

# 関西電力における 線源低減活動状況について

～ 酸化運転手法の変遷 ～

関西電力 原子力事業本部  
放射線管理グループ  
青木 政徳

平成28年11月18日 水化学部会 定例研究会

## 1. 当社における線源強度低減の取組み

- 線源低減へのアプローチと対策
- 1次系水質管理の変遷
- 至近の線源強度

## 2. 酸化運転

- 酸化運転の目的
- 種類と特徴
- 酸化運転手法の変遷
- 満水酸化の改良の検討
- 新・旧満水酸化の比較
- 高浜発電所における満水酸化と外層クラッドの実績比較

## 3. 今後の課題

- 高浜3・4号機への改良満水酸化適用
- ASCA洗浄プラントへの満水酸化（80℃）適用

## • まとめ

# 1. 当社における線源強度低減の取組み



## ・線源低減へのアプローチ

1. 金属皮膜からの溶出抑制 … 腐食生成物の溶出、放射化線源の溶出

- 還元性雰囲気（溶存水素等）
- 高pH運転
- 亜鉛注入

出さない

2. 溶解物の付着抑制 … 炉内（燃料表面等）への付着、配管等への付着

- 亜鉛注入
- アンモニア添加

留ませない

3. 冷却材の浄化 … 腐食生成物の除去、線源の除去

- 冷却材脱塩塔（浄化流量）
- 1次系フィルタ（細メッシュ化）

取り除く

4. 金属皮膜からの溶出促進 … 放射化線源の溶出

- 酸化運転

5. 状態の監視

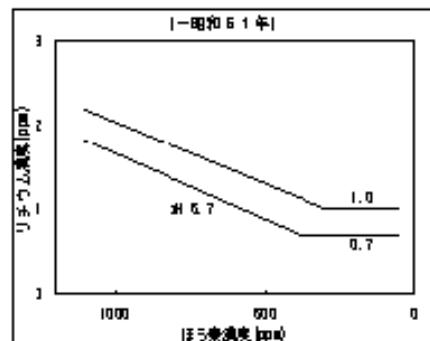
- 標準モニタリング etc…

## ・線源低減対策の概要

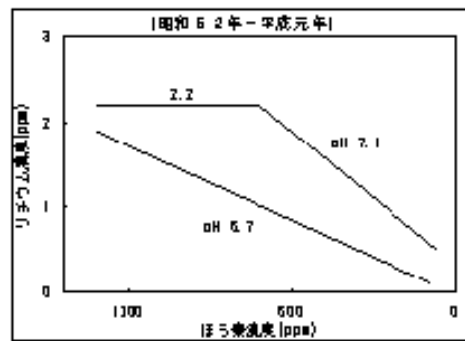
対 策		適 用 時 期			実 施 概 要 ( 内 容 )
		起 動	運 転	停 止	
冷却材脱塩塔		○	○	○	イオン交換樹脂により系統中の腐食生成物を除去し、低減を図る。特に起動・停止時等、腐食生成物の溶出が多い時期には通水流量を最大量とし積極的に除去する。
1次系フィルタ 細メッシュ化		○	○	○	1次系各フィルタ設備のフィルタメッシュを小さくすることにより系統中の腐食生成物の低減を図る。
高pH運転			○		炉心外へ移行する <sup>58</sup> Co、 <sup>60</sup> Coの最少量化および系統構成材健全性維持の観点からpH：7.3、Li：2 ppmを設定。
アンモニア添加			○		CoをNH <sub>3</sub> によりCo水和イオンより安定かつイオン半径の大きいキレート形成させ、同位体交換反応を抑制させる。
亜鉛注入			○	○	1次冷却材中に亜鉛を注入し、系統機器表面の酸化皮膜のNi、Coを亜鉛と置き換え、配管機器表面の線量低減を図る。
酸化 運 転	満水酸化			○	RCSを満水状態にて過酸化水素を添加し、強制酸化することによりクラッド溶出を促進させる。
	外層クラッド除去			○	過酸化水素の添加により低溶存水素濃度とし、外層クラッド溶出を促進させる。
	エアレーション法			○	RCS水抜き後、強制的に空気を混入させ酸化性雰囲気としてクラッドを溶出させる。
標準モニタリング			○	○	線源強度の経年変化および線源低減効果を評価する上でのデータ採取。

# 1. 当社における線源強度低減の取組み

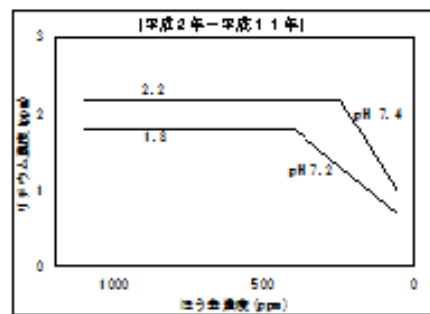
## ・ pH管理の変遷



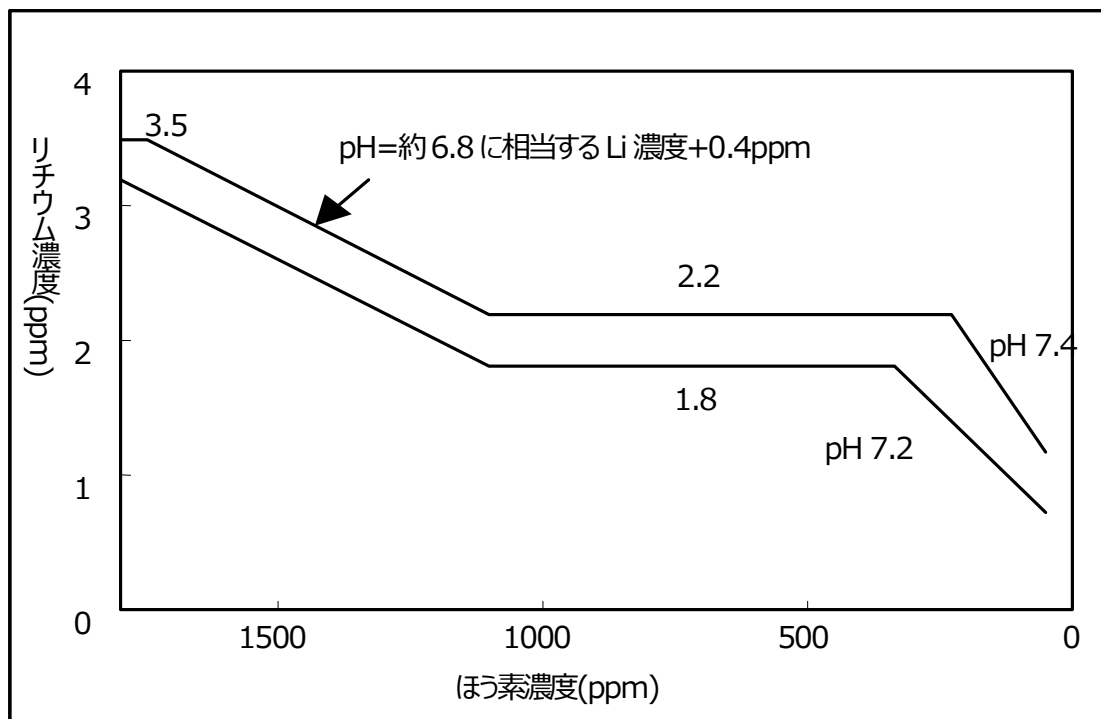
ニッケル濃度(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)の溶解度試験より評価



ニッケル濃度(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)の溶解度試験より評価



ニッケル濃度(Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Co<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)の溶解度試験より評価

