技術報告

280. 新型転換炉ふげん発電所における 系統化学除染技術の開発と経験, (II) 系統化学除染の結果

直井 洋介^{*1}, 北端 琢也^{*2}, 川崎 昇^{*3},
中村 孝久^{*2}, 古川 清治^{*2,†}, 大久保 成史郎^{*1,††}

Development and Experience of Full System Decontamination for the Fugen Nuclear Power Station, (II) Results of Full System Decontamination

By Yohsuke NAOI, Takuya KITABATA,
Noboru KAWASAKI, Takahisa NAKAMURA,
Kiyoharu FURUKAWA and Seishiro OHKUBO

In 1989 and 1991, the Japanese first and second campaigns of full system decontamination were performed successfully in each loop of two independent core cooling systems of FUGEN as an operating nuclear power station. Dilute chelate reagent, Kuridecon-203(KD-203) was used in 0.1% from 0.05% for the decontaminations at 120°C for 24h. "Purifying decontamination" method, in which injection of reagent and purification of decontaminant are carried out simultaneously, was applied to control KD-203 concentration low and to restrain dose rate of the system during the decontaminations. 6.6 and 7.8man-Sv were saved and 7 to 8TBq of ⁶⁰Co were removed through the decontaminations. No negative influence for materials composed of the cooling circuits was observed in the visual inspection and *in-situ* materials tests carried out during the decontaminations. There is no incident derived from the campaigns for more than five year's operation. Dose rate of the primary cooling system has not reached to the pre-decontamination level yet after four year's operation.

KEYWORDS: *Fugen atr, full system decontamination, chelate reagents, Co 60, dose reduction radioactivity, materials integrity, decontamination factors, recontamination, purifying decontamination, inhibitors, reactor materials*

I. 緒 言

原子力発電所における被曝低減技術としての供用中の系統化学除染(以下「系統除染」)は、「ふげん」と同様な圧力管型炉であるカナダの CANDU 炉, 英国の沸騰水重水炉 (SGHWR: Steam Generating Heavy Water Reactor) において, すでに1970年代に実機への適用が図られている⁽¹⁾⁽²⁾。一方, 我が国の BWR や PWR においては, 低コバルト材の採用, 遮蔽の追設ならびに原子炉冷却材の水質制御等による被曝低減対策が1980年代に順次検討, 適用されて成果を上げ^{(3)~(5)}, 系統除染の適用はほとんど図られなかった。

国際放射線防護委員会(ICRP)の Publication 60 で, 放射線作業員に対する線量当量限度の勧告値がより厳しくなることと相まって, 1990年代に入ってから, 国内外の商業用の軽水炉においても, 従来の被曝低減対策に加えて系統除染が適用されるようになってきた⁽⁶⁾⁽⁷⁾。特に, 大規模な修繕・改造工事を実施する際の被曝低減対策としては非常に有効な手段であることが明らかになっている。また, 高久らの報告⁽⁸⁾によれば, 希薄液除染法においては, 市販されているどの除染剤においても良好な除染性能を有し, 系統構成材料への影響がほとんどないこと, 再汚染性についても問題のないことが明らかにされており, 高経年化対策としての大規模な材料取替工事等で今後も系統除染が適用される例は増えていくものと予想される。

「ふげん」における系統除染技術の開発は, 除染剤として EDTA を主成分とするキレート系除染剤クリデコン203 (KD-203, ㈱栗田エンジニアリング製) を選定し, その基本性能の確認⁽⁹⁾, 材料健全性の確認試験⁽¹⁰⁾, 実機熱交換器等を用いた実証試験⁽¹¹⁾, 系統除染システムの設計を経て, 開発に着手してから約10年で実機適用の見通しを得るに至った。1989年および1991年の第 8, 9 回定期検査では,

^{*1} 動力炉・核燃料開発事業団 動力炉開発推進本部 (Reactor Dev. Project, Power Reactor & Nucl. Fuel Dev. Corp.)

^{*2} 動力炉・核燃料開発事業団 新型転換炉ふげん発電所 (Fugen Nucl. Power Station, PNC)

^{*3} 動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所プルトニウム燃料工場 (Pu Fuel Product. Div., Tokai Works, PNC)

[†] 現, 栗田工業㈱ 総合研究所 (Kurita Central Lab., Kurita Water Ind., Ltd.)

