

# 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

Development of a high efficiency multi-nuclide aerosol filters for radiation protection during a process of cutting core debris (1) Plan of this project

北海道大学	奈良林 直	Tadashi NARABAYASHI	Member
北海道大学	増田 隆夫	Takao MASUDA	
北海道大学	中坂 佑太	Yuta NAKASAKA	
北海道大学	千葉 豪	Go CHIBA	
東北大学	佐藤 修彰	Nobuaki SATO	
東北大学	秋山 大輔	Daisuke AKIYAMA	

By using the FCVS technology, we had started to develop a high decontamination air cleaning system to remove multi-nuclides for radiation protection to conduct decommissioning the Fukushima NPP (Fig. 17). Development of high efficiency multi-nuclide aerosol filters for radiation protection during a process of cutting core debris at Hokkaido University. A plasma cutter, laser cutter, wire cutter, drilling machine, etc., will be used and will generate aerosols. Therefore, the air cleaning system should be needed for removing core debris. In order to develop an air clean up system for radiation protection during a cutting core debris of the Fukushima Daiichi NPP as a process of their decommissioning, a high efficiency filters will be developed, such as a wet-type aerosol filter, a metal fiber filter and a silver zeolite.

**Keywords:** Decommissioning , Radiation protection, Multi-nuclide aerosol filters, Filtered venting system, Severe Accidents, Core debris, Silver Zeolite,

## 1. 緒論

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、作業員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。図 1 に多核種高除染性空気浄化システムの概念を示す。福島第一原子力発電所の取り出し工法は現在、検討中で、機械式切断や破砕する工法と、プラズマやレーザ加工による高温融解して切断する手法がある。更に格納容器内壁面には多量の放射性物質が付着していると考えられ、これを除染するために用いるドライアイス・プラスト除染などでは、多核種の粉塵やエアロゾルの発生が不可避である。本研究は、いずれの工法に対しても必要となる、作業員の被曝防護のための空気浄化システムである。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。

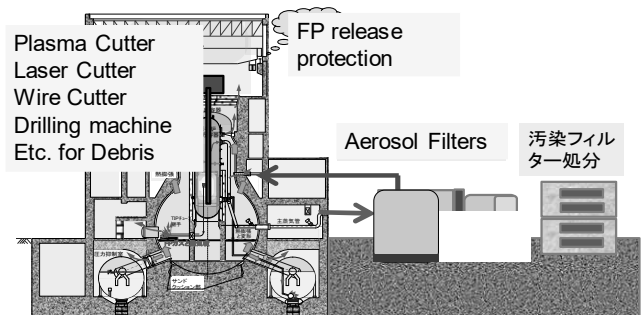


Fig.1 Concept of high decontamination air cleaning system.

図 2 に示す米国 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。



Fig.2 Decommissioning of Zion NPP

連絡先: 奈良林 直、〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目、北海道大学工学研究院 原子炉工学研究室、E-mail: tnaraba@eng.hokudai.ac.jp

### 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. 本研究の実施内容および成果

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3カ年の全体計画と平成27年度の研究成果を述べる。

#### (1) 高除染線性フィルターによる被曝低減技術

##### 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、高除染線性銀ゼオライト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。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



Fig.3 Wet-type filter

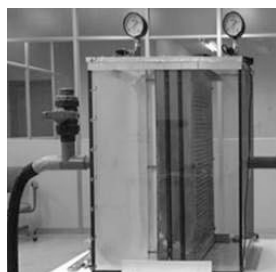
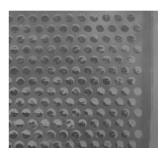


Fig.4 Dry-type filter



ューム(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図2の湿式フィルターや蒸気注入により表面凝縮式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、図4の乾式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り、除染係数DFの向上に向けた研究の糸口を見いだした。

#### ② 実験装置の仕様検討と実験装置の準備

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設計製作を実施した(図5)。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およ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。

