

NPC2016 Brighton 会議報告

一般財団法人 電力中央研究所

河村浩孝

1. 会議概要

Nuclear Plant Chemistry Conference (NPC)は1977年に英国Bournemouthで開催されて以降、2,3年毎に開催される原子力水化学分野の国際会議である。毎回、世界各国の水化学分野の研究者、技術者が一堂に会し、被ばく線源低減、構造材料・燃料の腐食損傷防止、放射性廃棄物の発生抑制などをテーマとし、研究機関を含む学术界と産業界から、基礎研究、課題となる事象の機構解明・モデル化、プラント運転経験、技術開発、標準化などについて、最新の状況・成果を報告・議論する。このことから、学術色もさることながら技術色も濃く、水化学分野の動向を把握するには最適な国際会議といえる。

今回は、英国のThe Nuclear Institute主催のもと、EDF Energy Nuclear GenerationのAndy Rudge氏が議長を務め、Brighton市の海岸沿いのThe Grand Brighton Hotelを会場とし、2016年10月2日～7日の会期で開催された。Brightonは英国の南東部の海沿いに位置する15万人規模のリゾート地であるが、近隣にBrighton大学やSussex大学があり、学生など若者の多い町でもある。

地元英国をはじめ、日本、EU諸国、米国、カナダ、韓国、中国、台湾等から243名が参加した。日本からは31名が参加し、英国に次いで2番目に多かった。月曜から木曜日は朝から夕方までオーラルセッションが組まれ、月曜から水曜日の午後に115件のポスターセッション（日本からは20件）が開催された。オーラルセッションは、3件の基調講演（日本からは1件）の他、PWR一次系、PWR二次系、BWR、高経年対応、放射線化学、燃料と水化学、補機系、事故マネジメントの8項目、15のセッションで構成され、57件の口頭発表（日本からは6件）があった。金曜日には、放射線分解・電気化学に関するワークショップとして15件の講演（日本からは4件）に加え、Kent海岸に立地するDungeness B発電所（AGR初号機）へのテクニカルツアーが平行開催された。

これまでのNPCの参加者および発表件数の推移を表1に、NPC2016のトピックス毎の論文発表の内訳を表2に取り纏めるとともに、発表・議論された水化学関連課題と最新の技術動向を以下に素描する。

表1. NPCの参加者および発表件数の推移

	参加国	参加人数	発表論文数(正体/口頭/ポスター)
NPC2012 Paris	28	349	207 (0/61/146)
NPC2014 Sapporo	26	358	234 (11/77/146) うち特別セッション45(8/15/22)
NPC2016 Brighton	21	243	234 (3/56/115)

表2. NPC2016の論文発表の内訳（登録時）

セッショントピックス		招待 講演	口頭 発表	ポスター 発表	計
S1	基調講演	3	—	—	3
S2, S7, S14	PWR一次系水化学	—	12	36	48
S3, S9	BWR水化学	—	8	17	25
S4, S13	補機系の水化学/ 廃棄水処理	—	8	16	24
S5, S11	軽水炉二次冷却系の水化学（蒸気サイクル）	—	8	24	32
S6, S15	プラントの寿命管理および高経年化	—	8	9	17
S8	燃料と水化学との相互作用	—	4	16	20
S10	水化学と放射線	—	4	0	4
S12, S16	高温炉と事故マネジメント	—	8	8	16
合計		3	60	126	189

2. 技術動向・トピックス

(1)各国の動向（基調講演）

主催者が選定した英国、米国および日本から発表があった。

英国原子力規制局のMichael Paul Redmond氏は、これまでのガス炉、PWRに加え、6基の新規炉を建設準備中の英国の許認可に関わる水化学活動を紹介した。英国原子力規制局は、ALARP (As Low As is Reasonably Practicable)の精神に則り、水化学を含む設計要項に対しライセンスを発行している。これは、世界的にも特徴がある許認可制度であり、安全審査、工事認可でも水化学に言及することがない日本の状況とは対照的である。

