.4-46 条件 8 複合フィルター組成

(条件 6)

上段に WF-30 と WF-12 を 2 枚ずつ用い、WF-8 を 1 枚その下に用いて合わせて 5 枚を充填率 1 %に圧縮し、下段に WF-2 を 5 枚使用し充填率 0.6%に圧縮した後、その下に NF-20 を設置した。

(条件 7)

条件 2 の WF-12 を 1 枚と条件 5 の WF-2 を 1 枚ずつ充填率 1 %に圧縮した。

(条件 8)

WF-30 を 2 枚と、WF-12 を 1 枚と、WF-2 を 1 枚とを合わせて充填率 1 %に圧縮した。

条件 7 では、3.1.4(5)において粒径ごとの DF を算出した条件 2 と条件 5 の 2 つのフィルターを組み合わせたフィルターの粒径ごとの DF が予測されたものと一致するかどうかを最も単純な組み合わせで確認するために作成した。

実際に放射性物質をフィルターに取り込んだ際、使用後のフィルターがそのまま放射性廃棄物になってしまうため、少ないフィルターで高い性能を出す事が求められている。そのため、条件 8 は条件 6 から一部フィルターを簡略化させた構造をしており、より少ないフィルターで同様の性能を維持できるかどうかを確認するために作成した。

② 複合フィルターを用いた DF 測定

条件 6～8 の全てにおいて 3.1.4(3)で説明した方法と同じ方法で行った。しかし、条件 6 で実験を行う場合に限っては図 3.1.4-47 のようなフィルター装着治具を加えて用いる事で、図 3.1.4-48 のようにフィルター装着治具を多段にして実験を行った。粒子を投下しきるまでに時間を要したために 10 分以上測定を行う場合もあった。



図 3.1.4-47 追加したフィルター装着治具



図 3.1.4-48 フィルターを多段にした状態

③ 粒径分布観測

先述の 3.1.4(6)①項より、条件 6、条件 7 において 3.1.4(5)と同じやり方で粒径分布観測を行い、粒径ごとの CF 値を計算した。また、得られた CF 値を元に DF 予測値と DF 実測値の比較を行った。

条件 6～8 での DF 測定の結果は、以下のようになった。

条件 6 DF=75155 (75.15g の粒子を投入)

条件 7 DF=3086 (37.04g の粒子を投入)

条件 8 DF=2831

DF 値が 1000 を上回るような高い値を示す場合では、3.1.4(3)④項でも述べたように電子天秤の標準偏差 0.001g による誤差を無視することはできない。そのため 3.1.4(3)④項と同様に HEPA フィルターの実験前後での質量変化の最小値を 0.001g として、±0.001g の誤差を考慮すると次のようになる。

条件 6 DF= 37577.5～75155

条件 7 DF= 2849～3367

条件 8 DF=2713～2959

条件 6 においては、HEPA フィルターの質量変化が 0.001g と測定され、電子天秤の測定限界を上回る値を記録したため、誤差を考慮して 0.00～0.002g の間で誤差を考えた。

条件 6、条件 7 における粒径ごとの CF 値は次の表 3.1.4-7 のようになった。

表 3.1.4-7 複合フィルターの粒径ごとの CF

粒径範囲	条件6	条件7
$X \leq 0.01$	1.5.E-03	1.7.E-01
$0.01 < X \leq 0.02$	3.1.E-03	2.2.E-01
$0.02 < X \leq 0.03$	9.6.E-03	2.3.E-01
$0.03 < X \leq 0.04$	1.4.E-02	9.8.E-02
$0.04 < X \leq 0.05$	4.1.E-03	2.1.E-02
$0.05 < X \leq 0.06$	4.9.E-03	2.6.E-02
$0.06 < X \leq 0.07$	3.2.E-03	4.1.E-02
$0.07 < X \leq 0.08$	0.0.E+00	1.0.E-01
$0.08 < X \leq 0.09$	1.3.E-03	2.1.E-02
$0.09 < X \leq 0.1$	3.4.E-03	6.4.E-02
$0.1 < X \leq 0.2$	1.6.E-05	3.1.E-03
$0.2 < X \leq 0.3$	0.0.E+00	3.1.E-03
$0.3 < X \leq 0.4$	0.0.E+00	7.5.E-04
$0.4 < X \leq 0.5$	0.0.E+00	0.0.E+00
$0.5 < X \leq 0.6$	0.0.E+00	0.0.E+00
$0.6 < X \leq 0.7$	0.0.E+00	4.2.E-03
$0.7 < X \leq 0.8$	0.0.E+00	0.0.E+00
$0.8 < X \leq 0.9$	0.0.E+00	0.0.E+00
$0.9 < X \leq 1.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$1.0 < X \leq 2.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$2.0 < X \leq 3.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$3.0 < X \leq 4.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$4.0 < X \leq 5.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$5.0 < X \leq 6.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$6.0 < X \leq 7.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$7.0 < X \leq 8.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$8.0 < X \leq 9.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$9.0 < X \leq 10$	0.0.E+00	0.0.E+00
合計	1.3.E-05	3.2.E-04

また、条件 7 において予測された粒径ごとの CF 値と、実際に測定された粒径ごとの CF 値は表 3.1.4-8 のようになった。これと以下の式(3.1.4-3)、(3.1.4-6)、(3.1.4-12)、(3.1.4-13)を用いる事で、DF の予測値と実測値の比較を行った。

$$(CF_i)_T = \prod_{j=1} (CF_i)_j \quad (3.1.4-12)$$

$$DF = M_I / M_O \quad (3.1.4-13)$$

表 3. 1. 4-8 CF の予測値と実測値の比較

粒径範囲	CF予測値	実測CF値
$X \leq 0.01$	2.5.E-02	1.7.E-01
$0.01 < X \leq 0.02$	2.3.E-02	2.2.E-01
$0.02 < X \leq 0.03$	1.9.E-02	2.3.E-01
$0.03 < X \leq 0.04$	3.9.E-03	9.8.E-02
$0.04 < X \leq 0.05$	1.8.E-04	2.1.E-02
$0.05 < X \leq 0.06$	1.0.E-04	2.6.E-02
$0.06 < X \leq 0.07$	8.2.E-05	4.1.E-02
$0.07 < X \leq 0.08$	0.0.E+00	1.0.E-01
$0.08 < X \leq 0.09$	6.8.E-05	2.1.E-02
$0.09 < X \leq 0.1$	1.0.E-03	6.4.E-02
$0.1 < X \leq 0.2$	3.2.E-03	3.1.E-03
$0.2 < X \leq 0.3$	1.6.E-03	3.1.E-03
$0.3 < X \leq 0.4$	1.0.E-03	7.5.E-04
$0.4 < X \leq 0.5$	8.3.E-04	0.0.E+00
$0.5 < X \leq 0.6$	4.5.E-04	0.0.E+00
$0.6 < X \leq 0.7$	5.0.E-05	4.2.E-03
$0.7 < X \leq 0.8$	6.0.E-04	0.0.E+00
$0.8 < X \leq 0.9$	7.0.E-04	0.0.E+00
$0.9 < X \leq 1.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$1.0 < X \leq 2.0$	1.7.E-05	0.0.E+00
$2.0 < X \leq 3.0$	2.8.E-05	0.0.E+00
$3.0 < X \leq 4.0$	4.2.E-05	0.0.E+00
$4.0 < X \leq 5.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$5.0 < X \leq 6.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$6.0 < X \leq 7.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$7.0 < X \leq 8.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$8.0 < X \leq 9.0$	0.0.E+00	0.0.E+00
$9.0 < X \leq 10$	0.0.E+00	0.0.E+00
合計	1.1.E-04	3.2.E-04

表 3. 1. 4-9 M_0 の算出

粒径範囲	CF(予測値)	投入粒子質量(g)	通過粒子質量(予測値)(g)
$X \leq 0.01$	2.5.E-02	2.2.E-04	5.3.E-06
$0.01 < X \leq 0.02$	2.3.E-02	2.3.E-03	5.2.E-05
$0.02 < X \leq 0.03$	1.9.E-02	2.2.E-03	4.1.E-05
$0.03 < X \leq 0.04$	3.9.E-03	3.8.E-03	1.5.E-05
$0.04 < X \leq 0.05$	1.8.E-04	1.3.E-02	2.4.E-06
$0.05 < X \leq 0.06$	1.0.E-04	1.3.E-02	1.3.E-06
$0.06 < X \leq 0.07$	8.2.E-05	2.5.E-02	2.1.E-06
$0.07 < X \leq 0.08$	0.0.E+00	1.8.E-02	0.0.E+00
$0.08 < X \leq 0.09$	6.8.E-05	5.5.E-02	3.7.E-06
$0.09 < X \leq 0.1$	1.0.E-03	4.2.E-02	4.3.E-05
$0.1 < X \leq 0.2$	3.2.E-03	1.7.E-01	5.6.E-04
$0.2 < X \leq 0.3$	1.6.E-03	3.1.E-01	5.0.E-04
$0.3 < X \leq 0.4$	1.0.E-03	4.2.E-01	4.2.E-04
$0.4 < X \leq 0.5$	8.3.E-04	3.4.E-01	2.8.E-04
$0.5 < X \leq 0.6$	4.5.E-04	4.6.E-01	2.1.E-04
$0.6 < X \leq 0.7$	5.0.E-05	3.7.E-01	1.9.E-05
$0.7 < X \leq 0.8$	6.0.E-04	3.7.E-01	2.2.E-04
$0.8 < X \leq 0.9$	7.0.E-04	3.5.E-01	2.4.E-04
$0.9 < X \leq 1.0$	0.0.E+00	3.4.E-01	0.0.E+00
$1.0 < X \leq 2.0$	1.7.E-05	2.7.E+00	4.5.E-05
$2.0 < X \leq 3.0$	2.8.E-05	3.1.E+00	8.7.E-05
$3.0 < X \leq 4.0$	4.2.E-05	3.6.E+00	1.5.E-04
$4.0 < X \leq 5.0$	0.0.E+00	3.7.E+00	0.0.E+00
$5.0 < X \leq 6.0$	0.0.E+00	4.3.E+00	0.0.E+00
$6.0 < X \leq 7.0$	0.0.E+00	3.4.E+00	0.0.E+00
$7.0 < X \leq 8.0$	0.0.E+00	3.2.E+00	0.0.E+00
$8.0 < X \leq 9.0$	0.0.E+00	4.6.E+00	0.0.E+00
$9.0 < X \leq 10$	0.0.E+00	5.1.E+00	0.0.E+00
合計		37.0320	0.0029

ここで、 CF_i は i 番目の粒径範囲における CF を表す。 $(CF_i)_T$ は j 個のフィルターで作成された複合フィルターでの i 番目の粒径範囲の粒子の CF である。表 3. 1. 4-8 における粒径ごとの CF 値は、式(3. 1. 4-3)を用いて計算した条件 1 と条件 5 での CF_i を、式(3. 1. 4-12)によって掛け合わせることにによって計算したものである。ここで得られた粒径ごとの CF 予測値と、3. 1. 4(6)項で述べた粒径質量分布の考え方によって得られた条件 7 における m_{li} を式(3. 1. 4-6)に用いると、フィルターを通過した粒子質量の合計値 M_0 を計算することができる。ここで得られた M_0 を式(3. 1. 4-13)に用いる事で、粒径分布から DF(予測値)を計算することができる。この結果を表 3. 1. 4-9 にまとめた。得られた結果より DF(予測値)を計算すると、DF=12754 となった。

複合フィルターにおける各圧力データの時間変化を見たとき、圧力の変化の仕方が単一フィルターと比べて直線的であることが分かる。これは目詰まりを起こして圧力が上がっていく際の様子が、単一フィルター（用いた線径が一種類の WF）と複合フィルターで異なるからだと考えられる。この現象を、フィルター内に粒子が詰まっていく際の模式図の図 3. 1. 4-49 を用いて説明していく。単一フィルターでは一箇所、複合フィルターでは用いた線径の種類に応じて複数箇所の部分で圧力が上昇していく（これは模式的に説明しているものであり、実際には図中の灰色の部分にも粒子が詰まっている）。単一フィルターのように一箇所で圧力が高まっていく場合、どのサイズの粒子が積もっていても圧力が上昇していく。複合フィルターの場合は粒子のサイズごとに堆積し、その部分ごとに圧力が上昇していく。そのため、単一フィルターでは粒子のサイズによらず堆積すれば圧力が高まっていくのに対して、複合フィルターではある程度同じサイ

ズの粒子が堆積していくことによって圧力が上昇していくため、圧力の上昇が緩やかになる。つまり、線径の異なる WF を用いることによって粒子をサイズごとに分けてフィルターに堆積させ、それによって急激な圧力上昇を緩和しているということが分かった。

また、複合フィルター全体のもう一つの特徴として、粒子の投下にかかる時間が単一フィルターと比較して長くなっていることが挙げられる。これに関して、損失係数の算出に用いた風速のデータを比較して考える。条件 2～8 の実験終了時のフィルター直前の風速の値を表 3. 1. 4-10 に示す。

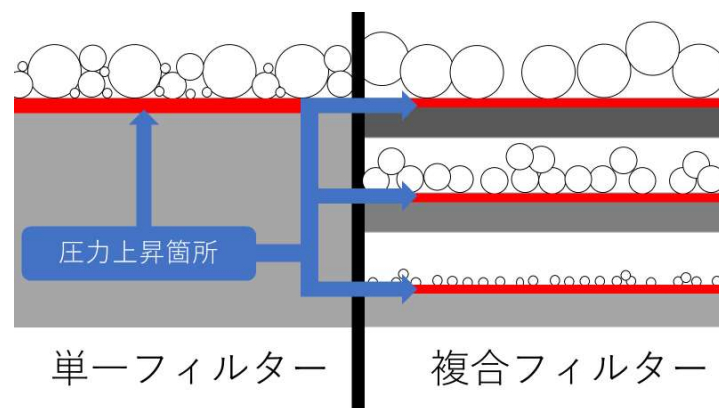


図 3. 1. 4-49 フィルター目詰まり模式図

表 3. 1. 4-10 各条件での風速

	条件2	条件3	条件4	条件5	条件6	条件7	条件8
最大風速(m/s)	2.1	1.9	1.7	2.4	1.6	1.9	2
実験終了時風速(m/s)	0.7	0.7	0.6	0.5	0.2	0.3	0.5

表 3. 1. 4-10 より、複合フィルター(条件 6～8)は使用開始時から圧損が大きく最大風速も小さいが、風速が小さくなくても測定が終了していないことが分かる。つまり、複合フィルターは風速が小さくなくても内部の圧力があまり大きくならない傾向があり、実験装置内部に流れる風量が少ないので粒子が微粒子連続供給装置から供給されにくくなって、粒子の投下に時間がかかってしまうことが分かる。損失係数の計算式から風速(u_{Fi})が小さいと損失係数が大きくなることが分かる。実際に損失係数の時間変化を比較して見ると、単一フィルターでは損失係数がおよそ 4000 に達した時に圧力が最大値となって測定を終了していたが、複合フィルターでは 10000～40000 程度まで損失係数が上昇した所で測定を終了している。

これらをまとめると、複合フィルターは単一フィルターと比較して多層構造にすることによって緩やかな内圧の上昇を持続することができ、それによって圧力損失が大きくなっても稼動し続けることができるということが分かった。

条件 6 について詳しく見ると、硫酸バリウムを 0～25g 投入している最中ではほとんど圧力の変化が起こっておらず一定の値を示している。これより図 3. 1. 4-49 で示したように、投入した粒子が粒径ごとに分かれて堆積したことで、フィルターの空気流路を障害せずに粒子を取り込むことができたことが分かる。その後粒子を投入していくと前述の通りに、粒子の投入終了にかかる時間が長くなっていき、最終的に 75g 投入したの

とほぼ同時に DP02 が 12kPa に達した。粒子を 50g 投入した後は単一フィルターに似た圧力の時間変化を示していることから、50g ほど投入したときに、線径ごとに層構造になっているフィルター内部のどこかの層で目詰まりが起こり、内部圧力が高まっていったことが分かった。

同様に条件 7 について詳しく見ると、条件 6 と比べて単一フィルターに近い圧力データの時間変化を示していることが分かる。これは、条件 7 が WF-2 と WF-12 の二種類のみという複合フィルターとしては最もシンプルな構造をしており、**図 3.1.4-49** に示したような層別に粒径ごとに粒子が堆積することによる圧力上昇の緩和が起こりにくくなっているためだと考えられる。これも 0～25g 投入時と 25～50g 投入時には圧力上昇の仕方が異なっており、後半にかけて単一フィルターに近いものとなっている。

条件 8 は条件 6 を簡素にしたものであり、条件 6 に WF-30 を二枚追加した構造をしている。DF 値は誤差も含めて条件 7 とほぼ同じ結果となっているが、圧力の時間変化のグラフの形は条件 6 を引き伸ばしたような形をしており、WF-30 を上部に追加することで DF 値に及ぼす影響は少ないが、圧力の増加を緩和する点において有効であることが分かった。

これらをまとめると、複合フィルターは様々な種類の WF を用いてより多層にすることによって圧力の急激な増加を緩和することができ、線径の小さな WF を追加することでより高い DF 値を記録することができるようになることが分かった。また、線径の大きな WF を追加することによって圧力の上昇を緩やかにすることができるようになり、長時間の運用が可能になるということが分かった。

次に条件 6 の粒径分布図について詳しく見ると、粒径 0.2 μ m 以上のものが全く観測されないほどに粒径の大きいものは除去されていたことが分かる。しかし**表 3.1.4-7** より粒径ごとの CF 値を確認すると、全体の CF 値は 0.000013 もの小さなものであるのにも関わらず、0.2 μ m 以下の粒子においては CF 値が大きめに出ていることが分かる。これより微細粒子においてはフィルターを組み合わせるだけでは完全に除去することができず、フィルターを通過してしまっていることが分かった。

条件 7 の粒径分布について、**表 3.1.4-8** の予測値と測定値を比較すると誤差があることが分かる。粒径の大きい範囲では CF 値が 0 となっているため誤差が少ないといえるが、粒径が小さい範囲での誤差は大きいものとなっている。

実機でフィルターを実際に使用する場合、使用後に廃棄されるフィルターの量は最小限にすることが求められる。そのため、同程度の DF 値を出す場合にはフィルターが少ないほうが好ましい。

(8) 湿式・乾式統合フィルターシステム実験

以上の WF や NF を用いた乾式フィルターシステムの上流に、湿式フィルターを直列に接続した湿式・湿乾統合フィルターシステムを用いて DF の測定を行った。実験装置全体は**図 3.1.4-50** のような構造をしており、湿式フィルターは今まで用いてきた乾式フィルターシステムの実験装置とは異なり、湿式フィルターの手前から粒子を供給した。そのまま直列に湿式フィルターと乾式フィルターをつなげると湿った空気が流れ込み、乾式フィルターが湿ることで装置に詰まりが生じる可能性があるため、ミストセパレータを用いる事

でそれを防止した。

DF 測定実験と同様に HEPA フィルター上の質量変化から DF 値の測定を行った。湿式フィルターシステムは図 3.1.4-51 に示した構造をしており、水中で粒子を含んだ空気を攪拌させることによって空気中の粒子を除去する。このときの湿式メタルファイバーシステムが作動している様子は図 3.1.4-52 のようになっている。また、いままでの DF 測定と同様に、各部の圧力データと風速、空気と温度の時間変化も記録した。

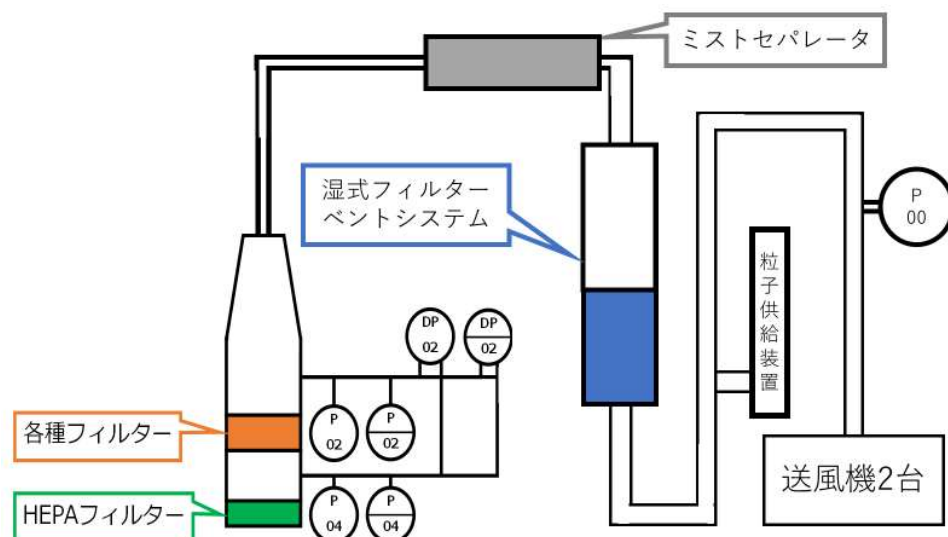


図 3.1.4-50 湿乾複合フィルターシステム図

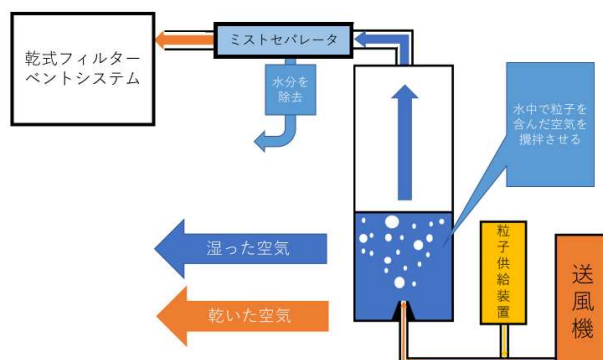


図 3.1.4-51 湿式フィルター概要図



図 3.1.4-52 湿式フィルター作動時

乾式フィルター部分に関しては以下の条件で実験を行った。

- ・ WF-12 充填率 1 % 投入枚数 1 枚

測定は湿式フィルターに注水を開始すると同時に開始し、水位が十分上昇した所で送風機の電源を入れて送風を開始した後、測定開始から 90 秒経過時点で粒子の投入を開始した。粒子は 100g のみ投入した。この湿式フィルターと乾式フィルターの組み合わせを条件 9 とした。

実験後の HEPA フィルターは、ミストセパレータでは除去し切れなかった湿度の高い空気が乾式フィルター内に流れていたことによって水分を多く含み、質量が大幅に増加していたために 12 時間ほど乾燥させた。その後電子天秤を用いて質量の変化分を測定し DF 値を算出した所、DF=3460 となった。

(9) 最高性能複合フィルターの決定

以上で得たデータを元にして、使用後の廃棄物質の少なさやフィルター性能を考慮したうえで、実機で使用する際に最適だと思われる最適複合フィルターを作成し、DF 測定を行いその性能を確認した。

用いる複合フィルターの構成は以下の図 3.1.4-53 のようにした。この条件を条件 10 とした。(条件 10) NF-20

WF-8 1枚 充填率 1 %、WF-12 1枚 充填率 1 %、WF-30 1枚 充填率 1 %

これまでの実験より、条件 6 においては WF-2 によって NF-20 の性能を活かしきることができなかったことが分かっており、単一フィルターの実験においても同じような圧力変化を示していた WF-2 と NF-20 を同時にフィルターに組み込む必要性はないと考え、より高い DF 値を示した NF-20 のみを用いた。NF-20 は他のフィルターと複合させて目詰まりを防止していくことで高い除染性能を発揮することが分かったので、組み合わせるフィルターは目詰まりを防止し圧損を低下させることに特化して用いた。そのため、充填率をなるべく低く 1 %に統一して圧損を低下させた。また、様々な線径のフィルターを用いる事で、圧力上昇箇所を段階的に分散できることが分かっているため、WF-30、WF-12、WF-8 をそれぞれ用いた。フィルター総質量をなるべく小さくするため、投入枚数は 1 枚ずつとした。条件 10 において、得られた DF 値は DF=67506 となった。

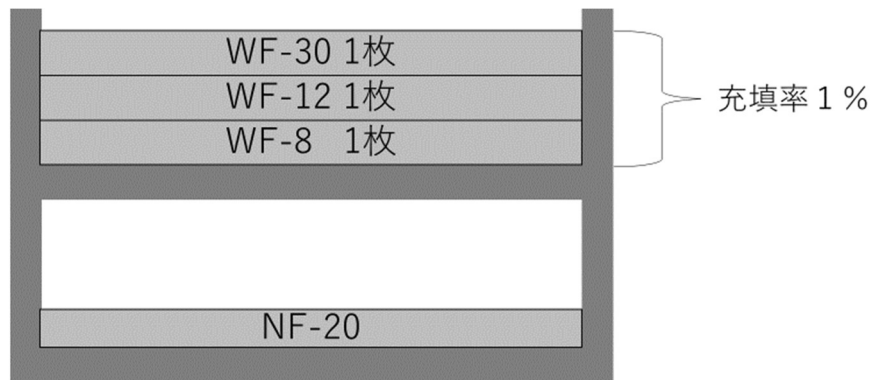


図 3.1.4-53 複合フィルター 条件 10

条件 6 と比較して条件 10 では主に WF-2 部分をフィルターの構成から除いたが、各部圧力と損失係数の時間変化の仕方はほぼ同様の動きを見せており、複合フィルターの特性とも合致する。条件 6 と条件 10 での DF 値、投入することができた硫酸バリウム粒子量、用いたフィルターそのものの合計質量を以下の表 3.1.4-11 にまとめた。条件 10 では条件 6 と比較して、DF 値、投入した硫酸バリウム質量はほとんど同じであり、わずかに条件 10 が劣っている。しかし、フィルター総質量を比較すると、条件 10 は条件 6 の半分のフィルター質量でこの性能を出しており、ほぼ条件 6 と同等の性能を持ちながら半分の廃棄量で稼働させることが可能であることが分かる。これは 3.1.4(7)項で述べたように、条件 6 の組み合わせでは WF-2 があるために NF-20 に粒子がほとんど届いておらず、NF-20 の除染性能を出し切っていなかったためであると考えられる。条件 10 では NF-20 がある最下

層の部分まで粒子が届いており、NF-20 はその除染性能をより発揮することができた。またこの結果から、複数の線径のフィルターを用いて複合フィルターを作成する際にはなるべく多くの種類の線径のフィルターを用いる事が目詰まりを防止する上で重要であることが改めて分かった。これより実機で用いる際には条件 10 がこれまでの条件 1～10 の中で最も適していることが考えられる。

表 3.1.4-11 条件 6 と条件 10 の比較

	DF	投入した硫酸バリウム質量(g)	フィルター総質量(g)
条件6	75155	75.2	121.1
条件10	67506	67.5	61.6

DF 値は最大で 75155 まで上昇させることができた。乾式フィルターシステムに湿式フィルターシステムを接続した湿乾統合フィルターは、DF 値を上昇させる上で効果的であることが分かった。しかし実機で使用した際、湿式フィルターで発生する放射性粒子を含んだ汚染水は、ALPS などの汚染水処理システムで処理する。DF 値を DF=75155 から DF=67506 とわずかに減少したもののほぼ一定を保ちながら、用いたフィルターの総質量を 121g から 62g まで減少させることができた。これより複合フィルターの性能を大幅に向上させることができた。

参考文献

- (1) 奈良林 直ほか、ゼオライトを用いた高除染性フィルタードベントシステムの開発 (10) 乾式フィルタードベントの金属フィルターの性能評価、原子力学会秋の大会 F16(2016)
- (2) 奈良林直, 千葉豪, 小崎完, 増田隆夫, 中坂佑太, 佐藤修彰, 秋山大輔、多核種高除染性空気浄化システム開発による作業被曝低減化研究 (1) 全体計画、原子力学会春の年会, 1D20, (2016).
- (3) 奈良林 直, 石井亮憲, 千葉豪, 佐藤修彰, 増田隆夫, 多核種高除染性空気浄化システム開発による作業被曝低減化研究 (3) メタルファイバーフィルターの吸着メカニズムと除染係数の測定, 原子力学会, 春の年会, 1K08, (2017).
- (4) 奈良林直, 石井亮憲, 渡邊優太, 千葉豪, 佐藤修彰, 増田隆夫, 多核種高除染性空気浄化システム開発による作業被曝低減化研究 (4) 吸着実験に基づく被曝低減技術の基本コンセプトの検討, 原子力学会, 秋の年会, 2F17, (2017).
- (5) T. Narabayashi et.al, Development of High Efficiency Containment Venting System and Air Cleaning System by Using RASA AgX, ICONE25-68030 (July,2017).
- (6) T. Narabayashi, Restart Status of Japanese NPPs & Super Engineer Education Project: Development of High Efficiency Multi-Nuclide Aerosol Filters for Radiation Protection for Decommissioning Fukushima Daiichi. North American ISOE ALARA Symposium (Jan.,2018), [Invited Award Lecture].

3.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

(H27～H29)

3.2.1 吸着剤設計法構築の目的

ゼオライトは多孔性の結晶性アルミノ珪酸塩であり、四面体構造を持つ SiO_4 及び AlO_4 が 3 次元的に連結することで結晶構造を形成している。ゼオライトの構造についてはこれまでに多数の報告があり、国際ゼオライト学会 (International Zeolite Association, IZA) ではおよそ 230 種類のゼオライト構造が紹介されている¹⁾。ゼオライトは、その結晶内に 0.4～0.8nm 程度と炭化水素種と同程度の細孔を有しており、ゼオライトの構造によりその細孔径は異なる。また、その表面積は 1g 当たり数百平方メートルと大きく熱安定性も高いことから触媒や吸着剤、膜としての利用が検討されている。更に、ゼオライト骨格中には Si に比べ低原子価の Al が含まれるために負の電荷が生じており、この電荷を中性にするためにプロトンやアルカリ、アルカリ土類、遷移金属種を導入できる。そのため、ゼオライト表面への物理的な吸着に加え、導入する金属上への化学的な吸着も生じる。一方で、ゼオライトの吸着サイトのほとんどがゼオライト結晶内に存在しているため、分子はバルク流体中からゼオライトの外表面上に吸着した後、細孔内を拡散して吸着サイトに到達する。上述の通り、ゼオライトの細孔径は 0.4～0.8nm と炭化水素種の分子径に近い値であることから、拡散分子はゼオライト結晶内の壁の影響を受けながら細孔内を拡散するため、ゼオライト結晶内の拡散速度が吸着速度を支配する。よって、高効率なヨウ化メチルの吸着除去には高い吸着容量を有し、結晶内拡散速度が速い吸着剤の開発が求められる。ゼオライト結晶内の見かけの拡散速度は、ゼオライト結晶内における拡散係数 (D) を拡散距離 (L) の二乗値で除した値 (D/L^2) で評価できるため、吸着剤としてのゼオライトの設計法構築達成には、ゼオライト結晶内におけるヨウ化メチルの拡散係数 (D) の情報とゼオライト結晶径 ($2L$) の制御が求められる。ゼオライト結晶内における炭化水素の拡散係数 (D) に及ぼす因子として、ゼオライトの構造 (拡散分子径とゼオライトの細孔径の関係)、骨格中に含まれる Al 量 (酸量) 及び Ag イオン交換率 (吸着サイトの影響) が挙げられる。また、ゼオライト結晶径については、ゼオライトの合成条件 (合成溶液組成、温度、合成反応場) により粒径を制御することができる。一方、格納容器内などに使用される塗料や電気の絶縁材、ハッチなどのパッキンなどに有機物が使用されており、塗膜や破片、パーティクルとなって炭化水素の発生源となっていると考えられている。ゼオライト細孔径よりも分子サイズの小さい炭化水素はゼオライト細孔内に侵入することが可能であるため、実際の系ではヨウ化メチルと炭化水素の競争吸着が起これらと考えられる。特にゼオライト結晶内の拡散が遅い分子は、拡散の速い分子の拡散速度を支配するため、ヨウ化メチルに加えて他の炭化水素の拡散の情報が必要となる。また、エアロゾルのような比較的大きな物質がゼオライトのフィルター層内へ侵入することで、圧力損失の向上、ヨウ化メチル吸着速度の低下が懸念される。そこで、ゼオライトナノ結晶を積層させたゼオライト膜を用いることでエアロゾルの吸着を抑制し、ヨウ化メチルを高効率に吸着分離することが可能であると期待される。本研究では、異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成並びにゼオライトの細孔内のヨウ化メチル、炭化水素の拡散係数測定を目的とした。

3.2.2 異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成 (H27~H29)

実際の銀ゼオライトを用いたヨウ化メチルの吸着除去プロセスでは水蒸気が伴う。研究開始後に、銀ゼオライト上でヨウ化メチルが分解することが明らかになり、ヨウ化銀 (AgI) の生成と同時にヨウ化水素 (HI) が生成すると考えられる。ヨウ化水素は水に溶けやすく、水蒸気共存下ではゼオライトの細孔内部に水が凝縮することからゼオライト細孔内部は酸性条件になる。そのため、当初予定していた A 型ゼオライトではゼオライト骨格中の Al の脱離が進行することでゼオライトが崩壊することが予想される。そこで、pH=2 の酸性溶液中に A 型ゼオライトを入れ、80℃、24 時間混合した所、A 型ゼオライトが溶解しゼオライトの骨格構造を維持できないことが明らかになった。そこで、本研究では水蒸気雰囲気並びに酸性溶液への耐性がある MFI 型ゼオライト並びに開発協力委託先であるラサ工業株式会社にて実績のある FAU 型の骨格構造を有する X 型ゼオライトを中心に合成を実施した。

(1) MFI 型ゼオライト (平成 27~28 年度)

結晶サイズの異なる MFI 型ゼオライトは一般的な水熱合成法とエマルション法²⁾の 2 種類の方法により合成した。

【合成方法 1 (試料 1、試料 2)】オルトケイ酸テトラエチル (Si 源)、アルミニウムイソプロポキシド (Al 源)、10%テトラプロピルアンモニウムヒドロキシド溶液を含む水溶液を調製し、室温で 24 時間攪拌した。本水溶液をポリオキシエチレン (15) オレイルエーテル (O-15) とシクロヘキサンを混合した溶液に上記混合液をシリンジポンプによって精密に滴下し混合させ、150℃、24 時間の水熱条件で合成を行った。なお、水溶液と O-15 の比を変化させて結晶サイズ制御した。

【合成方法 2 (試料 3)】ケイ酸ナトリウム (Si 源)、硫酸アルミニウム (Al 源)、臭化テトラ-*n*-プロピルアンモニウムを含む水溶液を調製し、150℃、72 時間の水熱条件で合成を行った。

得られた白色粉末試料は、2-プロパノール及び蒸留水で洗浄、乾燥した後、空气中 550℃で焼成した。以上により得られた粉末の結晶構造は粉末 X 線回折、細孔特性については窒素吸着、形態については電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) により確認した。

図 3.2-1 に得られた白色粉末試料の粉末 X 線回折パターンを示す。いずれの試料においても MFI 型ゼオライトに由来するパターンが得られており、得られた白色粉末は MFI 型ゼオライトであることを確認した。図 3.2-2 は、得られた試料の FE-SEM 像による観察結果を示す。図示の通り、合成方法 1 を用いることで、ナノメートルオーダーの MFI 型ゼオライトが形成した。また、O-15 とシクロヘキサン混合溶液に対する水溶液量を増加させることで、100nm、300nm と異なる結晶サイズの MFI 型ゼオライト (Si/Al=100) を合成できた。更に合成方法 2 を用いることで、マイクロメートルオーダーの結晶サイズを有する MFI 型ゼオライトが合成された。

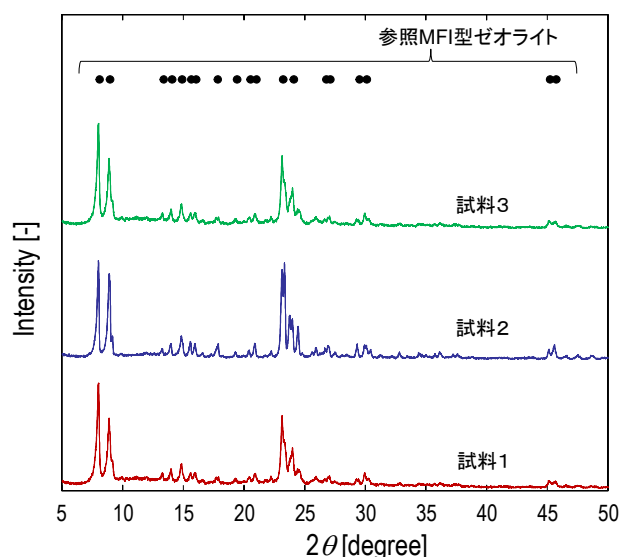


図 3.2-1 粉末 X 線回折パターン（MFI 型ゼオライト合成）

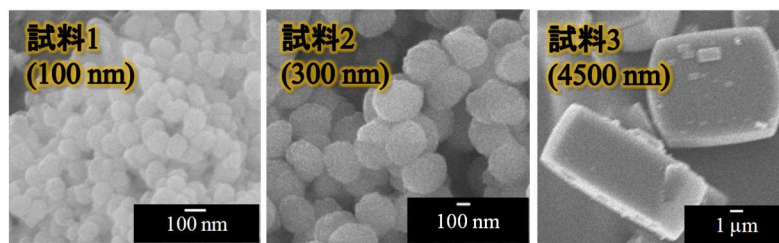


図 3.2-2 合成した MFI 型ゼオライトの FE-SEM 像

(2) FAU 型ゼオライト（X 型、Y 型）（H27～H29）

X 型ゼオライト合成の検討には、Si 源としてコロイダルシリカあるいはオルトケイ酸テトラエチル（TEOS）、Al 源としてアルミニウムイソプロポキシド、アルカリ源として水酸化ナトリウムを用いた。また、有機構造規定剤にはテトラメチルアンモニウムヒドロキシド（TMAOH）及びテトラメチルアンモニウムブロミド（TMABr）を使用した。Si 源、Al 源、アルカリ源及び有機構造規定剤を含む合成水溶液を調製した後、耐熱性容器（オートクレーブ）に入れ、導入した水熱合成装置を用い、80～150℃の水熱条件下で 24 時間撹拌し合成を行い、白色の固体を得た。水熱合成後、洗浄、乾燥を行い、550℃で 12 時間焼成を行った。得られた試料の構造解析は X 線回折装置（Cu-K α 線）、結晶形態観察は電子顕微鏡により行った。

合成溶液中の Si/Al 比が 1.5 の条件で、合成に用いる Si 源の種類の影響を検討した。得られた試料の X 線回折パターンを図 3.2-3 に示す。図より、用いた Si 源種によらず得られたゼオライトは LTA 型の構造を有することが分かった。また、平成 28 年度の合成検討で Na/Al 比を変えることで得られる FAU 型ゼオライトの粒径変化が確認されたことから、異なる Na/Al 比で合成を検討したが、いずれも LTA 型ゼオライトの構造を有することが分かった。次に Si 源をコロイダルシリカに固定し、Si/Al=1.0 としゼオライト合成溶液中の有機構造規定剤(OSDA)であるテトラメチルアンモニウムヒドロキシド（TMAOH）量、

aging 時間（水熱合成前の室温での攪拌時間）の影響について検討したが、いずれの場合においても得られる結晶構造は LTA 型であった。LTA 型ゼオライトは FAU 型ゼオライトと同様にソーダライト cage を有するゼオライトであり、特に $\text{Si}/\text{Al}=1.0$ の条件では LTA 型ゼオライトが安定相のためと考えられる。そこで、合成溶液中の Si/Al 比を 1.3 とし、合成温度の影響を検討した。100℃で一部 FAU 型ゼオライト由来のパターンが確認されるものの、得られる主たるゼオライト層は合成温度によらず LTA 型であることが分かった。