^{††} 現, ㈱神菱ハイテック (Shinryo High Technol. Co., Ltd.)
(1995年 5月24日 受理)

A, B, 2 ループある原子炉冷却系の各ループで応力腐食割れ(SCC)予防対策としての大規模な材料取替工事が計画され、それら作業に係る線量当量の低減を図るため、供用中の原子力発電所としては我が国で初めて、原子炉冷却系統全体の化学除染を各ループ(Aループ:1989年8月に除染, Bループ:1991年1月に除染)に適用し、大幅な被曝低減化に成功した⁽¹²⁾⁽¹³⁾。

第I報⁽¹⁴⁾での系統除染の適用に向けて実施してきた除染条件選定試験を含む材料健全性試験結果と評価の報告に続き、本報では「ふげん」で実施したこの2回の系統除染について、システム設計、除染結果、廃棄物処理、材料健全性確認結果、除染後の運転に伴う再汚染抑制対策等について報告する。

II. 系統除染のシステム設計

1. 系統除染目標, 除染条件

系統除染の適用にあたって、除染係数(DF)の目標として2を設定し、除染に伴う材料の腐食に対し、原子炉冷却系圧力バウンダリーを構成する材料の腐食量を、設計腐食し等を勘案して $1\mu\text{m}$ 以下とする目標を設定した。これらの除染目標を達成するための除染条件を、基本性能確認試験と材料への影響評価試験の結果⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾に基づき、除染温度 120°C 、除染剤濃度 $0.05\sim0.1\%$ 、除染時間 24h と設定した。系統水の昇温に用いる余熱除去系(RHR)の一部が炭素鋼で構成されることから、除染剤には腐食抑制剤(インヒビター)を添加することとした。

2. 系統内付着クラッド量の評価

系統各部の付着クラッドをスミヤ法等によって採取し、放射性クラッドの全付着量、除去される放射エネルギーを評価し、必要となる除染剤量を調査した。系統各部の付着クラッド調査結果をTable 1に示す。この調査結果から、燃料集合体を含めた除染では、除去される放射エネルギーが ^{60}Co で約 130TBq ($3,500\text{Ci}$)と膨大となることから、今回の化学除染対象からは除外することとした。燃料を除く系統除染で除去されるクラッド量および ^{60}Co 量はそれぞれ 42kg 、 7.8TBq (210Ci)と推定され、このクラッドの溶解に必要な除染剤量は約 160kg と評価された。

3. 除染系統の構成と除染方法

系統水の昇温方法、除染剤注入方法、浄化方法等の検討においては、既存の設備をできるだけ利用することを基本方針として設計を進めた。除染時の系統構成をFig. 1に示す。除染範囲は、蒸気ドラム、下降管、マニホールド、再循環ポンプ、吐出管、下部ヘッダ、入口管、圧力管、上昇管である。系統除染のために新たに設置した設備は、除染剤注入設備と昇温に利用したRHR熱交換器への発電所内ボイラ

Table 1 Results of crud investigation

Sampling from	RCS* pipe	CJW** pipe	Pressure tube	RHR*** pipe	Spent fuel
Sampling date	Oct. 1985	Nov. 1982	May 1988	1981	Dec. 85 ~ Feb. 88
Crud deposition (mg/cm ²)	1.3 ~ 2.2	0.6	0.001 ~ 0.002	0.7	10
Chemical composition (%)	Fe 90~97 Ni 1~4 Cr 1~6 Others	85~90 10~15	72~94 2~4 2~8 2~15	80 20	93~98 1~3 ~1 ~1
Average concentration of Co-60 in crud (Bq/mg)	9.3×10^4	1.1×10^5	2.2×10^5	2.6×10^5	2.2×10^6
Surface area (m ² /loop)	1,348	327	205	518	598
Estimated crud inventory (kg as Fe ₂ O ₃ /loop)	42				60
Estimated Co-60 inventory (Bq/loop)	7.8×10^{12}				1.3×10^{14}

* RCS : Recirculation system (Outlet pipe, Steam drum, Downcomer, Manifold, Pump outlet pipe, Inlet header, Inlet feeder pipe)

** CJW : Clean up water system

*** RHR : Residual heat removal system

の蒸気導入ラインである。

除染工程はFig. 2に示す通り、大きく分けて昇温、除染、浄化、浄化・フラッシングの4つの工程からなる。

系統水の 120°C までの昇温は、RHRの熱交換器胴側への蒸気の通気と再循環ポンプ運転(循環流量約 $3,600\text{m}^3/\text{h}$)による入熱を利用して行うこととした。系統を構成するステンレス鋼のSCC感受性を低減させるため、系統水温度が 100°C に到達する前に、RHRから窒素ガスを注入して、系統水の溶存酸素濃度を 0.2ppm 以下に低下させることとした。

除染剤の注入は、作業性を考慮してAループの除染では下部ヘッダのドレンラインから、また、Bループの除染ではマニホールドのドレンラインから行うこととした。

除染範囲内の全放射性クラッドを溶解するために必要な除染剤約 160kg を、系統保有水量約 72m^3 の系内に設定した濃度条件($0.05\sim0.1\%$)を保持しながら投入するには、除染中に浄化を行う必要がある。そこで、原子炉冷却材浄化系(CJW)の2塔の脱塩器(イオン交換樹脂 $1,400\text{l}$ /塔、強酸型:強塩基型=4:5、浄化流量 $20\sim30\text{m}^3/\text{h}$ /塔)を交互に利用して、除染液の浄化と除染剤の注入を並行して行う「除染中浄化法」を取り入れて除染することとした。この方法では、注入した除染剤の一部が未反応のまま浄化されるため、その分を考慮して除染剤量を約 250kg 使用することとした。

