

解	説
---	---

軽水炉一次冷却系における放射線量率低減対策

目黒芳紀*¹, 赤川吉寛*¹

(1984年1月20日受理)

Reduction of Radiation Dose Rate in LWR Primary Cooling System

Yoshinori MEGURO*¹ and Yoshihiro AKAGAWA*¹

KEY WORDS: radiation dose reduction, corrosion product, activity build up, corrosion inhibition, crud removal

1. はじめに

わが国における軽水冷却型商業用発電炉（軽水炉）は、昭和45年3月に敦賀発電所1号機（沸騰水型原子炉、電気出力35万7千kW、日本原子力発電株式会社）が初めて営業運転を開始して以来、十数年の運転経験を経て、現在では全国で23基（沸騰水型原子炉12基、加圧水型原子炉11基）、合計設備容量約1,700万kWの軽水炉が運転中であり、いまや総発電電力量に対する原子力発電の割合は20%近くを占めるにいたり、ますます石油に代る将来のエネルギー源として期待されている。

一方、原子力発電所の運転基数、運転年数の増加とともに従業員の作業被曝線量も増加の傾向にあることが知られており、原子力発電を定着させるため、その低減化が望まれている。

原子力発電所における従業員被曝は、機器等の信頼性、作業量、作業場の放射線量率等と深い関連があり、それぞれ低減化対策が進められているが、ここでは、一次冷却系放射線量率低減対策の一環として炉心外一次冷却系配管・機器表面に付着した放射化腐食生成物による放射線量率増大に着目し、その低減策として、沸騰水型

原子力発電所（BWR）、加圧水型原子力発電所（PWR）が各々実施して来た腐食生成物の発生抑制と除去方針について報告する。

2. BWRにおけるクラッド低減対策

BWRでは、第1図に示すように、原子炉で発生した蒸気で直接タービンを駆動している。これらの蒸気は復水器により冷却されたのち、復水浄化系で全量浄化され給水系を経て再び原子炉へ送られ加熱される。復水系、給水系で発生した微量の鉄、コバルト等の腐食生成物が原子炉内へ持ち込まれ、炉心において中性子の照射を受け、⁶⁰Co、⁵⁸Co、⁵⁴Mn等の放射化腐食生成物となる。

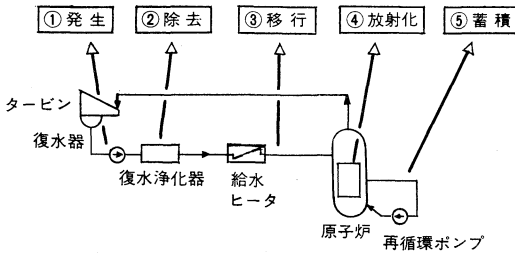
原子炉への腐食生成物持ち込み量が炉心（特に燃料被覆管表面）での付着限界量を越えた時、また炉心における沸騰現象あるいは原子炉の停止等による冷却材の熱流動特性の変化が生じた時等に、付着していた⁶⁰Co等の放射化腐食生成物が原子炉水中に脱離し、原子炉再循環系、原子炉浄化系等原子炉廻りの一次冷却系機器・配管内を循環中、これらの内表面に蓄積し一次冷却系における放射線量率を上昇させることとなる。

したがって、一次冷却系における放射線量率の低減、すなわち⁶⁰Co等の放射化腐食生成物の機器・配管内表面への蓄積を抑制するためには、

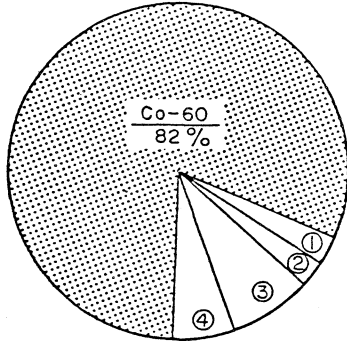
“腐食生成物の原子炉内への持ち込み抑制による炉心での放射化および炉水への脱離防止（クラッド低減対策）”が重要である。

第1図に腐食生成物の挙動、第2図に一次冷却系配管

*¹ 日本原子力発電(株)技術開発部; 東京都千代田区大手町1-6-1 (〒100)
Engineering Development Department, The Japan Atomic Power Company (1-6, Ohtemachi 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100, Japan).



