

日本原子力学会 水化学部会 第34回定例研究会

# BWRプラントにおける線量低減への取組み

東芝エネルギーシステムズ株式会社  
洞山 祐介  
2018年 10月 5日

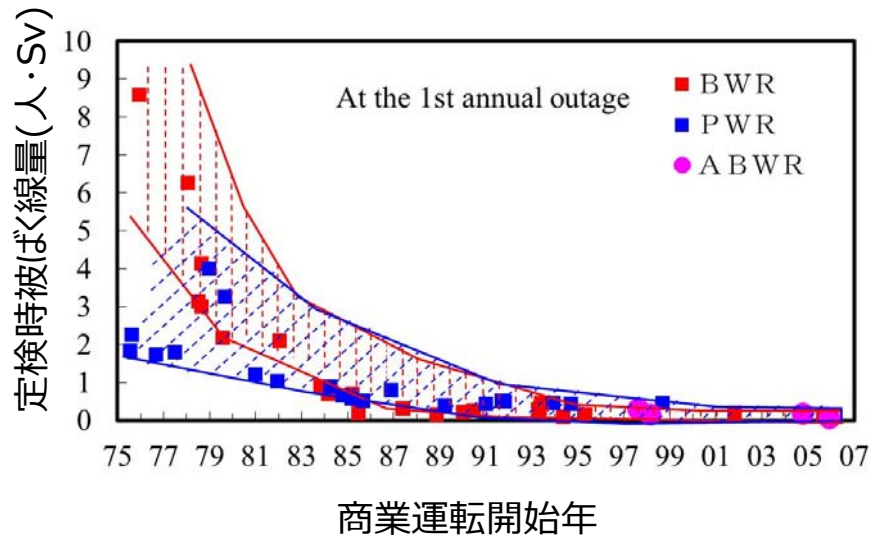
# 目次

---

1. 国内プラントの被ばく線量の推移
2. BWRプラントにおける被ばくメカニズムの概要
3. BWRプラントにおける線量低減への取組み
  - 3.1 水質制御の変遷
  - 3.2 Ni/Fe比制御
  - 3.3 極低鉄高Ni制御
  - 3.4 炉水Ni制御
4. 微量鉄注入装置の開発
  - 4.1 薬剤選定ラボ試験
  - 4.2 注入システム
  - 4.2 実機適用工程
5. まとめ

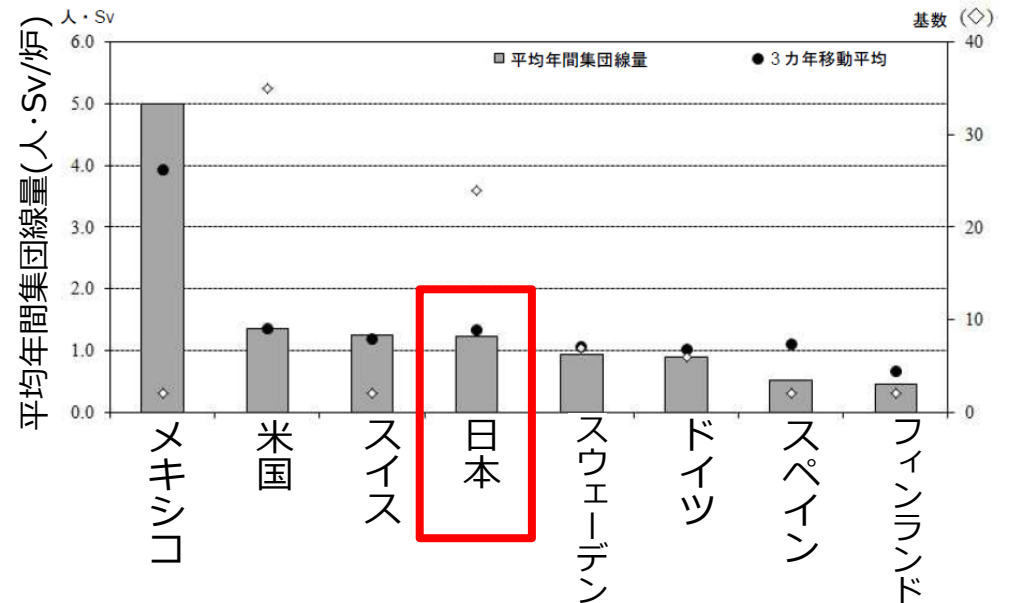
# 1. 国内プラントの被ばく線量の推移

BWR/PWRにおける定検時被ばく線量の推移



国内導入当初はBWRの被ばく線量がPWRを上回っていたが、80年代後半から同等以下まで低減

国別のBWR一炉当たり平均線量（2010年）※

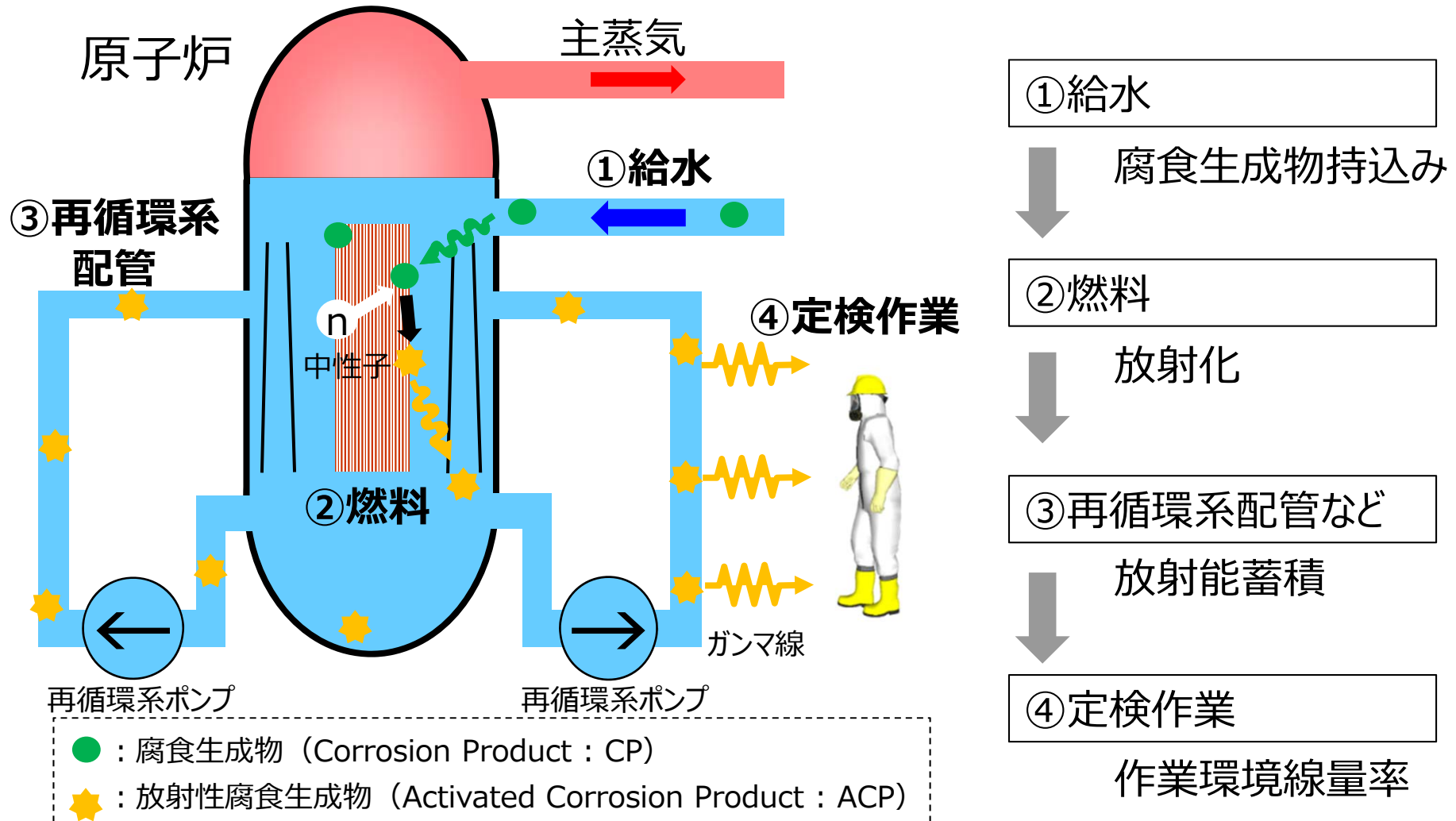


※出典：ISOEプログラム第20回年次報告書（2010年）

日本のBWR被ばく線量は世界で4番目に高い

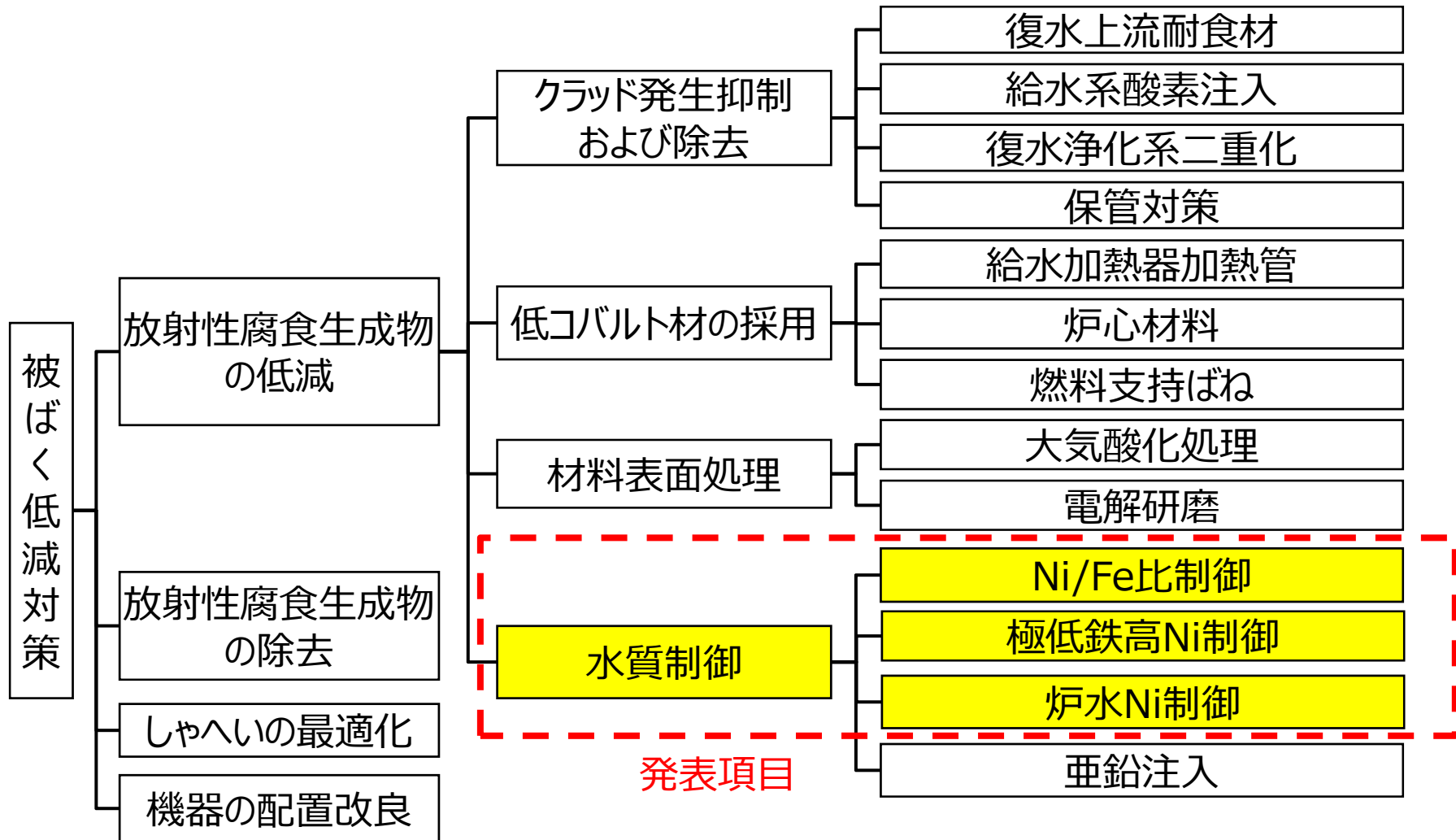
**プラント再稼働後は、被ばく低減対策への再注力が必要**  
**目標:0.5人・Sv/炉**