米国EPRIのDaniel Wells氏は、プラント水化学の標準、ガイドラインを定期的に改定しており、参考となる世界全体の水化学の動向を紹介した。

日本原子力学会の勝村庸介水化学部会長は、福島事故の影響を受け、原子力の再活性化に努力している現状を紹介した。

本セッションは、運転規制のための水化学を真摯に検討している様子など、水化学に対する各国のスタンスの違いが分かり、興味深かった。

(2)PWR水化学関連

① 一次系

PWR一次系の水化学管理については、ほう酸と水酸化リチウム添加による制御が原子力黎明期から確立されているため、基盤技術としては成熟した状況にある。その一方で、高経年化による一次系圧力バウンダリの健全性や燃料健全性への対応や更なる被ばく低減など、依然として水化学への期待は大きい。NPC2016では、亜鉛注入、系統内のシリカ管理の向上、^{110m}Ag線源挙動、試運転時の水質管理、停止時RCPの運用など、各国から継続した改良や最適化の状況が多数報告された。

線源強度低減およびニッケル基合金の一次系応力腐食割れ(PWSCC)対策を両立できる水化学技術として、一次冷却材への亜鉛注入がある。亜鉛注入とは、放射化したコバルトの構造材表面皮膜への移行を抑制することで、空間線量率の低減を可能とした技術である。これまで、亜鉛注入は、その目的に応じ、注入濃度を5ppb程度と10ppb以上とする二法に大別されてきた。前者は線源強度低減のみを目的とし国内PWRで採用されている低濃度亜鉛注入、後者はニッケル基合金のPWSCC対策をも視野に入れた高濃度亜鉛注入と呼ばれている。近年、欧米での運転実績から、低濃度注入でもPWSCCの改善効果が認められつつあり、今回も関連する発表があった。また、仏国PWRの運転実績から、燃料のクラッド誘因型出力変動(Crud Induced Power Shift, CIPS, またはAxial Offset Anomaly, AOAとも呼ぶ)や材料への影響の観点から、 Zn_2SiO_4 の析出による燃料クラッド付着量の増加の懸念が指摘されている。このため、B-Si-Zn系の熱力学的相互作用については、他のセッションも含め3件の発表があり、Zn-BorateおよびSi-Borate等に対する高温水中の熱力学データの拡充が重要であることが指摘された。また、計算コードを用いた皮膜内への放射性Coの取り込みのシミュレーション結果などクラッドコントロールに関する発表もあった。このように、燃料被覆管付着クラッドに対する亜鉛注入時のSiの影響評価は、18カ月間の長サイクル運転や出力増強運転を採用している米国と仏国を中心に積極的に実施されている。得られた知見は、欧米の水化学管理に関する規格の改訂にも反映される。

原子力安全システム研究所の寺地巧氏はニッケル基合金のPWSCCメカニズム研究に関するポスター発表を行った。き裂先端周辺のキャビティ生成量とき裂進展速度との相関などから、き裂先端部の空孔の移動過程がPWSCCに影響を及ぼしているなど、新知見が評価され、“Best Overall Poster”賞が授与された。

一次冷却材の最適化に関する項目としては、NPC2012やNPC2014と同様、高pH運転や溶存水素濃度(DH)最適化に関する発表が多かった。運転サイクル初期から高pHに一定管理することが被ばく低減上有効とされており、近年ではCIPSのリスク低減にも効果があることがわかり、特に米国ではそのコンセプトでの運用が普及しつつある。そのため、新型炉については、高pH条件が容易に達成できる ^{10}B 濃縮ほう酸の採用が進むと考えられる。一方、既存炉にpH一定管理を採用するには、高リチウム濃度運転を容認する必要があるため、燃料健全性への懸念から事業者によって判断が分かれる。DH管理についても、米国では35cc-STP/kg以上とする高DH運転の採用が積極的に進められているのに対し、日本と欧州では高DH運転に慎重である。このようにDH管理について合意形成が進まない理由は、水化学が影響する対象が、被ばく低減、材料健全性、燃料健全性など多岐に亘るうえ、温度条件や試験手法によって異なる挙動が報告されることにある。依然として高度化・最適化の余地が残されているといえ、引き続きNPCなどを通じ各国の状況をフォローすることが重要と思われる。

