原子炉1次冷却水中の放射性腐食生成物

山 本 大 輔*

1. ま え が き

日本における商業用発電原子炉は、沸騰水型(BWR)と加圧水型(PWR)が主流となっている。原子力発電では、ウランの核分裂で発生する熱エネルギーは冷却材(通常の場合は水)中に取り出され、これによってタービンを回転させ発電する。冷却材には純水が用いられる。原子炉系構成材料は、耐食性の高い金属が選ばれるが、高温環境において僅かではあるが腐食する。冷却材中の腐食生成物は系内を循環し、炉心部に付着すると、そこで中性子の照射を受けて放射化される。放射化した腐食生成物は剥離し、再び系内を循環し配管等に付着する。炉水中の腐食生成物あるいは配管系に付着した腐食生成物はCRUD†と呼ばれている。

定期検査や修理のために施設に立ち入る作業従事者は、放射線を受けて被ばくする。被ばく低減は、国の重要な施策のひとつになっており、このため炉水中のCRUD、配管系に付着したCRUDを除去することが重要である。ここではCRUDの特性および除去の方法について解説する。

2. 原子力発電所における放射線被ばく状況

日本における原子力発電所作業従事者被ばく量の推移を表1に示した⁽¹⁾。日本では行き届いた放射線管理により、諸外国と比較して個人当りの被ばく量は少ない。しかし24基の原子炉が稼働している現在、作業従事者は4万人、総被ばく量120 Sv††(12000 rem)を越えており、今後原子炉の運転履歴が長くなり、また基数の増加に伴って、これらの数値はますます増加すると思われる。

定期検査期間中は放射線量の高い場所で作業する機会が多いので、放射線被ばくを受け易く、とくに定期検査の初期においてその傾向が強い。表2⁽²⁾は米国の原子力発電所における放射線被ばく総量のうち、原子炉の停止期間(定検期間)中に作業従事者が受けた被ばく線量の割合を示したものであるが、筆者の試算によると、我が国では1979～1981年の平均値として、BWRで82%、PWRで88%という値が得られている。

放射線管理区域では、作業従事者の健康を守るため、国際放射線防護委員会の最大許容線量に関する勧告を守るとは勿論“実行可能な限り少なく(as low as practicable)”を遵守して管理運営されている。

原子力発電所管理区域内では多くの作業従事者が働いており、原子炉基数の増加と運転履歴の長期化に伴いその数はますます増加すると考えられる。このことから、

† Chalk River Unidentified Deposit に由来する。
†† 1 Sv(シーベルト) = 100 rem(レム)

表1 被ばく状況の推移。

年 度	1977	1978	1979	1980	1981	1982
項 目						
従 事 者 数(人)	25362	34155	34252	35954	40532	40629
総 被 ば く 量 (人・Sv) [人・rem]	81.26 [8126]	132.01 [13201]	117.31 [11731]	129.32 [12932]	128.83 [12883]	126.97 [12697]
平均被ばく量 (mSv) [rem]	3.2 [0.32]	3.9 [0.39]	3.4 [0.34]	3.6 [0.36]	3.2 [0.32]	3.1 [0.31]
原 子 炉 基 数	19	21	21	22	24	24

* 栗田工業株式会社総合研究所原子力グループ
グループリーダー
Radioactive Corrosion Products in Reactor Cooling Water ; Daisuke Yamamoto (Atomic Energy Group, Kurita Central Lab, Yokohama)
Keywords: nuclear power reactor, primary cooling water system, radioactive corrosion product, radiation exposure, condensate demineralizer, reactor cleanup system, decontamination, radioactive waste, decontamination factor
1984年2月6日受理

表2 定検中における被ばく線量の割合(米国).

年 度	1969	1970	1971	1972	1973
定検中の被ばく(%)	69	73	59	70	80

将来的には、従事者の需給バランスの問題の顕在化も予測され、被ばく低減化技術は一層重要な課題となろう。

3. CRUD の発生と蓄積

原子炉1次冷却系で発生する CRUD は、BWR と PWR とで質的に若干異なる(表3)⁽³⁾。これは原子炉の構成材料および冷却水の処理方法が異なるためである。すなわち BWR では、給水・復水系統の配管に炭素鋼が多く使われており、炉水は酸化雰囲気で運転されることから、鉄酸化物(ヘマタイト、マグネタイト)を多く含んでいる。また PWR では、構成材料のうち大きな表面積を占める蒸気発生器の材質がインコネルで、炉水も還元雰囲気であることから、スピネル構造をもった、ニッケルを含むフェライト系のものが比較的多い。

