

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

(受託者) 国立大学法人 北海道大学

(研究代表者) 奈良林 直 大学院工学研究院

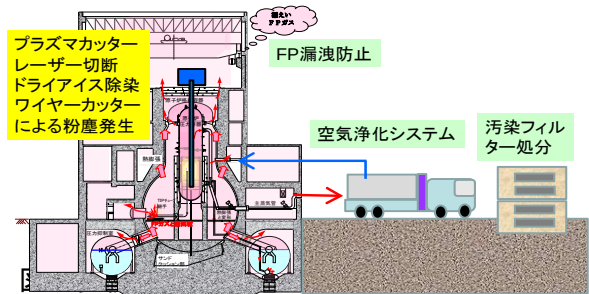
(再委託先) 国立大学法人 東北大学

(研究期間) 平成27年度～29年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所のデブリ取り出し等、廃炉作業においては多核種の放射性物質を含むさまざまな形態の粉塵等が雰囲気中に放出され、作業被曝低減化や環境への飛散を防止するために、図1に示すようなフレキシブルに対応できる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する。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す。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する。



2. これまでの研究成果

(1) 高除染線性フィルターによる被曝低減術

① 被曝低減技術の基本コンセプトの検討

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: 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、図2に示す

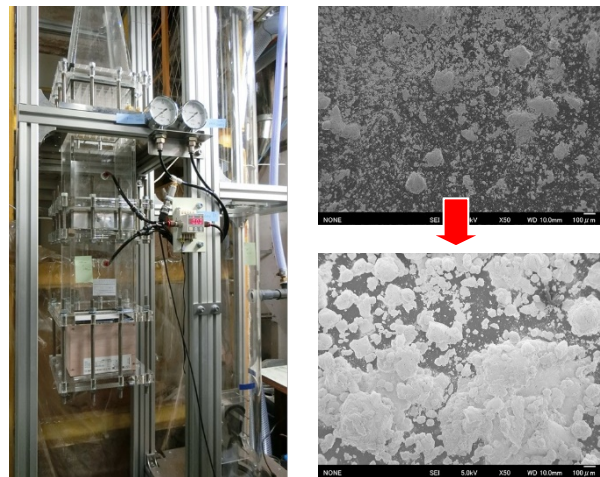


図2 試験装置（左）と蒸気注入による凝集効果

ように、湿式フィルターや蒸気注入によりヒュームを凝集させて大粒化する試験に成功し、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した。現在、本システムの総合検討を実施している。乾式のメタルファイバーフィルターについては、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った。メタルファイバーフィルターに捕捉された硫酸バリウム粒子群の電子顕微鏡写真を、画像解析ソフトを使って粒径分布を測定した。最小粒子径は約 60nm であるが、除染係数 DF は最大で、約 75000 を達成した。

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。実験では、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）を用いて、更に前段の湿式フィルターについてはスクラビングノズルの形状をパラメータとする。このようにして、多様な組み合わせによるエアロゾルおよびヒュームの吸着性能総合試験を実施する。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。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。

(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 29 年度は希ガス吸着を可能とする吸着材探索を目的として、文献調査ならびにイオン交換ゼオライトを用いたキセノン、クリプトン吸着を実施している。C. Daniel らは、低圧領域でキセノン吸着材として銀イオン交換した ZSM-5 が有効であることを報告している。キセノンは 1Pa 付近から吸着することが知られている²⁾。銀、銅、コバルトをイオン交換した Y 型ゼオライトを調製し、キセノンの吸着等温線 (25℃) を測定した

(図 3)。銀でイオン交換した Y 型ゼオライトは、銅やコバルトに比べキセノン吸着量が多いことがわかった。銀イオン交換したゼオライトを用い、細孔径がクリプトン吸着に及ぼす影響を確認した。Y 型ゼオライトより細孔径の小さいゼオライトに銀イオン交換したゼオライトを用いることで、クリプトンの吸着量が増加する結果を得た。

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

前年度までに検討したゼオライト結晶を積層させたゼオライト膜のフィルター合成とそのヨウ化メチル吸着特性評価を実施することを目的としている。水熱合成により調製した Y 型ゼオライトを用い、アルミナフィルター上に積層させ固定化したゼオライト膜を調製した。調整した Y 型ゼオライト積層膜の

電子顕微鏡写真を図 4 に示す。アルミナフィルター上に約 18 μm の Y 型ゼオライトの層が形成されていることが確認できる。同様の手法により ZSM-5 ナノ粒子を積層させたゼオライト膜についても調製できることを確認した。調製した膜を用いてヨウ化メチルの吸着特性評価を実施するため、装置組み上げを実施中である。