この除染剤を浄化するためにはCJWの脱塩器が5塔分必要となり、脱塩器の樹脂を適宜交換しながら除染を進める必要がある。樹脂交換に要する作業時間等を考慮して除染剤の注入率、保持濃度、浄化率を決定した。Aループの除染では、樹脂交換に伴う廃棄樹脂貯蔵タンクまでの移送操作の制約から、除染工程前半の除染剤濃度を約 0.05% に保

Fig. 1 Schematic diagram of decontamination in 1989 (A-loop)

Fig. 2 Full system decontamination procedure in 1989 (A-loop)

持して除染中浄化法を適用し、後半は除染剤の注入によって約0.1%に高め、以後、除染剤の注入と浄化を停止して除染を行った。Bループでは、新しい廃樹脂貯蔵施設が竣工・運用されたことから移送操作上の制約がなくなり、24 hの除染工程全体に対して、濃度約0.05%で除染中浄化法を適用した。

除染後の浄化も同様に、CUWの脱塩器によって行うこととしたが、系統内の滞留部に除染液やその分解生成物が

残留することのないように、ドレン管部、ベント管部等滞留し易い部位の調査を行い、浄化方法を検討した。ドレン管部、ベント管部については、系統水が $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下になる浄化・フラッシング工程時に、すべての部位について $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下の清浄な系統水を内側より排出する、もしくは外部から純水を押し込み、滞留部のフラッシングを行うこととし、この操作を2回実施することとした。フラッシング対象箇所は、約300箇所であった。また、除染後の原子炉起動までの定期検査期間中、原子炉冷却材の浄化運転を約1ヵ月間行い、隙間部に残留した除染剤ならびにインヒビタの熱分解や放射線分解で生成する硫酸イオン等を除去することにした。

4. 廃棄物処理

フラッシング水等の液体廃棄物については、すべて既設の処理施設で処理することとした。除染で除去されると推定された放射性核種量は、 ^{60}Co で7.8TBqであり、これらは除染中浄化時と浄化工程で樹脂に捕捉されるが、この廃樹脂は通常の運転で発生する廃樹脂と同様に取り扱えることを確認し、既設の貯蔵タンクに貯蔵保管することとした。

5. 材料健全性モニタリング

除染に伴う系統構成材料の健全性は、炉外試験で十分に確認されているが、実際の除染環境においても健全性が維

持されることを確認するために、材料試験片を収納した容器を除染対象ループの圧力下部に装着した。

材料健全性モニタリングに用いた試験片は、除染に伴う全面腐食、隙間部の腐食およびステンレス鋼材のSCCに対する健全性を確認する試験片のほか、Aループの除染時には、除染後の運転に伴う材料の健全性を確認する追跡用試験片を収納容器内に備えた。

6. 再汚染モニタリングと再汚染抑制対策

Aループの系統除染後の運転に伴う再汚染挙動を調査するため、再循環ポンプ吐出管垂直部に、Photo. 1に示す30 cm厚さの鉛遮蔽体付きGe半導体検出器を設置し、除染後の運転中連続的に放射性核種付着密度を測定することとした。また、定期検査等の原子炉停止時には、原子炉冷却系の主要各部の再汚染状況を電離箱サーベイメータでモニタリングすることとした。

除染後の再汚染抑制対策として、除染前に取り出した燃料のうち、再び除染後に装荷される燃料集合体をFig. 3

Photo. 1 Recontamination survey monitor at pump outlet vertical pipe

Fig. 3 Cleaning mechanism of reloading fuel by ultrasonic vibration

に示す燃料貯蔵プール内に設置した超音波洗浄装置により洗浄し、燃料表面に付着しているクラッドを除去することとした。なお、Aループの除染では、洗浄装置のフィルタエレメントの不調により実施できず、Bループの除染時のみ適用した。

III. 系統除染結果

1. 除染時の水質管理結果

系統除染中30 minから1 hごとに、CUW脱塩器入口および出口において系統水をサンプリングし、除染剤濃度、放射性核種濃度、鉄イオン濃度、電気伝導度、pHを分析した。除染中の水質の経時変化をFig. 4に示す。除染剤濃度は、2回の除染とも計画通り、除染中浄化工程時には約0.05%、Aループの循環除染時には約0.1%に保持された。