表4⁽⁴⁾は CRUD の発生から蓄積に到るまでの過程を示したものである。原子炉構成材料の腐食反応によって溶出した微量の金属は、一部はイオンとして、他は懸濁物として冷却水中に移行し、そして炉心に到達する。岩堀ら⁽⁵⁾がヘマタイトなどの模擬 CRUD を用いた実験で、CRUD は熱負荷の高い所に良く堆積することを確認しているように、実際の原子炉でも燃料棒上への堆積が多い。燃料棒に堆積した金属酸化物は、そこで中性子の照射を受けて下に示す核反応によって放射化されることになる。

核 種	核 反 応	
⁵⁴ Mn	⁵⁴ Fe(n,p)	⁵⁴ Mn
⁵⁹ Fe	⁵⁸ Fe(n,γ)	⁵⁹ Fe
⁵⁸ Co	⁵⁸ Ni(n,p)	⁵⁸ Co
⁶⁰ Co	⁵⁹ Co(n,γ)	⁶⁰ Co

例えば天然に存在するコバルトの形態は、⁵⁹Co(中性子数32, 質量数59)のみである。⁵⁹Coは中性子を吸収し、γ線を放出して質量数の1つ多い⁶⁰Coに変化する。同様に⁵⁸Niは中性子を吸収し、プロトンを放出して質量数の同じ⁵⁸Coになる。

表5⁽⁶⁾は CRUD の化学組成およびこれに含まれる核種別の放射能の割合を例示したものである。CRUD を構成する元素の大部分は鉄であるが、放射能への寄与率は⁶⁰Co および⁵⁴Mn の高いことがわかる。

ステンレス鋼や炭素鋼中には、不純物としてコバルト

表4 CRUD の挙動と放射能の発生, 移行, 蓄積.

CRUD の 挙 動	放射能の発生・移行・蓄積
CRUD の発生, 炉水への移行	放射核種のもとになる金属の溶出
CRUD の燃料棒上への堆積	中性子照射による放射化
CRUD の再溶出, 剝離	炉心部より炉心外への放射能の移行
配管系などへの CRUD の析出, 堆積	配管系などへの放射能の蓄積

表5 CRUD 中の放射能濃度, 化学組成割合(%).

試 料 採 取 個 所	復水ポンプ出口		低圧給水加熱器出口	
	放射能	化学組成	放射能	化学組成
コ バ ル ト (⁶⁰ Co)	40	—	39	—
マン ガ ン (⁵⁴ Mn)	34	—	38	—
亜 鉛 (⁶⁵ Zn)	12	—	8	—
鉄 (⁵⁹ Fe)	7	97	8	100
コ バ ル ト (⁵⁸ Co)	4	—	4	—
ジル コ ニ ウ ム (⁹⁵ Zr)	4	—	4	—
銅	—	3	—	—
ニ ッ ケ ル	—	—	—	—

表3 軽水炉1次冷却系の特徴と CRUD.

炉	型		B W R		P W R	
	炉 水 の 液 性		酸 化 性		還 元 性	
1 次冷却系の特徴	構成材料の接水面積比率(燃料棒含む)		ステンレス鋼	38~42%,	インコネル	65~70%,
			炭素鋼	16~20%,	ジルカロイ	25~28%,
腐 食 生 成 物 (クラッド)	形 態	外 層	α-Fe ₂ O ₃ (主成分), Fe ₃ O ₄ , NiFe ₂ O ₄		Fe ₃ O ₄ (主成分), NiFe ₂ O ₄ , FeCr ₂ O ₄	
		内 層	Fe ₃ O ₄ (主成分), α-Fe ₂ O ₃ , NiFe ₂ O ₄ , FeCr ₂ O ₄		FeCr ₂ O ₄ , Fe ₂ CrO ₄	
	化 学 組 成 比		Fe 80~90%, Cr+Ni 10~20%		Cr+Ni 60~80%, Fe 20~40%	
	化学除染剤によるクラッドの溶解機構		還 元 溶 解		酸化溶解(次いで還元溶解)	

が、それぞれ 0.2%, 0.005% 程度含まれている。コバルト含有率は極めて低いにもかかわらず、これらの材料の構成表面積比が大きいので問題となる。また構成比は小さいが、ステライトなどコバルト基合金からもコバルトが溶出する。

冷却水中のコバルト濃度は数 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (数 ng/L) といった微量にもかかわらず、 ^{60}Co は他の核種と比較して放射能の半減期が長いことおよび γ 線エネルギーが高いので扱いがやかいである (表 6) ⁽⁷⁾。

表 6 主要な腐食生成物の放射性核種.

