

銀ゼオライトによる放射性物質除去システムの高度化

(3) 移動式空気浄化システムの開発

Advanced Radioactive Material Removal System by Silver Zeolite
(3) Development of mobile air purification system

木村化工機	川原 康博	Yasuhiro KAWAHARA	Member
東京工大	奈良林 直	Tadashi NARABAYASHI	Member
ラサ工業	遠藤 好司	Koji ENDO	Member
森村商事	小林 三四郎	Sanshiro KOBAYASHI	Non-member

"Advancement radioactive material removal system by silver zeolite" was adopted in the 2020 fiscal year as a project "nuclear-power-industry base strengthening enterprise" of the Ministry of Economy, Trade and Industry. We propose developed FCVS, air purification system, and rare gas adsorption system to in and outside the country.

Keywords: Preventive maintenance, AgX, AgR, XeA, Silver Zeolite, FCVS, Radioactive iodine, Adsorbent, SGTS, Annulus, Severe accident

1. 緒言

原子力施設向け空気浄化システムは、従来から HEPA フィルタと活性炭を用いた技術があった。福島事故においては、これらの技術を用いた非常用ガス処理システム：SGTS (Standby Gas Treatment System) の作動のために空気駆動弁 (AO 弁) が開き、ハードベント (圧力抑制プールからの耐圧ベント) ができないトラブルが発生した。また、多数の弁が存在するため手動での作業ができず 4 号機では水素を含む汚染気体が 3 号機から逆流し、水素爆発を発生させた。[1]

このような事故を想定した場合、高温、高圧、高湿の条件と水素ガスが含有されることなどの制約で、従来の技術を使用することは難しいと考えられる。そこで、フィルタベントシステム：FCVS (Filtered Containment Venting System) で確立されたメタルファイバ技術、銀ゼオライト技術、スクラビング技術などを利用することで、より広範囲の条件で使用可能な空気浄化システムが期待される。

従来の活性炭を用いた空気浄化システムでは、HEPA フィルタ (High Efficiency Particulate Air Filter) で $0.3 \mu\text{m}$

以上の粒子状物質を除去し、KI 炭、TEDA 炭、もしくは、KI・TEDA 混合炭で放射性の無機ヨウ素や有機ヨウ素を除去するものであったが、HEPA フィルタ、活性炭ともに高温での使用が困難である。また、活性炭は可燃性であり水分も物理吸着してしまうことから、早期の交換が必要となる場合があり、乾燥設備の設置も必須であった。

これを FCVS で確認されたメタルファイバや銀ゼオライト (AgX・AgR など) を用いることで、不燃化と高温対応が可能となる。さらに銀ゼオライトでは、ゼオライトという構造から選択的な吸着が可能となり、高湿度という条件下でも吸着性能が高いことが確認されている。また、FCVS では、スクラビング技術を用いて放射性物質の除染係数 (DF) を大きく向上させることに成功している。

さらに、空気浄化システムの堅牢化と小型化を図り移動式にすることによって、事故時に緊急避難場所や汚染度が高い場所に移動して清浄な空気を供給するにより、周辺住民や放射線作業従事者の被ばくを低減することが可能となる。

これらの技術を応用することで、緊急避難場所、緊急時対策所での利用や福島廃炉用空気浄化システムとしての利用、さらには、再処理施設向け用途など多岐に亘って利用されることが期待される。これらの技術の開発状況について報告する。

2. メタルファイバフィルタ

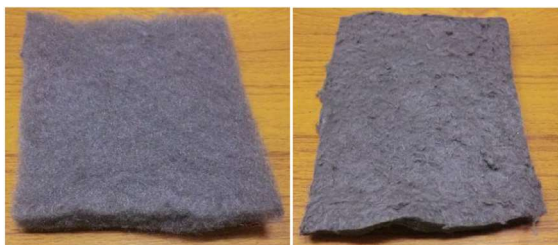
2.1 メタルファイバフィルタとは

従来技術のHEPA フィルタは、極細のガラス繊維を容器に充てんし、固体粒子を除去するフィルタである。メタルファイバフィルタは、このガラス繊維の代わりにステンレス製の極細繊維を採用するものである。

