

放射線量低減技術

Radiation Exposure Reduction Technology for BWRs

原子力発電所の運転基数増加に伴い、運転保守作業の効率向上および作業環境改善のうえで、従事者の受ける放射線量を低く保つことがますます重要となってきた。

日立製作所では国内炉導入以来、放射線量低減を重要課題としてとらえ、材料・水質の研究を中心に技術開発を図ってきた。最新の放射線量低減技術を採用した東京電力株式会社第二原子力発電所福島4号機、中国電力株式会社島根原子力発電所2号機では、第1回定期検査での通常定期検査作業の放射線量当量は世界でもきわめて低い0.2人・Sv以下を記録し、BWR(沸騰水型原子炉)の放射線量低減技術を確立した。

大角克己* *Katsumi Ōsumi*
 片岡一郎** *Ichirō Kataoka*
 鶴岡良造** *Ryōzō Tsuruoka*
 朝倉大和*** *Yamato Asakura*
 三谷信次**** *Shinji Mitani*

1 緒言

原子力発電所の運転基数増加に伴い、運転および保守作業を円滑に実施するうえで、作業従事者の受ける放射線量を低く保つことはますます重要となってきた¹⁾。

日立製作所では、プラントの信頼性および稼働率をよりいっそう向上させるうえで、作業時に受ける線量を低減することを重要な課題として位置づけ、線量低減技術の開発を行ってきた^{2)~7)}。開発にあたっては、作業時に線量を受ける原因となる作業環境の線量当量率自体を低下させることを最優先し、さらに定期検査作業の合理化・改善技術および遠隔自動化技術を対象とした。作業環境の線量当量率低減にあたっては、線量となる原子炉水中の放射能濃度を低下させ、さらに機器配管への放射能付着を抑制する放射能低減技術を開発し、実機に適用している。

最新の放射能低減技術を適用した東京電力株式会社 福島第二原子力発電所4号機(以下、福島第二・4号機と言う。)、および中国電力株式会社 島根原子力発電所2号機(以下、島根2号機と言う。)では、第1回定期検査時の一般定期検査作業での被ばく線量当量は世界でもきわめて低い0.2人・Sv以下を記録しており、沸騰水型原子炉(以下、BWRと略す。)での線量当量低減技術が定着したことを示している^{8),9)}。

この論文は、過去の開発経緯を含めて線量当量低減技術をまとめ、実績については島根2号機の例を中心に述べる。

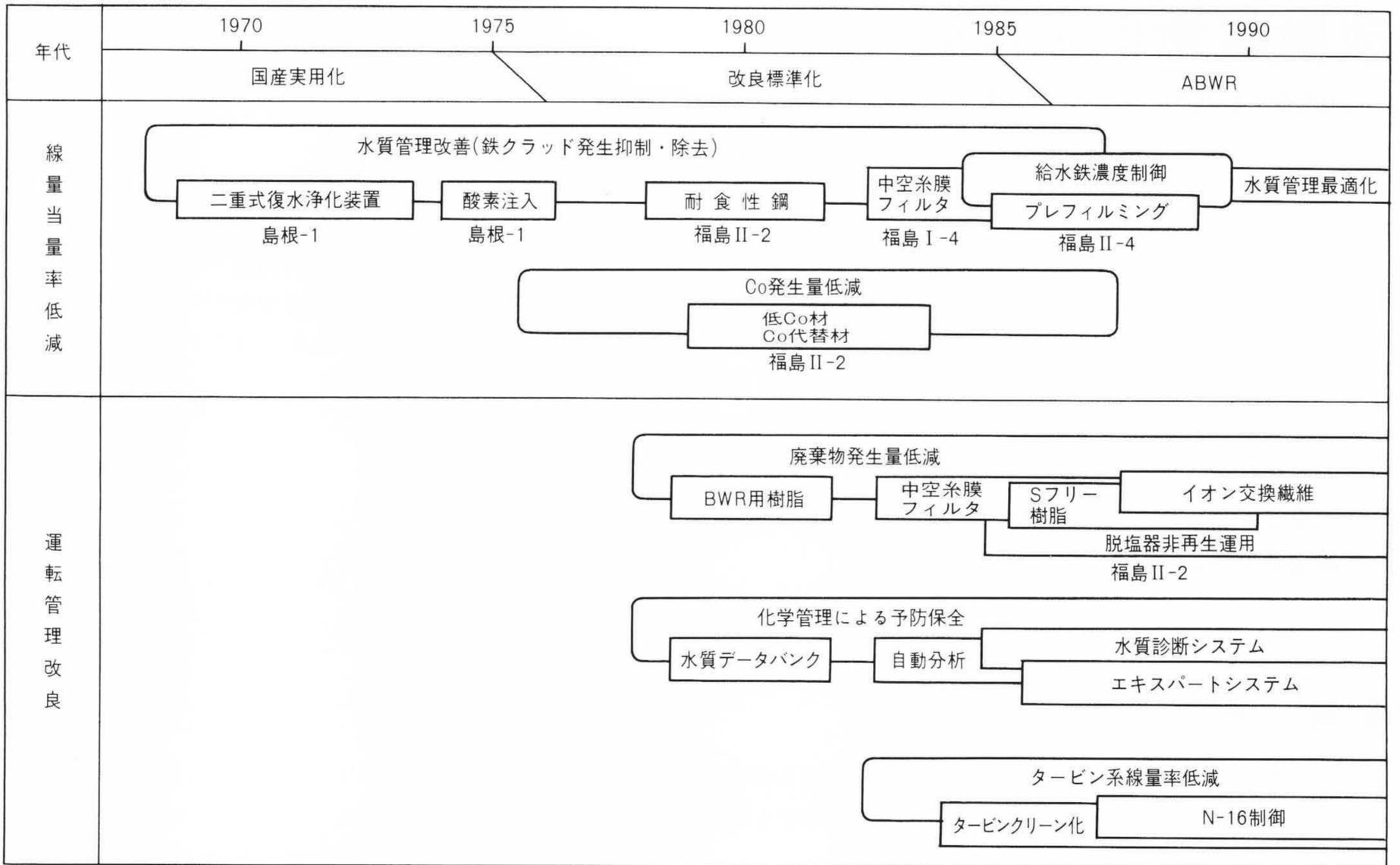
2 プラント放射能低減技術の開発経緯

放射能低減技術に関しては、昭和40年代後半から、その重

要性に着目し研究を始めた。開発にあたっては、まず実機の原子炉一次系水質および放射能を測定し、そのデータに基づき、放射性腐食生成物の主な挙動を定量的に予測する計算コード、すなわち線量当量率上昇予測評価モデルを作製した。そのモデルによって、線量当量率上昇の原因となる腐食生成物の発生源を抽出し⁴⁾、その発生を抑制する技術を開発課題とした。先行機の調査結果から、プラント停止時の線量当量率を支配する放射性核種は、主に半減期が5.2年と長い⁶⁰Coであることが判明していた。このため、放射能低減対策としては⁶⁰Co自体の低減と、その担体となる鉄クラッドの低減を対象として、**図1**に示すように各種技術の開発を行ってきた。放射能低減技術は、水質管理に深くかかわるため、直接線源となる腐食生成物の低減を目的とした線量当量率低減技術に合わせて、それを実現し補助するための要素技術である水質管理技術の改良も同時に研究開発した。日立製作所での水質管理技術の開発の特長は、**図2**に例示した国産1号機である中国電力株式会社 島根原子力発電所1号機の水質データにみられるように、プラントのデータを詳細に追跡し、開発改良の基礎としていることである⁹⁾。

放射能低減技術を年代別に区分すると、**表1**に示すように大きく4区分することができる。昭和40年代は、米国の先行機で燃料被覆管に付着した多量の鉄および銅を主体とした腐食生成物の酸化物が原因となって生じた燃料からの核分裂生成物のリークを経験しており、核分裂生成物による線量当量率が高かった。そのため燃料リークを防止する目的で、給水