## 2. BWRプラントにおける被ばくメカニズムの概要



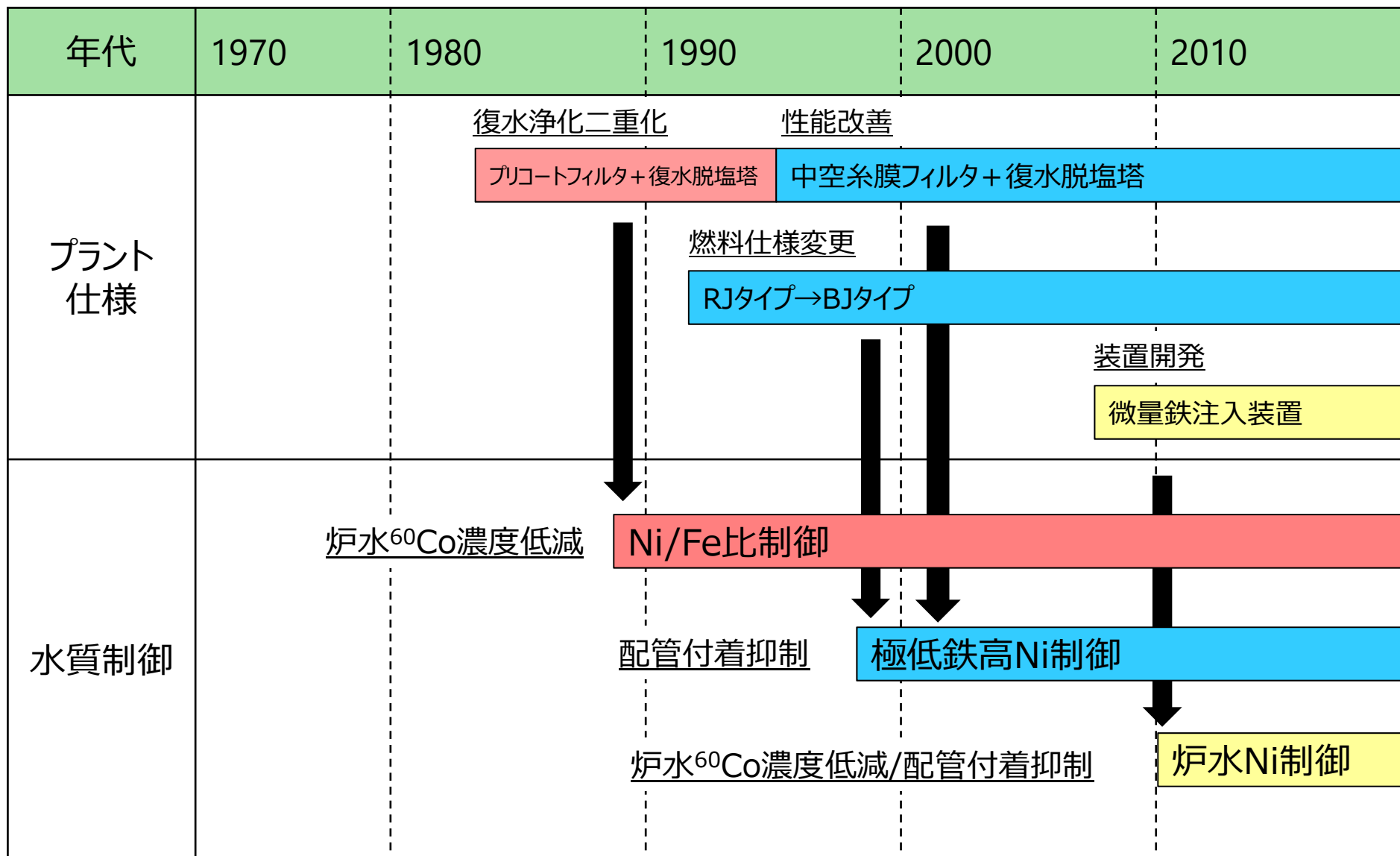
**炉心部で放射化した腐食生成物が  
再循環系配管などで酸化皮膜に取込まれて被ばく線源となる**

# 3. BWRプラントにおける線量低減への取組み

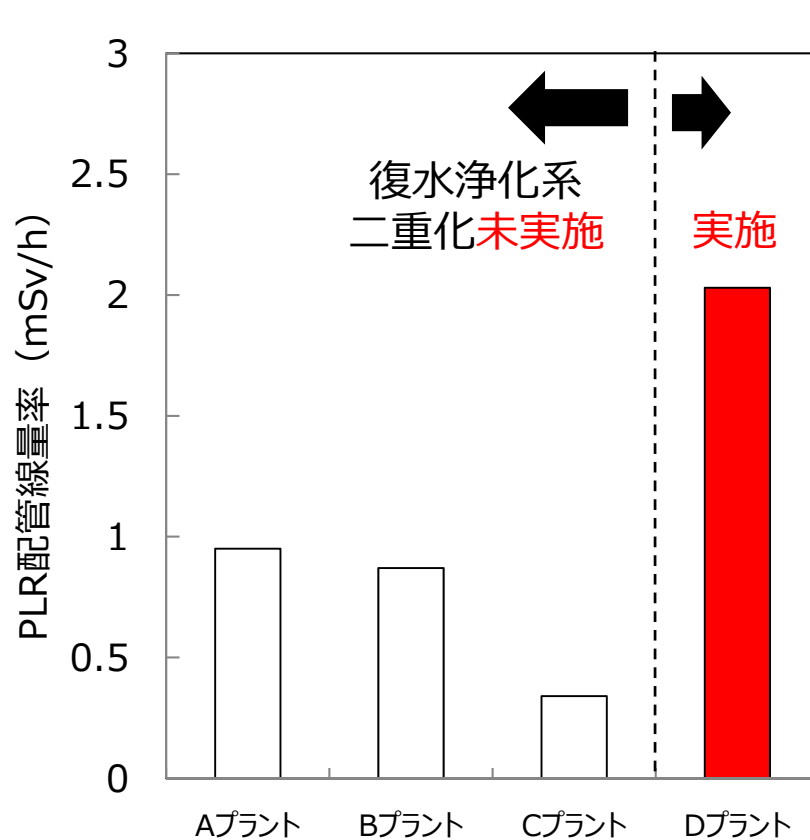


**被ばく低減対策として、水質制御（とくに鉄濃度制御）に着目してご紹介**

# 3.1 水質制御の変遷



# 3.1 水質制御の変遷 – 80年代前半 –



復水浄化系二重化対策実施前後での定検時PLR配管線量率の比較

想定された要因

復水浄化系二重化前

- ⇒鉄が炉内に多量に持込まれる
- ⇒厚い燃料クラッドへ<sup>60</sup>Coが閉込められる
- ⇒炉水<sup>60</sup>Co濃度の低濃度維持が可能



復水浄化系二重化後

- ⇒燃料クラッドへ<sup>60</sup>Coが閉込め効果が低減
- ⇒炉水<sup>60</sup>Co濃度が上昇
- ⇒PLR配管線量率が上昇

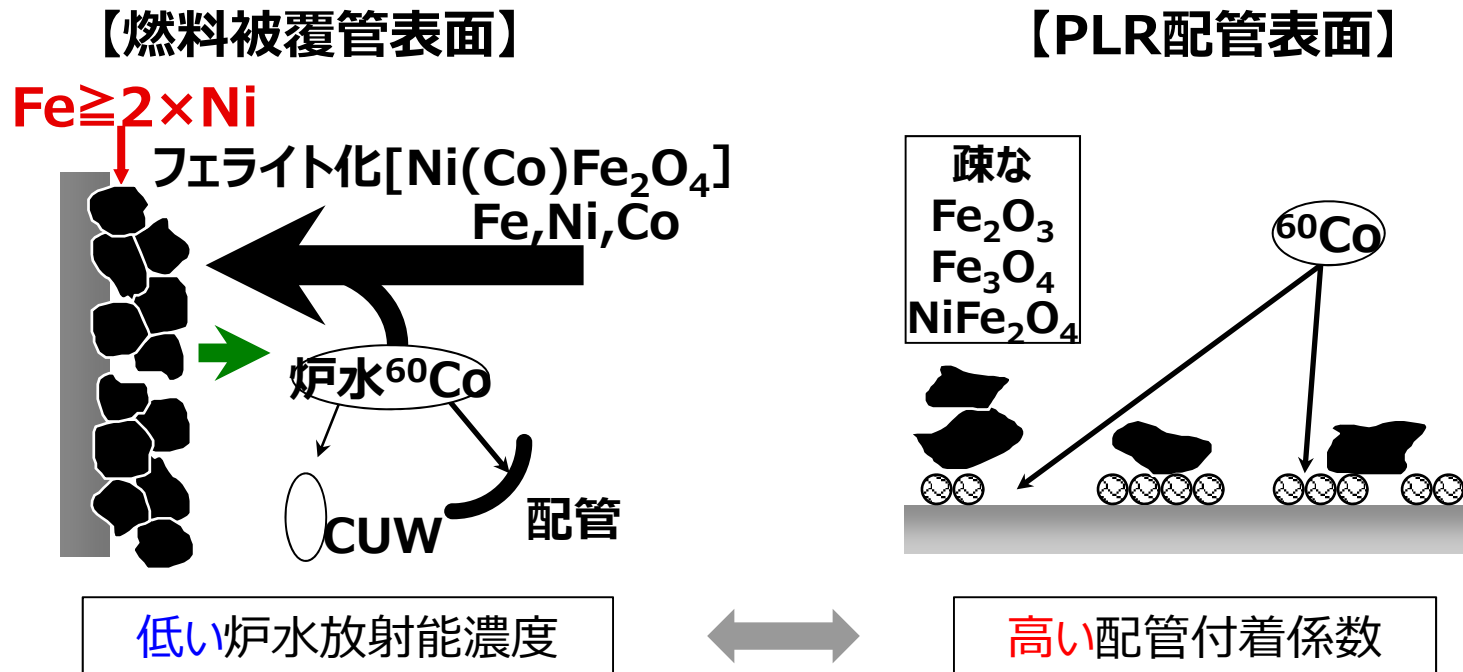
**復水浄化系二重化等のクラッド持込み対策を講じたプラントで炉水<sup>60</sup>Co濃度が上昇し、配管線量率が高くなった**

## 3.2 Ni/Fe比制御 –コンセプト–

### ● Ni/Fe比制御のコンセプト：

⇒給水から鉄を注入し、燃料被覆管表面に多量の $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ を付着させ、燃料クラッドへ $^{60}\text{Co}$ を閉込め、炉水 $^{60}\text{Co}$ 濃度を低下