第1図 BWR 一次冷却系における腐食生成物の挙動¹⁾



第2図 BWR 一次系配管に蓄積した放射化腐食生成物組成²⁾

- ① Ru-103 etc (2.2%) ② Fe-59 (2.3%)
 ③ Mn-54 (7.7%) ④ Co-58 (5.8%)

内表面に付着した放射化腐食生成物の線量寄与率を示す^{1,2)}。

BWR における十数年にわたる運転経験をもとに、給・復水系、原子炉水等一次冷却系水中の腐食生成物の挙動を原子炉停止時、起動時、通常運転時と発電所の運転モードごとに整理してみると、定期検査終了後の原子炉起動時に原子炉内へ持ち込まれる腐食生成物の量が、通常運転時の持ち込み量に対してかなりの割合を示すことが敦賀発電所の例などにより判明した³⁾。

この結果を踏まえ、腐食生成物の発生抑制および原子炉内への持ち込み抑制をより効果的に行うため、下記のごとく発電所の運転モードに合わせた適切なクラッド低減対策を実施している。

2.1 停止時対策

BWR においては、運転時に炉心で沸騰現象を伴うこと、および放射線による分解または放射化により放射性物質濃度が増加すること等のため従来の火力発電所で行って来たような薬品による防錆処理の適用が難しいので、運転中の一次冷却系統の水質を第1表のごとく高純

度に保ついわゆる中性純水処理を行っている²⁾。したがって、原子炉停止時においても薬品注入保管による防錆対策を講じることは困難であり、発電所停止期間に応じて以下の二通りの対策を使われている。

(1) 乾燥保管

定期検査等により発電所が長期間停止する場合、停止から6~7時間後の給水温度がまだ60°C程度あり、配管が温かい状態で給水系の保有水を液体廃棄物処理系に排水(ホットドレンオフ)し、配管の残留熱によって給水配管内表面を乾燥させる。

このホットドレンオフによる乾燥保管は、従来の原子炉を停止したあと長時間を経た冷温状態で給水系の保有水を系外へ排水し、湿潤状態のまま放置し、給水加熱器の点検等の作業により給水系に新鮮な空気を入れ、腐食雰囲気を作ってしまう冷温時排水方法と比較して防錆対策上極めて優れた効果を挙げている。

(2) 再循環満水保管

短期間の停止等で上記(1)の保管対策が適用できない場合、最終段の給水加熱器出口から復水器ホットウェルへの戻り配管を利用して常時満水状態で再循環させる。この時、復水脱塩装置を用いて再循環水の水質を高純度に保ち、電気化学的腐食を抑制しながら飽和状態にある溶存酸素(約8ppm)で給水配管内面の酸化鉄保護被膜を維持する³⁾。

この方法も停止時給水系の保管方法として防錆対策上優れた効果を挙げている。

2.2 起動時対策

定期検査等による長期停止後の起動直前(7~10日ほど前)に前述2.1(2)再循環満水保管の要領で給・復水系をフラッシングし、停止中に給・復水系配管内表面に発生した腐食生成物を復水浄化系で除去した後、原子炉を起動することにより、停止中に発生した腐食生成物の原子炉内への持ち込みを抑制する。なお、停止時保管対策との併用により、より一層の効果が得られている。

2.3 通常運転時対策

通常運転時の原子炉内への腐食生成物持ち込み量を抑制するため、適正材料選択による復水系、抽気系での腐食・浸食防止、発生した腐食生成物を効果的に除去するための復水浄化系除鉄率の向上および溶存酸素濃度コントロールによる給水系での腐食生成物発生防止等の対策が現在各発電所において採用されている。