Aループの系統除染の浄化・フラッシング工程において、Fig. 5に示すように、電気伝導度の立ち上がりが見られた。これは、浄化によって水質環境が還元性から酸化性雰囲気に変化し、RHR系統の炭素鋼配管を保護するために添加したインヒビタに含有するイオウが、炭素鋼表面から

Fig. 4 Change of chemical indices during decontamination (B-loop)

Fig. 5 Change of chemical indices during purification and flushing (A-loop)

離脱し、硫酸イオンに変化したためと判断された。そこでRHRを除染系統から切り離し、単独でフラッシングし浄化を行った。再び除染系統に接続した時には異常はなく、最終的に系統水を当初目標とした $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下まで浄化した。Bループの除染時においては、Aループでの経験を生かし、水質環境が酸化性雰囲気に変化すると推定された原子炉冷却材の電気伝導度が $30\mu\text{S}/\text{cm}$ まで低下した時点で、RHRを除染系統から切り離し、硫酸イオンの発生を抑制した。

系統除染後の浄化運転は、計画通り2回の除染とも原子炉起動までに約1ヵ月間行い、原子炉起動前に炉水には、硫酸イオンは検出(検出限界値: 2ppb)されなかった。

2. 放射性核種およびクラッドの除去量

系統除染によって除去された放射性核種量とクラッド量をTable 2に示す。除去 ^{60}Co 量は、A, Bループともに予測結果(7.8TBq)とよく一致し、ループ間で大きな差はなかった。

3. 除染係数

系統各部の DF_i は機器ごとに除染前後の線量率を約10ヵ所で測定し、除染前の線量率の平均値 Bi_{AV} 、除染後の線量

Table 2 Removed activity and metal by decontaminations

		A-loop	B-loop
Removed activity	Co-60	7.7 TBq	7.3 TBq
	Mn-54	1.7	1.7
	Fe-59	1.9	1.2
	Co-58	0.4	0.3
	Cr-51	0.6	0.3
	Total	12.3 TBq	10.8 TBq
Removed metal	Fe as Fe_2O_3	70 kg	73 kg
	Ni as NiO	1.8	1.7
	Cr as Cr_2O_3	0.4	0.3

率の平均値 Ai_{AV} から(1)式により求めた。

$$DF_i = Bi_{AV} / Ai_{AV} \quad (1)$$

各部の DF は、Table 3に示すように、Aループで2.4~8.5, Bループで3.6~11.6で、部位によって違いがみられたが、どの部位の DF も目標とした2以上であった。蒸気ドラムにおける DF が他の場所に比べて相対的に低いのは、Photo. 2に示すように、除染中の水位を蒸気ドラムの中間位置に保持したため、除染液が接液せずに除染されなかったドラム上部の影響を受けているためである。

また、入口管と上昇管の DF の違いは、SGHWRでも経験されたように⁽¹⁵⁾、配管内表面に形成された酸化皮膜中のCrの含有量の違いに起因していると考えられる。運転中の入口管部および上昇管部の溶存酸素濃度は、原子炉冷却系への水素注入前は入口管の方が 30ppb ほど低く、1984年以降実施している水素注入⁽¹⁶⁾後はほぼ同程度であることが解析⁽¹⁷⁾によって明らかにされており、KD-203では溶解しにくいCr含有量が多い酸化皮膜が、水素注入前に入口管部で形成されたものと考えられる。

機器ごとの Bi_{AV} 、 Ai_{AV} に機器の表面積 S_i を乗じ、(2)式により各ループの除染時の総括的な除染係数を求めた。

Photo. 2 Inside of B-steam drum after decontamination

Table 3 Decontamination factor

	A-loop decontamination in 1989			B-loop decontamination in 1991		
	Dose rate before decontamination (mSv/h)	Dose rate after decontamination (mSv/h)	DF	Dose rate before decontamination (mSv/h)	Dose rate after decontamination (mSv/h)	DF
Steam drum	2.42	0.91	2.7	2.58	0.71	3.6
Downcomer Pump outlet pipe	2.03	0.24	8.5	1.92	0.36	5.3
Manifold	0.88	0.19	4.6	0.84	0.14	6.0
R C P	1.11	0.17	6.5	1.11	0.23	4.8
Inlet header	3.05	1.18	2.6	2.16	0.41	5.3
Inlet feeder pipe	5.78	2.41	2.4	4.28	1.19	3.6
Outlet pipe	5.93	0.96	6.2	4.31	0.37	11.6

$$\text{総括除染係数} = \Sigma Bi_{Av}Si / \Sigma Ai_{Av}Si \quad (2)$$

総括除染係数はAループで3.4, Bループで5.1であった。Bループの方が総括除染係数が大きかったのは、使用した除染剤量がAループに比べて15%程度多かったため、表面積の大きな上昇管で選択的に消費され、上昇管部のDFが良かったことが主因と考えられる。