ガラス繊維の場合、形状を保つための補強材や隙間が生じないようにするための接着材等が必要な場合があり、これらの補助材料の耐火性・耐熱性に制約がある。一部の製品では耐熱性を高めたHEPA フィルタも製品化されているが、素材そのものがガラスであるため金属と比較して本質的な安全性は劣ると言わざるを得ない。

一方、メタルファイバフィルタはステンレス製容器にステンレス製繊維を充てんする構造であり、すべての材料がステンレス製であるため、従来品に比較して耐火性・耐熱性が格段に向上している。このメタルファイバ技術は、これまで欧州の限られた企業でのみ実現されていたが、国内材料メーカーとの提携によってHEPA フィルタ以上の性能が実現できることを確認している。

図1に、ファイバー径が $8\mu\text{m}$ 及び $2\mu\text{m}$ のウェブ状ステンレス繊維の写真を示す。



ファイバー径： $8\mu\text{m}$ ファイバー径： $2\mu\text{m}$

図1 ステンレス製繊維写真（ウェブ状）

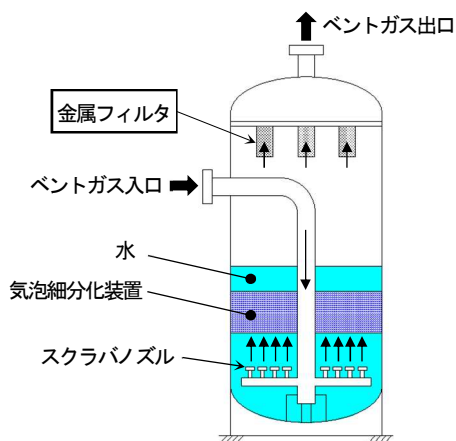


図2 柏崎刈羽原子力発電所のFCVSの概略構造図

また、ステンレス製繊維は焼結処理を行うことによりシート状に加工できるため、種々の形状のフィルタとすることも可能である。一例としてシートをプリーツ状とし円筒容器に収納した金属フィルタは、柏崎刈羽原子力発電所向けFCVSに採用されている。

柏崎刈羽原子力発電所のFCVSの構造図を図2に示す。

2.2 メタルファイバフィルタの性能

メタルファイバフィルタとしての種々の性能試験が実施されている。図3に、メタルファイバフィルタに捕捉されたエアロゾル模擬粒子 (BaSO_4) の電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) 画像を示す。[2] 最大粒径は、約 1mm 、最小粒径は数十 nm でメタルファイバにトラップされている。SEM画像の倍率を上げると外径約 $2\mu\text{m}$ のメタルファイバには無数の溝があり、数十 nm のナノ粒子がこのファイバの溝にトラップされていることがわかる。

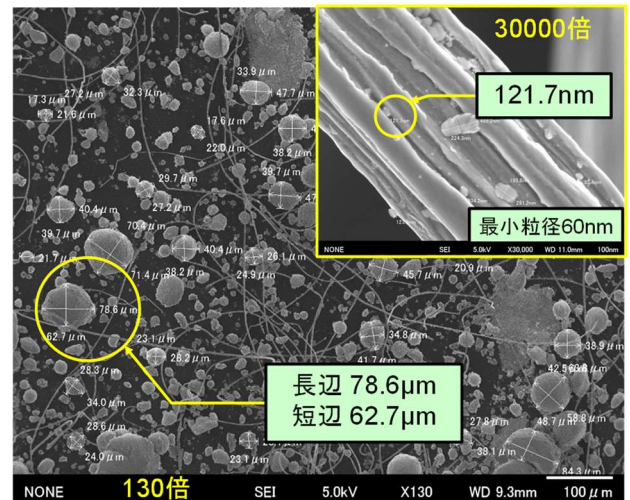


図3 メタルファイバフィルタに捕捉された粒子

HEPA フィルタでは想定粒子径 $0.3\mu\text{m}$ のフィルタが用いられるが、一挙に放射性物質が詰まることにより、圧損が高まりフィルタとして機能しないこととなるが、除去すべき物質の粒子径に合わせた多層のメタルファイバを採用することにより、圧損の上昇を緩和することができる。