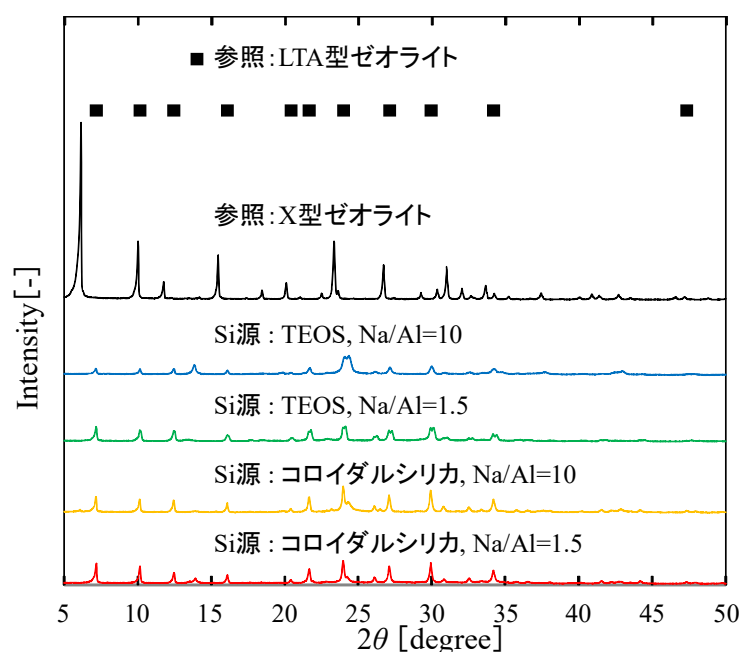


図 3.2-3 異なる Si 源を用いた合成により得られた試料の X 線回折パターン

ゼオライトを種結晶として合成溶液に添加することで、同一構造ゼオライトの有機構造規定剤フリー合成や添加した種結晶とは異なる構造のゼオライト合成が検討されている^{3,4)}。そこで、X 型ゼオライトを種結晶とした合成を検討した。まず、X 型ゼオライト添加量、合成温度、合成時間の影響を検討したが、添加量、合成温度によらず LTA 型ゼオライト構造を有する試料が得られた。一方で、合成時間を長くすることで SOD 型の構造が得られることが分かった。更に、合成溶液中の OH 濃度、 Si/OSDA 比の影響を検討したが、いずれの条件でも得られる主たる結晶相は LTA 型あるいは SOD 型であり、FAU 型ゼオライトは得られなかった。

Ferdov らは、OH 濃度の高い合成溶液を用い、65℃の低温で長時間合成を行うことで特異な結晶形態を有する X 型ゼオライトの合成に成功しており、その結晶成長過程において粒径の小さいゼオライトが形成している⁵⁾。そこで、Ferdov らの報告に従い水熱合成時間 24～48 時間の条件で合成を行った。得られた試料の X 線回折パターンを図 3.2-4 に示す。図より、市販されている X 型ゼオライトと同様の X 線回折パターンを示したことから FAU 型のゼオライトが得られていることが確認できた。図 3.2-5 は得られた試料の FE-SEM 像を示す。図より小さいゼオライト結晶が凝集して 1μm 以下の二次粒子を形成していることが考えられる。そこで、X 線回折パターンから Scherrer の式を用いてゼオライト結晶

径を算出した所、いずれの試料においても結晶径は 40nm と算出された。更に得られた試料の XRF 測定を実施した所、市販の X 型ゼオライトと同程度の値であった。

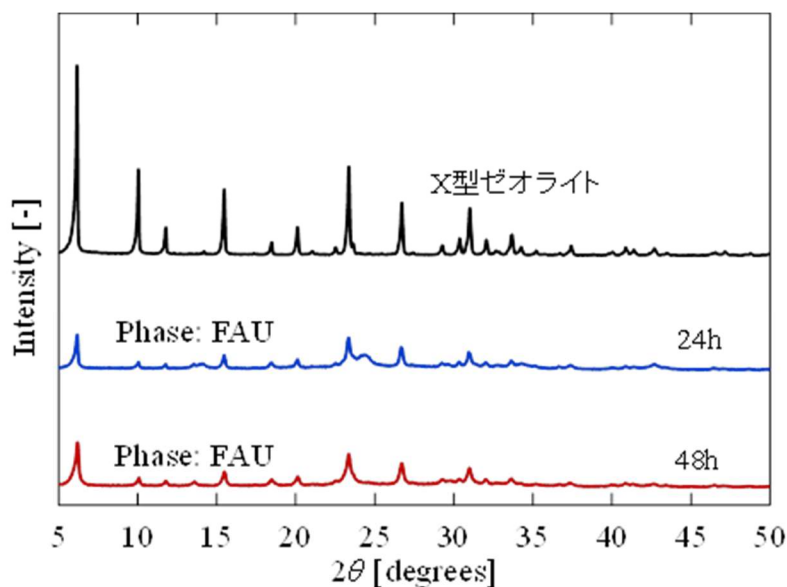


図 3.2-4 低温合成における水熱合成時間の影響

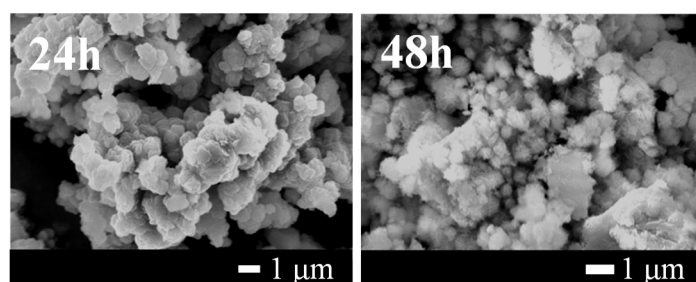


図 3.2-5 低温合成により得られた試料の電子顕微鏡写真

Y 型ゼオライトの合成は一般的な水熱合成法により調製した。Si 源としてコロイダルシリカ、Al 源としてアルミン酸ナトリウム、アルカリ源として水酸化ナトリウムを用いた。コロイダルシリカ、アルミン酸ナトリウム、アルカリ源及び界面活性剤を含む水溶液を調製した後、耐熱性の容器（オートクレーブ）に入れ、平成 28 年度に導入した水熱合成装置を用い、115℃の水熱条件下で 24 時間攪拌し合成を行い、白色の固体を得た。水熱合成後、2-プロパノール及び蒸留水を用いて得られた白色固体を洗浄し、乾燥させた。更に、不純物除去を行うため、550℃で焼成を行った。また、Y 型ゼオライト合成溶液の Na/Al 比の制御は臭化ナトリウムを用いて行った。得られた試料の構造及び結晶形態は X 線回折装置、走査型電子顕微鏡を用いて行った。

Y 型ゼオライトの合成は合成溶液中の Si/Al 比が 5 の条件で実施した。合成溶液中の Na/Al 比が 10 及び 20 の条件で合成した試料の XRD パターンを図 3.2-6 に示す。図より合

成した試料はいずれの場合においても FAU 型ゼオライトに由来するパターンを示した。この結果より、本合成方法により Y 型ゼオライトが合成できたことを確認した。図 3.2-7 は Na/Al 比が 10 及び 20 の条件で合成した試料の SEM 像を示す。SEM 像からナノメートルオーダーの結晶が凝集し 1 μm 程度の二次結晶を形成していることが観察された。そこで、図 3.2-6 に示した XRD パターンの結果から Scherrer 式により合成したゼオライトの結晶サイズを推算した。結果を表 3.2-1 に示す。Na/Al 比が 10、20 の試料ともに 100nm 以下の粒径であることが分かった (Na/Al 比が 10 の時 65nm、20 の時 49nm と算出された)。更に、Na/Al 比が大きくなることで粒径が小さくなった。これは、合成溶液中の Na 濃度の増加に伴い、ゼオライト合成時の核発生が促進されたためと考えられる。また、Na/Al 比が 6 の条件においても合成を実施した所、図 3.2-8 に示すように、1 μm 程度のマイクロオーダーの結晶が得られた。以上の結果より、Y 型ゼオライトにおいては合成溶液の Na/Al 比を変えることでナノからマイクロサイズのゼオライトを合成できることが分かった。

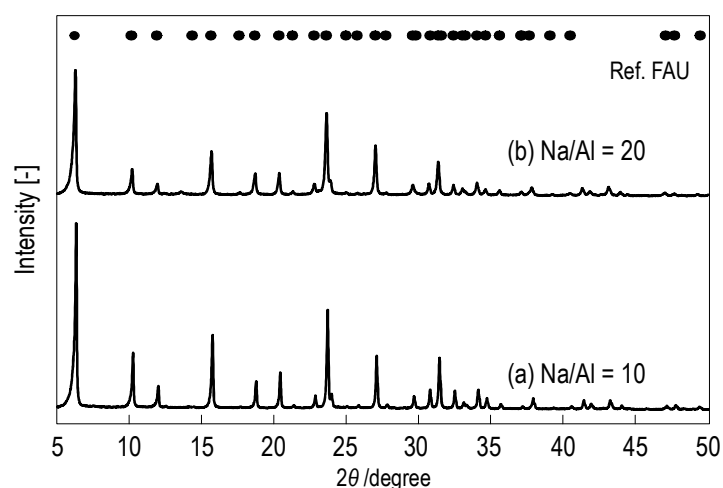


図 3.2-6 Na/Al=10 及び 20 の条件で合成した試料の X 線回折パターン

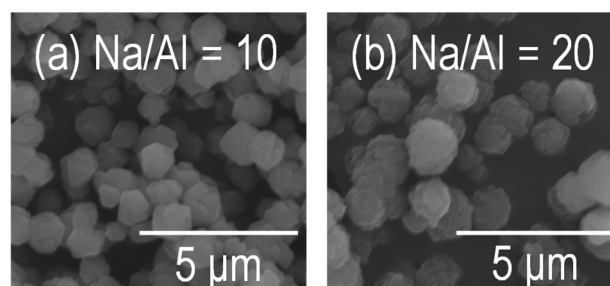


図 3.2-7 Na/Al=10 及び 20 の条件で合成した試料の電子顕微鏡写真

表 3. 2-1 Scherrer 式から得られた合成したゼオライトの粒子径

Na/Al比	粒子径 [nm]
10	65
20	49

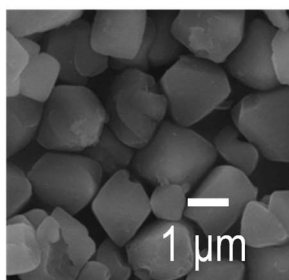


図 3. 2-8 Na/Al=6 の条件で合成した試料の電子顕微鏡写真

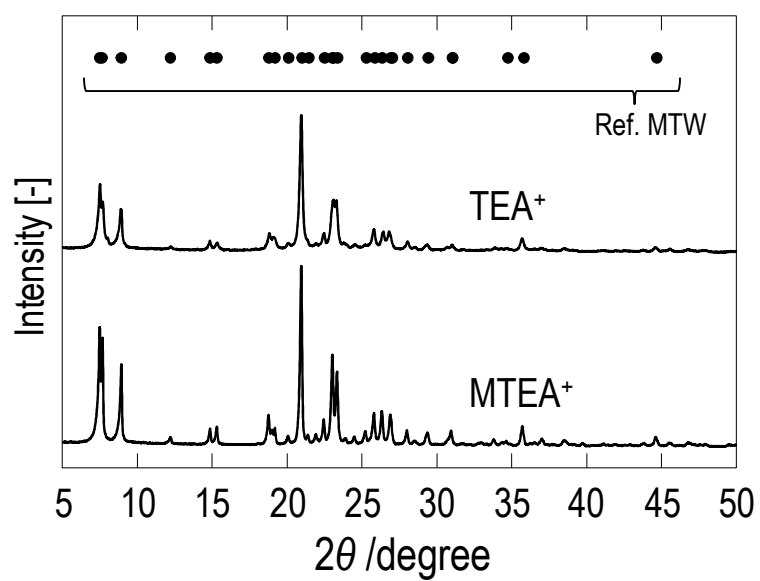


図 3. 2-9 異なる構造規定剤を用いて合成した試料の X 線回折パターン

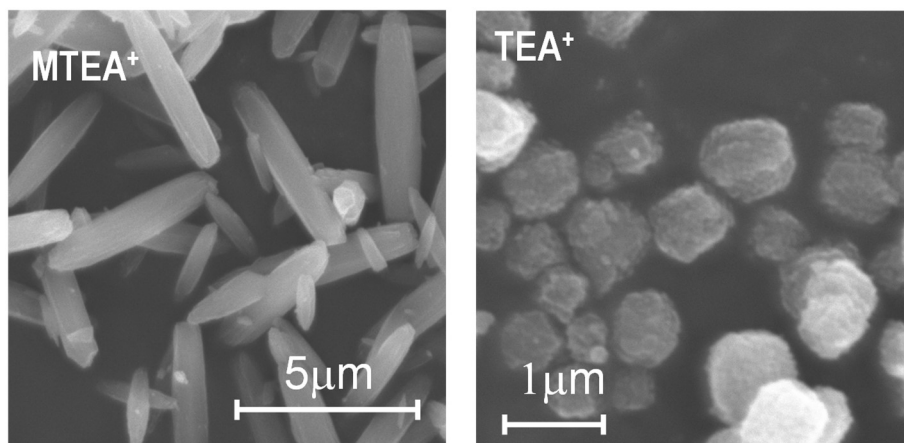


図 3.2-10 異なる構造規定剤を用いて合成した試料の電子顕微鏡写真

(3) MTW 型ゼオライト (H28)

X 型や Y 型ゼオライト同様に酸素 12 員環細孔を有し、MFI 型ゼオライト及び Y 型ゼオライトの中間的な細孔径を持つ MTW 型ゼオライトの合成を検討した。MTW 型ゼオライトの合成は一般的な水熱合成法により合成を行った。また、MTW 型ゼオライトの疎水化を目的としフッ化物法による合成を実施した。MTW 型ゼオライトは、Si 源にコロイダルシリカ、Al 源にアルミン酸ナトリウム、アルカリ源及び硬化剤として水酸化ナトリウムを用いた。有機構造規定剤には、テトラエチルアンモニウムブロミド (TEABr) 及びメチルトリエチルアンモニウムクロリド (MTEACl) を用いた。これらの原料を含む水溶液を調製したのち、水溶液をオートクレーブへ入れ 150℃、144 時間の条件で水熱合成装置を用いて合成を行った。得られた試料は 2-プロパノールを用いて洗浄を行い、110℃、24 時間の条件で乾燥を行った。更に、生成物を 150℃、12 時間の条件で焼成を行った。

合成した生成物の構造解析は X 線回折装置、形態観察は電子顕微鏡、細孔特性評価は窒素吸着測定装置を用いて行った。ゼオライトの親疎水性評価は、25℃における水の蒸気吸着等温線の測定により行った。

図 3.2-9 に異なる有機構造規定剤 (OSDA) を用いて合成した白色粉末試料の粉末 X 線回折パターンを示す。いずれの試料においても、MTW 型ゼオライトに由来するパターンが得られており、得られた白色粉末は MTW 型ゼオライトであることを確認した。図 3.2-10 に得られた MTW 型ゼオライトの電子顕微鏡観察結果を示す。MTEA カチオンを用いて合成した MTW 型ゼオライトは、1000～4000nm 程度の大きな粒子径を有しているのに対し、TEA カチオンを用いた合成では、粒子径 50～100nm のナノ結晶が凝集して二次粒子を形成していることが確認された。以上から、異なる有機構造規定剤を用いて MTW 型ゼオライトを合成することで、結晶径の大きく異なる MTW 型ゼオライトが合成できたことを確認した。更に、両試料に対し窒素吸脱着測定、NH₃-TPD による酸量測定を行った所、異なる有機構造規定剤を用いて合成した MTW 型ゼオライトは結晶サイズのみが異なり、ミクロ孔容積や BET 表面積、酸量などの特性はほぼ同一であることを確認した。

(4) 希ガス吸着 (H29)

希ガス吸着剤の開発が求められており、最近 Ag イオン交換ゼオライトが注目されている(論文調査結果)⁶⁾。ゼオライトによる希ガス吸着能を検討するため、希ガスにはキセノン、クリプトンを用いた。ゼオライトには、合成した LTA 型、Y 型、MFI 型ゼオライトを用いた。イオン交換による吸着特性の違いを検討するため、合成したこれらゼオライトの活性点をナトリウムから銀やカルシウムにイオン交換し用いた。吸着特性は、マイクロトラック・ベル社製の Belsorp-Max を用い 25℃の吸着等温線を測定した。図 3.2-11 は、イオン交換金属種の異なる FAU 型ゼオライトを用いてキセノン吸着等温線を測定した結果を示す。Ag-FAU は Na-FAU や Ca-FAU に比べ高いキセノン吸着能を有することが確認された。そこで Ag イオン交換した細孔径の異なるゼオライトを用いキセノン吸着等温線を測定した。図 3.2-12 は FAU、MFI、LTA 型ゼオライトを銀イオン交換して得られた Ag-FAU、Ag-MFI、Ag-LTA 型ゼオライト(以下 Ag-FAU、Ag-MFI、Ag-LTA)のキセノン吸着等温線を示す。Ag-FAU、Ag-MFI でキセノンの吸着が確認された。一方で、細孔径の小さい Ag-LTA ではキセノンは吸着しない結果が得られた。これは、Ag-LTA の細孔径が約 0.4nm であるのに対し、キセノンのファンデルワールス径が約 0.43nm と細孔径よりも大きいため、キセノンは細孔内へ拡散できなかったためと考えられる。また、FAU 型ゼオライトと MFI 型ゼオライトは、細孔径、ミクロ孔容積が FAU 型ゼオライトの方が大きいにも関わらず、キセノン吸着能はほとんど等しいことが分かった。以上から、Ag-FAU、Ag-MFI はキセノン吸着に有効であることが確認された。

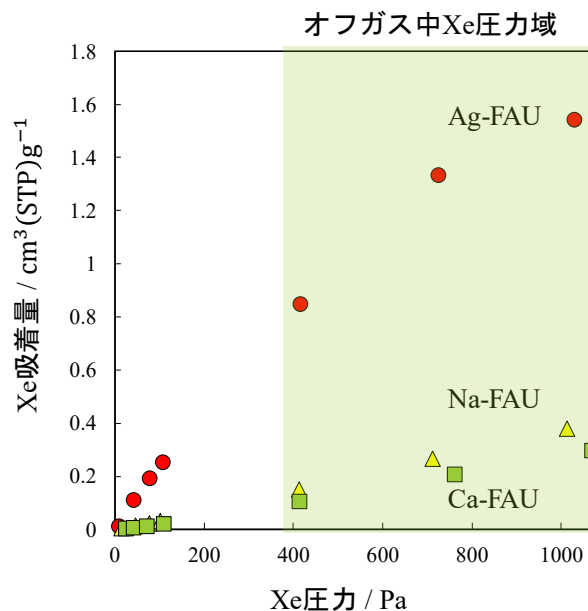


図 3.2-11 イオン交換金属種の異なる FAU 型ゼオライトを用いたキセノン吸着等温線(25℃)

次に、各種イオンに交換したゼオライトを用いてクリプトンの吸着等温線を測定した。図 3.2-13 は、クリプトンの吸着等温線を示しており、Ag-MFI が Ag-LTA や Ag-FAU に比べて高いクリプトン吸着能を示すことが分かった。イオン交換金属種の影響を検討した所、MFI 型ゼオライトでは Na-MFI、Ca-MFI が Ag-MFI に比べ高いクリプトン吸着能を示すこと

が分かった（図 3.2-14）。また、Na-MFI、Ca-MFI を用いてキセノンの吸着等温線を測定した所、Ag-MFI に比べて高いキセノン吸着能を示すことが明らかになった。

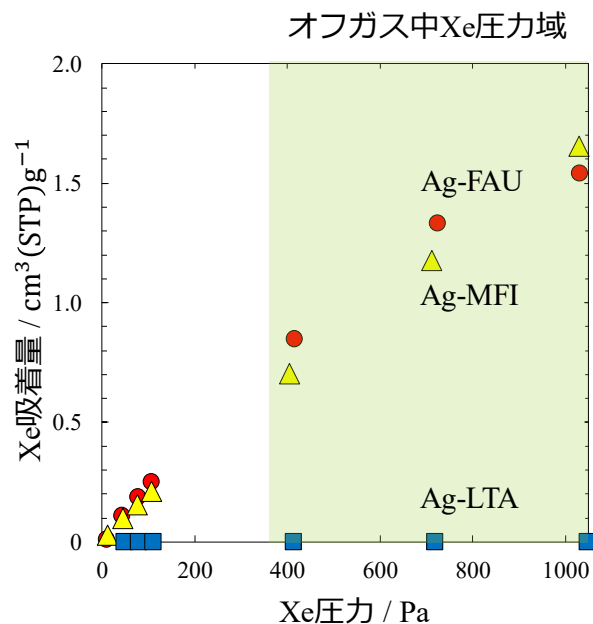


図 3.2-12 Ag イオン交換した FAU、MFI、LTA のキセノン吸着等温線 (25°C)

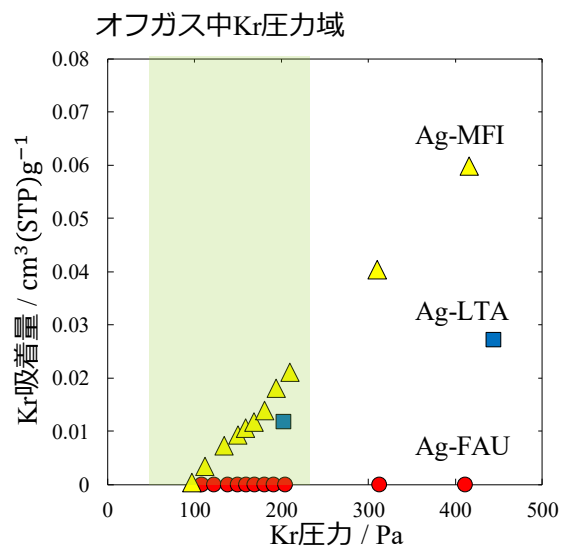


図 3.2-13 Ag イオン交換した FAU、MFI、LTA のクリプトン吸着等温線 (25°C)

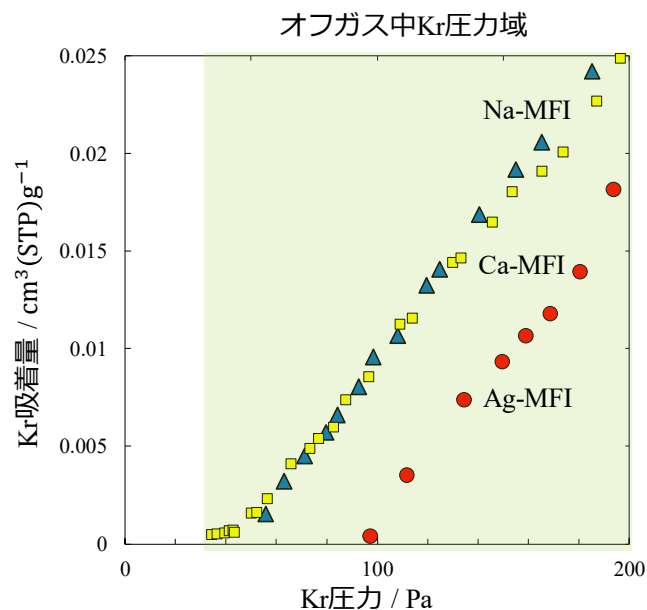


図 3.2-14 イオン交換金属種の異なる MFI 型ゼオライトを用いたクリプトン吸着等温線 (25°C)

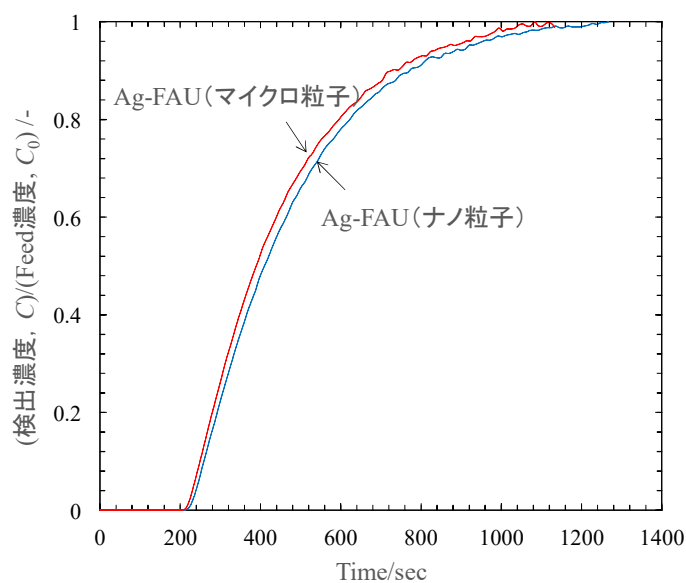


図 3.2-15 粒子径の異なる FAU 型ゼオライトを積層させた膜を用いたキセノンの破過曲線
(100°C)

本研究でヨウ化メチル、キセノンに対して高い吸着能を示した Ag-FAU を用いて、ゼオライトを積層させた膜を作製し、キセノンの吸着分離の検討を行った。図 3.2-15 は粒子径の異なる Ag-FAU を用いて作製したゼオライト膜を用いた時のキセノンの破過曲線 (100°C) を示す。図より、キセノンと併給したヘリウムは測定開始直後ですぐに破過しているのに対し、キセノンはヘリウムよりも遅れて検出された。これは、Ag-FAU への吸着によると考えられる。一方で、ゼオライト膜キセノンの破過曲線は FAU の粒子サイズの影響が現れていると考えられるが、破過開始時間がほぼ等しいことからキセノンの Ag-FAU への吸着速度はゼオライトの粒子径によらずほぼ等しいものと考えられる。

3.2.3 銀ゼオライトの細孔内の炭化水素分子の拡散係数の測定 (H27～H29)

(1) 拡散係数測定 (H27～H29)

ゼオライト結晶内のヨウ化メチル、炭化水素の拡散係数測定には、定容法により測定した。吸着剤には X 型ゼオライト、Y 型ゼオライト、MFI 型ゼオライト及び Ag イオン交換した X 型ゼオライトを用いた。測定は 100～200℃、測定圧力は 1.5kPa 以下で行った。図 3.2-16 に使用した結晶内拡散係数測定装置の概略図を示す。試料部以外の系内に 100% のヨウ化メチル蒸気あるいは炭化水素のガスを所定の圧力まで導入した後、試料部を開放した。試料への吸着に伴い系内の全圧が低下するため、圧力の経時変化から吸着量の経時変化を得た。測定により得られたヨウ化メチル吸着量の経時変化の一例を図 3.2-17 に示す。Fick の拡散方程式の解は次式で示す級数解で表せることが知られている⁷⁾。

【平板状の場合 (MFI 型ゼオライト)】

$$\frac{M_t}{M_e} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2\alpha(1+\alpha)}{1+\alpha+\alpha^2 q_n^2} \exp\left(-\frac{D}{L^2} q_n^2 t\right) \quad (3.2-1)$$

$$a = V/(a_m WHL), \tan q_n = -\alpha q_n \quad (3.2-2)$$

【球状の場合 (X、Y 型ゼオライト)】

$$\frac{M_t}{M_e} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{6\alpha(1+\alpha)}{9+9\alpha+\alpha^2 q_n^2} \exp\left(-\frac{D}{R^2} q_n^2 t\right) \quad (3.2-3)$$

$$\alpha = V/(a_m WHR), \tan q_n = -3\alpha q_n / (3 + \alpha q_n^2) \quad (3.2-4)$$

ここで、 M_t は時間 t における吸着量、 M_e は平衡状態での吸着量、 D は吸着過程の結晶内拡散係数、 L 及び R は拡散距離を示す。

測定した吸着量の経時変化と上記の計算式から得られる吸着量の経時変化 (図中実線) のフィッティングにより式中の D/L^2 値あるいは D/R^2 値を決定した後、結晶内拡散係数を得た。L 及び R 値は、FE-SEM 像より得られた粒子径の半分の値を用いた (MFI : $2L=3.31\mu\text{m}$ 、Y : $2.00\mu\text{m}$ 、X : $2.04\mu\text{m}$)。

定容法を用いた結晶内拡散係数測定では、同時に吸着等温線が得られる。

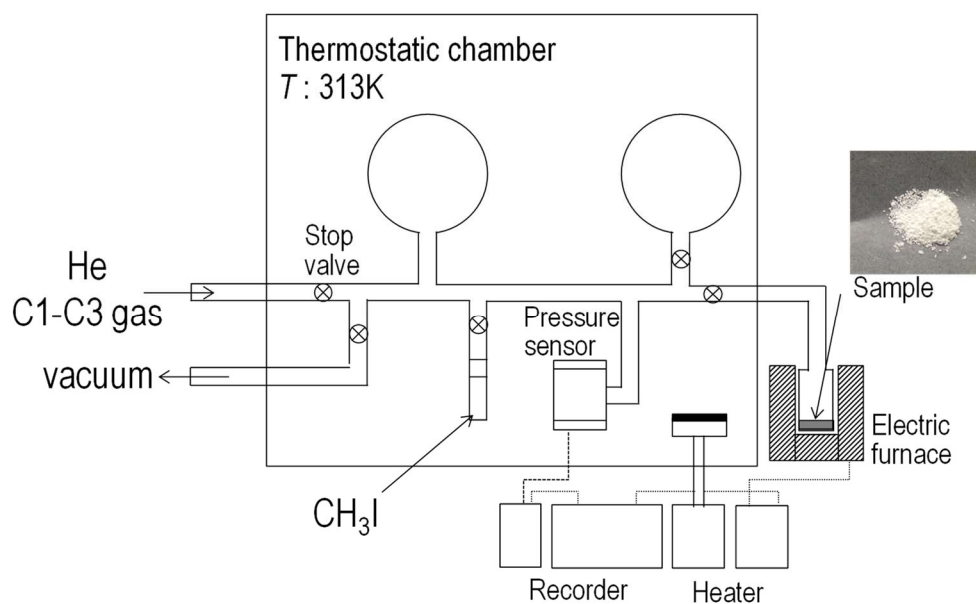


図 3.2-16 気相ゼオライト結晶内拡散係数測定装置概略図

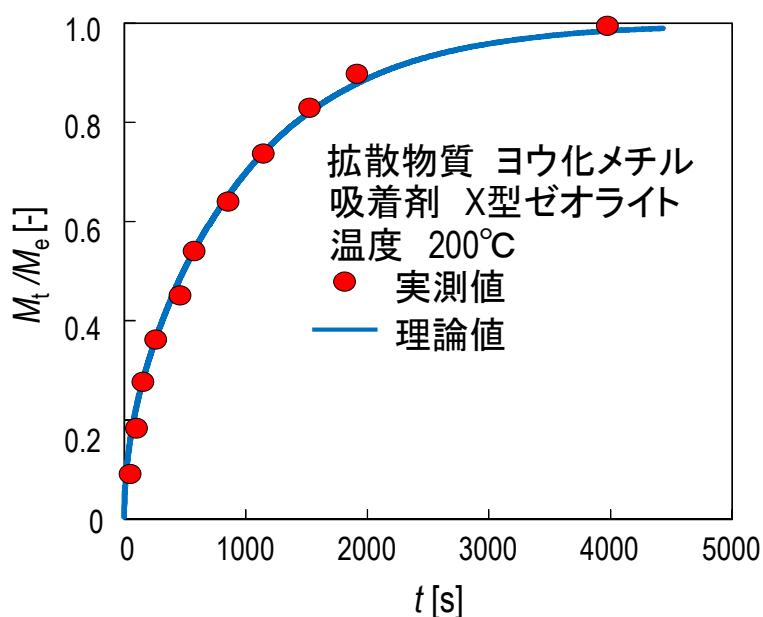


図 3.2-17 ヨウ化メチル吸着量の経時変化の一例（200°C、X型ゼオライト）

結晶構造がヨウ化メチルの吸着量及び結晶内拡散係数に与える影響を検討するため、H-FAU 型ゼオライト及び H-MFI 型ゼオライトを用いてヨウ化メチル拡散係数測定を行った。図 3.2-18 はヨウ化メチル吸着等温線を図 3.2-19 は拡散係数のアレニウスプロットを示す。図 3.2-18 より吸着量は H-MFI、H-FAU(Si/Al=2.0)、H-FAU(Si/Al=1.7)の順に高い値を示した。一般に、酸量が多いほど（Si/Al 比が小さいほど）吸着サイトが多くなるため、吸着量が多くなると考えられるが、これとは逆の傾向が得られた。図示しないが、Al を含まない MFI 型ゼオライトと ZSM-5 を用い、ヨウ化メチルの蒸気吸着測定を 25°Cで行ったところ、Al の有無によらず低圧領域での吸着量はおおむね等しい結果が得られた。これ

より、H 型のゼオライトに対するヨウ化メチルの吸着は酸点ではなく細孔表面への物理吸着が主であると考えられる。また、H-FAU については窒素吸着測定により Na 型から NH_3 型へイオン交換（焼成により NH_3 を脱離させ、H 型とする）する際に、ミクロ孔容積が低下していることが分かった。これは、FAU 型ゼオライトを酸性質溶液中で処理した際、ゼオライト骨格中の Al が脱離したためであると考えられる。H-FAU を用いた拡散係数測定では、細孔の表面に存在する脱離した AlOx 種やこれに吸着したヨウ化メチルによる立体的な障害により MFI 型ゼオライトよりも細孔径が大きいにも関わらず拡散係数が低下したことが推察される。また、吸着剤設計に用いる有効拡散係数（結晶内拡散係数と吸着等温線から求めることができる分配係数の積で与えられる）は MFI 型ゼオライトが最も高く、吸着速度の観点から H 型ゼオライトでは MFI 型ゼオライトが最も速くヨウ化メチルの吸着分離が可能と考えられる。

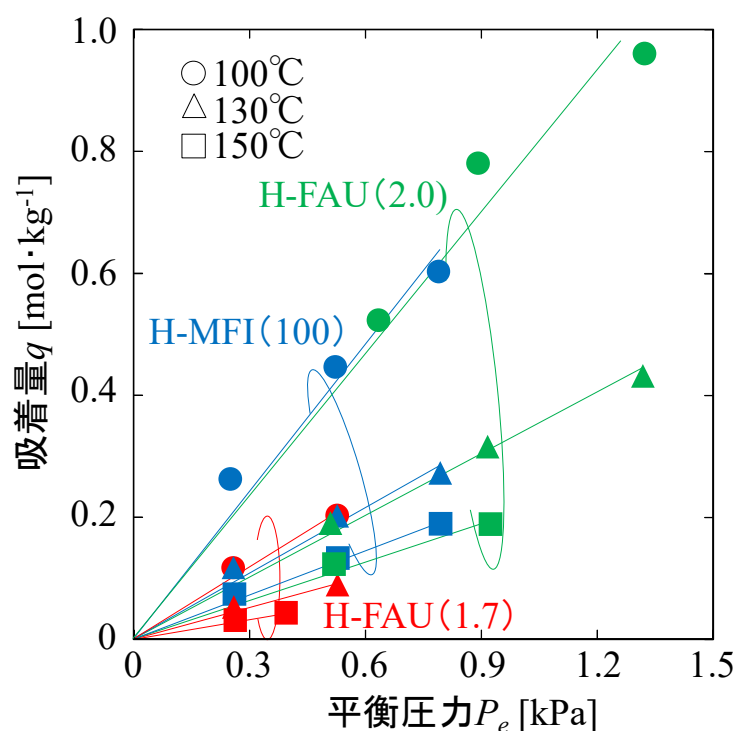


図 3.2-18 ヨウ化メチルの吸着等温線 (H-MFI、H-FAU)

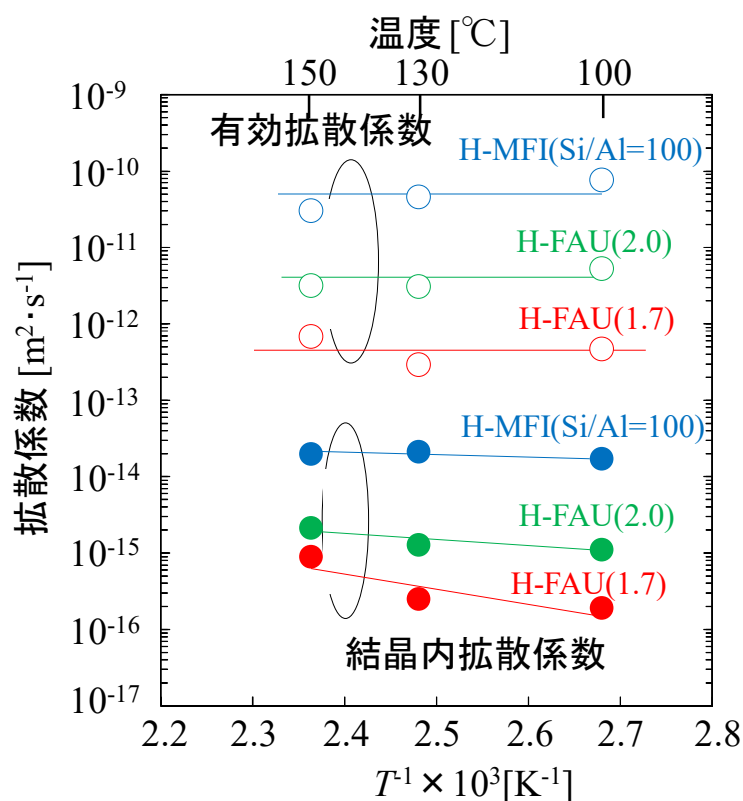


図 3.2-19 ヨウ化メチルの拡散係数のアレニウスプロット (H-MFI、H-FAU)

MFI 型ゼオライト、X 型ゼオライト、AgX を用いヨウ化メチル吸着等温線を 25℃で測定した。結果を図 3.2-20 に示す。X 型ゼオライトは MFI 型ゼオライトに比べて高表面積、高マイクロ孔容積を有することからヨウ化メチルの吸着においても高い吸着能を示したと考えられる。また、AgX のヨウ化メチル吸着等温線に着目すると、吸着過程については X 型ゼオライトとほぼ同一の等温線を示した。ここで用いた AgX は X 型ゼオライトに対し 40wt%の Ag が含まれているため、X 型ゼオライト質量基準に換算すると X 型ゼオライトに 40wt%の Ag をイオン交換することにより、ヨウ化メチル吸着量が約 1.6 倍増加していることが確認された。よって、ヨウ化メチルの吸着はゼオライトの細孔表面とカチオンによりイオン交換されたサイトが吸着サイトになっていると考えられる。また、ヨウ化メチルを高効率に吸着する点において、吸着容量の大きい FAU 型ゼオライト (X 型、Y 型) が有用であると考えられることから、FAU 型ゼオライトを対象にヨウ化メチルの拡散係数測定を実施した。