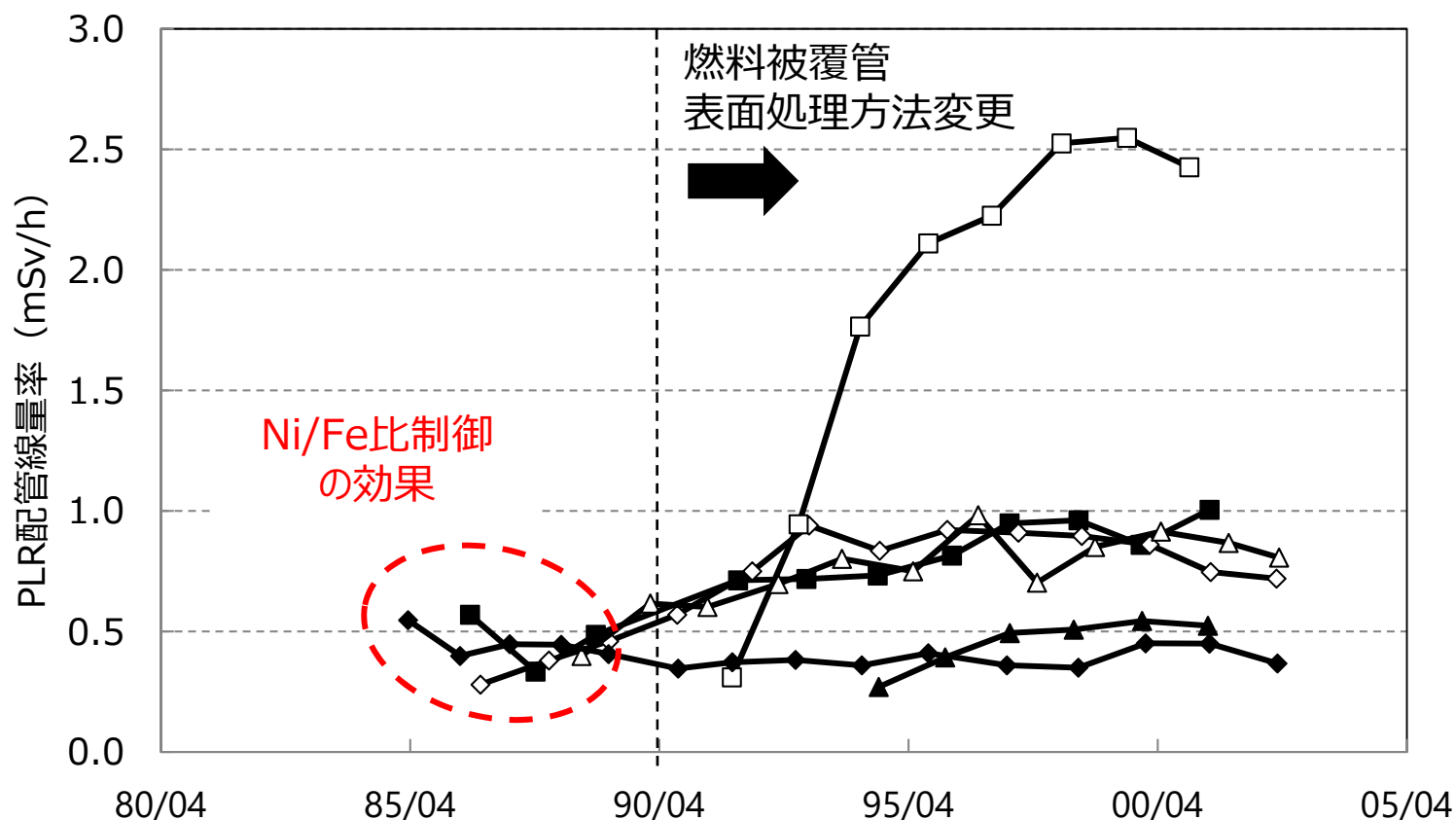
⇒PLR配管表面は疎なヘマタイトの皮膜が形成され、 $^{60}\text{Co}$ が付着しやすい点は許容



燃料被覆管表面での $^{60}\text{Co}$ 挙動に着目し、炉水 $^{60}\text{Co}$ 濃度を低下



## 3.2 Ni/Fe比制御 - 効果 -



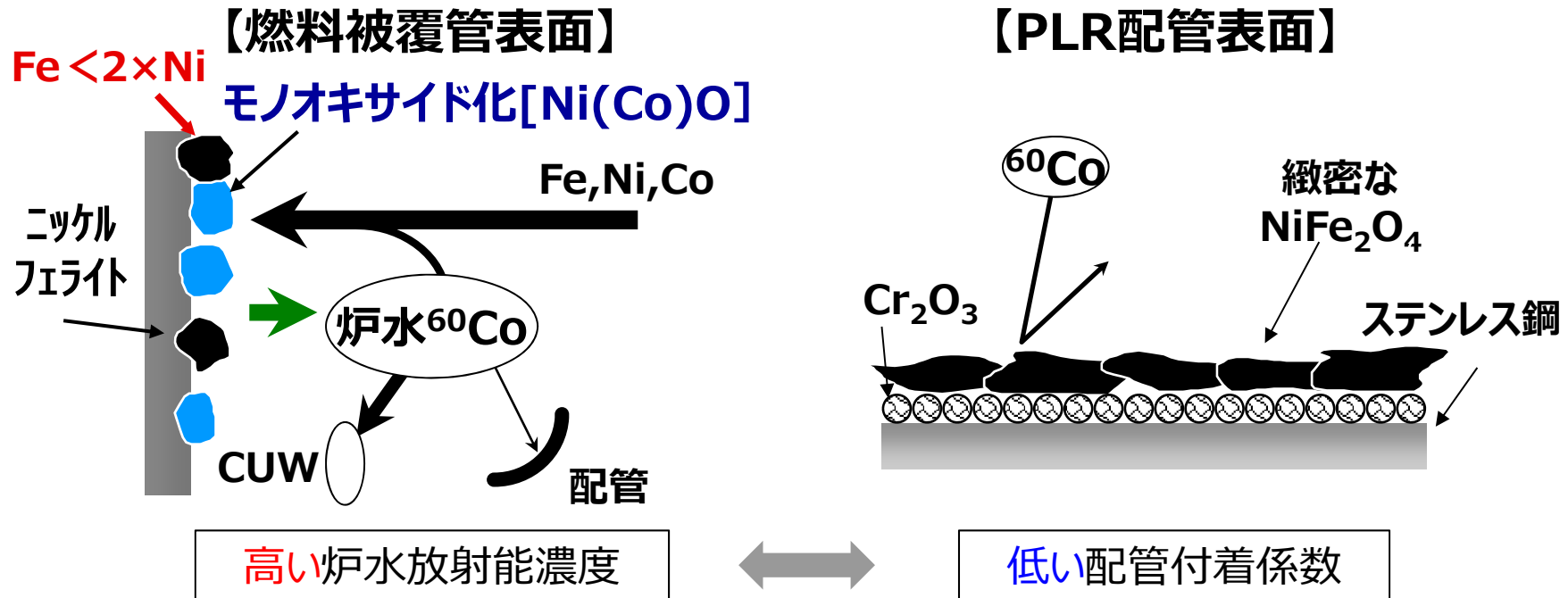
**Ni/Fe比制御の効果は得られたが、  
燃料被覆管の表面処理変更により、再度PLR線量率が上昇**



# 3.3 極低鉄高Ni制御 -コンセプト-

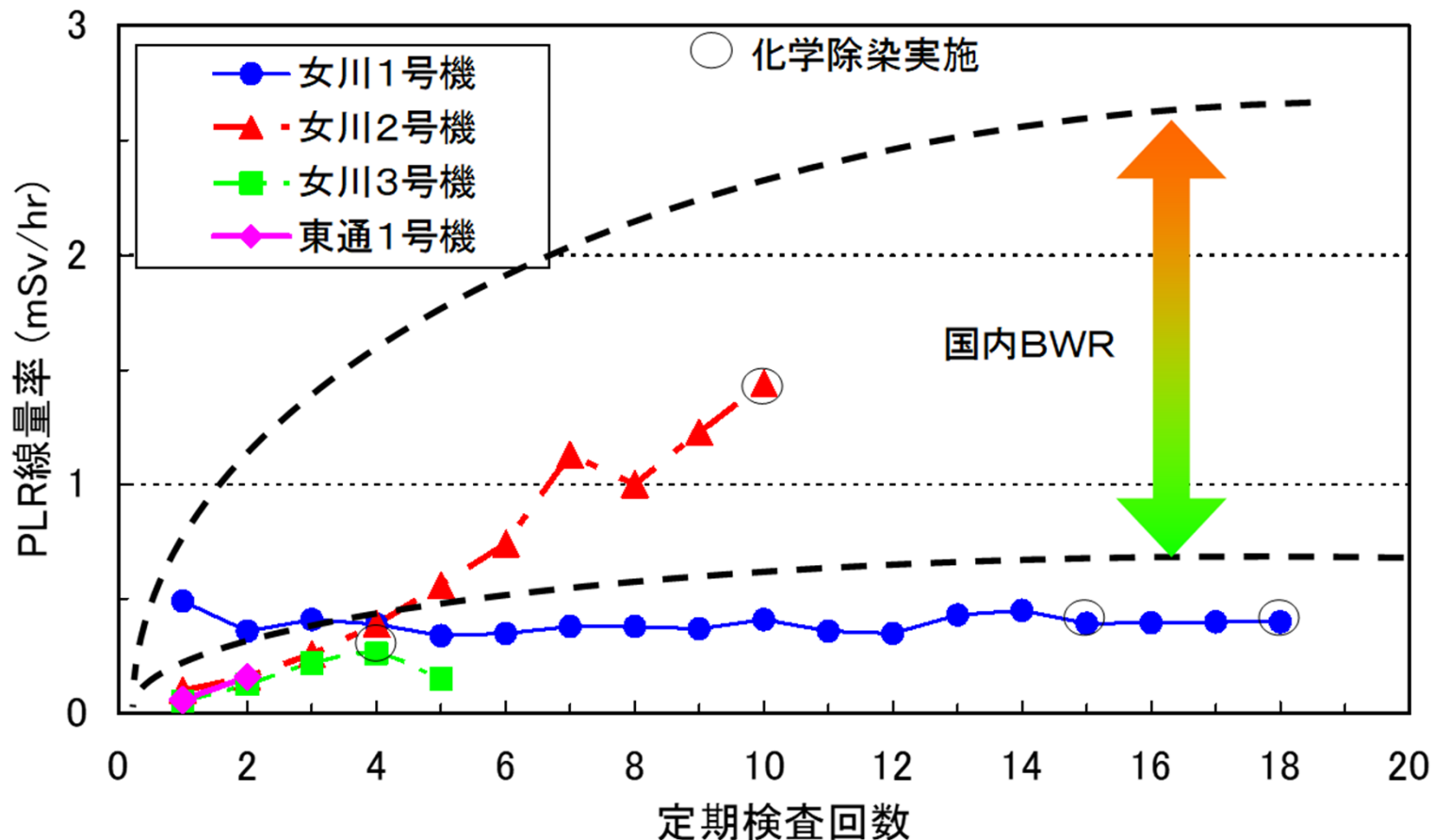
## ● 極低鉄高Ni制御のコンセプト :

- ⇒  $^{60}\text{Co}$ を燃料クラッドに閉込められないなら、 $^{60}\text{Co}$ の配管への取り込みを抑制する
- ⇒ 鉄持込を最小化し、配管皮膜を厚い鉄酸化物から緻密な $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ へ変更
- ⇒ CUWの浄化率を出来るだけ上げて炉水の $^{60}\text{Co}$ を除去



