特集·沸騰水型原子炉

原子炉冷却水の放射能低減

Reduction of Radioactivity in the Reactor Coolant System

原子力発電所の運転・保守作業の効率向上に不可欠な放射能低減化は,基数と運 転年数が増加する趨勢の中にあって,特に強い関心がもたれているテーマである。 原子炉停止時での冷却水の放射能の支配因子は放射性腐食生成物であり,これが線 量率上昇要因となっているため,その挙動解明と低減対策の検討を行なった。国内 外のBWR原子力発電所の水質データの分析と理論解析による検討から,給水系か ら原子炉へ持ち込まれる不溶性の鉄クラッドとコバルトイオンが,線量率上昇に重 要な役割を演じていることが明らかとなった。線量率抑制対策として,給水鉄クラ ッドを数ppbの低レベルに維持する水質管理が特に重要であり,それが実現するため の設備面での対策とその効果について定量的に評価したので,ここに報告する。

高島義衛*	Yoshie Takashima
大角克己*	Katsumi Oosumi
内田俊介**	Shunsuke Uchida
泉谷雅清***	Masakiyo Izumiya

1 緒 言

これまでの原子炉冷却水放射能評価では、燃料棒から漏れた核分裂生成物と、炉心で放射化された腐食生成物とが考察の対象とされてきた。しかし、前者すなわち核分裂生成物については、燃料製造技術と運転技術の向上により¹⁾、原子炉冷却水への漏れ問題が解消された段階に至っている。したがっ



て,原子炉冷却水の放射能低減化及び配管・機器からの線量 率低減化の重点は,放射性腐食生成物発生の抑制という目標 にほぼ絞られたとみてよいであろう。

国内外のBWR(沸騰水型原子力発電所)での運転実績の蓄積とともに、腐食生成物に起因した放射能・線量率の実態が解明されてきた。これにより得られた知見は、放射能低減対策への反映という形で、発電所の水質管理と設備計画へ確実にフィードバックされることが要望される。日立製作所は、ユーザーの指導を得て、BWRの放射能低減化に取り組んできた。その一端を以下に概説する。

2 再循環系配管の表面線量率の経年推移

原子炉の再循環系配管表面線量率は,原子力発電所の放射 能の目安を与える指標として注目されている値である。

原子炉停止数日後に測定された再循環系配管表面線量率の 経年的な推移は、図1に示すようになっている。^{2)~5)}発電所に よって多少の差は見られるが年当たり〔実効全出力運転年(時 間)、EFPY(H)と略す*1)。〕の線量率変化は、総じて上昇傾向 を示している。その中にあって、中国電力株式会社島根原子 力発電所はオスカーシャム1号機と並んで低い線量率で推移 している。また日本原子力発電株式会社敦賀発電所では線量 率の低下が経験されている。これら国内両原子力発電所の給 水鉄クラッド濃度(クラッド:不溶性腐食生成物)が1~3ppb である³⁾⁴⁾のに対し、線量率の比較的高い発電所ではこの値 が高く、その低減が重要な課題となっている²⁾。このことは、



図 | BWR再循環系配管表面線量率 大部分のBWRの線量上昇率は, 50~200^{mr}/年の範囲に分散している。中国電力株式会社島根原子力発電所は運 開当初から非常に低い線量率で推移している。日本原子力発電株式会社敦賀発 電所は30,000EFPH(3.5EFPY)を境にして減少傾向に転じたがこれは給水鉄濃 度の低減に成功したことによる(EFPH:Effective Full Power Hours)。

給水鉄濃度管理の重要性を示唆するものである。中国電力株 式会社島根原子力発電所では,運転の初期から一貫して給水濃 度を低く管理してきた結果⁴⁾,およそ35,000EFPH(4EFPY) の時点でも,50mR/h以下という低線量率を実現している。他 方,日本原子力発電株式会社敦賀発電所の場合には,給水クラ ッド低減対策³⁾が本格的に行なわれた30,000EFPH(3.5EFPY) 以降,線量率が経年的に減少するという他に類を見ない成果 が得られている。このように国内両発電所の例は,各々異な った運転経歴によって,給水鉄クラッド濃度の線量率に及ぼ す強い影響力を実証したものといえる。