(1) 材料選定

BWR における腐食生成物のおもな発生源はタービン復水器周辺(抽気系、ヒータドレン系を含む)である。初期のBWRでは、この系統の材料として炭素鋼を使用

第1表 BWR 一次冷却系水質管理概要²⁾

	Item	Water Quality Specification	Deep Bed Plant		Dual Purification Sys. Plant
			A	B	C
Feed Water	Conductivity ($\mu\text{S}/\text{cm}$ at 25°C)	≤ 0.1	0.06	0.06	0.1
	pH (at 25°C)	6.5 to 7.5	—	7.0	—
	DO (ppb)	20 to 200	36	39	14
	Fe (ppb)				
	Soluble		0.05	0.01	0.01
	Insoluble		0.80	0.86	0.41
	Co (ppt)				
	Soluble		0.97	14	120
	Insoluble		0.10	0.7	10
Reactor Water	Conductivity ($\mu\text{S}/\text{cm}$ at 25°C)	≤ 1.0	0.13	0.28	0.1
	pH (at 25°C)	5.6 to 8.6	7.3	8.1	6.9
	DO (ppb)		280	230	160
	Fe (ppb)				
	Soluble		0.02	0.01	LTD
	Insoluble		3.5	6.8	0.19
	Co (ppt)				
	Soluble		8.7	18	30
	Insoluble		0.7	9.2	LTD
	^{60}Co ($\mu\text{Ci}/\text{mL}$)		7.1×10^{-5}	1.4×10^{-4}	5.0×10^{-5}
^{131}I ($\mu\text{Ci}/\text{mL}$)		5×10^{-5}	3×10^{-6}	—	

していたが、その後の試験結果に基づき最近では復水器構造材等は耐候性鋼、エロージョン等の生じやすい抽気系には低合金鋼を採用し、腐食生成物発生量を抑制している。

また、コバルトの主要発生源である給水加熱器管材および制御棒のローラ部材については、それぞれ低コバルトステンレス鋼、コバルトフリー合金等が使用されつつある⁴⁾。

(2) 溶存酸素コントロール

復水浄化系下流側において発生した腐食生成物は、そのまま給水系を通過して原子炉内へ持ち込まれる。したがって BWR では、給水系における防錆対策の強化が重要な役割をもっている。

配管・機器等の金属内表面の防錆を図るためには鋼を不動態化する必要がある。BWR のような中性純水処理を行っているプラントにおいては、溶存酸素、過酸化水素等の酸化剤を用いて鋼を不動態化電位（フラード電位より高めで再活性化電位以下）に保つことにより不動態化する方法が用いられている。

わが国における具体的方策としては、復水浄化系出口

配管等より酸素ガスを注入することによって給水中の溶存酸素濃度を適正值（20~60 ppb）に調整し、鋼の不動態化を図っている。これにより給水配管内面に安定な酸化被膜を形成、維持し、配管等からの鉄の溶出を抑制する方法が広く採用され、その有効性が実証されている^{3),5)}。

(3) 復水浄化系除鉄性能向上

前記(1)で述べたように BWR における腐食生成物のおもな発生源はタービン復水器周辺（抽気、ヒータドレンを含む）である。これらの腐食生成物を原子炉内へ持ち込ませないためには、復水浄化系において腐食生成物を効率的に除去する必要がある。

現在、わが国の最新の BWR では粉末イオン交換樹脂を用いた前置濾過器（フィルタ脱塩器）と混床式脱塩器をシリーズに運転する復水浄化系を採用する傾向にあり、この浄化系を採用しているプラントでは復水浄化系出口水の鉄濃度は 1 ppb 以下という結果を得ている。

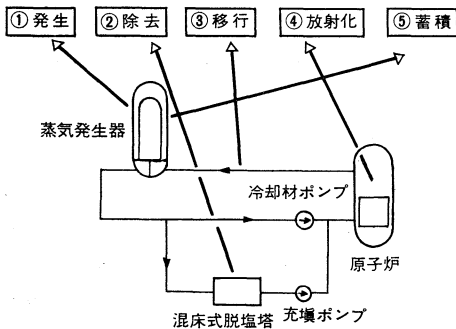
一方、既設の発電所においては、設置場所等の問題でフィルタ脱塩器の追加設置が難しい等の制約もあり、混床式脱塩器だけで除鉄性能を向上させるべくその除鉄メ