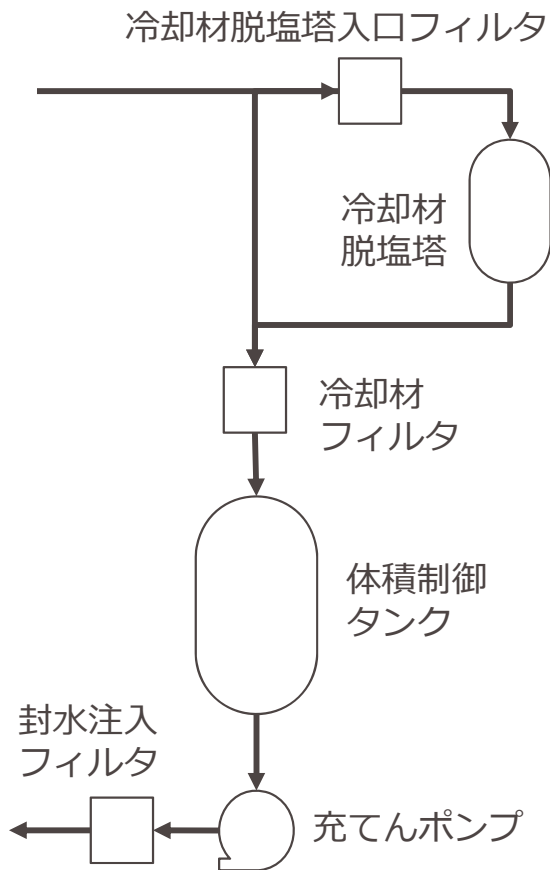


## ・フィルタの細メッシュ化



1992年頃より順次変更

単位：μm

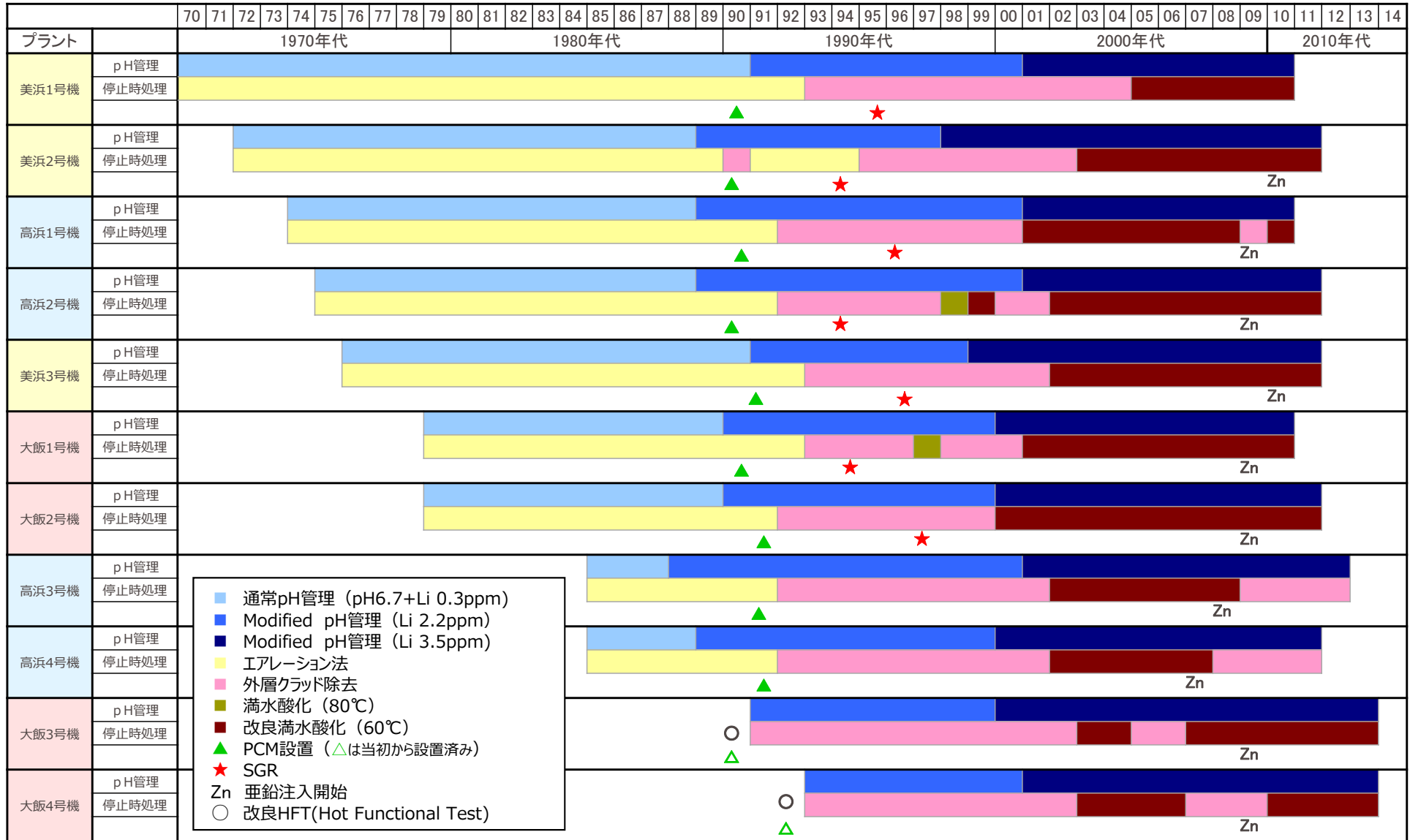


		脱塩塔入口	冷却材	封水注入
美浜	1号機	—	2 (絶)	0.01 (絶)
	2号機	—	2 (絶)	0.01 (絶)
	3号機	—	2 (絶)	1.2 (絶)
高浜	1・2号機	—	2 (絶)	0.1 (絶)
	3・4号機	0.45 (絶)	1.0 (絶)	0.1 (絶)
大飯	1・2号機	0.1 (絶)	1 (絶)	0.45 (絶)
	3・4号機	0.45 (絶)	1 (絶)	5 (公)