第一報で紹介したように、放射性固体粒子を BaSO_4 で模擬した試験ではDF63,900が確認できている。[3] 性能予測は、フィルタ通過後の粒子分布測定に基づくi番目の代表粒子径ごとに次式で計算される質量の総和を求

め、出口質量を予測し、除染係数 DF の計算を行った。CF_i は、i 番目の粒径範囲のなかで粒径から剛体球を仮定して、FE-SEM の画像解析から得られた粒子数の個数から計算される透過質量 m_{Oi} を投入粒子の質量 m_{Ii} で除して得られた物理吸着係数である。

$$CF_i = \left(\frac{m_{O_i}}{m_{I_i}}\right) \quad (1)$$

$$M_O = \sum(CF_i * m_{I_i}) \quad (2)$$

$$(CF_i)_j = (CF_i)_1 * (CF_i)_2 * \dots * (CF_i)_j \quad (3)$$

$$DF = M_I / M_O \quad (4)$$

ここで、CF_i は i 番目の粒径範囲における CF を表す。m_{Oi} と m_{Ii} は通過粒子と投入粒子の i 番目の粒径範囲での質量を表し、M_O と M_I はその総質量を表す。(CF_i)_j は j 個のフィルタでの複合フィルタでの i 番目の粒径範囲での CF である。

図4に示すように、実機で使用する際には、使用後に放射性粒子を含んだフィルタを処理しなければならないことを考えると、用いるフィルタ質量は少なくすることが求められる。そのため、最も高い DF 値を記録した多層複合フィルタを基準として、最終的に高い DF 値と用いるフィルタ質量も少ない、両方の条件を満たす多層フィルタを選定した。

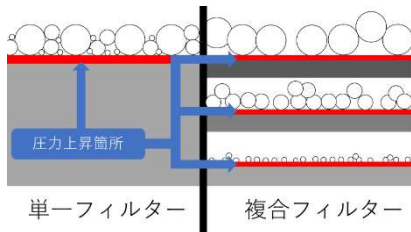


図4 多層複合フィルタのメリット説明図

綿状 (WF) の WEB タイプのフィルタを用いる場合は、以下の(5)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装着治具内に図6のようにフィルタを挿入し、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5の模式図のとおり、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 の重量を高精度の電子天秤を用いて測定し、密度から算出した。

$$(\text{充填率}) = \frac{(\text{WF の体積})}{(\text{治具内部の体積})} \times 100 [\%] \quad (5)$$

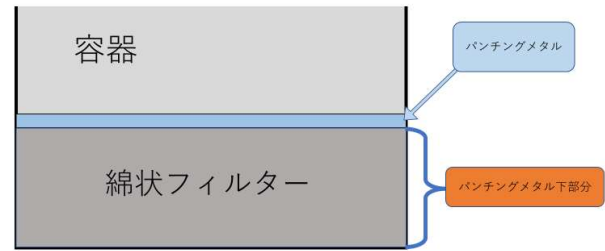


図5 装着治具にメタルファイバフィルタ挿入時の断面模式図



図6 多層複合フィルタを挿入したフィルタ治具外観

各実験は硫酸バリウムを 25g ずつ投入していき、フィルタ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。フィルタ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、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、フィルタを通過した粒子は出口に設置した HEPA フィルタに堆積するため、HEPA フィルタの質量の変化から通過した硫酸バリウム質量を測定し、粒径範囲毎に吸着係数を求め、画像処理に依って得られた粒径を剛体球近似して得られた各粒径範囲の吸着係数から求める除染係数 DF の予測と多層フィルタを通過して出てくる実測値の DF との比較を図7と表1に示す。