カニズムの検討を含めて除鉄性能向上の具体策の検討を行っている。

その結果、復水中の不溶性腐食生成物(クラッド)が復水脱塩器のイオン交換樹脂に捕集される除鉄メカニズムとしてはクラッド・イオン交換樹脂間の静電力(ゼータ電位差)による吸着であるとの判断に基づき、イオン交換樹脂の平均粒径を従来の720~780ミクロン程度から600ミクロン程度へと小粒径化することにより、イオン交換樹脂の表面積を大きくし、樹脂表面でのクラッド吸着量を増加し、除鉄性能向上を図るべく各種の試験・研究が実施され、ほぼ実用化の見通しが立って来ている⁶⁾。

3. PWR におけるクラッド低減対策

PWR は、第3図に示すように、原子炉で加熱された一次冷却材が、その熱を蒸気発生器(「STEAM GENERATOR」以下「S/G」という。)を介して二次冷却系へ伝達し、蒸気を発生させる。この二次冷却系蒸気によ



第3図 PWR 一次冷却系における腐食生成物の挙動¹⁾

ってタービン・発電機を駆動し発電を行う。S/G で熱交換された一次冷却材は再び一次冷却材ポンプにより炉心へ送られ加熱される。

このように一次冷却系と二次冷却系が S/G を介して完全に隔離されているため、両系統の水質はそれぞれ独立に管理されており、放射性物質は一次冷却系の限定された範囲に閉じ込められている。また、一次冷却系は高温高圧の条件下で、温度差の少ない単液相の密閉水循環回路で構成されている。

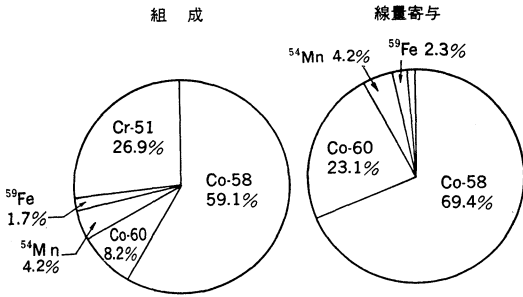
このような条件のもとに行われている PWR 一次冷却系の水質管理の特徴として挙げられるのは、ホウ酸による原子炉出力の化学制御と水酸化リチウムによる一次冷却材の pH コントロールである。さらに、燃料集合体および各機器の健全性を維持するために、水素を添加して水の放射線分解による酸素の発生を抑制するとともに系全体を還元性雰囲気保っている。第2表に一次冷却材の水質管理の状況を示す²⁾。

PWR における一次冷却系放射線量率の上昇機構も BWR 同様一次冷却系の機器・配管より発生した腐食生成物が、原子炉内で中性子の照射を受け放射化腐食生成物となり、一次冷却系機器・配管内表面に蓄積することに起因している。第3図に PWR 一次冷却系における腐食生成物の挙動を示す¹⁾。また、放射化腐食生成物の組成および放射線量率寄与については、第4図に示すようにおもに ⁵⁸Co と ⁶⁰Co であることが知られている²⁾。

⁵⁸Co は ⁵⁸Ni (天然存在比 67.76%) の (n, p) 反応により、また ⁶⁰Co は ⁵⁹Co (天然存在比 100%) の (n, γ) 反応により生成される。これらの放射化腐食生成物の組成、一次冷却系機器・配管の材質および一次冷却材との接液面積を考慮すると PWR の腐食生成物のおもな発生

第2表 PWR 一次冷却材水質管理概要²⁾

Species	Standard Value	Limit Value	Observed Value
Boron (ppm)	0-4.000	-	
Lithium (ppm)	0.2 (0.7)-2.2	2.2	
Hydrogen (cc/kg STP)	2.5-3.5	1.5-5.0	~3.0
pH (25°C)	4.2-10.5	-	6~7.5
Conductivity (μS/cm, 25°C)	1-4.0	-	
Oxygen (ppm)	≤ 0.005	≤ 0.1	< 0.005
Chloride (ppm)	≤ 0.05	≤ 0.15	< 0.05
Fluoride (ppm)	≤ 0.05	≤ 0.15	< 0.05
Iron (ppm)	≤ 0.05		< 0.01
Silica (ppm)	≤ 0.5		~0.3
Turbidity (ppm)	≤ 1		< 0.1



