

# 原子炉系水質管理による放射線量の低減

## Primary Water Chemistry Control for Radiation Source Reduction

原子力事業本部 大島茂男\*1 横山二郎\*2  
笠原和男\*2

原子力発電プラントで放射線業務従事者が受ける放射線の量の低減は原子力発電を進展させる上で重要な課題になっている。その対策の一つとして放射線源 (Co-58, Co-60 等) 量の低減があり、その生成抑制と除去促進を目的に試運転時、運転、停止時の原子炉系水質管理法の改良を研究し、適用を図ってきた。国内の加圧水型原子力発電プラントの蒸気発生器水室の線量当量率を見ると、運開後3~4年までは増加するが、それ以降は全体的に見て年ごとに低下しており、従来の認識とは異なった結果を示していることが分かった。この低減には原子炉系水質管理改良が大きく寄与したと考えられる。

Radiation exposure reduction at power plants has been an important subject into development of the nuclear power industry. As one of the measures to reduce the radiation source, several improvements of reactor coolant chemistry control have been studied and applied to many plants. These improvements are considered to be playing a role to reduce both radiation sources and their parent elements, from the declining trend of the radiation dose rate in SG channel heads which is typical data showing the radiation source intensity.

### 1. ま え が き

加圧水型原子力発電プラント (PWR) で放射線業務従事者が受ける放射線の量 (線量当量) を低減させる対策として、これまで材料の開発、機器配管の遮へい強化、ロボットの活用、及び原子炉系水質管理改良等が実施されてきた。その結果、第二世代の改良標準型 PWR では1サイクル当たりの線量当量が第一世代 PWR の3分の1程度に下がった。また、運転している発電所を全体的に見ても放射線源強度は運開後3~4年から低下傾向を示してきている。ここでは、放射線源量の低減に効果を挙げている原子炉系水質管理改良の研究と適用状況に絞って紹介する。

### 2. 線量当量の状況

1975年度に5基あったPWR発電所は1993年度には20基に増加した。この二つの年度のPWR発電所発電量は $9.2 \times 10^9$  kW・hと $1.05 \times 10^{11}$  kW・hで11倍に増加している。これに対応して発電所内作業に伴う線量当量は9.0人・Svから32.4人・Svに増加したが、その倍率は3.6倍と発電量の倍率より低く抑えられている。すなわち、図1<sup>(1)</sup>に示すように単位発電量当たりの線量当量が低くなってきている。この低下傾向の要因としては設計改良、作業管理等があるが、それに加えて放射線源を減少させるための水質管理改良が寄与している。

### 3. 原子炉系水質管理改良による放射線源低減

#### 3.1 放射線源生成過程

放射線源はCo-58, Co-60が主要成分である。これらの放射性核種は主に炉心外の材料から放出された腐食生成物が炉心内で放射化されて生成する。したがって、腐食生成物の炉心内外間の移行挙動を評価することが重要で、この評価には三菱が開発した計算コード、ACEコード<sup>(2)</sup>を使用している。放射線源である機器配管表面の放射線量の構成を見ると式(1)のようになる。なお、クラッドとは粒子状の腐食生成物のことであり、内層、外層酸化物とは材料表面に形成される酸化膜である。

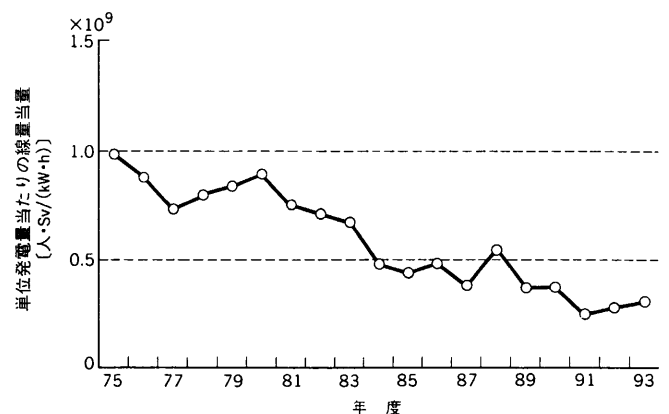


図1 国内PWRプラントの単位発電量当たりの線量当量  
放射線業務従事者が受ける放射線の量が多く対策の成果により低下してきていることを示す。  
Radiation exposure as function of power generation at Japanese PWR plants