4. 被曝低減効果

系統除染を適用しない場合の総線量当量の予測値は、Aループの場合12.77人・Sv, Bループの場合15.01人・Svであったが、実績値は、Aループで6.16人・Sv, Bループの場合7.24人・Svであり、系統除染によってともに50%以上の総線量当量低減化を図ることができた。また、材料取替工事等の改造工事に係る線量当量低減効果は、A, Bループともに70%以上であった。

5. 廃棄物処理

系統除染のフラッシングで発生した廃液は2回の除染ともそれぞれ約150 m³であり、既設の液体廃棄物処理設備を用いてすべて処理した。除染液に起因する放射性物質の環境への放出はなかった。

発生した廃樹脂量は、Aループの系統除染で脱塩器5塔分の7 m³, Bループで6塔分の8.4 m³であり、それぞれ通常の手順により固体廃棄物処理設備に移送し貯蔵保管した。この廃樹脂は、「ふげん」で発生する他の廃樹脂と同様に、捕捉された放射性物質を酸で溶離した後、所内の焼却炉で減容処分する方法を検討中である。放射性物質の溶離方法については、実際に系統除染で発生した廃樹脂を用いて試験し、溶離液に2 mol/dm³のHNO₃を用い90℃で攪拌することにより、樹脂体積の10倍量の溶離液で焼却処分可能なレベルまで廃樹脂から放射性物質を分離できることを明らかにした⁽¹⁸⁾。

6. 材料健全性確認結果

除染中に圧力管内に装着されていた材料試験片の腐食量等の確認結果を、Aループの場合について、Table 4に示す。全面腐食および隙間腐食の試験片の中でマルテンサイト系ステンレス鋼材SUS403Mにわずかな腐食が認められたものの、その他の材料では腐食は認められなかった。SUS403Mについても、目標とした腐食量1 μm以下を満足した。Bループの場合もほぼ同様の結果が得られた。局部腐食等の異常な腐食は認められなかった。

Table 4 Results of the material tests

	Part of interest	Materials	Corrosion	
			(mg/cm ²)	(μm)
General corrosion	Pressure tube	Zr-2.5wt%Nb	< 0.1	< 0.1
	Upper/lower extension of pressure tube	SUS403M	0.72	0.93
	Tubes (welded part)	SUS304 SUS316L	< 0.1 < 0.1	< 0.1 < 0.1
Galvanic	Rolled joint of pressure tube and extension tube	Zr-2.5wt%Nb + SUS403M	< 0.1 0.51	< 0.1 0.66
Corrosion	Heat exchanger	SUS304 + SUS304	< 0.1 < 0.1	< 0.1 < 0.1
		SUS304 + gasket + SUS304	< 0.1 < 0.1	< 0.1 < 0.1
	Flange	SUS304 + gasket + SUS304	< 0.1 < 0.1	< 0.1 < 0.1
	Socket welding	SUS304 + SUS304	< 0.1 < 0.1	< 0.1 < 0.1

ステンレス鋼材のSCC感受性を評価するために実施したボルトWOL(Wedge Opening Loading)試験結果を、Bループの場合についてTable 5に示す。除染による亀裂の進展はなく、破面のSEM観察においてもSCCの発生は確認されなかった。Aループの場合もほぼ同様の結果が得られた⁽¹²⁾。除染後に実施した蒸気ドラム、再循環ポンプ等の機器開放時の点検においても、異常は認められなかった。

Aループの系統除染時に収納容器に取り付けていた追跡用試験片を、除染後に原子炉冷却系に接続されているインプラント試験装置のオートクレーブ内に装荷し、実炉水環境下に約4,300h浸漬し、Bループの系統除染前に取り出して、腐食量、SCC感受性について評価した。その結果、いずれの試験片においても異常は認められなかった⁽¹³⁾。

7. 再汚染挙動

Aループの再循環ポンプ吐出管垂直部に設置したGe半導体検出器で測定した除染後の再汚染挙動をFig. 6に示す。系統除染後の1年間の運転で、炉停止後の配管表面線量率を支配する⁶⁰Coの付着量は、除染前のレベルの約70%まで戻った。除染後の20 EFPD(Effective Full Power Day: 実効運転日数)での再汚染は非常に速やかで、その後の340 EFPDでは再汚染率は低くなっている。初期の汚染率が高いのは、初期の酸化皮膜形成が速いこと⁽¹⁹⁾に起因しているものと考えられる。

Table 5 Results of compact tension (CT) test

Material	K_I * ($N/mm^{3/2}$)	Width of opening (mm)	Crack length change with decontamination (mm)	
			before	after
SUS304	490	0.162	40.96	40.96
Carbon content 0.05 %	686	0.193	30.91	30.91
	980	0.272	30.37	30.37