* 日立製作所 日立工場 工学博士 ** 日立エンジニアリング株式会社 *** 日立製作所 エネルギー研究所 工学博士 **** 日立製作所 日立工場



注：略語説明ほか
 島根-1 (中国電力株式会社 島根原子力発電所1号機)
 BWR (沸騰水型原子炉) 福島II-2 (東京電力株式会社 福島第二原子力発電所2号機)
 ABWR (改良型沸騰水型原子炉) 福島I-4 (東京電力株式会社 福島第一原子力発電所4号機)
 福島II-4 (東京電力株式会社 福島第二原子力発電所4号機)

図1 線量当量率低減および運転管理改良水質管理技術の開発経緯 放射能低減技術は、直接線源となる腐食生成物低減を目的とした線量当量率低減技術と、それを補佐する運転管理改良技術を同時に開発してきた。

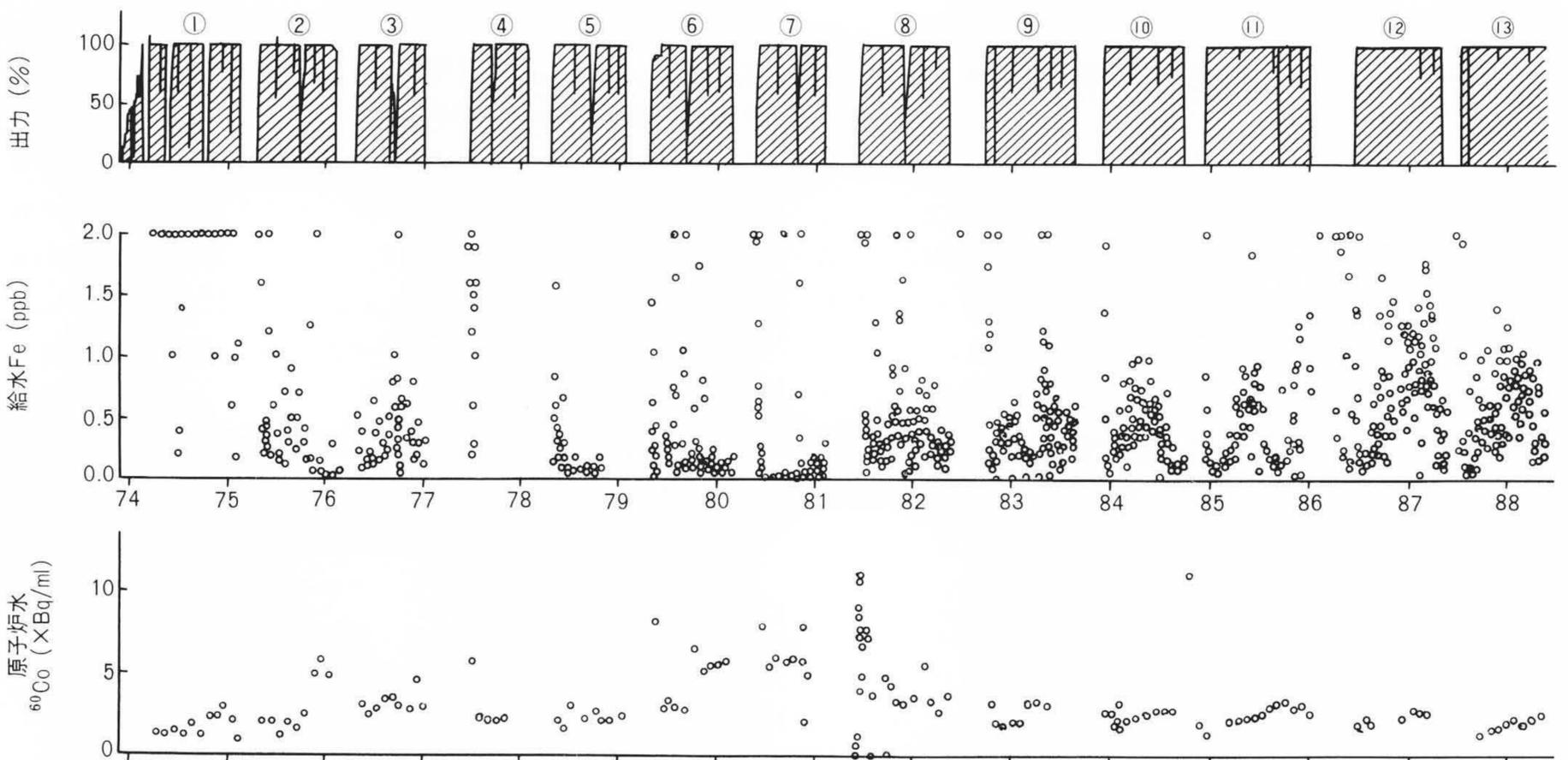


図2 島根1号機の給水鉄および原子炉水放射能濃度履歴 日立製作所では、顧客との緊密な協力の上で運転プラントの水質データを追跡しており、水質管理状況の評価とともに研究開発のデータベースとして計算機に保存している。

表1 水質管理の歴史的変遷 燃料棒からの核分裂生成物の漏れがなくなってからの線量当量率は、⁶⁰Coなどの放射化クラッドによって決まっているため、その低減技術が開発目標であった。

期 間	主要トピックス	主要技術開発
I 昭和50年以前	燃料棒からの核分裂生成物漏れ	鉄および銅濃度低減
II 昭和50年～昭和55年	予防保全的SCC対策実施(線量当量低減)	クラッドの除去
III 昭和55年～昭和60年	線量当量低減および廃棄物発生量低減	クラッド発生量の低減
IV 昭和60年以降	クリーンBWRへの挑戦	給水鉄濃度制御, プレフィルミング処理

注：略語説明 SCC(Stress Corrosion Cracking：応力腐食割れ)

ヒータチューブの材料を銅合金からステンレス鋼に替えるなどの腐食生成物発生低減対策がとられ、給水鉄濃度30 ppb以下およびそのうちの銅濃度2 ppb以下の水質基準が設定された。さらに燃料の改良によって燃料破損がなくなった。

昭和50年代に入り、BWRでオーステナイト系ステンレス鋼の応力腐食割れ事例が発生し、その予防保全策として大規模な配管交換工事などが行われるようになってきた。そのような工事を行う過程で、作業を円滑に進められるように作業者の受ける線量当量を下げるニーズが強くなり、通商産業省軽水炉改良標準化でも重要課題として取り入れられた。昭和55年以降は、開発された放射能低減技術を新規プラントの設計に適用した時代であり、通商産業省改良標準化BWR第1号機である、東京電力株式会社 福島第二原子力発電所2号機では、昭和60年5月に終了した第1回定期検査で、作業者の受ける線量当量(被ばく線量)0.89人・Svと改良標準化目標値(2人・Sv)を十分下回る実績を得た⁵⁾。

昭和60年以降は、改良標準化仕様を適用し、原子炉給水中のクラッド濃度を低下させたプラントに対し、給水中の鉄濃

ステップ	線量当量率予測モデルの重要因子	放射能濃度低減策
1	燃料棒へのクラッド付着, 放射化および溶出	原子炉内への鉄持ち込み量制御 構造材のCo含有量制御
2	原子炉内構造物などの直接放射化材料からの溶出	炉内構造物のCo量制御
3	炉水中のイオンの燃料表面への再付着と固定	給水鉄濃度比の制御

図3 放射能濃度低減の考え方 線量当量率予測モデルによって放射能濃度制御の重要因子を抽出し、その因子ごとの低減対策を開発した。

度制御、プレフィルミング処理などの新たに開発した改良運転技術を適用し、日本のBWRの被ばく線量が世界の軽水炉中で最も低いという評価が国際的に定着してきた時代である。