機器配管の放射線量 = 付着クラッド + 内層、外層酸化物 (1)

このうち、内層、外層酸化物中の放射能は付着クラッドから移行してくると考えられるため、付着クラッドの放射能を下げるのが重要となる。この付着クラッド量の変化率は式(2)のようにクラッド成分とイオン成分の移行速度の和であり、それぞれの決定要因は式(3)(4)のとおりである。

付着クラッド量変化率 = クラッド成分の(付着-はく離)速度  
+ イオン成分の(析出-溶解)速度 (2)

クラッド成分の(付着-はく離)速度  
= f(クラッド量, 付着はく離の物質移動係数等) (3)

イオン成分の(析出-溶解)速度  
= f(クラッドの溶解度, 溶解析出の物質移動係数等) (4)

したがって、放射線源を下げるにはクラッド量を減らす、すなわちクラッドの発生量 (材料の腐食量) を少なくするとともにクラッドを除去することが有効である。また、イオン成分の移行抑制にはクラッドの溶解度コントロールが重要となる。

以上の観点から原子炉系水質管理の改良を実施した。

\*1 原子力技術センター原子力システム設計部主務

\*2 原子力技術センター原子力応用技術部  
原子炉化学グループ主務

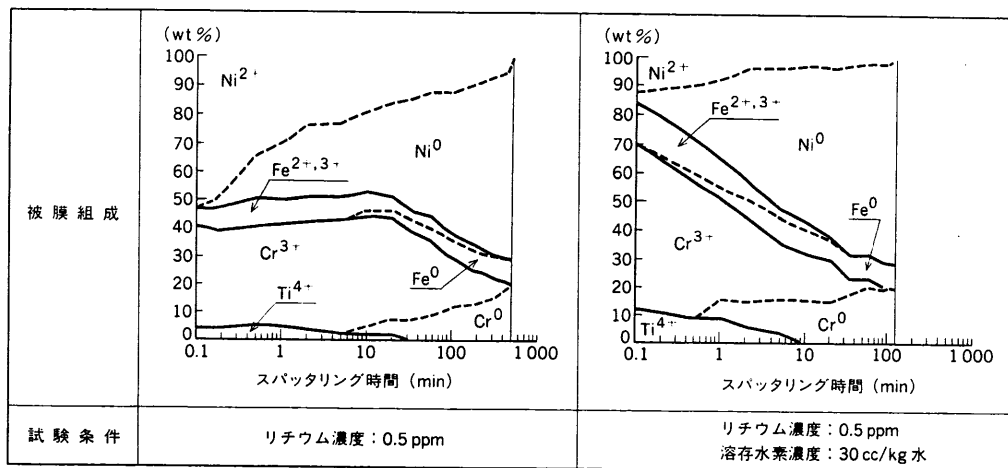


図2 HFT 模擬試験後の熱処理 600 合金材表面被膜組成 (材料: TT 600, 温度: 286 °C, 試験時間: 600 h) HFT の従来水質と改良水質で試験した後の表面被膜を ESCA で分析した結果を示す。  
Oxide film composition under each HFT water chemistry condition (Material: TT 600, Temp.: 286 °C, Test period: 600 h)

### 3.2 温態機能試験時の水質管理法の改良研究(腐食抑制)

腐食生成物の主要な発生源である 600 合金材の腐食率は初期が大きく、酸化被膜が形成されるに伴い低くなる。したがって、建設時、原子炉冷却系が初めて出力運転温度近くに升温される温態機能試験 (HFT) で耐食性の良い酸化被膜を形成させることは腐食生成物の発生量を低く抑える上で非常に有効と考えられる。