NPC2016の特徴として、 ^{110m}Ag に係る線源強度評価に関する発表が多く、ポスター発表も含め4件あった。国外PWRでは、CVCSの熱交換器やサンプリング系統などの特定部位に ^{110m}AgI が多く沈着するなど ^{110m}Ag による線量寄与が散見されている。これは、炉心容器シール材からの溶出やAg-In-Cd制御棒破損時の放出が原因とされている。徹底した線源強度管理により、ホットレグ、コールドレグ、SG内の ^{60}Co や ^{58}Co の低減に成果が得られていることに対し、これまで重視してこなかったCVCSの熱交換器やサンプリング系統などの線量が目立ってきたこ

とに依る。対策としては、①酸化運転前のI濃度低下、②酸化運転温度の上昇、③pH低下、④DO濃度の速やかな増加が提案されている。更なる被ばく低減に向け、このような欧米の積極的な取り組みを参考とするのも必要と考える。

また、新たな取り組みとして、欧米や国内 PWR 一次冷却系では pH 調整剤として LiOH を添加しているが、ロシア型 VVER で実績があり資源の制約が少ない KOH の適用可能性についての報告もあった。

② 二次系

PWR二次系の水化学管理の重要項目の多くは、蒸気発生器(SG)へのスケール付着抑制およびスケール除去に関連したものである。高pH運転、分散剤、フィルムフォーミングアミン(FFA)および化学洗浄に関するものが米国や仏国を中心に複数の機関からあった。これらは、SG伝熱効率の低下や材料健全性の問題から水質管理項目の主要課題とされている。また、ヒドラジンはがん原生を有することから、その代替剤の検討についても発表があった。

構造材の鉄溶出の抑制を目的とした高pH運転は、エタノールアミン(ETA)やジメチルアミン(DMA)などのアミンを単独で使用する手法に加え、近年、欧米のPWRを中心に複数のアミンを組み合わせる手法が普及してきている。日本も海外知見を参考にpH調整剤の最適化を図る必要あるものと考えられる。

SG二次側の鉄スケールを水中に分散して除去する技術として系統内に添加する分散剤は、ポリアクリル酸(PAA)が一般的である。1990年代に開発されて以降、米国PWRを中心に10基程度で試用されている。スケール除去性能およびSG伝熱性能の改善は、化学洗浄法のひとつであるASCA洗浄と同等であるとの報告があった。しかしながら、米国以外のPWRでは普及しておらず、分散効果や副次的影響についても、今後検証が必要と考えられる。

過熱器等の伝熱効率改善および構造材の腐食抑制技術として系統内に添加するフィルムフォーミングアミンには、オクタデシルアミン(ODA)などがある。ODAは、炭素鋼表面に酸化皮膜が存在している状態でも、金属光沢表面状態で注入した場合と同様の効果を発揮するとともに、FAC発生部位でも効果的に働くと考えられている。実機適用試験では、実施後1週間程度で金属表面にFFAが吸着し鉄の移行率は50%減少すること、いったんODA皮膜が形成されると228℃では少なくとも10日間は保護皮膜を保持し腐食を抑制するが、温度が低下するとODAの効果も低下するとの報告があった。

スケール除去については、化学洗浄法の改良などの発表があった。これまでSG二次側化学洗浄は、Hard洗浄(EPRI開発のSGOG法、AREVA開発のHTCC法)とSoft洗浄(DEI開発で希薄EDTA水を用いたASCA法、AREVA開発で希薄シュウ酸を用いたDMT法、COMEX開発のPACCO法)の二種に分類されてきた。近年、新たにiASCA(DEI)およびDART(AREVA)が開発され、NPC2016にて概要紹介があった。これらの手法は構造材健全性の長期間確保に重要な手法であり、注目に値する内容であった。