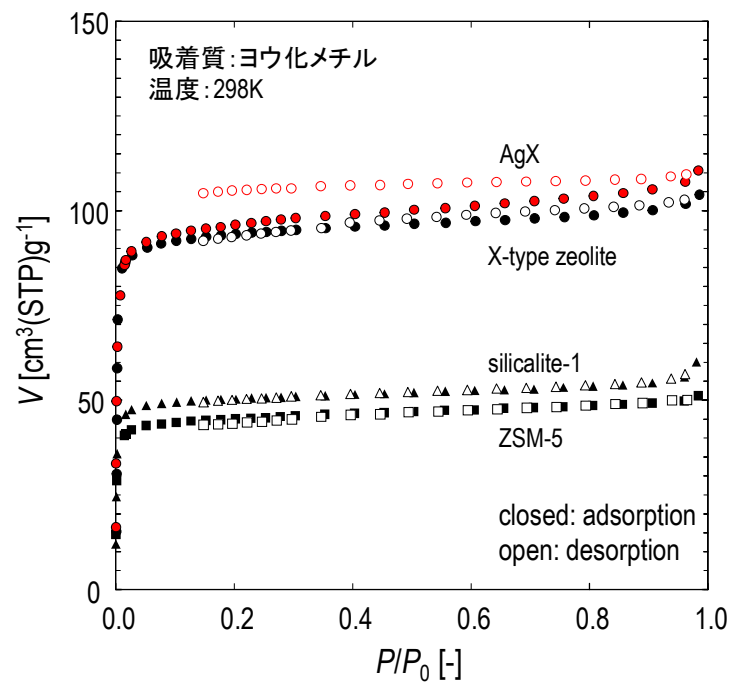


図 3.2-20 silicalite-1、ZSM-5、X 型ゼオライト、AgX のヨウ化メチル吸着等温線

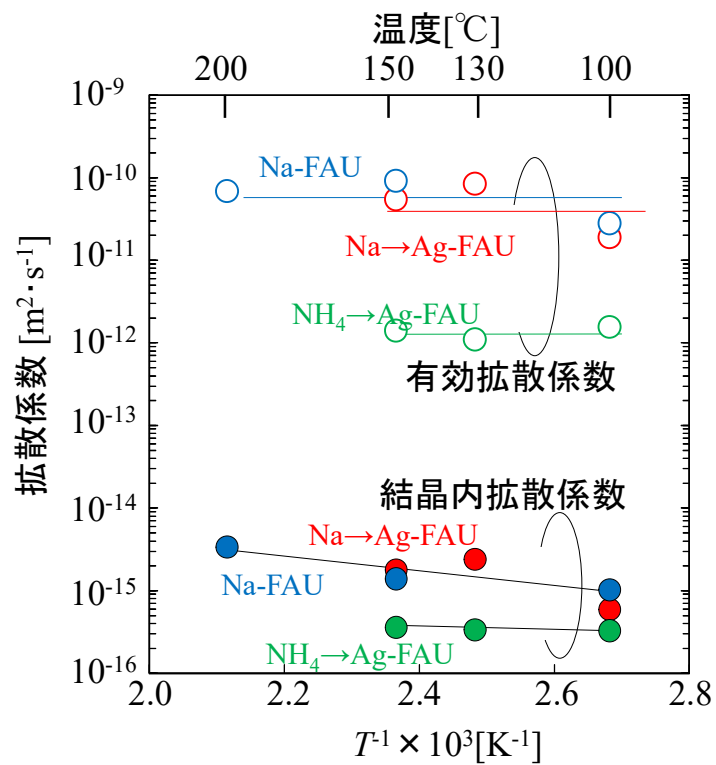


図 3.2-21 Ag イオン交換 FAU 及び Na-FAU 結晶内におけるヨウ化メチルの
拡散係数のアレニウスプロット

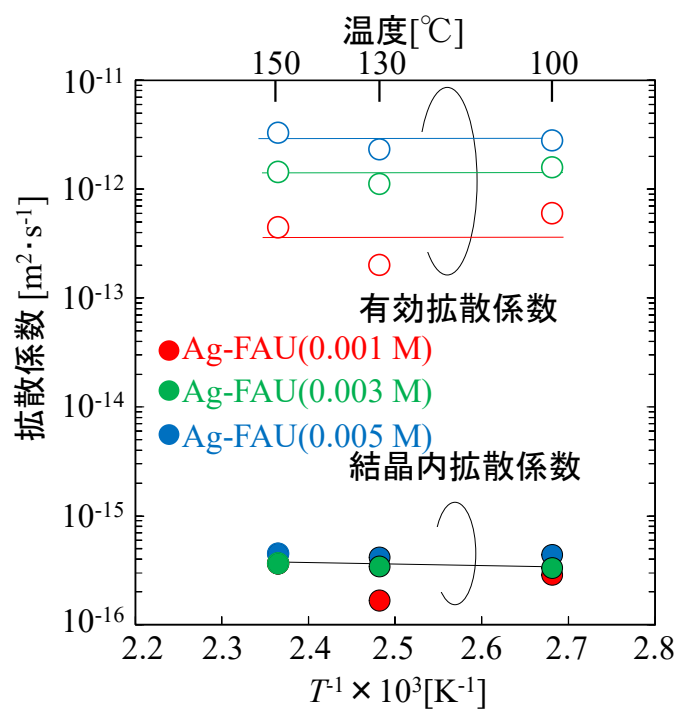


図 3.2-22 Ag イオン交換濃度の異なる FAU (Si/Al=1.7) 結晶内におけるヨウ化メチルの
拡散係数のアレニウスプロット

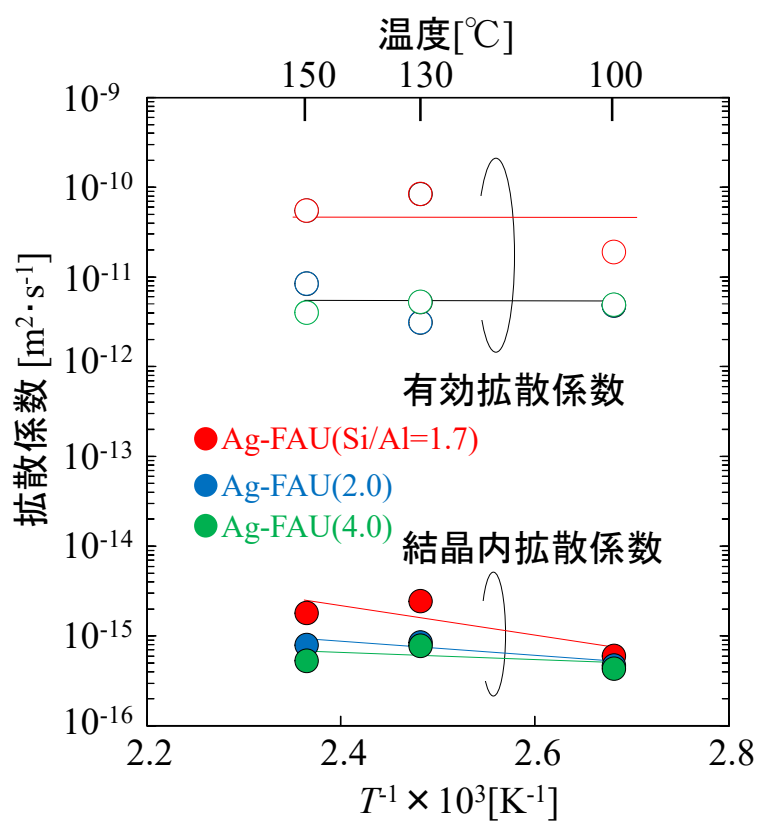


図 3.2-23 Si/Al 比の異なる Ag イオン交換 FAU 結晶内におけるヨウ化メチルの
拡散係数のアレニウスプロット

Si/Al 比が 1.7 の FAU 型ゼオライトを用い、Na-FAU、低濃度 Ag 水溶液 (0.003 M) を用いてイオン交換した Ag-FAU (Na→Ag-FAU)、NH₄-FAU から Ag イオン交換した Ag-FAU (NH₄→Ag-FAU) を用いてヨウ化メチルの拡散係数測定を行った。図 3.2-21 はヨウ化メチル吸着等温線を、図 3.2-22 は拡散係数のアレニウスプロットを示す。図 3.2-21 よりヨウ化メチル吸着量は NH₄→Ag-FAU、Na-FAU、Na→Ag-FAU の順に高い値を示した。NH₄→Ag-FAU のミクロ孔容積は Na→Ag-FAU に近い値であったことから、NH₄-FAU から Ag イオン交換した Ag-FAU では Na-FAU から Ag イオン交換した Ag-FAU に比べ Ag のイオン交換率が低いこと、Na もヨウ化メチルの吸着サイトであることが挙げられ、NH₄→Ag-FAU は他の試料に比べて吸着サイトが少ないためであると考えられる。Na→Ag-FAU は Na-FAU に比べてわずかながらヨウ化メチル吸着量が増加した。これより、Na に比べ Ag に対しヨウ化メチルが吸着しやすいと考えられる。また、吸着温度に着目するとヨウ化メチルの吸着量は温度の増加に伴い低下した。このことから、ヨウ化メチル吸着量の観点からは低温での吸着操作が有効であると言える。図 3.2-22 より結晶内拡散係数は Na-FAU と Na→Ag-FAU は同程度の値を示し、NH₄→Ag-FAU はそれらよりも低い値を示した。NH₄→Ag-FAU では Ag イオン交換されたサイト数が少ないため、吸着したヨウ化メチルによる立体的な障害がほとんどないものと考えられる。一方で、Na→Ag-FAU と Na-FAU では、ヨウ化メチルは Na、Ag 共に吸着するため、これらのサイトへの吸脱着を繰り返しながら細孔内を拡散するため、吸着サイトに吸着したヨウ化メチルによる立体的な障害も起こるため NH₄→Ag-FAU に比べて活性化エネルギーは高い値になっていると考えられる。

Si/Al=1.7~4.0 の Na→Ag-FAU 型ゼオライトを用いてヨウ化メチル拡散係数測定を行った。ヨウ化メチルの吸着量は、Si/Al 比が小さくなるほど多くなった。これは、Si/Al 比が小さくなるほど吸着サイトが増えたためである。図 3.2-23 はヨウ化メチルの結晶内拡散係数のアレニウスプロットを示す。Si/Al 比が小さくなるほど、ヨウ化メチルの結晶内拡散係数は大きくなった。FAU 型ゼオライトはその結晶内部にスーパーケージと呼ばれる広い空間を有している。吸着サイトの少ない試料では、吸着サイトに吸着したヨウ化メチルの吸脱着がスーパーケージ内で繰り返し生じ、結晶中心部への拡散が生じにくいのに対し、吸着サイトの多い試料ではその影響が小さくなるためではないかと考えられる。また、ゼオライトのような多孔性の吸着剤の設計には有効拡散係数（結晶内拡散係数と吸着平衡定数を用いて得られる分配係数との積により得られ、物理的な意味はほとんどない）が用いられる。ヨウ化メチルの有効拡散係数は Si/Al 比が小さいほど高い有効拡散係数となることから、ヨウ化メチルを高効率で吸着させる上で吸着サイトが多く存在することは吸着速度の観点から優位性があると考えられる。

また、ヨウ化メチル吸着除去環境中では低級の炭化水素が共存することが考えられる。特にゼオライト結晶内においては、拡散の遅い分子が拡散の速い分子の拡散速度を支配するため、共存物質の拡散速度を明らかにすることは、吸着剤設計の上で重要である。そこで、C1~C3 の炭化水素種としてメタン、エタン、プロパンの測定を 150℃で行った。メタン、エタン、プロパンは測定開始直後に圧力が低下した後、すぐに一定の圧力となる結果が得られた。また、この圧力低下は測定時の装置死容積によるもので、150℃での吸着は極めて少なく、吸着した場合であっても拡散が十分に速いためにここで用いた条件におい

て拡散係数を決定することが困難であることが分かった。

Ag イオン交換した FAU 型ゼオライトを用いて 200℃で拡散係数測定を実施したさい、ヨウ化メチルの吸着に加えて、ヨウ化メチルの反応と考えられる圧力変化が観測された。そこで、常圧の流通式反応器を用いてヨウ化メチルの昇温脱離測定を実施した。反応器内の Ag-FAU に 100℃でヨウ化メチルを吸着させた後、アルゴンでパージを行い物理的に吸着したヨウ化メチルを脱離させた。その後、5 °C/min で 100℃から 600℃まで昇温し、脱離・生成する気体成分の分析を行った。一例として、Si/Al=1.7 の Ag-FAU を用いた時の結果を図 3.2-24 に示す。吸着サイトに吸着していたヨウ化メチルに加えて、200℃付近にメタノール及びジメチルエーテルが、400℃付近でメタン、エチレン、プロピレンの生成が確認された。これより、銀ゼオライト上でヨウ化メチルの分解反応が進行しており、ヨウ化メチルからのメタノールの生成及びメタノールからのオレフィン生成反応が進行することが分かった。

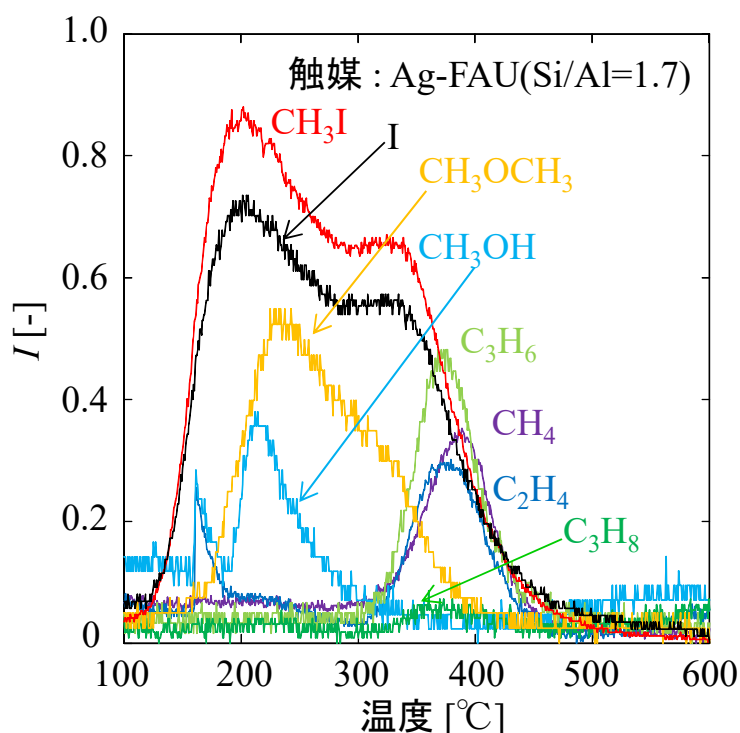


図 3.2-24 Ag イオン交換 FAU(Si/Al=1.7) を用いたヨウ化メチルの昇温脱離による生成物分析

(2) ゼオライト膜合成とヨウ化メチル吸着特性評価 (H29)

FAU 型ゼオライトを用い、ゼオライトナノ粒子層とそのマイクロ粒子層（ナノ層のみでは物理的安定性がないため、保護層としてナノ粒子層上に形成させるゼオライト層）から構成されるゼオライト膜の合成を目指した。ゼオライトナノ粒子を分散させた水溶液中にアルミナフィルターを浸漬させ、その内部を吸引することによりアルミナフィルター上にナノ粒子を積層させた。その後、FAU 型ゼオライトマイクロ粒子の合成溶液中に浸し、水熱合成によりマイクロ粒子による保護層の形成を行った。得られた膜を分析した所、FAU 型ゼオライトの場合では保護層の合成中に積層させたナノ粒子が溶解していることが平成 29 年度に明らかになり、合成溶液の濃度を変化させて検討したが本問題の解決には至ら

なかった。

そこで、FAU 型ゼオライトナノ粒子を積層させたアルミナフィルターを SiO_2 溶液に入れ、同様に膜内部を吸引することでゼオライトナノ粒子層内に SiO_2 を導入し、ナノ粒子を固定化させたゼオライト膜を合成した。得られた膜を切断し断面 SEM 観察を行った（図 3.2-25）。物理的な切断後においてもアルミナフィルター上に FAU 型ゼオライトの粒子が積層されていることが確認された。MFI 型ゼオライトにおいても同様にアルミナフィルター上にゼオライト層が形成できていることを確認した。

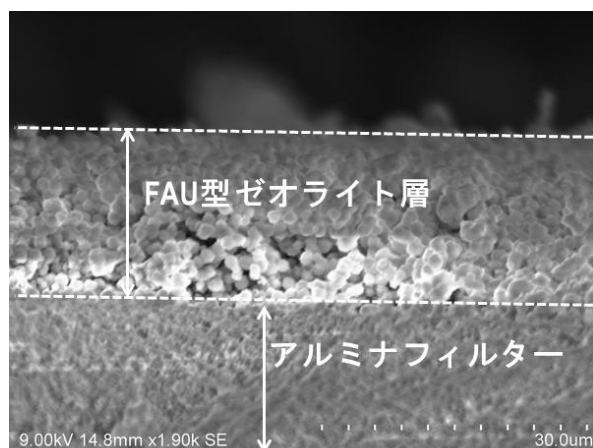


図 3.2-25 FAU 型ゼオライト積層膜の断面 SEM 像

合成した膜を用い、1～3%のヨウ化メチルガス流通下（窒素：バランスガス、50 ml/min）においてヨウ化メチルの吸着特性評価を 100℃で行った。図 3.2-26 に Ag-FAU 積層膜を用いたときの、膜透過したヨウ化メチル濃度の経時変化を示す（ヨウ化メチル：1%）。ガス流通後 100 分経過後においてもヨウ化メチルの流出はごくわずかであることが分かった。また、FAU 型ゼオライトの粒子径に着目するとマイクロ粒子を積層させた膜に比べナノ粒子を積層させた膜ではわずかながら膜からの流出量が少ないことが示唆された。これは、ゼオライト粒子の微小化によりヨウ化メチルの吸着速度が向上し、迅速にヨウ化メチルがゼオライトへ吸着されたためと考えられる。また、検討した合成方法はアルミナフィルター上にゼオライト粒子を吸引により積層させ SiO_2 で固定化する手法であるため、吸引時の水溶液中ゼオライト濃度を変化させることで柔軟にゼオライト層の厚みを変化させることが可能である。そのため、ゼオライト積層量を制御することで流出量を抑制可能と考えられる。一方で、ヨウ化メチルガス濃度は異なるが Ag-MFI 積層膜（ヨウ化メチル：3 %）では、開始から約 3 分でヨウ化メチルが膜から流出することが確認された。これは、MFI 型ゼオライトは FAU 型ゼオライトに比べてミクロ孔容積が小さくヨウ化メチルの吸着容量が少ないことに起因すると考えられる。吸着・拡散・膜の評価結果より、ヨウ化メチル吸着分離を目的としたゼオライト膜には、ヨウ化メチル吸着容量の大きいゼオライトを選定すること、ゼオライトの粒子径を数百ナノメートルオーダー以下にすること、ゼオライト積層量を制御することが設計の上でポイントとなると考えられる。

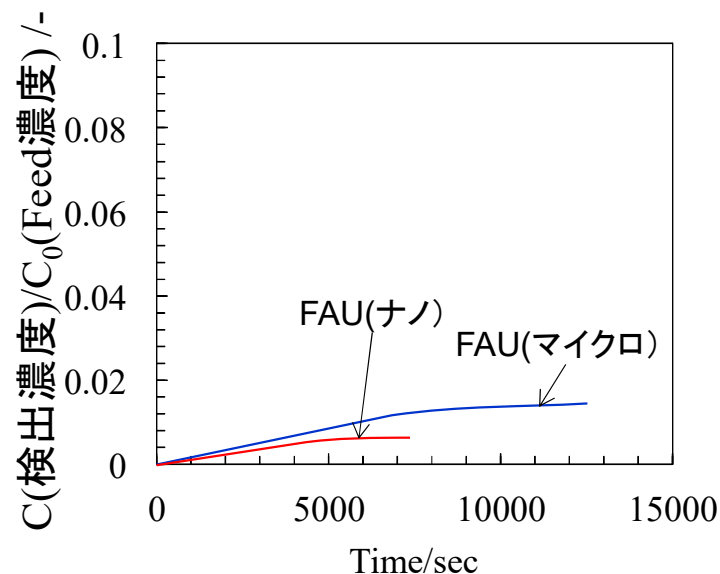


図 3. 2-26 膜透過したヨウ化メチル濃度 (Ag-FAU 積層膜、ヨウ化メチル : 1%、100°C)

参考文献

- (1) International Zeolite Association (IZA) ホームページ, <http://www.iza-online.org/>
- (2) T. Tago, M. Nishi, Y. Kouno, T. Masuda, “New Method for Preparing Mono-Dispersed Nanocrystalline Silicate via Hydrothermal Synthesis in Water/Surfactant/Oil Solution”, Chem. Lett., 33 (2004) 1040
- (3) 佐野庸治, “ゼオライト合成の新展開-ゼオライト転換”, 触媒, 53(7), (2011), 392
- (4) N. Nakazawa, S. Inagaki, Y. Kubota, “Novel Technique to Synthesize AFX-Type Zeolite Using a Bulky and Rigid Diquaternary Ammonium Cation”, Adv. Porous Mater., 4 (2016) 219.
- (5) S. Ferdov, “FAU-type zeolite nanosheet from additives-free system”, Micropor. Mesopor. Mater., 242 (2017) 59
- (6) C. Daniel, A. Elbaraoui, S. Aguado, M. Springuel-Huet, A. Nossov, J. Fontaine, S. Topin, T. Taffary, L. Deliere, Y. Schuurman, D. Farrusseng, “Xenon Capture on Silver-Loaded Zeolites: Characterization of Very Strong Adsorption Sites”, J. Phys. Chem. C, 117 (2013) 15122
- (7) J. Crank, “The mathematics of Diffusion, Clarendon Press, Oxford, (1975)

3.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

(H27～H29)

3.3.1 バッチ式吸着実験装置の製作（H27）

銀ゼオライト吸着剤を用いた放射性核種吸着実験を行うための実験装置を製作した。銀ゼオライトの放射性核種吸着能を評価するためには、吸着速度の評価が重要であるため流量の調整が可能である必要がある。また、高除染性空気浄化システムは一年を通しての使用が想定されるため、幅広い温度、湿度条件下においても性能が保障される必要がある。これらを実験するため、流量、温度、湿度が調製可能なガラス製の実験装置を製作した(図 3.3-1)。更に、大流量かつ水蒸気を導入した系で実験を行うため、図 3.3-2 に示す金属配管を用いた装置を作製した。図 3.3-1 のガラス製吸着実験装置では、AgX を管①に装填し、ヨウ化メチルを飽和濃度流す際は投入部にヨウ化メチル溶液を入れて平衡状態にしてアルゴンガスにより管①、管②、管③の順に流した。Ar+100ppm CH₃I を流す場合は、投入部にはヨウ化メチルを入れず、アルゴンガスの代わりに Ar+100ppm CH₃I ガスを流し、流量計を用いてガス流量を調整した。管②、管③は管①で吸着されなかったヨウ化メチルを捕集するためにそれぞれエタノールとエタノールに純水で 50wt%に希釈した溶液を入れた。この装置を用いて吸着部温度を 20～100℃に変化させた吸着率の評価と、500ml/min までの流量と吸着率の関係を求めた。更に、図 3.3-2 に示す金属製吸着実験装置を用いて実験を行った。金属製吸着実験装置では、管①に吸着実験用の AgX を装填し、管②も CH₃I 捕集用に AgX を装填した。更にトラップにエタノールと純水の混合溶液を入れ、管①、②で吸着されなかったヨウ化メチルを回収した。Ar+100ppm CH₃I 及び Ar+1000ppm CH₃I ガスは赤の矢印に沿って流し、蒸気発生装置によって発生させた蒸気は青色の矢印より反応ガスと混合し、管①、②へと流した。この金属製吸着実験装置を用いた場合は過酷な条件とするため、流量を 1000ml/min までとし、CH₃I 濃度の影響を評価するため 1000ppm の条件でも実験を行った。

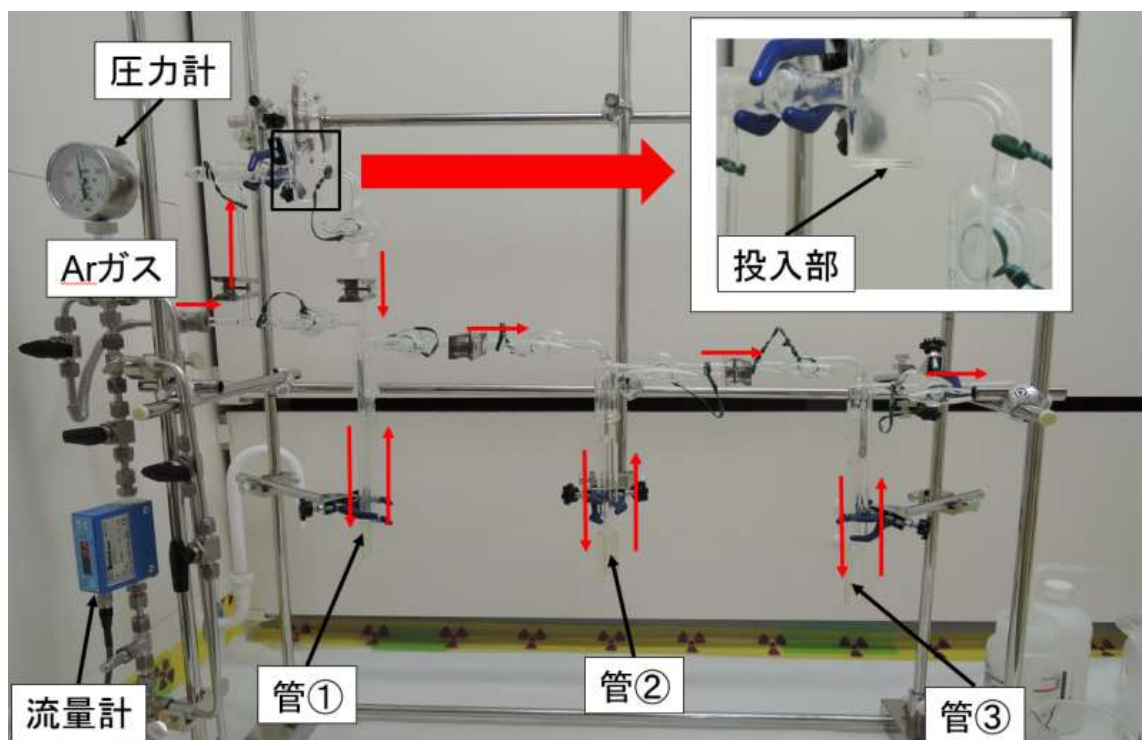


図 3. 3-1 ガラス製吸着実験装置

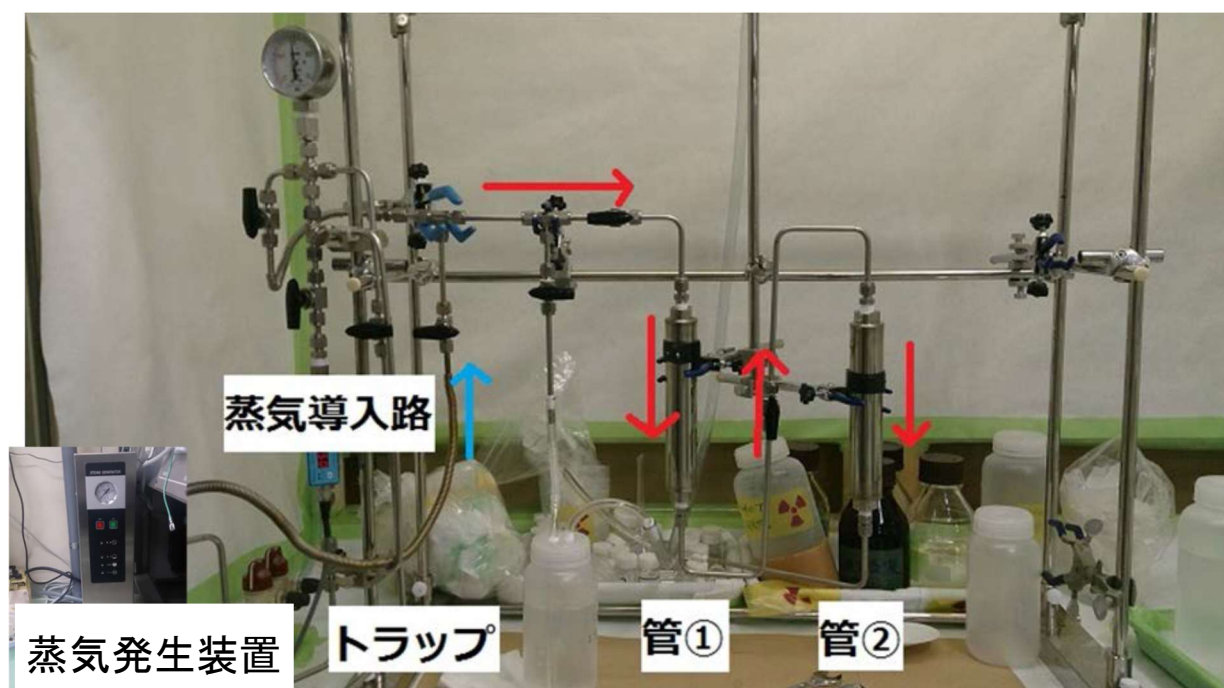


図 3. 3-2 金属製吸着実験装置

3.3.2 ^{125}I トレーサーを添加したヨウ化メチルの調製と放射能の計測 (H27)

^{125}I トレーサーを添加した放射性ヨウ化メチルの調整を行った。日本 RI 協会から購入した Na^{125}I (半減期：59.4 日) を 0.1M NaOH で希釈し、 CH_3I (和光純薬株式会社製、純度 99.5%) と接触させスターラーで 1.5～67 時間程度攪拌させた。この際、光による CH_3I の分解を防ぐためアルミフォイルを巻いた状態で行った。攪拌終了後有機相を抽出し、日立アロカメディカル株式会社製の井戸型 NaI シンチレーションカウンター PS-201 を用いて放射能の測定を行った。測定対象領域 (ROI) について、 ^{125}I から放出される γ 線の全吸収ピークは 35.5keV と低エネルギー側に存在するため測定が困難である。これより ^{125}I のサムピークを測定することとし、ROI のチャンネル (Ch) 数を 50-175Ch に設定して ROI 内のスペクトルのカウントを計測した。測定結果からバックグラウンド (BG) を引いた値を算出し、Ch 数と単位体積当たりの計数率 (cps/ml) との関係性を求めた。Ch 数をエネルギーに変換する際には、 ^{241}Am の α 壊変により放出される 59.5keV の γ 線が 67Ch、 ^{133}Ba の EC 壊変により放出される 81.0keV の γ 線が 90Ch、303keV の γ 線が 320Ch であることから、エネルギー E (keV) を Ch の関数として以下の式 (3.3-1) を用いて変換した。

$$E = 1.2016 \times 10^{-4} \times (\text{Ch})^2 + 0.91595 \times \text{Ch} - 2.4084 \quad (3.3-1)$$

図 3.3-3 より、調製実験によって ^{125}I によりラベル化された $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ のスペクトルから 60keV 付近において ^{125}I の EC 壊変時に放出される 35.5keV の γ 線と ^{125}Te から放出される 27.4keV の $\text{K}\alpha$ 線が同時検出された際にできるサムピークを確認し、またこれは Na^{125}I のスペクトルのピークと一致した。この結果から、同位体交換反応による $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ の調製が可能であると分かった。また測定結果を基に以下の式 (3.3-2) から同位体交換率 R を算出した。

$$R = \frac{W_2 \times V_2}{W_1 \times V_1} \times 100 \quad (3.3-2)$$

W_1 : 調製に使用した ^{125}I の体積当たり計数率 (cps/ml)

W_2 : 同位体交換された ^{125}I の体積当たり計数率 (cps/ml)

V_1 : 調製に使用した Na^{125}I の体積 (ml)

V_2 : 調製に使用した CH_3I の体積 (ml)

次に、放射能計測の結果から算出した接触時間に対する同位体交換率の変化を図 3.3-4 に示す。

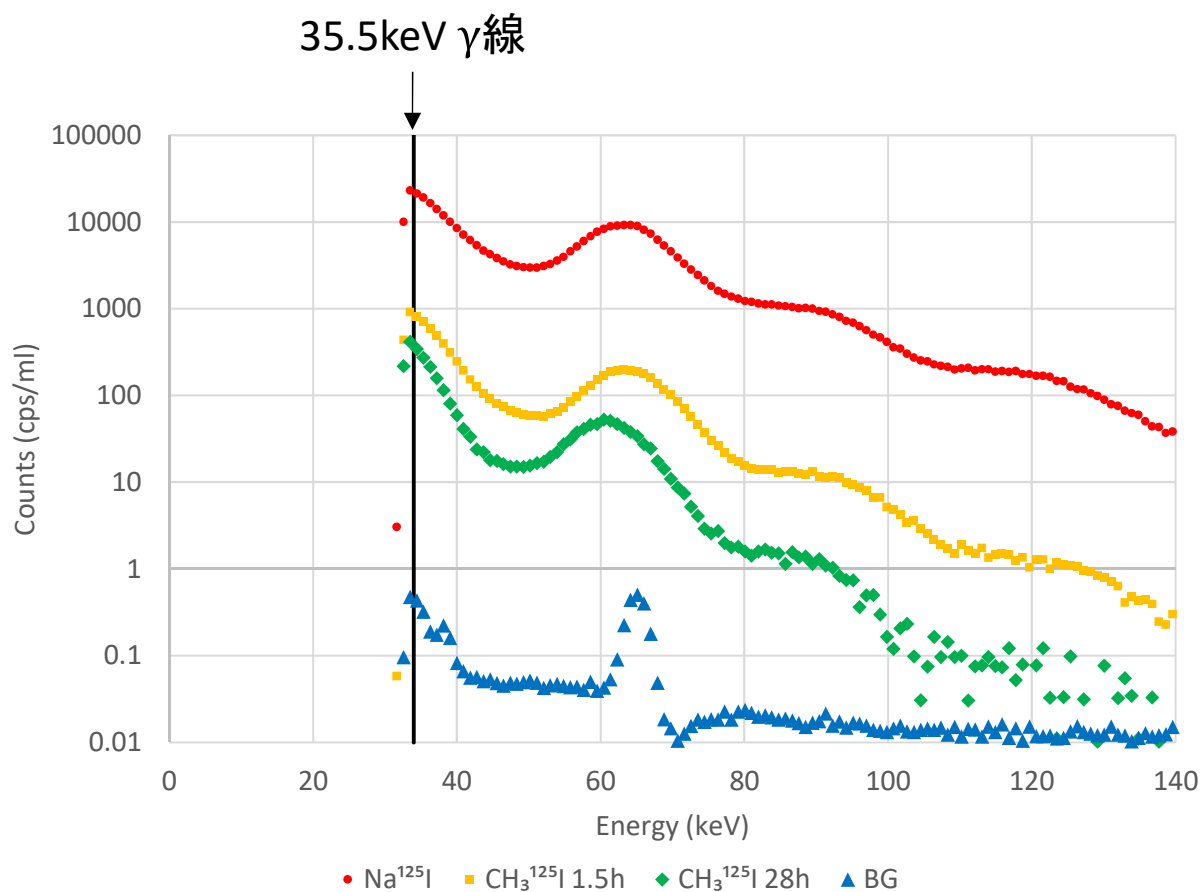


図 3.3-3 $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ の γ 線スペクトル測定結果

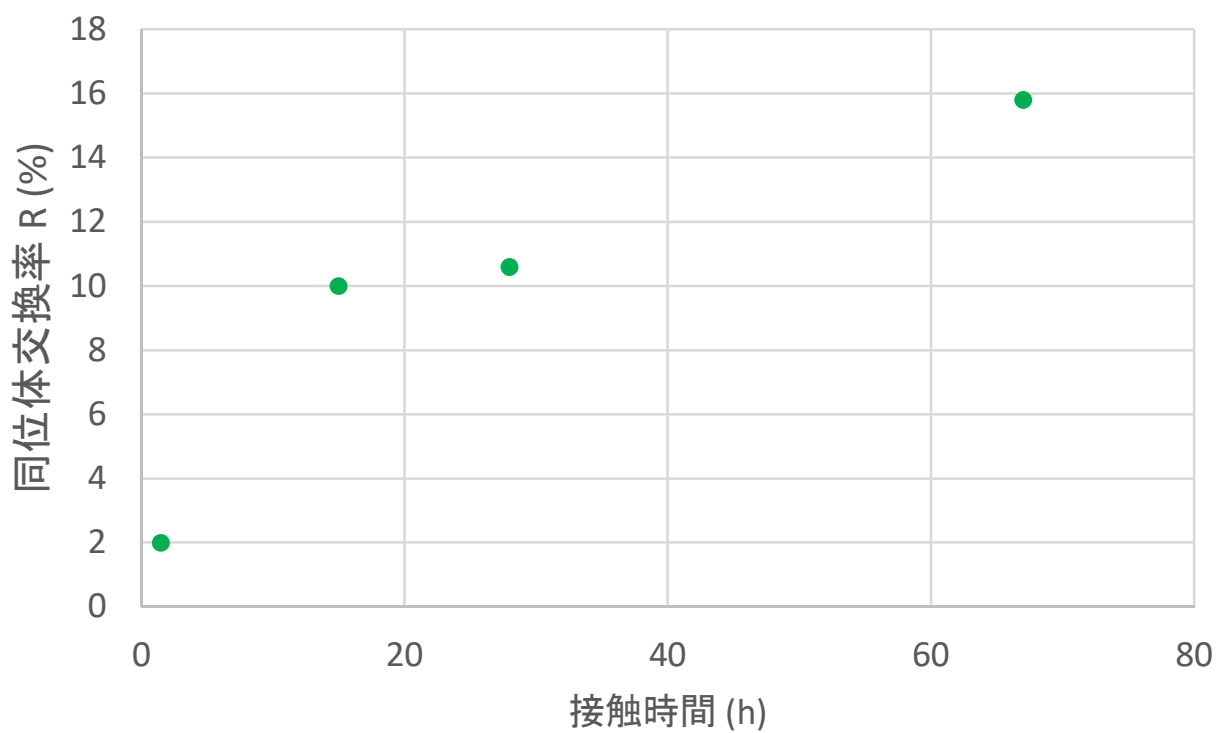


図 3.3-4 接触時間と同位体交換率の変化[1]

図 3.3-4 より、接触時間が増加するに従って同位体交換率が増加するということが分かった。また、接触時間を増加させるとより比放射能が高いラベル化された放射性 $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ の調製が可能であるということが分かった。銀ゼオライト吸着剤バッチ試験では 20 時間以上攪拌をした後、非放射性 CH_3I で希釈をし、任意の放射能となるように調整して実験を行う。

3.3.3 銀ゼオライト吸着剤バッチ試験の実施、吸着性能評価 (H28～H29)

ガラス製吸着実験装置を用いて行った実験条件を表 3.3-1 に示す。まず、吸着部温度を変化させて吸着実験を行った結果、図 3.3-5 より 20～100℃までの温度条件では吸着性能に大きな変化は見られなかった。特に、高温において吸着性能がより高くなる傾向が示された。ガス流量が吸着性能に与える影響については、図 3.3-6 より 300ml/min を境に、流量の増加に伴い吸着率が低下していくという結果が得られた。流量 500ml/min の場合でも、AgX は全てが変色しているわけではなく、飽和吸着状態にはなっていないと考えられる。従って、吸着率が低下した原因としては、吸着反応には一定の時間が必要であり、流量の増加に伴って流速が増大すると、AgX 内部へ吸着が行われるよりも早く CH_3I が通過してしまうためであると考えられる。更に、3.3.2 項で調製した $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ 溶液を用いて吸着実験を行った(条件 11)。実際に空気浄化システムを福島第一原子力発電所の廃炉作業で使用する際、短半減期(8.02 日)の ^{131}I はすでに減衰しており、長半減期(1570 万年)の ^{129}I が発生すると考えられる。しかし、長半減期である ^{129}I は放射能強度がごく微量であると考えられる。そこで ^{125}I の濃度を微量(60Bq)にした条件で吸着実験を行った結果、条件 10 の結果とほぼ同程度の吸着率となった。そのため、本実験結果は微量の放射性ヨウ素の吸着について評価できたと言える。

表 3.3-1 ガラス製吸着実験装置を用いた実験条件

条件	AgX 量 (g)	吸着部温度 (℃)	CH_3I ガス濃度 (ppm)	アルゴンガス流量 (ml/min)
1	5	20	4.9×10^5 (飽和 CH_3I)	20
2		25 (室温)	5.2×10^5 (飽和 CH_3I)	
3		30	5.9×10^5 (飽和 CH_3I)	
4		100	5.8×10^6 (飽和 CH_3I)	
5		25 (室温)	100	50
6				100
7				200
8				300
9				400
10				500
11			5.2×10^5 (飽和 CH_3I) (60Bq ^{125}I を含む)	500

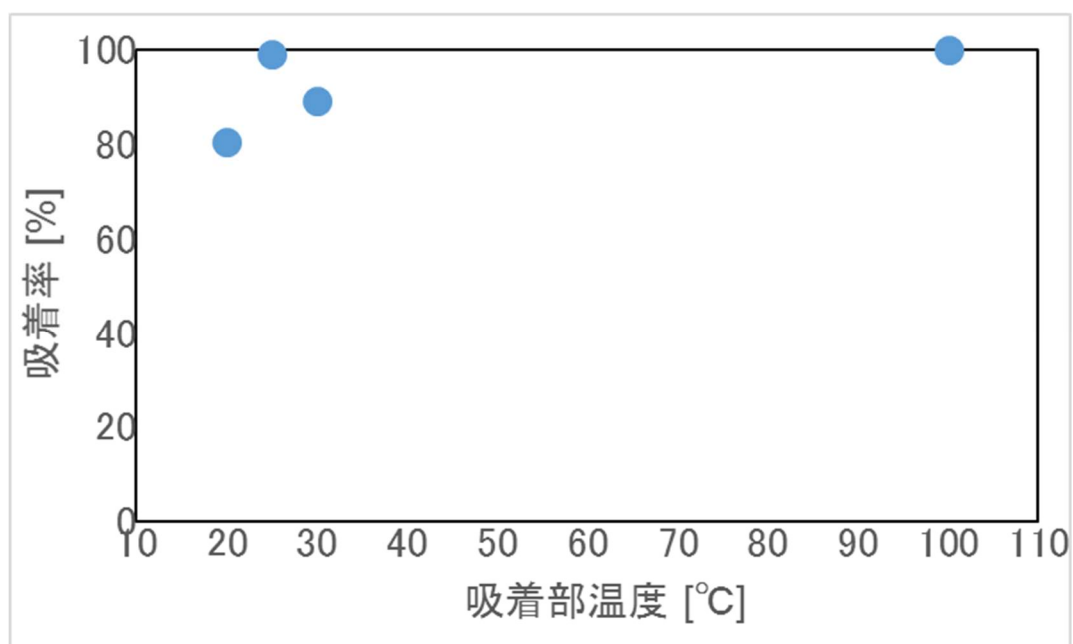


図 3.3-5 吸着部(銀ゼオライト)温度と CH_3I 吸着率の関係

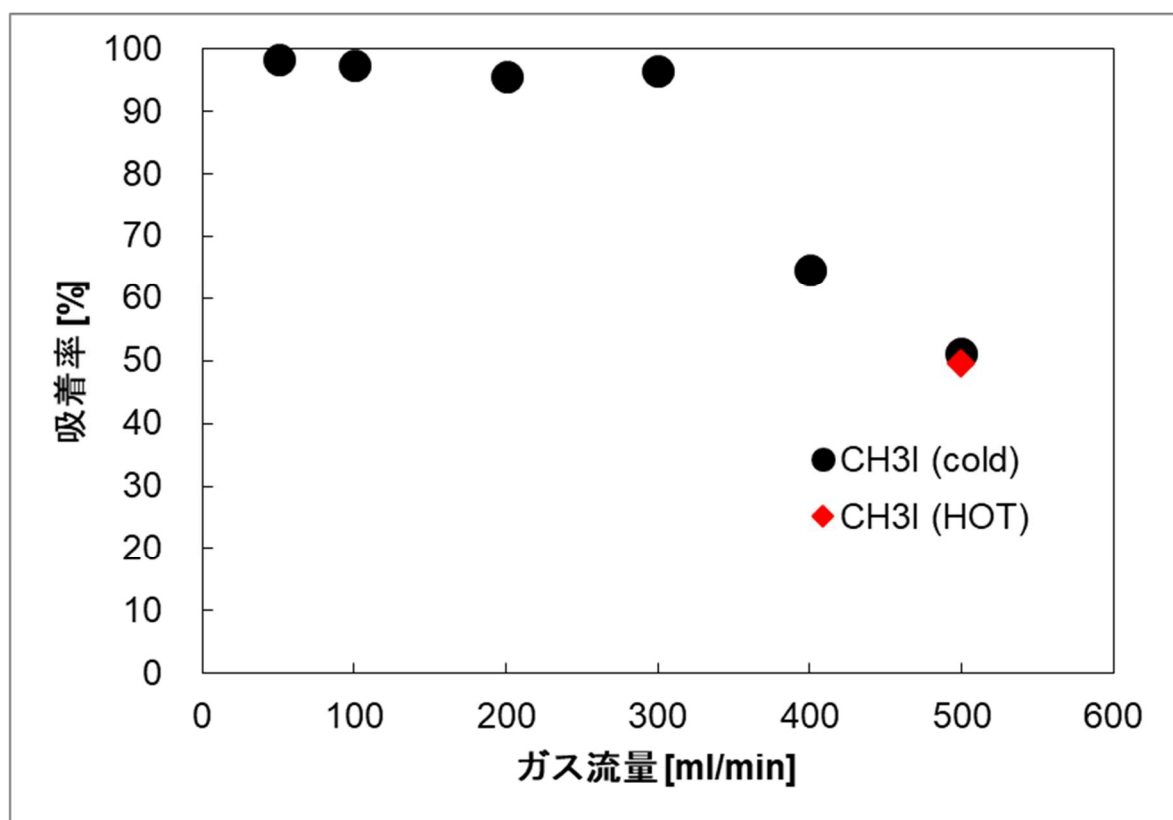


図 3.3-6 ガラス製吸着実験装置を用いたガス流量と吸着率の関係[2]