従来、HFT 時には脱気純水か水酸化リチウム添加水を使用してきたが、腐食抑制上、水酸化リチウムと水素ガスを溶存させた水質が有望と考え、その効果を試験した。試験は蒸気発生器伝熱管 (熱処理 600 合金材) を供試材とし、HFT 条件 (温度: 286 °C, 時間: 600 h) で行った。試験後、供試材表面の酸化被膜組成を X 線光電子分光分析 (ESCA) で分析した。その結果は図 2<sup>(3)</sup>のとおりで、縦軸に各元素の重量%, 横軸に表面からの深さに対応するアルゴンイオンによるスパッタリング時間をとった。水酸化リチウム添加水では表層はニッケルの割合が大きくなっている。一方、水酸化リチウムと水素ガスを溶存させた水質では表層はクロムの割合が高く、その酸化被膜はかなり薄い状態になっており、耐食性の良い被膜が形成されていることが確認された。このように水素ガスと水酸化リチウムを添加した水質は北海道電力(株)の泊 1 号機の HFT 時に適用され、その効果として初回定検時の機器配管の線量当量率を 20% 程度先行プラントより低くすることができた。なお、この HFT 水質管理は大飯 3, 4 号機以降の蒸気発生器伝熱管に採用されている熱処理 690 合金材に対しても効果があるため、泊 1 号機以降のプラントすべてに適用されている。

### 3.3 運転時の pH 管理改良研究(腐食生成物移行抑制)

放射線源は先に述べたように腐食生成物が炉心内外間を移行することによって蓄積する。腐食生成物の移行形態としてはイオン状とクラッド状 (粒子状) の 2 形態があり、このうち、イオン状成分の移行速度は腐食生成物の“(燃料棒表面の溶解度) - (機器配管表面の溶解度)”すなわち“(高温側の溶解度) - (低温側の溶解度)”に依存する。そのためこの 2 領域での腐食生成物の溶解度を制御し、放射線源を最小にする水質管理が研究されてきた。

腐食生成物の溶解度は温度と水質 (特にほう素酸として添加されるほう素濃度とリチウム濃度) で決まる pH に依存するため、実プラントの腐食生成物の主成分であるニッケルフェライトの溶解度と水質の関係を試験<sup>(4)</sup>で求めた。そのデータを基に放射線源低

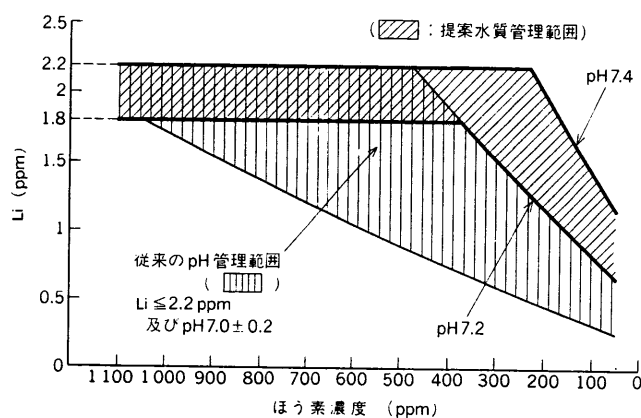


図3 放射線源低減のための提案 pH 管理法 現在、三菱が提案している“放射線源低減のための pH 管理法”を示す。  
Proposed pH control for radiation source reduction

減に有効な水質管理法を評価した結果が図 3 に示す提案水質管理法 (現行のリチウム濃度上限値 2.2 ppm を条件に pH 7.3 ± 0.1 at 285 °C を目指す) であり、暫定的な推奨案として既にいくつかの発電所に適用されている。pH 管理法の有効性を示す実証試験は現在、(財)原子力発電技術機構のプロジェクトとして実施中であり、今後、この実証試験の結果を基により効果的な水質管理法を確立し、適用を図っていく予定である。

