部会活動 水化学部会

水化学の現状と今後の展開

プラント運転の安全性・信頼性の一層の向上を目指して

水化学は原子力学会における50年の活動の中では比較的若い学問分野である。原子力プラントの本格的稼働開始後、燃料破損に伴う放射性核分裂生成物の放出、放射性腐食生成物の蓄積によるプラント停止時の線量率の増大とこれに伴う従事者の被ばく線量の増大など、原子力発電プラントでの冷却水に係わる諸課題に対応するため、1970年代半ばから学会活動が始まった。部会としては、24年間にわたる「研究専門委員会」としての活動を経て、2007年7月にスタートした若い部会である。プラントの安定運用に直接係わる技術であり、ニーズ志向の強い分野で、構成部会員も化学だけでなく、機械、電気、物理ほか、幅広い専門家の集団である。水化学管理は、構造材料、燃料の健全性に直接、間接的に関与しているため、プラントの安定運転と密接につながっており、その改善を通じて積極的にプラントの信頼性向上に寄与しようとしている。同時に、プラントの安全管理上、避けて通ることができないプラント内外の放射線場にも深く関わっている。本稿では、水化学部会の実プラントの安定運転への寄与と同時に、学問体系としての基盤技術について紹介する。

I. はじめに

原子力学会が設立された当初から、燃料、核分裂生成物関連を中心とした化学分野は間違いなく存在したが、現在という水化学の面影は見ることができなかった。火力プラントを中心とした材料の腐食の研究そのものは、1900年初頭のMITのW. R. Whitneyらに端を発しており、1960年代には、MITのH. H. Uhligの教科書『Corrosion and Corrosion Control』が世に出て、冷却水の各種薬液処理など伝統のある分野を形成しているが、原子力に固有の水化学として頭をもたげてきたのは、P. Cohenの『Water Coolant Technology of Power Reactors』(1969年)が草分けで、国内では1970年代半ば頃から形を成してきたものと考ええる。

一方で、敦賀1号炉、福島第1発電所1号炉、美浜1号炉など、国内の第1期の軽水炉が運転を始めると、軒並み燃料破損に悩まされ、構造材の腐食に係わる諸課題への対応に忙殺されると同時に、その対応に係わる従事者の被ばく線量の増大という課題に直面した。このため、冷却水の採取・分析、被ばく低減を主対象とした水化学制御に係わる研究が増大してきた。そうして、1982

年、「水化学」研究専門委員会が発足し、電力会社、原子力関連メーカーと大学、その他の技術者、研究者が一堂に会して議論する場が形成された。当時から、世界的にも水化学関連の技術交流組織を持つ国は珍しく、世界に先駆けて、水化学分野の組織化がなされたものと考ええる。

以下、原子力学会活動としての水化学の歴史を振り返り、これまでの主要成果をレビューするとともに、現在直面する課題とそのための対応戦略、水化学部会としての役割について記述する。

II. わが国の水化学の歴史

1959年に日本原子力学会が設立されて以降、日本原子力学会誌には10年ごとに記念特集として、各分野の技術の進歩が紹介されている。水化学に係わる主なトピックスを国内外の動向と合わせて第1表に示す。

現在の水化学分野に係わる技術紹介は、1979年の20周年特集で、「軽水炉は完全な導入技術で、材料の腐食などのトラブルに対応する基礎データを持たず、苦しんだが、自主的な研究の必要性が認識されたのは喜ぶべきことである」との記述が見られたのが最初で、1989年の30周年特集では、1986年に一定期点検あたりでの被ばく線量が世界最小という当時のチャンピオンデータを記録した後でもあり、「被ばく線量の問題は収束に向かい、これからは材料との関連が重要である」と記されている。水化学分野における研究開発のベクトルも、BWRでは応力腐食割れ(IGSCC)、PWRでは蒸気発生器の伝熱管

Latest Experiences and Future Research of Water Chemistry—To Establish Advanced Water Chemistry Technologies as One of Key Technologies for Safer and More Reliable Plant Operation : Division of Water Chemistry
(2008年 11月4日 受理)