表 3.3-2 金属製吸着実験装置を用いた実験条件

条件	AgX 量 (g)	吸着部温度 (°C)	ガス流量 (ml/min)			蒸気
			Ar+100ppmCH ₃ I	Ar+1000ppmCH ₃ I	Air	
1	5	25 (室温)	500	–	–	なし
2			–	500		
3			500	–		あり
4			–	500		
5			–	750		なし
6			–	750		あり
7			1000	–		なし
8			–	1000		
9			1000	–		あり
10			–	1000		
11	1	25 (室温)	–	100	900	なし
12	2					
13	3					
14	5					

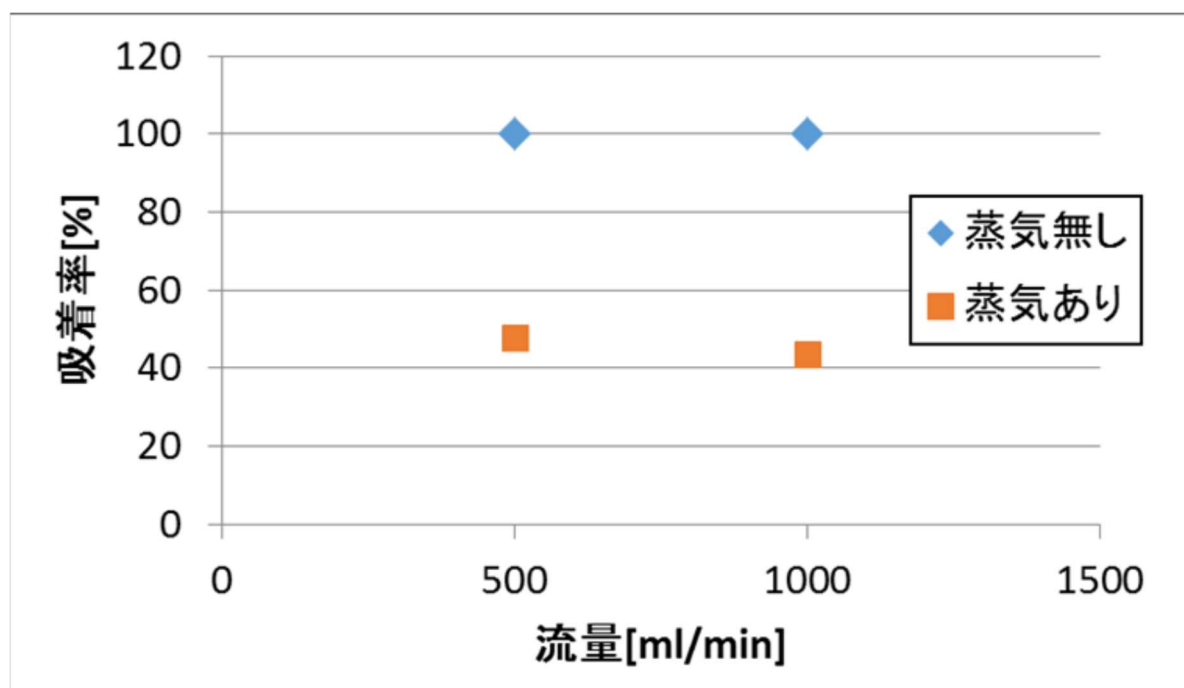


図 3.3-7 金属製吸着実験装置を用いた Ar+100ppmCH₃I ガス流量と吸着率の関係 [2]

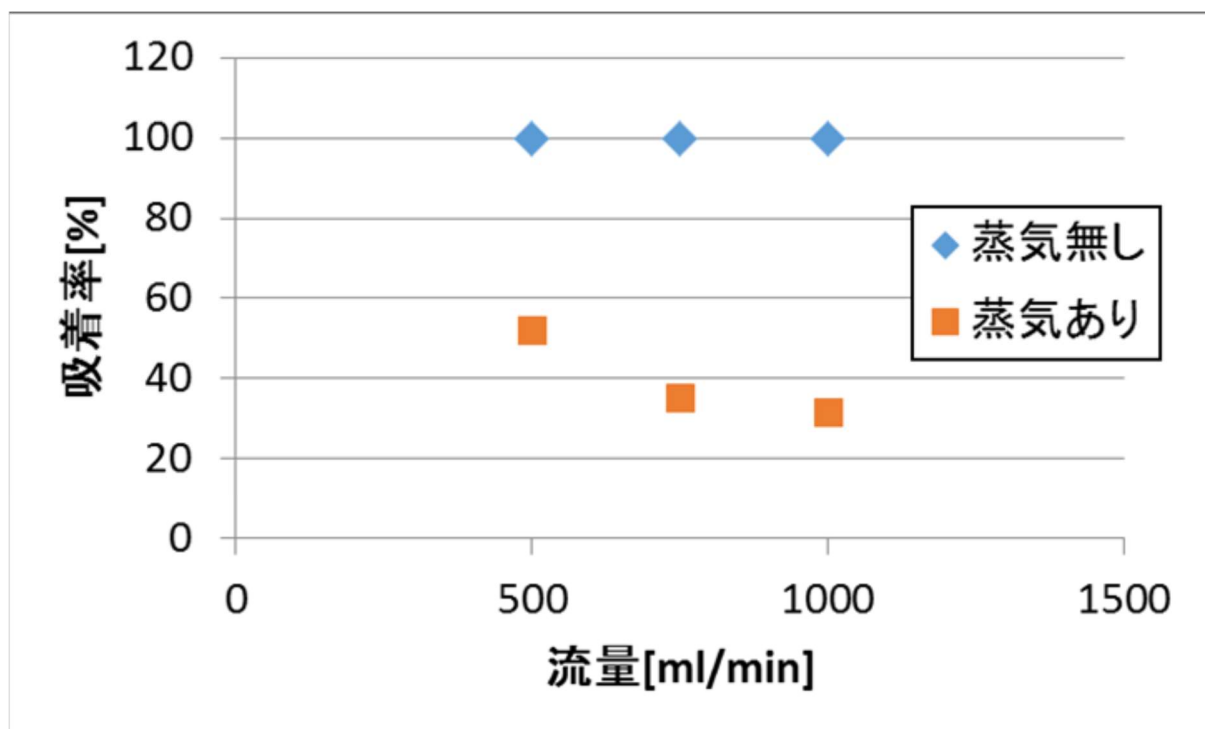


図 3.3-8 金属製吸着実験装置を用いた Ar+1000ppmCH₃I ガス流量と吸着率の関係[2]

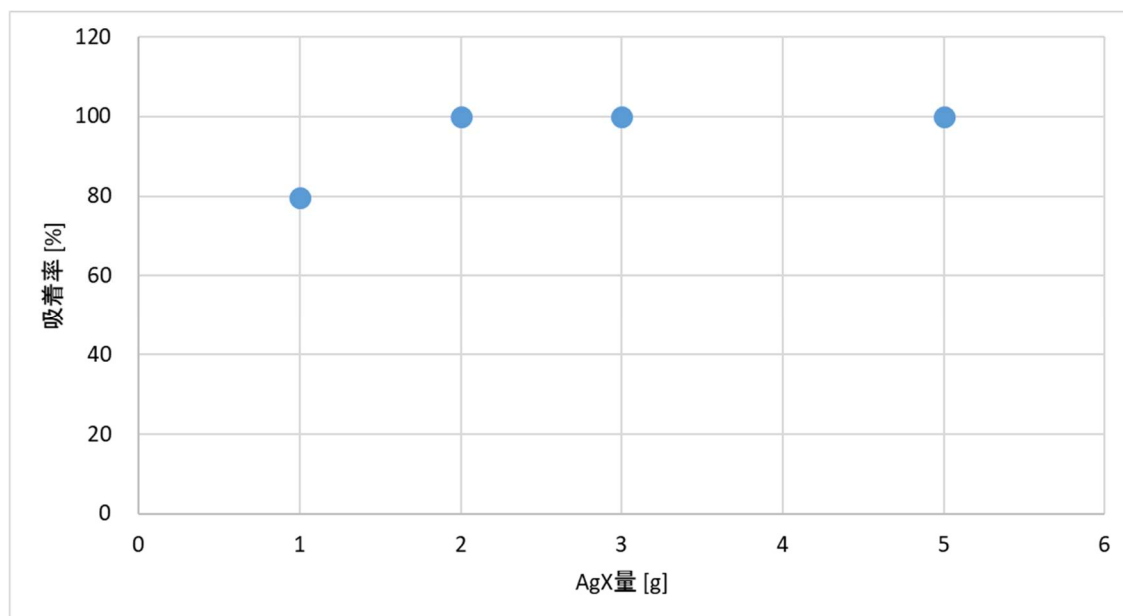


図 3.3-9 金属製吸着実験装置を用いた空気中での吸着剤 AgX の量と吸着率の関係

続いて、金属製吸着実験装置を用いて吸着実験を行った。実験条件を表 3.3-2 に示す。金属製吸着実験装置ではガラス製吸着実験装置より過酷な条件として蒸気発生装置から高温の蒸気を導入し、吸着性能に与える影響を評価した。図 3.3-7、図 3.3-8 より蒸気を導入しなかった場合には、ガス流量やガス中の CH₃I 濃度を变化させても AgX の I 吸着性能は低下しなかった。一方で、蒸気を導入すると、ガス流量の増加に従って吸着率が低下していく結果が得られた。実験開始前に蒸気を回収し、導入した蒸気の量を計算した所、室温(25℃)にお

ける飽和水蒸気量(0.019g/L)の約 50 倍の量を導入しており、本実験では、装置内部で蒸気の一部が水へ状態変化して存在していたと考えられる。そのため、AgX が水で濡れ CH₃I の吸着を阻害したと考えられる。実環境においてはここまでの蒸気が導入されることは考えにくい、が、長期間使用することで AgX が湿って吸着性能が低下することもあると考えられる。そこで蒸気にさらされた AgX が再度乾燥することによって吸着性能が回復するか確認を行った。まず、AgX を所定量管①に入れ、吸着実験時と同様にアルゴンガスを 1000ml/min で流しながら同時に蒸気を導入した。1 時間後、蒸気の導入を止め、AgX を回収した。回収した AgX を 24 時間以上自然乾燥した後、50℃の乾燥機で更に 10 時間乾燥した。この再度乾燥させた AgX を表 3.3-2 の条件 2 と 8 で吸着実験を行った。その結果、吸着率は約 100%となり、図 3.3-8 の結果と同様になった。そのため、蒸気にさらされて水を含んだ AgX は吸着性能の低下が見られるが、再度乾燥させることで吸着性能が回復することが確認された。

また、乾燥空気をキャリアガスとして Ar+1000ppm CH₃I を 10 倍希釈した条件で吸着実験を行った。このときガス中の CH₃I 濃度は 100ppm となる。図 3.3-9 より、AgX 量が 5g でガス流量が 1000ml/min の場合、吸着率は 100%となった。これはアルゴンガスをキャリアガスとしたときの結果と同様であると言えるため、キャリアガスが乾燥空気とアルゴンガスの違いが吸着性能に与える影響は確認できなかった。また、AgX 量を 5g から少なくした場合、2g まで吸着率 100%であったが 1g のとき 80%程度まで吸着率が低下した。

本実験において、ガラス製吸着実験装置を用いた場合ガス流量 400ml/min で吸着率の低下が確認されたが、金属製吸着実験装置を用いた場合は 1000ml/min においても吸着率の低下は確認されなかった。これはガラス製吸着実験装置の吸着管内径(0.61cm²)と金属製吸着実験装置の吸着管内径(5.31cm²)が異なるためであると考えられる。そこでガス流量[ml/min]を吸着管断面積[cm²]で除したものを流速[m/s]とし、比較を行ったものを図 3.3-10 に示す。これより、金属製吸着実験装置はガラス製吸着実験装置に比べ吸着部断面積が小さく流速が遅くなっていたため、大流量にも関わらず吸着率が低下しなかったと考えられる。

実機で銀ゼオライトを吸着材として用いる場合、処理量として約 1m³/s の性能が求められる。今回の実験結果で図 3.3-10 より流速 0.08m/s までは十分な処理性能を有していることが確認された。そこで、実機に必要な断面積は以下の式で計算できる。

$$\text{ガス流量 (m}^3/\text{s)} / \text{流速 (m/s)} = \text{断面積 (m}^2\text{)} \quad (4.3-3)$$

ガス流量を 1m³/s、流速を 0.08m/s としたときの断面積は 12.5m²となる。ただしこれは本実験条件によるものである。吸着性能は吸着剤との接触時間である滞留時間で比較が行われる。そこで、吸着率が 100%となる条件の表 3.3-1 ガラス製吸着実験装置を用いた実験条件 8 の銀ゼオライト 5g、ガス流量 300ml/min(流速 0.08m/s)の条件について滞留時間を計算した。滞留時間は以下の式で計算される。

$$\text{吸着剤充填長さ (m)} / \text{流速 (m/s)} = \text{滞留時間 (s)} \quad (4.3-4)$$

吸着剤充填深さはガラス製吸着実験装置で AgX 5g を充填したとき 2cm となったため、滞

留時間は流速 0.08m/s のとき 0.25s となる。そのため滞留時間が 0.25s 以上となるような条件で実機を設計すればヨウ化メチルを十分に吸着することができると考えられる。

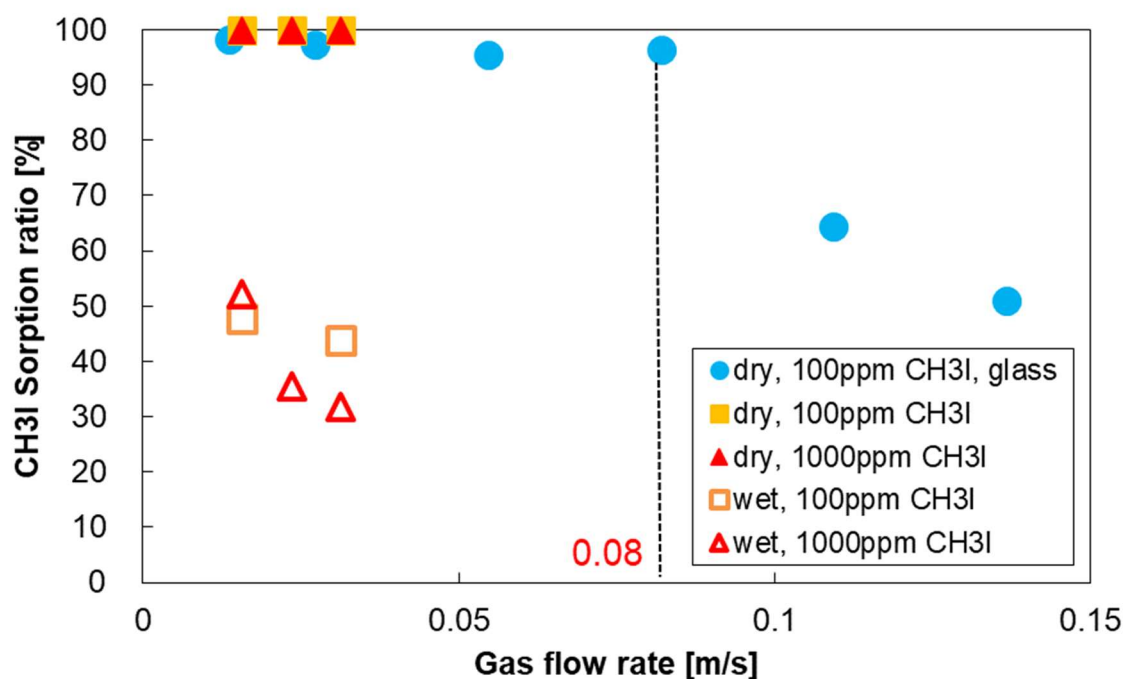


図 3.3-10 Ar+CH₃I ガス流速と吸着率の関係

3.3.4 ヨウ素脱離特性評価に用いる TG-MS の動作確認 (H28)

銀ゼオライトからのヨウ素脱離特性を評価するために、既存の熱質量・示差熱同時測定 (TG-DTA) に質量分析装置である Mass アタッチメント((株)リガク製, M-201GA-CRMY)を取り付けた TG-MS の動作確認を行った。質量分析計は四重極型であり、検出感度は 10ppm であるため十分にガス分析を行うことが期待される。本年度は動作確認のため標準物質としてシュウ酸カルシウム (CaC₂O₄・H₂O) を使用し、ヘリウムガスを 500ml/min で流し、20℃/min で 1000℃まで昇温した。図 3.3-11 より、CaC₂O₄・H₂O の脱水が 180℃付近で確認された。



続いて 500℃付近で CaC₂O₄ の熱分解による CO(m/z=28) の発生が確認された。



最後に 700℃付近で CaCO₃ の分解反応が確認された。



いずれの結果も発生ガスによる理論的な質量減少と実験による質量変化が一致しており、TG-MS は熱分析装置として十分な性能を有していることが確認された。

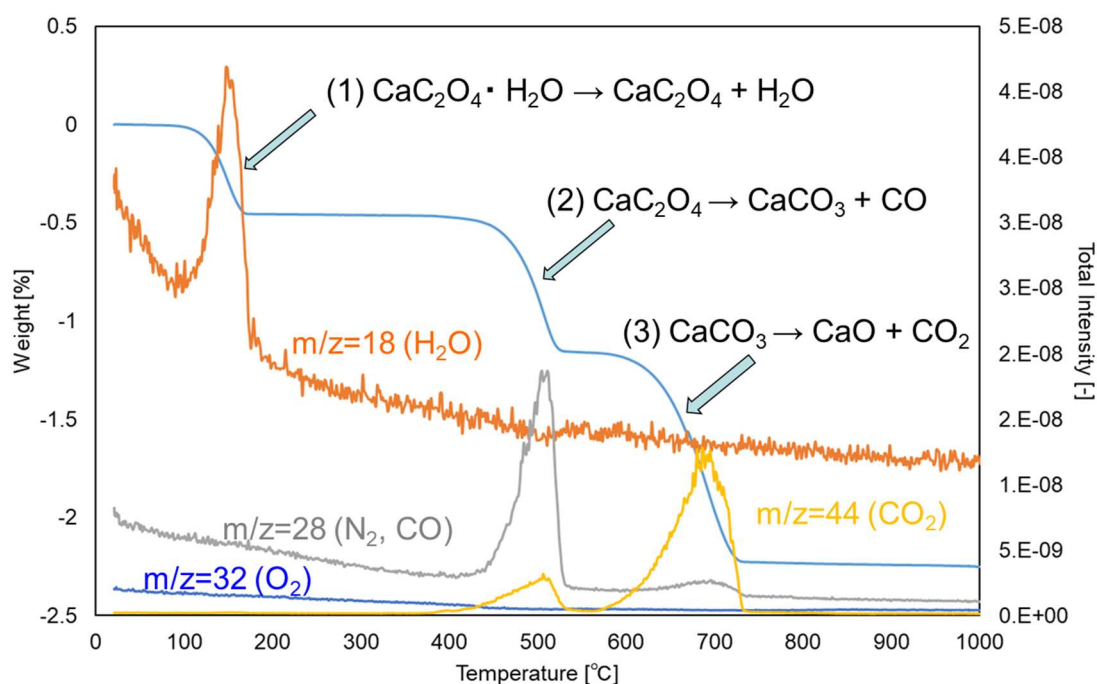


図 3.3-11 標準物質 ($\text{CaC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) の TG-MS 測定結果

3.3.5 TG-MS を用いた銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性評価 (H29)

3.3.5 項で動作確認を行った TG-MS を使用して銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性について評価を行った。まず、ヨウ素を吸着していない AgX の測定を行った。測定はヘリウムガスを 350ml/min で流しながら昇温速度 20°C/min として 1000°C まで行った。図 3.3-12 より、200°C 付近までに質量の減少と同時に $m/z=18$ のピークが確認された。これは、AgX の吸着水の揮発と考えられる。他の質量分析結果は図に示していないが、1000°C までは顕著なピークは確認されなかった。続いて、AgX がヨウ素を化学吸着した場合 AgI として AgX 中に保持することが知られているので、AgI の TG-MS 測定を行った (図 3.3-13)。測定はヘリウムガスを 500ml/min で流しながら昇温速度 20°C/min として 1000°C まで行った。その結果、800°C 付近で $m/z=127$ のピークが確認された。これは I 由来のピークであると考えられるため、AgI が分解して発生したものと思われる。次に、ヨウ素を吸着した AgX を TG-MS 測定を行った。測定はヘリウムガスを 500ml/min で流しながら昇温速度 20°C/min として 1400°C まで行った。その結果を図 3.3-14 に示す。まず、図 3.3-12 の AgX の結果と同様に 200°C 付近で吸着水の揮発が確認された。次に、図 3.3-13 の AgI の結果と同様に 800°C 付近で AgI の分解による I 由来のピークが確認された。また、 $m/z=142$ (CH_3I) のピークは確認されなかったことから、ヨウ化メチルは AgX に吸着されると AgI として吸着し、800°C まで安定に吸着されていることが確認された。

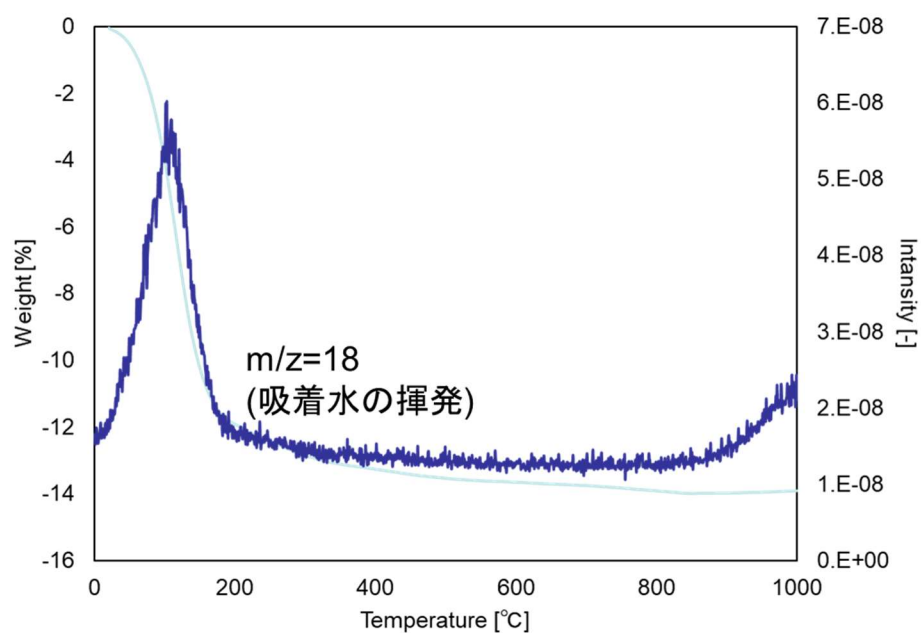


図 3. 3-12 AgX の TG-MS 測定結果

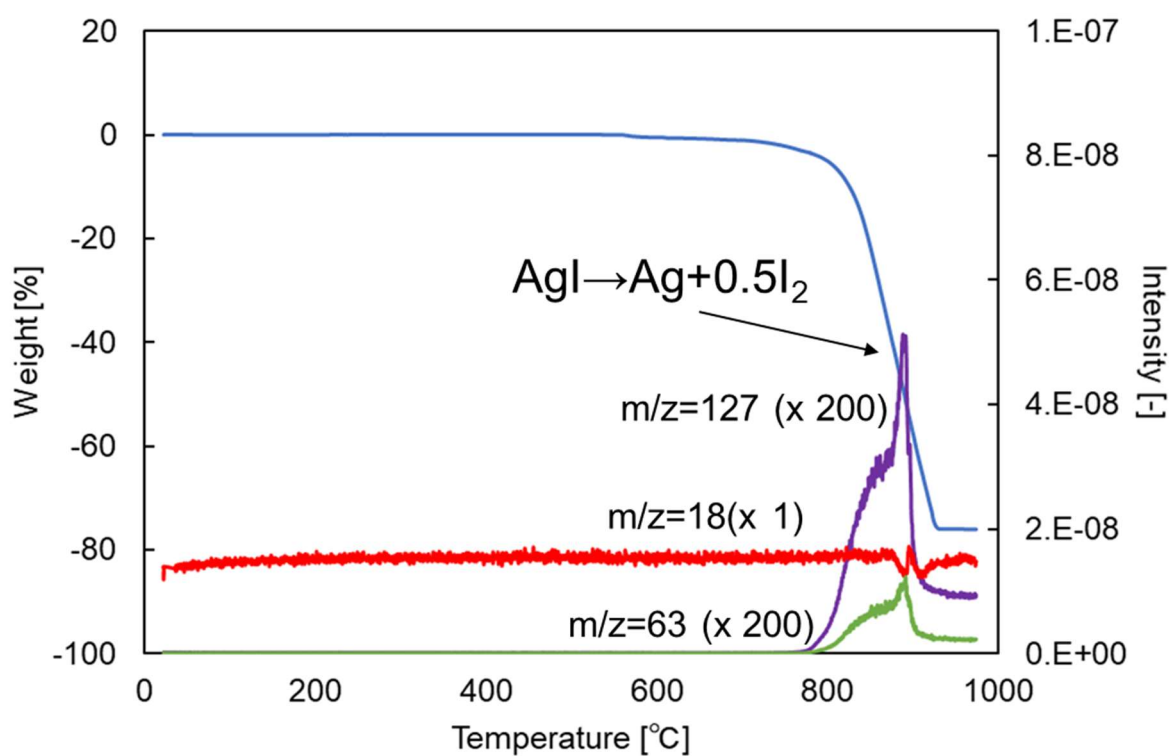


図 3. 3-13 AgI の TG-MS 測定結果

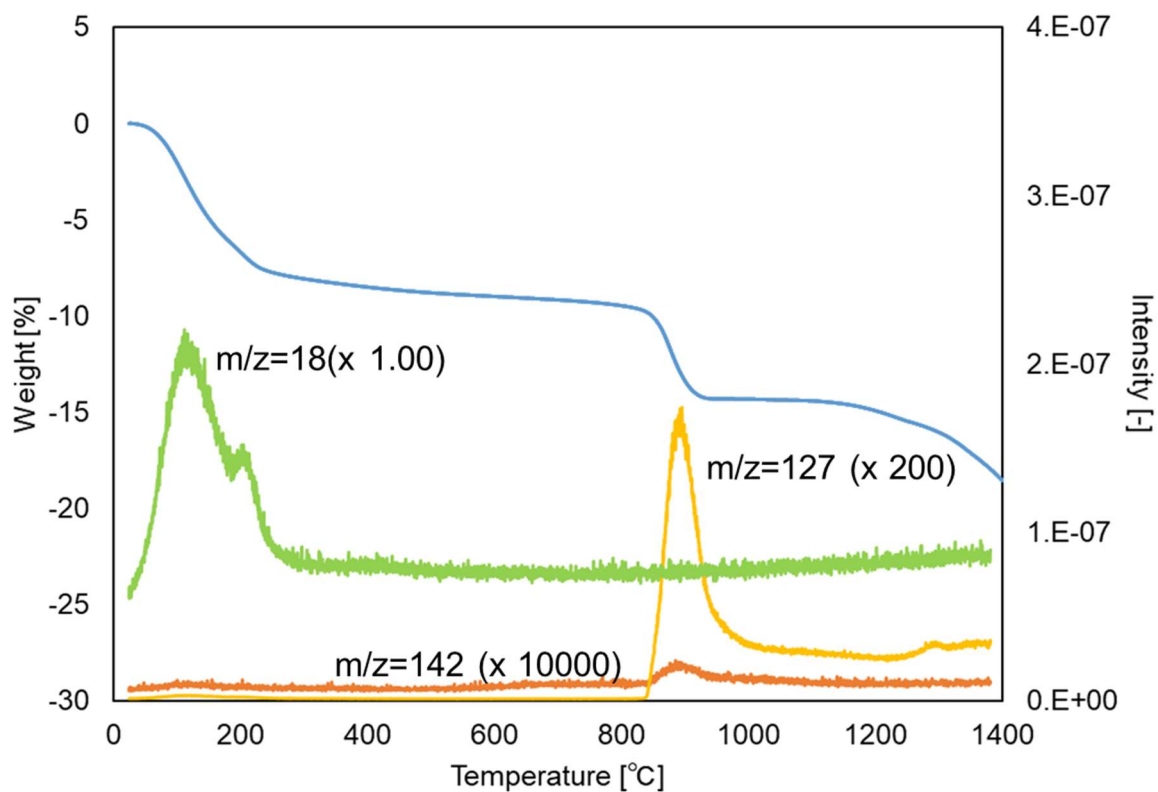


図 3.3-14 ヨウ素吸着 AgX の TG-MS 測定結果

また、廃炉作業時に発生したヨウ素がステンレス等構造材に吸着するか評価を行った。本実験で用いたステンレスはニラコ社製の SUS304 を用いた。ヘリウムガスを 180ml/min、He+1000ppmCH₃I ガスを 20ml/min 流し、昇温速度は 10°C/min で 200°Cまで加熱した。加熱終了後、He+1000ppmCH₃I ガスを止めヘリウムガスを 200ml/min 流し、装置内を洗浄した。TG-DTA 測定の結果を図 3.3-15 に示す。結果として、200°Cまで質量の変化及び熱量の変化は確認することができなかった。そのため、ヨウ化メチルはステンレスへの顕著な吸着反応は起こらず、空気浄化システムまで到達すると考えられる。

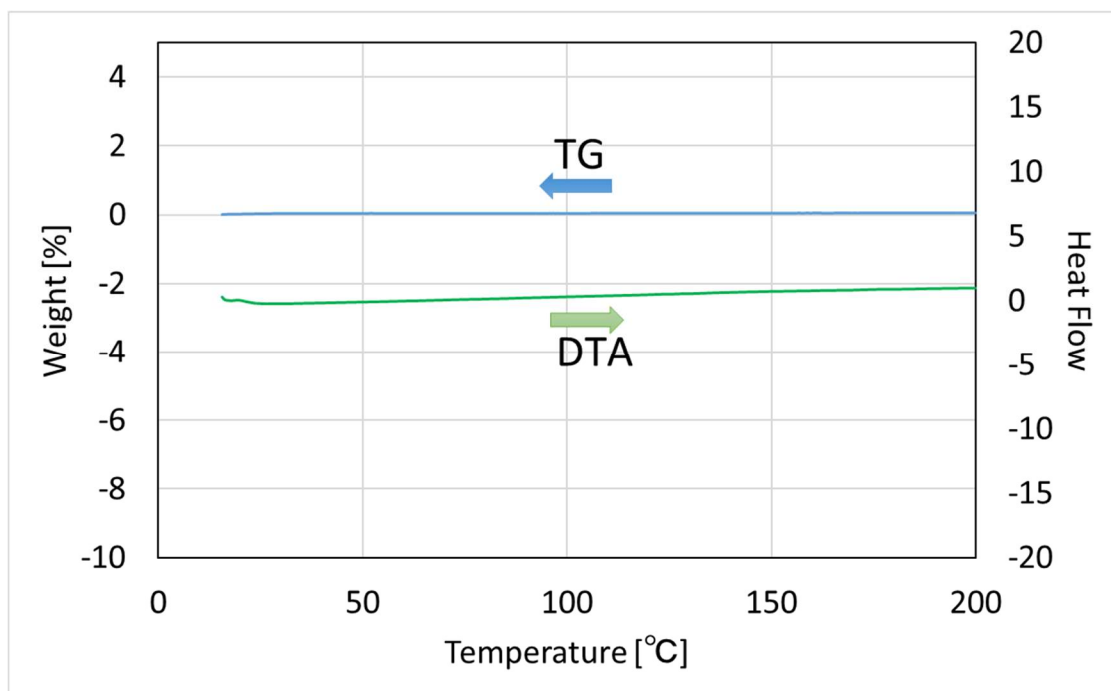


図 3.3-15 He+100ppmCH₃I 中における SUS304 の TG-DTA 測定結果

参考文献

- (1) Tasuku Ishii, Daisuke Akiyama, Akira Kirishima, Nobuaki Sato, Tadashi Narabayash “SORPTION OF RADIOACTIVE METHYL IODIDE BY SILVER DOPED ZEOLITE FOR FILTERED VENTING SYSTEM,” Proceedings of the 24th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE 24-60819), United States, Charlotte, (2016. 6. 26-2016. 6. 30).
- (2) Daisuke AKIYAMA, Yutaka MASAKI, Akira KIRISHIMA, Nobuaki SATO, Tadashi NARABAYASHI “Evaluation of Sorption and Desorption Behavior of Methyl Iodide by Silver Doped Zeolite,” Proceedings of GLOBAL 2017, Paper A-125, Korea, Seoul, (2017. 9. 24-2017. 9. 29)

3.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究 (H27～H29)

3.4.1 はじめに

福島第一原子力発電所の廃炉作業においては、燃料デブリの切断等により放射性物質が飛散することが考えられる。作業員の被曝低減と外部環境への放射性物質の放出の抑制が重要であることから、作業環境の空気から放射性物質を除去する空気浄化システムの導入が必要となる。

空気浄化システムの開発及びその運用を考える際には、廃炉作業における放射性核種の挙動を把握し、最終的に空気浄化システムのフィルター部に捕捉される放射性核種のインベントリを評価する必要がある。そのためには、福島第一原子力発電所の事故発生直前の核燃料中の放射性核種のインベントリ及び事故発生後の放射性核種の放射壊変による核変換とプラント中の移行、更には廃炉作業中の放射性核種の空気浄化システムへの移行を、可能な限り正確に把握する必要がある。

以上の観点から、福島第一原子力発電所の各プラント部位における放射性核種のインベントリを簡易的に評価するコードシステムを開発した。本章ではそのシステムの概要を説明すると共に、いくつかの計算例を示す。

また、空気浄化システムを構成する乾式フィルターは、使用後は放射性物質を含むことになるため、放射線防護の観点から、適切な遮蔽措置を講じる必要がある。そこで、いくつかの遮蔽材について、乾式フィルターから漏洩するガンマ線に対する遮蔽性能の定量的な評価を行ったので、その結果についても示す。

3.4.2 計算理論 (H27～H29)

(1) 事故直前の放射性核種インベントリの評価 (H27～H28)

事故直前の放射性核種インベントリについては、複数のピンセル（燃料棒と被覆管、それを取り囲む冷却材からなる単位格子が無限に配列されていると仮定するモデル）計算の結果を用いて評価した。具体的な方法については文献[1]に記載されているためここでは省略するが、燃料交換バッチ、及び軸方向の出力、ボイド率分布を考慮したものとなっている。

本検討では、核分裂生成物（FP）核種については、JENDL/FPD-2011 及び JENDL/FPY-2011[2]に収納されている 1,300 程度の核種全てについて考慮した。また、アクチニド核種については全ての崩壊系列に属する核種全てについて考慮した。結果として、考慮した FP 核種、アクチニド核種の総数は 1,458 となった。

(2) 事故後の放射性核種インベントリの評価 (H27～H28)

事故後は、燃料の破損により燃料ペレットに保持されていた放射性核種の漏洩が始まった。時間の経過と共に、原子炉圧力容器、原子炉格納容器、更には格納容器外へと放射性核種の漏洩は拡大した。

放射性核種の漏洩によるプラント内の放射性核種の移行を評価するためには、種々の物理モデル・化学モデルを取り込んだ過酷事故解析コードを用いることが一般的であるが、過酷事故解析コードの適切な使用には専門的な知識と経験が必要とされる。そこで今回開発したコードシステムでは、プラントをいくつかの空間ノードに分割し、放射性核種のノード間の移行係数を元素ごとに設定するという簡易的な核種移行モデルを導入し、プラン

ト内の部位ごとの放射性核種インベントリを評価することとした。プラントに対するノーディングの概念図を図3.4-1に示す。

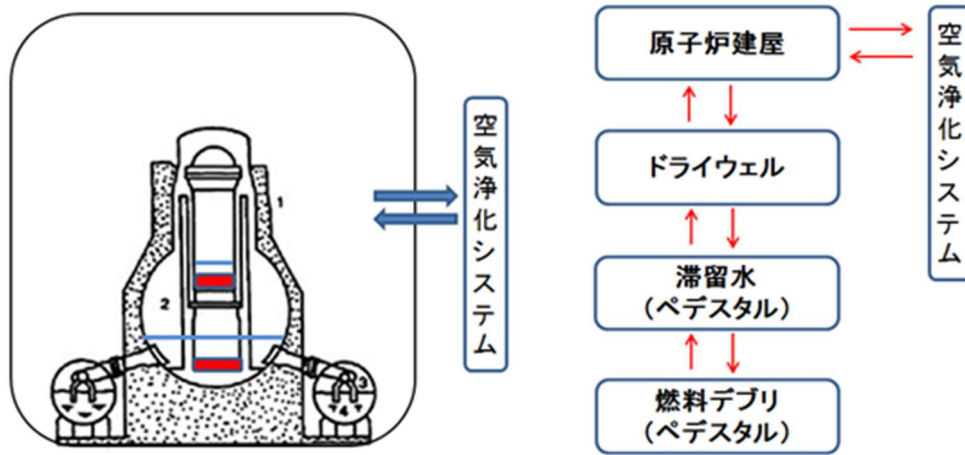


図 3.4-1 福島第一原子力発電所のノーディングの概念図

ノードj、時刻tにおける放射性核種iの数密度を $N_{i,j}(t)$ と記述すると、 $N_{i,j}(t)$ が従う微分方程式は以下のように記述する。

$$V_j \frac{dN_{i,j}(t)}{dt} = -\lambda_i N_{i,j}(t) V_j - \sum_{j'} C_{i,j \rightarrow j'} N_{i,j}(t) V_j + \sum_{i'} \lambda_{i'} N_{i',j}(t) V_j P_{i' \rightarrow i} + \sum_{j'} C_{i,j' \rightarrow j} N_{i,j'}(t) V_{j'}$$

ここで V_j はノードjの体積、 λ_i は放射性核種iの崩壊定数、 $C_{i,j \rightarrow j'}$ は放射性核種iのノードjからj'への移行係数、 $P_{i' \rightarrow i}$ は放射性核種i'の崩壊で核種iが生成される確率を示す。上式右辺における各項の物理的意味であるが、第1項からそれぞれ、自身の放射崩壊による減少、他のノードへの移行による減少、他の放射性核種の崩壊による生成、他のノードからの移行による生成に対応している。この連立方程式は行列形式で以下のように記述される。