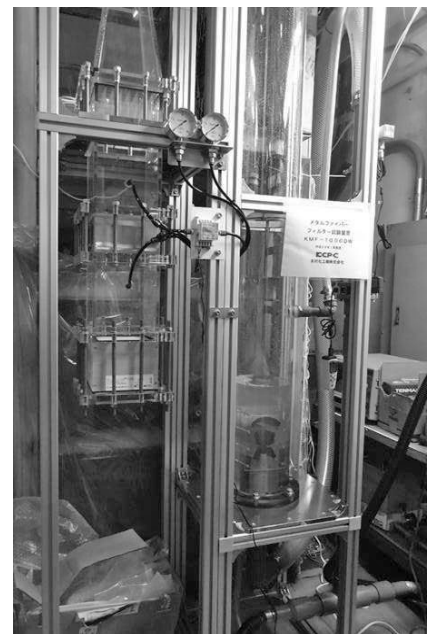


Fig.5 Test apparatus of filter system

#### (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した。図6は各種のゼオライトの分子

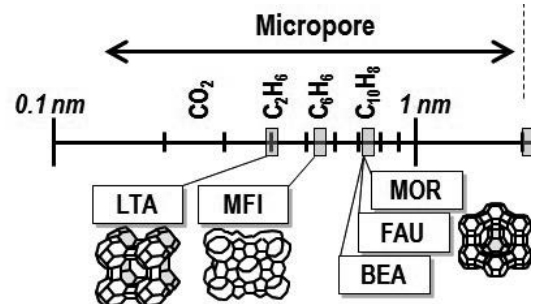


Fig. 6 Various types of Zeolite for sub-Nano sizes

サイズである。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 型ゼオライトを合成できた。さらに合成方法2を用いることで、マイクロ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。以上から、合成方法および合成溶液組成を変えることで異なる結晶サイズを有する MFI 型ゼオライトを合成できた。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 (図7, 図8)。

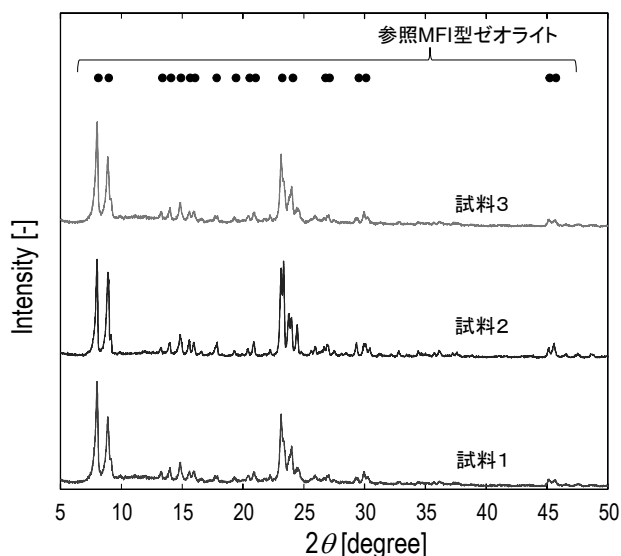


Fig. 7 Result of X-ray analysis for MFI type Zeolite.

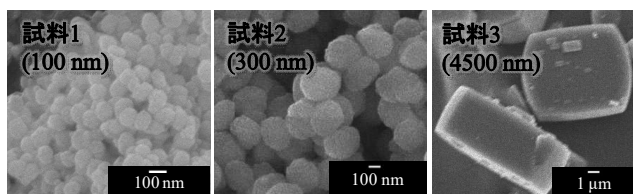


Fig. 8 Obtained FE-SEM image for MFI-Type Zeolite

### ② FAU 型ゼオライト (X 型、Y 型)

FAU 型ゼオライトの合成は、コロイダルシリカ (Si 源)、アルミン酸ナトリウム (Al 源)、NaOH および NaBr を混合した水溶液を調整し、388K、24 時間の水熱条件で合成した。得られた白色粉末は蒸留水で洗浄、乾燥した後、空气中 823K 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、形態については電子顕微鏡により確認した。