核種	反応	親核種の天然存在比 (%)	半減期	主要 γ 線エネルギー (MeV) *	^{60}Co を 1 とした線量率への寄与率
^{60}Co	^{59}Co (n, γ)	100	166.6 Ms (5.279 年)	1.173 1.323	1.0
^{58}Co	^{58}Ni (n, p)	67.76	6.16 Ms (71.3 d)	0.810	0.41
^{54}Mn	^{54}Fe (n, p)	5.84	27.04 Ms (313 d)	0.835	0.33
^{59}Fe	^{58}Fe (n, γ)	0.31	3.90 Ms (45.1 d)	1.095	0.480
^{52}Cr	^{51}Cr (n, γ)	4.31	2.40 Ms (27.8 d)	0.320	0.01
^{65}Zn	^{64}Zn (n, γ)	48.89	21.1 Ms (244 d)	1.115	0.22

* 1 MeV $\approx 1.6 \times 10^{-13}$ J

炉水中における他の放射性核種として、ウランなど原子炉燃料の核分裂生成物も考えられるが、燃料被覆管の信頼性が向上した今日では、全く問題ないといって差支えない。

燃料棒表面における CRUD の付着状態は強固なものではなく、冷却水の流れによって剥離し、再び冷却水中に移行し、最後には配管系や再循環ポンプおよび PWR においては蒸気発生器の伝熱管などに多く蓄積する。

蓄積した CRUD は、図 1 ⁽⁸⁾ に示すような 2 層構造になっている。内層 CRUD の組成は接触している金属成分を多く含み、金属面と比較的強固に密着している。また外層 CRUD は、冷却水からの沈積物を多く含み、剥離し易い。内外層とも微細孔を有しており、腐食反応で生成した金属イオン (主として Fe^{2+}) は細孔中を拡散し、

図 1 2 層 CRUD 構造.

冷却水中に移行し、また炉心から運ばれた ^{60}Co イオンなどの放射性核種は外層部で吸着し、一部は細孔中を拡散し内層にまで取り込まれると考えられている。金属表面に到達した放射性核種の一部が金属の粒界にまで浸透した場合には、CRUD を完全に除去しても放射能はゼロにならないこともある。

以上に CRUD の生成から蓄積について概観したが、その挙動は未解明の部分が多い。放射能蓄積に関して、モデル化、数式化し解明しようとする試みが、各原子炉メーカーによって精力的に行われている。

4. CRUD 低減化のための水処理

(1) BWR

図 2 は BWR 1 次冷却系の系統図を示したものである。原子炉で発生した蒸気はタービンを駆動させたのち復水器で凝縮する。復水器の上流で生成した腐食生成物 (懸濁物質およびイオン) は、復水浄化装置で除去され、純水は、低圧給水加熱器および高圧給水加熱器を通り、原子炉に給水される。なお腐食抑制のため、復水浄化装置出口において酸素注入が行われる。

図 2 BWR 1 次冷却系系統図.

一方、原子炉水の一部は取り出され、冷却したのち炉水浄化装置を経て再び原子炉に戻される。

(i) 復水浄化装置

一般に強酸性陽イオン交換樹脂と強塩基陰イオン交換樹脂を混合した混床型脱塩装置が用いられる。イオン交換樹脂は下に示す化学構造をもち、とくに原子力用に精製されたものが使用される。

復水器上流で発生した腐食生成物の濃度はプラント毎に差異はあるが、およそ $10 \sim 30 \text{ mg/m}^3$ ($10 \sim 30 \text{ } \mu\text{g/L}$) 程度であり、復水脱塩装置で約 70% が除去される。目黒ら⁽⁹⁾は原子炉 1 次系配管の表面線量率を $71.7 \times 10^{-10} \text{ C/kg}\cdot\text{s}$ (100 mR/h) 以下にするためには、復水脱塩装置出口水の鉄濃度を 1 mg/m^3 以下にする必要のあることを見出し、そして復水脱塩装置に使用するイオン交換樹脂を小粒径化し、また低流速で通水することによってそれが達成できることを確認している。