燃料表面処理は変更できないため、復水浄化系の仕様向上を反映し鉄を極力抑制し、ニッケル過剰状態を維持

### 3.3 極低鉄高Ni制御 – 効果と課題 –

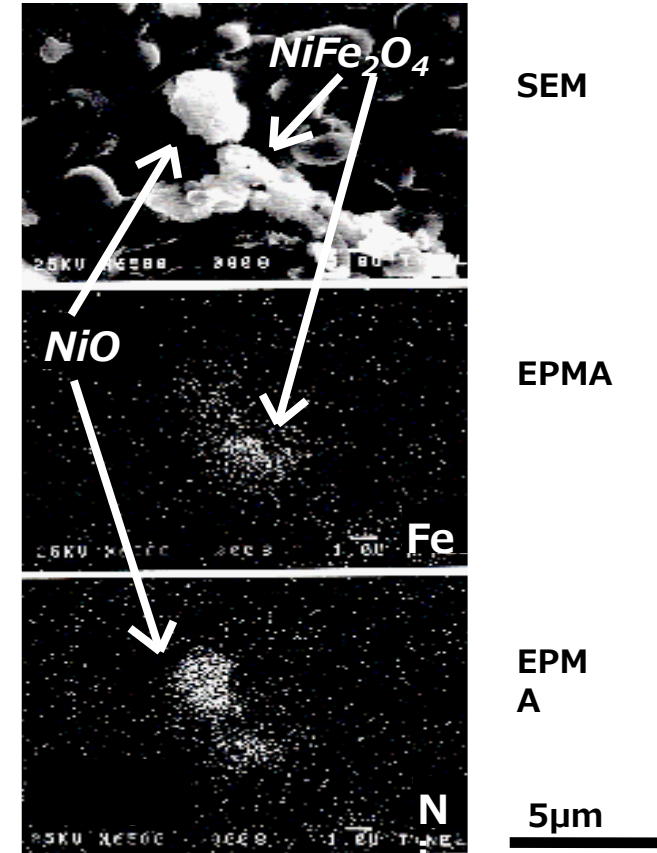
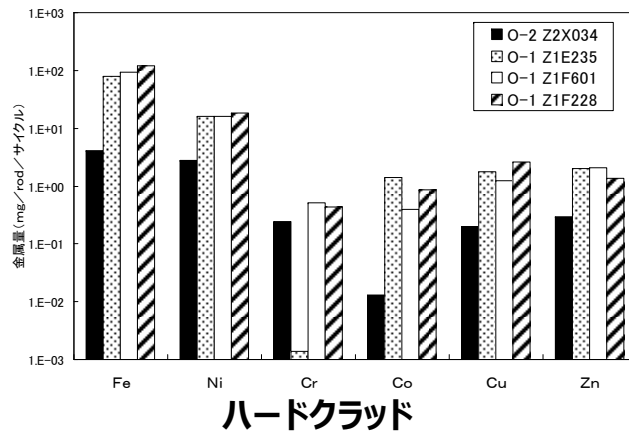
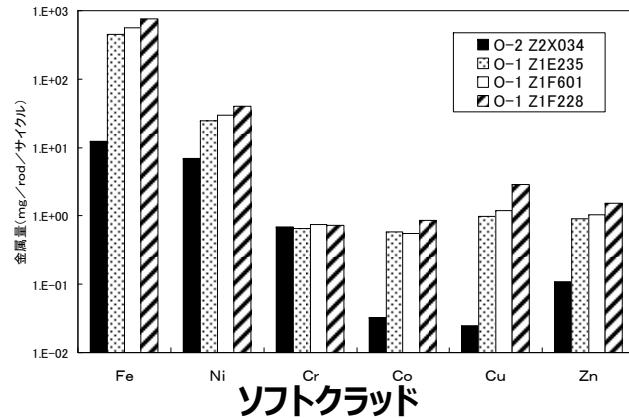


出典:Saito et al, "Experiences and Optimization of Feedwater Iron Control in Tohoku Electric Power BWRs", NPC'08 - International Conference on Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems, 2008

**第4サイクルまで極低鉄高Ni制御でPLR配管線量率低減が可能  
長期的な極低鉄高Ni制御によるPLR配管線量率低減は高度化が必要**

# 3.3 極低鉄高Ni制御 –線量率上昇原因調査（1 / 3）–

## ● 燃料付着クラッドかきとり調査の結果

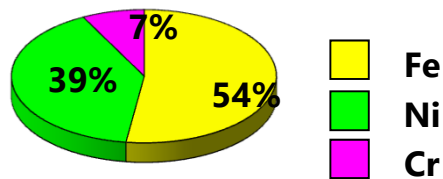
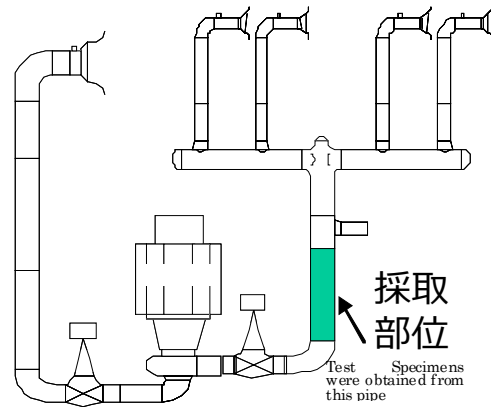


出典 : Y. Goto, et al., " Ultra Low Crud Control in Onagawa-2", Proc. of Water Chemistry '98, p249, Kashiwazaki, Japan, 1998

**燃料クラッド上にニッケル酸化物 (NiO) の生成を確認**

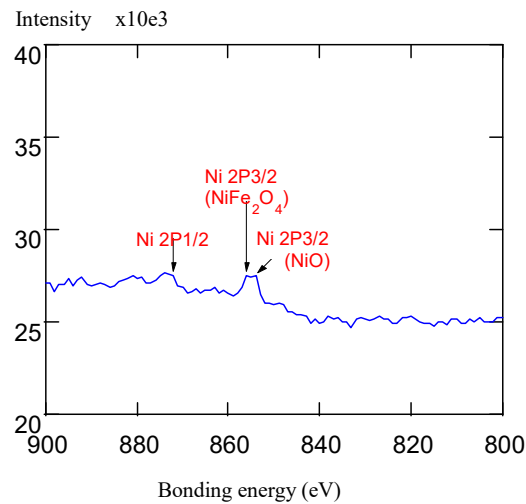
# 3.3 極低鉄高Ni制御 – 線量率上昇原因調査 (2/3) –

## ● 配管表面酸化皮膜調査の結果

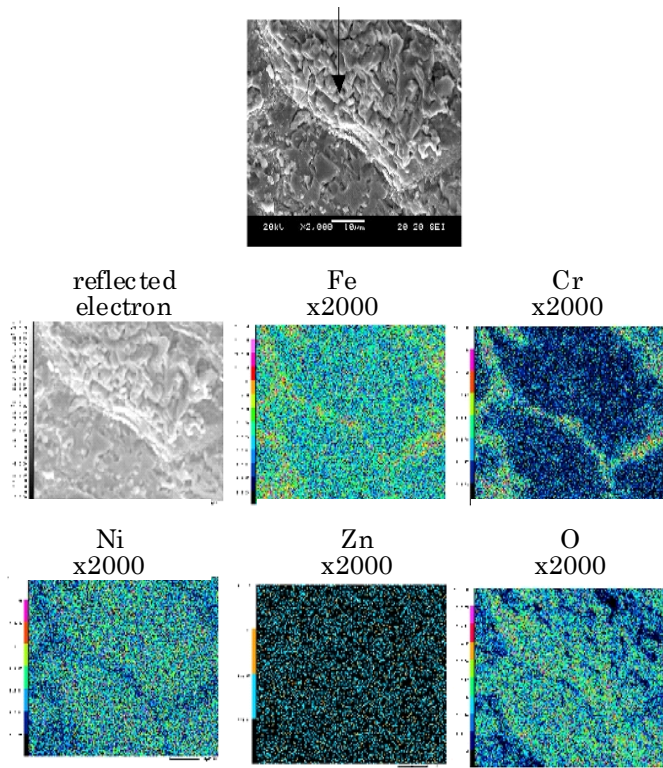


ハードクラッド

EDXによる酸化皮膜組成分析結果



XPSによる酸化皮膜定性分析結果



EDXによる酸化皮膜マッピング結果

出典:Saito et al, "Experiences and Optimization of Feedwater Iron Control in Tohoku Electric Power BWRs", International Conference on Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems, 2008

**酸化皮膜のNiリッチ層にはNiOの生成を確認  
酸化皮膜の一部にCrリッチな段差が見られ外層の割れによる内層面と推定**

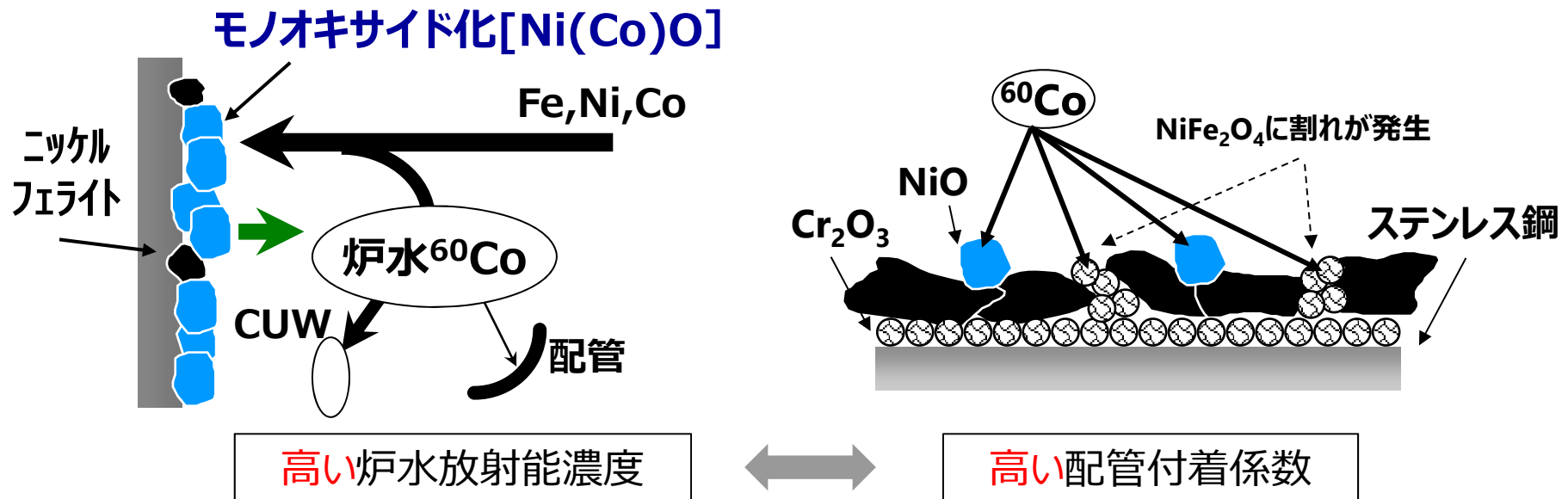
# 3.3 極低鉄高Ni制御 –線量率上昇原因調査（3 / 3）–

## ● 極低鉄高Ni制御の課題まとめ：

- ⇒ 燃料被覆管表面にNiOが多量に析出、 $^{60}\text{Co}$ 溶出が増大し炉水放射能濃度が上昇
- ⇒ 配管表面にNiOが生成し $^{60}\text{Co}$ 付着が加速。 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ の酸化皮膜に割れが発生し、露出した $\text{Cr}_2\text{O}_3$ に $^{60}\text{Co}$ が付着

【燃料被覆管表面】

【PLR配管表面】



燃料 / 配管の両面から要因を抽出

# 3.3 極低鉄高Ni制御 –まとめ–

配管線量率の考え方      炉水放射能濃度 × 配管付着係数 = 配管線量率

	炉水放射能濃度	配管付着係数	配管線量率	備考
Ni/Fe比制御	◎	△	○	—
Ni/Fe比制御 (燃料仕様変更)	↑ 上昇 △	△	△	燃料被覆管製造方法の変更
極低鉄高Ni制御	△	◎	○	—
極低鉄高Ni制御 (長期)	↑ 上昇 ×	↓ 増加 ○	△	燃料：NiO多量析出 配管：酸化皮膜の成長、NiO析出
再稼働後の 水質制御目標	○	○	◎	—