### 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

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 炭化水素およ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1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(図9)。

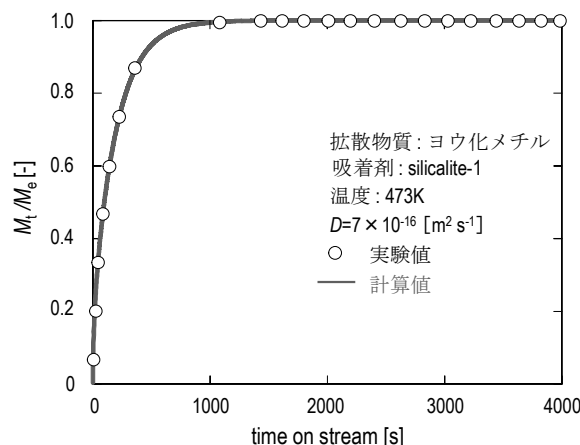


Fig. 9 Capture trends of organic iodine by diffusion

### (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

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、図10に示す、流量、温度、湿度が調整可能な実験装置を製作した。

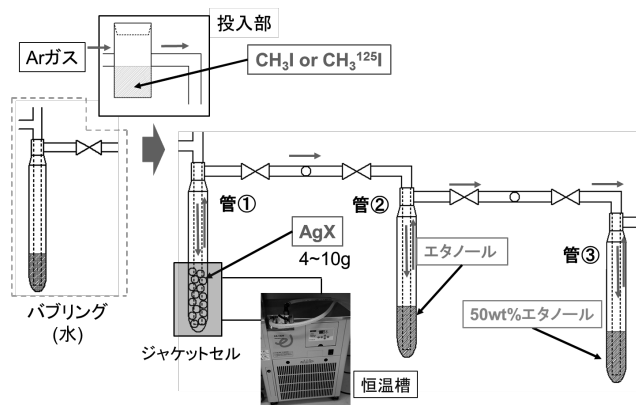


Fig. 10 Modified capture test apparatus for radioactive organic iodine

#### ② <sup>125</sup>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 <sup>125</sup>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<sup>125</sup>I と CH<sub>3</sub>I 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。

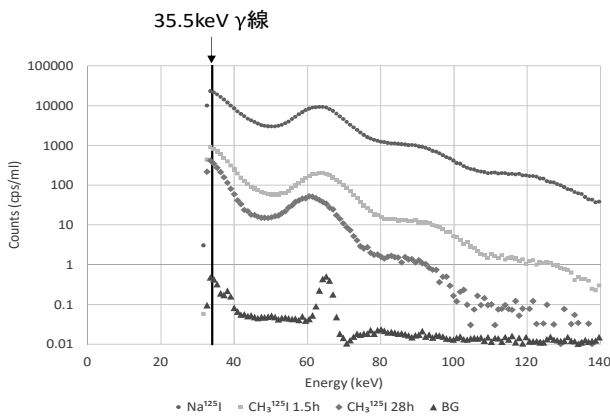


Fig. 11 Measured result of  $\gamma$ -ray spectrum for  $\text{CH}_3^{125}\text{I}$

#### (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った。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した。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した(図12)。

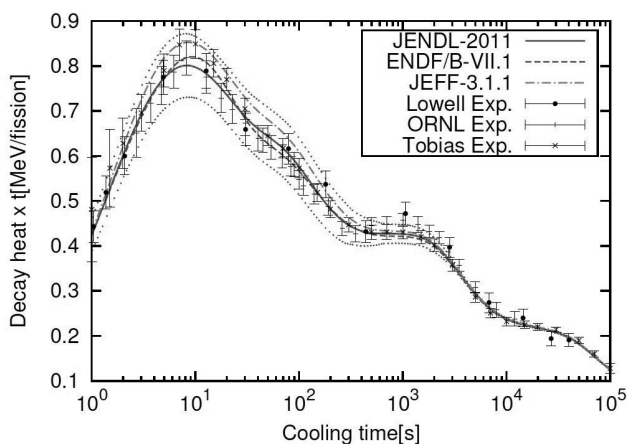


Fig. 12 Decay heat analysis results for U235 after fission pulse

溶融デブリが压力容器下部を溶融貫通して、格納容器下部のペダスタル部分に落下したと推定されている。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もとに、空気浄化システムとしての基本コンセプトの検討を行った。核種や化学的な形態などについての詳細な調査結果がウクライナの国立研究所から提供されていた。表1は、事故前の炉内