### 3.4 炉停止時の浄化法改良研究の適用(除去促進)

原子炉が定期検査のため停止されるとき、原子炉冷却水の温度低下とほう素濃度上昇等によりイオン状の Co-58 やニッケル濃度は出力運転時の 1000 倍以上に上昇する。この濃度の高い時期に原子炉冷却水をイオン交換塔を使い浄化することは、それらを除去する上で非常に効率的である。この効率を更に上げるため、それらイオン濃度を一層高める水質管理法が研究された。

基礎試験によりイオン状ニッケル濃度の上昇は金属状ニッケルの溶解によるものであることが確認された。原子炉冷却系 (RCS) の水抜き時のように空気が入ってくると酸化され過渡的に溶解は促進されるが、その後は溶解度の低いニッケル酸化物に変わるため急激に溶解しにくくなる。そのため金属ニッケルの形態を保ちつつ溶解を促進させる方法として溶存水素濃度を低く (0.5 ~ 1.0 cc/kg-H<sub>2</sub>O) 保つ方法を研究した。この方法は玄海 2 号機に初めて適用された。その結果は図 4<sup>(9)</sup>のとおりで、溶存水

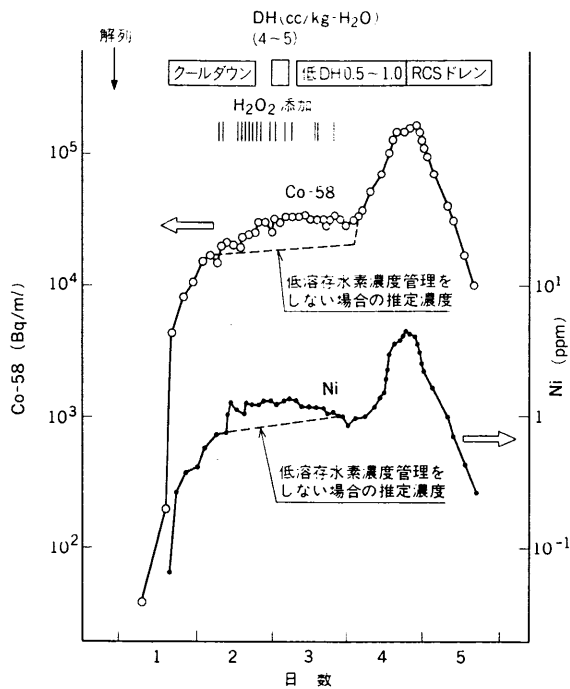


図4 外層クラッド除去法によるNi, Co-58の濃度変化(九州電力(株)玄海2号機) 玄海2号機に初めて“外層クラッド除去法”を適用したときの図。  
Ni and Co-58 concentration changes with low dissolved hydrogen control (During plant shutdown at GENKAI Power Plant No.2)

素濃度は過酸化水素水 (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) を添加し減少させた。このとき、Co-58 とニッケル濃度は従来の水質管理法による濃度 (図の点線) に比べ1.7倍程度に高めることができ、その分それぞれの除去量を増やすことができた。このとき、Co-58 だけでなく、Co-58 の親元素であるニッケルも多く除去するため次サイクル以降に生成するCo-58の量の低減化にも効果が期待できる。

この方法は材料の内層酸化物(保護被膜)を除去することなく放射性クラッドの元となる外層クラッドのみを除去することから“外層クラッド除去法”と呼ばれ、これまで多くの発電所に適用されている。また、そのためのH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加装置も採用されつつある状況である。

3.5 放射線源強度の経年変化

放射線源の強さを代表するデータとしてよく使用されるのは蒸気発生器水室内の線量当量率、特にその中央部の値である。

図5はこれまで国内PWRで実施された約140回の定期検査時に測定された蒸気発生器水室中央部のデータをまとめたものである。この図の作成はまず、各蒸気発生器の水室中央部のデータを平均し、その定期検査までに運転された年数 [(総出力量/定格出力) から求めた EFPY] と対比させた。このデータセットのうち、0.5 EFPY から 1.5 EFPY の期間のデータの平均値を求め、次に 0.5 EFPY ずつずらし、各 1 EFPY 間の平均値すなわち移動平均値を求め、プロットした。なお、高温側と低温側で腐食生成物の挙動は異なるため、それぞれに分けて整理した。この図から、数年の運転以降、線量当量率は低下傾向にあることが分かる。この低下傾向に対しては既述の水質管理法の改良が大きく寄与していると考えられる。