第1表 水化学の歴史的イベント

イベント	特記記事
1959年 日本原子力学会設立	
1969年 学会10周年記念誌 敦賀-1炉運転開始	原子炉化学では核分裂生成物、超ウラン元素に言及 翌年、福島第1-1炉、美浜-1炉運転開始
1977年 原子炉水化学国際会議(英国)	水化学管理、放射性腐食生成物挙動等を議論(以後2～3年ごと)
1979年 学会20周年記念誌[炉化学]	動力炉の燃料・構造材の腐食に係わる化学の重要性に言及
1982年 「水化学」研究専門委発足	以降6期にわたり100名近くの会員で研究会活動
1986年 定期点検当り世界最小被ばく線量達成	19人レム/プラント(柏崎刈羽1号機)[原子力学会賞特賞]
1988年 第1回 JAIF 水化学国際会議(東京)	
1989年 学会30周年記念誌[炉化学]	原子炉冷却系の水化学の重要性、研究状況を紹介
1991年 第2回 JAIF 水化学国際会議(福井)	
1993年 日台水化学セミナー(台北)	水化学の経験を共有化(2年ごと、アジア水化学セミナーに移行)
1998年 第3回 JAIF 水化学国際会議(柏崎) 国際ラジオリシスワークショップ(川崎)	ラジオリシスと電気化学について議論(以後1～2年ごと)
1999年 学会40周年記念誌[原子炉水化学]	高経年化炉対応による水化学による予防保全を紹介
2003年 アジア水化学セミナー(福岡)	アジアでの水化学の経験を共有化(2年ごと)
2007年 水化学部会発足	核燃料部会、材料部会ほかとも協調した活動を指向

の腐食に重点が移行し、1999年の40周年特集では、高経年化プラントの予防保全についての記載が中心となっている。

このように、プラントでのさまざまなニーズに応じて、主対象とする課題も変遷してきたが、この数年、プラントの出力向上に代表される利用の高度化、高経年化対応、そして燃料の高度化が原子力分野の中心議題となるにつれ、従来にもまして、プラントの運用において、水化学の重要性が高まってきた。材料、燃料の部門との協調の重要性も指摘され、先行して部会化した両部門ほかと連携するため、また、継続性を持って水化学標準や水化学ロードマップ¹⁾の制定・改訂を行うためには、部会化が不可欠との判断から、2007年に水化学部会として再発足した。部会発足の経緯は「原子力プラントにおける水化学の課題への取り組み」²⁾に詳しく記載した。

Ⅲ. 水化学技術の現状

原子力プラントの中で水化学技術は、プラントの運転状況に応じて比較的フレキシブルに対応可能な運用管理技術として直接、原子炉の安全性、信頼性、経済性等に係わっているのが特徴といえる。すなわち、構造材の腐食損傷の抑制、プラント線量率、廃棄物発生量の抑制などの目的に沿ってプラント独自の水化学制御を採用している。水化学部会では、①被ばく・廃棄物低減、②構造材・水相互作用(SWIS)、③燃料・水相互作用(ZWIS)、④水化学ロードマップフォローアップ、⑤化学管理、⑥定例研究会の6つの小委員会を組織して、活動を行っている。以下、主要な技術動向を紹介する³⁾。

1. 放射線被ばく線量低減への対応技術

プラントの作業従事者の受ける被ばく線量に関して

は、かつて世界をリードする立場であったものが、現状、残念ながらわが国のレベルは世界の中で劣位にある。この原因として、作業量や運転サイクル期間があるといわれている。プラント線量率を見る限り、むしろわが国のプラントは世界的にも優位な位置づけであるが、運転サイクル期間が米国等に比べて短く、定期検査頻度が多いうえに、定期検査時の作業量が多い。今後、プラント利用の高度化や燃料の高度化が進むに伴い、水化学の観点からは放射性腐食生成物の蓄積が加速され、線量率が増大する可能性があるため、事前の抑制策を準備することが必要である。

これまで、国内BWRのプラント線量率抑制手法として、炉内に適量の鉄クラッドを持ち込み、燃料棒表面に⁶⁰Coを固定化して炉水放射能濃度を低減する手法と、逆に、給水系からの鉄持込みを極力低減しニッケル濃度を高めて、配管表面への⁶⁰Coの取込みを抑える手法が提案され、おのおの実機に適用されてきた。一見、まったく逆の方向のように思えるが、それぞれ配管表面への⁶⁰Co蓄積抑制の基本に沿った発想に基づいており、線量率抑制に貢献し、世界の中でもトップレベルの成果をもたらしている。近年では、これをさらに改良し、より良い鉄制御を指向しつつある。

また、プラント線量率を抑制する技術として、従来、BWRで適用されてきていた亜鉛注入が、昨今は、わが国のPWRにも適用されつつある。この技術は配管表面の酸化皮膜中に亜鉛を取り込ませることで⁶⁰Coなどの放射性腐食生成物の蓄積を抑制するものであり、特に強還元環境下で効果大きい。すでに実績もでてきており、その評価に基づくきめ細かな水化学制御により線量低減に寄与していくものと期待される。

2. 腐食環境緩和技術

構造材の健全性確保はプラントの高経年化対策上、重要なポイントとなり、総合的な対応が必要である。その中で、水化学には、供用期間中材料が使用される環境をマイルドにすることで、腐食を抑制し材料の寿命を延伸する効果をもたらすことが期待される。