(絶) : 絶対ろ過精度 (公) : 公称ろ過精度

# 1. 当社における線源強度低減の取組み

## ・ 1次系水質管理の変遷（pH管理、酸化運転、亜鉛注入）

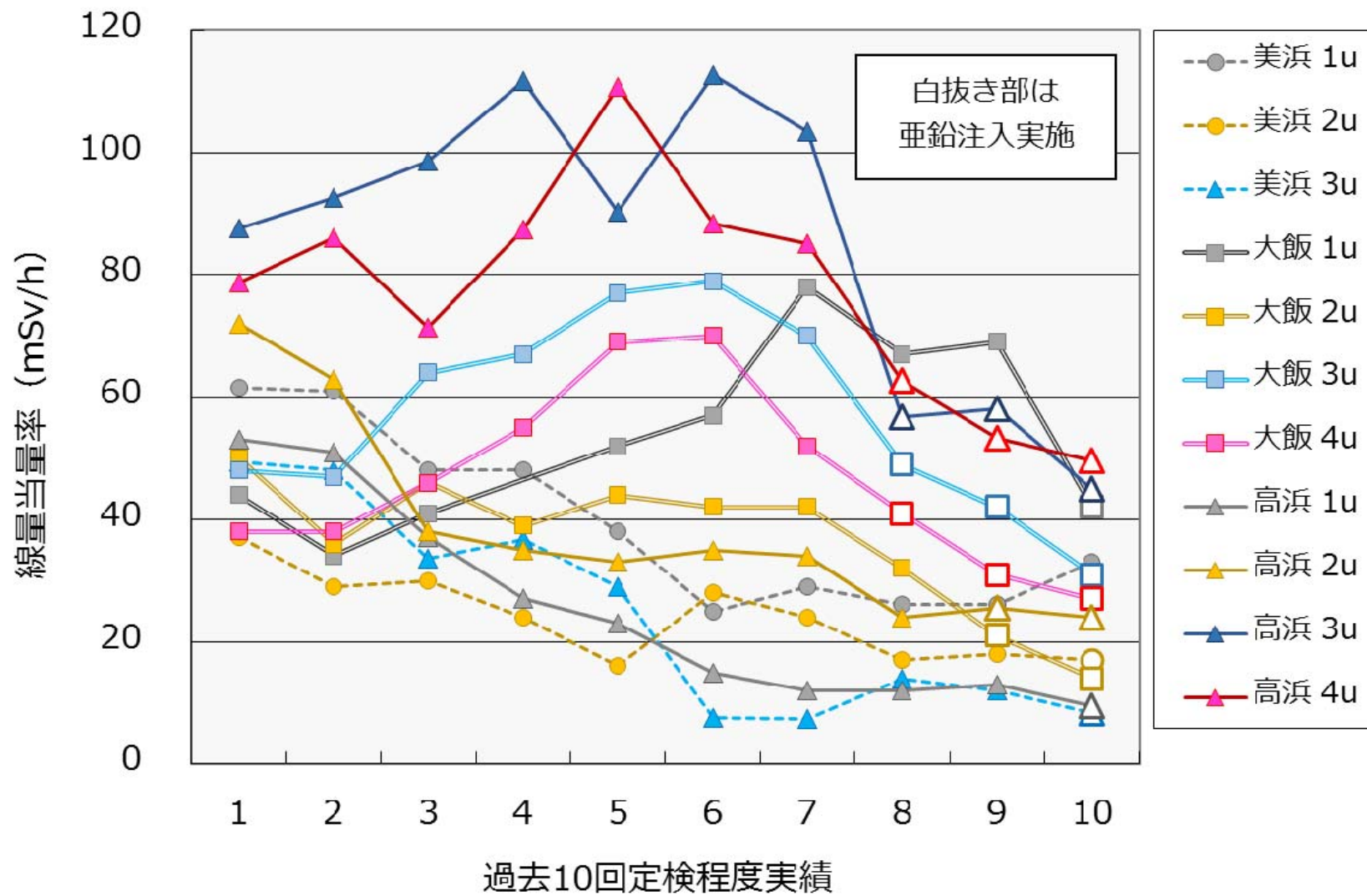




# 1. 当社における線源強度低減の取組み

## ・至近の線源強度状況 (1)

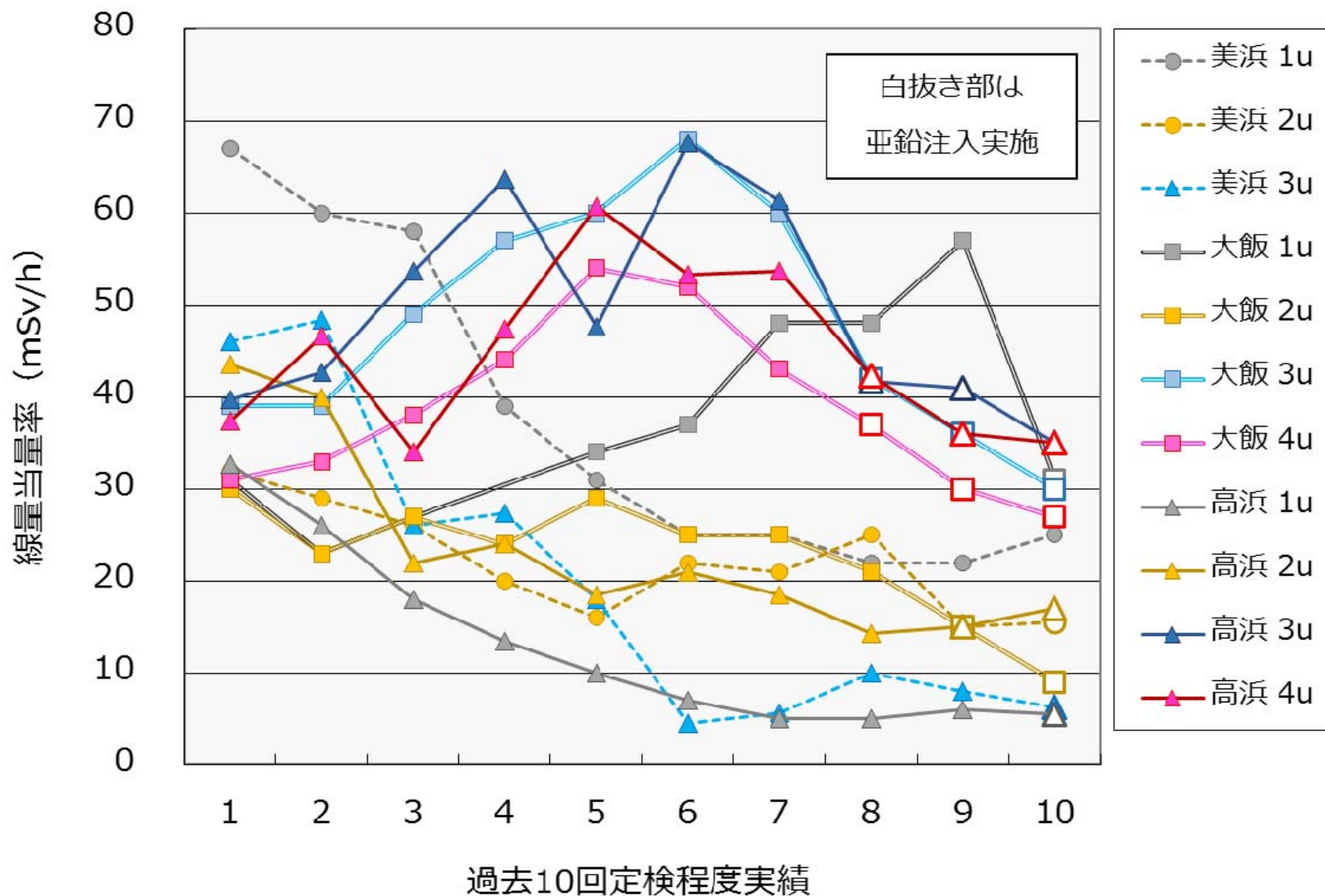
S G水室内線量当量率 (COLD中央値)



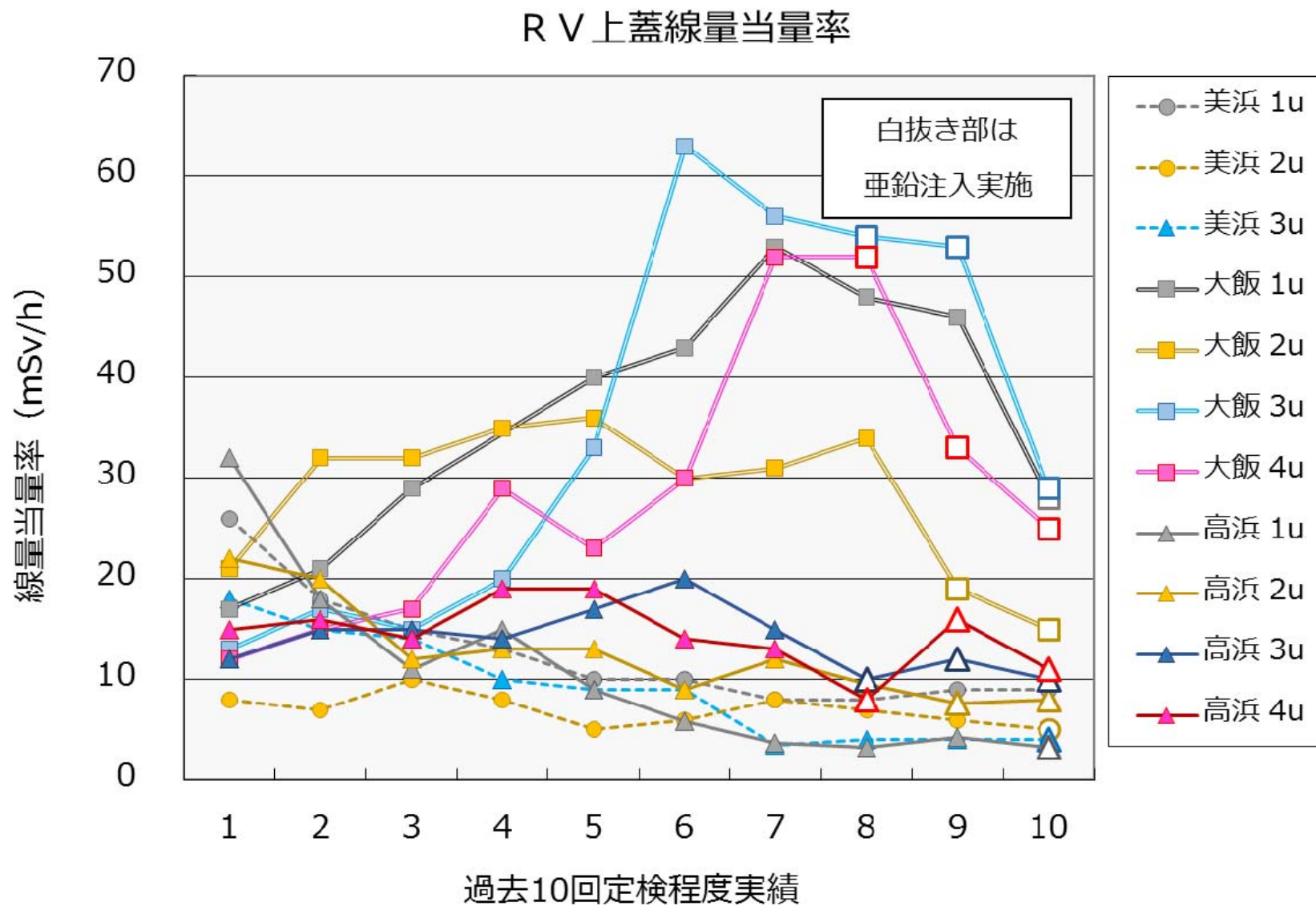
# 1. 当社における線源強度低減の取組み

## ・至近の線源強度状況 (2)

S G水室内線量当量率 (HOT中央値)