新設プラントでの線量当量率の低減は、図3に示すように設計時に線源となる腐食生成物を低下させる材料選定技術と、運転中の放射能濃度を低下させる水質管理技術によって達成される。これらは、いずれも新設プラントで標準的に採用されている。また、既設運転中のプラントでは、交換部品など交換可能なものに順次適用されつつある。

3 被ばく線量低減技術の適用と成果

プラント定期検査時に作業者の受ける放射線量当量を低くする手段としては、図4に示すように、作業環境の線量当量率低減と作業の遠隔自動化、作業の合理化などによる作業時間の短縮があげられる。線量当量率低減については、図5に示すように設計時点で腐食生成物を減少させるための材料選定と水質管理システムを適用している。

材料選定については、線量当量率上昇予測評価コードによって各部位の線量当量率上昇に対する寄与を評価したうえで、寄与の大きな部分に効果的に対策材料を使用するよう計画している。鉄の発生量は初期プラントの $\frac{1}{3} \sim \frac{1}{5}$ に低下してい

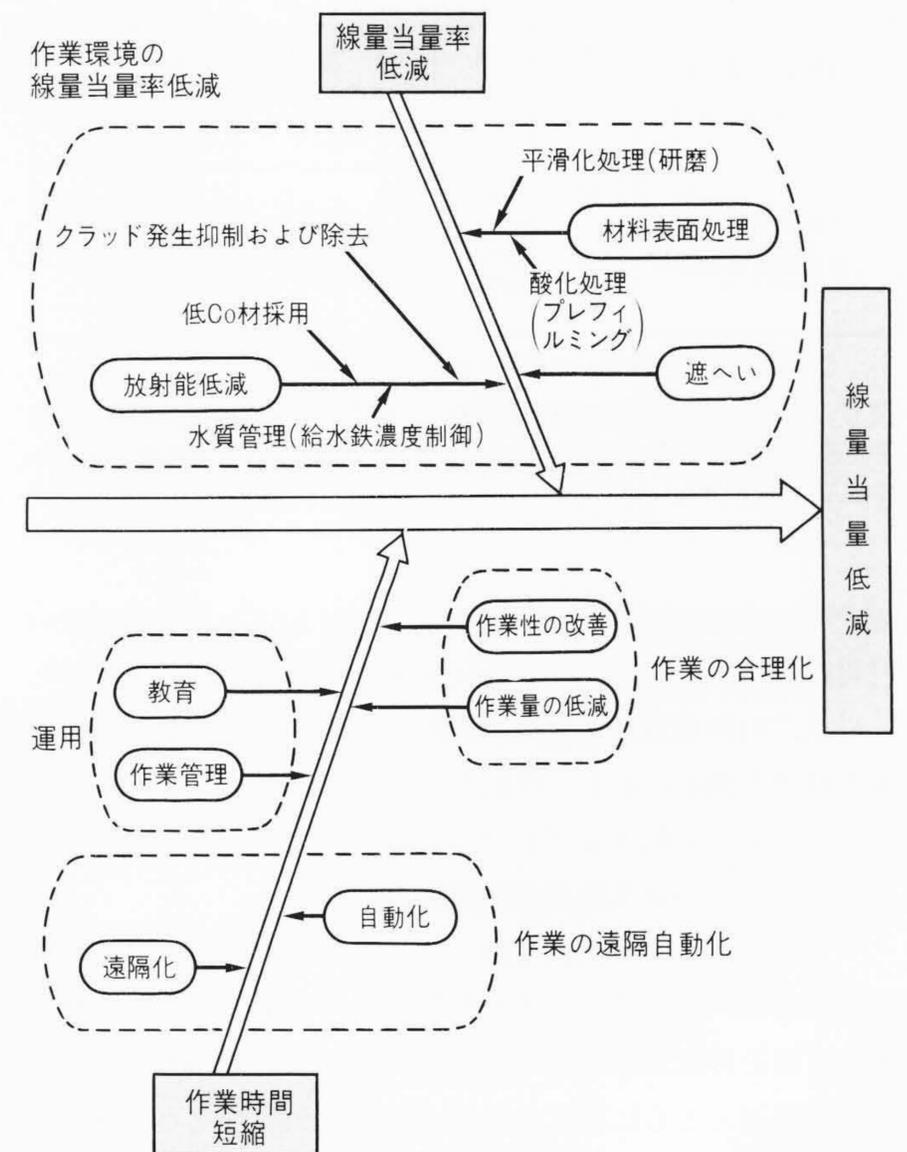
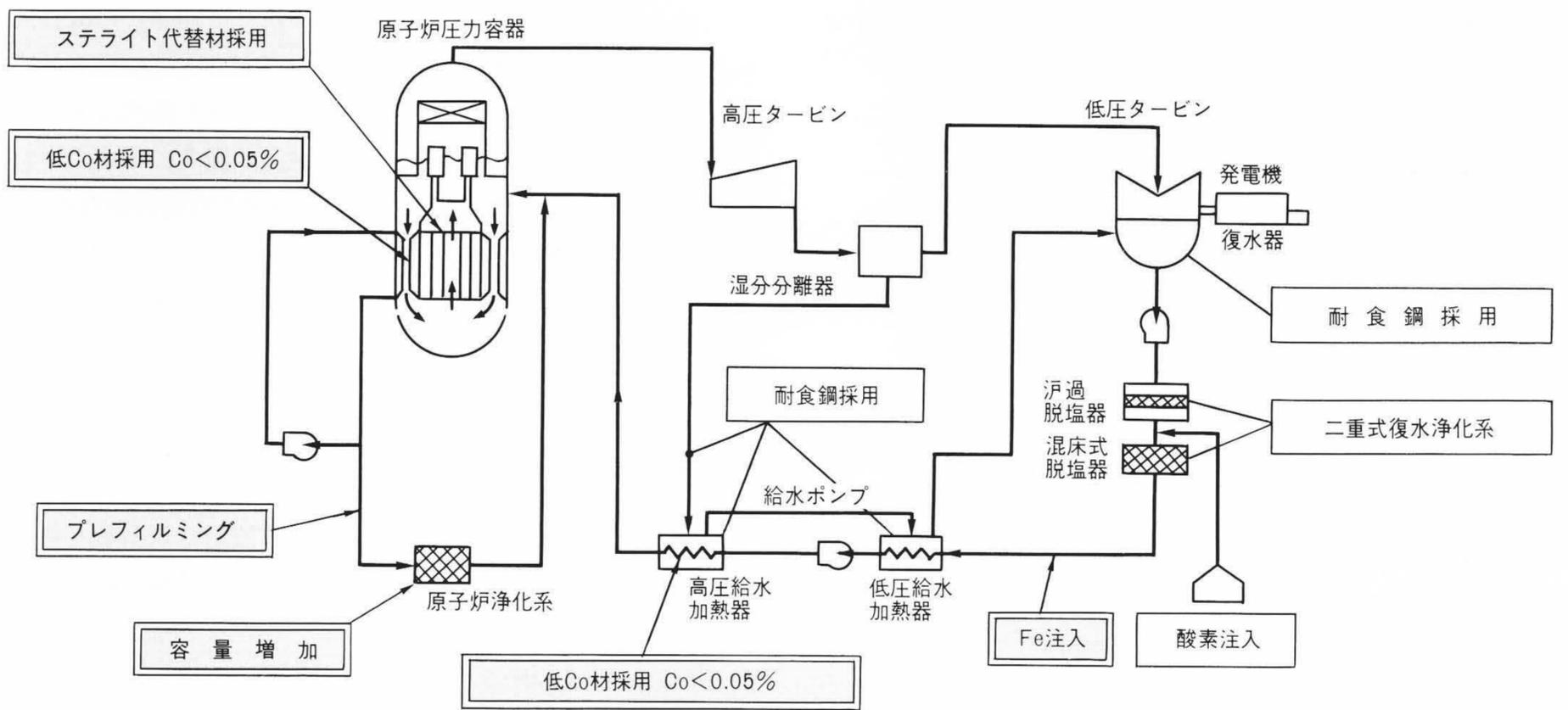