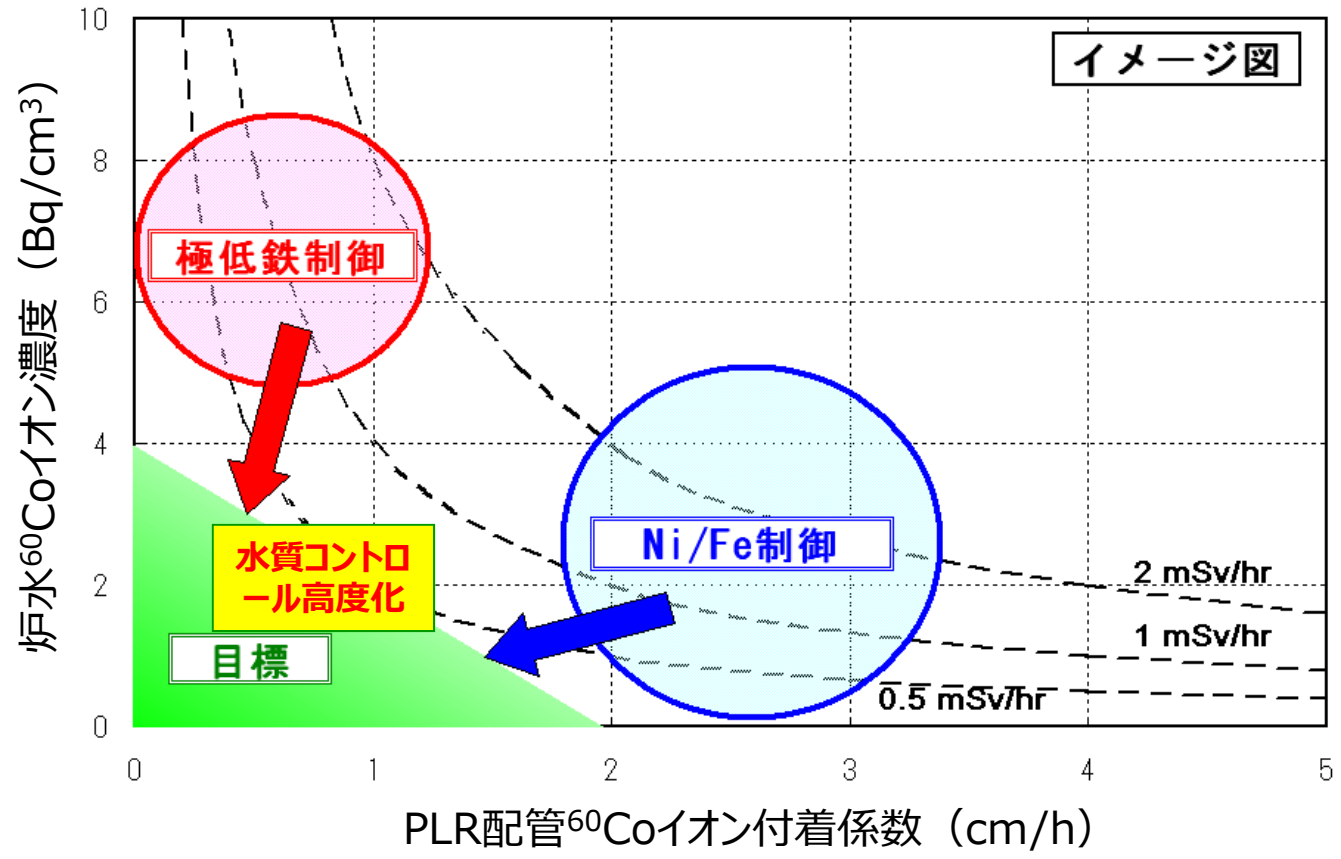
年代



**「炉水放射能濃度」低減と「配管付着係数」低減のバランスが重要**

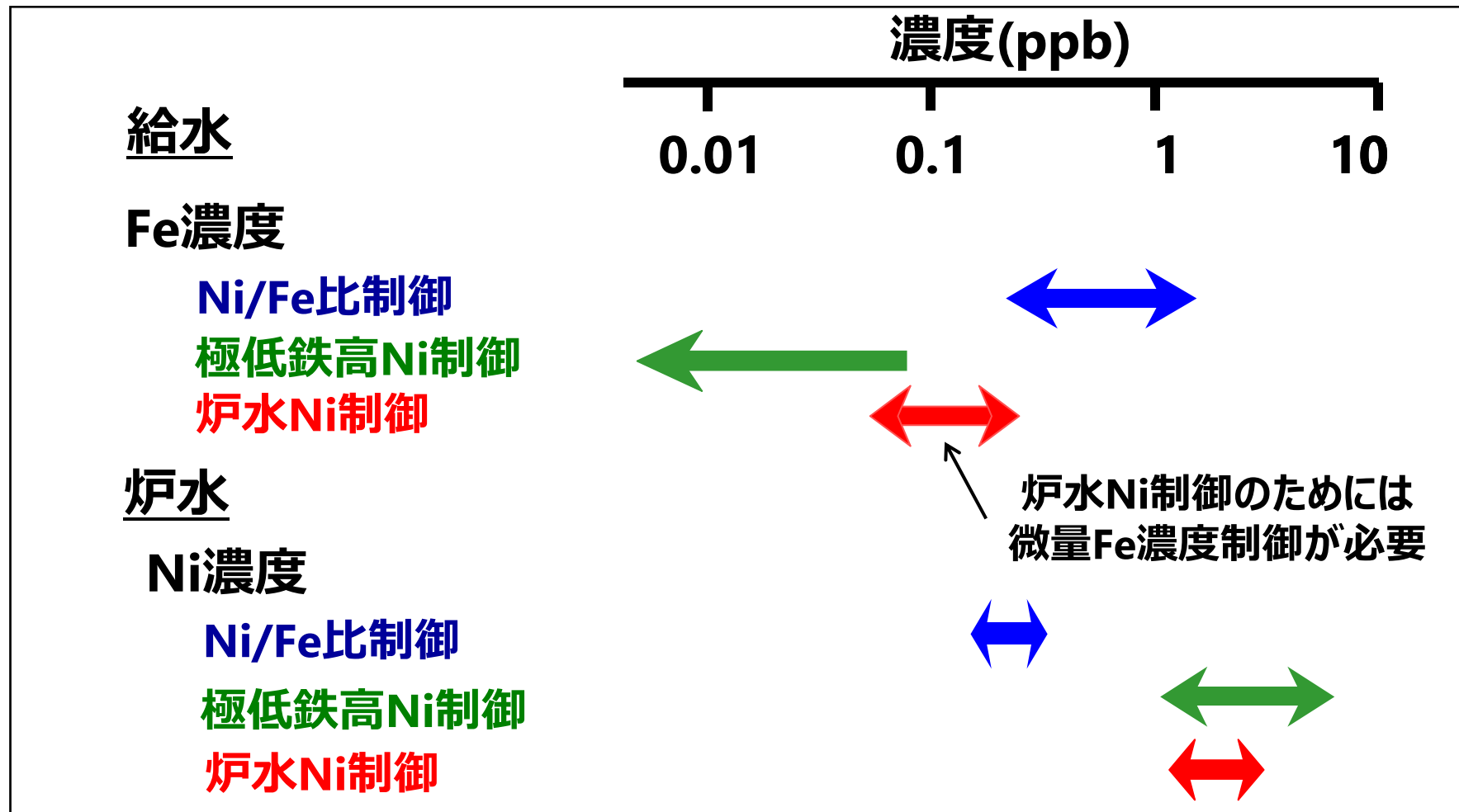


# 3.4 炉水Ni制御 -コンセプト-



極低鉄高Ni制御による<sup>60</sup>Co付着抑制効果を維持しつつ  
炉水<sup>60</sup>Co濃度低減を目指す

# 3.4 炉水Ni制御 – 制御方法 –



**炉水Ni制御は  
 炉水Niを過剰にさせないために、給水から微量鉄を注入して制御**

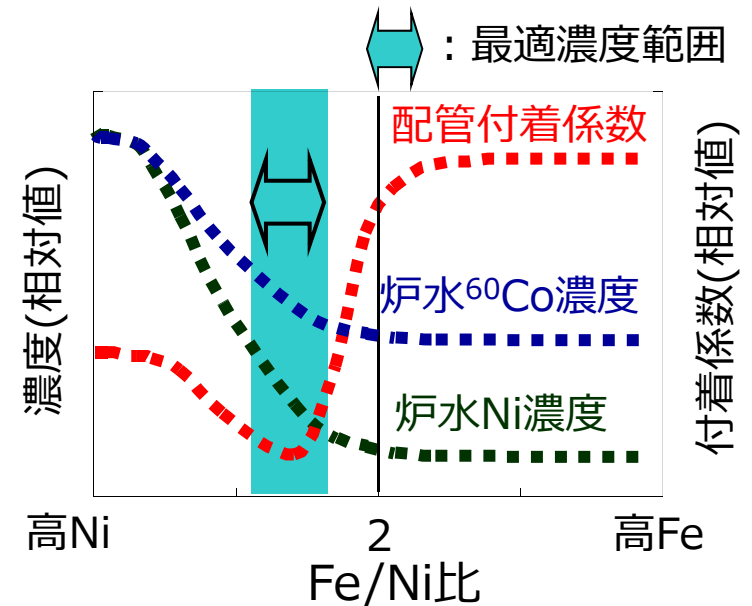
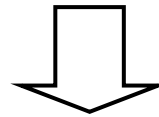
# 4. 微量鉄注入装置の開発 - 背景 -

## 目的

- 最適な炉水Ni濃度範囲を維持し、「炉水<sup>60</sup>Co濃度低減」と「配管付着係数低減」を同時に達成したい
- 炉水Niを過剰にさせないために、給水から微量の鉄を注入して制御したい

## 課題

- 最適な給水鉄濃度範囲は狭く、鉄濃度制御の精度向上が必要
- 沈積性線源の上昇を起こさず、燃料表面から剥離しにくい鉄の選定が必要
- CFバイパスや従来型鉄注入装置では達成困難



CF : 復水ろ過装置

**新しい鉄注入装置の開発が必要**

# 4.1 薬剤選定ラボ試験

## 注入鉄の目標性能

### 1. 燃料／材料に悪影響を与えないこと

⇒Fe, H, C, Oのみから構成される鉄化合物を選定 (①)

### 2. 薬液タンク内で安定的に溶解または分散すること

⇒溶解性・分散安定性確認試験 (②)

### 3. Ni/Coと反応し、フェライトを生成しやすいこと

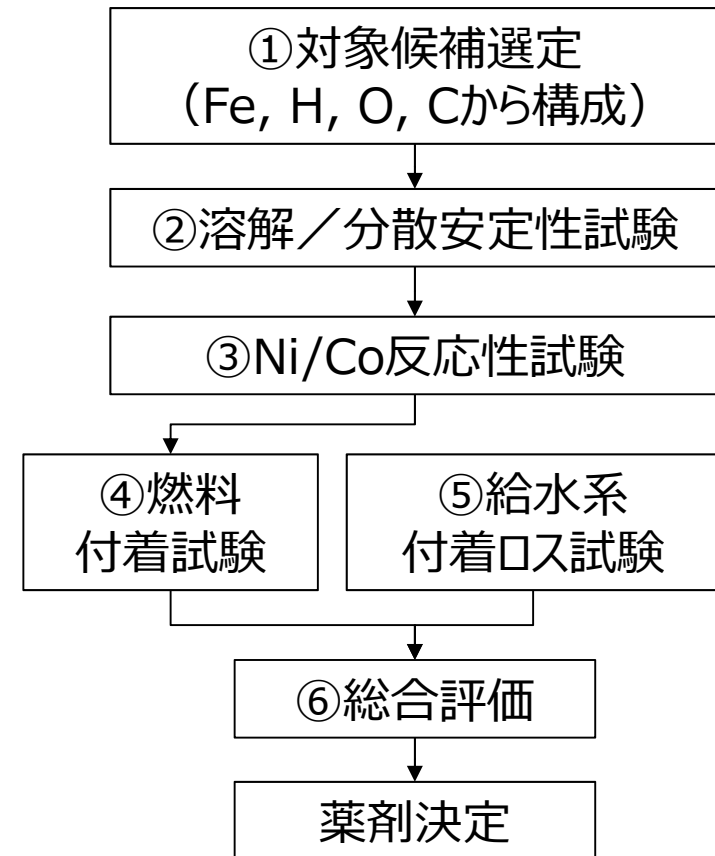
⇒Ni/Co反応性試験 (③)

### 4. 燃料表面への付着性が高いこと

⇒BWR燃料被覆管 (ジルカロイ) への付着試験 (④)

