

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 (2) メタルファイバーフィルターの除染係数測定

Development of a high efficiency multi-nuclide aerosol filters for radiation protection during a process of cutting core debris (2) Measurement of DF for Metal Fiber Filter

北海道大学	奈良林 直	Tadashi NARABAYASHI	Member
北海道大学	石井 亮憲	Akinori ISHII	
北海道大学	千葉 豪	Go CHIBA	
北海道大学	山本 泰功	Yasunori YAMAMOTO	Member
東北大学	佐藤 修彰	Nobuaki SATO	
北海道大学	増田 隆夫	Takao MASUDA	

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. High efficiency multi-nuclide aerosol filters for radiation protection during a process of cutting core debris has been developing 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, a metal fiber filter test was conducted. Measured DF were analyzed using FE-SEM and particle diameter analyzer was used to breakdown DF for each diameter range, It is possible to develop the high efficiency filters by mulch layer filters. Final filter system will be consisted, such as a wet-type aerosol filter, multi-stage metal fiber filters and a silver zeolite to remove organic iodine.

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。福島第一原子力発電所の取り出し工法は現在、検討中で、機械式切断や破碎する工法と、プラズマやレーザー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・ブ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。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。しかし、福島第一原子力発電所の廃炉作業では、遠隔加工が容易なレーザー切断工法もオプションとして残すべきと考える。本研究は、いずれの工法に対しても必要となる、空気浄化システムであり、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作業員の被曝低減と周辺地域への放射性物質の飛散防止に貢献することを目的とする。

2. 多核種高除染性空気浄化システムの概要

福島第一原子力発電所の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。本研究では、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の塵を吸引し、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行う。

2.1 高除染線性フィルターによる被曝低減

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(Fig.1)と、メタルファイバーフィルター(Fig.2)、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。

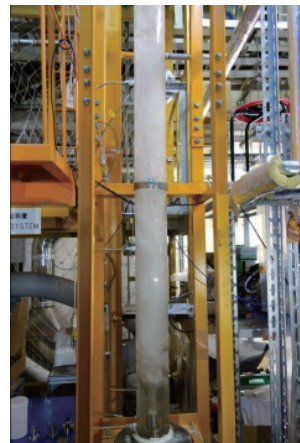


Fig.1 Wet-type filter

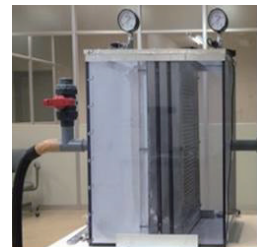


Fig.2 Dry-type filter and element

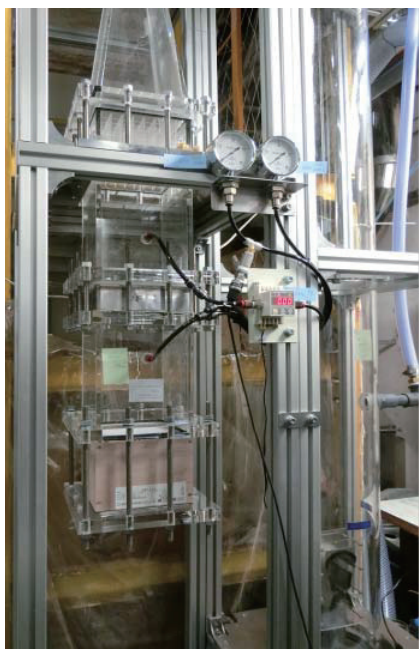


Fig.3 Test apparatus of filter system

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、Fig.3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。

2.2 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 炭化水素およびヨウ化メチルの拡散係数を実測した。Fig.4 に示す各種のゼオライトのなかから、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。

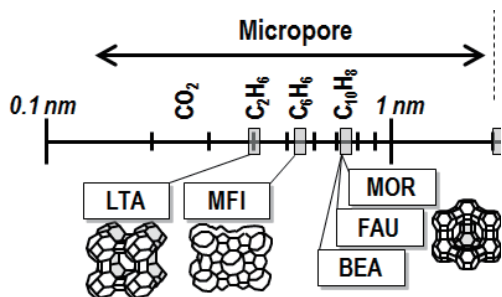


Fig.4 Various types of zeolite

2.3 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、流量、温度、湿度が調整可能な実験装置を製作した。

(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 (東北大学)

本研究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。

2.4 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。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。