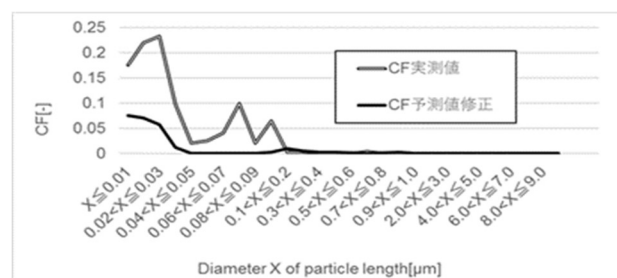


図7 CF の実測値と予測値の比較

表 1 各粒径範囲毎の吸着係数から求める通過質量

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

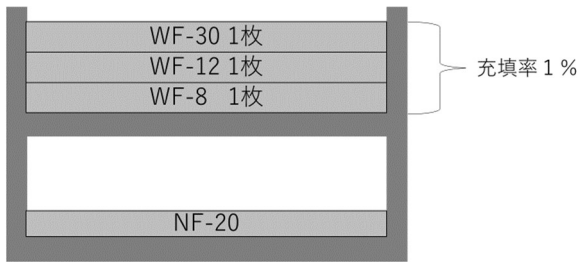


図8 選定した多層複合フィルタの構成

損失係数 ζ について、図9の概念図に基づいて説明する。図中のフィルタ前後の圧力差を ΔP とした。本実験では、送風機直後の箇所風速、温度を測定した。

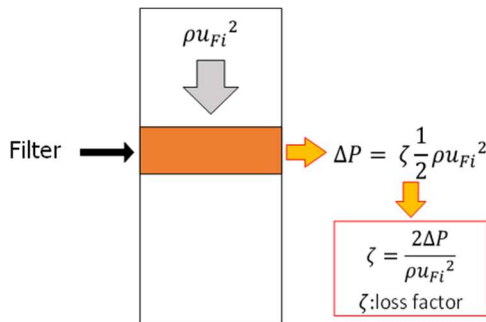


図9 損失係数 ζ の算出方法

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、フィルタ入り口の風速を 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となるので、 u_{Fi} は式(7)から計算することができる。

$$\rho u_i A_i = \rho u_{Fi} A_{Fi} \text{ [kg/s]} \quad (6)$$

$$u_{Fi} = \frac{A_i}{A_{Fi}} u_i \text{ [m/s]} \quad (7)$$

また、温度0度、大気圧での空気密度は、1.293kg/m³である。本実験では送風機直後時点での温度 t (°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 は式(8)で補正した。

$$\rho = \frac{(P01 + 101.3)}{101.3} \times \frac{273.2}{273.2 + t} \times 1.293 \quad (8)$$

フィルタ前後に生じる圧力損失を ζ とすれば、

$$\zeta = \frac{2\Delta P}{\rho u_{Fi}^2} \text{ [-]} \quad (9)$$

となる。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、フィルタの目詰まりを評価する際の指標として用いることを検討する。ブロウの送風流量に依存しない。

焼結タイプのメタルファイバフィルタ(NF-2)の差圧DP02の時間変化は図10のようになった。測定開始直後からDP02が12kPaを上回っており、目詰まりが非常に早いことがわかる。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11のようになった。NF-2と比べて、差圧上昇が緩やかになっていることがわかる。

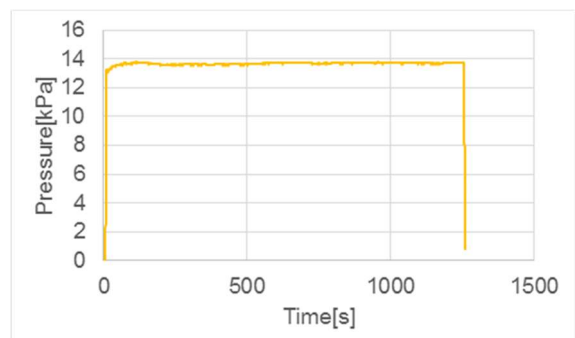


図10 NF-2のDP02の時間変化(硫酸バリウム0~25g投入)