図4 線量当量低減の考え方 線量当量低減は、源となる線量当量率の低減と作業時間の短縮に区分される。対策としては、まず線量当量率の低減に重点を置いた。



注： □ は鉄クラッド低減対策，▣ はCo低減対策

図5 低放射能システム ^{60}Co の親元素である非放射性的のCoおよび ^{60}Co 放射能のキャリアとなる鉄それぞれを低減し、低放射能化を図っている。

プラント	福島 II-1	福島 II-2	福島 II-3	柏崎刈羽1	福島 II-4	島根 2
鉄クラッド低減	○	○	○	○	○	○
Co低減	△	○	○	○	○	○
放射能付着抑制 プレフィルミング	×	×	△ (核加熱延長)	○ (O_2)	○ (pH)	○ (pH)
放射能濃度低減 給水鉄濃度制御	×	△ CFバイパス 17% (試験)	△ CFバイパス 37%	△ CFバイパス 50%	○ (鉄注入)	○ (鉄注入)

注：○ (採用), △ (採用したが不十分), × (不採用)

図6 線量当量率低減対策の適用 鉄クラッドおよびCo低減に加えて、運転改良としてのプレフィルミングおよび給水鉄濃度制御を適用してきている。

る。 ^{60}Co の発生量は、Co基合金の代替材およびCo含有量の低い材料の採用により、初期プラントの40%にまで低下している⁸⁾。

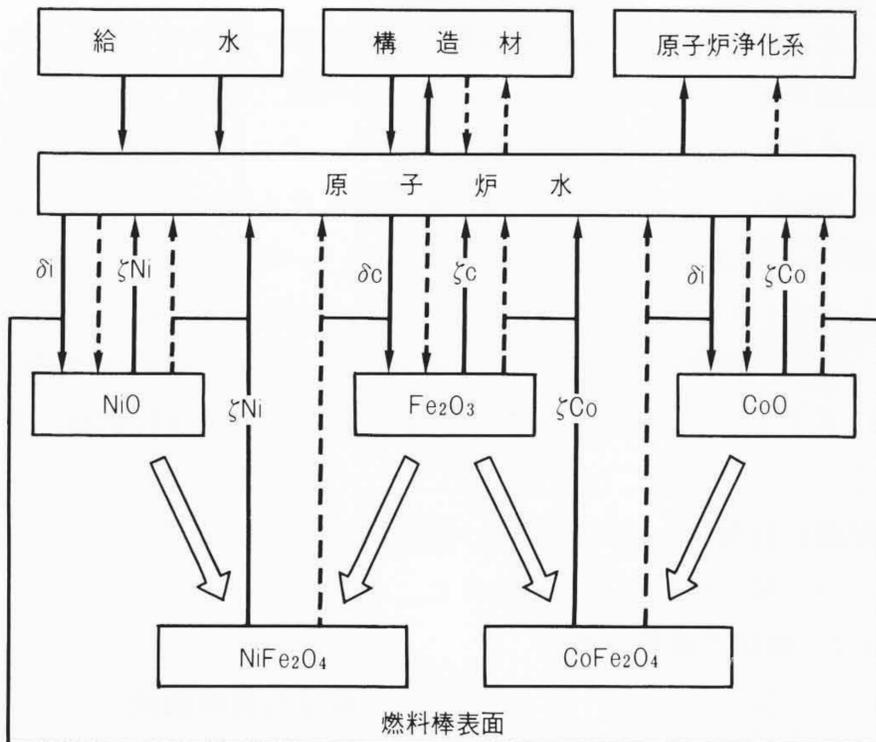
以上の材料選定に加えて、運転中の水質管理の改良技術の適用経過を図6に示す。運転中の水質管理改良技術としては、放射能付着を抑制するプレフィルミング技術と、炉水放射能濃度を低く保つ給水鉄濃度制御があげられる。

プレフィルミング技術とは、プラント運転の初期または運転開始前に、強制的に一次系配管機器の内面に耐食性の高い酸化皮膜を形成させるものである。冷却水中の放射能濃度は、運転の経過とともに腐食生成物の放射能が進むため、運転時間が長くなるにつれて上昇する。放射能は、酸化皮膜の成長とともに皮膜中に取り込まれて蓄積するので、プラント運転開始後放射能が高くなった時点での放射能取込み速度を抑制

することを目的としている。

給水鉄濃度制御は、燃料棒表面に付着した腐食生成物を溶出しにくい形態に制御し、炉水中への放射能の溶出を防ぎ炉水の放射能濃度を低く保つものである。BWRの腐食生成物は、プラントの主構成材料である炭素鋼およびステンレス鋼から発生するFeおよびNiが主である。放射能上昇寄与の大きい ^{60}Co 源となる ^{59}Co はNi濃度の $\frac{1}{100}$ のオーダーで存在している。燃料棒表面上に付着する腐食生成物は、図7に示すような各種の酸化物の形態をとる。従来、鉄クラッドの多かったプラントでは、鉄酸化物の形態は Fe_2O_3 が大半で、NiおよびCoなどは NiFe_2O_4 および CoFe_2O_4 の複合酸化物であった。最近の鉄クラッドを低減したプラントでは、Niに対しFe濃度が少ないケースが生じ、 NiO 、 CoO などのモノオキサイドが生成してると考えられた。実験によれば、BWR炉水条件では NiO 、 CoO 溶出速度は、 NiFe_2O_4 、 CoFe_2O_4 に対し5～10倍程度高い。このため、放射化した腐食生成物が燃料棒表面から溶出しにくい酸化物形態にするため、給水中のFe濃度をNi濃度の3倍～5倍に制御を行う鉄濃度制御法を開発し適用している。なお、CoはNiと類似の化学的挙動をとることと、前述のように量的にNiの $\frac{1}{100}$ オーダーであるため、Fe量をNi量との比で制御している。

これらのFeおよびCoクラッドを低減する材料選定と、水質管理改良技術を適用したプラントでは、図8に示したように第1回定期検査時の原子炉格納容器内再循環配管の表面線量当量率は、0.3 mSv/h程度に低下してきた。このように放射線源量を小さくする一方では、線源から放出される放射線を遮へいして、作業環境を広範囲に改善してきた。



注： δ (付着速度), ζ (溶出速度), — イオン, ---- クラッド, \rightleftharpoons 形態変化
 図7 燃料棒付着腐食生成物の化学形態変化 燃料棒表面に析出したクラッドおよびイオンは酸化され、元素の存在量に応じてその形態が変化する。

プラント設計、建設段階から壁厚などにより区画遮へいを施しているが、検査点検対象となる機器・配管へは、当初定期検査開始直後に線源となる機器・配管を鉛毛マットで包んだ。その後、この鉛毛マットを包みやすいようにフックを設置したり、特に他に比べ線源が強く、かつ検査点検頻度のまれなところは鋼板や鉄板による恒久化を進めた。

以上の作業環境の線量当量率低減と平行して、図9に示すような作業の遠隔自動化や作業の合理化などによる作業時間を短縮するような対策メニューを作成し、プラントごとにその適用範囲を電力会社と協議して選定した。

以上のような技術を効果的に組み合わせたことにより、図8に示すように第1回定期検査時の被ばく線量は、福島第二・2号機以降大幅に減少し0.2人・Sv以下に低下してきている。このようにBWRでは、第1回定期検査時のプラント線量当量率を低く抑え、通常定期検査作業で従事者の受ける放射線量当量を0.2人・Sv以下とする技術が定着してきている。