* K_I : Crack tip stress intensity factor

Fig. 6 Recontamination behavior at pump outlet pipe in B-loop

SCC予防対策で交換された新しい配管と系統除染後の配管の6ヵ月間運転に伴う汚染率の比較結果をTable 6に示す。新管の汚染率は、1985年の第5回定期検査時に材料取替を実施した時の実績データである。この新管は表面への予備酸化処理等は施されていない。除染後の配管の汚染率は、新管の汚染率に比べて低い。これは、除染後の配管には除染後にも酸化皮膜が残留しているためと考えられる。

1978年3月の初臨界から1994年までの原子炉冷却系Bループの平均線量率比の推移をFig. 7に示す。平均線量率比は、定期検査等に測定されたBループ各部の線量率の平均値を、第1回定期検査時の平均線量率で除したものである。Bループの再汚染は、除染後の1年間は速やかであっ

Table 6 Comparison of recontamination

		Replacement brand new pipe (as-received)	Decontaminated pipe
Co-60 deposition for 1 fuel cycle after replacement/decontamination (kBq/cm^2)	Pump outlet pipe	77	27
	Manifold	66	36
Co-60 deposition rate (cm/h)	Pump outlet pipe	5.0	1.5
	Manifold	4.4	2.1
Average concentration of ^{60}Co in coolant in relevant cycle (Bq/cm^3)		3.8	3.9
EFPD* of the cycle (day)		166	187
$\text{Co-60 deposition rate (cm/h)} = \frac{(\text{Co-60 deposition})}{(\text{EFPD**}) \times (^{60}Co \text{ concentration})}$			

* EFPH : Effective full power hour

** EFPD : Effective full power day

Fig. 7 Mean dose rate change in primary system of B-loop

たが、その後は緩やかで、除染後4年経過後の平均線量率比は除染前のレベルの80%程度であり、再汚染によってかえって被曝が増加するような事象は発生していない。

IV. 考 察

1. 除染中浄化法の有用性

「ふげん」の系統除染に採用した除染中浄化法は、溶解すべき系統内のクラッド量が変化しても、容易に除染剤濃度を管理でき、また、濃度を低く保持できるので、除染工程後の浄化に係わる工程時間を短縮できる利点がある。除染工程をすべて除染中浄化法で除染したBループの除染では、浄化時間の短縮、さらにはCUW脱塩器下流側のフラッシング作業がなくなり、Aループの系統除染に比べて約42hの工程時間短縮を図ることができた。

未反応の除染剤濃度(Effective KD-203)は、Fig. 4に見られるように、除染工程の前半でほとんど検出されていない。これは、クラッドの溶解速度が速く、クラッド量に対して除染剤が不足した状態で推移しているからである。未反応のまま樹脂に捕捉された除染剤量は、2回の除染とも全除染剤使用量に対して10%以下に抑えることができた。

Fig. 8に、Aループの除染時の放射性核種濃度推移を、除染中浄化法を行わない場合の予測値と併せて示す。除染中浄化法の適用により、除染中の放射性核種濃度を適用しない場合に比較して1/6に抑制することができた。これにより除染中の系統の線量率は約1/4に抑制され、除染剤注入等の除染作業に係わる線量当量も、A、Bループの系統除染ともに0.1人Sv以下に抑えることができた。

2. 燃料付着クラッド除去による再汚染抑制効果

燃料付着クラッド除去を実施しなかったAループの除染および燃料付着クラッド除去を実施したBループ除染後の炉水中 ^{60}Co 濃度の変化をFig. 9に示す。炉水中 ^{60}Co 濃度の変化はCUW脱塩器入口の濃度であり、A、B各ループの蒸気ドラムから抽水された炉水が合流した後の濃度である。

Fig. 8 Activity change during decontamination

Fig. 9 Concentration change of ^{60}Co in primary coolant before and after the fuel cleaning

^{60}Co の蓄積量が約130 TBq/ループと推定される燃料付着クラッドを除去したにもかかわらず、Bループ除染後の炉水中の ^{60}Co イオン濃度はAループ除染後の ^{60}Co イオン濃度とほとんど変わらない。長期的にわずかに低下しているのは、Fig. 10に示す通り、水素注入後に一時的に発生した ^{60}Co イオン濃度のピークの裾野部分である⁽¹⁶⁾。一方、炉水中の ^{60}Co クラッド濃度は、Fig. 9の燃料付着クラッド除去後の1991年後半部分で半年ほど約1/2の濃度に低下し、その後徐々に増加して1年後にはほぼ除染前のレベルに戻った。

^{60}Co イオン濃度がほとんど変化しなかったのは、燃料付着クラッド中の ^{60}Co の炉水への移行が、燃料棒に付着しているクラッド層の最外層で局所的になされるためと考えられる。燃料付着クラッドのうち、炉水中に ^{60}Co イオンを放出する表層部の比放射能は、クラッドを除去しない厚いクラッド層を持ったものでも、クラッドを除去した後に付着した薄いクラッド層でも速やかに同じレベルになるものと考えられ、そのために燃料付着クラッドを除去後も炉水中の ^{60}Co イオン濃度が変化しなかったと推定している。