### 5. 炉内に到達するまでの付着ロスが小さいこと

⇒給水加熱器伝熱管での付着ロス確認試験 (⑤)



薬剤選定フロー

運転員への負担が少なく、制御性が高い  
鉄化合物選定のためラボ試験を実施

## 4.1 薬剤選定ラボ試験 ①対象候補選定

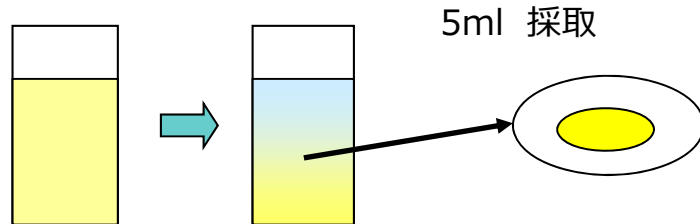
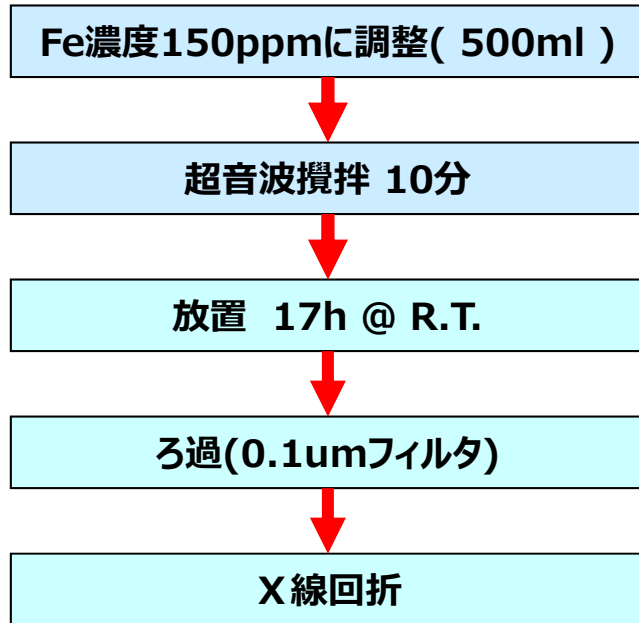
- 鉄以外の含有物がH, C, Oの試薬を選定
- 溶解特性により3つのカテゴリーに分類

No.	グループ	溶解特性	名称	化学式
1	A	不溶解性	ゲータイト	$\alpha\text{FeOOH}$
2			レピドロサイト	$\gamma\text{FeOOH}$
3			オキシ水酸化鉄	$\text{FeO}(\text{OH})$
4			マグネタイト	$\text{Fe}_3\text{O}_4$
5	B	低溶解性	シュウ酸鉄	$\text{FeC}_2\text{O}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
6			フマル酸鉄	$\text{FeC}_4\text{H}_2\text{O}_4$
7			酢酸鉄	$\text{Fe}(\text{OH})(\text{CH}_3\text{COO})_2$
8	C	高溶解性	乳酸鉄	$\text{Fe}(\text{CH}_3\text{CHOHCOO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$
9			クエン酸鉄	$\text{FeC}_6\text{H}_5\text{O}_7 \cdot n\text{H}_2\text{O}$

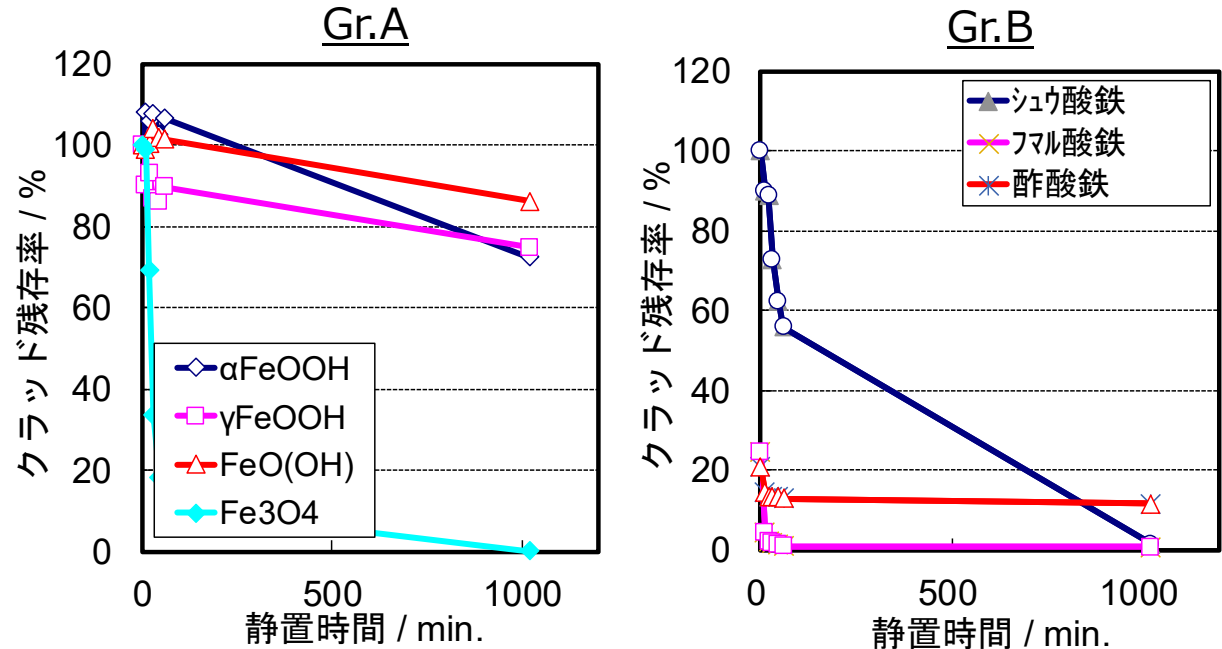
### 9種類の鉄化合物候補を選定

# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ②溶解／分散安定性試験

## 試験フロー



## 試験結果

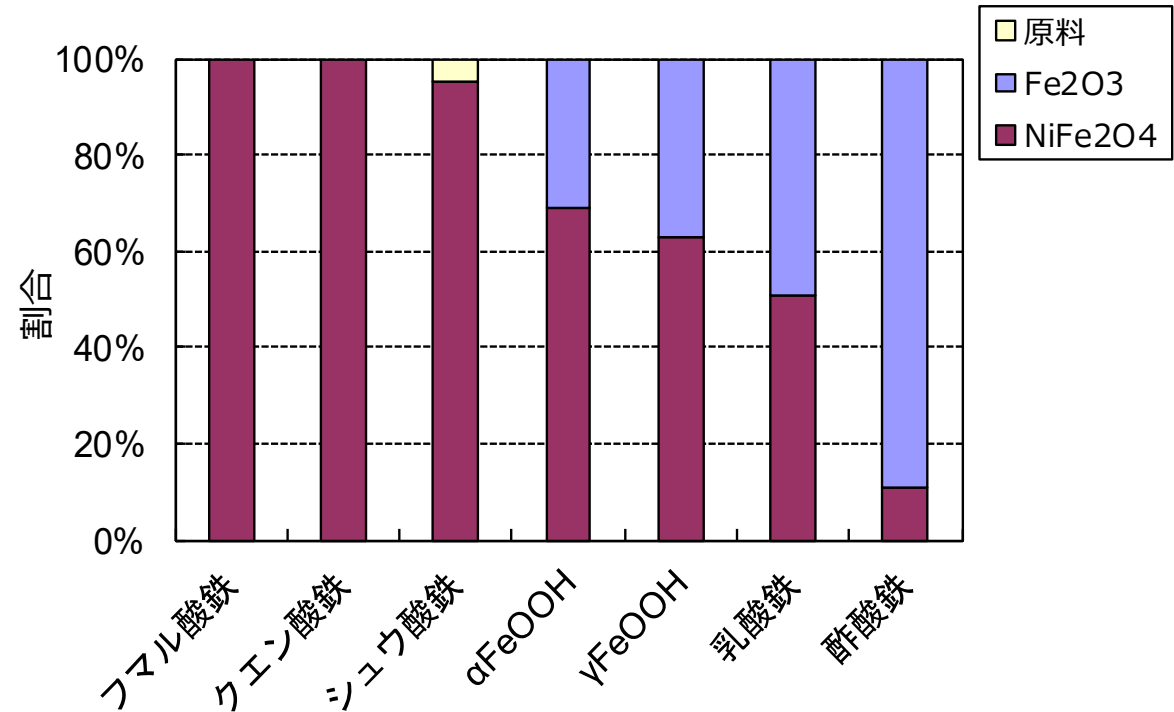
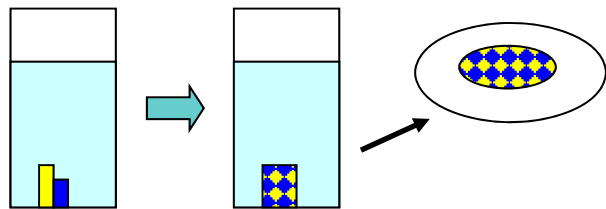
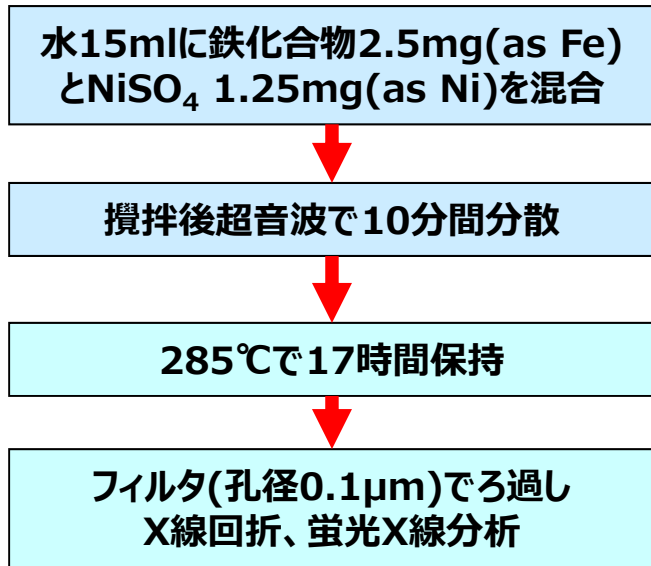


出典 : S. Yamamoto, et al., Symposium on Chemistry and Corrosion in Nuclear Power Plants in Asia, Japan(2009)