復水脱塩効率を向上させる方法として、粉末イオン交換樹脂装置が混床型イオン交換装置の前置フィルターとして用いられる。

粉末イオン交換樹脂は、通常の粒状樹脂を完全再生したのち $10 \sim 200 \text{ } \mu\text{m}$ に粉碎したもので、支持体(エレメント)に圧着して汙層を形成させる。汙層を均一化し、また運転中にクラックが発生し、処理液水質の低下を防ぐため、種々の助材が配合される。粉末イオン交換装置を前置フィルターとした復水浄化系の CRUD 除去効率は 99% 程度にまで向上する。

粉末イオン交換樹脂は、 $0.86 \sim 1.21 \text{ Ms}$ ($10 \sim 14 \text{ d}$) 毎に逆洗し廃棄する必要がある、これが廃棄物の量を増大させる一因となっている。現在粉末イオン交換樹脂寿命を延長させるため、助材の改良など種々検討がなされている。また将来的には、膜利用による廃棄物の発生を

極力抑制する方法が採用されるであろうが、まだ実用化には時間を要する。

(ii) 給水への酸素注入

原子炉 1 次冷却系の各部における鉄および酸素濃度の測定例を図 3 に示す。冷却水は復水浄化系を出たのち、炭素鋼配管、ステンレス鋼給水加熱器を通過する際に鉄を溶出させる。とくにここではイオン状鉄の存在が顕著である。一方溶存酸素は各部分とも 3 mg/m^3 ($3 \text{ } \mu\text{g/L}$) 以下と低い。給水中の鉄濃度は原子炉によって低いものがあり、このような炉では、給水中の溶存酸素濃度は比較的高い値を示すことが知られていた。泉谷ら⁽¹⁰⁾は、復水脱塩後に酸素注入を行えば、鉄濃度の低下が可能であろうとの予測のもとに試験を行った。図 4 に示すような予想どおりの結果を得、この方法は、現在 BWR において全面的に採用されている。

(iii) 炉水浄化装置

給水から持ち込まれた腐食生成物および炉内材料の腐食生成物を除去するのに炉水浄化装置がある。混床型脱塩装置および粉末イオン交換装置がそれぞれ単独あるいは組合せて使用される。通常は給水量の 1~2% 程度が処理される。イオン交換樹脂は耐熱温度が高くないので、熱交換器を通して炉水温度を下げる必要がある。浄化系の容量を大きくすると、炉水水質は向上するが、熱経済上限度がある。そこで炉水温度を下げずに浄化が可能な高温フィルターが要望されている。この目的のために、欧州では電磁フィルターを採用する発電所が多いが、除去効率が高くなく、日本ではこれを採用している発電所は未だない。Oskarshamn 発電所(スウェーデン)では、マグネタイト粒子を濾材とする高温フィルターが実用されている。コバルトはマグネタイトに吸着され易く、被ばく低減に有効である。コバルト選択吸着材としてゼオライトやチタン酸が知られており、今後の研究成果が期待されている。

(2) PWR

PWR は文字通り加圧して沸騰をおさえた高温水を蒸気発生器に送り、2 次系に蒸気を発生させ発電するシステムである。このように PWR では 1 次系(原子炉系)と 2 次系(タービン、復水系)が隔離されており、1 次系は閉サイクルであることから、放射能は 1 次側に閉じ込められるので、BWR と比較して、被ばくは少ない。

PWR における CRUD 低減化のため、水処理の実施、炉水浄化装置の設置のほか、種々の方策が取られている。

(i) 水酸化リチウムの添加

1 次冷却系の腐食を抑制するため、水酸化リチウムを添加して、冷却水をアルカリ性に保つ。1 次冷却水には反応度制御のために硼酸が添加される。硼素は中性子を吸収し、 α 粒子を放出して Li になる。

図 3 酸素注入前の給水中の鉄濃度。
($1 \text{ mg/m}^3 = 1 \text{ } \mu\text{g/L}$)

図 4 酸素注入後の給水中の鉄濃度。

PWR 1 次系における Li イオンの水質基準上限値は 2.2 g/m^3 (2.2 mg/L) で、上記 ^{10}B の核反応の進み具合によっては Li が過剰になることがある。過剰の Li イオンを除去するために陽イオン交換樹脂が用いられる。