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = \mathbf{A}\mathbf{N}(t)$$

ここで、ベクトル $\mathbf{N}$ は全てのi及びjに関する $N_{i,j}$ を要素に含んでいる。この連立一次方程式の解析解は行列指数の形で以下のように得られる。

$$\mathbf{N}(t) = \exp(\mathbf{A}t)\mathbf{N}(0)$$

この式中の行列指数 $\exp(\mathbf{A}t)$ を数値的に計算するための手法はいくつか存在するが、本研究ではMini-Max Polynomial Approximation (MMPA)法[3]を用いる。

ノード間の移行を記述する移行係数については、コードシステムにおいては以下で定義される移行半減期 $T_{tr,i,j \rightarrow j'}$ として扱う。 $T_{tr,i,j \rightarrow j'}$ は「放射性核種iの半量がノードjからj'に移行するのに要する時間」に対応する。

$$T_{tr,i,j \rightarrow j'} = \frac{\ln 2}{C_{i,j \rightarrow j'}}$$

なお、空気浄化システムの運用においては、アクチニド核種の自発核分裂、及び自発核分裂で発生する中性子による核分裂反応により発生する短半減期のFP核種（以降、自発核分裂に由来する短半減期FP核種と記述する）の放射能の影響が懸念されている。本コードシステムではこれらについて以下の方法で考慮している。

燃料デブリを含んだ系の中性子増倍係数を k とすると、自発核分裂により発生した1個の中性子は、未臨界状態での核分裂連鎖反応により計 $k/(1-k)$ 個の中性子を新たに発生することになる。従って、核分裂反応当たりに発生する平均中性子数を ν としたとき、自発核分裂により発生した1個の中性子は $k/(1-k)/\nu$ 回の核分裂反応を起こすことになる。なお、1回の自発核分裂でも複数個の中性子が発生するので、その平均を ν_{sp} とすると、1回の自発核分裂により $k/(1-k) \cdot \nu_{sp}/\nu$ 回の核分裂反応が起こることになる。このようにして、アクチニド核種の自発核分裂由来で生成する核分裂生成物核種を定量的に評価する。なお、本検討では、 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm の自発核分裂を考慮した。自発核分裂に関する崩壊・収率データとしてはJEFF-3.1.1の評価データを利用した。JEFF-3.1.1では、 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm の崩壊における自発核分裂への分岐比はそれぞれ 6.1×10^{-8} 、 1.38×10^{-6} と評価されている。また、自発核分裂当たりの平均中性子発生数は ^{242}Cm では3.54個、 ^{244}Cm では3.70個とされている。なお、自発核分裂で発生した中性子による核分裂反応は全て ^{235}U の熱中性子による核分裂とした。

ちなみに、福島第一原子力発電所1号機の事故直後の ^{242}Cm と ^{244}Cm の総インベントリはそれぞれ 1.89×10^{24} 、 4.16×10^{24} と計算されたため、その比は1:2.2程度である。これに崩壊定数と自発核分裂への分岐比を乗じて得られる自発核分裂発生率の比は1:1.23程度となる。 ^{242}Cm 、 ^{244}Cm の半減期はそれぞれ163日、18年であるため、事故から2年経過後の自発核分裂発生率の比は1:20程度となり、 ^{244}Cm の寄与が支配的となる。

(3) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される事故後の放射性核種インベントリの評価 (H29)

廃炉作業においては、作業対象となる箇所（例えば燃料デブリや圧力容器構造物等）及び作業内容に応じて、空気浄化システムに移行する放射性物質の種類とインベントリが異なる。そこで、上記(2)において計算したプラントの各部位における作業時点での放射性核種のインベントリのデータ、及び作業中の空気浄化システムへの元素ごともしくはその化学形態ごとの移行率を用いることによって、作業中の放射性核種の空気浄化システムへの移行量を評価する。核種の移行モデルは(2)と同様のものを用いる。また、空気浄化システムは複数のフィルターで構成されているため、フィルターごとに元素・化学形態ごとの除染係数（DF）を与え、フィルターごとの放射性物質のインベントリを評価する。

(4) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能の評価 (H29)

空気浄化システムのフィルター部のうち、メタルファイバーフィルターやAgXフィルターといった乾式フィルターについては、使用後はそのまま廃棄物として扱われる可能性が高い。これらは、使用後は放射性物質を含むため、放射線防護の観点から適切な管理が必要となる。そこで本検討では、使用後の乾式フィルターに対する各種遮蔽材の遮蔽性能を評価する。

使用後のフィルターに含まれる放射性核種のインベントリは上記(1)～(3)の方法によって定量的に評価することができる。そのインベントリデータと放射性核種の崩壊ガンマ線のエネルギースペクトルデータを用いて、フィルターのガンマ線源エネルギースペクトルを計算する。ここで、崩壊ガンマ線のエネルギースペクトルデータとしては、JENDL/DDF-2015に基づく、ガンマ線エネルギーを1,000群に離散化したデータを用いた。また、ガンマ線（光子）の輸送計算は、ガンマ線エネルギーを1,000群とした離散座標法に基づく数値計算コードを用いて行った。光子と原子との相互作用の断面積（確率）については、ENDF/B-VII.0の光子原子データファイルの評価データをNJ0Y-99コードのGAMINRモジュールを用いて1,000群に処理したものをを用いた。

ガンマ線の輸送計算の結果、ガンマ線束が全ての空間メッシュにおいて得られる。着目位置でのガンマ線束から、線量当量換算係数を用いて空間線量率を計算した。なお、線量当量換算係数については文献[4]に記載されている「光子フルエンス及び自由空気中空気カーマから周辺線量当量 H^* (10)及び方向性線量当量 H' (0.07, 0°)への換算係数」の値を利用した。

3.4.3 計算条件の設定（H27～H29）

(1) 事故直前の放射性核種インベントリの評価（H27～H28）

事故直前の放射性核種インベントリの評価には、原子炉の仕様（燃料仕様など）や事故時点までの原子炉の運転条件（出力履歴や冷却履歴等）に関する情報が必要となる。それらに関してはJAEAの西原らの評価データを基にした[5]。

(2) 事故後の放射性核種インベントリの評価（H29）

本計算では、①燃料デブリが全て空気中に存在している場合(Type-A)、②燃料デブリが全て水中に存在している場合(Type-B)、③燃料デブリ全体積のうち半分ずつが空気中と水中に存在する場合(Type-C)の3つのモデルを用いて、ヨウ素、セシウム、ストロンチウムの元素並びに同位体の放射能の、事故後10年間の推移を計算した。なお、健全燃料は全燃料のうち30%あると仮定した。また、各モデルについて事故後1週間並びにそれ以降で各放射性元素の移行のしやすさを変えた計算も行った。計算モデルの概念図を図3.4.3-1から図3.4.3-6にそれぞれ示す。この計算では、健全燃料部分、損傷している燃料の内側と外側部分、炉内汚染水、並びに空気の5つの領域区分をした。なお、各図中の「空気中から水中への移行」等と記載されている箇所がそれぞれ移行半減期に対応している。また、燃料部から移行する放射性物質の移行半減期を表3.4.1に示す。

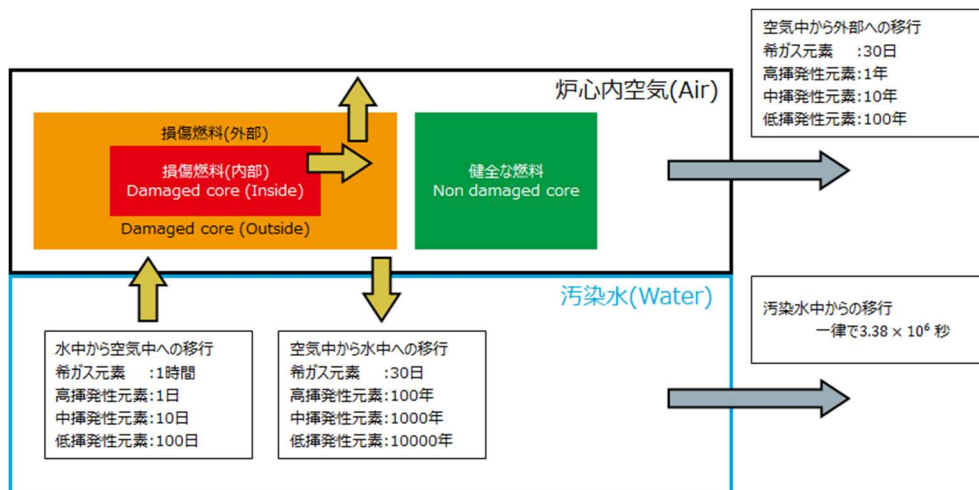


図3. 4. 3-1 Type-A(事故直後)

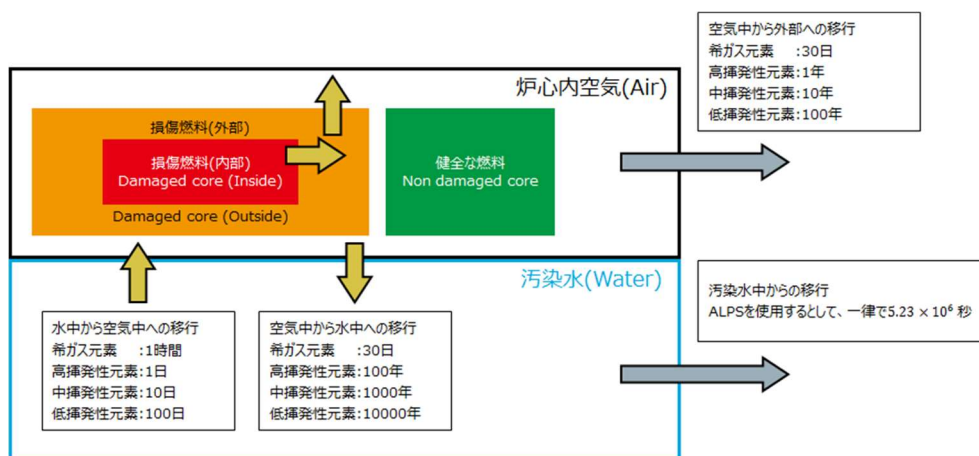


図3. 4. 3-2 Type-A(事故直後以外)

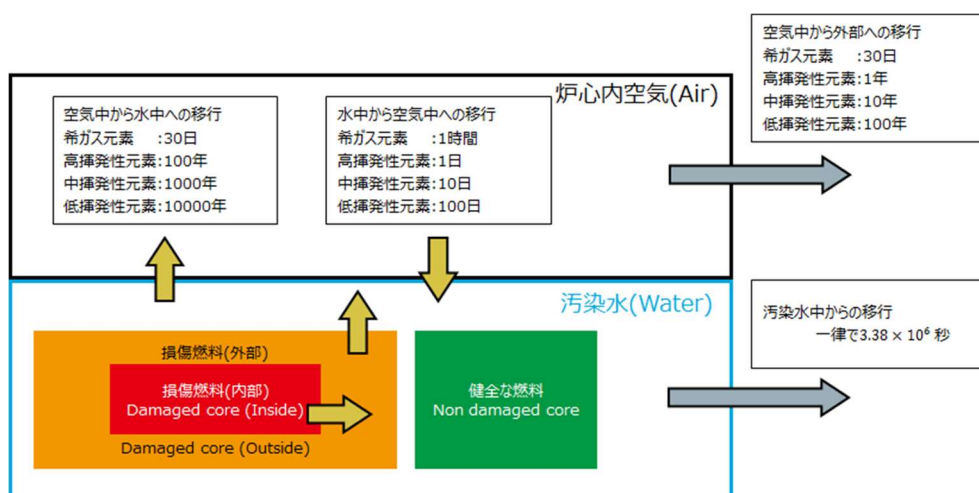


図3. 4. 3-3 Type-B(事故直後)

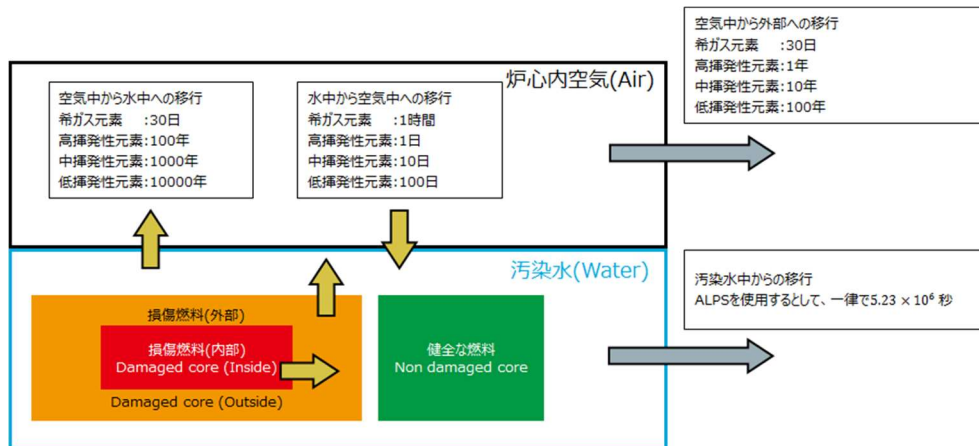


図3.4.3-4 Type-B(事故直後以外)

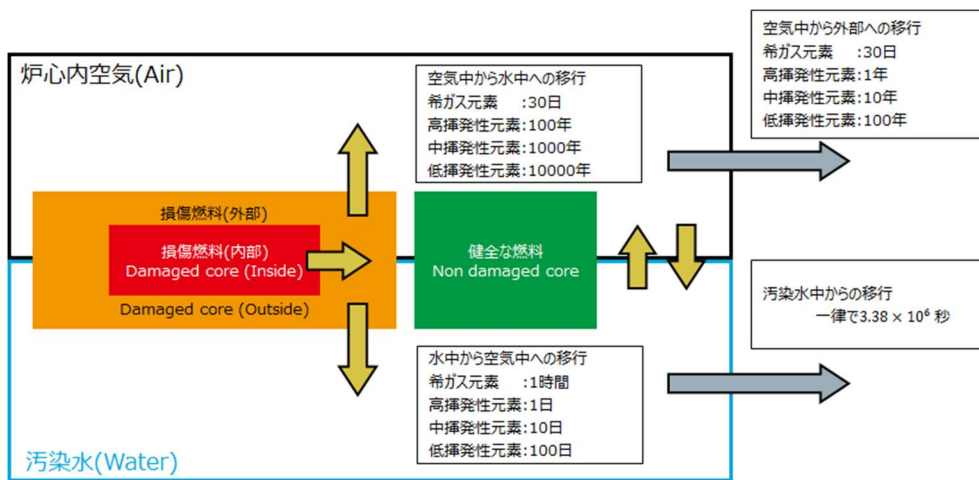


図3.4.3-5 Type-C(事故直後)

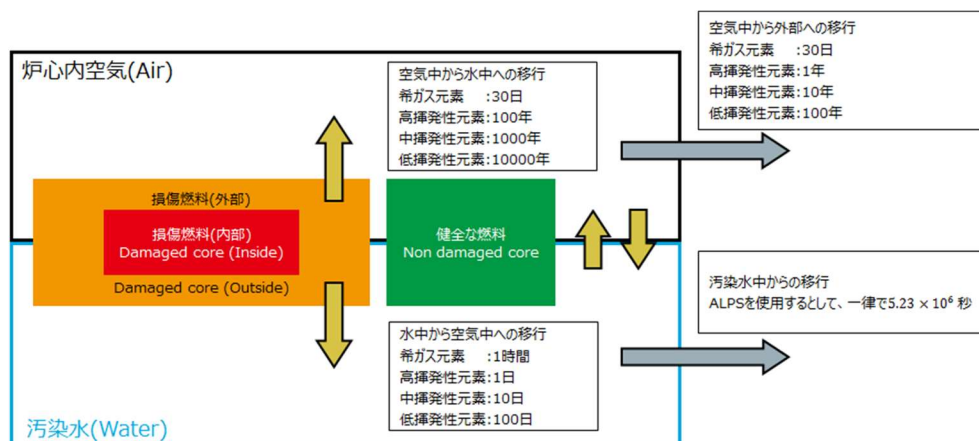


図3.4.3-6 Type-C(事故直後以外)

表3. 4. 1 燃料から移行する元素の移行半減期(単位は秒)

	事故直後	それ以外
Kr	7.02E+03	4.05E+03
Rb	2.79E+04	2.47E+04
Sr	1.20E+06	移行しない
Y	4.01E+08	
Zr	1.11E+08	2.33E+07
Nb	2.41E+07	1.23E+06
Mo	3.12E+04	1.27E+04
Tc	8.54E+05	2.53E+05
Ru	2.40E+06	1.03E+06
Ag	1.35E+04	1.93E+05
Cd	2.36E+04	3.21E+04
Sb	2.36E+04	5.02E+04
Te	1.24E+04	3.21E+04
I	7.95E+03	5.31E+03
Xe	8.94E+03	4.05E+03
Cs	9.46E+03	1.02E+04
Ba	3.48E+05	4.33E+04
La	2.04E+07	5.17E+06
Ce	4.29E+06	5.47E+06

今回の計算では、健全燃料部分からの各元素の移行はないものとし、それ以外の箇所では放射性物質の移行が発生するものと仮定した。ただし、移行すると考えられる元素ごとに、揮発の有無等を考慮して移行半減期を設定した。計算条件に関する追加の説明を以下に列挙する。

- ・ 損傷燃料から放出される元素の移行半減期について、事故直後とそれ以外で一部変更した。
- ・ 損傷燃料からの移行半減期は参考文献での実験結果を引用した[6]。
- ・ 汚染水中の放射性物質はALPSを使用し浄化すると仮定した。
- ・ 汚染水から空气中、空气中から外部領域への移行については、希ガス元素、揮発性の高低に応じて表3. 4. 2に示すように別途設定し計算した。
- ・ 化学的な性質を考慮し、汚染水中と空气中を移行する元素はルビジウム(Rb)、ストロンチウム(Sr)、イットリウム(Y)、テクネチウム(Tc)、ヨウ素(I)、キセノン(Xe)、セシウム(Cs)、バリウム(Ba)、ランタン(La)、セリウム(Ce)と仮定した。

表3. 4. 2 移行する元素の分類

希ガス元素	Kr, Xe
高揮発性元素	Rb, I, Cs
中揮発性元素	Mo, Ag, Cd, Sb, Te
低揮発性元素	Sr, Y, Zr, Nb, Tc, Ru, Ba, La, Ce

更に、文献調査の結果から決定した放射性物質の移行について、損傷燃料から水中あるいは空气中へ極端に移行する場合（移行半減期を1/100）並びに移行しない場合（以降半減期を100倍）の計算も行った。ただし、この移行半減期の変更は損傷燃料から空气中あ

るいは水中に限定した。この理由として、水中や空気中での移行の影響は不明な点が多く移行半減期に任意の値を用いていることと、損傷燃料からの移行と異なり空気中や水中相互間での移行は損傷燃料から仮に放射性物質が極端に移行してきたとしても影響を受けないと考えられることの二点が挙げられる。

(3) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される放射性核種インベントリの評価 (H29)

廃炉作業を行う際に、各フィルター部に捕捉される放射性核種の放射能やインベントリを計算するために作成したプログラムの概念図を図 3.4.3-7 に示す。この図では健全燃料を解体し、その時に発生するヨウ素の放射能がどの程度になるかを考える。

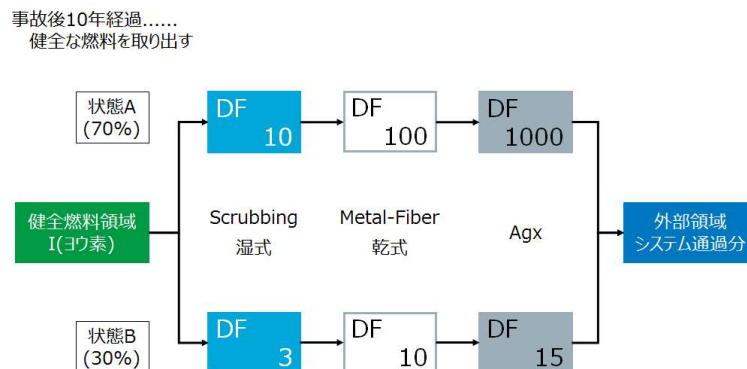


図 3.4.3-7 各フィルター部の放射性核種インベントリを計算するプログラムの概念図

今回使用する空気浄化システムは同図の通り、まず湿式部(水スクラビング)を通過し、続いて乾式部(金属ファイバー)、最後に AgX(銀ゼオライト)を通過するような構造をしている。本プログラムでは、対象とする元素の化学形態が複数あることを想定し、それぞれの化学状態で異なる DF を設定し、湿式、乾式、AgX の 3 つのフィルター部で捕捉される放射性物質の放射能やインベントリを計算する。また、空気浄化システムを通過して外部に漏れ出す放射性物質についても同様に計算した。本計算において乾式部分の DF については、本事業で得られた実験結果などを参考にした[7]。

3.4.4(3)項で後述する通り、空気浄化システムに捕捉される放射性物質の中では主要線源として ^{137}Cs が挙げられる。そのため、本計算では廃炉作業中に健全燃料や損傷燃料を解体する場合の ^{137}Cs のガンマ線の影響を考慮することとして、各計算においてセシウムのみが移行するものとした。また、作業時間については事故後 10 年目から 1 年間で作業を行う場合を仮定した。図 3.4.3-7 と同様の概念図を図 3.4.3-8 に示す。通過する物質が液体状態である場合に乾式部並びに AgX での DF が大幅に低下することが北海道大学で先行研究として実施した研究結果より明らかとなっている[8]ため、各部分の DF は下図のように設定した。また、このときの作業時の作業対象領域(例えば図 3.4.3-8 では健全燃料領域)からシステムに移行する放射性物質の移行半減期は 300 日とした。従って、1 年間の作業期間中に半分以上のセシウムが空気浄化システムに移行するという保守的な想定となる。

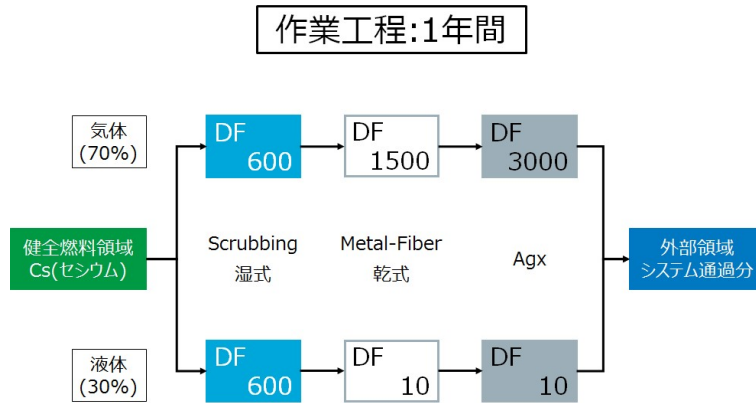


図 3. 4. 3-8 計算プログラムの概念図

(4) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能の評価 (H29)

ガンマ線の遮蔽計算は、フィルターを中心として、それを遮蔽材が取り囲む球体系を対象として行った。遮蔽材としては、コンクリート、アルミニウム、鉄、鉛の4種類を考慮した。それら遮蔽材に含まれる原子個数密度を表 3. 4. 3 に示す。なお、この原子個数密度データは国際臨界安全ベンチマークプロジェクトで整理されたハンドブック (ICSBEP ハンドブック) に記載されているものを引用した。なお、フィルター部の原子個数密度については、その材質が鉄であると想定し、充填率 (10%) を乗じて得た。

体系情報としては、フィルター部の半径を 10cm とし、遮蔽材の厚さを可変とした。また、空間線量の計算位置は体系 (フィルター部) の中心から 200cm とした。

表 3. 4. 3 遮蔽材の原子個数密度 (単位: [/cm/barn])

	空気	コンクリート	アルミニウム	鉄	鉛
H		1. 2948E-03			
C				1. 1269E-03	
N	3. 8595E-05				
O	1. 0386E-05	3. 1688E-02			
Na		4. 9000E-04			
Mg		2. 1817E-04			
Al		1. 7789E-03	5. 9154E-02		
Si		1. 2014E-02	1. 7387E-04	1. 6065E-04	
K		6. 8456E-04			
Ca		2. 7286E-03			
Cr				2. 6032E-04	
Mn			3. 8519E-04	3. 2850E-04	
Fe		2. 6512E-04	1. 0202E-04	7. 9416E-02	1. 8347E-05
Ni				2. 3063E-04	
Cu				2. 1300E-04	
Pb					3. 2744E-02

3. 4. 4 計算結果 (H29)

(1) 廃炉作業時点での放射性核種インベントリ (H29)

本章では、①健全燃料を仮定しそこから他領域へ移行していく条件のみで計算した単一燃料ノードモデルと、②3. 4. 3(4)項の図 3. 4. 3-1 から図 3. 4. 3-6 までの各領域に分けてそれぞれ計算をしたプラントノーディングモデルのそれぞれについての結果を示す。

① 単一燃料ノードモデル

まず、健全燃料を想定し、燃料から放射性物質が移行しない場合を考える。このときに自発核分裂の影響によって放射能がどのように変化するかを検討する。図3.4.4-1に燃料で自発核分裂が発生している場合と、発生していない場合でヨウ素の放射能の10年間の時間変化を比較したものを示す。また、同図中の凡例のSFは自発核分裂を意味する。なお、本計算では中性子増倍係数を3種類設定し計算した。

同図より、自発核分裂が生じている場合では中性子増倍係数が極めて臨界に近くなるような場合(図中「w/SF, k=0.99」)、放射能が1桁程度上昇することが分かった。従って、移行がない健全燃料のような場合は、後述の移行がある場合と比較して自発核分裂の発生の有無が燃料の放射能に影響しにくいことが分かった。

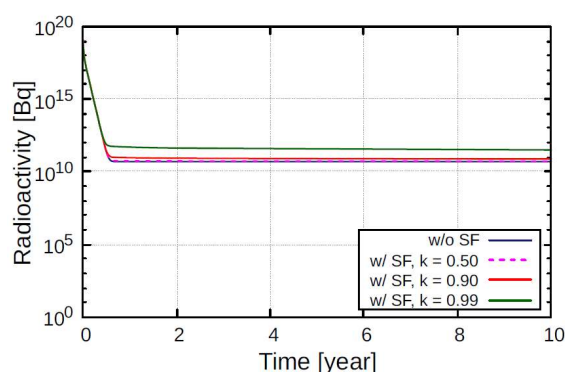


図3.4.4-1 燃料内で自発核分裂のみが発生している場合のヨウ素の放射能の比較

続いて、燃料の移行がある場合で同様の計算を行った結果を図3.4.4-2に示す。この計算では簡単のために、移行する元素を、クリプトン(Kr)、リビジウム(Rb)、ストロンチウム(Sr)、モリブデン(Mo)、ルテニウム(Ru)、アンチモン(Sb)、テルル(Te)、ヨウ素(I)、キセノン(Xe)、セシウム(Cs)、バリウム(Ba)、ランタン(La)、セリウム(Ce)、ラドン(Rn)の14種類と設定し、また各元素の移行半減期を全て30日一律であると仮定した。計算結果より放射性物質の移行が発生している場合では自発核分裂の有無によって放射能の時間変化が大きく変わることが分かった。この原因としては、図3.4.4-3と図3.4.4-4のように、長半減期同位体と短半減期同位体のそれぞれを比較することによって考察できる。

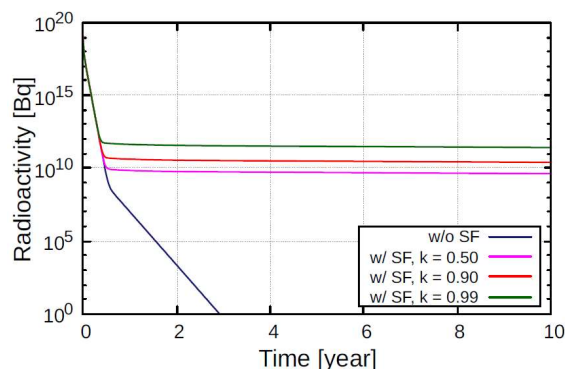


図3.4.4-2 自発核分裂と放射性物質の移行が発生している場合のヨウ素の放射能の比較

図3. 4. 4-3は長半減期同位体である ^{129}I (半減期 1.57×10^7 年)、図3. 4. 4-4は短半減期同位体である ^{131}I (半減期8.052日)の10年間で放射能の時間変化を示す。長半減期同位体である ^{129}I は、放射性物質の移行を考慮する場合、燃料から顕著に漏洩していくため、極めて臨界に近い状態であれば100Bq程度になり、それ以外の場合は図3. 4. 4-4の通り、短半減期同位体の放射能に比べると大幅に小さくなると考えられる。一方で ^{131}I のような短半減期同位体は、漏洩がある場合でも、長半減期同位体と同様にある時点から放射能が低下しない。しかしながら、長半減期同位体と比べると高い放射能を持つ。また、短半減期同位体は事故後2年程度が経過すると、中性子増倍係数の差によって若干変化するがほぼ一定値を取るようになる。この理由として、崩壊による半減期と移行半減期を比較すると、長半減期同位体では崩壊による影響よりも移行による影響が顕著であるため放射能が低下しやすいことが挙げられる。その一方で、短半減期同位体では移行半減期を極端に小さくしない限りは影響を受けないため、今回のように移行半減期を30日であると仮定した場合では放射能が低下しにくいことが分かる。同様の計算結果として移行半減期を180日、1年としたものを図3. 4. 4-5から図3. 4. 4-8に示す。

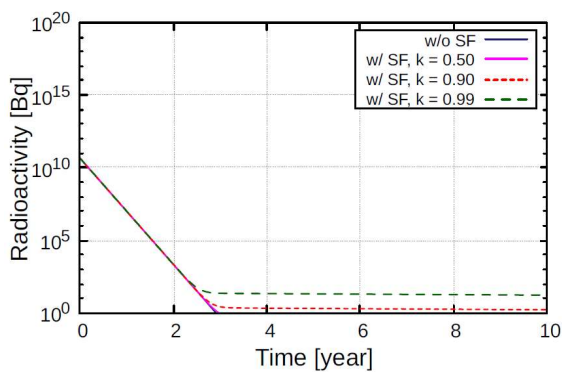


図3. 4. 4-3 ^{129}I (移行半減期30日)

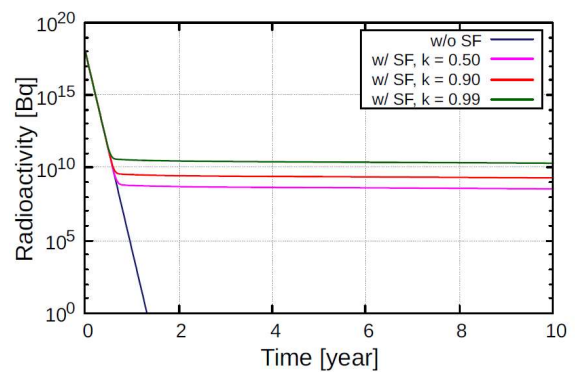


図3. 4. 4-4 ^{131}I (移行半減期30日)

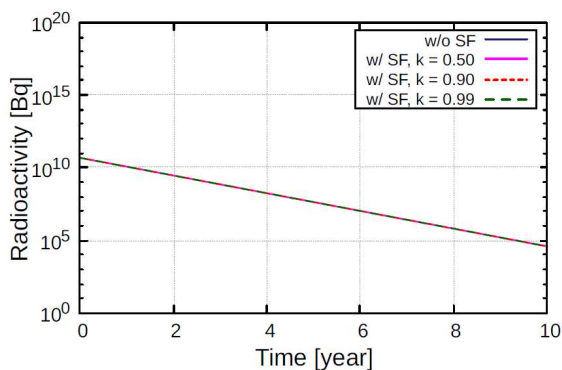


図3. 4. 4-5 ^{129}I (移行半減期180日)

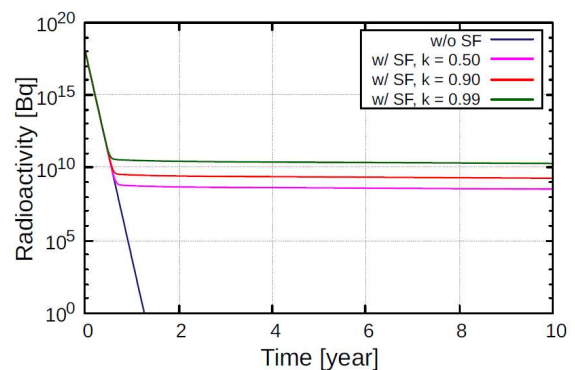


図3. 4. 4-6 ^{131}I (移行半減期180日)

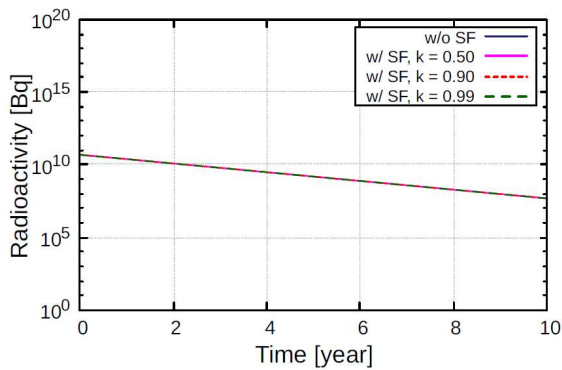


図3.4.4-7 ^{129}I (移行半減期1年)

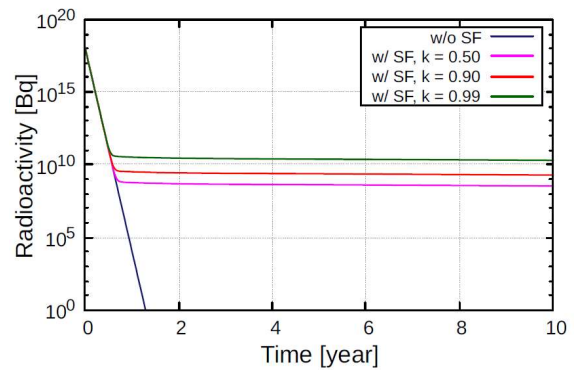


図3.4.4-8 ^{131}I (移行半減期1年)

図 3.4.4-5 や図 3.4.4-7 で示されているように、移行半減期が長くなると ^{129}I は中性子増倍係数の値によらずに低下していく。この理由として、事故直後の ^{129}I の放射能は 10^{10}Bq 程度と自発核分裂によって生成される ^{129}I の放射能に比べて圧倒的に高く、仮に中性子増倍係数が変化したとしても、その影響がほとんどないことが挙げられる。

一方で、短半減期同位体の ^{131}I は中性子増倍係数の値によって差は生じるものの、図 3.4.4-6 や図 3.4.4-8 で示されているように、事故後おおむね 2 年が経過する時点では放射能が一定値をとるようになる。このことから、移行半減期が変化したとしても燃料内に残る放射性同位体は事故後 10 年程度が経過すると短半減期同位体が支配的になると考えられる。

ただし、移行半減期を更に大きくした場合は、長半減期同位体の影響も強くなると考えられる。この理由としては、図 3.4.4-5 と図 3.4.4-7 を比較すると、移行半減期が大きくなると長半減期同位体の放射能の低下も緩やかになっていることが挙げられる。

② プラントノーディングモデル

図3.4.4-9と図3.4.4-10に、健全燃料におけるセシウム、ヨウ素、ストロンチウムの放射能の時間変化を示す。なお、図3.4.4-9は中性子増倍係数が0.50、図3.4.4-10は0.99の結果である。この計算結果から、事故後10年程度が経過した場合、健全燃料内に残るヨウ素はセシウムやストロンチウムに比べると、中性子増倍係数が極めて臨界に近い場合で5桁程度、それ以外の場合では6桁程度小さいことが分かった。また、セシウムとストロンチウムは中性子増倍係数が変化しても、ヨウ素に比べると放射能はほとんど増加していない。これは①の単一燃料ノードモデルの箇所で述べたものと同様に、セシウムとストロンチウムの事故直後の放射能に比べて、自発核分裂によって生成されるセシウムやストロンチウムの放射能が圧倒的に小さいことによるものであると考えられる。

続いて、短半減期同位体の影響並びに移行の条件を変更した場合の結果について考察する。まず、本計算条件では3.4.3 (2) 項で提示した、Type-A、Type-B、Type-Cのいずれのモデルを用いた場合でも移行によって早期に損傷燃料から多くの放射性物質が空気中あるいは炉内汚染水中に漏洩することが分かった。

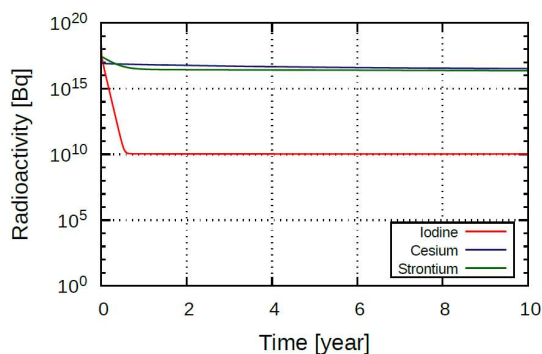


図3. 4. 4-9 中性子増倍係数が0. 50の場合
(健全燃料領域)

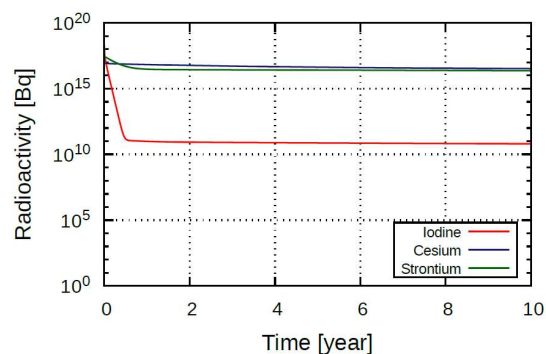


図3. 4. 4-10 中性子増倍係数が0. 99の場合
(健全燃料領域)

その中の一例として、Type-Bでの ^{137}Cs の各領域の放射能の計算結果を図3. 4. 4-11と図3. 4. 4-12に示す。ここで自発核分裂の影響について考えると、長半減期同位体の ^{137}Cs は極めて臨界に近くなるような場合では、損傷燃料箇所の放射能が2桁弱大きくなることが分かった。

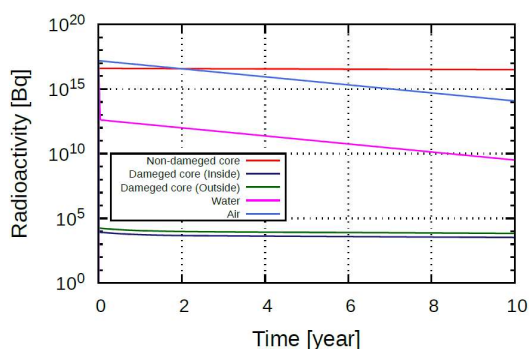


図3. 4. 4-11 中性子増倍係数が0. 50の場合
(全領域)

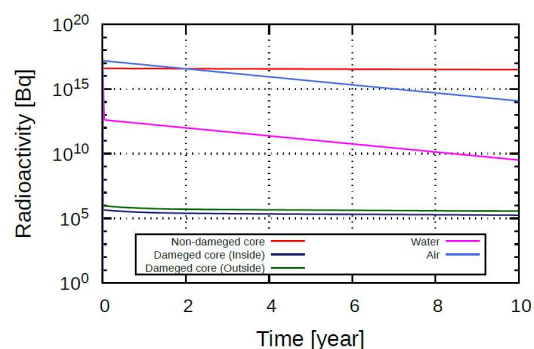


図3. 4. 4-12 中性子増倍係数が0. 99の場合
(全領域)

また、今回設定した移行半減期の計算では、放射性物質が極端に移行する場合、移行しない場合のどちらでも、空気中と水中の相互間での移行半減期に影響がないと考えたため、空気中や水中の放射能が変化することはなく、損傷燃料中の放射能が変化しただけであった。また、放射性物質が極端に移行しないときと極端に移行するときを比べると、中性子増倍係数が同じであった場合でも図3. 4. 4-13と図3. 4. 4-14のように、1桁以上放射能が変化するものがあった。特に、 ^{137}Cs では図3. 4. 4-11のように燃料が全て水中に存在していると仮定すると、極端に移行する場合は極端に移行しない場合に比べて4桁程度低下する。特に長半減期同位体については、セシウムとストロンチウムでは損傷燃料から早期に移行し事故後10年程度が経過すると空気中あるいは水中に多く存在することと、空気中あるいは水中での放射能に支配的な影響を与えることが分かった。一方でヨウ素の場合は長半減期同位体である ^{129}I 以外にも短半減期同位体の核種が多く移行することが分かった。このことから、廃炉作業を行う上では長半減期同位体が空気中などに多く存在することから、これらがエアロゾル状になるなどして多数空気浄化システ