3. メタルファイバーフィルターの DF 測定

3.1 試験装置および DF 測定法

フィルターの放射性物質の捕捉性能を測定するための装置を図 6 に示す。送風機から空気を吸引し、スクラビングプール内にスクラビングノズルから噴射する。水溶性の塵やエアロゾルなどはこのスクラビングプールで除去され、次いで湿文分離器 (セパレータ) で水滴を除去して、メタルファイバー (金属繊維) フィルターにディフューザーと整流格子を介して均一な下降流として流下する。メタルファイバーフィルターで模擬微粒子を濾しとられた空気は、最終段の HEPA フィルターに流入する。放射性物質のエアロゾルや数十ナノサイズのヒュームの模擬物質は最小粒径が 60nm の硫酸バリウムを用いた。メタルファイバー (MF) はステンレス箔を切削して制作した 30 μm 、50 μm 、70 μm の 3 種類の線径のもの、同じくステンレスを引抜加工により数 μm の極細径化した綿状フィルター (WF) と、それを焼結した板状フィルター (NF) の 3 種類を用いた。MF フィルターについては、空間に占めるステンレスファイバーの体積率 (充填率) をパラメータとして試験を実施した。充填率は 2.5%、3.0%、3.5% の 3 通りとした。メタル試験では硫酸バリウ

ムを 25g ずつ微粒子連続供給装置（シートフィーダー）で一定時間をかけて投入し、それを4回繰り返し、計 100g まで投入する間の各部の圧力・差圧・流速・温度等を測定した。Fig.6 に試験結果を示す。除染係数 DF は、硫酸バリウム投入量 100g を HEPA フィルターで補足した硫酸バリウムの質量で除した値である。

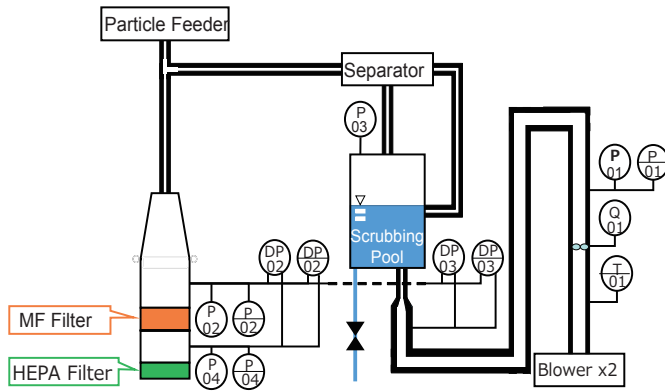


Fig.5 Experimental equipment for Dry-type filter

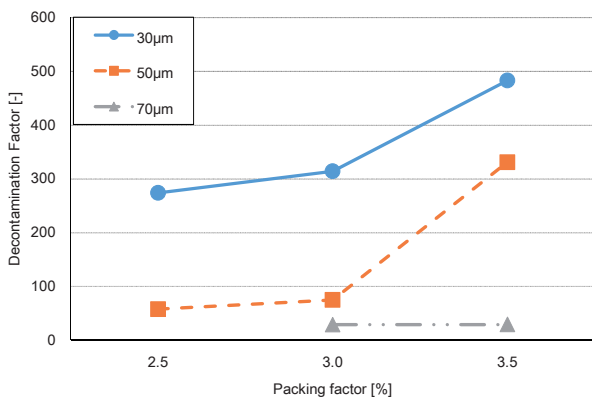


Fig.6 Test results of DF using MF filter

3.2 試験結果

Fig.7 に線径毎に充填率を変えて得られた試験結果を示す。縦軸は除染係数 DF で、線径 70µm のメタルファイバーフィルタ(MF)については充填率が 3.5%と 3%で DF が約 30 程度低い。線径が 30µm、50µm の DF は充填率を上げるに従って高くなった。なお、3.5%を超える充填率は MF フィルターが硬いため押し付ける力が上昇し、フィルターエレメントの組み立てが困難であったので、この充填率が上限である。MF フィルターは最初 (Original) は、円筒状にまるめて充填したが、間に隙間ができてしまうためか、DF の上限は約 500 であった。さらに、ファイバーをシート状に伸ばしてから敷き詰めるように充填すると、Fig.7 に示すように、DF が上昇して約 700 まで上昇することを確認した。これは、メタルファイバーフィルタ (MF) が均一に、隙間なく充填可能になったためと考えられる。