BWR では、商用運転の開始以来、構造材料の IGSCC が重要課題であったが、近年になってもこの状況は変わらず、多くの努力が継続されている。この中で、IGSCC の機構解明と並行して環境面からの改善技術の開発が推進され、当初の水素注入に加え、貴金属を炉内に注入し少量の水素との組合せで腐食環境を大幅に改善する技術(NMCA)が実用化された。NMCA の普及と並行して、わが国では、 TiO_2 注入など、より効率的、経済的な環境緩和技術の開発が進められている。また、PWR においても水素による強還元環境を基礎にしながらも、1 次系での応力腐食割れ(PWSCC)対策の観点から水素濃度の最適化に関する検討が進行中である。

上記の BWR での水素注入は定格運転時が対象であるが、一方、温度変化が大きく、過渡的な応力条件が厳しい原子炉起動時の環境で腐食性成分を抑制する手法が国内で提案され、世界で始めて実機に適用されている。起動時には給水系が使えないため、通常運転時の水素注入とは異なる注入モードが必要である。環境緩和は運転サイクルの全期間にわたり継続することが理想であり、起動時水素注入はこの点を改善するものとして、すでに数プラントでの適用例がある。このような環境改善技術の効果を検証するため、腐食電位(ECP)センサによる炉内での直接計測と解析モデルを組み合わせた評価が採用されている。今後、環境面での改善効果を維持基準のなかに反映していくため、これらの評価プロセスを標準化していくことも重要な課題となっている。

また、2004年に発生した美浜 3 号機 2 次系配管破損事故に端を発する流動加速腐食(FAC : Flow Accelerated Corrosion)問題への対応も、今後、水化学が取り組むべき重要課題のひとつである。

3. 燃料高度化への対応技術

構造材の健全性維持あるいは線量率低減のための水化学制御の変更、さらに軽水炉利用高度化に際しては、燃料への悪影響に細心の注意が払われる。これまで、BWR における水素注入や NMCA、それに BWR, PWR 共通の Zn 注入のいずれでも、まず燃料への悪影響がないとの見通しを得て採用し、燃料検査でこれを確認している。

その一方で、燃料被覆管材の腐食評価では、炉外実験による実炉事象の再現が難しいという理由で、一部高温蒸気条件下の加速試験を除くと、実炉あるいはインパイル実験炉でのデータ取得に頼ることが多かった。実炉と

炉外実験のギャップに関する因子の一つとして、放射線照射下で水が分解して生成する腐食性成分の影響が考えられ、この影響を加味することで、このギャップが埋められる見通しも得られている。燃料の高度化に伴う被覆管材の腐食あるいは水素吸収に伴う諸課題についての知見を先取りし、耐食性の高い材料を開発するためには、温度による加速と同時に、腐食性分解生成種の影響を加味することが重要である。さらに腐食機構の解明が進めば、開発期間の縮小が達成できるものと期待される。

燃料に係わる無視できないもう一つの動向は米国 Callaway 炉で顕在化し、米国およびフランスで深刻な課題となりつつある PWR 燃料の軸方向出力異常(AOA : Axial Offset Anomaly)である。サイクル末期に燃料表面にクラッドに伴われてボロンが析出し、燃料上部で出力が極端に低下して、所定の炉出力が得られなくなる事象である。国内では、燃料サイクル期間が短く、これまで事例は報告されていないが、ロードマップでも検討されているプラント利用の高度化に伴い、サイクル期間が伸張されると顕在化する可能性がある。燃料上部でのサブクール沸騰、クラッド濃度などと AOA の相関を明確にして、あらかじめ AOA 対策を講じておくことが、電力の安定供給の観点からも強く望まれる。現在、IAEA が中心になり、水化学の視点から、クラッドの析出とボロン濃縮の相関を機構論的に解明するプロジェクトが進行している。核燃料部会、発電炉部会とも協力し、AOA 発生の未然防止に努めることが重要である。

4. 水化学を支える共通基盤技術

原子炉における腐食環境は、火力発電プラントほかの冷却系と比較すると、放射線照射の影響が顕著である点が特徴である。プラント全体の腐食環境の把握と放射線の直接あるいは間接照射下での冷却水と被覆材・構造材の相互作用の解明を行うことが不可欠である。