ムで捕捉されると考えられる。

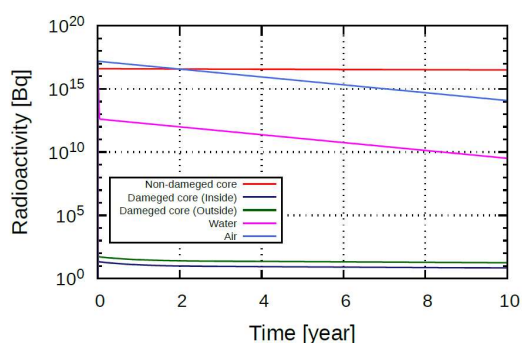


図3. 4. 4-13 極端に移行する場合 (^{137}Cs)
(全領域)

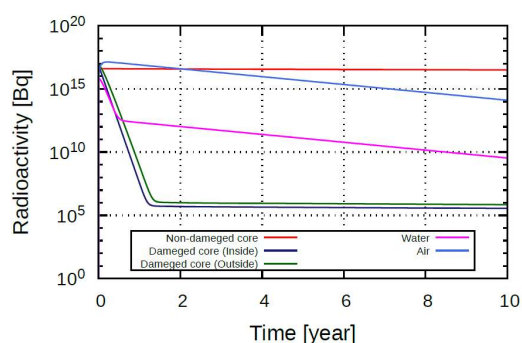


図3. 4. 4-14 極端に移行しない場合 (^{137}Cs)
(全領域)

続いて、短半減期同位体の影響について考察する。本考察でも同様に燃料が全て水中に存在している場合で、短半減期同位体として ^{134}Cs (半減期2.06年)、 ^{136}Cs (半減期13.16日)、 ^{131}I (半減期8.052日)、 ^{89}Sr (半減期50.53日)、長半減期同位体として ^{137}Cs (半減期30.08年)、 ^{129}I (半減期 1.57×10^7 年)、 ^{90}Sr (半減期28.79年)を用いて、まず移行半減期の設定どおりに移行した場合を考える。自発核分裂が発生していて中性子増倍係数が0.50の場合の結果を、図3. 4. 4-15、図3. 4. 4-16に ^{134}Cs と ^{137}Cs 、図3. 4. 4-17と図3. 4. 4-18に ^{131}I と ^{129}I 、図3. 4. 4-19と図3. 4. 4-20に ^{89}Sr と ^{90}Sr としてそれぞれ示す。

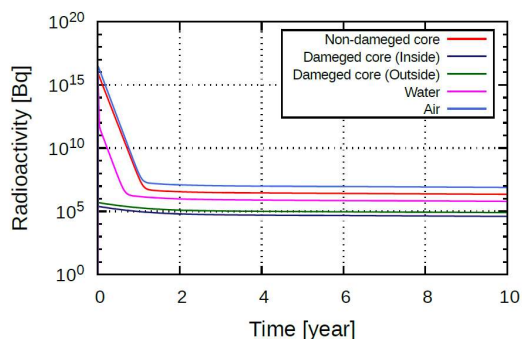


図3. 4. 4-15 ^{134}Cs

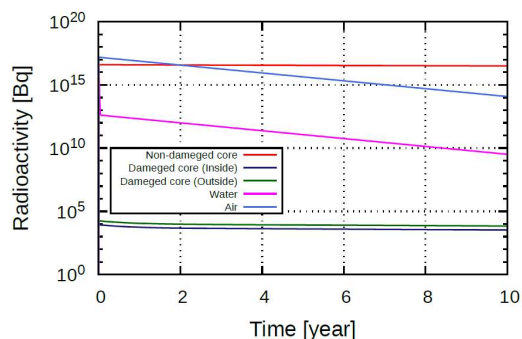


図3. 4. 4-16 ^{137}Cs

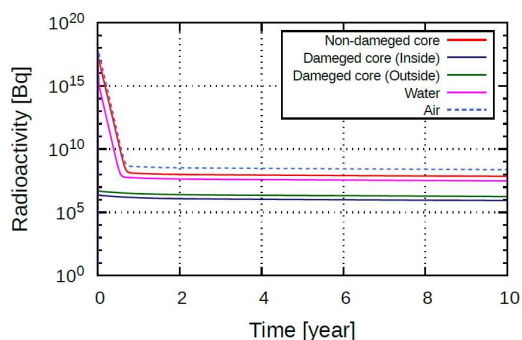


図3. 4. 4-17 ^{131}I

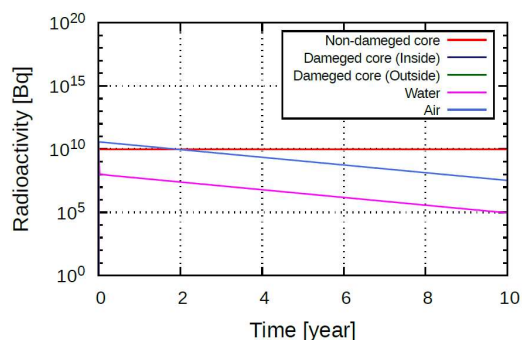


図3. 4. 4-18 ^{129}I

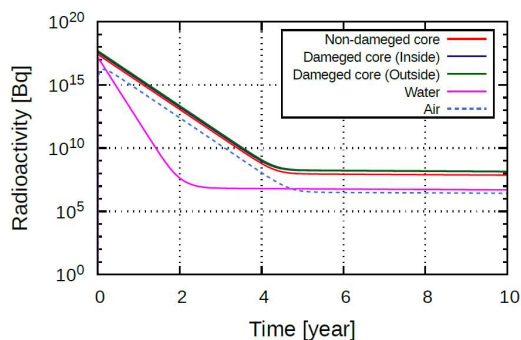


図3.4.4-19 ^{89}Sr

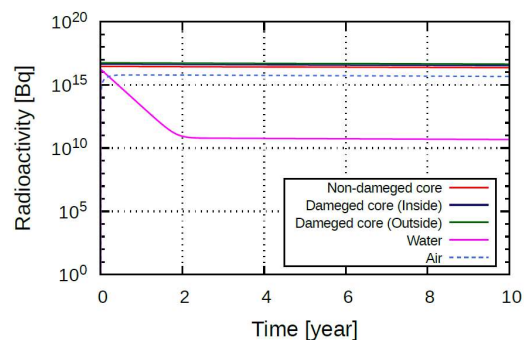


図3.4.4-20 ^{90}Sr

セシウムとヨウ素の場合は損傷燃料中では自発核分裂により短半減期同位体が生成されるため、損傷燃料中での放射能は短半減期同位体の影響が支配的となる。一方でストロンチウムの場合では損傷燃料中でも長半減期同位体の ^{90}Sr の影響が支配的であることが分かった。この理由としては、本計算ではストロンチウムは事故直後でしか移行しないと仮定したことによるものであると考えられる。また移行半減期が極端に長い場合と短い場合は短半減期同位体においても、長半減期同位体と同様の結果を得られた。

最後にヨウ素、セシウム、ストロンチウムの元素ごとの放射能の計算結果の一例としてType-B・自発核分裂発生時(中性子増倍係数0.50)の各領域の放射能を、図3.4.4-21、図3.4.4-22、図3.4.4-23に示す。事故後10年程度が経過した場合、ヨウ素とセシウムについては最も放射能が高い箇所は健全燃料領域、ストロンチウムは健全燃料領域と損傷燃料領域であることが分かった。また、体系が極めて臨界に近い場合では、セシウムは損傷燃料領域と汚染水の放射能が逆転すること、ヨウ素は各領域の放射能に差異がなくなることが分かった。また、またType-AやType-Cではセシウムとストロンチウムはほぼ同様の計算結果が得られた。一方でヨウ素は水中、空気中での放射性物質の移行の設定により、水中の放射能が低下することが分かった。

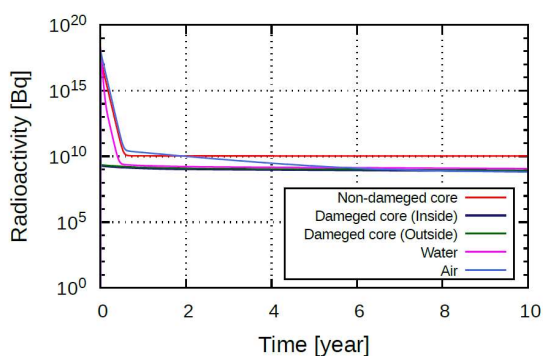


図 3.4.4-21 ヨウ素の各領域での放射能

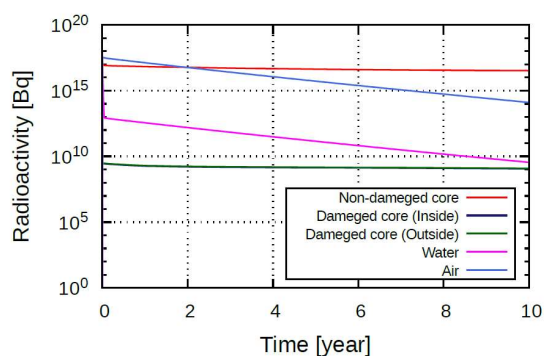


図 3.4.4-22 セシウムの各領域での放射能

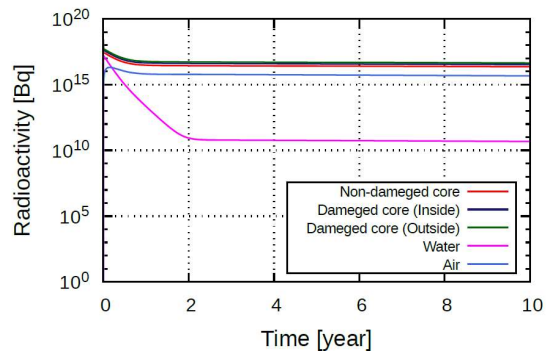


図3. 4. 4-23 ストロンチウムの各領域での放射能

(2) 廃炉作業時にフィルターに捕捉される放射性核種インベントリ (H29)

廃炉作業時に空気浄化システムに捕捉されるセシウムの放射能、並びに空気浄化システムを通過し外部に漏洩するセシウムの放射能の計算結果を図 3. 4. 4-24 から図 3. 4. 4-26 に示す。図 3. 4. 4-24 は健全燃料内で自発核分裂が発生しているときの各部分の放射能を示す。また、図 3. 4. 4-25 は損傷燃料の外側部分を解体するときの空気浄化システムの各部分の放射能を示す。なお、両者の計算では中性子増倍係数を 0.50 とした。

まず健全燃料を解体する場合を考える。このとき、湿式部などの各システム構成部分の放射能は、損傷燃料を解体する場合と比べて大幅に高い。また、システムを通過し外部に漏洩するセシウムの放射能も同様である。その一方で、損傷燃料の場合ではシステムを通過し外部に漏れ出す放射能は 10Bq 程度である。従って、本計算ではセシウムのみを取り出すという特別な条件ではあるものの、損傷燃料を解体する場合には多くの放射性物質がフィルター部に捕捉されるため、有用であると考えられる。

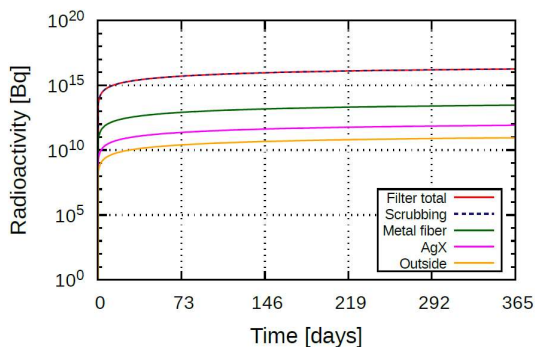


図 3. 4. 4-24 健全燃料解体時の放射能

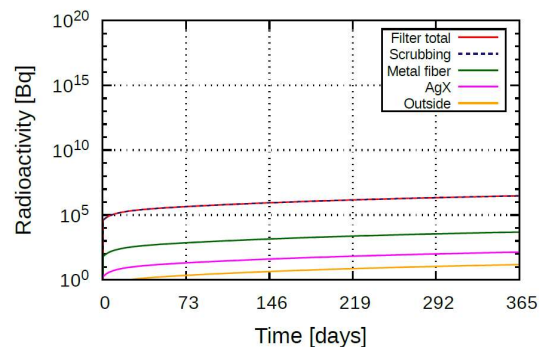


図 3. 4. 4-25 損傷燃料外側解体時の放射能

なお、損傷燃料から放射性物質を極端に移行させた場合、極端に移行させなかった場合でも、システム全体での放射能はほとんど変化しなかった。また、中性子増倍係数が増加するに従って、システムで捕捉される放射能も増加することが分かった。この結果は損傷燃料が空气中、冠水、空气中と水中に存在するというそれぞれの条件でも同様であった。その計算結果を図 3. 4. 4-26 に示す。図 3. 4. 4-25 と比較して、放射能が増加しており、特にシステムを通過するセシウムの放射能は 1kBq 程度になると推定できる。

また前項 3.4.4(1)項で提示した通り、放射性物質が移行半減期に従って漏洩していると考え、事故後 10 年間の経過した場合、最もセシウム-137 の放射能が高い箇所は炉内空気であると考えられるため、今後は空気領域からの漏洩も考慮する必要があるといえる。

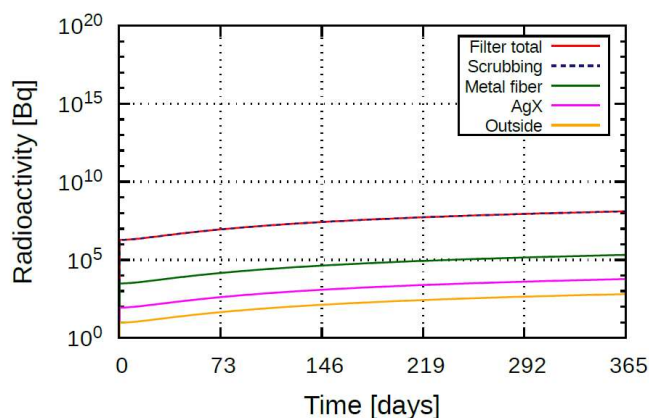


図 3.4.4-26 中性子増倍係数が 0.99 の場合の損傷燃料外側解体時の放射能

(3) フィルターから発生するガンマ線に対する遮蔽性能 (H29)

図 3.4.4-27 は、通常の軽水炉燃料を 45GWd/t まで燃焼させ、その後冷却期間を変化させた場合に発生するガンマ線のエネルギースペクトルを表したものである。同図より 0.6 ～0.7MeV の箇所において、冷却期間の変化にあまり依存しない高エネルギーのガンマ線ピークが 1 本見られる。これは ^{137}Cs (エネルギー 0.662MeV) であり、半減期が 30 年程度であることから冷却期間を 20 年間まで変化させた場合においても高エネルギーのガンマ線を放出することになる。そのため、空気浄化システムを使用した場合、各部分で捕捉される放射性物質の中でガンマ線を放出する核種としては ^{137}Cs が支配的であるといえる。

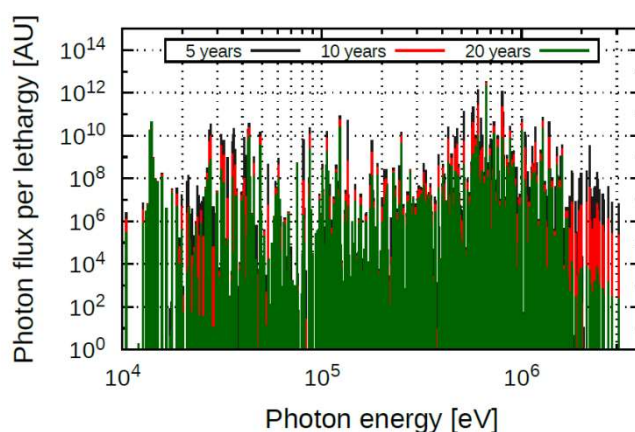


図 3.4.4-27 燃焼後の冷却期間の変化によるガンマ線エネルギースペクトルの比較

そこで本計算では、セシウム-137 のみが放射性物質内から移行すると仮定し、更にセシウム-137 の DF を設定することで乾式部である金属ファイバー部の線量を求める。また 3.4.4 (1) 項より、移行半減期が変化した場合でも事故から 10 年程度時間が経過している現時点で

は健全燃料の箇所の放射能とそれ以外の箇所の放射能で比較して健全燃料領域での放射能のほうが高くなると考えられるため、健全燃料領域を解体した場合に発生する ^{137}Cs から生じるガンマ線のエネルギースペクトル並びに遮蔽材料の厚さを変えた場合の線量について考察する。

図 3.4.4-28 から図 3.4.4-31 に、自発核分裂が発生していた場合の健全燃料を解体し 2 年後に空気浄化システム乾式部に蓄積した ^{137}Cs を含むセシウムをアルミニウム、鉄、鉛、コンクリートで遮蔽し、その遮蔽厚さを変えたときのガンマ線束を示す。また、図 3.4.4-32 に、上記 4 種類の遮蔽材料で遮蔽した場合に、フィルターの中心から 200cm 離れた場所で発生する線量を示す。

健全燃料では自発核分裂の有無が放射能に与える影響は小さいことから、ここでは増倍係数が 0.50 である場合のみを示す。なお、中性子増倍係数が 0.99 の場合では 2 桁程度線量が増加する傾向が分かった。図 3.4.4-29 や図 3.4.4-30 では遮蔽厚さが 10cm あるいは 25 cm 以外の場合の結果が表示されていないが、これは遮蔽厚さを変えた場合に発生するエネルギーが非常に低いため表示されていないことを意味する。図 3.4.4-28 から図 3.4.4-31 より、健全燃料を解体した場合、特に ^{137}Cs からのガンマ線を遮蔽するには鉛や鉄といった材料が有効であるといえる。また、図 3.4.4-32 の結果でも同様に、遮蔽に特に有効なものとしては鉛や鉄であると考えられる。

遮蔽材料の厚さについては、ICRP の 1990 年勧告に記載されている、線量限度は年間 20mSv、5 年間で 100mSv (ただし、5 年間のどの 1 年間でも 50mSv を超えてはならない) とされている。つまり、1 時間当たりの吸収線量で考えると、許容被曝量は $2.3\mu\text{Sv}$ と考えられる。それを踏まえると健全燃料を解体した場合には、鉛では 20cm 程度、鉄では 40cm 程度の遮蔽が必要であることが分かった。の計算を損傷燃料の外側で行ったものを図 3.4.4-33 に示す。同図の計算結果は移行半減期を、参考文献通りに設定したものである。本計算の場合では線量が健全燃料に比べて大幅に低くなっていることが確認できる。これは 3.4.4 (1) 項の箇所でも述べた通り、移行半減期を設定したことによって損傷燃料から放射性物質が空気中あるいは水中へ漏洩していくことによるものである。

図 3.4.4-33 から明らかな通り、本研究の計算で設定した移行半減期を用いる場合では、鉛や鉄であれば遮蔽に必要な厚さは 20cm 程度で十分であり、またアルミニウムやコンクリートでも 50cm 程度の被覆をすることによって遮蔽が可能であることが分かる。なお、図 3.4.4-33 を作成するにあたっては、放射性物質が極端に移行する場合や移行しない場合での計算は行わなかった。しかしながら 3.4.4 (1) 項の図 3.4.4-16 から明らかなように、移行を 100 倍程度しやすくする、あるいは移行しにくくしたとしても、原子炉内の他の部分の放射能に比較すると大幅に小さいことから、仮に移行半減期にある程度の誤差があったとしても、損傷燃料を解体する場合の吸収線量は大きく変化しないと推定できる。また、それらの図では損傷燃料に比べると、空気中や汚染水中のほうが放射能は高くなっている。しかしながら、事故後 10 年間の経過した場合であれば、空気中や汚染水中の放射能も健全燃料と比較して少なくとも 2 桁程度小さくなることから、健全燃料を遮蔽するのに必要な厚さを確保しておけば、遮蔽は十分可能であると考えられる。

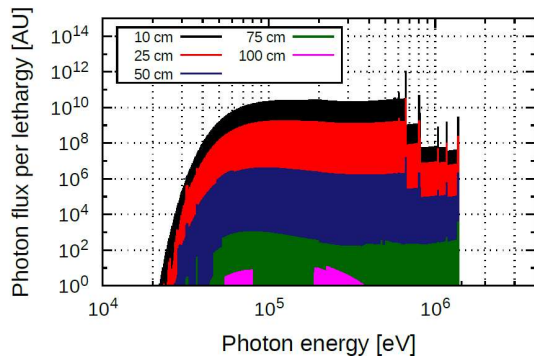


図 3. 4. 4-28 アルミニウムで遮蔽した場合

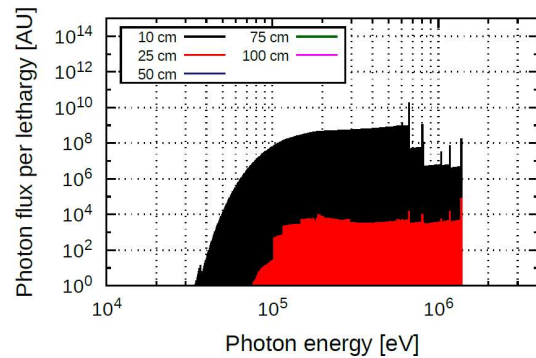


図 3. 4. 4-29 鉄で遮蔽した場合

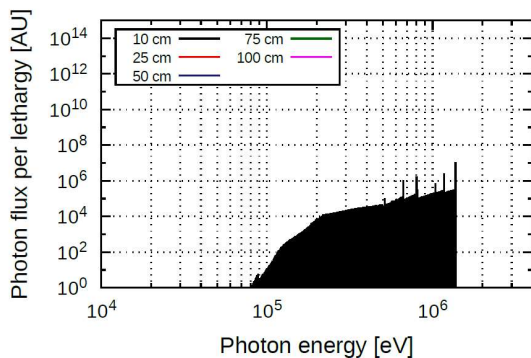


図 3. 4. 4-30 鉛で遮蔽した場合

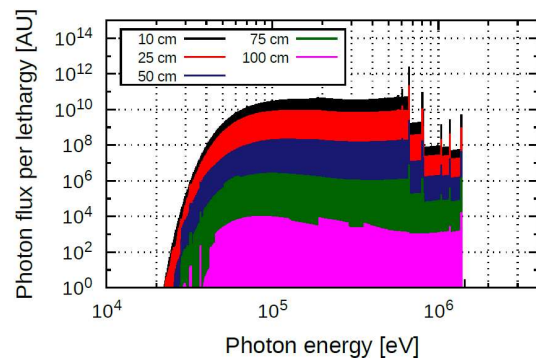


図 3. 4. 4-31 コンクリートで遮蔽した場合

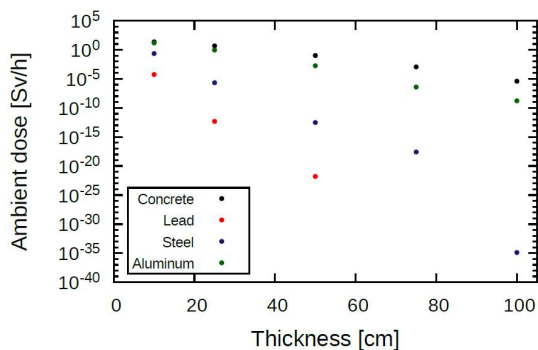


図 3. 4. 4-32 健全燃料

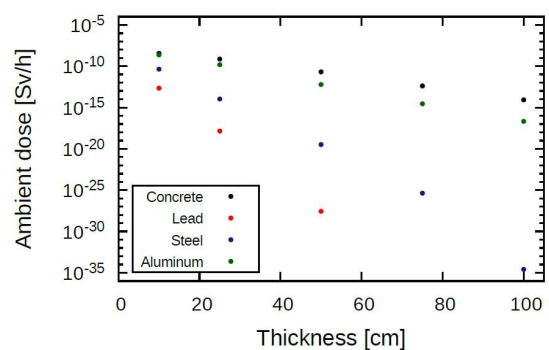


図 3. 4. 4-33 損傷燃料(外側)

3. 4. 5 フィルターエレメントの保管・処分にに関する検討 (H27)

ウクライナのチェルノブイリ原子力発電所 4 号炉の廃棄物処分の調査結果を踏まえて、フィルターエレメントの保管・処分にに関する基礎的な検討を実施した。

放射性廃棄物埋設所「ブリャコフカ」の所長から、放射性廃棄物処分方法について説明を受けた。放射性廃棄物埋設所は、チェルノブイリ原子力発電所の近隣にある。図 3. 4. 5-34 に示すように、放射性廃棄物を保管する単一モジュール（塹壕）は、いわゆる土塚で、その仕様は以下の通り。

- 長さ : 155.2 m、幅 : 88.0 m、高さ : 9.7 m
- 上部粘土防水遮蔽板の厚さ : 1.5 m、下部粘土濾過防止遮蔽板 : 1.0 m
- 塚縦方向の側面の傾斜角度 1:10、- 塚端面の傾斜角度 : (1:4)

塹壕一つ当たりの設計容量は、 20,000 から 25,000 m³である。

図 3.4.5-35 に放射性廃棄物埋設所敷地内の被曝線量強度分布を示すが、2010 年 1 月 1 日現在で、放射性廃棄物埋設所「ブリャコフカ」の放射性廃棄物の総放射能は、占有容量 606,000 m³で、 2.51×10^{15} Bq である。

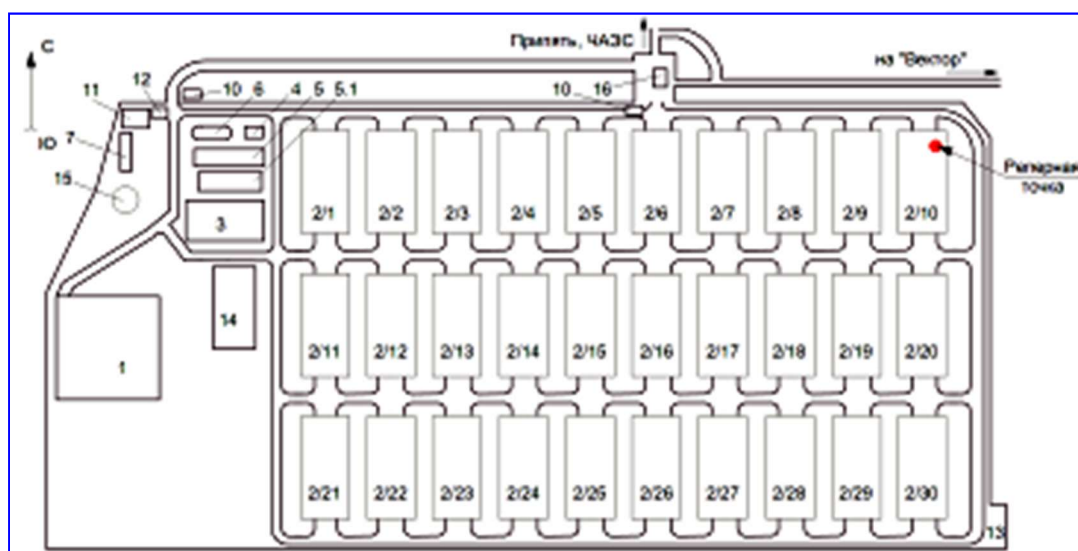


図 3.4.5-34 放射性廃棄物埋設所「ブリャコフカ」の塹壕配置図

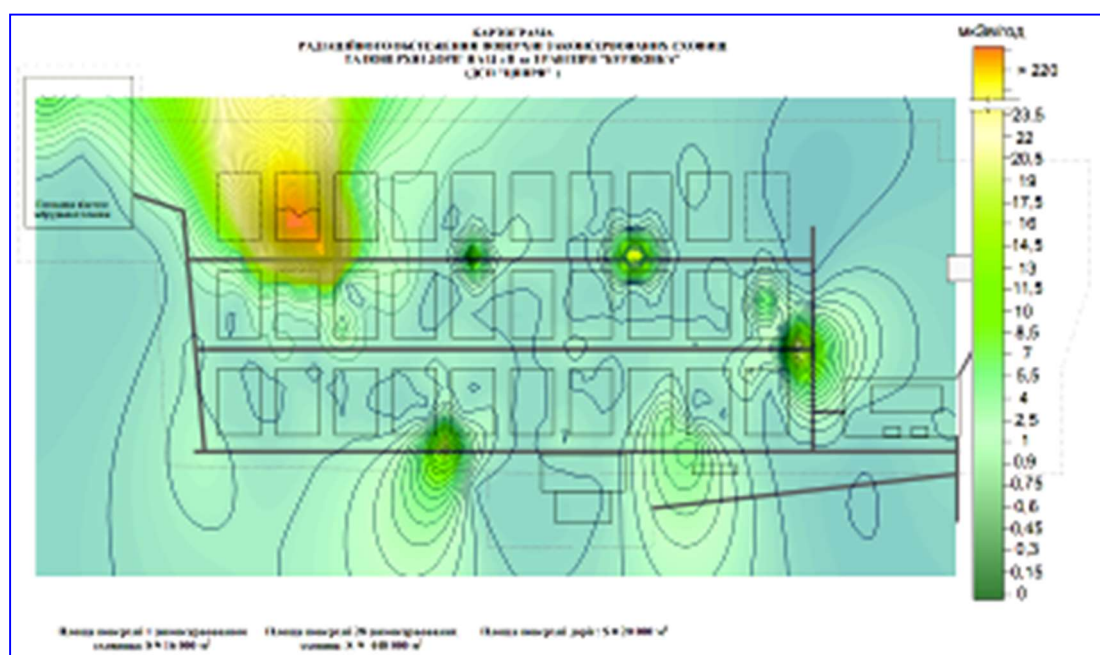


図 3.4.5-35 放射性廃棄物埋設所敷地内の被曝線量強度分布図

図 3.4.5-36 と図 3.4.5-37 に示すように、 α 放射性核種濃度と $\beta \gamma$ 放射性核種濃度による放射性物質の分類、及び放射能レベルによる廃棄物の処分方法の概要から、使用済フィルター廃棄物の処理と処分方法の見通しとしては、汚染レベルにより浅地中トレンチ処分、浅地中ピット処分、余裕深度処分などに区分することになると思われる。

汚染フィルター保管用金属ライニングコンクリート容器は特許出願済（P2012-095-JP01）である。

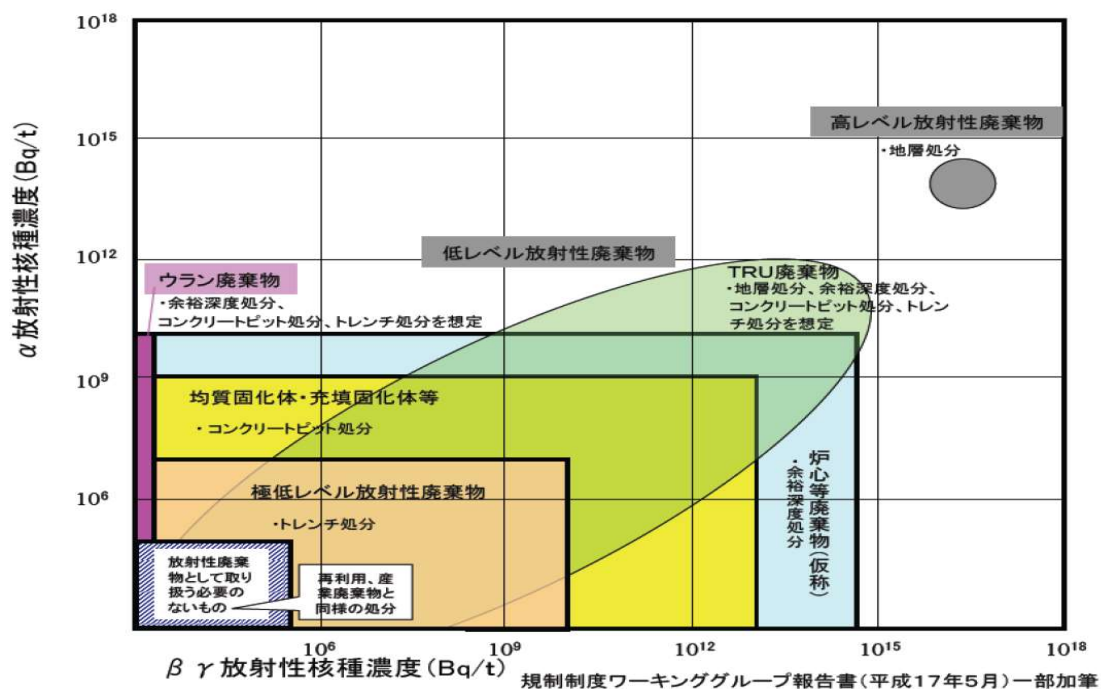


図 3.4.5-36 α 放射性核種濃度と $\beta \gamma$ 放射性核種濃度による放射性物質の分類

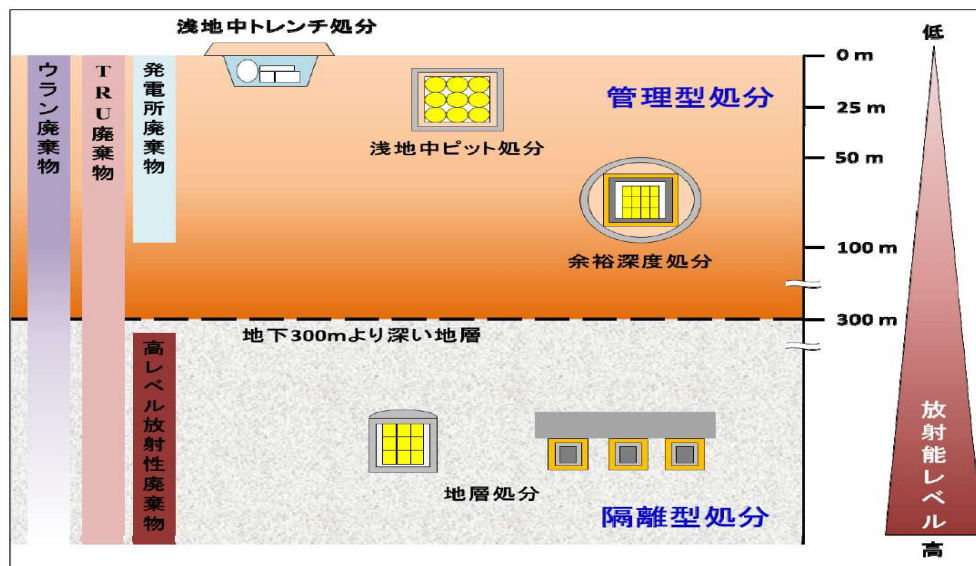


図 3.4.5-37 放射能レベルによる廃棄物の処分方法

3.4.6 おわりに

福島第一原子力発電所の廃炉作業において、空気浄化システムのフィルター部に捕捉される放射性核種のインベントリを簡易的に評価するためのコードシステムを開発した。本章では、そのシステムの概要を説明すると共に、いくつかの計算例を示した。また、空気浄化システムの使用中に廃棄されることになる、放射性物質を含む使用済み乾式フィルターに対す

る遮蔽計算を行い、その計算結果を示した。

参考文献

- (1) G. Chiba, et al., “Analysis of radioactivity ratios of fission product nuclides deposited to soil in Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident,” Proc. of Int. Conf. on Reactor Physics, PHYSOR 2014, Kyoto, Japan, Sep.28-Oct.3 (2014).
- (2) J. Katakura, “JENDFL FP Decay Data File 2011 and Fission Yields Data File 2011,” JAEA-Data/Code 2011-025, (2011)
- (3) Y. Kawamoto, G. Chiba, M. Tsuji, T. Narabayashi, “Numerical Solution of Matrix Exponential in Burn-up Equation Using Mini-Max Polynomial Approximation,” Ann. Nucl. Energy, 80. P.219-224 (2015).
- (4) 社団法人日本アイソトープ協会編、ICRP Publication 74 外部放射線に対する放射線防護に用いるための換算係数(1998).
- (5) K. Nishihara, H. Iwamoto, K. Suyama, “Estimation of inventories of spent fuels from light water reactors,” JAEA-Data/Code 2011-020, (2011).
- (6) 社団法人日本原子力学会水化学部会「核分裂生成物挙動」研究専門委員会準備会編、
「Phébus FPプロジェクトにおける核分裂生成物挙動のまとめ-福島プラント廃炉計画及びシビアアクシデント解析への適用-」

3.5 研究推進（H27～H29）

研究代表者の下で各研究項目間における連携を密にして研究を進めると共に、研究実施計画等を協議するための技術検討会を事業期間中、年に複数回開催した。また、毎年度、国際会議に出席し世界に向けて本公募事業を紹介し、関連施設の調査も行った。また、実システムへの反映に関してメーカー等のニーズも含め、広く意見を聴きながら研究を推進した。

3.5.1 平成 27 年度の研究推進実績

(1) 平成 27 年度第 1 回技術検討会（於北大）

平成 27 年 11 月 13 日（金）13：00～15：30 まで、北海道大学工学部 A4-68 会議室において第 1 回目の技術検討会となるキックオフ会議を開催した。参加者は、北大と東北大の各大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、木村化工機株式会社、森村商事株式会社、株式会社城南、株式会社ナカムラサービスが出席した。以下、議事メモ

奈良林教授の挨拶

- ・福島第一原子力発電所では、これまではヨウ素、セシウム、希ガスの環境中の放出について考えていれば良かった。
- ・廃止措置においては、燃料デブリ切断時にデブリに含まれるアクチノイド核種などの多様な放射性核種が拡散する可能性がある。
- ・IHI の技術者によると、レーザ切断を想定した場合には、ナノオーダーのヒュームが 1 日当たり 1kg 発生するとのこと（→デブリのレーザ切断は知見が全く無いので、今後、知見の蓄積が必要である）。
- ・廃止措置において発生する放射性核種の環境への拡散を抑制するため、東電は、前段の水フィルターでまずは大部分の放射性核種を捕捉し、後段のメタルファイバーフィルターで残りのものを捕捉することを考えている。
- ・水フィルターについては、使用後、ALPS 等の多核種除去装置で放射性物質を取り出すことになり、処分方法の目途はある程度立っているが、メタルファイバーフィルターについてはその処分方法を考える必要がある。

議論

- ・本公募のミッションは「フィルターの性能を向上させること」にあり、ハードウェアの開発は対象外である。
- ・メタルファイバーフィルターの交換頻度としては 1 か月に 1 回程度が望ましい。
- ・廃止措置では、発生する放射性物質が拡散しないように多段にバウンダリを構成することになるため、それぞれのバウンダリに対してフィルターを設置することになるであろう。
- ・ALPS 等を利用することにより水からの放射性物質の除去は可能であるため、使用後のメタルファイバーフィルターは水により洗浄して放射性物質を洗い流すことで、廃棄物の減容に繋がる可能性がある（ただし、洗浄においては化学薬品等の併用は困難）。
- ・燃料デブリの取り出し方法については、「水没＋上からアクセス」が第一候補であるが、平成 30 年頃に見直しを行い、水没が不可能であれば、「気中＋横からアクセス」が選択されることもあり得る。
- ・使用したフィルターエレメントについては、処分の道筋が決まっていないため、長期保管することになる。従って、保管中にヨウ素が放出されないことが重要である（AgX に捕

捉されたヨウ素は想定される雰囲気中では固定されていると考えて良い）（なお、ヨウ素だけが含まれる場合には、線量は無視できるので遮蔽について考慮する必要は無い）。

その他

- ・JST の公募については、年度ごとの実施計画書において実現可能な範囲で記述することが望ましい。（小崎教授）
- ・中国ではフィルターベントをつける方向（アレバ社製、AgX は無し）。（奈良林教授）
- ・台湾電力でもフィルターベントをつける方針。（奈良林教授）
- ・福島第一原子力発電所での汚染水処理には Cs の除去のために「チャバサイト」が利用されているが、この処理・処分が問題となっており、別の公募研究で対応している。（秋山助教）
- ・フィルターベントについて、アレバ社では硝酸銀をコーティングしたゼオライトを使っているが、水に溶出してしまうというデメリットがある（AgX はその問題は無い）。（ラサ工業 遠藤氏）
- ・長寿命核種である ^{129}I は β -崩壊後は安定核である ^{129}Xe になるため、崩壊後については考慮する必要は無い。
- ・メタルファイバーフィルターの捕捉性能を評価するため、北大では硫酸バリウムを放射性物質の模擬物質として使用する。スイス PSI 研究所がこの類の研究を種々行っているため、情報収集を行う予定である。（奈良林教授）
- ・福島の事故後、PAZ（原発から 5km 圏内）の屋内退避用の特定の施設に空気浄化装置が整備されている。その空気浄化装置は 99.8%以上の除染性能が求められている。この関係から、空調システムの除染性能の定量化方法について、情報が得られるかもしれない。（小崎教授）

(2) 平成 27 年度第 2 回技術検討会（於北大東京オフィス）

平成 28 年 3 月 17 日（木）10：10～12：30 まで、北海道大学東京オフィス会議室において第 2 回目の技術検討会を開催した。参加者は、北大と東北大の各大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、森村商事株式会社が出席した。以下、議事メモ