3.3 電子顕微鏡撮影による吸着性能の分析

Fig.8 に電子顕微鏡 (FE-SEM) で測定した 130 倍と 3 万倍の画像を示す。この MF フィルターと通過前と通過後の

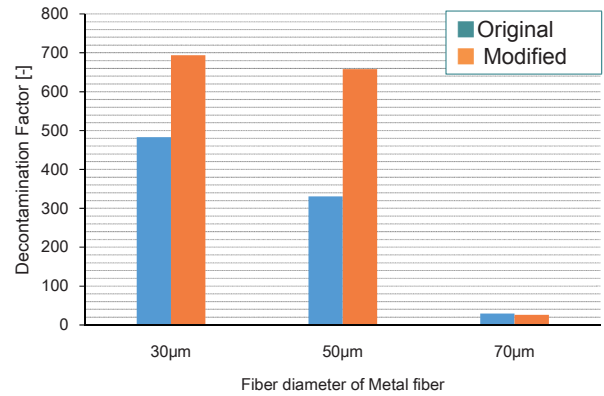


Fig.7 Improvement of DF by modified MF filter

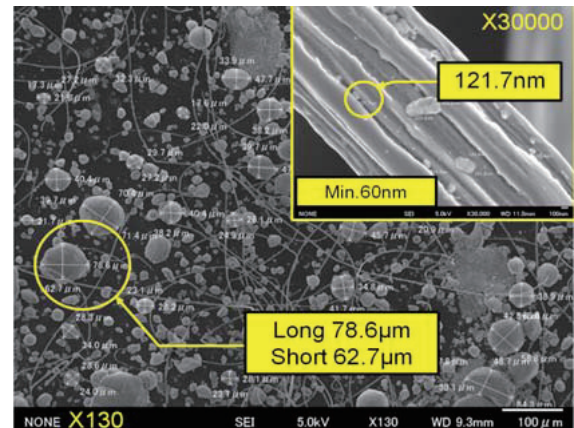
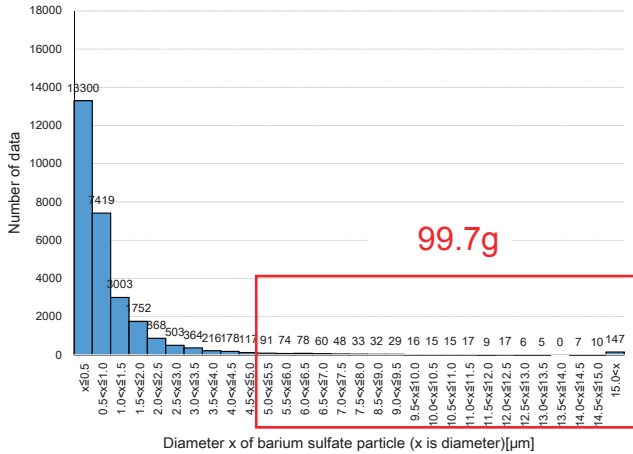
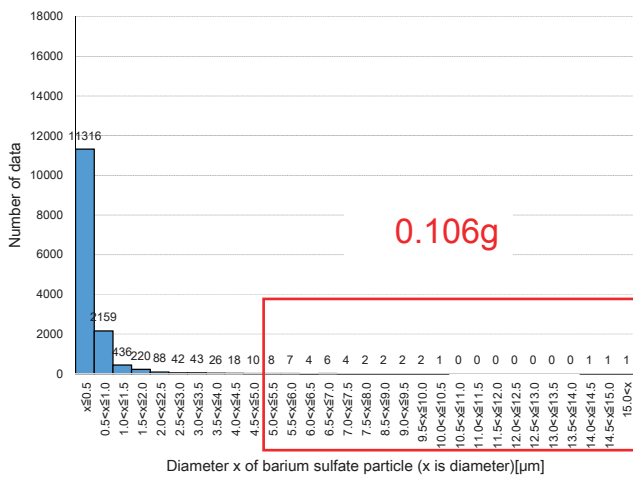


Fig.8 Fiber and particles photograph taken by FE-SEM

HEPA フィルターで捕捉した FE-SEM 画像を、粒径分布解析ソフトを用いて 50µm 毎の粒径範囲にある粒子数を求めて表示したヒストグラムを Fig.9 の(a)(b)に示す。両図の比較から分かることは、5.0µm 以上の比較的粗い粒子径の場合は、大部分の粒子が捕捉され、DF が 1000 くらいにあるが、0.5µm 以下のサイズの粒子は、MF フィルターをほぼ通過してしまうことが分かる。ただし、0.5µm 以下の粒子は、粒子径が小さいため、剛体球近似した場合の 1 粒当たりの質量も小さい。Fig.9(b) の 0.5 µm (500nm)以下の粒子は 11316 個あるので、質量に換算すると Fig.10 に示すように、0.144g 中 $1.22 \times 10^{-3} \text{g}$ (1.22mg)となり、トータル DF 上は、ほとんど誤差の範囲であるが、例え微量であっても、体内被曝を防止するためには、更に DF を上げる必要がある。このためには、メタルファイバーフィルタを多段にして、第 1 段のフィルタは DF が小さくても、目詰まりしない MF を、第 2 段以降でより粒子径の小さい粒子を捕捉する、線径 10µm の綿状フィルタ WF などを組み合わせて更なる高性能化を図る方針である。また、ヒュームの凝集による大粒化が必要である。