これまでNPCでは、ヒドラジン代替剤に関する発表は目立たなかったが、今回は、ジエチルヒドロキシルアミン(DEHA)をベルギーのDoe12号機に1週間試用した結果について報告があった。DEHAの脱酸素効果はヒドラジンに比べやや小さいものの、SG二次系の脱酸素効果としては充分であるとのことであった。しかしながら、DEHA注入により給水Fe濃度は一時的に数ppb上昇すること、DEHAの脱酸素反応と熱分解反応により生成する有機酸によりSG器内

水の酸電気伝導率が増加すること、復水器に非凝縮性ガス除去用の真空ポンプを保有しないPWRではTOCが増加する等の課題もあることから、長期試験による確認が望まれる。

(3)BWR水化学関連

BWR では、構造材料の SCC 環境緩和と被ばく線源低減が水化学の主要課題である。これまでの NPC と同様、NPC2016 では、対策技術を適用したプラントの運転経験とそれに基づく有効性と副次影響などの評価、トレードオフ解消のための技術改良に関する発表に加え、吸着プロセスにおける元素の拡散を考慮した BWR 用放射能移行モデル、Fe の溶出を促進し ^{60}Co の吸着を抑制する Pt 被覆 Tight-Binding 法、再汚染抑制技術およびインターナルポンプ方式の北欧 BWR の運転経験に関する発表があった。また、化学除染後のステンレス鋼表面の皮膜再生時に皮膜内に ^{60}Co を多く取り込むことで線量率が急上昇する事象が課題となっており、その対策に関する発表もあった。その他、Co の取り込み挙動および酸化皮膜の分析技術に関する発表もあり、更なる技術の進展が期待される。

構造材料のSCC抑制対策としては、少量の水素注入で構造材料の腐食電位（ECP）を低く維持できる貴金属注入（NMCA）が主流となっており、米国では、設備利用率への影響がない運転中の貴金属注入（OLNC）が急速に普及している。また、全運転期間に対し卑なECPが達成された期間の割合を高めるため、水素注入をこれまでの出力運転中だけでなく、起動時まで拡張する取り組みも進められている。EPRIが進めているBWR VIPプログラムでは、Pt粒子の粒径、個数密度分布、付着量分布の実測値、炉心シュラウド再点検の結果等と併せ、IGSCC抑制効果を評価するとともに、Pt付着量とECP低減効果との相関からOLNC技術の向上を図る計画である。

東芝からは、光半導体である TiO_2 を用い、炉内チェレンコフ光の光励起によりECPを低下させる技術について、 TiO_2 単独では水素無注入条件でもECPは低下すること、 TiO_2 +貴金属共存下でも貴な方向にシフトしたECPは一定量低下することなどの報告があった。

被ばく線源低減技術では、PWRと同様に亜鉛注入が普及し、米国ではBWR全基で適用されるようになった。BWRの亜鉛注入においても、Zn-Si化合物の形成に伴う燃料クラッドの稠密・固着化が懸念されている。燃料クラッドの稠密・固着化に伴う、被覆管の熱伝達率の低下、被覆管表面の蒸気膜の形成に伴う被覆管の温度上昇、耐食性低下、延性低下を抑制するためにも、Zn-Si系の熱力学的相互作用の明確化とそれに基づくSi濃度の適正管理法の確立が期待される。なお、少量の亜鉛注入で必要な炉水亜鉛濃度を維持するため、その障害となる給水鉄の濃度を下げる努力も続けられ、復水脱塩システムの高度化等により給水鉄濃度は0.1～0.3ppbに維持されるようになった。

亜鉛注入以外の技術として、日立GEからは、化学除染後の白金付着処理による放射性コバルト付着抑制手法の開発動向について、除染後の白金付着密度が目標値を満足することを1/20モックアップにて確認するとともに、白金付着したサンプルが ^{60}Co の付着抑制効果を持つことをループ試験により確認したなどの報告があった。

吸着過程において元素の拡散を考慮し、多様なBWR運転条件下でも対応可能な放射性核種の移行モデルについて報告があった。本モデルは、実機データとラボ試験結果を基に、配管線量率と水素注入、Ni/Fe比、亜鉛注入との相関、および沸騰場を考慮したモデルで、水質変化に伴う配管線量率の変化を凡そ再現できたとのことであった。なお、本モデルは拡