**分散安定性が高いのは**  
 $\alpha$ -FeOOH,  $\gamma$ -FeOOH, FeO(OH) > シュウ酸鉄 > フマル酸鉄、酢酸鉄

# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ③ Ni/Co反応性試験

## 試験フロー

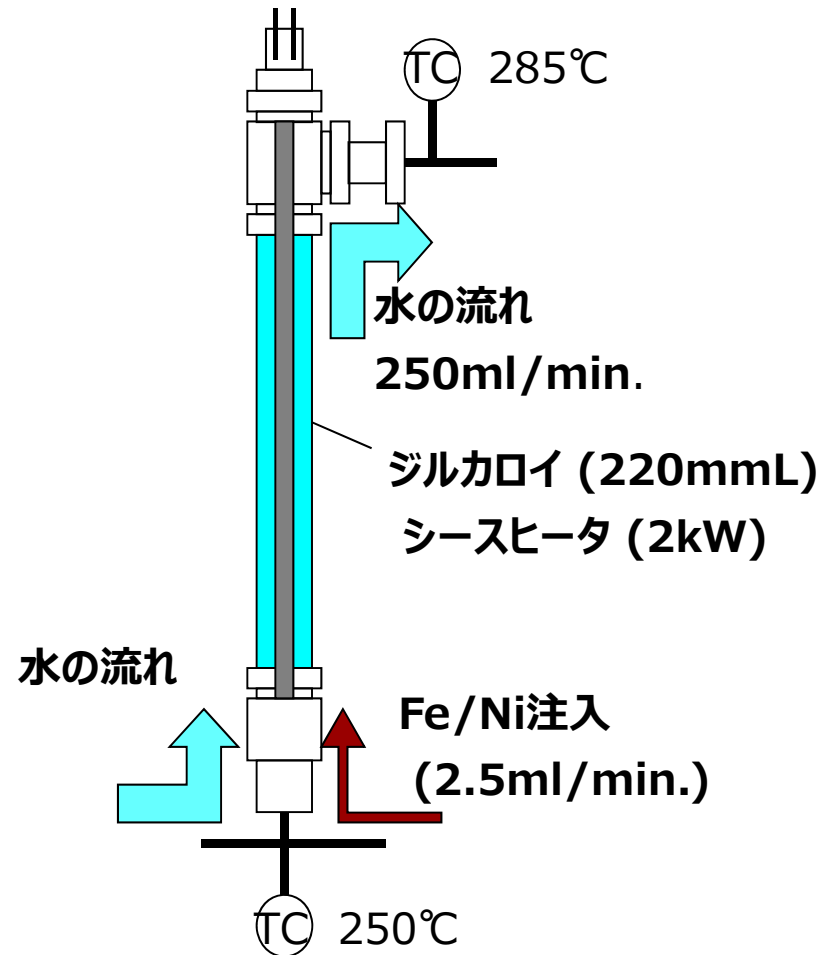
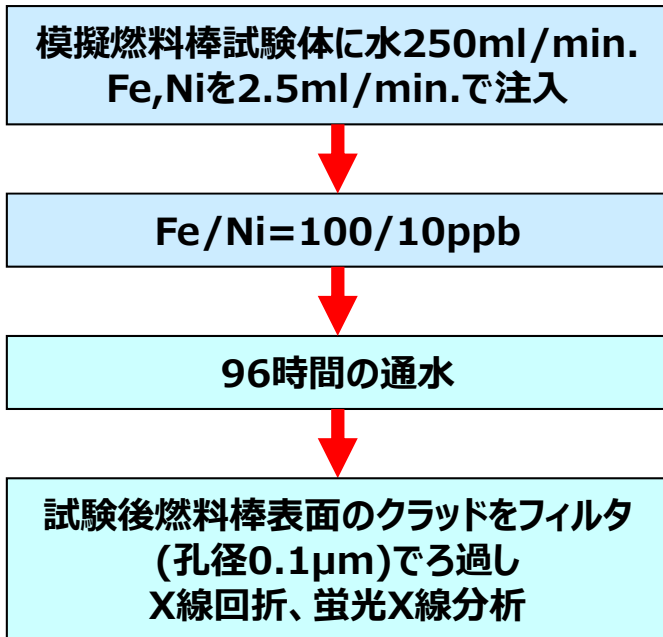


出典 : S. Yamamoto, et al., Symposium on Chemistry and Corrosion in Nuclear Power Plants in Asia, Japan(2009)

**Niとの反応性が高いのは**  
**フマル酸鉄,クエン酸鉄,シュウ酸鉄 > α-FeOOH,γ-FeOOH,乳酸鉄 > 酢酸鉄**

# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ④燃料付着試験

## 試験フロー



燃料被覆管への付着挙動を模擬



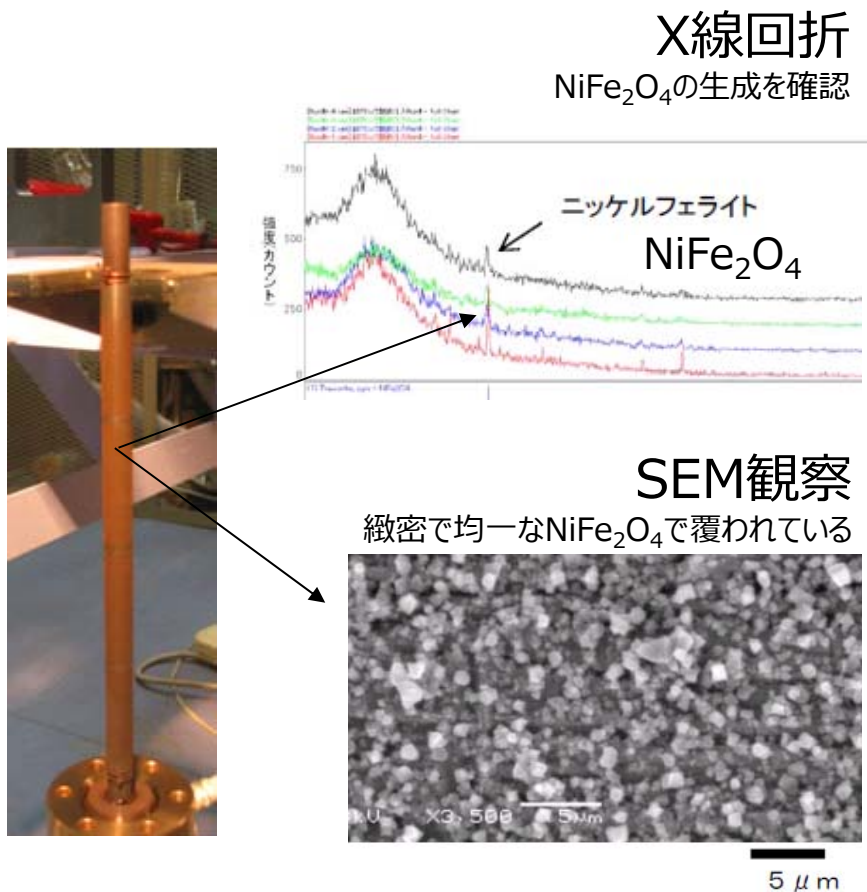
# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ④燃料付着試験