12 月 2 日に実施された中間フォローについて（説明：奈良林教授）

- ・作業員の被曝低減と放射性物質の漏えい防止が重要な目的である。
- ・米国 Zion 発電所の廃炉作業の画像を入手した。参考情報として有益である。
- ・平成 30 年頃に予定されている燃料デブリ取り出し方法の確定の際に技術提供できるよう準備する。
- ・乾式フィルターの実験では DF として 4800 を実現したが、目詰まりが早いという問題がある。
- ・フィルターシステムの性能を評価する（仮定された粒径分布に対する DF を評価するような）ツール開発が必要である。
- ・本公募事業では学生の旅費支出は認められない旨、文科省より報告があった。
- ・原子力発電プラントで実用に供されている AgX に対して、今回の研究課題で扱う AgX は何が異なるのか、質問があった。（千葉准教授）

- ・「フィルターエレメントの減容」が技術開発課題として挙げられているが、具体的にどのようなアプローチで達成するのか、質問があった（DF の向上はエレメントの減容には寄与しないため）。（千葉准教授）

「汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究」に関する進捗報告と平成 28 年度の予定（説明：千葉准教授）

- ・プラント内の各部位（ノード）における各同位体のインベントリを計算により追跡するが、その化学形態の違いも重要となる。

- ・福島第一原子力発電所における燃料デブリの存在形態であるが、環境に強く依存することが分かっており、どのような状態にあるかを知ることは極めて難しい。海水が流入しているため、ナトリウム(Na)やカリウム(K)も含まれている筈である。TMI 事故とはだいぶ様相が異なるので、その知見の活用は限定的である。（秋山助教）

- ・各元素、化合物のノード間の移動については移行係数により考慮するが、そのパラメータの評価自体が極めて難しい。実際の廃止措置で取得されたデータを活用し、パラメータを推定していくことになるであろう。そのためのツール・枠組みを整備する、というのが主な目標となる。

(3) スイス PSI 研究所の調査

スイス PSI 研究所及びライプシュタット原子力発電所、スイス連邦工科大学（ETH）の出張調査を行った。スイスは他国の事故（スリーマイル・チェルノブイリ）から学び、速やかに過酷事故研究を PSI 研究所と ETH 大学（スイス連邦工科大学）が開始した。特にフィルターベントシステム（FCVS）を開発導入し、各発電所に設置した。スイスの実績をもって日本の規制・電力に対してフィルターベントシステムの必要性を強く伝えた結果として、我が国の新規性基準にフィルターベントシステムの設置が義務づけられた。ライプシュタット原子力発電所（KKL）には、フィルターベントシステムの必要な機能、基本原理などの説明を受けている。今回は、過酷事故研究で世界でも最も進んでいる研究機関の 1 つである PSI 研究所を訪問し、フィルターベントシステムの最新研究と有機ヨウ素対策について議論し、空気浄化システムの開発に必要な知見を得ることを目的に調査した。

平成 27 年 12 月 3 日に Villingen, Swiss にある PSI 研究所を訪問した。PSI の出席者：Dr. Terttaliisa Lind – Head of Severe Accident Group（女性のグループ長）他 4 名。「Lessons Learned from the Fukushima Daiichi Accident to Establish Resilience Technology for Nuclear Power Plants Based on the Defense in Depth Philosophy」と題するプレゼンを行った後、意見交換を行った。

- ・PSI では 200 名が原子力関係の研究に携わっている
- ・スイスの電力は 40-50%が水力発電、40%が原子力発電で、僅かにバイオマスや廃棄物発電があり、化石燃料はほぼゼロ。ノルウェーに続いて世界 2 位のクリーンエネルギーを誇っている。今年の夏は雨が少なくスイスでは電力不足が見込まれる。Muehleberg を平成 31 年に廃炉する計画がある一方で、電力不足を補完する策が必要な状況。
- ・日本側より Seismic resistance requirements が存在する背景を訊いたところ、アルプスに近くにあるので地震の想定は当然必要との回答だった。

- ・ Beznau 1 号は目下、再稼働に向けて再スタートに向けて点検・保守中。
- ・ スイスにおいても有機ヨウ素フィルターの必要性はあるだろうが日本とは状況が異なる。スイスは既にフィルターベントの Scrubber を導入しているレベルから、更に有機ヨウ素対策を追加するか否かの議論をしている。日本はフィルターベントシステム (FCVS) が設置されていなかったわけで緊急度は異なる。Pragmatic approach (実用的なアプローチ) が必要。また実施には Safety Assessment by Regulatory が重要。
- ・ PSI での FCVS 試験では Aerosol、Elemental iodine、Organic iodide など使用した。一方でフィルターにゼオライト・銀ゼオライト・活性炭などのメディアは使用していない。使用するのは「水」若しくは「水+ケミカル (アルカリ pH 制御)」。
- ・ 有機ヨウ素の発生や影響に関する議論があり、チェルノブイリ事故で事故後数千名の小児甲状腺癌が発生していること、ヨウ素は反応性が高く、有機物を作りやすいなどを述べた。

(4) 米国出張調査 (Zion 発電所)

平成 28 年 1 月 11 日から 13 日までアメリカのフォートローダーデールで開催された「2016 North American ISOE ALARA Symposium」に出席し、「Restart Status of Japanese NPPs, Filtered Containment Venting System (FCVS), New Regulatory Requirements & Super Engineer Education Project」と題するプレゼンを行った。ISOE は「職業被曝情報システム」と呼ばれ、国際原子力機関 (IAEA) と経済協力機構-原子力機構 (OECD-NEA) の 2 つが共同で出資して運営する組織で、世界の約 430 基の原子力発電所の運転に伴う事故トラブル情報と被曝情報が集まる組織である。今回は北米の技術センター (NATC) が主催のシンポジウムである。シンポジウム終了後、シカゴ近傍の発電所の調査を行った。この際、Zion 発電所の廃炉作業の情報を得た。図 3.5.1 は廃炉作業のモニタ画面である。

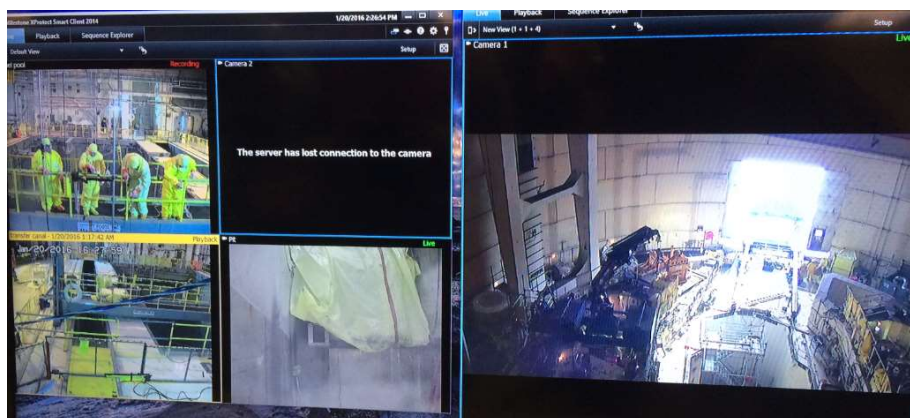


図 3.5.1 Zion 原子力発電所の廃炉作業のモニタ画面

米国 Zion 発電所の廃炉作業では、プラズマカッターなどの熱が入る作業は格納容器内の線量が上がるため断念し、ワイヤカッターに切り替えたとのことである。福島第一原子力発電所の廃炉作業では、高除染性空気浄化システムのニーズが高いことを東京電力に確認済みである。

3.5.2 平成 28 年度の研究推進実績

(1) 平成 28 年度第 1 回技術検討会（於北大）

平成 28 年 5 月 25 日（水）15：00～17：30 まで、北海道大学工学部 A3-71 会議室において第 1 回目の技術検討会となるキックオフ会議を開催した。参加者は、北大と東北大学の各大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、森村商事株式会社、木村化工機株式会社、日本精線株式会社、株式会社城南、株式会社ナカムラサービスが出席した。議題は、平成 27 年度の研究成果の総括と平成 28 年度の全体方針の説明、平成 28 年度の業務計画についての各分担担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換が主な内容となった。

以下、議事メモ

- ・2018 年に取り出し工程の決定がある。機械とレーザに両対応したい。東電からは、1 日 1kg のヒュームが入る。フィルターの線量、交換頻度高いと困る。汚染水浄化システムを活用してほしいとの要望がでた。（奈良林教授）
- ・微粒子で流路を汚染しても困る。流路の内壁に付着すると線量が上がって、作業に支障を来す。線量を監視してヨウ素などを性能いっぱいまで取らないようにしている。（懸濁液の分離はできないのか？という問いに対して）難しい。浄化システムで扱っているのはあくまで液体に溶けているもの。稼働初期はメタルファイバーフィルターに粉体がくっついてそれを逐次交換していた。その状態を新たに再現することになるのでは。フィルターで固液分離はできるがフィルターが高線量になる。デブリをカットすると燃料に閉じ込められていた、これまで出てこなかったアメリシウムやアクチノイド等も出てくる。（佐藤教授）
- ・予定では水没させて遠隔操作で回収。フレッシュな水をかけ流して、水は既存の配管系から ALPS 等へ行く。水を介して気相に上がってくるミストにこのシステムでどう対処するかだと思う。このプロジェクトではいくつかの気相を想定して、それに対する基礎データをとればいいのか。（小崎教授）
- ・「METI (IRID) の公募事業では、IHI とは別グループとして検討している。格納容器の上からアクセス（IHI は横から）。デブリの性状はだれもわからない。工具の先端は交換可能にしてほしい」と言われた。米国スリーマイル島原子力発電所事故（TMI-2）のデブリ取り出しの実績で、一番効果があったのはホールソー。炉内作業ではジルコニアが固いので、ダイヤモンドカッターの適用は困難。レーザとウォータージェット（WJ）も想定して設計している。水の処理は ALPS に任せて気相の処理を行うのがテーマだと思う。前提条件は作りにくい。1 μ m、10 μ m ならこうだ、と何パターンか作って、それに合わせた提案ができれば現実的だと思う。対象物も金属、酸化物両方（デブリに行き着く前に途中障害物がある。）（木村化工機 吉井氏）
- ・TMI-2 と違うのは、水の雰囲気だから酸化物が多いのでは。高温相が低温でもでてきてしまうことがある。そうすると化学的に安定で、ジルコニウムの酸化物はジルコニアなので物理的にもダイヤモンド並みに堅い。（佐藤教授）
- ・（有機ヨウ素は無いと思っている。燃料中、デブリ中にはもう無いと思っている。原子炉中で、出て行ったヨウ素が汚染水に溶けて残ってはいるかも。今回の検討対象にはならないのでは？という意見に対し）炉内のメルトダウンは複雑で、溶融していないウランペレ

ットも残っているかもしれない。ヨウ素が放出されないと決めてしまうのではなく、放出があり得るとのシナリオが好ましいと思う。（小崎教授）

- ・（専門家が怖いと思う核種は？という問いに対し）アクチノイド系。酸化物は安定で高温になると揮発の可能性、アメリシウムとか水に溶ける。今回の研究では、ヨウ素や固体の粉末、一部の FP 等を吸着することに重点を置く。（佐藤教授）
- ・（フィルターがすぐ詰まるのでは？という問いに対し）北大で実施中の試験では、線径を大きい順の多層構造とすること等で性能が確保できると考えている。アメリシウム等はフィルターで吸着する。（奈良林教授）
- ・ウェブ（綿状金属繊維）を用いた予備実験データについて、「DF の評価方法は？粒度一定と仮定しているのか？」という質問があり、「質量」という回答に対して、「粒度分布を考慮しないといけない。たとえば大きな粒子がとれると、質量がきくので DF は大きくなるが、細かい粒子が素通りして、個数で見た時の DF が小さくなる。」、「放射線の DF 評価として質量は適切ではないのでは。」という意見があり、粒径分布を今後測定する計画となった。
- ・東北大学からは、平成 27 年度に導入した TG-DTA 装置を使った AgX によるヨウ素の吸着量の算出方法や、有機ヨウ素の AgX の吸着に関する、温度が上がった場合の吸着挙動に関する研究計画の説明があった。（秋山助教）
- ・汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究に対して、「フィルター交換が必要となる条件を求め、発生廃棄物量を推定することが重要。そのためには、表面線量率を求めることが必要になると考える。」（小崎教授）

(2) 平成 28 年度第 2 回技術検討会（於北大）

平成 28 年 8 月 24 日（水）13：30～17：30 まで、北海道大学工学部 A4-67 会議室において第 2 回目の技術検討会を開催した。参加者は、北大と東北大の各大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、木村化工機株式会社、森村商事株式会社、株式会社城南が出席した。議題は、平成 28 年度の業務計画進捗についての各分担当担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換が主な内容となった。以下、議事メモ

- ・高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究について、「平成 27 年度設置した試験装置の作動状況を要確認、硫酸バリウムがノズルでどういうふるまいをするかを確認する。」と説明があった。（奈良林教授）
- ・銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価について「ゼオライト結晶合成を引き続き進める。」と説明があった。（中坂助教）
- ・銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究について、「ステンレス管を用いたバッチ試験装置を作成中で、TG-MS の購入手続き中、文献調査を行っている」との説明があった。（秋山助教）
- ・汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究に関して、「フィルターエレメントに捕捉された多核種放射能の減衰評価システムに関して、事故時の核種インベントリ計算モジュール、事故後の核種移行計算モジュールについてはシステムの枠組みが完成している。廃止措置時の核種移行計算モジュールの開発については未着手である。」と説明があった。（千葉准教授）

・エアロゾル・ヒューム試験装置について、「加湿して粒子を凝集させヒュームの径を大きくして、接合状態を確認する。」、「結露センサー回路を使って分布を調べる。」との説明があった。（奈良林教授）

・ゼオライトの合成及びヨウ化メチル拡散係数測定の進捗状況について報告があり、FAU 型ゼオライト（X 型、Y 型ゼオライト）について、構造規定剤を用いて合成を検討した。検討した合成条件では、LTA 型ゼオライトが主な結晶相であった。

今後は、平成 27 年度までの合成条件をベースに検討する。他のゼオライト構造として、MTW 型ゼオライトの合成を実施した。異なる構造規定剤を用いることで粒径の異なる MTW 型ゼオライトが合成できることを確認した。ゼオライト表面の疎水化を目的としてフッ化物法による MTW 型ゼオライト合成を検討し、MTW 型ゼオライトの構造が形成することを確認した。拡散係数測定については、まず、本年度の最初に装置の洗浄を実施したことを報告した。ラサ工業殿から提供を受けた X 型ゼオライトを用いて、200℃においてヨウ化メチルの拡散係数測定を実施した結果を紹介した。MFI 型ゼオライトにヨウ化メチルを吸着させた時の FT-IR 測定結果を紹介した。（中坂助教）

・銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究の進捗について報告した。現在 SUS 管を用いた銀ゼオライト吸着剤バッチ試験装置を作製中であることと今後導入する TG-MS を組み合わせた装置のシステムについて紹介した。また、TG-MS 購入手続きの進捗状況について機種選定比較表を用いて説明した。TG-MS により期待される結果について、文献を用いて紹介した。2016 年 6 月にアメリカノースカロライナ州シャーロットにて ICONE24 に参加し、口頭発表を行ったことと、会場での質疑応答について報告した。（秋山助教）

・フィルターエレメントに捕捉された多核種放射能の減衰評価システムに関して、事故時の核種インベントリ計算モジュール、事故後の核種移行計算モジュールによる簡単な試算結果が示された。（千葉准教授）ヨウ素フィルターについては、「捕捉される ^{129}I の絶対量が少ないため、稼動を通じて交換する必要は無いであろう」というコメントがあった。また、ヨウ素については、「自発核分裂や未臨界核分裂により発生する短半減期同位体の影響も大きい可能性がある」との指摘があった。「廃止措置時のプラント内各位置における放射性核種インベントリの評価は過酷事故解析コード等の評価に任せ、廃止措置時にフィルターエレメントに捕捉放射性核種のインベントリ評価や、それに基づくフィルターエレメントの放射線源計算にまずは注力した方が良い」とコメントがあった。

(3) 平成 28 年度第 3 回技術検討会（於東北大）

平成 28 年 12 月 27 日（火）13：30～17：00 まで、東北大学・多元物質科学研究所多元研南 2 号館 多目的打合室（301B 号室）において第 3 回目の技術検討会を開催した。今回の参加者は、北大と東北大の各大学関係者とラサ工業株式会社が出席した。議題は、平成 28 年度の業務計画進捗についての各分担当担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換と平成 29 年度の予算が主な内容となった。以下、議事メモ

・高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究について、これまでの試験でメタルファイバーの充填方法によって DF が大きく変わることが判明した（不均一性による）旨、また、ヒューム凝集装置が設置された旨、報告があった。「平成 29 年度は、ヒューム凝

集装置を用いた試験、湿式スクラビングノズルに関する試験、乾式・湿式を組み合わせた総合試験を実施する予定である。」と説明があった。（奈良林教授）

- ・（上記の説明に対し）「空気浄化システムの長時間の稼働では、フィルター内での微粒子の移動を考慮する必要があるのではないか」との指摘があった。「現時点ではメカニズムを把握することに重点を置いた試験を行っているが、今後は微粒子流量を変えた実験を実施する予定」との回答があった。
- ・SEM で粒径分布を把握した所、フィルター内部で粒径が小さくなる様子が観察されたが、粒径が小さいものについては HEPA フィルターも通過する可能性があることが指摘された。なお、粒度分布計については北大の創成研究機構・オープンファシリティに共用の装置がある旨、コメントがあった。
- ・「微粒子の粒度分布は実験条件（落とし方、実験室の湿度や温度）に依存するのではないか」との指摘があった。実験室の湿度や温度については計測しておく必要がある。
- ・ファイバー表面の凹凸による吸着メカニズムも考慮する必要がある旨、コメントがあった。ファイバーの比表面積については増田教授の研究室で測定可能であるとのことであった。
- ・中間フォローにおいて、寺井 P0 より、「実際の条件に即してデータを取って欲しい、期首当初の予定に拘る必要はない」とのコメントがあった旨、紹介があった。例えば ^{129}I については、フィルターに到達する前に配管等で大部分が吸着される可能性があるため、その関連の試験を東北大 Gr で実施する予定とのことである。
- ・中坂助教からゼオライト結晶の合成では、X 型について、OSDA 量、aging 時間、合成時間、合成温度をパラメータとして実験を行った結果、100℃で FAU のピークが確認された。今後はこの温度での実験を重点的に行う予定である。Y 型についてはナノオーダーの粒子の形成が確認された。拡散係数の測定では、温度との相関が定性的に説明できない結果が得られたが、その原因が前処理条件にあることが分かった。ヨウ化メチルの反応に関する実験では、AgX 触媒に対してヨウ化メチルを注入した所、全て AgX に吸着されるという結果が得られた。
- ・平成 29 年度は AgX の合成とヨウ化メチルの吸着分離試験、及び希ガス吸着実験の検討を行う予定である。希ガス吸着実験については、寺井 P0 殿から Rn が提案されたが、取り扱いの容易さから、非放射性の Xe、Kr を使うべきとの指摘があった。
- ・「ヨウ化メチル反応実験において、塩ビ、SUS304 等の材料を入れて実験すれば、それらへのヨウ化メチルの吸着が定量的に測定できるのでは」とのコメントがあり、実施可能性を検討することとなった。また、「AgX が濡れた状態で DF が低下する懸念があり、ラサ工業や北大・奈良林 Gr で測定を行っている。そのメカニズムを増田 Gr の研究を通して明らかにしてほしい」とのコメントがあった。
- ・なお、ラサ工業より、疎水性である AgR が AgX に比べてより高く安定した吸着性能を示す点が紹介され、AgX と AgR を併用するアイデアについて議論を行った。更に、原子力発電プラントでは火災等により塩化水素ガスが発生する可能性があり、それが AgX によるヨウ素の吸着を阻害する可能性が指摘された。塩化水素ガス対策のフィルターの必要性についても議論を行った。

- ・佐藤教授から AgX 吸着材バッチ試験の結果、流量が 300ml/min から増加すると吸着率が低下することが判明した。「今後は 500ml/min 以上の条件での実験を金属配管で行う予定である。吸着率の時間・濃度に対する依存性を見る必要がある」とのコメントがあった。また、RIGAKU 製の TG-MS を用いたヨウ素脱離特性評価において、800℃以上での質量減少が I₂ の揮発によることを確認した。来年 1 月に TG-MS を購入するので、動作確認後、種々の条件で実験を実施する予定である。なお、平成 29 年度の成果発表として、秋の原子力学会（北大）と Global2017（韓国）を考えている旨、報告があった。
- ・議論の中で、フィルターの交換頻度の評価が必要という指摘があった。そのため、例えば「直径 10cm の配管で単位時間当たりどの程度の量の排気を行うのか」といったパラメータを設定する必要がある。原子力プラントの非常用ガス処理システム（SGTS: Standby Gas Treatment System）の流量は 2000m³/h とのことであった。フィルターの交換頻度は一般的には線量で決まるが、今回の空気浄化システムは過酷事故後数年を経過したプラントを対象としているため、特にヨウ素については長半減期である ¹²⁹I が支配的となるため、線量が交換頻度を定めるパラメータとなりえない点について指摘があった。
- ・千葉准教授からフィルターエレメントに捕捉された多核種放射能の減衰評価システムに関して、自発核分裂、及びそれにより発生する中性子が引き起こす未臨界核分裂連鎖反応の結果生じる核分裂生成物（FP）の生成・減衰を考慮した場合の、福島第一原子力発電所における各領域のヨウ素同位体、希ガスの放射能の計算結果が示された。「燃料デブリが冷却・凝固した場合には、ヨウ素等の移行率（漏えい率）は低下するものと考えられる」とのコメントがあり、今後は FP の移行係数を時間で区切って設定することとした。また、評価された放射能の絶対量について有意性の判断基準性を整理すること、ラドンの生成量評価を行うことが今後必要とされた。

(4) 平成 28 年度第 4 回技術検討会（於北大）

平成 29 年 3 月 1 日（水）14:00～17:00 まで、北海道大学工学部 A4-63 会議室において第 4 回目の技術検討会を開催した。参加者は、北大の大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、木村化工機株式会社、株式会社城南、空気浄化システムへの適用を検討している東京電力ホールディングス株式会社の技術者が出席した。

今回、中間フォローでの寺井 P0 から「公募事業を実用化するにあたり、電力・メーカーのニーズを把握すること。」との意見を受け、東京電力がユーザー側として初の参加となった。平成 28 年度の業務計画進捗についての各分担担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換と平成 29 年度の実施項目についての確認が主な内容となった。

以下、議事メモ

模擬物質「硫酸バリウム」を使ったメタルファイバー径と充填率を変えて除染係数 DF を測定する実験内容と結果について（説明：奈良林教授）

- ・充填率が高いほど、またファイバー径が細かいほど DF は向上したがファイバー径 70μm では DF の上昇しないことを確認。更に充填方法を変えることによって DF に変化があるのかも確認し、70μm 以外では更に DF が上昇することを確認した。

- ・画像解析による FE-SEM 画像の解析結果、粒径 $5\mu\text{m}$ 以上の粒子はメタルファイバーでも吸着できることを確認したが、 $0.5\mu\text{m}$ 以下の粒子は多数がフィルターを通過しているため、更にファイバー径の小さいフィルターを使用することが必要である。また、質量に変換すると、より大きな粒径の質量に比べて非常に小さいため実験後の DF 測定に反映されにくいので、画像解析ソフトを使用して粒径分布を取得して微粒子が各フィルターでどれだけ捕集できるのかを検討していく必要がある。

ヒューム凝集装置を使った実験について（説明：奈良林教授）

- ・硫酸バリウムが凝集するかどうかを検証した。加湿器、ボイラーの使用の有無、湿式側の注水の有無を組み合わせて実験を行い、FE-SEM による観測を行った結果、加湿器とボイラーを使用した画像は、小さな粒径は少なく、塊になった粒子が確認できた。一方、蒸気なしで注水のみ画像は、塊が蒸気ありの場合に比べて小さく、凝集の効果が弱いことが確認できた。蒸気の流量は今回、計測していないが少なくとも蒸気を使用することによって凝集するということは確認できた。平成 28 年度の業務計画では、「ナノサイズエアロゾルの除染係数 DF の向上の糸口を見いだす。」になっており、ヒュームの扱いについては蒸気凝集させて大きく塊を作ることによって粒径を大きくできることが技術的に可能であることを示した。

銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究の進捗状況について（説明：中坂助教）

- ・積層されたゼオライト膜合成の予備検討を 3 月に実施する。準備はすでに完了しており、ナノ結晶をフィルター上にのせて、それを成長させるところ確認していきたい。ゼオライトの穴の中での、ヨウ化メチルや炭化水素の吸着特性や拡散係数の測定も行い検討を進めている（対象は、MFI 型、X 型、Y 型等）。
- ・平成 28 年度は X、Y 型ゼオライトの合成について、合成の範囲を広げるために Si/Al 比、Si 源や構造規定剤を用いた合成を検討しているが、主な結晶相は LTA 型であった。Y 型ゼオライトの合成において、アルミに対してナトリウムの量を変えることで、粒径が異なるものが得られた。XRD の結果から、 $50\sim 60\mu\text{m}$ のナノオーダーの FAU 型ゼオライトができていることを確認した。数十 nm の結晶が凝集して $1\mu\text{m}$ 程度の二次粒子を形成していることが考えられる。
- ・その他のゼオライト（MTW 型）の合成も検討し、粒径が違うものが合成でき、更にフッ化物法により、通常合成したときよりも水を吸着しづらい MTW 型の合成に成功した。
- ・種結晶を添加した X 型ゼオライトの合成で、平成 28 年度に購入した水熱合成装置を使用し分析を行った。種結晶の添加量（Na-X 型ゼオライト）を変化させた場合では、いずれも LTA 相に行ってしまう。
- ・1 月末にゼオライトが関係する国際会議で発表された中で初期段階ではナノサイズの結晶の X 型ができる報告があり、その作り方を参考にして合成を行ってみたところナノサイズ FAU 型ゼオライトの合成に成功した。今後、XRF 測定にて Si/Al 値を確認する。
- ・定容法を用いて拡散係数の測定を行った。前回は、前処理の操作が十分ではなかったため、これを改善して検討を行った。X 型と MFI 型のヨウ化メチルの吸着等温線では、線

形で表されることができる。MFI 型の方が X 型よりもヨウ化メチルを吸着している。拡散係数も同様の結果であった。MFI 型は X 型よりもアルミの量が非常に少なくハイシリカナゼオライトになっている。拡散の観点では、MFI 型が有利であると考えられる。Y 型については、(200℃よりも) 150℃の方がヨウ化メチルを吸着する。また、1 点目と 2 点目以降で拡散係数が大きくなることも確認した。1 回目に外表面付近にヨウ化メチルが多く密に吸着しており、拡散に必要な有効径が狭められておりヨウ化メチルが通じづらい状態になっているのではないかと考えている。用いた X 型は、イオン交換サイトにナトリウム (Na) が存在する状態のものであるため酸点の強さが H-Y 型よりも弱い状態で存在しており、酸点に吸着したものが、脱離しやすいと考えられる。そのため、見かけ上の拡散係数が大きくなると考えられる。

- ・ C1~C3 の炭化水素の拡散係数測定を進めている。X 型を用いてプロパンを測定したが、プロパンの吸着がほとんど起こっていないか拡散が十分に速すぎて圧力変化を追うことが不可能なので、拡散係数を算出することが C3 よりも分子量が少ないものについては困難である。メタン (C1) のあたりについては、実際に動かしてみて、この現象と同じのが出てくるか確認する準備をしている。AgX を用いたヨウ化メチルの拡散係数測定は、理論式が対象とする圧力の変化の範囲をはるかに超えて、非常に大量に吸着するため拡散係数の決定が困難なため、かなり希薄な濃度で微量の Ag を付けると測定可能ではないかと検討している。

(5) 第 14 回放射線防護国際会議 (IRPA14) での基調講演

放射線防護国際会議 (IRPA: Congress of the International Radiation Protection Association) は全世界から約 900 名が出席する世界最大の放射線防護の国際会議で、4 年に 1 回ずつ開催される。今回は第 14 回の IPRA14 で、南アフリカのケープタウンで開催された。

奈良林教授は、OECD/NEA の組織である職業被曝情報システム (ISOE) の北米シンポジウムでも、本公募事業の成果を紹介しているため、IPRA14 の主催者側からの依頼で平成 28 年 (2016 年) 5 月 13 日のプレナリーセッションで基調講演を行った。招待講演で、他には、東京電力から川村慎一郎氏が福島第一原子力発電所と第二の事故時対応や廃炉作業の講演、原子力規制委員会から伴委員の原子力規制委員会の活動紹介の講演もあった。この大会議には 5 月 11 日から 13 日まで出席して貴重な情報の収集に努めた。ケープタウンには、ドバイ経由で札幌からだと片道 2 日間の日程を必要とする長時間の旅であったが、世界最大の放射線防護の国際会議に出席できたこと、本公募事業を世界に向けて大会議場での基調講演として情報発信できたこと、そして貴重な知識を得たことは本公募事業を遂行するうえで極めて有意義であった。

(6) 第 24 回原子炉工学国際会議 (ICONE24) での発表

平成 28 年 (2016 年) 6 月 26 日から 30 日の期間、米国のシャーロット (Charlotte) で開催された 24th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE24) に、奈良林教授と東北大の秋山助教が発表を行った。ICONE は第 1 回が日本で開催された日本機械学会 (JSME)、米国機械学会 (ASME) が共同で開催する原子炉工学の国際会議で、途中から中

国原子力学会や欧州の原子力関連機関が参加するようになり、毎回 1000 名を超える世界最大の原子炉工学の国際会議である。奈良林教授は、本公募事業の空気浄化システムに用いる水フィルター（スクラビングプール）の二相流挙動や空気浄化システムの全体構成について講演を行い、秋山助教は、フィルターベントにも既に採用されている、銀ゼオライトの放射性ヨウ化メチル（ $\text{CH}_3^{125}\text{I}$ ）の吸着特性についての発表を行った。なお、両発表とも、他の発表者や聴講者が中国からの参加者が多く、質疑討論のレベルは必ずしも高くなかった。廃炉セッションにまとめるなどの工夫が必要と思われる。

(7) 保全科学技術国際会議 (ICMST 2016)

日本保全学会が主催する国際会議で、日本と海外で交互に 2 年に 1 回開催する国際会議である。今回は、日本保全学会の依頼で、中国清華大学が現地実行委員会を組織し、平成 28 年（2016 年）11 月 1 日から 4 日まで、深圳キャンパスを会場として開催した。英語の国際会議名は、International Conference on Maintenance Science and Technology で、原子力や火力発電所などのエネルギープラントの保全に関する国際会議である。福島第一原子力発電所の廃炉は、事後保全、空気浄化システムを使って作業員や周辺住民の被曝を防ぐのは、予防保全ということになる。

本国際会議では、奈良林教授が、日本保全学会長として、Enhance Safety of NPPs and Activities of Japan Society of Maintenology と題して大会議場で Plenary 3 の講演を行なった。そのなかで福島第一原子力発電所の廃炉作業への適用を目指して研究開発をしている「多核種高除染性空気浄化システム」の紹介を行った。また、本公募事業で銀ゼオライト AgX を提供しているラサ工業からは、AgX の有機ヨウ素の吸着特性に関する研究発表があった。

3.5.3 平成 29 年度の研究推進実績

(1) 平成 29 年度第 1 回技術検討会（於北大）

平成 29 年 5 月 29 日（月）13:30～16:30 まで、北海道大学工学部 A4-67 会議室において第 1 回目の技術検討会となるキックオフ会議を開催した。参加者は、北大の大学関係者と協力企業としてラサ工業株式会社、木村化工機株式会社、森村商事株式会社、株式会社城南が出席した。議題は、平成 28 年度成果報告についての各分担当担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換が主な内容となった。以下、議事メモ

高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究の平成 28 年度の研究成果の説明と平成 29 年度の方針について（説明：奈良林教授）

- ・蒸気を湿り蒸気にして、粉が凝集して大きな塊になってフィルターの上に堆積していくことを確認した。FE-SEM で粒径を測定し、画像解析ソフトを使って粒径分布をヒストグラムで表示させると $0.5\mu\text{m}$ 以下が非常に多く、フィルターを通り抜けてしまう。数は多いが一つ当たりの質量が非常に小さいので、全て捕集できなくても、粒径 $0.3\mu\text{m}$ や $0.4\mu\text{m}$ 辺りの粉がよく捕集できて質量も大きい。非常に小さい粒径に対するフィルターの DF はまだ低い、全体の重さの DF に対しては効かないが、筒抜けだと心配する人もいたので、非常に小さい粒径も凝集させて捕集するということを目指している。
- ・メタルファイバーの充填率を変えて試験を実施し、ある充填率以上から顕著に除染係数

が高くなることが分かった。単段で数百の DF が得られることも分かった。メタルファイバーの詰め具合を変えると単段で DF700 くらい捕集でき、乾式の部分はだいたい目途がついてきたが、綿状のフィルターの DF が試験であまり高く出てこない。HEPA フィルターで回収しているが、実験室の湿度で重さが変わってくるため湿度対策する必要がある。

- ・ヒューム凝集装置について平成 28 年度は、まだ組み合わせ試験を行っていないため、湿式、乾式の組み合わせ試験を実施し、更に上流側の加湿システムで非常に小さい粒子も捕集していきたい。平成 28 年度の予備試験では湿度が安定的な運転ができていたので、技術的には可能だと思う。凝集させて粉をくっつけた状態にして乾かしても固まった状態は維持されているので、かなりの部分がフィルターで捕集できると思う。
- ・FE-SEM と画像解析ソフトを使って粒径ごとに除染係数が分かるので、粒径ごとのフィルターの濾過特性に対応する形でデータを取ると計算が可能になる。フィルター特性を数式化して、それを粒径で積分することによってシステム全体の除染係数を算出するシステムにしていきたい。

銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究の平成 28 年度成果報告について（説明：中坂助教）

- ・「異なる結晶サイズを有するゼオライト結晶の合成」については、FAU 型、MTW 型、MFI 型について検討を行った。X 型ゼオライトの合成は、種結晶添加、合成温度、合成時間、OH 濃度、シリコン/アルミニウム(Si/Al)比を検討事項として合成を行った。合成時間を変えて合成したが、どれも LTA 型のゼオライトという結果になった。他の条件でもほとんど同じで、おおむね LTA 型になってしまう。FAU 型は、Si/Al 比が低い領域ではかなり難しいことが分かった。
- ・国際シンポジウムで、面白い形の X 型ゼオライトを作ろうという発表があり、その発表を参考にして X 型の合成を行ってみたところ、合成時間 1 日、2 日のところで FAU 型のフェーズが出てくることが確認できた。XRD の結果を用いてゼオライト結晶径を算出し、40nm 以下であることを確認した。Y 型も X 型と同じような手法を使って合成を行った。X 型よりも比較的作りやすく、FAU 型フェーズがしっかりと出てくる。Na の量を増やすと 1 次結晶のサイズが小さくなる。1 μ m から 50nm 程度まで合成できることを確認した。
- ・その他のゼオライトの検討も行い、MTW 型に着目した。構造規定剤を変えて合成を行うと、大きさの違うものができることを確認した。酸量はほとんど同じだが、粒径だけが違う。MTW 型ゼオライトの疎水化を試してみた。フッ化物法を使い合成を行うと、完全には疎水化できてはいないが、水の吸着量が低下していることを確認した。150 時間ほどの長い時間での合成で純 MTW のフェーズになる。X 型や Y 型の場合は 24 時間程度で作れるが、MTW 型はかなり合成に時間がかかることを確認した。MFI 型については、アルミの量が大きいところで合成を行った。従前法、エマルション法ともに MFI 相を確認した。粒径の異なるものができることも確認した。
- ・ヨウ化メチルの拡散係数の測定について吸着量の変化から測定を行っている。測定結果については、100℃から 150℃の領域では X 型より MFI 型の方が高い吸着量を示す結果になった。拡散係数についても同様。拡散の観点では、MFI 型が有利であると考えられ

る。

- ・ X 型の拡散係数は高いが吸着量が少ない、Ag イオン交換した X 型の拡散係数は低い、吸着量が高い。有効拡散係数としてはあまり変わらない結果になった。反応が起こらない領域では、X 型の結果を AgX に展開して、プロセス設計に使えるのではないかと考える。
- ・ メタン、エタン、プロパンについて、測定初期に圧力が大きく落ちて、その後一定で変化しないという結果になった。炭化水素種の拡散は、ヨウ化メチルの拡散阻害になることはほとんどないと推定される。プロセス設計の上では、ヨウ化メチルの拡散係数を使って設計することが妥当と考えられる。
- ・ 拡散機能について MFI 型は、酸点に吸着しても、他の酸点に吸着したヨウ化メチルが少ないので、それを追い越して拡散していく。アルミの量が少ないので、物理的な吸着がほとんどになる。X 型や Y 型は、アルミの量がかかなり多くなるので、初期においては外表面への吸着が、ヨウ化メチルの拡散に効いてくる。吸着サイトの状態によって吸着したヨウ化メチルの脱離しやすさが異なるために拡散係数の違いが現れているものと考えられる。
- ・ 膜合成の予備検討についてアルミナフィルター上に Y 型ゼオライトナノ結晶を積層させて、更に保護層を付ける動作を行った。ナノ結晶積層領域を目視で確認した。
- ・ 平成 29 年度は合成の部分については希ガスを対象に行う。ヨウ化メチルについては、平成 28 年度予備検討したゼオライトナノ結晶積層膜について合成を行い、吸着測定を行う。

汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究の平成 28 年度成果報告について（説明、千葉准教授）

- ・ 原子力プラントの各部位にいろいろな放射性核種がある。それを非常に簡易的なモデルで、時間的变化、空間的变化を考慮したシステムを作っているのが現状。プラントを 4 つの空間（破損燃料部位、未破損燃料、Air、Water）に区切って、この 4 つのノード間の放射性核種の移行を簡易的に評価する。移行は、希ガス、高揮発性、中揮発性、低揮発性の 4 つに「移行のしやすさ」を分類して、定量的な評価を行う。
- ・ 事故直前まで運転していた原子炉なので、大量の放射性物質が蓄積されている。事故後、運転は停止したが、Cm の自発核分裂の中性子が出てきて、また核分裂生成物ができる。その自発核分裂の中性子によって未臨界の中性子の増倍があり、そこでも核分裂が起こる。定常的に微妙な核分裂が起こると、非常に短半減期の FP が出てきて、それを把握する必要があるのではないかという指摘があったので、長半減期だけではなく短半減期も考慮したモデルになっている。
- ・ 複数の同位体の結果について、Cs の未破損燃料に 10^{17}Bq くらいたまっている。ヨウ素と比べると 7、8 桁くらい違う。Sr も Cs と同じくらい。希ガスで未破損燃料に長く残るのは ^{85}Kr だけである。Xe は全部下がって 10^{10}Bq 程度で、自発核分裂由来の Xe が微妙に発生する。アクチノイドの放射能の計算結果について、アクチノイドは破損燃料から燃えない想定で計算しているので、未破損燃料ともに相当量が残る。一番支配的なのが ^{241}Pu 。これらの計算結果から重要なのは、Cs、Sr、アクチノイド、 ^{129}I 、Kr。そういう

ものが破損燃料に含まれていて、廃止措置中にそれらを切断して空気浄化システムで捕捉という流れになると思う。ラドンの計算結果について、ウラン、Pu から蓄積していく性質があり、だんだん大きくなるが、計算から 10^8Bq で ^{222}Rn は非常に短半減期なので、すぐ減衰するため計算結果からはあまり心配しなくても良い。

- ・平成 29 年度の予定は、破損燃料について、もう少し詳細にわけて、実測データに合わせていく必要がある。最終的なステップとしては、廃炉作業中に空気浄化システムに捕捉される放射能とそれによる発熱量、ガンマ線エネルギースペクトルの計算をする。これらを計算して、遮蔽計算にもっていき、どれだけ遮蔽が必要なのかを考える。難しいのは、廃炉作業中にその中のどれぐらいが最終的にフィルターに到達するか評価することで、一定割合で良いのではないかという前提で実施する。

(2) 平成 29 年度第 2 回技術検討会（於北大）

平成 29 年 6 月 23 日（金）13：30～16：30 まで、北海道大学工学部 A4-59 会議室において第 2 回目の技術検討会を開催した。参加者は、北大と東北大の各大学関係者のみが出席した。議題は、第 1 回目に行われた平成 28 年度の研究成果概要の説明と東北大の平成 28 年度の研究成果の報告と意見交換が主な内容となった。以下、議事メモ