(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（東北大学）

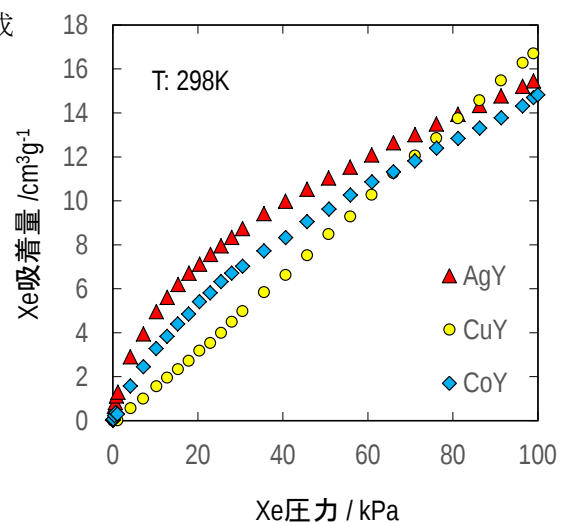


図 3 キセノン吸着等温線 (25℃)

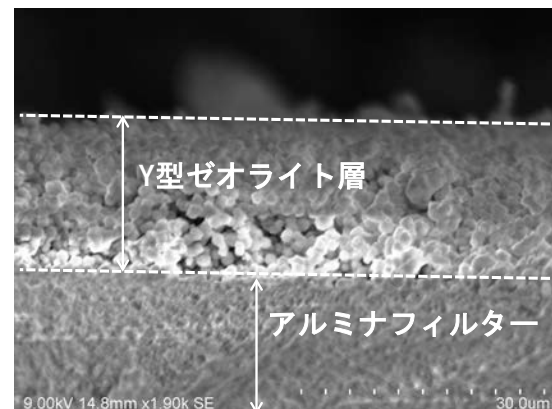


図 4 Y 型ゼオライト積層膜の断面電子顕微鏡写真

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

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るため、銀ゼオライト、AgI、ヨウ素吸着銀ゼオライトの TG/DTA（熱重量分析／示差熱分析）及び MS（質量分析）を行った。図 5～6 に各試料の TG-DTA 測定結果及び TG-MS 測定結果を示す。

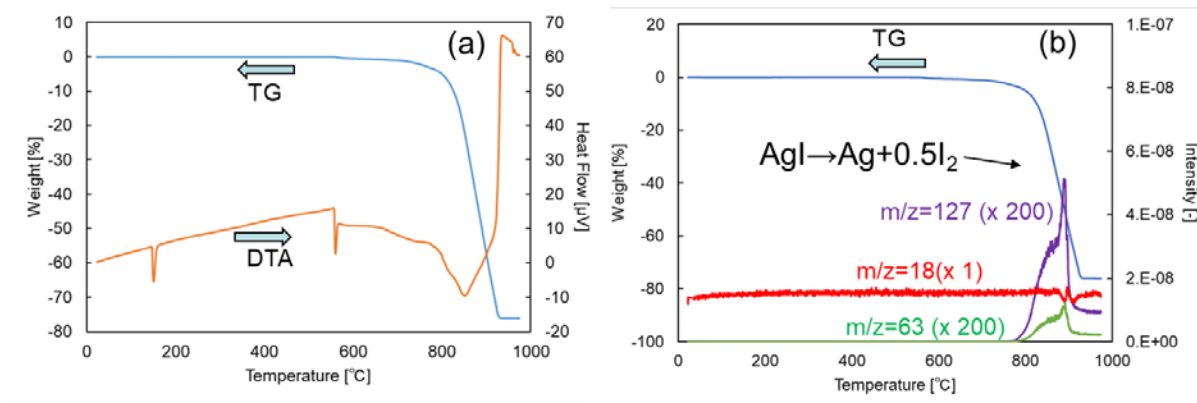


図 5 AgI の (a) TG-DTA 測定及び (b) TG-MS 測定結果

(温度: 25～1000°C (20°C/min)、He 500ml/min、質量分析 $m/z=18, 63, 127$)

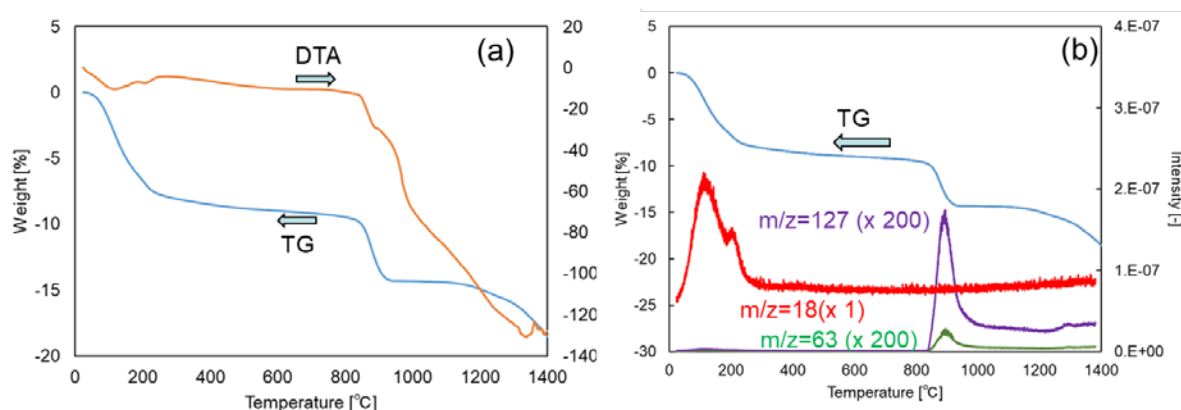


図 6 ヨウ素吸着銀ゼオライトの (a) TG-DTA 測定及び (b) TG-MS 測定結果

(温度: 25～1400°C (20°C/min)、He 500ml/min、質量分析 $m/z=18, 63, 127$)