3 放射性腐食生成物の挙動

BWRの原子炉冷却系統は,図2に示す構成となっている。 腐食生成物の発生源は,給復水系構成材料と原子炉内部構造 物が主であるが,線量率に対する寄与度は前者のほうが大き い。本章では,給水の腐食生成物濃度と再循環系配管表面線

45

(全出力運転を1年間続けた場合の発電量)
EFPH(Effective Full Power Hours)=(総発電量)/
(全出力運転を1時間続けた場合の発電量)

* 日立製作所電力事業本部 ** 日立製作所エネルギー研究所 工学博士 *** 日立製作所日立研究所 工学博士

664 日立評論 VOL. 62 No. 9(1980-9)

量率との関連性につき,前記両発電所を対象に解析した結果 を述べる。

3.1 解析モデル

再循環系配管表面線量率に寄与している放射性腐食生成物 核種を表1に示す。これらは、原子炉に持ち込まれた腐食生 成物が、燃料表面で中性子照射を受け放射化したものである。 各核種の線量率に対する寄与度を測定した結果⁶⁾を図3に示す。 その中で、⁶⁰Coの寄与度は他の核種に比べて大きく、全体の70 %以上を占めている。⁶⁰Co以外の核種は、比較的短い半減期 と低いγ線エネルギーのため線量率に対する寄与度が低く、こ の傾向は運転年数を経るに従いいっそう顕著となる。

給水から原子炉へ持ち込まれたコバルトが燃料表面で放射 化され、最終的に配管内面に⁶⁰Coの形で蓄積して線量率を生 じさせる過程は図4に示すとおりである。このモデルは日立 製作所で計算コード化され、放射能低減対策の有効な手段と なっている。モデルの詳細は既報に譲り^{70,80},ここではモデル の物理及び化学的な側面を現象論的に説明する。給水から原 子炉へ持ち込まれる腐食生成物は、鉄を主成分とするクラッド とコバルト(非放射性⁵⁹Co:天然存在比100)を主成分とするイ オンに大別される。鉄クラッド及びこれに付着しているコバ ルトは、炉水濃度と燃料表面の熱流束とに比例した速度で燃 料表面に付着すると⁹⁰ともに、既存付着量に比例した速度では く離するというバランスにより、燃料表面に被膜を形成する。 度を低減し、それらが燃料表面へ付着する速度を抑制する働きをしている。燃料表面で生成された⁶⁰Coはイオンの形で溶出するか、あるいははく離する鉄クラッドに付着して、それぞれ冷却水へ放出され、これが配管内面に付着する。

再循環系配管に用いられているようなステンレス鋼の場合, 内表面には母材の固い酸化被膜(内層:スピネル構造)とその 上に冷却水から堆積した多孔質酸化鉄クラッド層(外層)との 二重構造が形成される。⁶⁰Coの蓄積は,図5に示す四つの過 程に支配される複合現象である。すなわち,①炉水中の⁶⁰Co イオンの内層への拡散,②冷却水中の鉄クラッドに付着した ⁶⁰Coの外層への付着,③外層の⁶⁰Coがイオン化しそれが内層



イオン状のコバルトは、炉水濃度と燃料に付着している鉄ク ラッド量とに比例した速度で燃料表面の鉄クラッド中に取り 込まれ、それが燃料表面に滞在し放射化されて、⁶⁰Coに変換 される。このように、鉄クラッドはコバルトを燃料表面に吸 着させることにより、放射性⁶⁰Coの生成に重要な役割を演じ ている。原子炉浄化系は主として鉄及びコバルトの炉水中濃



図2 BWRの原子炉冷却系統 BWRの原子炉冷却系統は、タービン系 統と直接連絡されており、水質管理面でこの点が十分考慮されている。本図の 復水浄化装置は、復水脱塩器のほか粉末沪過脱塩器を用いた復水フィルタから 構成されている。酸素注入は復水脱塩器下流で行なっている。

表 | 主要な放射性腐食生成物 原子炉系統の配管機器表面線量率に 大きく寄与する核種は、長半減期の⁶⁰Coである。⁵⁴Mnも比較的半減期が長く、 ⁶⁰Coに次いで寄与度は大きい。 図 3 再循環配管内面の付着放射能 放射化された腐食生成物が線源 となっている。放射能付着量に占める⁶⁰Co比率は50%以下であるが,表面線量 率に占める割合は70%以上と最大の寄与を示す。