散係数を調整しているため実効的には既存モデルと大差ないと考えられる。水素注入量に応じた腐食速度の変化や亜鉛化合物の形態の影響評価は今後の課題である。

(4) 高経年化対応

PWR二次系の化学管理の発表が中心で、経年劣化予測モデルの精度向上、炭素鋼の二相流下のFAC解析モデル、304ステンレス鋼のクレビス腐食挙動、CANDU炉のSG伝熱管の損傷、インドPHWRフィーダー管のFAC、福島事故に係るクレビス腐食、ほう酸水によるコンクリートの中性化と鉄筋腐食に関する発表があった。

カナダから、実機の気-液二相流環境下におけるFACをモデル化するため、液膜の流れによるせん断応力、物質移動、気液分配を考慮した二相流FACモデルを検討し、概ね実験結果を再現できるとの報告があった。また、インドからは、CFD計算による曲管の流動状態に関し、曲げ半径が小さく、曲げ角度が小さい場合に腐食速度が高まるとの報告があった。

(5) 被覆管健全性/水化学の相互作用

燃料洗浄、CIPS対策、亜鉛注入、NMCAに関連した燃料被覆管の健全性との相互作用が重要課題である。PWR関連ではCIPS対策としてのクラッド付着低減対策および被覆管クラッド性状への亜鉛注入の影響、BWR関連ではNMCA条件下における燃料被覆管へのPt付着挙動の影響に関する発表があった。

PWR燃料の高効率超音波洗浄については、 H_2O_2 を用いた高効率の燃料超音波洗浄（High Effective Ultrasonic Fuel Cleaning, HE-UFC）をRinghals発電所に適用した結果が報告された。停止時クリーンアップ時に比してHE-UFCの方が洗浄効果は大きく、固着クラッドも除去できること、燃料洗浄により3～5年間で30～60%の線量低減が可能なこと、部分洗浄は従来の高額なクラッド掻き取り法の代替となること等のメリットが示された。

BWR燃料被覆管へのPt付着の影響については、付着したPtの粒径はPt注入速度に依存し、沸騰面の方が非沸騰面よりもPtを引き付け易いが、Pt注入のタイミングと H_2 取込み挙動には相関がないこと、燃料被覆管表面にPtが付着すると触媒作用によりジルカロイの酸化速度が変化すること、Pt付着によりジルカロイ表面皮膜は薄化するものの、ジルカロイに対する負の影響は認められない等のラゴ試験結果が示された。

このように本分野に関しては、依然として燃料洗浄や水化学の変更が燃料クラッドに及ぼす影響評価が中心であり、世界の動向は大きく変化していない。

(6) 放射線化学

BWR、PWRおよびCANDU炉での核種移行挙動に関する発表があった。いずれも実機データを詳細に解析しており、機構論に基づく研究が精力的に継続されている一方で、統計的な手法により経験式を導く取り組みも始まっている。両者の特徴と知見を踏まえ、より良い水化学管理の構築に結び付けることが肝要と考える。

核種移行挙動予測評価については、多変量解析を用いた核種移行挙動予測評価ツールの開発動向が報告された。実機データを用いたクラスター分析や回帰計算によりパラメータ毎の寄与を相対的に把握可能な経験的モデル式を提案するとともに、BWR再循環系の ^{60}Co 表面線量率を評価し、実測よりはやや低いものの定性的な傾向を把握できること、OLNCの効果も評価できることが示された。本評価ツールは、PWR一次系亜鉛注入時の線源強度の低下

を定量的に評価できる上、サイクル末期のホウ素濃度の効果、停止時の ^{58}Co の放出と伝熱管材料および表面処理の関係についても評価できる。

また、PWRの放射性IとXeの生成・減衰・移行挙動に関するモデルの開発状況が報告された。本モデルは、パッケージソフトFACSIMILEを用いたもので、RCSの放射性Iの生成速度（炉出力に比例）、Iのイオン交換樹脂での除去、析出したIのXeへの崩壊、Xeの気液分配、ガス状Xeの化学体積制御系（VCT）からの除去などを考慮し、破損した燃料や燃料要素の線量への寄与を相対的に推測できる。計算結果は、Sizewell B発電所の運転条件の変更によるIとXeへの影響を再現できた。