## ・ 至近の線源強度状況 (3)



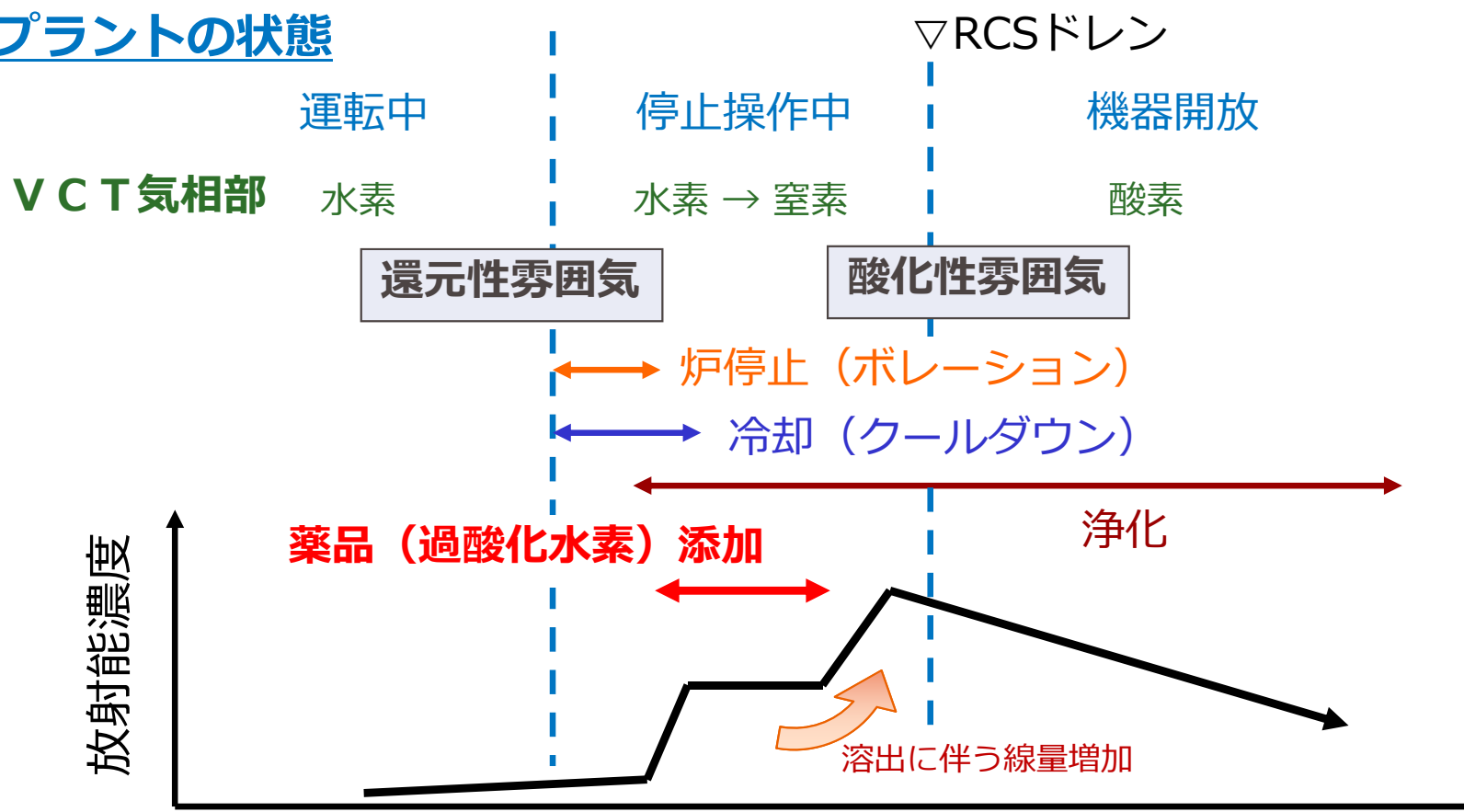
## 2. 酸化運転



### ・酸化運転の目的

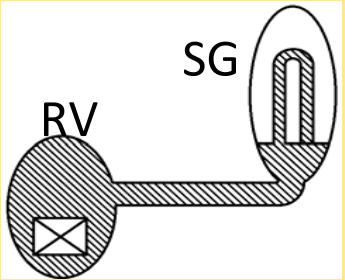
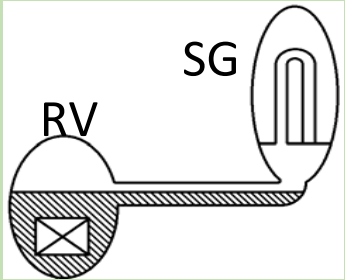
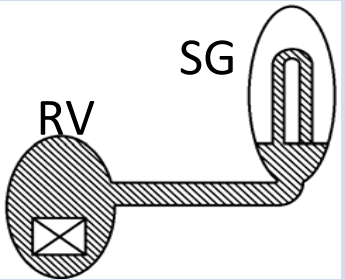
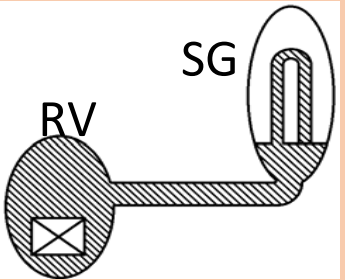
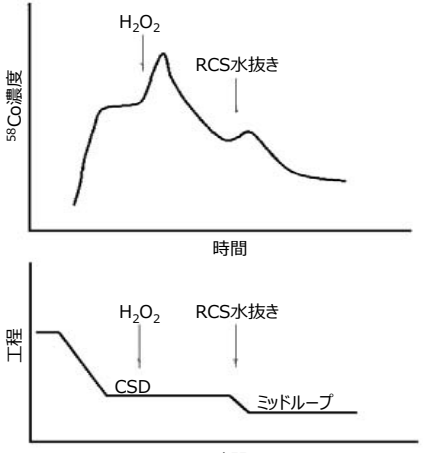
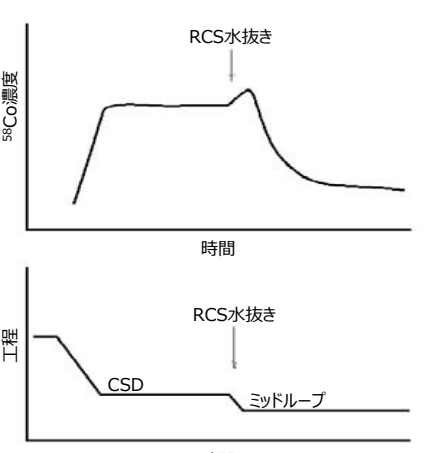
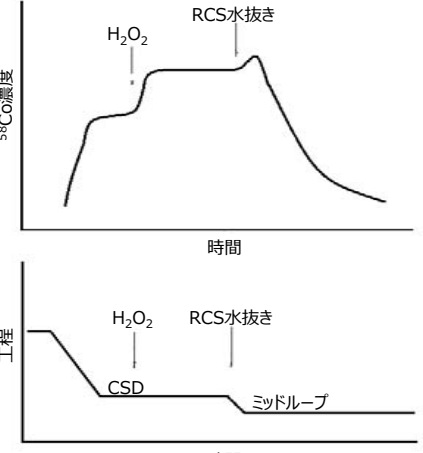
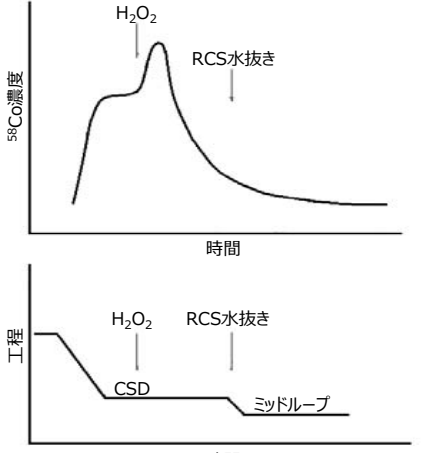
プラント停止に伴い、系統を還元性雰囲気から酸化性雰囲気へと移行させ、放射性**クラッドの溶出促進**と脱塩塔による浄化にて1次系構成機器の線源強度を低減させる。

### プラントの状態





## ・酸化運転の種類と特徴

満水酸化	エアレーション法	外層クラッド除去	改良満水酸化
			
			
<ul style="list-style-type: none"> <li>・80℃でH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加（酸化性雰囲気下で溶出を促進）</li> <li>・添加H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>量大</li> <li>・配管機器の汚染大</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加なし（or 水抜き時に少量添加）</li> <li>・高濃度時は水が抜かれており、配管機器の汚染小</li> <li>・ミッドループ期間が長い</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・80℃でH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加（弱還元性雰囲気下で溶出を促進）</li> <li>・添加H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>量小</li> <li>・配管機器の汚染小</li> <li>・ミッドループ期間が長い</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・60℃でH<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加（酸化性雰囲気下で溶出を促進）</li> <li>・添加H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>量やや大</li> <li>・ミッドループ期間が短い</li> </ul>