(a) Particle distribution before MF filter



(b) Particle distribution before MF filter

Fig.9 DF breakdown of each particle sizes

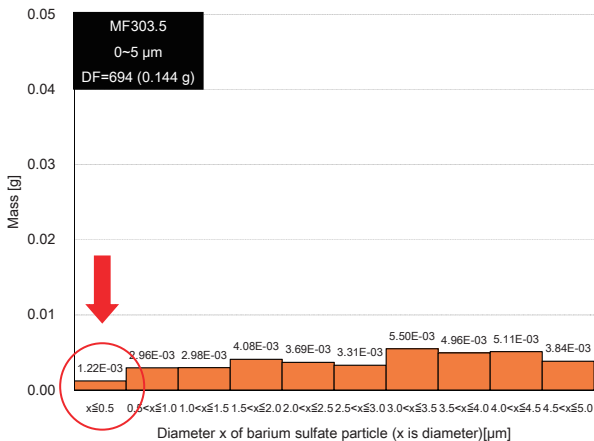


Fig.10 Mass distribution of each particle sizes group

3.4 加湿によるヒューム粒子の凝集による DF 向上

数十 nm のヒュームをフィルター捕捉するために、Fig.11 に示すように、霧上のミストや蒸気を注入して、湿度を上げるヒュームの凝集試験を実施した。試験結果の SEM 画像を Fig.12 に示すが、蒸気凝縮に伴う数十 nm の粒子が凝集して、大粒径化している様子が確認できた。ヒュームを除去することが可

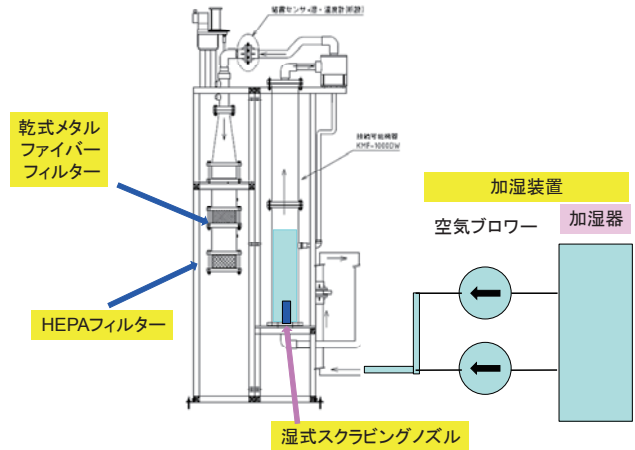


Fig.11 Mist and steam injection system for the high efficiency multi-nuclide aerosol filters.

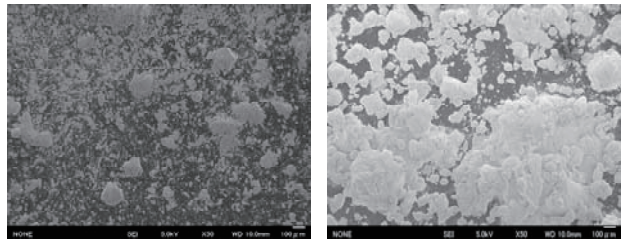


Fig.12 Test result of particle coherent phenomena on a filter by mist and steam injection.

可能となった。

4. 結言

多核種高除染性空気浄化システムの全体概要と、乾式フィルターである、メタルファイバーフィルター (MF) の充填率をパラメータとした DF 測定試験を行い、ファイバー径や充填率による DF 向上を確認した。さらに、FE-SEM 画像による粒子径画像解析により、MF フィルターの硫酸バリウムの粒径分布毎の DF を測定可能とした。これにより、金属ファイバーに加え、WF フィルターなどを重ねて多段フィルターとすることで、目詰まりしにくく、DF も高いフィルターの構成が可能であると考えられる。また、ヒュームを蒸気凝集により大粒径化できることも確認した。本システムの導入により、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と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事が期待される。平成 30 年には福島第一の初号機の取り出し工法を決定することから、平成 29 年度までの 3 年間で研究を纏める。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研究実施中である。

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バ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) 奈良林ら、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、保全学会学術講演会、I-2-24、(2016)。