放射性同位元素	生成反応	半減期	γ線エネルギー(MeV) 1.17(100%) 1.33(100%) 0.81(100%)	
⁶⁰ Co	⁵⁹ (n,r) ⁶⁰ Co	5.2年		
⁵⁸ Co	⁵⁸ Ni(n,p) ⁵⁸ Co	71日		
⁵⁹ Fe	⁵⁹ Fe ⁵⁸ Fe(n,r) ⁵⁹ Fe		1.10(55.6%) 1.29(44.1%)	
⁵⁴ Mn	⁵⁴ Fe(n,p) ⁵⁴ Mn	303日	0.835(100%)	

46

水 60 Co 炉

図4 原子炉冷却系統でのコバルト放射能の挙動 原子炉内に持ち 込まれた鉄クラッドは、蒸発乾固により燃料棒に付着する。コバルトはそのク ラッドの上に吸着される。中性子照射により放射化されてできた⁶⁰Coは、溶出 又ははく離するクラッドに付着して炉水中に放出され、配管へ付着し蓄積する。



図5 配管内面への⁶⁰Co付着メカニズム ⁶⁰Coの付着は① 冷却水から外層を貫通した⁶⁰Coイオンが内層へ拡散,② 鉄クラッドと一緒になった⁶⁰Co の外層への付着,③ 外層に付着した⁶⁰Coが内層へ拡散の過程で,配管に蓄積される。④ 外層に付着している⁶⁰Coの一部ははく離するクラッドとともに炉水へ 離脱する。

へ拡散,④外層からはく離するクラッドに付着した⁶⁰Coの離脱,の各過程が同時に進行し⁶⁰Coが時間とともに配管内面に 蓄積される。しかし,蓄積が増すにつれ付着速度は減少傾向 を示し,更に蓄積されている⁶⁰Co(半減期)の減衰効果とあい まって,表面線量率は運転開始10年前後で極大値に達する。

3.2 中国電力株式会社島根原子力発電所の解析

運転開始直後の短期間を除き、給水鉄濃度は1ppbあるいは それ以下に管理されている。この運転履歴をベースとして得



図6 中国電力株式会社島根原子力発電所(炉水⁶⁰Co)と線量率の 経時変化 本図(a)には計算に使用した給水鉄濃度実測データを示した。炉 水中の⁶⁰Co濃度は、イオン状⁶⁰Coがクラッド状⁶⁰Co濃度より高く給水鉄低減以 降その差が開く傾向を示している。再循環配管表面線量率でも給水鉄濃度低減 時以降イオン状⁶⁰Coの寄与が大きくなっている。



た結果を図6に示す⁸⁾。同図には実測データもプロットされて おり,解析結果はこれらと良い一致を示している。本原子力 発電所の特徴は,低線量率で推移していることのほかに,炉 水濃度と線量率に対するイオン状⁶⁰Coの寄与が相対的に大き いことである。この現象は,給水鉄濃度が当初のも以下に低 減された給水への酸素注入開始時点から顕在化した。給水鉄 濃度の低減により,燃料表面の付着クラッドすなわち,そこ で放射化されるコバルト量が非常に少なくなり¹⁰⁾,また燃料 表面からはく離する鉄クラッドが少ないため,それに付着し て冷却水中へ放出される⁶⁰Coの量が大幅に低減していること がその原因である。

3.3 日本原子力発電株式会社敦賀発電所の解析

既に述べたように,運転開始後3.5EFPYでクラッド低減が 達成され,図7にみられるとおり,その効果が顕著に表われて いる。中国電力株式会社島根原子力発電所の場合にもみられ たことであるが,炉水中のイオン状⁶⁰Co濃度はクラッド低減 によってもその変化は比較的小さいが,クラッド状の⁶⁰Co濃 度は大幅に減少している。このため,線量率がクラッド状⁶⁰Co により支配されていた状況から,イオン状⁶⁰Coの比重が比較 的大きい状況に推移する一方,線量率の経時変化も上昇から 減少へ転じた。