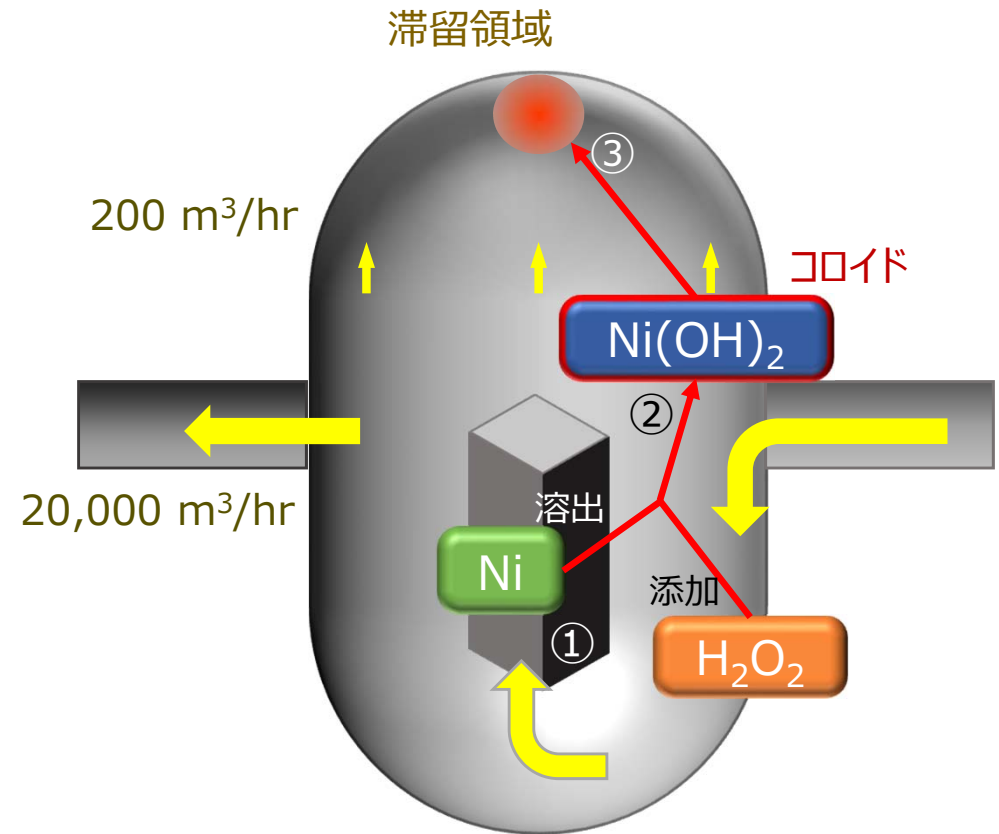
## ・ 運開時から現在までの酸化運転手法の変遷

年代	酸化運転	特徴	状況・背景等
1970年～ 1980年代前半 (S58年頃まで)	満水酸化法	CSD後、RV開放に向けてDH濃度を早く下げするため、H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加(60～80℃)。	運転初期のため配管機器線量は低く、クラッドバースト等、線量上昇、汚染拡大がそれほど重要視されなかった。 激しい環境のため、溶出よりも汚染の影響が大きく、次第に機器線量が増加していった。
1970年代後半～ 1990年代前半	エアレーション法	CSD(RCS満水、80℃保持)はH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加しない。	SG水室等の線量が増加し、定検作業に影響を及ぼすようになったため、機器汚染を起こさないエアレーション法に切り替えられていった。 配管機器線量は徐々に低下していった。
1990年代前半～	外層クラッド除去	CSD(RCS満水、80℃保持)にH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加するが、弱還元性雰囲気にする。 (DH=1cm <sup>3</sup> /kg程度)	配管機器線量が低下してきたことなどを背景に、エアレーション法より積極的に線源の溶出・除去を図った外層クラッド除去法が採用された。 この頃より、クラッドバースト抑制として停止時の溶存水素濃度管理も行われるようになった。
1997年10月 (O1#14定検)	満水酸化法 (試運用)	汚染拡大を防止するため、H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> の添加(80℃)には慎重を期して実施した。	コスト低減の動きが活発となり、安価な原子力を1日でも多く稼働できるよう定検期間短縮が図られるようになった。 海外では満水酸化が主流であり、問題も報告されていなかった。 工程短縮に有利な満水酸化法の再採用を検討したが、RV上蓋の線量が増加した。
2000年代前半～	改良満水酸化	CSD(RCS満水、60℃保持)にH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加し、酸化性雰囲気での溶出を促進する。	O1#14の結果を反映し、Niコロイドの発生抑制のため60℃でH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加する方法に改良された。
			高Ni(600)材のT3・4では、満水酸化後のサイクルでクラッド濃度の上昇が認められたため、外層クラッド除去に戻された。
<b>現在の検討課題</b>			安全性向上の観点からミッドループ運転の短縮が叫ばれるようになり、T3・4でも改良満水酸化の採用を再検討する必要性に迫られている。
2018年?	満水酸化法	80℃でH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加する。	O3・4で計画されているASCA洗浄時では、CSDを80℃で維持する必要がある。工程を延長しないためにも80℃でのH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 添加を再検討する必要がある。

## ・改良 (80 → 60℃) の検討概要

### ・Niコロイドの生成と沈着挙動

- ① 運転中の燃料表面クラッドは金属Niが安定。
- ② 過酸化水素添加により酸化され、溶解度の低いNi(OH)<sub>2</sub>コロイドを生成。
- ③ コロイドが流速の低い側へ移行し、滞留領域に凝集。沈着の際に一緒にCoを取込み。



### ・コロイド生成の温度条件

		試験水中の過酸化水素濃度			
		5 ppm	1 ppm	0.5 ppm	0.2 ppm
試験温度	80℃	あり	あり	あり	なし
	70℃	なし	なし	-	-
	60℃	なし	なし	-	-

80℃でのみクラッド成分が発生し、温度低下によって発生が抑えられる。

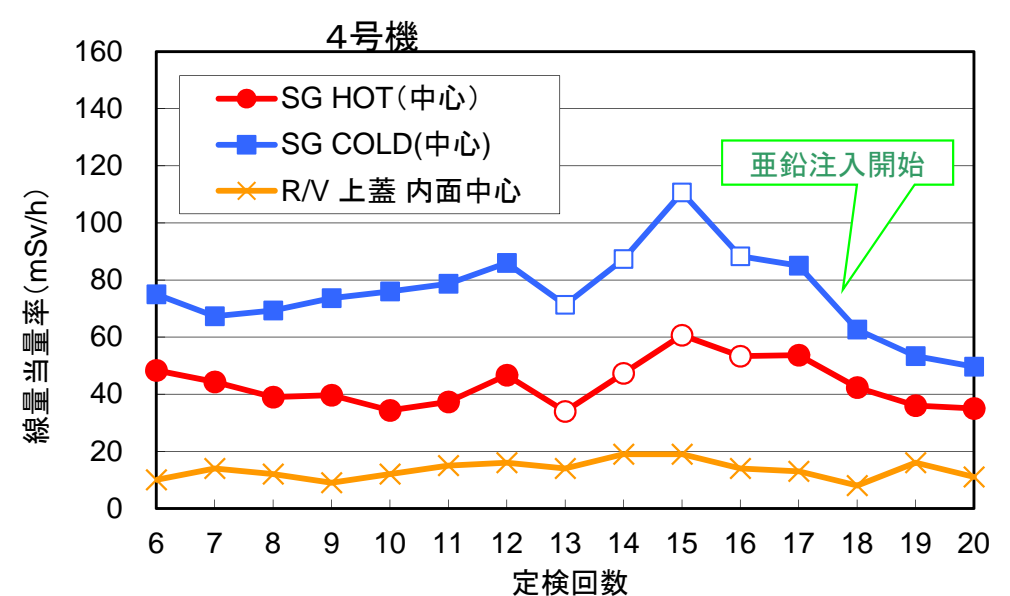
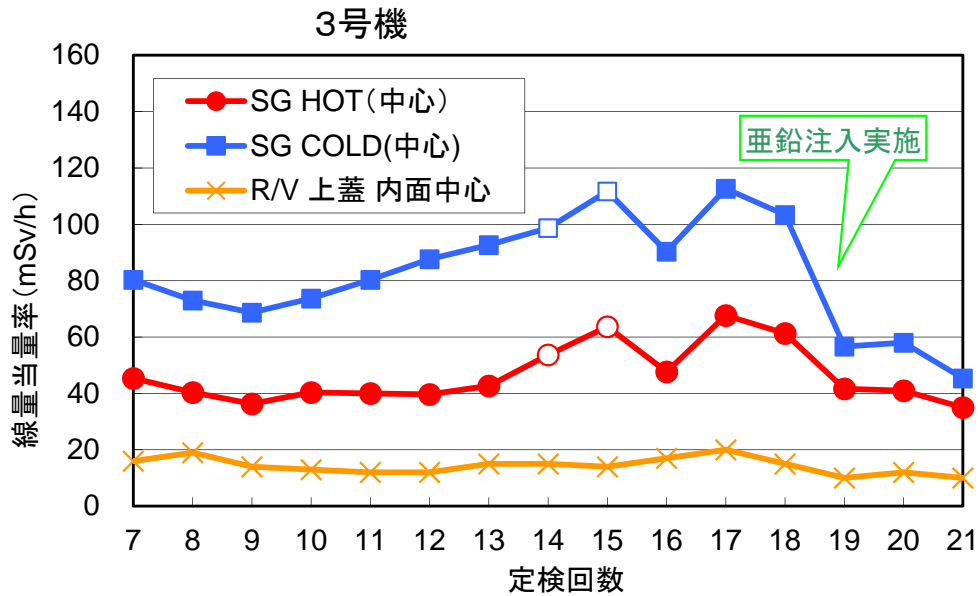
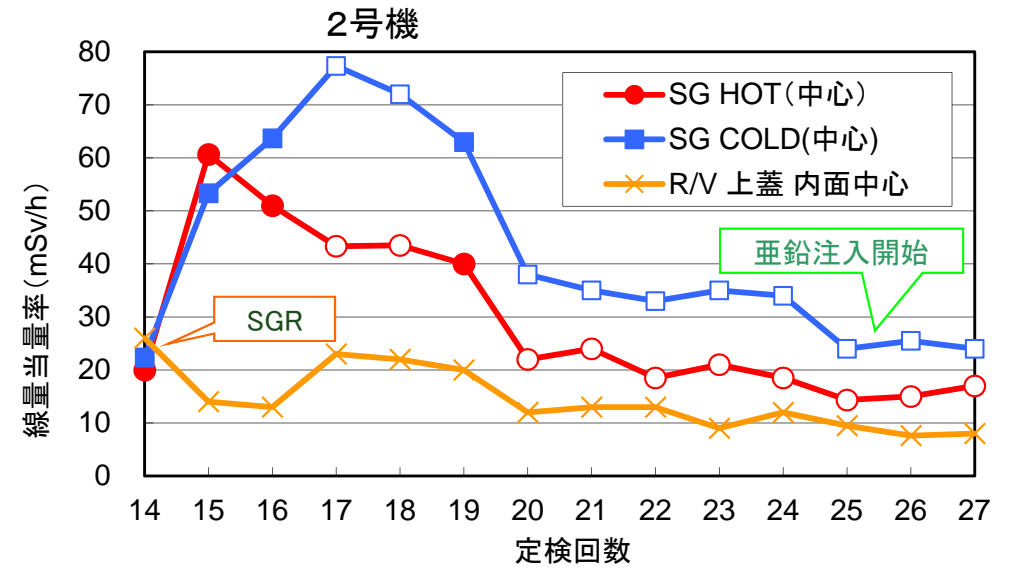
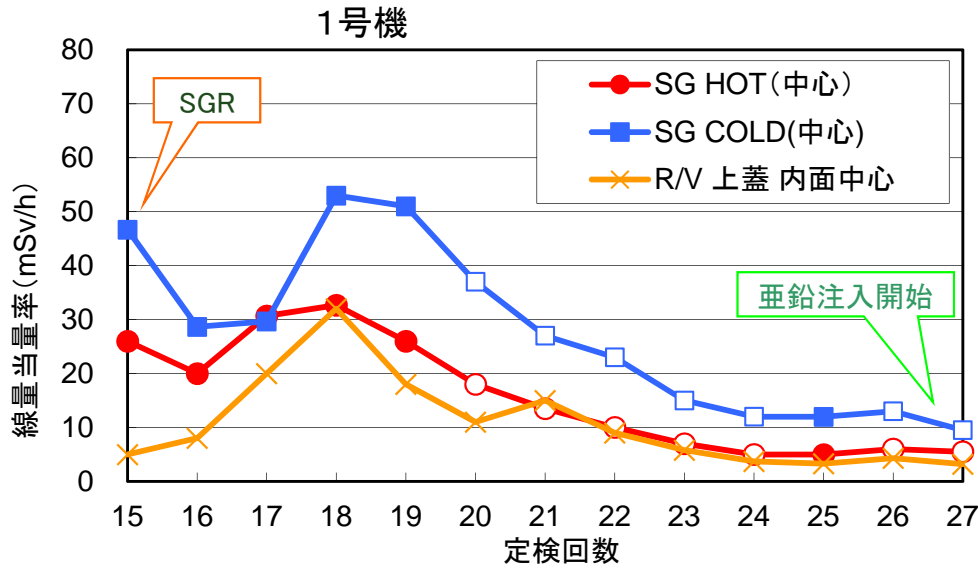
**60℃での実施**