第4図 冷却材配管に沈着した放射性クラッド組成と線量寄与⁷⁾

源は S/G 伝熱管材のインコネル合金（ニッケル含有率 70% 以上）であることがわかる。

したがって一次冷却系における放射線量率の低減を図るためには、

“S/G 伝熱管からの腐食および腐食生成物の移行を抑え、原子炉内への持ち込み、炉心への付着および放射化を抑制するとともに、一次冷却系機器・配管内表面に蓄積した放射化腐食生成物を除去する。”

ことが重要である。

ここでは、放射化腐食生成物の発生抑制およびその除去方策について、それぞれの具体策を述べる。

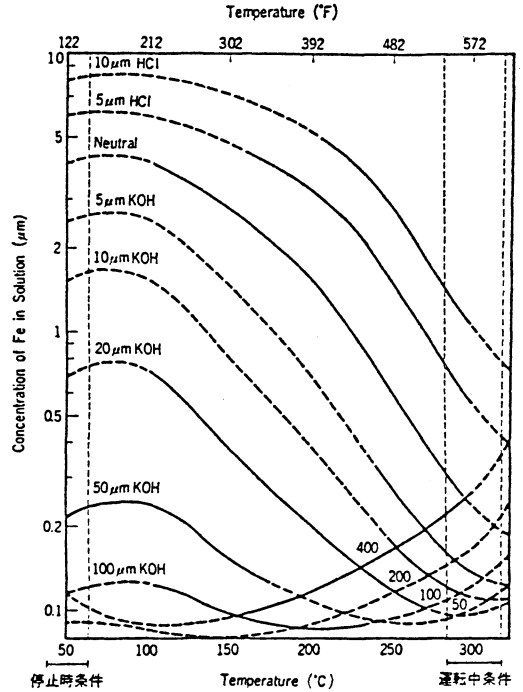
3.1 放射化腐食生成物の発生抑制

PWR 一次冷却系の腐食生成物はおもにニッケルフェライト ($Ni_xFe_{3-x}O_4$) であることが知られている。このニッケルフェライトと同じスピネル化合物であるマグネタイト (Fe_3O_4) の PWR 一次冷却系運転温度領域における溶解度と水酸イオン濃度 ($[OH^-]$) との関係を示す。

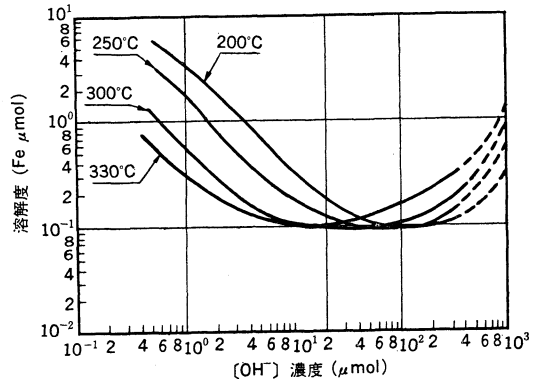
ニッケルフェライトも同じような挙動（溶解度）を示すと考えると、高 $[OH^-]$ 領域では高温になるほど溶解度は高くなる。また、運転中の S/G と燃料被覆管の表面温度を比較すると燃料被覆管の方が高温となっている。

したがって、pH 調整剤として添加されている水酸化リチウム (LiOH) により一次冷却材中の $[OH^-]$ を高くし、高 pH 領域にコントロールすること（高 pH 運転）により、低温側 (S/G) での溶解度に較べて高温側（燃料被覆管）での溶解度は高くなり、S/G での腐食生成物の溶出を抑制し、燃料被覆管表面への付着を抑制することができる^{1,7)}。

これら S/G 伝熱管での溶出抑制、燃料被覆管表面への付着抑制により、原子炉内への腐食生成物の持ち込み量低減および腐食生成物の放射化を抑制することとなり、一次冷却系放射線量率低減に対して効果を挙げている。