4 給復水系からの鉄流入の抑制

前章に述べたとおり,運転実績と解析結果から,給水鉄ク ラッド濃度の低減が線量率低減に直接結びついていることが 判明した。図8は給復水系鉄濃度を低く抑えた典型的な例⁴⁾ である。この図は復水フィルタ(沪過脱塩器)が鉄クラッド除 去に大きく寄与し,かつ給水への酸素注入(10~50ppb)が,復 水脱塩器以降原子炉までの給水配管の腐食をほぼ完全に抑制 することを示している。復水フィルタの鉄クラッド除去機能 を復水脱塩器にもたせる試みも行なわれており,日本原子力 発電株式会社敦賀発電所はこれに成功した³⁾。この方式は復水 フィルタの追設方式と並んで既設プラントのクラッド低減化 への道を開いた。

図7 日本原子力発電株式会社敦賀発電所(炉水⁶⁰Co)と線量率の 経年変化 再循環系配管表面線量率は,運転初期及び鉄持込量増加の期間 はクラッド状⁶⁰Coからの寄与が大きく,給水からの持込鉄量減少に従い,その 寄与が小さくなってきている。

5 放射能低減対策とその予想効果

主要な放射能低減対策として給水鉄クラッド持込み抑制の ほかに、低コバルト材採用によるコバルト発生の抑制につい ても検討を行なってきた。各々の対策について、既に述べた 解析モデルにより予想した線量率低減効果を図9に示す。こ れら対策のうち、給水系への酸素注入法は、比較的簡単な設 備と大きな効果とにより、既に定着した技術となっている。 復水浄化装置の強化は、従来の復水脱塩器の鉄クラッド除去 率が70%であるものを、復水フィルタとして沪過脱塩器を追 加することにより95%まで向上しようとするものであり、新 設プラントでは改良標準化に組み込まれて採用の方向にある。 これら両対策だけの組合せによって、線量率はおよそもに下 がると予想される。更に低い線量率達成のために、低コバル トステンレス鋼、インコネル及びコバルト合金であるステラ イト代替材の採用は有効な対策である。その効果的な採用範

47

666 日立評論 VOL. 62 No. 9(1980-9)

囲についても見通しがついた段階にあるが,将来プラントに 備えて既設プラント運転実績の今後の推移なども参考にしな がらより限定した採用範囲を見いだす検討も行なっている。

6 放射能低減のための水質管理の目標

プラント内の放射能の蓄積を低減する面から, BWRの水 質管理での給水中の鉄濃度抑制の重要性が明らかとなった。 それと同時に,線量率に大きな寄与をしているコバルト抑制 に対しても注目しなければならないが,既設プラントでは大



図8 給復水系での鉄濃度の変化 酸素注入ありなしの場合の鉄濃度 変化を模式的に示したものである。復水系から持ち込まれた鉄は、復水浄化装 置で効果的に除去され、酸素注入を行なえば給水系での鉄発生がなくなり原子 炉への持込みは微量となる。 幅な使用材料の交換は困難であるため、これを管理すること は至難である。したがって、放射能低減のための水質管理項 目としては給水鉄濃度の低減が最重要課題となる。図10は、 プラント寿命中に再循環系配管表面線量率の最高値を100mR/h 以下に抑えるために必要な、給水鉄濃度と給水コバルト濃度 の範囲を解析により予想した例である。運転実績によれば、 給水コバルト濃度は数pptから数+pptの広い範囲でプラント ごとに異なった値を示している。したがって、プラント個別 に給水鉄濃度管理の目安は異なることになるが、これを1ppb 程度に管理すれば同図からみて、ほとんどのプラントで線量 率を100mR/h以下に抑制できると期待される。

給水鉄濃度の適正管理のためには,給水酸素濃度の適正維持(10~50ppb)のほか,復水浄化装置の適正な運転管理が重要である。プラント停止時の給復水系再循環運転を行なって,低電導度水質を維持することは,起動時の原子炉への鉄クラッド持ち込みを抑制する上で極めて有効である。