4. 今後の課題

線量当量をより一層低く抑えるための対策として“電解研磨に

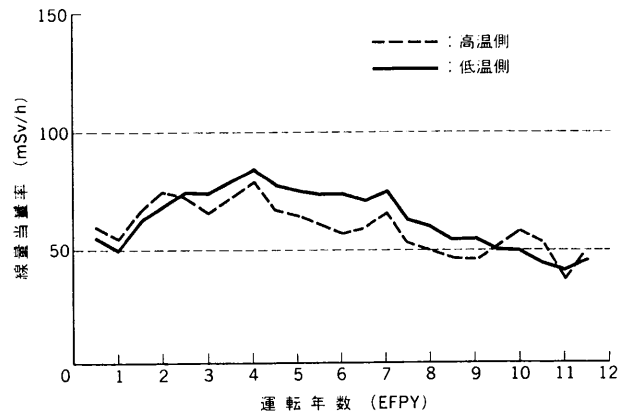


図5 国内PWRプラントの蒸気発生器水室線量当量率推移  
放射線源強度を示す代表的なデータである蒸気発生器水室線量当量率が数年の運転以降低下してきていることを示す。  
Radiation level of steam generator channel heads at Japanese PWR plants

よる材料の表面処理” “浄化設備への細メッシュフィルタの適用” などが研究され、適用されつつあるが、原子炉系水質管理改良としては現在、次の諸点の研究又は適用が検討されている。

- (1) イオン状腐食生成物の移行抑制 現行のリチウム濃度上限値は2.2 ppmとなっているため、ほう素濃度が高いサイクル初期は放射線源低減のための最適値までpHを上げることができない。その対策として、次の二つの方法がある。
  - リチウム濃度上限値を2.2 ppmを超えて設定できるかどうかの研究とそれに基づく高リチウム濃度運転の適用。
  - 濃縮<sup>10</sup>B (余剰反応度制御に有効な<sup>10</sup>Bは天然のほう素中に20%程度しか含まれていないのに対し、その<sup>10</sup>Bの含有率を高めたほう素)の採用によりほう酸濃度を下げ、pHを上げる方法の実用化検討。
- (2) クラッド状腐食生成物の移行制御 クラッド成分の付着、はく離挙動を研究し、クラッド成分の移行制御ができる水質管理法を確立する。
- (3) 酸化被膜へのCo-58, Co-60取込み制御 酸化被膜に取込まれたCo-58, Co-60の除去は難しいため、その取込みを抑える水質管理法、例えば亜鉛注入法の研究と適用を図る。

5. むすび

放射線従事者が受ける放射線量の低減化は着実に進んでいるが、さらに低減化を図るため、現在も有望な対策の研究又は適用を検討中であり、今後その成果を発電所で活用したいと考えている。

参考文献

- (1) (社)火力原子力発電技術協会, 原子力発電所運転管理年報 (平成6年度)
- (2) 笠原ほか, PWRプラントのクラッド挙動評価コードの高度化, 原子力学会1993年秋の大会予稿集
- (3) Yamada, E. et al., Corrosion Rate Reduction by Chemistry Control during Hot Functional Test, Proceedings of 1991 JAIF International Conference on Water Chemistry in Nuclear Power Plants, p.151
- (4) Mizusaki, H. et al., Solubility Measurement of Crud and Evaluation of Optimum pH, ibid(3), p.168
- (5) Tawaki, S. et al., Improvement of Shutdown Chemistry for Outer Oxide Layer Removal, ibid(3), p.168