第5図 Fe_3O_4 溶解度⁷⁾ (H_2 : 1 atm at 25°C)



第6図 $[OH^-]$ 濃度に対する鉄の溶解度⁷⁾

第2表にわが国の PWR が最適 pH で運用されていることが示されている²⁾。また、燃料被覆管表面への腐食生成物の付着に及ぼす因子として、溶存水素、熱流束、原子炉水中の腐食生成物濃度も考えられるが、pH ほど影響は大きくないとされている¹⁾。

3.2 放射化腐食生成物の除去

原子炉停止降温操作時のホウ酸添加とホウ酸解離度の増加による冷却材 pH の低下、および冷却材の温度降下に伴うニッケルフェライト等スピネル化合物の溶解度の

増大特性と、低温停止後に原子炉内に残存する過酸化水素等の酸化剤による溶出特性を利用して放射化腐食生成物を溶出させ、第3図に示すごとく化学体積制御系にある混床式脱塩装置によって除去する⁷⁾。

このように、保守点検作業が開始される以前の、プラント停止操作時に一次冷却材を低 pH 領域にコントロールし、溶出放射化腐食生成物を混床式脱塩装置で除去する一連の運転操作(酸化運転)を行うことが、それ以降の一次冷却材の放射能濃度の低減および作業被曝線量を低減するうえで効果的であり、すでに実プラントの運用に反映されている。