(ii) 溶存酸素の制御

水の放射線分解によって生成する酸素濃度をコントロールするため、水素ガスの注入が行われる。

(iii) 炉水浄化系

1 次冷却水浄化のため、炉水の一部を取り出して混床型イオン交換装置に通している。

5. CRUD の溶解(除染)

原子炉運転履歴が長くなると、系内への CRUD の蓄積が進行して次第に線量率が上昇する。図 5⁽¹¹⁾は BWR 再循環ポンプ配管の放射線レベルの経時変化を示したもので、プラントによって線量率上昇速度にはばらつきがあるものの、およそ $(2.3 \sim 3.4) \times 10^{-16} \text{ C/kg} \cdot \text{s}^{-2}$ ($100 \sim 150 \text{ (mR/h) / EFPPY}$) 程度の上昇が見られる。原子力発電所では、定期的に検査が義務づけられており、また故障など修理のために線量の高い場所で作業をすることが多く、作業従事者は放射線被ばくを受ける。被ばく寄与率の高い核種は表 4、表 5 に示したように ^{60}Co , ^{58}Co , ^{59}Fe , ^{54}Mn などであるが、それらの CRUD 中における質量組成比率は小さい。CRUD の大部分は鉄酸化物から成っているが、前記核種はこの中に取り込まれているため、CRUD を除去することによって線量率を低下させ、被ばくを低減させることができる。CRUD 除去の手段として除染(decontamination)が注目されている。除染はブラシなどで行う機械的方法と、薬品で CRUD を溶解あるいは剥離する化学的方法に分類されるが、ここでは化学除染について述べる。化学除染に使用する薬品

図 5 BWR 再循環配管の放射能レベルの経時変化。

† Effective Full Power Year (実効定格運転年数)

の主流は、有機酸あるいは有機キレート剤であって、鉄酸化物に対して溶解力の強い塩酸などの無機酸は、構造材料に対する腐食問題を配慮して用いられない。

化学除染は 10% 程度の薬剤濃度で行う濃厚液法と 0.1% 程度で行う希薄液法に分けられる。それらの方法には一長一短があるが、最近では、米国やカナダで希薄液除染が脚光を浴び、実績も多くなっている。

(1) 濃厚液法

濃厚液法で最も多く用いられる薬剤は、クエン酸アンモニウム (AC 法) とクエン酸・シュウ酸 (Citrox 法) である。AC 法では、クエン酸二アンモニウムを、10% 程度の濃度で用いる。温度は 363 K (90°C)、 $3.6 \sim 14.4 \text{ ks}$ ($1 \sim 4 \text{ h}$) の除染を標準とする。炭素鋼に対して腐食性があるので、腐食抑制剤の併用が必要である。

Citrox 法は、クエン酸二アンモニウムとシュウ酸を 2 対 1 の比率で使用する。温度、時間は AC と同じである。炭素鋼に対して腐食性の低いのが特長である。

CRUD 中にクロム酸化物を多く含む場合、AC あるいは Citrox では効果が十分でないことがある。このような場合、アルカリ性過マンガン酸 (AP) 溶液の前処理が有効である。過マンガン酸イオンは、Cr (III) を酸化して、溶解し易い Cr (VI) の形にする。

水酸化ナトリウム約 10%、過マンガン酸カリウム約 3% 溶液で、 373 K (100°C)、 $3.6 \sim 7.2 \text{ ks}$ ($1 \sim 2 \text{ h}$) 処理する。AC との 2 段処理を AP-AC 法、Citrox との組合せを AP-Citrox 法と呼んでいる。各工程の水洗液を含めて、濃厚液除染では大量の液体廃棄物が発生する。廃液は必要に応じ濃縮し、セメント固化体としている。

AP-AC および AP-Citrox 法は、1 次系冷却水循環ポンプなどに実績が多い。

NS-1 は Dow Chemical が Dresden 1 号炉 (BWR) の除染用に開発した除染剤である。Dresden-1 号は 1984 年 6 月に除染が予定されている。

NS-1 の主剤は、キレート剤、有機酸、インヒビター、界面活性剤から成り、7% 溶液で温度 393 K (120°C)、 $360 \sim 432 \text{ ks}$ ($100 \sim 120 \text{ h}$) 除染する。除染係数†† (decontamination factor) は、AP-AC、AP-Citrox と同様で 50-100 程度が得られることがある。

Peach Bottom 2 号、3 号の炉水浄化系や再生熱交換器に除染実績がある。

(2) 希薄液法

Can-Decon 法は、カナダ原子力公社 (AECL) が Candu 炉 (重水炉) 除染用に開発したシステムである。この方法

†† 除染係数 = (除染前の放射能量) / (除染後の放射能量)

は、冷却水に薬剤を直接注入して除染を行うもので、除去された CRUD は、フィルターおよび陽イオン交換樹脂で連続的に除かれ、除染剤は再生される。除染終了後、液中に残存する CRUD と除染剤は混床式イオン交換塔で除き、冷却水は浄化されるので、そのまま炉の運転に入ることができる。