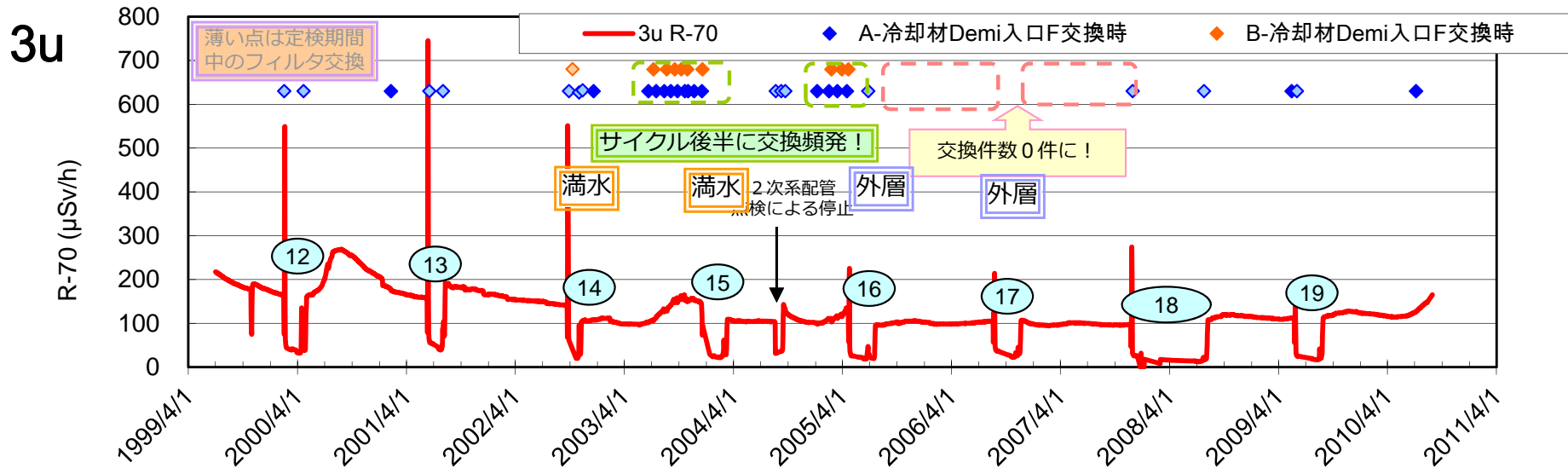
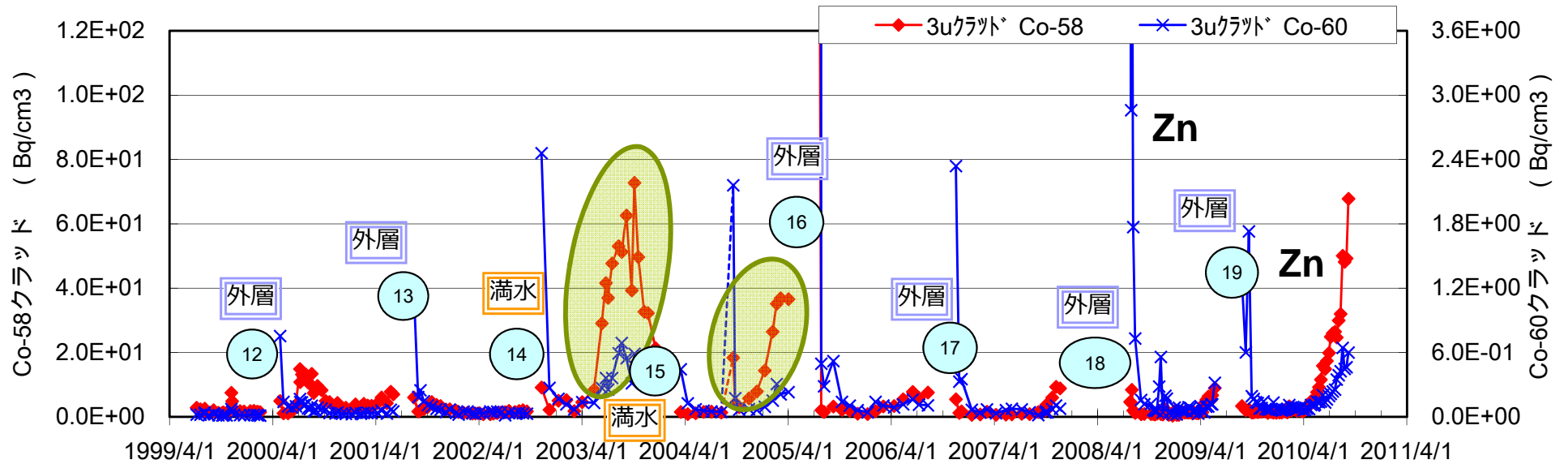
### ・新・旧満水酸化の比較

		改良満水酸化	旧 満水酸化	外層クラッド除去（参考）
開始条件		(RCS 82℃以下?)	(RCS 82℃以下)	RCS 82℃以下
管理温度		60℃	75~80℃	75~80℃
添加管理限度		H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> <1 ppm	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> <1ppm	DH <sub>2</sub> ≥ 0.1 cc/kg
添加量 /回	初期	・DH <sub>2</sub> ≥ 5cc/kg H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 5ppm相当量/回	・DH <sub>2</sub> ≥ 2.6cc/kg H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 5ppm相当量/回	・SIS逆止弁漏えい検査まで 2~3回に分けて添加 DH <sub>2</sub> ; 0.8 cc/kg目標
	中期	・DH <sub>2</sub> < 5cc/kg DH <sub>2</sub> およびH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 濃度から算出	・DH <sub>2</sub> < 2.6cc/kg DH <sub>2</sub> 濃度から算出	(検査中は中断)
	最終	・モニタピーク形成後 H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> ; 0.3~1 ppm目標	・H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 検出orモニタピーク形成後 H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 0.5ppm相当量/回 H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> ; 0.3~1 ppm目標	・SIS逆止弁漏えい検査後 DH <sub>2</sub> ; 0.5 cc/kg目標
添加制約		添加間隔を1時間以上確保		

## ・高浜発電所におけるSG水室およびRV上蓋線量当量率変化



## ・高浜3号機における満水酸化後クラッド上昇及びフィルタ交換頻発



### 3. 今後の課題



#### ・ 高浜3・4号機への改良満水酸化適用

##### 【事象と課題】

- 過去に満水酸化を採用した次のサイクルにおいて、サイクル中期からクラッド濃度上昇が発生している。 ➡ **クラッド上昇を防止**

##### 【原因の推定】

- 停止前の系统中的**クラッド濃度が高い**ことが原因？（SG細管がTT600材であるため）



- 亜鉛注入を3サイクル経験し、クラッド濃度も低下している現在では適用可能か？

#### ・ ASCA洗浄プラントへの満水酸化（80℃）適用

##### 【事象と課題】

- ASCA洗浄ではSGを80℃キープする工程が必須であるため、改良満水酸化（60℃）でプラント停止をした後、再度80℃まで昇温する工程が必要となり、定検工程が長くなる。（外層クラッド除去であれば80℃なので同時に実施可能。） ➡ **80℃キープが必要**
- 外層クラッド除去法では線源溶出のピークが水抜き後に遅れるため、酸化運転終了までの期間が長くなる（定検工程が長くなる、ミッドループ期間が長くなる。） ➡ **満水酸化**を採用したい
- 過去に80℃で満水酸化を実施した際は、RV上蓋線量が上昇した。