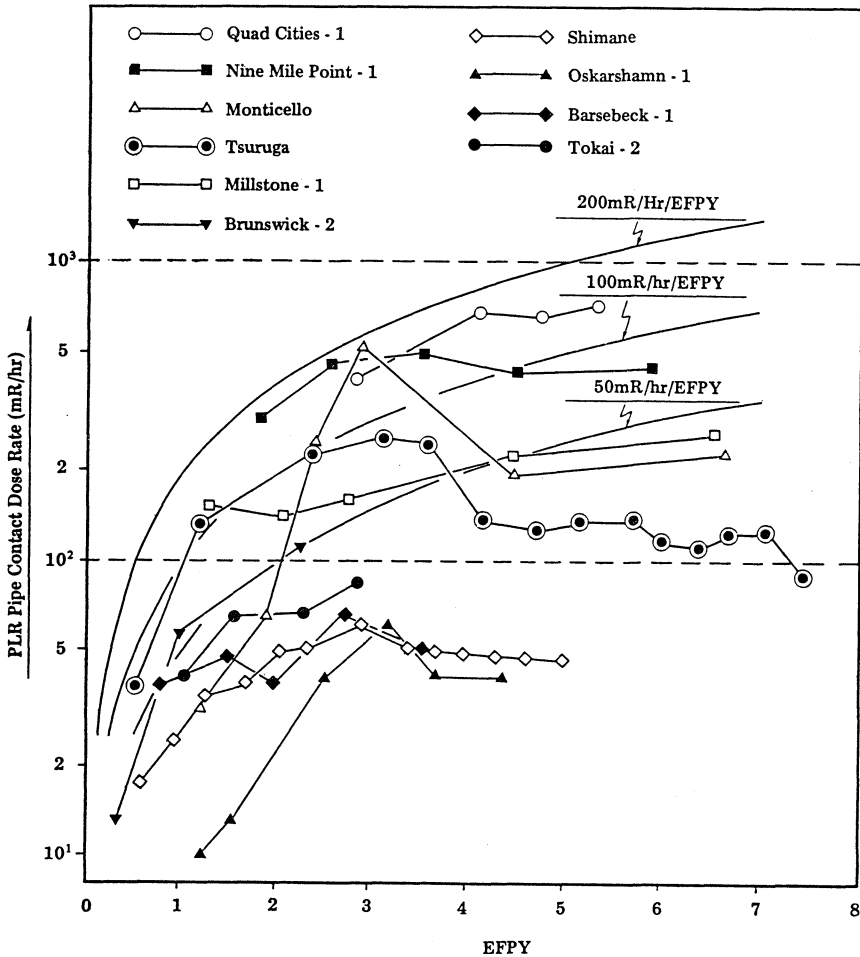
4. まとめ

一次系放射線量率低減対策の一環として放射化腐食生成物に着目し、BWR, PWR おおのその特徴を活かして乾燥保管(ホットドレンオフ)、再循環満水保管、適

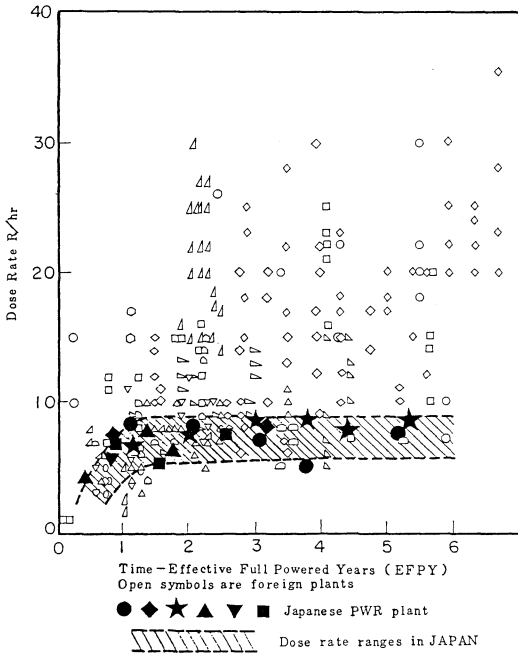
正材料選定、溶存酸素コントロール、復水浄化系除鉄性能向上、起動時フラッシング(以上 BWR)、稼働中の高 pH 運転、停止時の酸化運転(以上 PWR)等のクラッド低減対策を実施して来た。

その結果、BWR においては金属不純物濃度は、第1表に示すように、原子炉水中で 10 ppb 程度、給水中で 2~3 ppb 以下に維持・管理されており、また、第7図における敦賀発電所の例に見られるごとく、一時 300 mR/hr まで上昇した一次系配管放射線量率が 100 mR/hr 以下まで低下した。さらに、運転開始初期から対策を実施して来た島根発電所においては、営業運転開始後約 5 EFPY(EFFECTIVE FULL POWER YEARS; 有効稼働年数)経過しても約 50 mR/hr と低線量率の維持に成功している。

一方 PWR においても第2表に示したように原子炉水



第7図 BWR 一次系配管放射線量率²⁾



第8図 PWR 蒸気発生器水室線量率

中の金属不純物濃度は 10 ppb 程度に管理されており、蒸気発生器水室線量率については第8図のごとく諸外国と比較して低線量率に保たれている。

以上のごとく、BWR, PWR とも一次冷却系放射線量率低減には一応の成果を得ているが、より一層の対策強

化を図るため、腐食生成物の一次冷却系内における挙動のより詳細な把握、pH、電気伝導度、溶存酸素等腐食関連因子のより正確な測定技術の開発（試料採取系の改善、高温状態でのモニタリング）を行うとともに、プラント熱効率や廃棄物の発生量低減を考慮したコバルト除去技術の開発（高温フィルタの適用検討、無機イオン交換体の開発）等が進められており、今後の成果が期待されている。

参 考 文 献

- 1) 石樽頭吉, 大沢安隆, 内田俊介; 原子力学会誌, **25**, 337 (1983).
- 2) 三島良績; IAEA Specialist Meeting on "Influence of Water Chemistry on Fuel Element Cladding Behavior in Water Cooled Power Reactors," 1983.
- 3) 永山 哲, 栗原 裕, 目黒芳紀; 火力原子力発電, **30**, 563 (1979).
- 4) 長尾博之他; 原子力学会誌, **23**, 796 (1981).
- 5) 泉谷雅清他; 火力原子力発電, **27**, 419 (1976).
- 6) 目黒芳紀他; 東海第二発電所復水浄化系の特性評価 (I)~(III), 日本原子力学会昭和57年秋期年会発表.
- 7) 岡本卓也, 土居将能, 中島宣雄, 服部高久, 荘司森也; 三菱重工技報, **19**, 775 (1982).