- ・平成 29 年度は最終年度になるので、木村化工機などによる製品化のため、廃炉作業を行う東京電力のニーズに合うような製品化のための検討も実施していきたい。（奈良林教授）
- ・フィルターベントは蒸気で作動するが、空気浄化システムは空気が作動流体である。この研究でデータを取っていたのは、主として蒸気での条件下である。空気で作動する福島の廃炉作業での空気浄化システムとしての AgX の特性をもう一度見直さないといけない。常温で本来の性能が十分出るか？という議論にしなければならない。（奈良林教授）

議論

- ・空気浄化システムで捕集しなければいけないのはヨウ素同位体の ^{129}I であるが、元々の絶対量が少ない。期待する DF はどのくらい確保すれば良いのか？（千葉准教授）
- ・非常に濃度は薄いですが、「体内被曝として危険かもしれないから甲状腺に行かないようにする」ということだと思う。まだ具体的な数値目標はない。（奈良林教授）
- ・公募におけるヨウ素の話は、福島廃止措置のための研究開発か、実際に動かすプラントの事故時に緊急的に使うシステムの応用を目指すのか？（千葉准教授）
- ・公募の観点から福島の廃炉作業で使うのが第一目標なので、まずは廃炉作業を中心に検討する。事故時は、温度の低いヨウ素やセシウムが汚染物質のメインだったが、今回は燃料を切断したり叩いて粉碎したりするので、燃料の中に入っているものは全て対象としなければならない。（奈良林教授）
- ・セシウム、ストロンチウムは溶けるから湿式の部分で溶液中に行く、発生したヒュームの酸化物は懸濁して汚染水になって汚染水処理に行くので、ほとんど湿式からは出てこない。ヨウ化メチルは AgX で捕集できるようにすれば良い。ただし、気泡が破裂するときに、麦茶色なエアロゾルがあれば、広範囲にくるからメタルファイバーに吸着させる必要がある。そこにヨウ化メチルもメタルに反応して吸着すれば良いが、そうでない場合は、AgX で捕

集する。（佐藤教授）

- ・ヨウ素だとメタルに吸着するが、ヨウ化メチルは、吸着するのか？（奈良林教授）
- ・ヨウ化メチルは、茶褐色の水より重たい液体で、沸点が 40℃くらい。実験で ^{125}I の放射性ヨウ化メチルを作ったときに、プラスチック関係は中にまで入り込んで反応するから洗っても落ちない。有機物系にヨウ化メチルを通すと吸着してしまう。ステンレスは、温度を上げない限り大丈夫だと思う。すぐには反応しないが、常時さらされていると表面が反応してヨウ化鉄になって色が変わる。分オーダーや 1 時間程度ならそうはならないが、数時間とか一日保持していると表面に色が付いて反応していく。（佐藤教授）

銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究の平成 28 年度成果報告と平成 29 年度の実施項目について（説明：秋山助教）

- ・平成 28 年度は、バッチ式吸着実験装置を使って吸着実験を行った。銀ゼオライトからのヨウ素脱離特性を評価するために、Mass アタッチメントを取り付けた TG-DTA 装置の動作確認を行った。ガラス製の吸着実験装置では、反応ガスとしてアルゴンとヨウ化メチルを流して、吸着量を評価した。金属配管については、更に蒸気を入れた場合の吸着性能の変化を評価した。そして、流量を変化させてそれぞれの吸着性能がどうなるか評価した。
- ・奈良林教授から「この研究は空気浄化システムなので、空気とアルゴンで違いがあるかもしれないから、空気での実験もやったらどうか？」とコメントがあった。
- ・吸着部温度と吸着率の関係で 20℃だけ、他と比べてやや低めになっており、吸着温度が低いと吸着率が下がる可能性がある。ガス流量が 300ml/min までは、ほぼ吸着率が 100% だが、それ以上になると低下する。500 ml/min では、吸着率が 50%程度になる。金属製の吸着実験装置では、ガス流量やヨウ化メチル (CH_3I) 濃度を変化させても吸着性能は、ほぼ 100%で低下はしなかったが、蒸気を導入すると流量の増加に伴って吸着率が低下していく結果になった。実験で使用した蒸気は、飽和蒸気圧を超える蒸気の量で水になってしまっ、AgX が水に浸ってしまった状態になり、疎水性のヨウ化メチル (CH_3I) との反応が阻害されてしまったのではないかと考えている。
- ・吸着実験後の AgX の SEM-EDX 測定について、ガス流量 50ml/min の AgX の断面図からヨウ素が周辺に広く分布している様子が確認できる。吸着性能が低下した 500 ml/min では、同様に周辺に広く分布しているが、内部に未反応のものが残っていることから流量が早くなると吸着反応が追いつかなくなることが確認された。

Mass アタッチメントを取り付けた TG-DTA と標準物質 ($\text{CaC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$) での動作確認の結果について（説明：秋山助教）

- ・AgX の TG-MS の測定結果に関して、200℃で質量数 18 のピークが確認された。吸着水の揮発と考えられる。平成 29 年度は、ヨウ化メチルを吸着した銀ゼオライトを TG-DTA に加えて TG-MS を用いて質量分析を行い、銀ゼオライトの熱的な安定性やヨウ素の脱離挙動を調べることで、銀ゼオライトに吸着したヨウ素の安定性評価を行う。追加検討事項として、蒸気にさらされて水に濡れた AgX を再度乾燥させた時の吸着性能を評価する。TG-MS を用いて、ヨウ化メチル (CH_3I) とステンレス及び塩化ビニルとの反応を評価する。

- ・吸着水の揮発で質量が減少することについて、1400℃まで測定した結果、880℃でヨウ素の脱離と見られる質量の減少があり、1200℃以上で更に質量が減少することを確認した。ゼオライトの分解、シリコン (Si) の揮発に伴う吸熱反応が質量減少と考えている。

ヨウ素を吸着した銀ゼオライトの TG-MS 測定結果について

- ・200℃までの質量減少は、水の揮発によるものと確認され 800℃付近の質量減少はヨウ素によるものであると確認された。ヨウ化メチルに対しても TG-MS を見てみたが、1 万倍まで拡大してもピークが見ないため、一度吸着してしまうとヨウ化メチルとしては出てこないことを確認した。800℃付近までヨウ素は出てこないため熱的に安定していることを確認した。1200℃以上、AgX がアモルファスになって分解しているがヨウ素のピークが出てこなかった。

一度、水にさらされた AgX サンプルについて、

- ・北大から提供があった変色した、ごく微量の銀が露出した AgX と東北大で蒸気発生器を使って1時間ほどさらして風化による乾燥をさせた AgX を XRD で結晶性がどうなっているのかを確認した。東北大で作成したサンプルは、未使用の AgX とほとんど変わらないことが確認された。北大のサンプルは、金属の銀のピークが新たに確認された。酸化銀のピークは確認されなかった。銀自体でもヨウ素は吸着するので、吸着性能自体は、おそらく変化はしないと思われる。
- ・「室温で吸着しているので常温で反応するが、ヨウ化メチルがどの温度で反応しているかハッキリとまだわからない。」と佐藤教授からコメントがあった。それに対して、「200℃ではあるが、AgX にパルス上でヨウ化メチルを投入して反応を見る検討で、メタンとジメチルエーテルのピークが検出された。」と中坂助教からコメントがあった。

東北大 Gr と増田 Gr とのシナジー効果について

1. 東北大 Gr で取扱っている 1mm 程度の AgX で、ヨウ化メチルを吸着させて中の分布 (断面) を SEM-EDX で確認する。(増田 Gr が実施)
2. 増田 Gr がジメチルエーテルを検出した件について、増田 Gr が実施した実験方法の内容を教えてもらい、TG-DTA を使い MS を見ながら確認をする。(東北大 Gr が実施)
3. 空気の雰囲気で行う。アルゴンで実施したときのデータと差がでるかどうかな。(東北大 Gr が実施)

(3) 平成 29 年度第 3 回技術検討会 (於北大)

平成 29 年 9 月 14 日 (木) 10:00~11:00 まで、北海道大学工学部 A4-67 会議室において第 2 回目の技術検討会を開催した。参加者は、北大と東北大の各大学関係者のみが出席した。議題は、平成 29 年度の進捗状況確認についての各分担当担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換が主な内容となった。以下、議事メモ

高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究の平成 29 年度の進捗状況について (説明：奈良林教授)

- ・額の確認調査があり、原安協からラサ工業を協力者リストに加えてくださいとの指摘があり、ラサ工業の了解を取り、この公募の協力者リストに加わることになった。
- ・「被曝低減技術の基本コンセプトの検討」に関しては、蒸気注入をやることによって非常に微小なヒュームを凝縮させることができた。また、ウェブフィルターを 1 ケースだけ、

日本原子力学会秋の大会直前に試験を実施した。DF が約 1400 の結果になり、前は約 900 だったので大幅に上回る結果が出た。ヒューム凝集装置を加えないで、2 μ mのウェブのみを使用して、どこまで最小粒径がトラップできるかを、今後実施する。

- ・「吸着実験と評価解析モデルの作成」については、粒径ごとに区間を区切って、ある粒径に対して特定のフィルターが、どの程度 DF の性能があるのかを見ていくと、単なる DF の比較ではなく、粒径分布の関数が得られる。その関数を使うと、どういう分布の粉が流入すると、どのくらい除去できるというのを、粒径ごとの分布で得られるということを平成 28 年度の研究で整備できた。多層にした場合でも使えるので、各粒径でどういう風に各フィルターで捕集されて、最終的に出口でどういうものが出てくるのか分かる。これでフィルターの設計ができるようになる。
- ・ヨウ素同位体の ^{129}I のような 1570 万年もの半減期が長いのは、フィルターにある程度以上の放射性物質がたまると濃くなり過ぎると、深地層処分でも処分ができなくなるので、その制約になる前にフィルターへの捕集を止めないといけない。放射性物質がどうしてもがインプットされたときに、ある時間を経過したらファイバーフィルターにどのくらいの放射性物質がトラップされて、それが捨てる/捨てられない、回収したフィルターの放射性物質が時間的にどのように減衰していくかという評価に繋がっていく。

議論

- ・メタルファイバーに捕集されるのはメインがセシウムなので、ヨウ素は捕集できる・できないに関わらず放射能が十分に低いので、基本的にセシウムから出てくるガンマ線を遮蔽するという問題に帰結する。ヨウ素は、後段の AgX で捕集するので、AgX 側で考えることだと思う。（千葉准教授）
- ・1 号炉に生成されたヨウ素が 7.4 kgあり、おそらく、溶けた燃料は格納容器の中に出てきて、液と反応して有機ヨウ素になったり、格納容器のリーク部分から一般環境に出てしまったりしている。（奈良林教授）
- ・ヨウ素同位体のうち、 ^{131}I の半減期は約 8 日で、6 ヶ月くらいで全部無くなってしまう。それ以降の ^{129}I の半減期は 1570 万年だが、それは過去に行われた核実験のフォールアウトと区別が付かない量である。フォールアウトで生成された量の方が福島事故で発生した量より遙かに多い。（佐藤教授）
- ・ヨウ素は、「環境中に放出しないという方針なので、ちゃんと取りましょう。」と、取ったからといって、そのハンドリングをどうするかとか、高放射線量だから遮蔽が必要だとかといった話ではないという認識で良いのか？（千葉准教授）
- ・廃炉作業で格納容器を必ず開ける必要がある。その時に、格納容器の中の気体を一般環境に出してはいけない。ヨウ素は気体で出てくるので、壁に付着しているセシウム等とは扱いが違う。気体はヨウ化メチル ($\text{CH}_3^{129}\text{I}$) で出てくるから、それはちゃんと恐れないといけない。（奈良林教授）
- ・ヨウ素が、 I_2 で安定して存在しているとは思えない。デブリをカットしたときに、ガス状のヨウ素が出るかどうかの議論になる。（佐藤教授）
- ・ヨウ素の話をする時に、トータルで 4kSv オーダーのヨウ素があるとした場合、それが非常にハイリスクだから取らないといけないというスタンスなのか、ヨウ素は低リスクであ

っても念のために取っておこうというスタンスなのか、どちらなのか？（千葉准教授）

- ・作業者が作業途中で ^{129}I を吸い込んで、甲状腺に行くのが問題になる。この研究は、格納容器内のデブリ処理の場合の作業者の作業環境における被曝低減と作業中の一般環境への漏洩の防止（佐藤教授）
- ・1Sv を超えると 58% の人が甲状腺癌になると言われている。（奈良林教授）
- ・ヨウ素の被曝はシーベルトの評価ではわからない。千葉准教授が言われたように、その中でヨウ素がどのくらい寄与しているかの議論はあると思う。（佐藤教授）
- ・セシウムは、ヨウ素より 7 桁、8 桁のオーダーで大きい。（千葉准教授）
- ・カットした場合の元素が出てくる割合としては、放射能強度を除いた分布で出てくるものを仮定した方が無難ではないか？今の話は外部被曝の話で、万が一出てきて取り込んだ場合の内部被曝については、セシウムはこれだけ寄与がありますので、これだけ取れば問題がなくなるというようなことを核種ごとにやれば良い。カットしない限りは、モノが出てこないから全部外部被曝の話である。空気清浄化の話はあくまで出てきた核種についての議論だから、内部被曝しない限りは、この話はない。（佐藤教授）
- ・切断等した場合、必ずコンクリート等からは塵が出てきて、その塵は固体であったり、水に溶けたりする。（奈良林教授）
- ・そうなった場合の出てくる寄与は、全部ではなく、例えばデブリ全体から出てくる話であれば、応分の放射能強度を吸い込めば、その分の寄与がある話なので、今の段階ではそれを考えれば良いと思う。（佐藤教授）
- ・ヨウ素が一定量入るとして、オーダーが 9 桁位違うセシウムが入ってくる。その時に、ヨウ素のリスクは、セシウムと比べてどれくらい高いのか？（千葉准教授）
- ・セシウムは 2 週間くらいで体内から出て行くが、ヨウ素は甲状腺に残り続けるから作業後も被曝し続ける。そういう意味では、9 桁位違うといっても特定部位に残るヨウ素は重要である。（佐藤教授）

汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究の平成 29 年度の進捗と今後の予定について（説明：千葉准教授）

- ・放射能評価解析プログラムは 3 カ所構成されていて、今は廃止作業する段階直前のプラントの中の放射能の分布の計算ができる。今後は、切断等の働きかけをした時に、空気の流れが変わって最終的にフィルターにこのくらいトラップされるという計算を追加する。トラップされた放射能をソースとして、ガンマ線源のエネルギースペクトルの計算を行い、それに基づいてガンマ線の輸送計算も行い、遮蔽計算をやる。基本的にはセシウムをソースにしたガンマ線の計算になると思う。

コメント

- ・作業手順は大別すると、格納容器内に残っている燃料の回収と、ペDESTAL 内での作業、建屋の解体でコンクリートに付着しているものを回収する場合で、これは格納容器の内表面も同様である。のこぎりで切断するのか、プラズマで切断するのか、まだ方針が決まっていないので、両方に対応できるようにする。廃炉作業も冠水でやる方法とドライでやる方法の両方にも対応できるようにしてほしい。（奈良林教授）

- ・冠水じゃない方がシビアなので、ドライを想定した方が良い。（佐藤教授）
- ・いくつかケースがあるので、想定されるケースの燃料の組成を仮定して、この空気浄化システムで吸引したら、どうなるのかを評価できるようにしてほしい。（奈良林教授）
- ・使用済燃料を直接切る話が一番シビアだと思う。一番酷いのは、燃料棒が破裂してなくて潰れているパターン。それは、全部中に残っていて、それを切るとヨウ素から何から全部外に出てくる。（佐藤教授）

銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究」平成 29 年度の進捗と今後の予定について（説明：秋山助教）

- ・TG-DTA と MS を用いた測定で、ヨウ素の揮発を確認した。今後は、ヨウ化メチル (CH_3I) ガスを流し、吸着時のガス発生について評価を行うことを検討している。
ガス流量「ml/s」を流速「m/s」に直して評価を行った。ガラス製の実験装置は、計算してみると断面積が金属製に比べるとかなり小さいので、流量としては、金属製の装置は大流量であったが、ガラス製の方が流速に直すとかなり大きくなっている。このことから、ガラス製の結果と金属製の結果が矛盾していないことが分かった。
ヨウ化メチルが AgX に到達するまでに、配管の中で反応するかもしれないのでステンレスと塩化ビニルとの反応を評価する。放射性のヨウ素を用いた吸着実験も行う。金属製の実験装置はまだ吸着率の低下が確認されていないことから AgX の量を変化させて、吸着実験を実施する。また、北大増田 Gr で作成したゼオライトを使って TG-MS の測定を行う。

銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究の平成 29 年度の進捗と今後の予定について（説明：中坂助教）

- ・希ガス (Xe 、 Kr) が納品されたので、順次、実験を進めている。ゼオライト膜の合成を進めており、ヨウ化メチルの吸着特性の評価を実施予定。
- ・希ガスの吸着測定について、Y 型ゼオライトの Na 型と Ag 型で、 Kr を 25°C の条件で実施した。Na 型の方が吸着している。Y 型以外のゼオライトも作り評価を行い、拡散の装置を使って速度も見えていく。作成したゼオライト膜 (Y) の XDR の結果について、アルミナ上のフィルターにゼオライト相が、できていることが確認された。
- ・平成 28 年度後半に作成したナノサイズの X 型ゼオライトについて、更に合成の範囲を拡げる目的で追加検討を行った。仕込量を X 型に近い低い量に変化させて水酸化ナトリウムの量を $1/4$ 程度にして合成を行った。 $\text{Si}/\text{Al}=2$ 及び 3 においても、 OH 濃度が 2.2M 、 2.4M 程度で Intensity の低い FAU 型のフェーズが出てきた。粒径の評価はできていないが、おそらくナノレベルのサイズができていると思う。
- ・Na 型にイオン交換したものを測定すると、かなり吸着量が多い結果になった。拡散係数についても Na 型の方が高い。X、Y という形で骨格構造中のアルミの量を変えていった時に、Na-X の場合、吸着サイトで吸着量が多い。一方で拡散係数も一般的に hidrocarbon の径の場合、アルミの量が多くなると拡散係数が低下する。吸着サイトにくっついて、それが吸着した物質の拡散抵抗になることで、他の物質の拡散を阻害する傾向が一般的にはあるが、逆の序列で Na-X の方が拡散性が良い結果になった。
- ・FAU 型の場合、スーパーケージに入ったところで、表面や酸点の上に吸着したり脱着したり、スーパーケージ内に留まる傾向がある。ここで H や Ag の場合、吸着頻度が高いので、他の

分子の吸着、拡散を阻害している可能性がある。Na 型の場合、ヨウ化メチルの吸着量が高く、吸脱着が比較的起こりにくいために、逆に他の物質が拡散しやすいと考えている。

- ・奈良林 Gr から 1mm 程度の粒子の銀ゼオライトの提供を受けて、吸着平衡までの圧力変化を測定した。1 万秒程度で、おおむね平衡に近づいている。吸着後に、粒子を半分に切って、その断面を EDX で測定を行った。その結果、粒子内部の中央までヨウ化メチルが吸着していることが確認できた。

(4) 平成 29 年度第 4 回技術検討会（於東北大）

平成 29 年 12 月 26 日（火）13：30～16：30 まで、東北大学・多元物質科学研究所多元研南 2 号館 多目的打合室（301B 号室）において第 4 回目の技術検討会を開催した。今回の参加者は、北大と東北大の各大学関係者とラサ工業株式会社が出席した。議題は、各 Gr の進捗と成果の見通しについての各分担担当者からの説明とそれに対する確認、意見交換が主な内容となった。以下、議事メモ

高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究の進捗状況と成果の見通しについて

（説明：奈良林教授）

- ・デブリにレーザを当てるか機械加工するとヒュームが発生するので、それを吸引して湿式フィルターに入れる。それで取り切れなかったのを乾式フィルターで捕集する。ガス状物質は、AgX フィルターで捕集する。濾し取った空気は、また建屋に戻す。機械加工の場合は、切削するために水がいる。そのため、廃液に放射性物質が含まれた水となるので、その水と湿式フィルターで捕集した放射性物質は、ALPS で処理する。東電は、ALPS はだんだん出番がなくなっているので、それを使いたいと言っている。メタルファイバーフィルターは、ファイバーに粉が付くので、ある線量になったらそれを処分する。

ウェブ（WF）の DF と多段フィルターの構想について

- ・ウェブの径が $2\mu\text{m}$ だと 5 枚重ねで DF が 8000 以上、パンチングメタルを使って密度を濃くすると速報値ではあるが、DF が 16000 くらいまで上がる。時間と共に圧損が大きくなるので、なるべく上がりにくくする必要がある。最初は目の粗いフィルターを使って大きい粒子を取り、中段でより細かい粒子を取り、最終段で粒径が小さい粒子を取る構想を考えている。最終段は、 $2\mu\text{m}$ の焼結フィルターだとすぐ圧損が大きくなるため、ゆっくり圧損が大きくなる $20\mu\text{m}$ の焼結フィルターが良いと思っている。ある粒径のゾーンごとに DF を計算すると粒径と局所の DF の関係が出るので、それを粒径ごとにかけ算をすると多段フィルターの設計ができるようになる。計算上の値ではあるが DF が 63000 くらいになる。

湿式フィルターについて

- ・供給する空気に硫酸バリウムの粉を入れて、湿式フィルターを通した後の空気を HEPA フィルターで回収しているが DF が 450 程度、思った以上に粉が水フィルターを通り抜ける。年明けに、湿式と乾式の直列繋ぎの試験を実施する。湿式フィルターを通すとかなり空気が湿ってしまい、後段のメタルファイバーフィルターに湿りが来てしまう。湿りを取り除くためのメタルファイバーフィルターがいるかもしれない。

（ターゲットにしている DF はどのくらいなのか？との問いに）まだ目標仕様は決めていないが、フィルターベントの DF が約 1 万以上までいっているの、そのくらいの DF があって

ほしい。ノズルの改良版が業者から届いたので、年明けはそれを使って試験を行う。

銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究の進捗状況と成果の見通しについて（説明：中坂助教）

- ・平成 28 年度の間フォローで寺井 P0 殿からラドンの提案があったが入手ができなかった。キセノン (Xe) の文献調査で、2013 年にフランスのグループからキセノン吸着の報告があった。AgX だと非常に吸着量が少ないが、石油化学でも使われる ZSM-5 (Zeolite Socony Mobil-5) と呼ばれるゼオライトに銀イオン交換した銀ゼオライトだと吸着が出てくる。大気圧になると AgX に優位性が出てくる。実際出てくる圧力はかなり低いので、AgX より ZSM-5 が良いのではないかという報告になっていた。翌年の続報で、低圧の立ち上がりで ZSM-5 を 400℃くらいで処理すると銀の一部がクラスター化や銀のナノ粒子化が発生し、そこに Xe がより吸着しやすいとシミュレーションと合わせて実験結果を報告している。この論文に基づいて、Y 型ゼオライトに銀、銅、コバルトでそれぞれイオン交換を行い、実験を行ってみた。Ag が一番良い結果になった。Ag-Y で Xe と Kr の比較では Xe の方が吸着する。
- ・他の文献で議論されていた内容ではあるが、分極率が効いている。Xe や Kr は Ar や Ne と比べて分極率が高くなるので、その分吸着がしやすくなる。ラドンになるともっと吸着するのではないかと思う。
- ・Kr の吸着について、径の小さいものを使うことで濃縮効果が発揮できるかもしれないので、A 型のゼオライトを使った。Si/Al としては X 型に近い。Ag、Ca、Na でイオン交換したものをを使った。Ag-Y (100kPa) と比べると Ca-A や Ag-A は Kr の吸着量が多くなる。しかし、水が共存してくる場所では Ca はかなり水を吸うので、競争吸着が入ってくると、ここまでスペックが出ないと思う。水の吸着は Ag の方が抑制できる。
- ・ゼオライトナノ粒子層だけでは物理的安定性に欠けるので、更にゼオライト膜を合成するコンセプトでいたが、合成している間にナノ粒子が溶けた。ナノ結晶に二酸化ケイ素 (SiO₂) を流間に入れ込んで、ある程度固定化させる手法に切り替えて、積層させた Y 型ゼオライトナノ粒子を SiO₂ で固定化させることに成功した。
- ・Ag のイオン交換したゼオライトに苦戦をしている。昨年行っていたのは、アンモニウム型にしてから銀にイオン交換だったが、X 型に適用した所、アンモニウム型にする時点で X 型がすでに壊れ始めているので、現在は Na から銀にイオン交換して実施している。少しイオン交換した条件だと Na とあまり変わらない結果になった。今後は、ゼオライトの種類の選定と希ガスの吸着速度、物質移動の情報を見ていく。ゼオライトの膜ができて、装置もできつつあるので、希ガスの測定評価を進めていく。

銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究の進捗状況と成果の見通しについて（説明：秋山助教）

- ・ヨウ素が吸着していない AgX、試薬の AgI、ヨウ化メチルを飽和吸着させた AgX それぞれ TG/DTA、MS の測定を行った。飽和吸着ではない AgX をこれから実施する。ヨウ素が吸着していない AgX の TG-DTA の測定結果について、質量の減少が 200℃までに確

認められた。水分が揮発したと考えられる。800℃では、TG は変化しないが DTA は変化し、構造変化と見られる吸熱反応が見られた。TG-MS の測定では、質量数 18 のピークが現れていることから、200℃までの質量減少は吸着水の脱離によるものと確認された。試薬の AgI の TG-DTA の測定結果について、150℃付近で相転移と見られる吸熱ピークが見られる。850℃で融点と見られる吸熱ピークが確認された。800℃付近で TG が急激な質量減少が確認され、吸熱反応が見られた。ここで AgI の分解と見られる反応が確認された。TG-MS の測定では、800℃付近までは、特に水分（質量数 18）やヨウ素（質量数 127）とフラグメントイオン（質量数 63）の変化は見られなかったが、質量減少が起きているところで質量数 127 と 63 のピークが確認された。このことから 800℃付近の質量減少は、AgI が分解することによるヨウ素の揮発によるものと確認された。

ヨウ素を飽和吸着させた AgX の測定結果について、ヨウ素が吸着していない AgX と AgI の 2 つの分析結果と合わせたようなものになっている。

800℃以降では、AgI の時と同様に質量数 127 と 63 のピークが確認された。ヨウ化銀の分解反応と一致するヨウ素の脱離の反応が確認された。このことから 800℃までは、ヨウ素は一度 AgX に吸着すると安定して出てこないことが確認された。

- ・ 水に濡れた AgX を再度乾燥させた場合の吸着性能について、水に濡れた AgX で吸着実験を行うと 30%から 50%程度まで吸着性能が落ちるが、これを再度乾燥させると吸着率 100%まで回復することを確認した。
- ・ キャリアガスをアルゴンから空気にしたときのヨウ化メチルの吸着性能の評価について、AgX が 5g としたときは、大きな違いはなかった（ともに吸着率 100%を示す）。AgX の量を変化させて少なくすると、ガス流速が 0.031m/s のとき、吸着率が約 80%まで低下することが確認された。今後、¹²⁵I を用いた吸着実験を行う。TG-MS にヨウ化メチル（CH₃I）ガスを流しステンレスと塩化ビニルとの反応を評価する。北大増田 Gr が作製したゼオライトを用いて TG-DTA 測定を行う。AgX にヨウ素が吸着する際にメタン、ジメチルエーテルが発生するか TG-DTA で確認する。

汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究の平成 29 年度の進捗と成果の見通しについて（説明：千葉准教授）

- ・ 放射能評価解析プログラムについて、①事故時の核種インベントリモジュール、②事故後の核種移行計算モジュール、③廃炉作業時計算モジュールの 3 つが、全て開発済。
放射能評価解析プログラムの計算モデルは、非常にシンプルなモデルを使用。
移行係数という単位時間でどれだけの割合で物質が他領域に移行するかパラメータを与えて、場所依存、時間依存の放射性核種の量を、微分方程式を立てて解く計算をしている。
- ・ 通常、原子力発電所が止まった時は、おのおのの半減期に応じて放射性核種は減衰していくが、燃料に含まれるアクチノイド核種が自発核分裂でヨウ素同位体を含む種々の FP を定常的に発生する。更に自発核分裂で中性子が発生するので、それが未臨界の核分裂連鎖反応を起こして、短半減期の FP が出てくる。定常的に発生する短半減期の影響を、この研究で開発しているモジュールはきっちり評価できるのが一つの特徴。

実際に作業する時に、空気浄化システムにどれくらい放射性核種が移行していくのかの計算のモジュールの概要は、対象領域（健全燃料、破損燃料、格納容器の内壁等）それぞれに

応じて放射性核種のインベントリ情報が前段の計算で得られているので、その計算結果から元素ごとに定義する移行率から有限時間でどれくらい空気浄化システムに流れてくるかという計算をする。空気浄化システムの水フィルター、メタルファイバーフィルター、AgX フィルターに元素と化学形態ごとの DF をユーザーが与えることで、それぞれのフィルターでどれくらいの放射性核種が蓄積されるかという計算ができるようになる。

- ・放射線源と遮蔽計算について、フィルターがどれくらい放射線を発生させて、それをどれくらい守らないといけないのか遮蔽計算を行う。各フィルター部に捕捉されたインベントリの情報があるので、そこからガンマ線源エネルギースペクトルを計算する。

ガンマ線源エネルギースペクトルの情報を使って、いくつかの遮蔽材を想定したガンマ線輸送計算を行い、どういう材質でどういう厚さのものを設置するとフィルターの放射線がどれくらい遮蔽できるかという計算をこれから実施する。

- ・開発したプログラムの将来的な活用例について、この研究で開発したのは「枠組み」なので、実際に使う時には、ユーザーがいろいろな条件やデータを設定しなければならない。実際にデータが得られている福島の実測データや過酷事故解析コードによる計算結果等を利用して調整して、それらしい計算結果を出すようにする。そういう方法で活用ができると考えている。

中間フォローの P0 コメントについて、シビアアクシデント (SA:Severe Accident) コードによるプラント内の放射性物質移行計算結果を利用可能であれば、それを用いるのが最良ではあるが、この研究で開発しているプログラムは、自発核分裂に由来して定常的に発生する短半減期 FP 核種の生成を考慮できる特徴があるので、相補的に活用できれば良いと考えている。また非常に簡単なモデルではあるが、フィルター部にどれくらいくるのか計算可能ではあるので、その辺で差別化ができると考えている。

(5) ICAPP2017 での特別講演

平成 29 年 4 月 26 日 (福井)、27 日・28 日 (京都) で開催された 2017 International Congress on Advances in Nuclear Power Plant (ICAPP2017) の Special Special Session にて原子力学会の断層変位とリスク評価調査専門委員会の活動成果を紹介。このなかで、リスク評価手法とリスク低減のための空気浄化システムの有効性について講演した。

(6) 第 25 回原子炉工学国際会議 (ICONE25) での発表

日本機械学会・米国機械学会・中国原子力学会主催の第 25 回原子炉工学国際会議 (ICONE25) にて、Development of High Efficiency Containment Venting System and Air Cleaning System by Using RASA AgX と題して、フィルターベントシステムと空気浄化システムに用いる銀ゼオライト AgX の放射性ヨウ素除去による被曝低減に関して講演した。

(7) Post-SMiRT24Conference での発表

平成 29 年 8 月 29 日東京大学で開催された、Post SMiRT Conference にて Development Risk Evaluation Methods and Measures for Fault Movement by Engineering Approach -Latest Information on Published Committee Report of the AESJ-と題して講演。原子力学会の断層

変位とリスク評価調査専門委員会の活動成果を構造工学国際会議(SMiRT)のメンバー紹介。リスク評価手法とリスク低減のための空気浄化システムの有効性について講演した。

(8) NURETH-17 での発表

中国西安で開催された第 17 回原子炉熱流動国際会議(NUTRTH-17)にて、Development of High Efficiency Filtered Containment Venting System by Using Two-Phase Flow Technology and AgX と題して講演を行った。講演のなかでは、特に本公募事業で開発中のメタルファイバーフィルターを用いた多核種高除染性空気浄化システムの有効性 (Development of a high efficiency multi-nuclide aerosol filters for radiation protection) について紹介した。本国際会議は原子炉の伝熱流動と安全性に関する世界でも第一線級の専門家が一同に会する国際会議であり、活発な質疑討論が交わされた。

(9) 2018 North American ISOE ALARA Symposium での招待講演

平成 30 年 1 月 8 日～12 日に米国 Fort Lauderdale にて開催された ISOE (Information System on Occupational Exposure) の北米シンポジウムにて昨年に引き続き主催者の要請により Restart Status of Japanese NPPs & Super Engineer Education Project: Development of High Efficiency Multi-Nuclide Aerosol Filters for Radiation Protection for Decommissioning Fukushima Daiichi と題して、日本国内の再稼働状況と福島第一原子力発電所の再稼働に関する招待講演を行った。講演に先立ち、「ただいまより司会者より授賞式を行う」との紹介があり、Outstanding Professor of the Year Award を受賞した。フィルターベントの開発により事故時の被曝低減と安全性を向上させたこと、その技術を福島第一原子力発電所の廃炉作業の被曝低減技術に結び付け空気浄化システムを開発したこと、大学における人材育成教育 (スーパーエンジニアの育成研修) を行ったことなどが表彰理由である。なお、ISOE (職業被曝情報システム) は、国際原子力機関 (IAEA) と経済開発協力機構-原子力機関 (OECD-NEA) が共同で運営している組織であり、世界の 400 基を超える原子力発電所の事故トラブル情報と職業被曝情報を集約し、NRC などの原子力規制組織と発電所 RP が参加している。



Award Ceremony on Jan. 9, 2018 at the North American ISOE ALARA Symposium

UNIVERSITY OF ILLINOIS
AT URBANA-CHAMPAIGN

Department of Nuclear, Plasma,
and Radiological Engineering

216 Talbot Laboratory
104 South Wright Street
Urbana, IL 61801-2984



2018 NPRE NATC Outstanding Professor of the Year Award
Professor Tadashi Narabayashi
Hokkaido University, Sapporo, JAPAN
2018 North American ISOE ALARA Symposium
January 8, 2018, Ft. Lauderdale, Florida, USA

I am pleased to announce the 2018 NATC Outstanding Professor of the Year Award has been given to Professor Tadashi Narabayashi, Hokkaido University, Sapporo, JAPAN. Professor Narabayashi's vision of developing a strong Nuclear Safety Culture at Japanese nuclear utilities was instrumental in creating the Japanese Super Engineer Program funded by MEXT. The program started in September 2015 and has completed 4 groups of young graduate engineers training at the Department of Nuclear, Plasma & Radiological Engineering, University of Illinois. The key attributes of the NPRE NATC prestigious award are being communicated to the global community by the Information System on Occupational Exposure (ISOE), OECD-NEA (Paris) and IAEA (Vienna) to Radiation Protection Managers of the ISOE member nuclear utilities in 27 countries and participating regulatory agencies.

Key accomplishments of Professor Tadashi Narabayashi are provided below:

Whereas Professor Narabayashi identified the need to improve the Japanese nuclear utility nuclear safety culture by selecting outstanding graduate engineering students to participate in the ISOE ALARA Symposium and Department of Nuclear, Plasma & Radiological Engineering educational programs

Whereas Professor Narabayashi acquired funding from the Japanese government to establish the Super Engineering educational program with NPRE NATC

Whereas Professor Narabayashi has developed radiological engineering curriculum to support the educational program

Whereas Professor Narabayashi has played a key role in achieving the restart of Japanese nuclear reactors

Whereas the Super Engineer Program has educated Japanese graduate engineers since 2015 with 5 engineers receiving radiological engineering training at NPRE, University of Illinois and US nuclear plants annually

With great pleasure, I present the 2018 NPRE NATC Outstanding Professor Award to Professor Tadashi Narabayashi, Hokkaido University.

John M. Palms, Honorary Chair, North American Technical Center Board,
Distinguished President Emeritus, University of South Carolina, Exelon Board Member (Retired), former
INPO Board Member & Chairman, Board of the Institute for Defense Analysis, US DOD.

cc:

Professor Rizwan Uddin, Head, Nuclear, Plasma & Radiological Engineering Department
James Stubbins, Nuclear, Plasma & Radiological Engineering Department (former Head 1999-2017)
William Magwood, Deputy General, OECD-Nuclear Energy Agency, Paris, FRANCE
J. Ma, ISOE Co-Secretariat, International Atomic Energy Agency, Vienna, AUSTRIA
Terry Brock, ISOE Coordinator, US Nuclear Regulatory Commission, Rockford, Maryland
David W. Miller, NATC Regional Director, NPRE, College of Engineering, U of Illinois

4. 結言

4.1 まとめ

福島第一原子力発電所の廃炉作業での、作業者の被曝低減と敷地外の放射性物質の漏洩防止を目的に、提案代表らの湿式と乾式及び銀ゼオライトを用いた高除染性フィルターベントシステムの開発実績をベースとして、多核種高除染性空気浄化システムの開発に必要な基礎研究を平成 27 年度から平成 29 年度まで実施した。テーマごとに、その研究成果のまとめを記す。

4.1.1 高除染性フィルターによる被曝低減技術に関する研究

蒸気注入表面凝縮式ナノエアロゾルフィルターや湿式フィルターを通過するとヒュームが凝集して、比較的大きな結晶粒へと変化するため、得られた吸着実験データを分析して、評価解析モデルを作成し、フィルターシステムの総合除染係数とフィルターの圧力損失を予測可能とした。システム構成は、湿式フィルター＋乾式フィルター＋ヨウ素フィルター＋他の核種用の専用フィルター＋被曝線量評価システムという構成になった。本公募事業の成果を集大成したものであり、放射性物質をその検出限界以下まで除去できる。空気流量調整のためには、空気送風機（ブロワー）の電源はインバーターで可変にしておく必要がある。なお、フィルターの圧力損失は、試験結果より、最大で 12kPa 程度であることが確認されている。

メタルファイバーフィルターによる乾式フィルターの上流に湿式フィルターを設置することにより、メタルファイバーフィルターの目詰まりを防止しつつ、湿式フィルターによる放射性物質の除去により、長期の多核種除去のフィルターシステムが長期に亘って運転可能である。

4.1.2 銀ゼオライトの吸着剤設計法の構築と希ガス分離メカニズム評価に関する基盤研究

FAU 型、MFI 型を主対象に粒子サイズの異なるゼオライトを合成した。また、FAU 型ゼオライトを主対象にヨウ化メチルの拡散係数測定を行い、拡散機構を検討した。Ag イオン交換サイト数が増えるに伴い、ヨウ化メチル吸着量は増える一方、ゼオライト細孔内のヨウ化メチルの拡散係数はおおむね等しいことが分かった。イオン交換ゼオライトを用いて希ガスの吸着特性評価を行った。希ガスの種類によって、最適なゼオライトの細孔径やイオン交換金属種が異なることが分かった。

Ag イオン交換ゼオライトを積層させたゼオライト膜を合成し、ヨウ化メチルの吸着分離能を検討した。拡散係数測定、膜評価から、ヨウ化メチルの高効率分離には吸着容量の高いゼオライトの選定、ゼオライト粒子径の微小化、Ag イオン交換サイトを多くすることが有効であることが示唆された。

環境中には水蒸気が共存することから、水蒸気共存下においてもヨウ化メチルを選択的に吸着可能なフィルターの開発が重要となると考えられる。また、高い希ガス吸着能を有する吸着剤開発が必要と考えられる。

4.1.3 銀ゼオライトを用いた放射性核種吸着脱離に関する研究（再委託先：東北大学）

高除染性空気浄化システムは一年を通しての使用が想定されるため、幅広い温度、湿度条

件下においても性能が保障される必要があるため、平成 27 年度は流量、温度、湿度が調製可能な実験装置を製作した。吸着実験では放射性有機ヨウ素を用いるため、放射性有機ヨウ素の調製を平成 27 年度に行い、平成 28 年度にこの放射性有機ヨウ素と非放射性の有機ヨウ素を用いて吸着実験を行った。その結果、流量が増加すると吸着性能が低下することと、温度変化が吸着性能に与える影響は確認されなかったことと、水分が銀ゼオライトに吸着すると吸着性能が低下するが、再度乾燥させることで吸着性能が回復することが確認された。また、放射性有機ヨウ素の吸着挙動は非放射性有機ヨウ素の吸着挙動と同様であることが確認された。銀ゼオライトに吸着した有機ヨウ素は AgI として存在し、AgI の分解温度の 800℃ 付近まで銀ゼオライトに安定に吸着されていることが確認された。

4.1.4 汚染されたフィルターエレメントの多核種放射能減衰評価に関する基礎研究

多核種高除染性空気浄化システムのフィルターエレメントに捕捉される多核種の放射性物質の放射能の評価解析プログラムを開発した。また、それを用いて、福島第一原子力発電所における廃炉作業中に当該システムのフィルターに捕捉される放射性物質の試解析を実施した。今後は、プラント中の核種移行モデルに用いるパラメータを、測定データや過酷事故解析コードの結果を用いて調整し、より確度の高い解析を行うことが重要と考える。