##### 【原因の推定】

- RV上蓋線量上昇の原因は**Niコロイドの生成**が原因
- Niコロイドの生成は冷却材中の**Ni濃度**に依存



- 亜鉛注入を3サイクル経験し、Ni濃度も低下している現在では適用可能か？

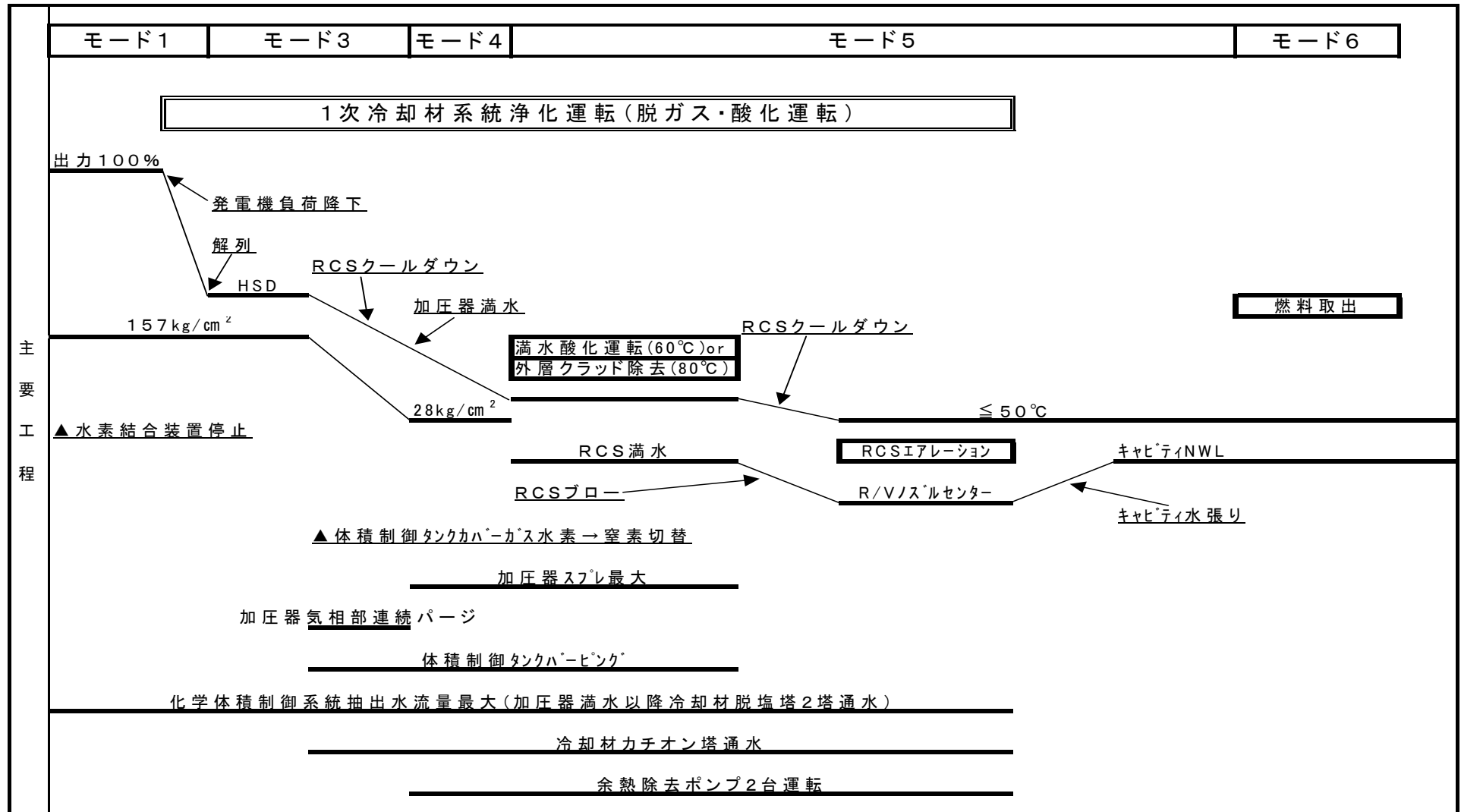
- 新しい情報、技術を取り入れながら、1次系の線源強度低減に向けて継続的に取り組んできた。特に近年では亜鉛注入の効果により線源強度が低減できてきている。
- 停止時の酸化運転手法として、満水酸化、エアレーション法、外層クラッド除去法、改良満水酸化と、その時代のニーズや問題点に対応しながら変遷してきた。
- 酸化運転の結果により1次系構成機器の線源強度が大きく影響するため、酸化運転の手法確立やプラント状況に応じた選定が重要である。
- プラントリスクを避けるためにも、今後はより一層ミッドループ運転期間の短縮が求められる。これには満水酸化法が有利であるが、一部のプラントでは設備や運用等プラント固有の条件を考慮した上で採用しなければならない場合があるため、今後も酸化運転要領の最適化に取り組む必要がある。

Thank you.