4 島根2号機の実績

島根2号機は、出力820 MWのBWRで1989年2月10日に営業運転を開始した。その後、1990年2月から第1回定期検査を開始し、1990年5月に終了した。第1回定期検査で作業員の受けた放射線量当量は0.15人・Svと国内できわめて低い数字を記録している。

4.1 水質管理計画

島根2号機は、これまでの技術の蓄積から図5に示した低放射能プラントの設計を採用しており、加えてプレフィルミングおよび給水鉄濃度制御の水質管理改良技術を適用している。

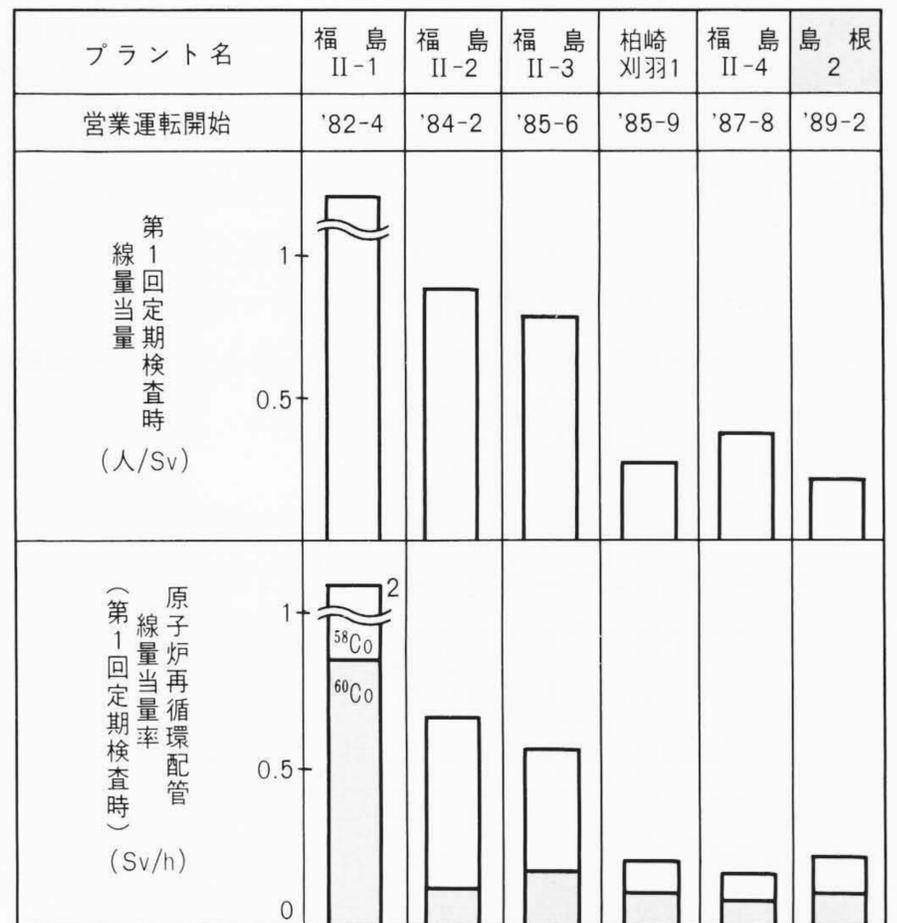
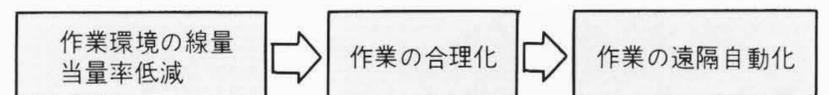


図8 第1回定期検査時のプラント線量当量率と被ばく線量 営業運転開始が新しいプラントほど線量当量率が低下し、従事者の受ける線量当量が低下しており、対策が着実に改良されていることを示している。

被ばく低減の考え方



方法	改良標準化項目		
	低減	<ul style="list-style-type: none"> 給水系への酸素注入 汎用式復水脱塩装置の採用 給水再循環配管の設置 低Co材の採用 主蒸気ノズル水封プラグの採用 	<ul style="list-style-type: none"> 改良型格納容器の採用 作業スペースの確保 一逃し安全弁搬出入ハッチの設置 弁分解、搬出入専用モノレールの設置 一階段、プラットフォームの増設
福島II-2	<ul style="list-style-type: none"> 耐食性鋼の採用 原子炉一次系配管ルート改善 仮遮へいの設置 フラッシングの実施 	<ul style="list-style-type: none"> 溶接線の削減 	
法	<ul style="list-style-type: none"> Co蓄積抑制処理の採用 給水鉄濃度制御実施 	<ul style="list-style-type: none"> 点検頻度の見直し 	<ul style="list-style-type: none"> 自動監視ロボットの採用(高線量率エリアの巡視点検) 除染ロボットの採用(床、配管の除染)

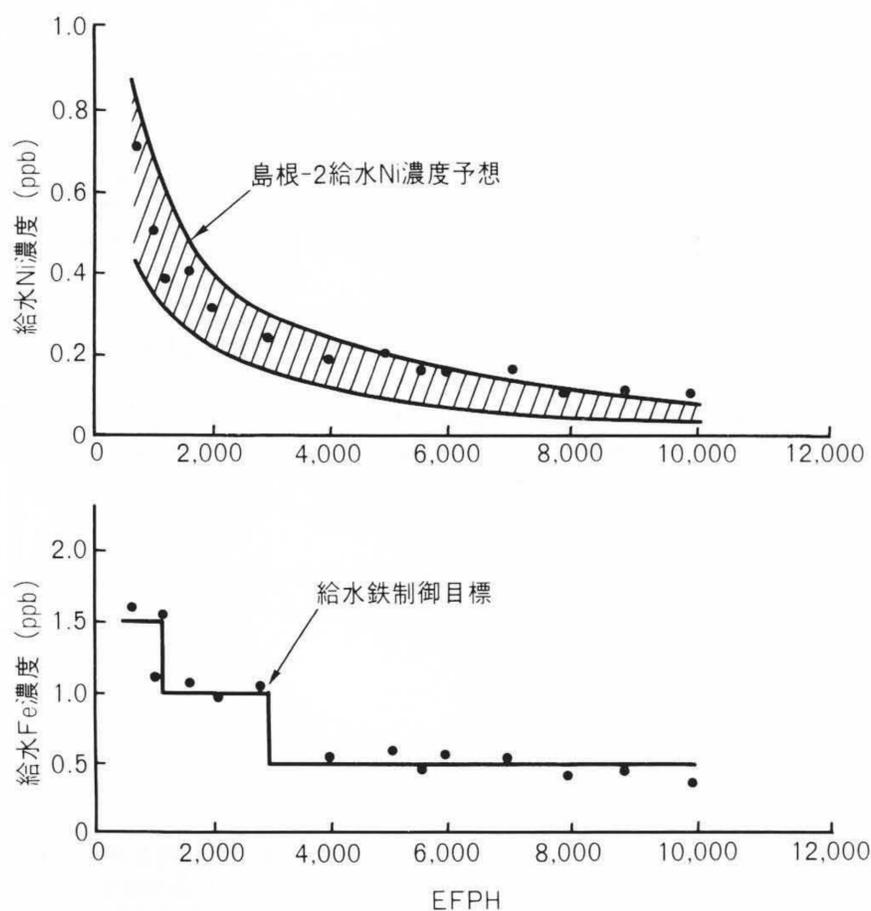
注：略語説明 ISI (In-Service Inspection：供用期間中検査)