放射線照射が腐食環境に与える影響を定量化し、実験室での再現実験を可能とする技術の確立が急務となる。腐食環境の定量化は理論的な評価、すなわち、ラジオリシスモデルによる評価と高温水化学センサを用いた実験的な評価、を両輪として展開する必要がある。同時に、放射線照射効果を加味した上で、腐食環境が材料に及ぼす影響を、材料と水の境界に位置する酸化皮膜の挙動、特性評価を通して、定量化することが不可欠となる。また、酸化皮膜あるいは析出した酸化物は、相互作用の結果であると同時に、相互作用を加速あるいは緩和する働きがあるため、腐食あるいは析出過程を解明すると同時に、それらの腐食に及ぼす影響を評価することが肝要である。これらの知見に立脚して、材料と水化学の相互作用の再現実験、加速実験技術を確立して、線量率の低減、構造材および燃料の健全性の維持・向上ならびに放射性廃棄物発生量の低減のための技術開発に資することが重

第1図 原子炉構造物・燃料・水化学の基礎研究から実証研究までのアプローチ

要である。

各課題に共通な基盤技術としては、第1図に示すように、4つの具体的項目、(1)腐食環境評価技術、(2)腐食機構(主として水化学側からの寄与)、(3)酸化物・イオン種の付着脱離機構、(4)模擬および加速実験方法を取り上げた。腐食環境評価では、BWR, PWRのいずれでもラジオリシスモデルが共通手段となる。これまで、主として腐食環境の理解の手段として適用されてきたが、さらに積極的に、モデルの高精度化、標準化を図り、水化学制御を、燃料、構造物の信頼性確保の手段として、認知されるようにすることが重要である。また、各種高温水化学センサの信頼性向上を図り、水化学制御の有効性確認のモニタとして採用することが急がれる。かかる基盤技術に支えられて、非照射あるいは照射模擬条件の基礎実験から、実験炉を用いたインパイル実験、そして実炉での実証実験へと規模を拡大し、着実にデータを蓄積して、目的とする燃料、構造物の信頼性確保、被ばく線量および放射性廃棄物発生量の低減に資することが重要である。

IV. 今後の展望

火力発電プラントほかのエネルギー源を凌駕して、中核エネルギー源の座を占めるためには、プラントの線量率および放射性廃棄物発生量を極限まで低減し、クリーンプラントを実現することが重要である。特に、原子力エネルギー受容性の判断の一つが放射線環境にあることを考えると、これを極低レベルに低減することは大きな意義を有する。この実現のためのハードルは高く、達成は一筋縄ではゆかぬことは承知しているが、「次世代軽水炉」の開発でも、被ばく線量を現状の約1/10に低減する目標を掲げている。革新的なアイデアの創出が必須であるが、水化学の果たす役割は大きい。

燃料、構造物共に、諸課題のルーツは腐食にある。前

章にも記載したように、原子炉固有の放射線の直接あるいは間接照射が腐食環境あるいは腐食現象に及ぼす影響が大きい。この影響はラジオリシスモデルを用いて予測、定量化可能である。燃料・構造物の腐食現象は、それぞれの分野に閉じこもってはいず解決せず、材料・核燃料・水化学の各部会が一体となって取り組んで初めて解決できるものと考えられる。その手始めとして、昨年度から合同企画セッションの試みも開始している。

諸外国先行炉の事例を参考に問題解決に当たればすむ時代では、与えられた課題に逐一対応すれば済むが、世界のフロントランナとの自覚を意識すると問題の発生箇所を予測し、事前に対処する必要がある。燃料の高度化、プラント利用の高度化そして高経年化対応が同時に進行し、それぞれが最大限の努力を発揮して、新しい概念、ハードを作り上げてゆくと、それぞれのカバーする領域以外で新しい課題が発生する可能性が高い。原子力発電部会、熱流動部会も含め、異なった領域をカバーする部会との協調が必然的に重要となる。

水化学部会の抱える問題の一つは、学術機関からの参加が極端に少ない点である。水化学という分野の発生が、プラントの運用に深く関わっていたため、具体的な課題が外部から十分には理解されなかった経緯もあって、関係者以外からの参入の障害となっていたと考える。将来の人材確保の観点も含め、透明性を高め、広く人材を集め、技術の裾野を広げ、高めることが必要である。

水化学に関する技術体系の標準化、規格化も重要な課題であり、これを通じ、原子力プラントの信頼性向上、安定運転に寄与していく所存である。

(執筆担当: 日立 GE・布施元正, JAEA・内田俊介,
東京大学・勝村庸介, 三菱重工・荘田泰彦,
原電・瀧口英樹)

—参考文献—

- 1) 「水化学ロードマップ検討」特別専門委員会, “原子炉水化学ロードマップ”, *ATMOΣ*, **50**, 307-312(2008).
- 2) 水化学部会, “原子力発電プラントにおける水化学の課題への取組み—水化学部会ゼロ歳の抱負”, *ATMOΣ*, **50**, 506-510(2008).
- 3) 「水化学標準」研究専門委員会, “原子力の安全と信頼を支える水化学の役割と課題—軽水炉新時代の技術課題への取組み”, *ATMOΣ*, **49**, 365-370(2007).