PWRにおける α 核種の挙動について、2007、2010、2015年にBEZNAU発電所での停止時化学管理と燃料かき取り調査結果のレビューが報告された。1号機は第1サイクルに燃料破損を経験したため冷却水中に α 核種が多く存在する。主要な α 核種は新燃料では短半減期の ^{242}Cm 、経年燃料では長半減期の ^{241}Am であり、原子炉容器上蓋でも ^{241}Am は高割合に存在したこと、2001年以降1号機の燃料破損を経験していないことから、 α 核種は炉外表面から放出されたものと考察した。

(7) 補機系

新規の廃液フィルタの選定試験、原子炉キャビティ除染用浄化装置（仮設型、水中フィルタ&水中用樹脂塔）、除染方法（廃棄物の少ない東芝のT-Ozone法）などの報告があった。これらの技術は、運転中の発電所の被ばく線量低減策として有効であるほか、廃炉作業における除染、福島第一原子力発電所の事故炉の除染にも活用可能な技術といえる。また、国外では、固定子冷却系関連、補機冷却系防錆剤の開発等にも着手しており、複数の発表があった。主系統以外とはいえ、プラント停止につながるため、これら系統の水管理の重要性についても改めて注意喚起がなされた。

(8) 福島第一発電所事故関連

核分裂生成物（FP）挙動、放射線誘起電解による水素発生が重要課題である。日本から、福島第一原発事故における核分裂生成物（FP）挙動をFEP(Forward Evaluation Procedure)とBEP(Backward Evaluation Procedure)により評価した結果等の発表があった。

3. まとめ

NPCの特徴の一つは、研究機関を含む学术界と産業界からの発表のバランスが良く、かつシングルセッションで会議が進行することにある。すなわち、研究機関から紹介された知見や新技術の多くは実機プラントで適用が進められ、更にPWR、BWRあるいは他の炉型の経験や知見を共有できることから、技術の改良や規格化を効率的に進めることが可能となる。PWR一次系の亜鉛注入やBWRのOLNCはその典型例であり、良好な取組みの報告を受けて急速に普及が進み、現在はその標準化段階にある。この様な技術活用の流れが示すように、NPCは世界中の原子力発電プラントの安全性、信頼性に多大な貢献を果たしてきたことは論を俟たない。

今回も、4日間に亘り水化学の専門家による活発な議論が行われた。多くは既設炉の安全

性や信頼性向上のための水化学技術の開発に関するもので、各国の水化学関係者が継続して技術の改良、改善に努めている状況が見受けられた。その一方で、新設炉を多く抱える英国や仏国のプラントメーカーを中心に、安全規制対応や更なる被ばく低減に向けての新たな水処理技術の開発と実機適用が積極的に行われており、軽水炉の再稼働が進まない日本との格差を感じた。日本からの参加者が大きな刺激を受けたことは言うまでもない。軽水炉プラントの輸出は、安全技術に加え水化学も含めた保全技術のパッケージ化も検討されていることもあり、再稼働に苦慮している我が国の早い巻き返しが求められる。また、NPCは国際的な技術競合が展開される場でもある。今回もSG二次側のフィルムフォーミングアミンの分野において、技術の嚆矢となるべく米国の後塵を拝していた欧州の積極性が見られた。

今後、水化学技術の改善や革新を進める上で、切磋琢磨の機会を提供するNPCの重要性はますます高まると予想される。世界最高水準の水化学を目指す我が国の水化学分野の関係者にとっては、NPCは各国の動向を把握できるとともに、我が国の技術を世界に示す最良の機会であるといえよう。

次回は、米国San Franciscoにて2018年9月に開催される。NPC2020は、南仏国で開催される。

以上