図9 被ばく低減の考え方と低減方法 まず全作業共通に効果的な環境の線量当量率低減を行い、次に個別作業の線量当量低減を行った。

プレフィルミングについては、福島第二・4号機で採用したと同様な炉水pH制御によるプレフィルミング法を、起動試験開始時の核加熱試験期間に実施した。原子炉水がほぼ定格温度の280℃以上になった時点から、原子炉水のpHを8~8.5の弱アルカリ条件に制御した。pHの制御は原子炉浄化系の2塔の過脱塩器のうち1塔にNa型のカチオン粉末樹脂をプリコートし、流出するNaOHによってpHを上昇させた。pH制御によるプレフィルミング処理付着制御効果も、福島第二・4号機と同程度と評価している⁸⁾。

給水鉄濃度制御は、先行機の実験からその開始時期によって炉水放射能濃度のピーク現象を記録していることから、そのピーク濃度を除去するよう制御性の良い鉄注入装置を福島第二・4号機から設置し運用してきた。島根2号機では、さらに運転開始前に図10に示すような計画値を設定して制御を行った。まず、給水中のNi濃度を推定し、FeがNi量の3倍となるよう目標値を設定した。給水中のNi濃度は、主に給水加熱器のステンレス鋼製チューブからの溶出で決まっており、最近のプラントの実績では、図10の推定値の範囲に入って経時的に低下している。これに対しFe濃度は、積分値で3倍となるようステップ状の制御を計画した。

鉄濃度制御は、復水脱塩器出口に設定した電解鉄発生装置を用いて、75%出力試験段階から開始した。鉄濃度制御結果は、図10にみられるように計画した給水鉄目標値どおりである。



注：略語説明ほか
EFPH (Effective Full Power Hour：実効出力運転時間)
●は実績を示す。

図10 給水鉄濃度制御計画と実績 給水鉄注入により、給水Ni濃度予想値に基づいて計画した給水鉄濃度制御値に対応した実績が得られている。

った。給水中のFeおよびNi濃度の実績は、図11に示すように運転初期でNiが0.5 ppb、Feが1 ppb程度であり、第1サイクル末期ではNiは0.1 ppbまで低下した。それに伴いFe濃度も、0.5 ppb以下まで下げている。第1サイクルでは原子炉への金属持込量はFeで30 kg、Niで8 kgであり、当初目標として設定したサイクル間の積分値としてNi量の約3倍量のFe量となった。

給水鉄濃度制御によって、原子炉水中の放射能濃度は図12に示すように、配管への放射能蓄積速度の速い運転初期に濃度ピークを持つことなく推移した。その結果、原子炉浄化系配管に付着した放射エネルギーは、図13に示すように最近のプラント中で最も低いレベルにできた。

4.2 被ばく線量当量

日立製作所ではプラントの被ばく線量当量率低減については、複数の被ばく要因が複雑に絡み合っており、かつ電力会社で決定される細かな運用改善まで検討対象とする必要があった。このため、図14に示すような計画タスクおよび実行タスクを作り推進してきた。計画タスクは設計部門を中心に設備改善の実行タスクは定期検査実施部門を中心に運用改善を主体とした検討を行った。島根2号機では計画タスクは建設