- 代表性を考慮し各グループから1種類計3種類の鉄化合物を評価

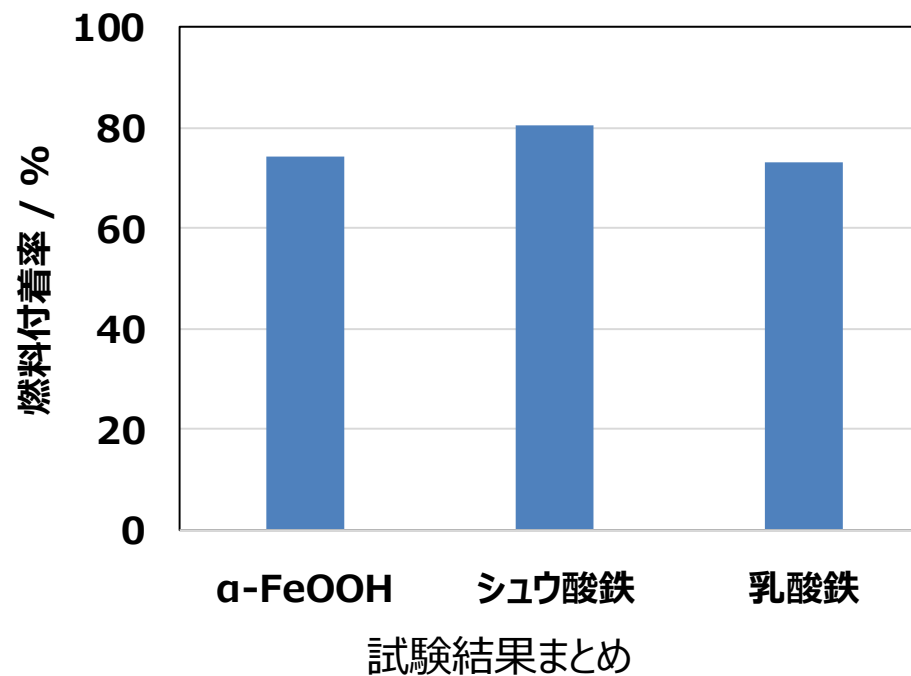
Gr. A :  $\alpha$ -FeOOH

Gr. B : シュウ酸鉄

Gr. C : 乳酸鉄



シュウ酸鉄の試験結果



出典：山本 他、日本原子力学会2009年秋の大会（2009）

**燃料付着性に優れるのは シュウ酸鉄**

# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ⑤給水系付着ロス試験

## ⑤給水系付着ロス試験

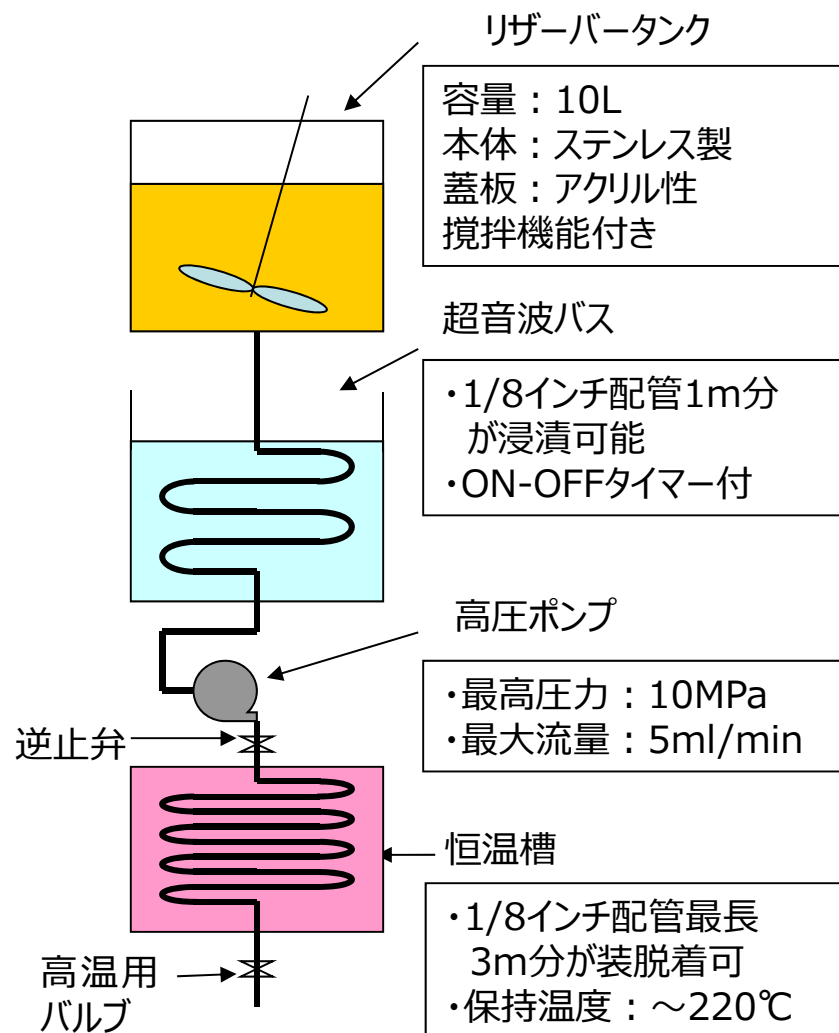
試験フロー

Fe化合物溶液(150ppm)を調整する

注入速度2.5ml/min.で連続的に  
恒温槽に液を送る

恒温槽温度は室温 ~216°Cに設定し  
3時間の通水を行う

配管を取り出し、内面に付着した鉄を  
フィルタ(孔径0.1μm)でろ過し  
蛍光X線分析



給水加熱器伝熱管への付着挙動を模擬

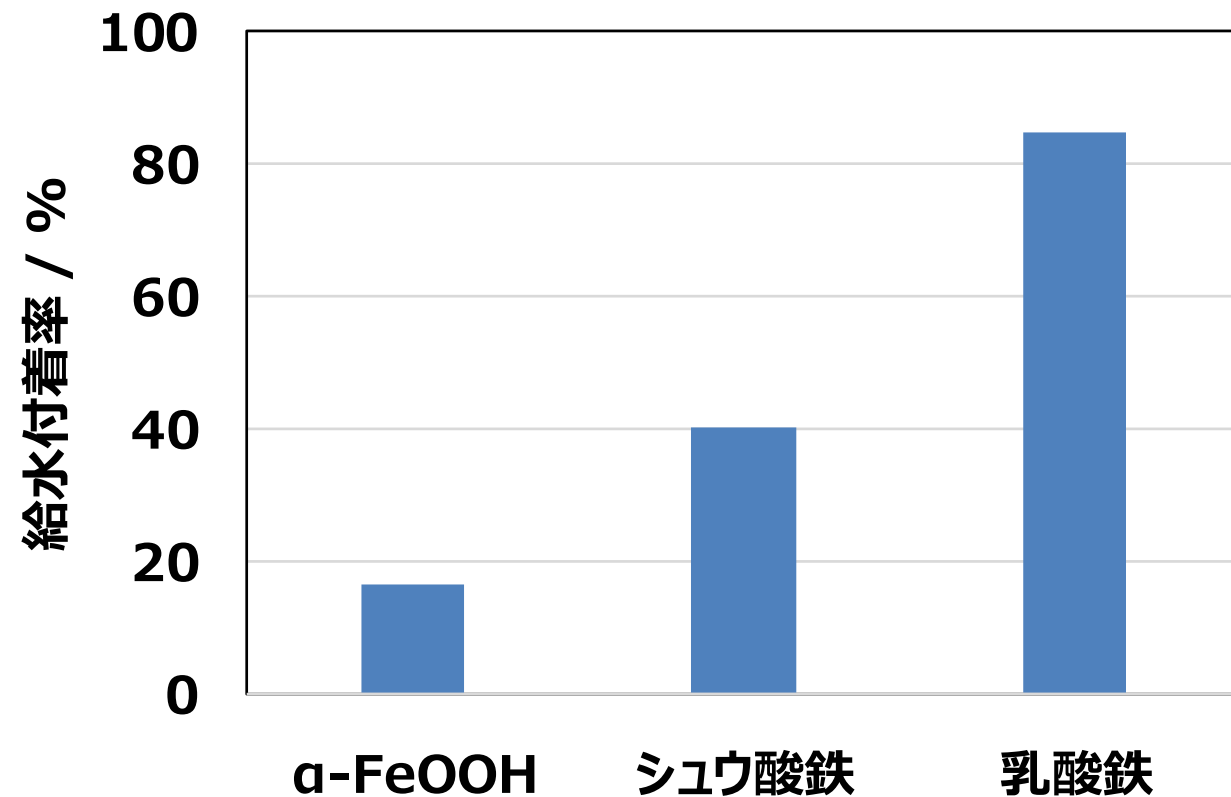
## 4.1 薬剤選定ラボ試験 ⑤給水系付着ロス試験

➤ 代表性を考慮し各グループから1種類、計3種類の鉄化合物を評価

Gr. A :  $\alpha$ -FeOOH

Gr. B : シュウ酸鉄

Gr. C : 乳酸鉄



出典 : S. Yamamoto, et al., Symposium on Chemistry and Corrosion in Nuclear Power Plants in Asia, Japan(2009)

給水系での付着ロスが少ないのは  $\alpha$ -FeOOH、シュウ酸鉄

# 4.1 薬剤選定ラボ試験 ⑥総合評価

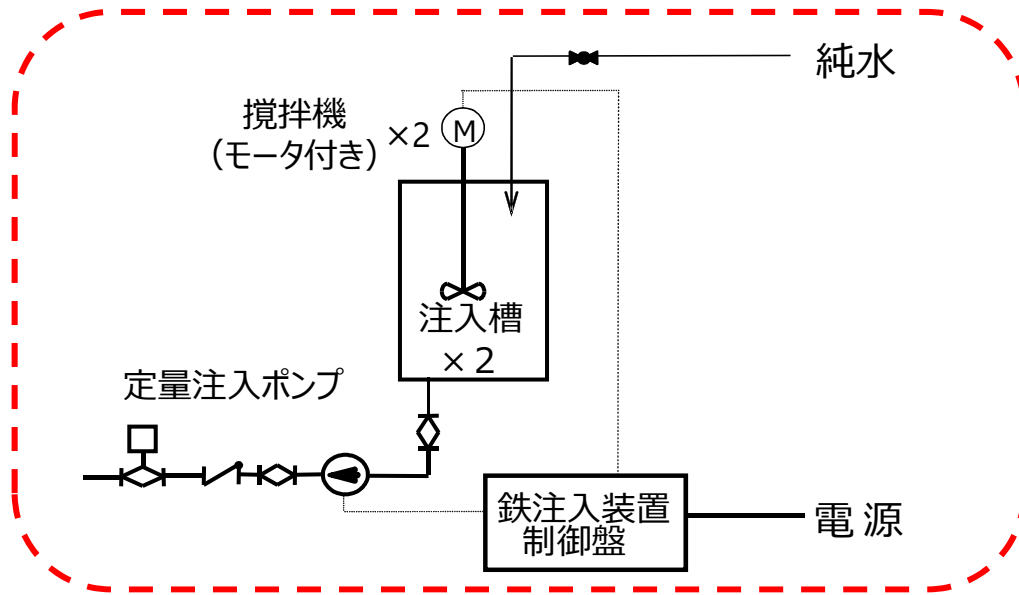
No.	Gr.	名称	溶解/分散 安定性	Ni/Co反応性	燃料付着率	給水付着ロス	総合評価
1	A	$\alpha$ -FeOOH	◎	○	○	◎	◎
2		$\gamma$ -FeOOH	◎	○	○	◎	○※2
3		FeO(OH)	○	△	○	◎	○
4		Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> ※1	×	—	—	—	—
5	B	シュウ酸鉄	○	◎	○	△	◎
6		フマル酸鉄	×	◎	○	△	△
7		酢酸鉄	△	×	○	△	×
8	C	乳酸鉄	◎	○	○	×	○
9		クエン酸鉄	◎	◎	◎	×	○

※1 : Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>はGr.A内で分散安定性が大幅に悪く、以降の選定から除外した

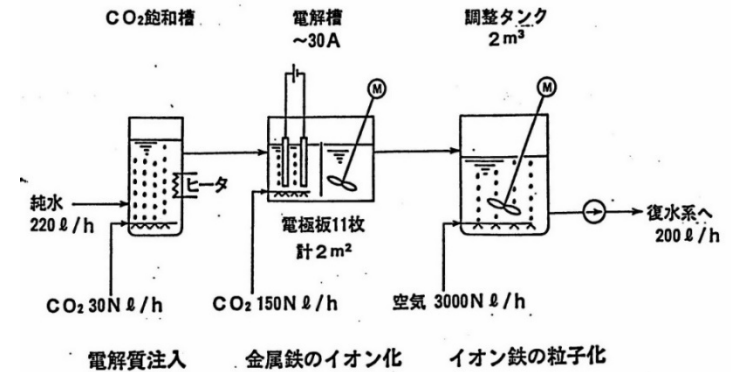
※2 :  $\alpha$ -FeOOHと $\gamma$ -FeOOHの選定結果はほぼ同等だが、①熱力学的安定性、②調達性、③過去注入実績、等の観点から最終的に $\alpha$ -FeOOHを選定した

**注入鉄として $\alpha$ -FeOOHとシュウ酸鉄を選定**

# 4.2 注入システム



**新鉄注入装置**



**従来鉄注入装置**

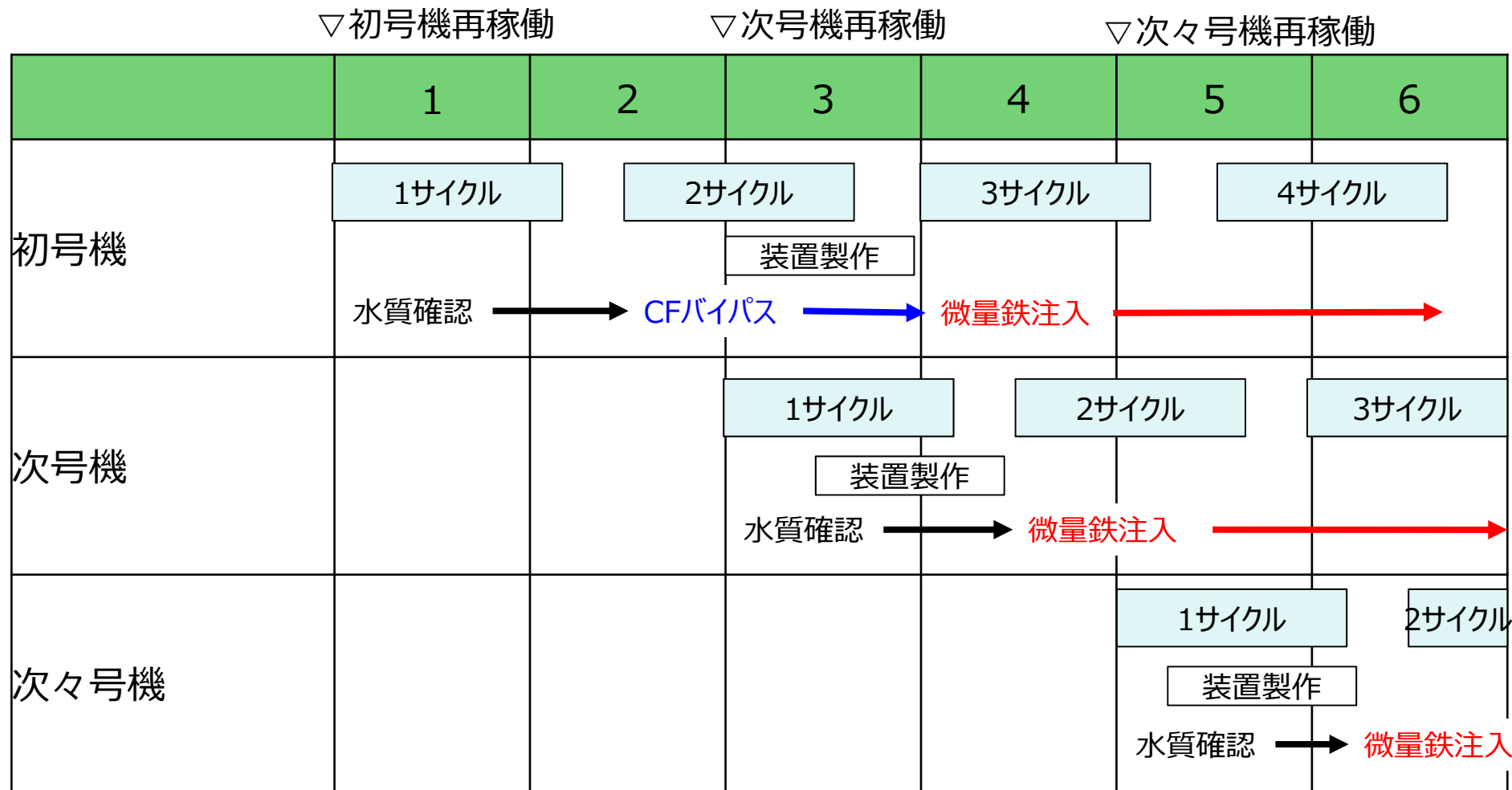


	候補1	候補2
注入鉄	$\alpha$ -FeOOH	シュウ酸鉄
注入箇所	CD出口	CUW F/D出口

**従来の鉄注入技術に対して、操作性が優れ（運転員への負担小）、制御性が高い鉄注入システムを開発**

# 4.3 実機適用工程

(単位：年)



**初号機はCFバイパスで効果を確認、その後微量鉄注入へ移行**

## 5. まとめ

---

- 国内BWRプラントの被ばく線量は、国内導入当初から2000年代にかけて減少を続けてきた。しかしながら、2010年時点では世界的には4番目に高く、プラント再稼働後には被ばく低減対策への再注力が必要である。
- BWRプラントでは、炉心部で放射化した腐食生成物が再循環系配管などで酸化皮膜に取り込まれて被ばく線源となり、作業者が被ばくする。水質制御を行う上で、この被ばくメカニズムが重要となる。
- BWRプラントにおける被ばく低減対策として、特に水質制御に着目し、「Ni/Fe比制御」、「極低鉄高Ni制御」、「炉水Ni制御」の考え方と成果を紹介した。
- 「炉水Ni制御」を達成するための手段として、微量鉄注入装置の開発成果を紹介した。

**TOSHIBA**

**Leading Innovation >>>**