の燃料に蓄積されていた主な核種とその量(インベントリ)の一覧である。セシウムCsやセリウムCe、ロジウムRhが量としては多いことが分かる。

Table 1 Estimated radioactivity for major materials in Chernobyl

$\alpha$ 線	$\beta$ 線	$\beta$ ・ $\gamma$ 線
$^{238}\text{Pu}$ - $6.8 \cdot 10^6$	$^{90}\text{Sr}$ - $1.2 \cdot 10^9$	$^{106}\text{Rh}$ - $4.5 \cdot 10^9$
$^{239}\text{Pu}$ - $5.0 \cdot 10^6$	$^{90}\text{Y}$ - $1.2 \cdot 10^9$	$^{125}\text{Sb}$ - $7.8 \cdot 10^7$
$^{240}\text{Pu}$ - $8.2 \cdot 10^6$	$^{106}\text{Ru}$ - $4.5 \cdot 10^9$	$^{134}\text{Cs}$ - $8.9 \cdot 10^8$
$^{241}\text{Pu}$ - $2.3 \cdot 10^4$	$^{147}\text{Pm}$ - $3.8 \cdot 10^9$	$^{137}\text{Cs}$ - $1.4 \cdot 10^9$
$^{242}\text{Pu}$ - $1.3 \cdot 10^4$	$^{241}\text{Pu}$ - $9.6 \cdot 10^8$	$^{144}\text{Ce}$ - $2.1 \cdot 10^{10}$
$^{241}\text{Am}$ - $8.7 \cdot 10^5$		$^{154}\text{Eu}$ - $7.2 \cdot 10^7$
$^{243}\text{Am}$ - $5.1 \cdot 10^4$		$^{155}\text{Eu}$ - $6.0 \cdot 10^7$
$^{244}\text{Cm}$ - $2.2 \cdot 10^6$		
$^{242}\text{Cm}$ - $8.95 \cdot 10^7$		
合計 $\approx 3.98 \cdot 10^{10}$ ベクレル/ウラングラム		

さらに、チェルノブイリ原子力発電所の近隣にある放射性廃棄物埋設所「ブリャコフカ」の調査を行った。放射性廃棄物埋設所は図13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、長さ155.2m、幅88.0m、高さ9.7m。部粘土防水遮蔽板の厚さは1.5m、下部粘土濾過防止遮蔽板は1.0m、塹壕一つあたりの設計容量は、20,000~25,000 $\text{m}^3$ である。

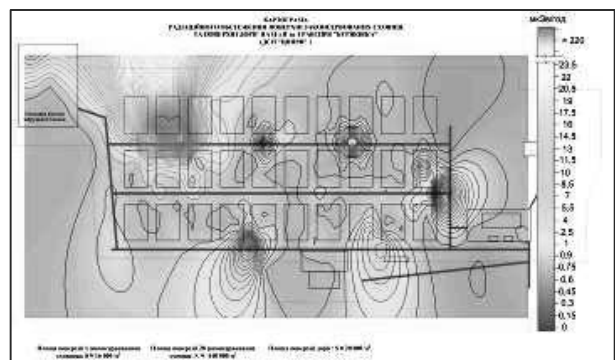


Fig. 13 Radioactive disposal Center in Chernobyl

#### 5. 期待される効果とスケジュール

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、平成29年度までの3年間で実施予定である。本研究は文部科学省「英知を結集した原子力科学技術人材育成推進事業」の採択テーマとして実施中である。

#### 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) 奈良林直、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ボパスト化、第20回動力エネルギーシンポジウム、B211,(2015)。