Can-Decon 法の特徴は、(1) 浄化された水は、冷却水としてそのまま再利用でき、また水抜き、水洗工程を必要としない。これは非常に高価な重水を使用する重水炉では、重水のロスおよび洗浄水による希釈がないため極めて有利であり、(2) 廃棄物としては、フィルターおよびイオン交換樹脂などの固体廃棄物のみで、液体廃棄物を出さないのも、軽水炉でも有用である。

Can-Decon 法は、上記のような一連のシステムの呼称であって、除染剤は特定していないが、通常はキレート剤および有機酸が用いられる。濃度 0.1% の除染液で、363~403 K (90~130°C)、86.4 ks (24 h) 除染を行なう。濃厚液法と比較して薬剤の濃度が低いので、除染係数はやや劣るが、実用例では殆ど遜色ない。

Candu 炉での燃料棒を含む全系統除染の実績のほか、BWR では Vermont Yankee, Brunswick 1, 2 号, Nine Mile Point, Peach Bottom-2, 3 号, Hatch-1 号などの 1 次全系統および炉浄化系に数多くの実績を残している。また 1983 年に米国原子力規制委員会が出した大口径冷却水配管溶接部における応力腐食割れ検査のための炉停止命令により、被ばく低減の必要性が生じた Quad Cities-2 号および Dresden-3 号 (いずれも BWR) の 1 次冷却系も急拠除染が実施されている。

PWR の場合、Ginna-2 号において希薄 AP で酸化処理した後、Can-Decon 法で除染した例がある。

通常は図 6 に示すようなフィルター、イオン交換塔な

図 6 除染用スキッド。

どを組合せたスキッドを本設に接続して除染が実施される。

英国では中央電力庁 (CEGB) が、 V^{2+} 、ピコリン酸およびギ酸を成分とする LOMI (Low Oxidation state Metal Ion reducing reagent process) 法を開発した。この方法は、Fe(III) を溶解し易い Fe(II) の形にするために、還元性金属イオンである V^{2+} を利用するものである。LOMI 法による除染の標準的条件は、1% 溶液を用い、363 K (90°C)、7.2 ks (2 h) である。英国 Winfrith (蒸気発生型重水炉) において、全系統の除染が実施されている。

LOMI 法においても、再生工程、浄化工程には、イオン交換樹脂を用いており、Can-Decon 法とほぼ類似している。

6. あとがき

原子炉における CRUD の発生および除去について概説した。CRUD の低減技術は、原子力発電所で働く人の被ばく低減化に係わりが深く重要である。しかし CRUD の金属化学については、今後解明しなければならない問題も多く残されている。

最後にこの解説では、筆者の情報量のかたよりから、BWR 中心となり、PWR について十分に意を尽くせなかったことをお詫びする次第である。

文 献

- (1) 資源エネルギー庁編：昭和 57 年度実用発電原子炉施設における放射性廃棄物管理の状況及び従事者の被ばく状況について、(1983・9 月)。
- (2) 神山弘章，ほか：軽水炉一次冷却系の放射能蓄積抑制対策と除染，アイエヌユー，(1978)，70。
- (3) 諏訪 武，安中秀雄：防食技術，**32**(1983)，721。
- (4) 神山弘章，ほか：軽水炉一次冷却系の放射能蓄積抑制対策と除染，アイエヌユー，(1978)，45。
- (5) 岩堀 徹，水野孝之：電力中央研究所研究報告 74007 (1974・7 月)。
- (6) 神戸弘巳，大塔容弘，神山弘章：電力中央研究所研究報告 73034 (1973・11 月)。
- (7) 長尾博之，逸見幸雄，石井英臣，佐藤康彦：日本原子力学会誌，**23**(1981)，796。
- (8) J. E. LeSurr : J. Br. Nucl. Energy Soc., **16** (1977)，53。
- (9) 目黒芳紀，酒井公雄，滝口英樹，若松浩造，山崎克男，大角克巳，山本道好，沼崎誠一：日本原子力学会秋の分科会予稿集 (第 II 分冊)，神戸商船大学，(1982)，p. 163。
- (10) 泉谷雅清，水庭文雄，大角克巳，神林 剛，松島雍憲，丹野和夫：火力原子力発電，**27**(1976)，419。
- (11) R. A. Shaw and D. L. Uhl : Proceedings of International Water Conference, Oct. 26-28, 1976, Pittsburgh, Pennsylvania, (1976)，p. 77。