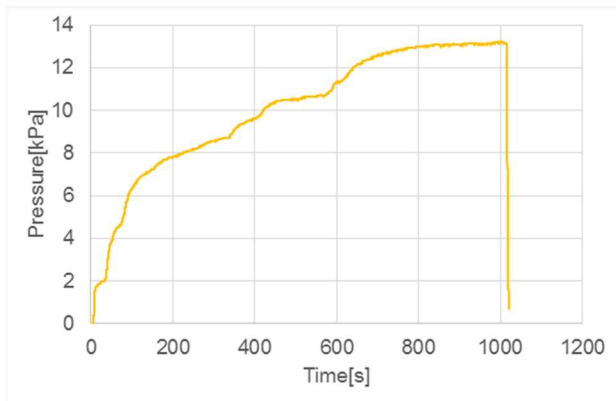


図 11 NF-20 の DP02 時間変化 (硫酸バリウム 0~25g 投下)

このときの各 DF は、NF-2 が 3,590、NF-20 が 12,500 となった。

また、メタルファイバフィルタは前述のとおり既存 FCVS でも採用されていることから分かるのとおり、十分な除去性能を確保している。今後は汎用性を高めるため、空気浄化システムについては既存 HEPA フィルタと多層複合フィルタの目詰りや耐久性、コストの比較を行い、型番製品化を目指す。

3. 銀ゼオライト

3.1 銀ゼオライトとは

KI 炭や TEDA 炭に代表されるヨウ素吸着用活性炭では、母材である活性炭で物理吸着し、さらに添着させた化学物質でヨウ素を吸着させる構造となっている。母材の活性炭はヨウ素以外の物質も吸着するため水分子を含む妨害物質による影響が否定できない。また、活性炭は可燃性の高い物質であるため、火災事故等に関して特別な配慮が必要となる。

これに対して銀ゼオライトでは、ヨウ素原子を想定したゼオライト構造を構築し、さらに銀により気体状の無機ヨウ素と有機ヨウ素を固体状のヨウ化銀に化学反応させて吸着するため、安定性・除去性・堅牢性等の優れた特長を持つ。すなわち、ヨウ素吸着に関しては活性炭よりも格段の高い性能を保有している。

さらにゼオライトも銀も不燃性であるため、火災事故等の配慮を行う必要はなく耐火性の向上に貢献できる。

3.2 銀ゼオライトの性能

銀ゼオライトも種々の性能試験が実施されている。特に高温でも低温でも優れた吸着性能が維持できる点や、

高湿度環境においても活性炭のように大きく性能が劣化しない点が注目される。

表 2 に、銀ゼオライト (AgX) の性能評価例として、過熱蒸気温度における有機ヨウ素化合物 (CH₃I) の吸着効率の依存性を示す。

表 2 銀ゼオライト 1 (AgX) の性能評価例

Dependences of absorption efficiency of CH₃I on the temperature of superheated steam

Bed depth (mm)	Residence time (sec.)	Absorption efficiency (%)				
		99°C DPD* 0 K	101°C DPD* 2 K	104°C DPD* 5 K	109°C DPD* 10 K	114°C DPD* 15 K
50.8	0.16	99.860	99.922	99.913	99.964	99.990
76.2	0.24	99.988	99.995	99.974	99.990	99.998
101.6	0.32	99.997	99.999	99.989	99.999	99.999

*DPD : Dew Point Distance (露点温度差)

4. スクラバ

4.1 スクラバとは

スクラバは、湿式の FCVS に用いられる技術である。原子炉のベントガスは、FCVS のスクラバを通過して、スクラビングプールに流入する。ベントガスがスクラバノズルを通過する際に発生する吸引力により、スクラビング水がベントガスに取り込まれる。その際のスクラビング水の水粒子とベントガスとの大きな流速差により、エアロゾルの大部分がスクラビング水に捕捉される。[4]