ヨウ化メチルは銀ゼオライトに吸着すると AgI として化学吸着するため、AgI についても TG-DTA 及び TG-MS 測定を行った。図 5 より、AgI は約 800°C で重量減少が確認され、同時に $m/z=63, 127$ の揮発が確認された。これは AgI が分解されてヨウ素分子が発生したためと考えられる。銀ゼオライトに吸着したヨウ素の熱的安定性やヨウ素の脱離挙動を調べるため、ヨウ素を飽和吸着させた銀ゼオライトを調整し、TG-DTA 及び TG-MS 測定を行った。その結果を図 6 に示す。図 6 より、200°C 付近で水分の揮発が確認され、800°C 付近でヨウ素の揮発が確認された。このヨウ素の揮発は AgI の TG-DTA 及び TG-MS 測定の結果と一致した。これより銀ゼオライトに吸着したヨウ素は 800°C まで安定に吸着されていることが確認された。

今後は銀ゼオライトに微量吸着したヨウ化メチルの安定性の評価と、銀ゼオライトに対するヨウ化メチルについて放射性ヨウ素 (^{125}I) を用いて吸着性能の評価を行う。

(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放射性物質の放射能の評価解析システムの開発を平成 29 年度に完了した。このシステムは、①事故時の核種インベントリ計算モジュール、②事故後の核種移行計算モジュール、③廃炉作業時の核種移行計算モジュールの 3 つのモジュールで構成されており (図 7)、1,000 を超えるアク

チニド核種、核分裂生成物 (FP) 核種インベントリの時間的・空間的な変動を評価する。物質の空間的な移動については、ユーザが定義した物質毎の単位時間あたりの移動割合に基づいて評価を行う。このシステムによって、廃炉作業の際に、空気浄化システムを構成する水フィルター、メタルフィルター、AgX フィルターに捕捉される放射性物質のインベントリを定量的に評価することができる。また、自発核分裂反応や、それによって生成される中性子が引き起こす未臨界核分裂連鎖反応の結果発生する短半減期 FP 核種の生成・消滅を考慮することが可能となっている。なお、試算の結果では、燃料デブリを有する系が臨界に近づかない限りは、短半減期 FP の放射能の影響は限定的であることが明らかとなった。

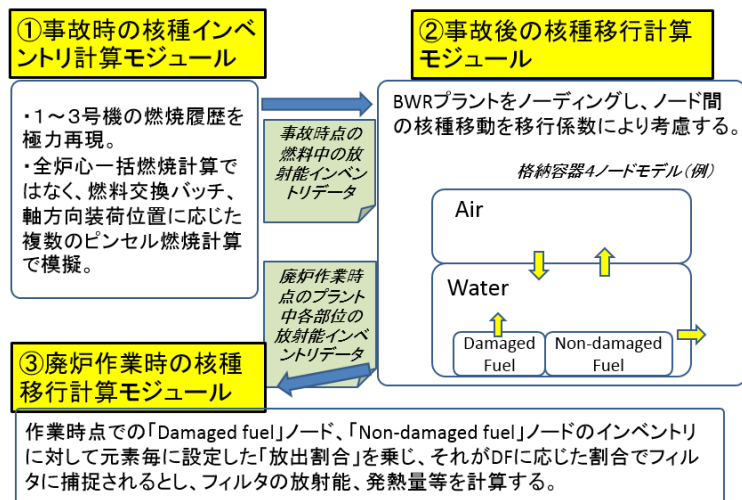


図 7 フィルターエレメントに捕捉される放射性物質の放射能評価解析システムの概要

3. 今後の展望

本システムの導入を以て、福島第一原子力発電所の液体の多核種放射性物質の除去に加え、気相の多核種放射性物質の除去が可能となり、廃炉作業の被曝低減、作業効率の改善・スピードアップにつながることを期待される。平成 30 年以降には福島第一の初号機の取り出し工法が確定することから、実システムへの反映に関して IRID、メーカー等への PR と研究成果の普及に努める。

4. 参考文献

- (1) 奈良林直、佐藤修彰、「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と可視化実験」、エネルギーレビュー (2014, 11) .
- (2) C. Daniel, et al., J. Phys. Chem. C, 117 (2013) 15122-15129
- (3) 奈良林ら、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ロバスト化、第 20 回動力エネルギーシンポ, B211, (2015)
- (4) 千葉豪、石井亮憲、小崎完、奈良林直、佐藤修彰、「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 (8) フィルターエレメントに捕捉される放射能評価のための簡易ツールの開発」日本原子力学会 2017 年秋の大会、2F21、(2017)