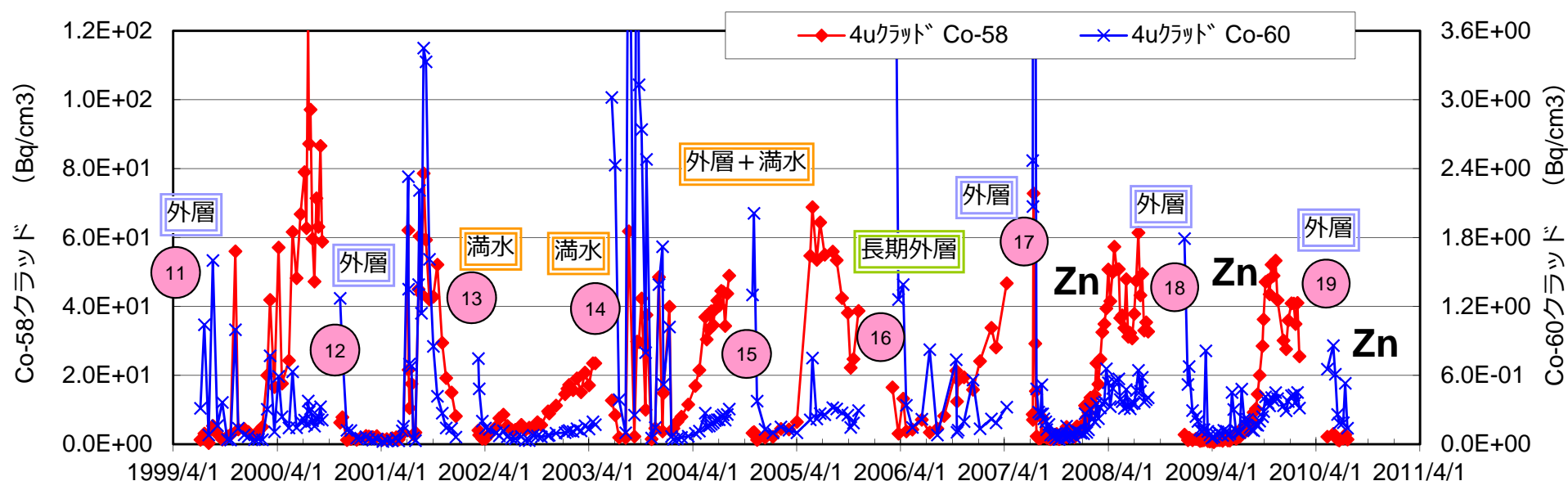




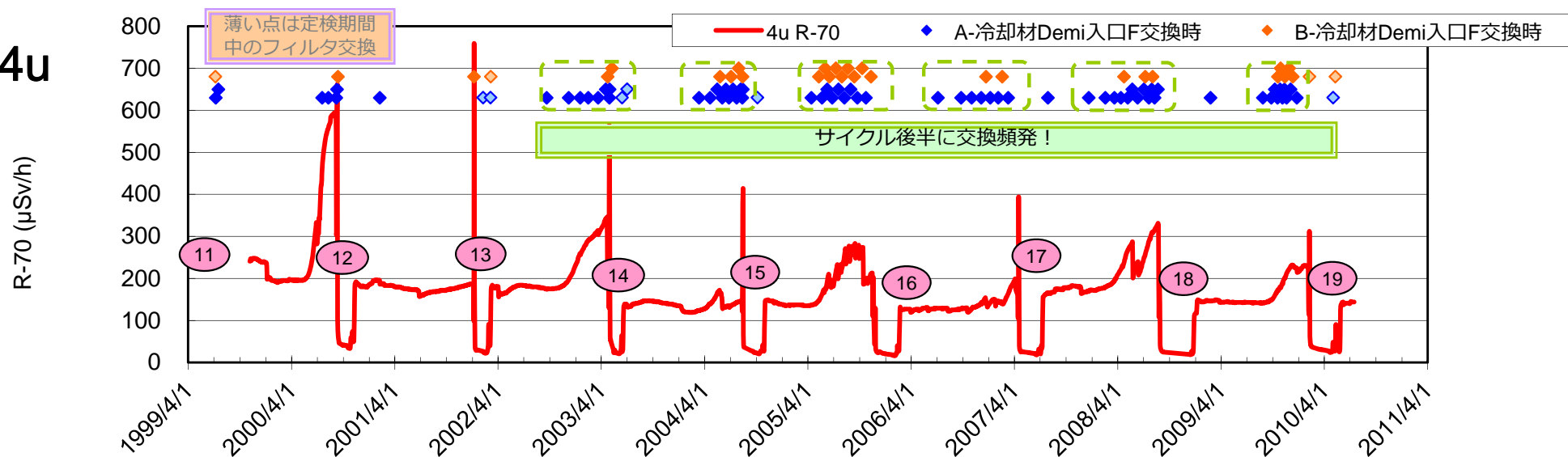
## ・ 停止工程



## ・高浜4号機における満水酸化後クラッド上昇及びフィルタ交換頻発



4u



### ・ 満水酸化の改良までの経緯 (1) 外層クラッド除去の導入～旧満水酸化の検討

年 月	記 事	概 要
1980年代後半		エアレーション法より積極的な線源の溶出・除去を目的として、外層クラッド除去法の検討が電力共通研究（電共研）で進められ（1988（昭和63）年～1989（平成元）年実施）、玄海2号機第7回定検（1989（平成元）年）で実機確認された。
1989(H元)年		外層クラッド除去法を適用するに当たり、溶存水素確認が手分析では不十分（時間、検出下限値）なため、設置する冷却材自動分析装置（PCM）に溶存水素計を導入することとした。
1990(H2)年4月～ 1990(H2)年7月	美浜2号機第13回定検 （外層クラッド 試運用）	美浜2号機第13回定検停止時に外層クラッド除去法を適用し、被ばく低減効果、除去量、導入する溶存水素計の性能確認などについて評価し、問題のないことを確認した。
1990(H2)年～ 1991(H3)年	各所PCM設置工事实施 （O-3,4除く）	各所PCM設置後の装置性能確認 （M2・SG細管破断トラブル発生）
1992(H4)年2月	社内方針にて外層クラッド除去を水平展開	M2#13の評価を受けて外層クラッド除去を適用することとした。全プラントを対象とし（新設O3,4も含め、T1#13以降順次）、RCS75～80℃にてH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加する要領。
	（この間、SGR実施）	
1990年代後半		発電所稼働率向上のため定検工程の短縮が進められた。更に工程を短縮するには外層クラッド除去、エアレーション法では対応できなくなることが予想されたため、過去に実施経験のある満水酸化法の適用が検討され始めた。
1997(H9)年10月～ 1998(H10)年1月	大飯1号機第14回定検 （旧・満水酸化 試運用）	大飯1号機第14回定検停止時に満水酸化法を適用し、Ni・Co挙動、配管等線量当量率の変化、クラッド量等を調査し、被ばく線源低減効果および酸化運転期間の短縮効果を評価した。 懸念された除去効率の低下やクラッドバーストの発生もなく、特に問題なしと最終的に評価された。ただし、RV上蓋線量のみ上昇した。

### ・ 満水酸化の改良までの経緯 (2) 旧満水酸化における問題点の改良～現在

年月	記事	概要
1998(H10)年6月	社内方針にて満水酸化(80℃)を水平展開	O1#14の評価を受けて全プラント満水酸化を適用することとした。(T2#17、M1#16以降順次)、RCS75～80℃にてH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> を添加する要領。ただし、燃料クラッド剥がれの兆候の場合、上蓋取替え工事等計画の場合は、従来の外層クラッド除去法の採用を検討。
1998(H10)年7月～ 1998(H10)年8月	高浜2号機第17回定検 (旧・満水酸化 本運用)	上記方針に基づき高浜2号機第17回定検停止時に満水酸化法を適用した。O1#14と同様にRV上蓋線量が上昇。
1998(H10)年～ 1999(H11)年		O1#14およびT2#17ともに、RV上蓋線量の上昇が見られたことから、要領の見直しが検討された。 上蓋線量上昇の原因としてNiコロイドの生成が考えられた。過酸化水素濃度、温度等をパラメータにプラント停止時酸化運転中のコロイド発生状況を調査し、コロイド発生抑制対策が検討された。 対策として、満水酸化運転時の温度60～70℃が提示された。
1999(H11)年8月	社内方針にて満水酸化の要領を一部変更	上記提案を元に、満水酸化はRCS60℃で実施し、DH5cc/kg以下のH <sub>2</sub> O <sub>2</sub> 添加量を制御した改良満水酸化法を立案した。これを高浜2号機第18回定検に適用し、その効果を評価し標準化を図ることとした。
1999(H11)年10月～ 1999(H11)年11月	高浜2号機第18回定検 (改良満水酸化 試運用)	T2#18定検で改良満水酸化法を適用し、従来法と同等の被ばく線源低減効果および酸化運転期間短縮効果を確認した。 ただし、RV上蓋線量の低下が確認できないなどの一部再確認事項が発生したため、大飯2号機第15回定検停止時にて再検証することとした。
2000(H12)年3月～ 2000(H12)年5月	大飯2号機第15回定検 (改良満水酸化 試運用)	O2#15では特に問題もなく、RV上蓋線量の上昇も起こらなかった。(この後、各所にて改良満水酸化の適用が進む。)
2002(H14)年～現在		T3#14,15およびT4#13～15では改良満水酸化を実施した。停止後の除去量や線量に問題は発生しなかったが、次サイクル運転中に炉水中のクラッド濃度が上昇しフィルタの交換が追いつかなくなる事態となった。この原因として満水酸化が疑われたため、T3#16定検停止時に外層クラッド除去に戻したところ、次の17サイクルではこのような問題が起こらなかったため、高浜3,4号機の停止時酸化運転法を外層クラッド除去に限定することとした。

## ・ 停止時の化学操作関連 (溶存水素および過酸化水素関連)

- 各プラントの設計上の制約等を考慮し、限定した酸化運転手順は定められていない (推奨レベル)。ただし、避けるべきプラント状態が明示されており、当該状態を作り出さない操作方法が求められている。
  - 解列の24時間前までに $\text{DH}_2$ を15 cc/kg程度まで低減。  
( $\text{H}_2\text{O}_2$ 添加時に放射線学的に酸性で酸化性の状態となる時間を最小限とするため)
  - RCS開放時は $\text{DH}_2 < 5$  cc/kgが必須。(爆発性混合ガス生成防止のため)
  - RCP1台以上運転中、RCS $82^\circ\text{C}$ 未満で過酸化水素添加が可能。  
(この頃の添加は脱ガスが目的)
  - 加圧器 $121^\circ\text{C}$ 以上且つ2相系時は液相の $\text{DO}_2 < 100$  ppb厳守  
(爆発性ガスの生成防止)
  - 2 ppmの $\text{H}_2\text{O}_2$ が残るよう添加。添加後は系統へ均等に拡散するよう加圧器ミキシングを確実に実施する。(最低RCS1台は運転すべき)
  - 低温 ( $50 \sim 150^\circ\text{C}$ ) で高 $\text{DH}_2$  ( $> 10$  cc/kg) の場合、Ni合金で低温き裂進展 (LTCP) を生じる場合あり。  
(感受性 ;  $X750 \gg 690 > 600$ ) ← PWSCCと関係が逆 !



## ・脱ガス・酸化運転時の系統状態に関する記述

- 酸性酸化性雰囲気形成されると直ちにNiとCo-58の酸化と可溶化が進む。Co-60の溶出は典型的にはCo-58の約1/10である。
- 過酸化水素が残存するようになるとこれらの溶出も終了する。
- 停止操作時中も炉内の放射線による分解特性が無視できない。80℃であっても過酸化水素の添加によりNiが急激に溶解するのはこの影響である。
- H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を効率よく拡散させるために最低1台のRCP運転が必要であるが、同時に炉心表面の沈着クラッドの溶出拡散も招くこととなるため、添加開始後はRCP運転を継続しなければ拡散物の沈着が起こり線量が増加する。
- 同様に、流量が少なく、既にRCPを止めたループも相対的に線量が上昇する。
- 炉心表面の沈着クラッドの溶出拡散を防ぐ目的で、幾つかのプラントでは過酸化水素添加以前にRCPを全台停止し、添加以降はRHRで浄化する方法で運用されている。
  - Mc Guire 1号では、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加時にRCP3台運転していた14～19回定検と比べて、本方法を採用した20、21回定検では全核種において著しくクラッドの放出が減少した。
  - North Annaではおよそ20年間、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>添加時にはRCSを運転していたことがない。
  - RHRのみで浄化する場合、浄化系流量を確保するための改良が必要な場合がある。
- 幾つかのプラントでは酸化が一部だけであったためにキャビティ水張り後、水が酸化鉄(II)コロイドで濃い緑色に濁る場合がある。このようプラントではキャビティ水張り直前や水張り後に過酸化水素処理し、キャビティに生じた酸化鉄(II)を酸化鉄(III)としてろ過、堆積除去できるようにしているプラントもある。