4.2 スクラバの性能

実機 FCVS のスクラバとしても作動する、低圧損のステンレス製堅牢型スクラバの設計・製作を行った。

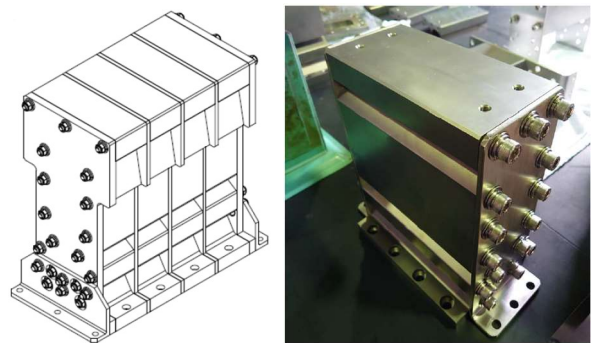


図 12 スクラバの外観

図 12 にスクラバの外観を示す。多核種高除染性空気浄化システムで開発された高性能スクラビング技術により、空気浄化システムの高度化が可能となっている。

5. 空気浄化システムのモバイル化

空気浄化システムでは、高性能な要素技術を採用し小型化が可能であり、移動式にすることによって、事故時に緊急避難場所や汚染度が高い場所に移動して清浄な空気を供給することにより、周辺住民や放射線作業従事者の被ばくを低減することが可能となる。前述のようなメタルファイバ技術、銀ゼオライト技術、スクラビング技術などを導入することにより、空気浄化システムのモバイル化を図った。図13に、移動式空気浄化システムの概略系統図を示す。

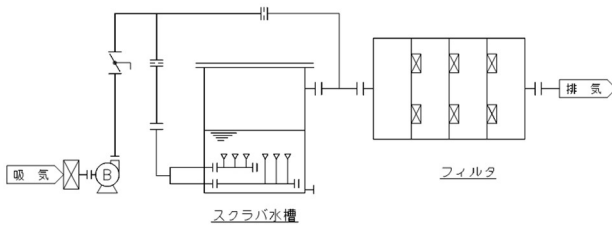


図13 移動式空気浄化システムの概略系統図

移動式空気浄化システムは、おもにブロワ、スクラバ水槽、フィルタから構成される。

本システムは2,400 m³/h の性能を有しており、事故時における体育館等の緊急避難場所の容量の空気を浄化することが可能である。スクラバ水槽には、6基のスクラバを内装しており固体粒子や水溶性の有害気体の除去を行う。フィルタユニットの内部には、6基のフィルタを装着することが可能であり、メタルファイバフィルタ、銀ゼオライト、HEPA フィルタなどを用途に応じて組み合わせ使用することが可能となっている。



図14 プロトタイプ (移動式空気浄化システム) の写真

図14に、2020年度に製作した移動式空気浄化システムのプロトタイプの写真を示す。このプロトタイプは、大型トレーラに搭載するため、九州で最終組み立てを実施し作動試験を行った後、約1,500km離れた東北地方の試験場所まで陸送し、システムが問題なく作動することを確認した。また、種々の試験を実施し、メタルファイバ、銀ゼオライト、スクラバの性能について確認を行った。以上により、空気浄化システムのモバイル性能の確認を実施した。

6. 結言

前述のとおり、既存の原子力施設向け空気浄化システムと同等以上の性能を有し、かつ耐火性に優れた安全性の高いシステムの提案が可能となった。

また、空気浄化システムの小型化を図り移動式が可能になることを実証することができた。このシステムにより、事故時に周辺住民や放射線業務従事者の被ばくを低減することが可能となる。

今後はさらに試験データや評価結果を蓄積し、認知度・汎用性の高いシステムを提案し、原子力施設の安全性向上の一助となることを目指す。

参考文献

- [1] Tadashi Narabayashi, “Fukushima Nuclear Power Plant Accident and Thereafter”, Energy Technology Roadmap of Japan, Springer Japan, 2016, pp.66-67.
- [2] 奈良林直ほか、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) メタルファイバフィルター吸着メカニズムと除染係数の関係、日本原子力学会、(2017)。
- [3] 奈良林直ほか、“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」”、国立大学法人北海道大学、(2018.3)。
- [4] 日本機械学会編、奈良林直監修、“フィルタベント—原子力安全の切り札を徹底解説—”、(2018.8)。