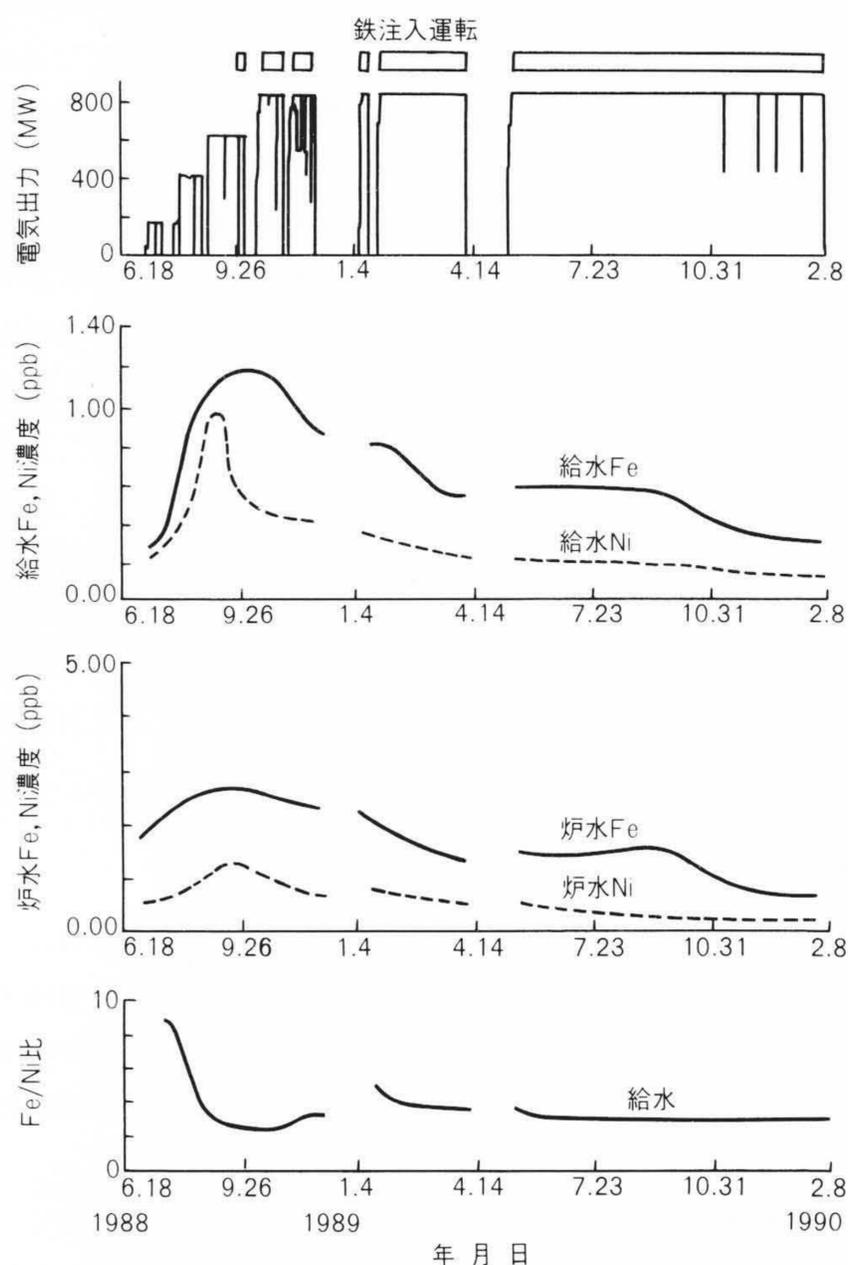


図11 島根2号機給水鉄濃度制御実績 給水Ni濃度は経時的に減少していくため、Fe/Ni比を制御するための必要鉄量も少なくなる。

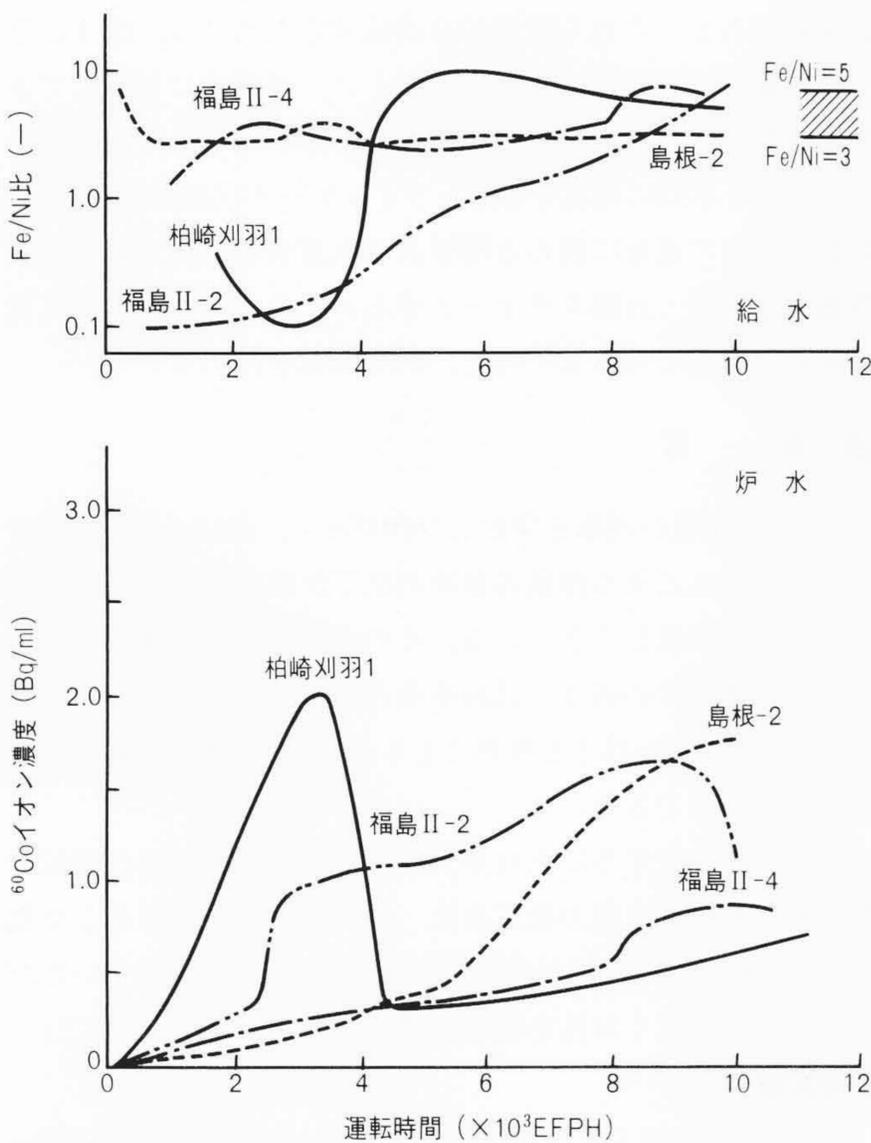
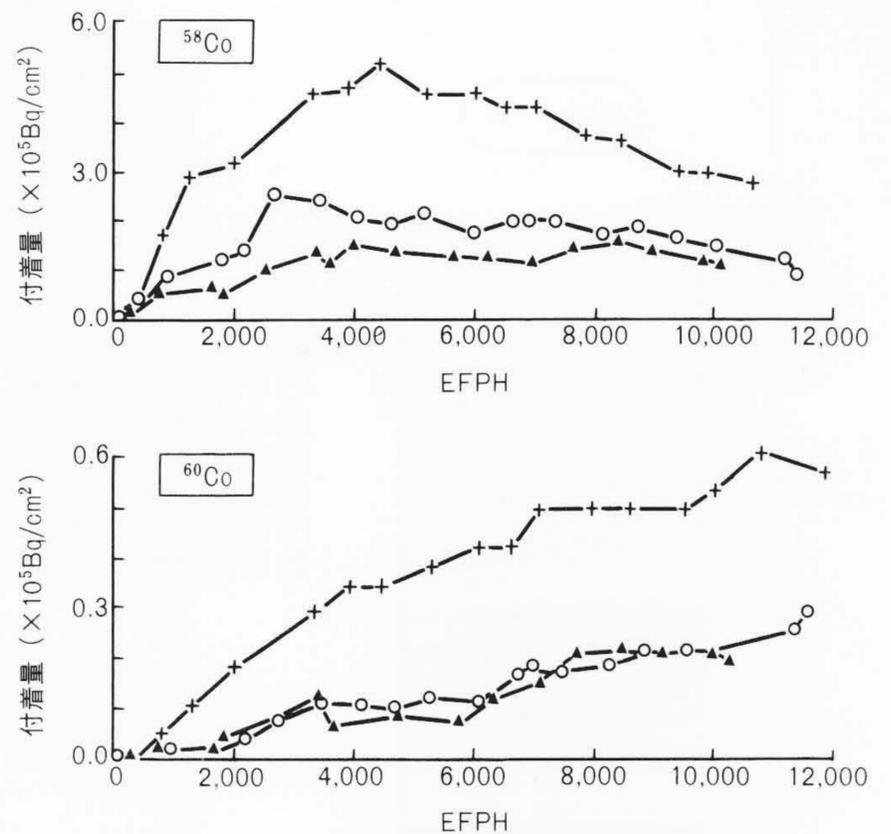


図12 給水鉄濃度制御と炉水放射能 給水中への電解鉄注入により、鉄濃度制御を行った福島第二・4号機および島根2号機では、初期の放射能濃度を効果的に抑制している。

後期から活動を開始し、先行機の実施例を参考に機器分解の遠隔自動化装置の開発、点検時の機器の分解操作性、遮へい設計などの作業計画の検討を現地調査をも含めて実施した。さらに、運転開始以降の水質監視結果により、定期検査時の線量当量率の予測を行った。

実行タスクでは、計画タスクで評価した雰囲気線量当量率



注：--+ 柏崎刈羽1，-o- 福島II-4，-▲- 島根-2
柏崎刈羽1（東京電力株式会社柏崎刈羽原子力発電所1号機）

図13 原子炉浄化系付着放射能の経時変化 プレフィルミングおよび給水鉄濃度制御を効果的に行うことにより、配管への付着放射能を抑制できる。

をもとに、定期検査作業ごとに作業分析を行い、被ばくを下げるための作業改善、作業者のモックアップ訓練など具体的な低減要領の実行を計画した。そして、定期検査期間中ではサイト所長、放管責任者などのラインが中心となり、作業者の被ばく低減意識の向上を図るため、きめ細かな指導・助言を行った。

以上の電力会社との協議に基づく各種低減対策の実施によって第1回定期検査時の被ばく線量当量は、図15に示すように0.15人・Svとなった。島根2号機の設計上の特徴の一つとして、最近の先行BWRと比較して分解点検時の被ばく線量当量が高い原子炉浄化系のポンプを、系統内でも水温の低い熱交換