Fig. 10 Long term change of ^{60}Co concentration in primary coolant

一方、Fig. 9 の1991年後半に見られるクラッド状の ^{60}Co 濃度の低下は、燃料表面のクラッド付着量が、燃料付着クラッド除去後の運転ではまだ飽和状態になっていないため、しばらくの間、燃料からのクラッド状の ^{60}Co 放出率が低下し、炉水中の濃度が抑制されたものと考えられる。

プラント計画停止時の線量率測定結果に基づく A, B ループプラント各部の再汚染状況を Fig. 11 に示す。運転に伴う線量率の増加を除染前の線量率で規格化している。いずれの部位も除染後に配管取替のなされていない部位である。各部の再汚染比は、上昇管を除いていずれも A ループの方が大きくなっている。B ループの上昇管における再汚染比が大きかったのは、DF が11.6と大きく、除染後の配管表面が新管に近い状態となり、再汚染比が大きくなったものと考えられる。上昇管以外の部位で、再汚染比がB ループの方が小さかったのは、B ループでは燃料付着クラッドを除去したため、炉水中のクラッド状 ^{60}Co 濃度が低下し、ルーズな状態で付着する放射性クラッド量が抑制されたためと推定される。この効果は、特にクラッドが堆積し易い水平に設置されている蒸気ドラム、下部ヘッダ、マニホールドで顕著である。A ループの除染後、1年後のマニホールド、下部ヘッダの再汚染比が、半年後の再汚染比に比べて低下しているのは、水平部分に堆積したクラッドが容易に移動するため、線量率測定前の運転状態によってクラッドの堆積量が変化するためと考えられる。

系統除染後に再装荷される燃料に付着したクラッドを除去することによって、半年ほど炉水中のクラッド状 ^{60}Co 濃度は低く維持された。この期間は、給水系から炉内に持ち込まれる鉄クラッド量を抑制することによってさらに長くすることができるものと考えられ、効果的な再汚染抑制の観点からは、燃料付着クラッドの除去と給水系からの鉄

持込み低減対策を合わせて実施する必要がある。

「ふげん」では、給水中の鉄濃度を抑制する方法として、復水脱塩器のイオン交換樹脂を除鉄性能の高い樹脂に入れ換えることを計画中で、樹脂の開発を含め実機での確認試験を行っている⁽²⁰⁾。また、米国のBWRで、 ^{60}Co の原子炉冷却系配管への付着抑制技術として適用が進んでいるZn注入法⁽²¹⁾を、再汚染抑制対策として採用すべく適用性確認試験を実施中である。

3. 燃料集合体を含む除染の検討

「ふげん」で実施した2回の系統除染は、燃料集合体をすべて系統外に抜き出した状態で行った。「ふげん」の場合には、燃料の抜き出しおよび再装荷に片ループあたり約20日間を要するため、燃料集合体を炉心部に残したまま除染ができれば、除染のための原子炉停止期間を大幅に短縮することができる。

燃料集合体を含む系統除染を行う場合には、除染剤の放射線分解による影響を評価する必要がある。120℃のオートクレーブのなかにKD-203の0.1%溶液を封入し、 ^{60}Co 線源で照射した試験では、Fig. 12 に示すように、約10 kGy (0.39 kGy/h で24 h 照射)の吸収線量で除染剤が50%以上分解しており、放射線分解による消失率は熱分解の10倍程度大きいことがわっている。

一方、燃料集合体に付着しているクラッド量は、Table 1 に示したように、燃料集合体を除く系統全体に付着しているクラッド量とほぼ同程度であるから、燃料集合体装荷時の炉心部線量率が 7×10^6 R/h 程度であることと、上述の試験結果を考慮して求められる除染剤の必要量は、燃料体を含まない場合の約3倍に相当する。この除染剤および溶解した金属等を除去するためには、片ループの除染の場

Fig. 11 Comparison of recontamination behavior between A- and B-loop

Fig. 12 Radiation and thermal degradation of KD-203 at 120°C

合でも 25 m³ (「ふげん」の CUW 脱塩器約 18 塔分) のイオン交換樹脂が必要になり、廃棄物の発生量が大きくなってしまう。また、24 h の除染期間内に 18 塔分の樹脂交換作業を実施することは、運転操作の観点からも現実的なものとはいえない。

さらに、燃料集合体を含む除染をした場合に除去される ⁶⁰Co の量は、約 140 TBq (3,800 Ci) で、燃料を含まない系統除染の場合の約 20 倍に相当する。したがって、除染中浄化法を採用したとしても、除染中の系統線量率は数 R/h オーダーとなるので、除染作業に伴う被曝が増大するおそれがある。また、局所的に放射性物質が滞留して線量率が高くなるホットスポットが発生する可能性も高くなる。

