

伊方3号機原子炉補機冷却海水系統を対象とした海水処理の適正化について

(株)四国総合研究所 化学バイオ技術部
(株)四国総合研究所 化学バイオ技術部
(株)四国総合研究所 化学バイオ技術部
四国電力(株) 伊方発電所 放射線・化学管理課
四国電力(株) 原子力部 安全グループ

山本 松平
石川 裕史
大鹿 浩功
三好 靖宏
曾根 諒

キーワード： 伊方発電所3号機
原子炉補機冷却海水系統
化学処理
伝熱性能
生物皮膜
腐食

Key Words : Ikata Unit3
seawater system
chemical treatment
heat transfer performance
biofilm
corrosion

Improvement of chemical treatment in the seawater system at pressurized water reactor Ikata Unit 3

Shikoku Research Institute, Inc., Chemical Technology and Biotechnology Department

Shohei Yamamoto, Hirofumi Ishikawa, Hironori Oshika

Shikoku Electric Power Co., Inc., Nuclear Power Division

Yasuhiro Miyoshi, Ryo Sone

Abstract

Heat transfer performance of the air cooler for the emergency diesel generator (D/G) in seawater system was degraded in the 14th operation cycle of pressurized water reactor Ikata Unit 3 on June, 2017. This event would be caused by biofilm formation on the seawater side of the heat transfer tubes and/or excessive deposited of iron ion oxidized injected into the seawater for corrosion protection. To prevent the events due to biofilm formation and excessive iron deposited, we carried out to investigate the adequate chemical treatment for concentrations of chlorine (Inhibition of biofilm formation) and iron ion injected into the seawater that would be improved the heat transfer performance of the air cooler while maintaining the corrosion protection of two other heat exchangers, component cooling water heat exchanger (CCWHx) and chiller in the system. As a result of study using an apparatus simulating the system, it was elucidated that chemical treatment is appropriate to manage with concentration for chlorine of 0.05 mg (total residual oxidant as Cl₂) / L at CCWHx etc. outlet and iron ion of 0.10 mg / L at the injection concentration while locally increasing the chlorine concentration above 0.15 mg / L in the D/G seawater only by dedicated additional injection system. And then, improvement chemical treatment in the actual system, we have been able to both improve heat transfer performance and maintain corrosion protection.

1. はじめに

日本国内の原子力および火力発電所の多くは、蒸気タービン復水器や補機設備の冷却に大量の海水を利用しているが、海水による設備の汚損や腐食はトラブルの原因となるため、発電所毎に海域や設備に応じた保守・管理が行われている^{1,2)}。

瀬戸内海に面する四国電力(株)伊方発電所3号機(加圧水型原子炉)は、新規規制基準に適合した2016年から通常運転を再開した。また、運転再開後も、さらなる安全性の向上に取り組んでおり、その一環として我々は、化学的な知見・観点から海水系統設備の保守・管理の高度化について調査・研究を実施している。

本稿では、伊方3号機原子炉補機冷却海水系統を対象とした化学処理(以下、「海水処理」という。)の適正化に係る調査・研究成果について報告する。

2. 伊方3号機原子炉補機冷却海水系統と海水処理

2.1 原子炉補機冷却海水系統の概要

図-1 に原子炉補機冷却海水系統の概要を示す。当該系統には、原子炉補機冷却水冷却器(以下、「CCWHx」という。)や空調用冷凍機(以下、「チラー」という。)に加え、非常用ディーゼル発電機(以下、「D/G」という。)の補機(熱交換器)が分岐し設置されている。また、海水処理として、汚損対策に海水電解液(次亜塩素酸ソーダ; 以下、「塩素」という。)を、腐食対策に硫酸第一鉄水溶液(以下、「鉄」という。)を微量連続注入している。なお、D/G 海水系統にのみ塩素を追加注入(以下、「追加塩素注入」という。)できる系統を設けているが、従来は未使用であった。

続いて、表-1 に各熱交換器の伝熱管材質並びに塩素や鉄の注入点から各機器までの到達時間と、機器出口での実測濃度(2020年6月時)を示す。

当該系統の伝熱管には白銅(C7060; 以下、「CuNi」という。)やアルミニウム黄銅(C6871; 以下、「CuAl」という。)等が使用されている。また、防汚効果により伝熱性能維持に寄与する塩素を取水海水に0.20mg/L(ppm)で注入するが、酸素や還元性物質等と反応・消費され、機器出口での残留塩素濃度は0.05ppm以下となる。さらに、鉄皮膜形成により銅系伝熱管の防食に寄与する鉄イオンを各機器への分岐前に注入(従来; 0.015ppm as Fe)するが、皮膜形成・維持に寄与する量は極僅かである。