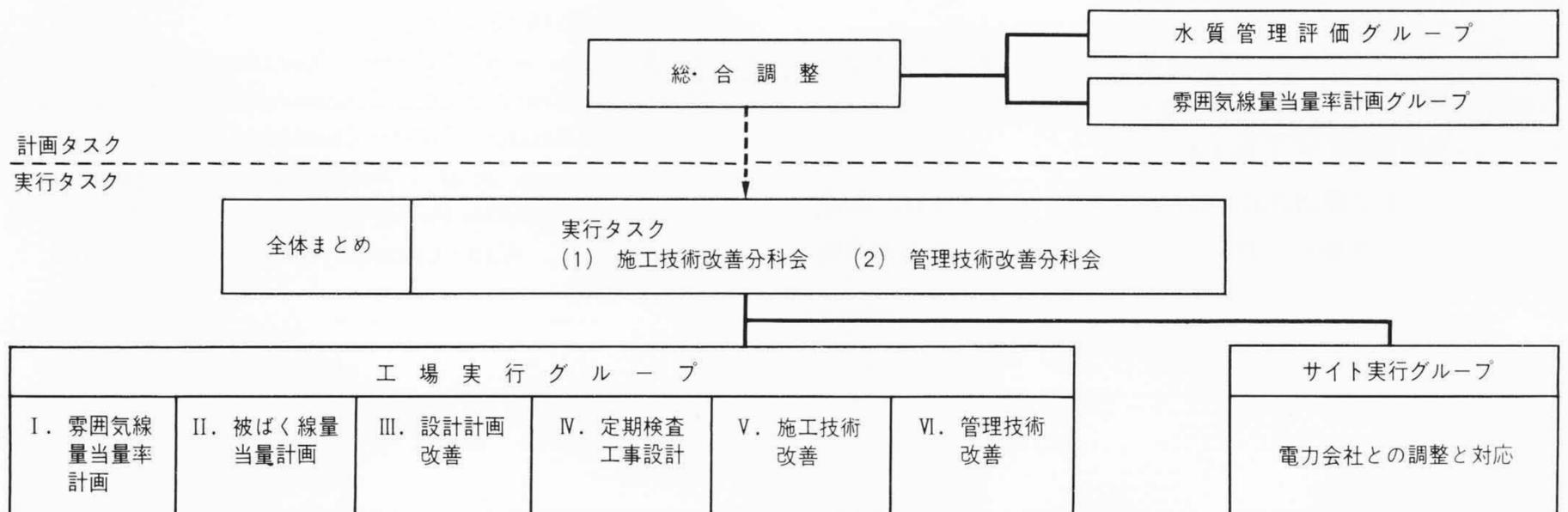


図14 被ばく低減実行計画組織 計画タスクと実行タスクに分けて計画を進めた。実行タスク、計画タスクで評価した雰囲気線量当量率をもとに定期検査項目ごとの作業分析を行い、低減要領の作成、作業指導を実施した。

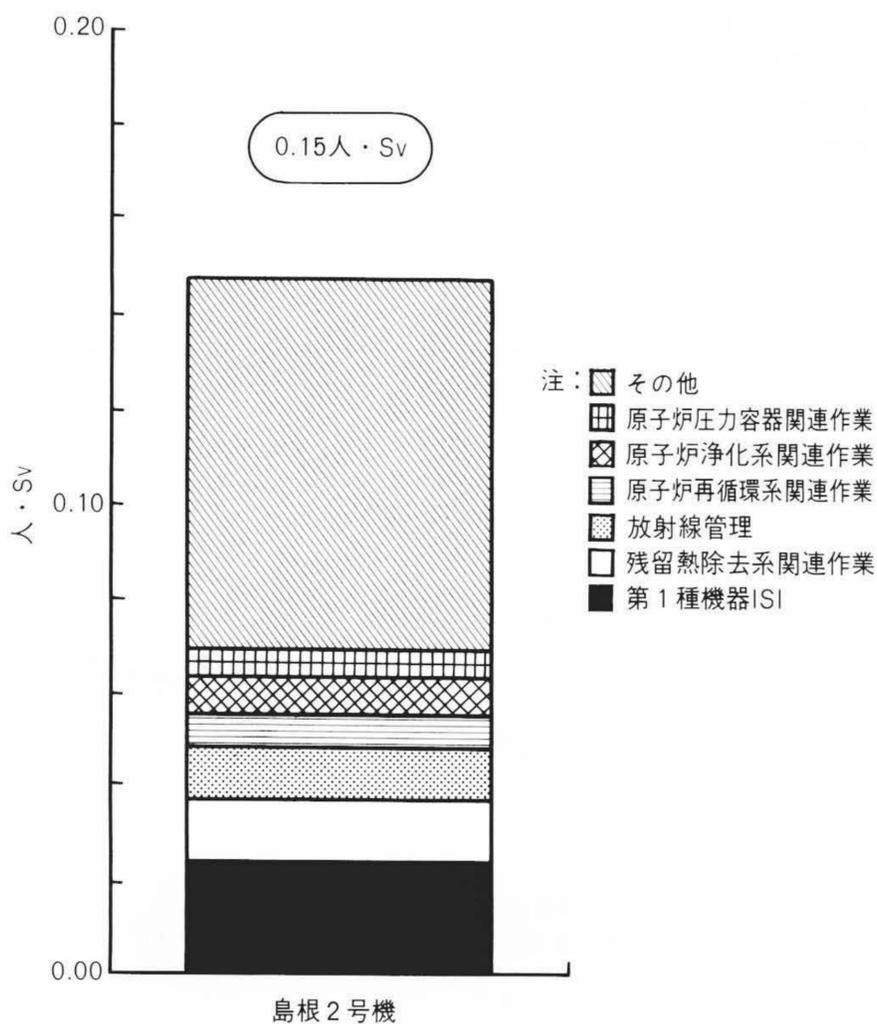


図15 島根2号機第1回定期検査線量当量 どの作業項目の線量も小さくなっており、特別に線量の大きな作業項目はなくなっている。

器の出口に設置している。このため温度が低いので放射能の付着が少なくなり、点検時の線量当量率が小さかったことである。

このようなポンプ配置は、システムの異なる東京電力株式会社 柏崎・刈羽原子力発電所5号機以降のプラントでも採用済みであり、同様な低減効果が期待できる。

また、原子炉格納容器内再循環配管や、原子炉浄化系配管には、全面的に鉄板製や鉛入り保温材による恒久遮へいを施し、原子炉格納容器内全体にわたりきめ細かく放射線量当量率を低減したことがあげられる。

5 今後の水質管理技術の展開

定期検査時での従事者の受ける線量当量低下の面で、BWRの水質管理はプラント初期定期検査で0.2人・Svを達成しており、ほぼ目的を達したと言える。

しかし、過去に建設されたBWRの被ばく線量当量は、新規建設プラントに比較して高く、それを低下させることが重要

な課題である。これらの目的を達成するためには、図1に示した水質管理改良技術の開発とともに、長期的に蓄積してきた水質放射能データを利用した水質診断システム、通常値からの逸脱を早期に発見するオンラインデータ収集装置の拡充、および電力の運転に携わる関係者や水質管理に携わる関係者の迅速な判断・評価をサポートするエキスパートシステム化が重要な課題であるにとらえ、研究開発を進めている。

6 結 言

国内でBWRが運転を開始した初期から、被ばく低減の面で水質管理改良による線量当量率の低下が重要と認識し、その技術開発を推進してきた。その成果として、新設プラントでは作業面での被ばく低減技術と相まって、第1回の定期検査で0.2人・Sv以下と世界でもきわめて低い被ばく線量を達成することができた。

これらを達成するにあたり、プラントの設計および運転管理にあたり、東京電力株式会社、中国電力株式会社および他の電力会社関係各位から豊富な経験に基づくご指導をいただいた。ここに厚くお礼を申し上げる。

参考文献

- 1) 高島, 外: 原子炉冷却水の放能低減, 日立評論, **62**, 663~666(昭55-9)
- 2) 三木, 外: 低線量を目指した沸騰水型原子炉一次冷却系のシステム設計, 日立評論, **64**, 563~566(昭57-8)
- 3) 今野, 外: プラントのシステム設計, 日立評論, **66**, 261~266(昭59-4)
- 4) S. Uchida, et al.: Estimation of Shutdown Dose Rate around Recirculation Pipes during Operating Life of Boiling Water Reactors, J. Nucl. Sci. Technol., **17**, 119(1980)
- 5) K. Otoh, et al.: Operating Experience in the Second Unit of Fukushima-Daini Nuclear Power Plant, ENC '86, ENS(1986)
- 6) S. Uchida, et al.: BWR Plants with Low Radiation Level, J. Nucl. Sci. Technol, **24**, 593(1987)
- 7) 大角, 外: 放射線量の低減対策—現状と展望—, 日立評論, **70**, 417~422(昭63-4)
- 8) Y. Asakura, et al.: Current Operating Experience with Water Chemistry in Crud Concentration Suppressed Boiling Water Reactors, Water Chemistry 5, Paper 30(1989)
- 9) Y. Takashima, et al.: Water Chemistry Experience at the Shimane Nuclear Power Station Unit 2 and Application of the Unit 1, Water Chemistry 5, Paper 27(1989)