再汚染防止の観点からは、前述したように、燃料集合体に付着するクラッドを除去してもあまり大きな効果は期待できない。

以上のことから、「ふげん」で実施した除染法を燃料集合体を含む除染に適用することは、現段階では困難と判断される。

V. 結 言

「ふげん」の第 8 回および第 9 回定期検査時に適用した系統除染により、定期検査時の総線量当量は大幅に低減され、系統除染が大規模な保守・改造工事における被曝低減に非常に効果的であることが実証された。

除染作業も計画通り進めることができ、また、構成材料への影響は認められず、その後の 5 年以上に及ぶプラント運転においても除染の影響と考えられる障害は発生していない。除染後の再汚染挙動も顕著なものでなく、長期的にも被曝低減効果を得ることができている。2 回の系統除染

の適用を通して、系統除染技術を確立することができたと考える。

本プロジェクトの計画・遂行にご尽力頂きました動力炉・核燃料開発事業団の関係各位、基礎試験の段階より適用に至るまでご協力頂きました栗田工業(株)、栗田エンジニアリング(株)の関係各位、また、系統除染適用にあたりご協力頂きました三菱重工業(株)の関係各位、そして適用にあたり貴重なご助言を頂きました東京大学工学部の石樽顕吉教授、大阪大学工学部の柴田俊夫教授に深く感謝いたします。

— 参 考 文 献 —

- (1) Nash, G.J.C. : *Proc. Int. Conf. on Water Chemistry of Nucl. Reactor Systems, Bournemouth*, p.377 (1977).
- (2) Lacy, C.S., et al. : *ibid.*, p.385.
- (3) Asakura, Y., et al. : *5th Int. Conf. on Water Chemistry of Nucl. Reactor Systems, Bournemouth*, Vol.1, p.115 (1989).
- (4) Morikawa, Y. : *Proc. 3rd Int. Workshop on Implementation of ALARA at Nucl. Power Plants, New York*, Session 1-6, (1994).
- (5) Terada, R. : *ibid.*, Session 1-3.
- (6) Lejon, L., Hermansson, A., Bertholdt, H.O. : *Proc. Int. Conf. on Chemistry in Water Reactors, Nice*, Vol.1, p.203 (1994).
- (7) 山内章義, 高木敏夫, 佐藤義雄, 北島英明, 西本昭義, 稲見一郎, 他 : 原子力学会「1994秋の大会」予稿集, Q52, Q53.
- (8) 高久 啓, 他 : 同 上, Q39~Q48.
- (9) Nakayama, H., Ohkubo, S., Furukawa, K., et al. : *Proc. 1988 JAIF Int. Conf. on Water Chemistry in Nucl. Power Plants, Japan*, Vol.2, p.449 (1988).
- (10) Koike, M., et al. : *Proc. 1991 JAIF Int. Conf. on Water Chemistry in Nucl. Power Plants, Fukui, Japan*, p.716 (1991).
- (11) 中井浩三, 川崎 昇, 他 : 原子力学会「昭62秋の大会」予稿集, K57, (1987).
- (12) Naoi, Y., Kitabata, T., et al. : *Proc. 1991 JAIF Int. Conf. on Water Chemistry in Nucl. Power Plants, Fukui, Japan*, p.211 (1991).
- (13) Naoi, Y., Kitabata, T., et al. : *6th Int. Conf. on Water Chemistry of Nucl. Reactor Systems, Bournemouth*, Vol.1, p.97 (1992).
- (14) 小池通崇, 揖場 敏, 高橋隆雄 : 原子力誌, 38(5), 382~392 (1996).
- (15) Bradbury, D., et al. : *Nucl. Energy*, 20, 403~408 (1981).
- (16) Kitabata, T., Naoi, Y., et al. : *Proc. 1991 JAIF Int. Conf. on Water Chemistry in Nucl. Power Plants, Fukui, Japan*, p.107 (1991).
- (17) Ibe, E., et al. : *J. Nucl. Sci. Technol.*, 23(1), 11~28 (1986).
- (18) 東浦則和, 他 : 原子力学会「1994春の年会」要旨集, A6.
- (19) Kitamura, M., et al. : *Nucl. Sci. Eng.*, 89, 60~69 (1985).
- (20) Kitabata, T., Naoi, Y., Nakamori, Y. : *Proc. Int. Conf. Chemistry in Water Reactors, Nice*, Vol.2, p.691 (1994).
- (21) Marble, W. J. : *Proc. 3rd Int. Workshop on Implementation of ALARA at Nucl. Power Plants, New York*, Session 1-5, (1994).