7 結 言

定期検査など原子炉停止時の冷却水の放射能は,主として 腐食生成物に起因している。したがって,線量率低減のため の現象解明は専ら腐食生成物,特に鉄クラッドとコバルトの 挙動解明を中心に進められてきた。原子力発電所運転実績の 蓄積とその検討を通じて,線量率変化の将来予測についても 見通しが得られ,放射能低減対策効果を定量的に予想できる ようになった。

低減策(注記)		流入量(kg/月)		kg/月)	再循環配管表面線量率(2年間運転)		
А	В	С	Fe	40	Co 0.015	(mR/h) 100 200 300	
~-	スケ-	-ス					
0							
	0					7/////	
		0				7////	
0	0		þ			221	
0	0	0	þ			20	
注:A E C	A〔復力 B〔給力 D〔低:	k浄化 k系へ iバル	装置の の酸素 ト材の) 強化 注入) 採用	(除去率7(〕 〕	0%→95%)] 200 ⁶⁰ Co以外	

図9 放射能低減対策例とその予想効果 鉄低減対策(A, B)を採用 することにより非常に低い線量率が実現できる。低コバルト材採用(C)を行な うことにより更に線量低減が期待できる。この場合のコバルト溶出率は近似的 に対策前の量と仮定した。具体的計画に当たっては、効果的な低コバルト材採 用範囲が決められる。



冷却水の放射能あるいは線量率の低減化は,すなわち給水 から原子炉へ持ち込まれる鉄クラッドの最小化を実現させる プラント計画と,水質管理の実施であると言っても過言では ないであろう。

放射能低減化の検討に当たり電力各社,特に長年にわたる 中国電力株式会社及び日本原子力発電株式会社関係各位から の御指導を受けることができた。ここに深く謝意を表わす次 第である。

参考文献

- 藤江,外:沸騰水型原子炉(BWR)燃料に対する信頼性向上の研究現状,日立評論,60,2,87~92(昭53-2)
- C.F.Falk, C.D. Wilkinson : BWR Radiation Exposure-Experience and Projection American Power Conference. 41st. Annual. meeting (1979-4)
- 3) 永山,外:敦賀発電所におけるクラッド低減対策, 30, No. 6 1~10,(1979, 6)
- 4) 貝川:線量率低減に及ぼす水質の影響,火力原子力発電31, No. 4,87~93,(1980-4)
- 5) J.Elkert, R.Ivars : Factors of Importance to the Occupational Exposure Level, Société Francaise de Radioprotection, Dec. 12-14, 1979, Paris (1979-12)
- 6) S.Uchida, M.Kitamura, M.Kikuchi, H.Yusa, K.Ohsumi and Y.Matsushima: An Empirical Formula Predicting Shutdown Dose Rate of the Recirculation Pipes in Boiling Water Reactors, Nucl. Sci. Eng. 69, 78~85 (1979)
- 7) S.Uchida M.Kikuchi, Y.Asakura, H.Yusa and K.Ohsumi: A Calcutation Model for Predicting Concentration Products in the Primary Coolant of Boiling Water Reactors, Nucl. Sci. Eng. 67, 247~254 (1978)
- 8) S.Uchida Y.Asakura M.Kitamura, Y.Matsushima, Y.Meguro, K.Ohsumi and M.Miki: Estimation of Shut-

図10 再循環系配管表面線量率と給水鉄・コバルト濃度との関係 再循環系配管表面線量率を寿命中100mR/hに維持する場合の給水鉄濃度と給水コ バルト濃度との関係を一例として示す。斜線部は原子炉浄化系容量によりこの 関係が変わる範囲を示す。本図で例えば給水コバルト濃度が30pptの場合,給水 鉄濃度を1ppbに抑えると表面線量率は寿命中を通して100mr/h以下となる。

48

down Dose Rate on Recirculation Pipes during Operating Life of BWR, J.Nucl.Sci.Tech.17, No. 2, 119~128 (1980-2)

 9) Y.Asakura, M. Kikuchi, S. Uchida and H.Yusa: Deposition of Iron Oxide on Heated Surface in Boiling Water, Nucl. Sci. Eng. 67. 1 ~ 7 (1978)
10) 杉光,外:燃料の使用経験-水質の影響,火力原子力発電, 29, No. 2, 153~157 (1978-2)