なお、同じ銅系材料であっても、異常潰食が生じにくいCuNiは、CuAlと比較して鉄注入を必ずしも要しないことが知られている³⁾。

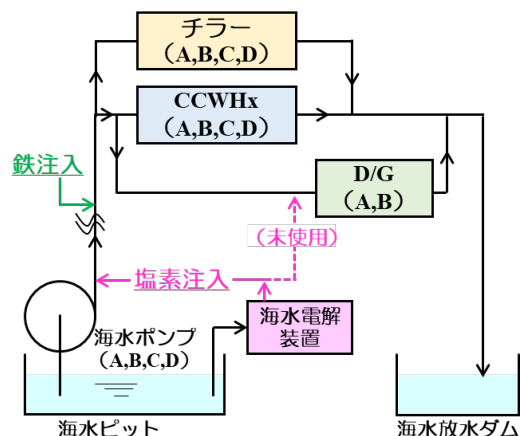


図-1 原子炉補機冷却海水系統の概要

表-1 熱交換器の伝熱管材質並びに海水処理状況

		CCWHx	チラー	D/G 熱交換器
伝熱管材質		CuAl	CuNi	CuNi, チタン
塩素	注入からの到達 時間(秒) ^{※1}	80	100	120
	出口残留塩素 濃度(ppm)	採水 不可	<0.05	≤0.05
鉄	注入からの到達 時間(秒) ^{※1}	10	30	50
	出口濃度 ^{※2} (ppm as Fe)	採水 不可	0.014	0.014

※1: 海水流量と配管設計図等から算出した値

※2: フィルタ(0.45μ孔)ろ過により懸濁鉄分を除いた濃度

2.2 海水処理の課題と適正化について

原子力発電所に設置されたD/Gは、重大事故等による外部電源喪失時に電源を供給する重要設備であり、複数の補機で構成されている。その補機の1つである空気冷却器(CuNi)は、過給機から供給される約160℃の圧縮空気を海水で冷却し、機関内シリンダへの空気充填効率等を高めることで、発電効率の向上・維持に寄与している。

伊方3号機D/Gにおいては、2017年6月の定期運転時に、空気冷却器の出口空気温度(以下、「吸気温度」という。)に上昇傾向が認められたため、伝熱管海水側の臨時清掃が実施された(図-2)。当該事象では、フジツボ等の大型海生生物による

伝熱管閉塞は認められず、冷却機能低下の原因は、管内面の生物皮膜や注入鉄の過剰付着と推察されたことから、海水処理による対応が求められた。

一方、生物皮膜等の汚損に効果的な塩素濃度は海域に加え季節の影響を受ける^{4,5)}とともに、当該系統には空気冷却器以外にも複数の機器が設置されていること、さらに鉄皮膜性状（鉄皮膜量や緻密性≡防食性）は鉄注入から機器までの到達時間や塩素濃度等の影響を受けるため⁶⁾、海水処理を変更するにあたっては、これらを考慮したうえで空気冷却器の伝熱性向上と、系統全体の防食性維持を両立できる条件を検討する必要があった。

そこで、我々は、伊方発電所構内に3号機前面海域から取水した海水を用いて任意の海水処理を再現できる「モデルチューブ試験装置」を作製・設置し、当該系統を模擬した条件下で伝熱管性状に与える海水処理の影響について調査を行った。

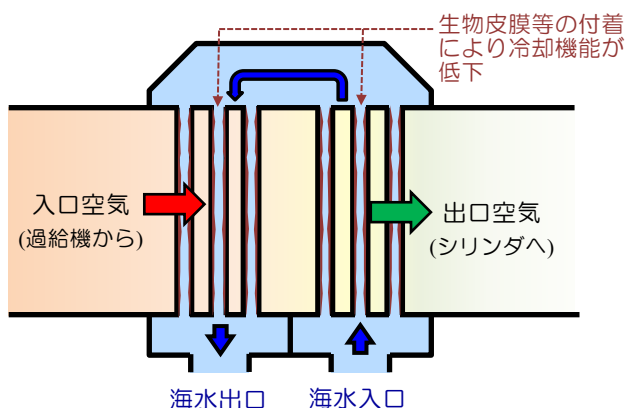


図-2 D/G 空気冷却器の概要

3. 実海水を用いたモデルチューブ試験による海水処理条件の適正化に係る調査

3.1 試験方法

(1) モデルチューブ試験装置の概要

図-3 にモデルチューブ試験装置の概要を示す。

当該装置は、発電所構内の既設装置から取水海水の一部を分取し、試験用伝熱管内に実機相当の管内流速 1.8m/s で連続通水が可能である。また、「塩素と鉄注入濃度【各薬品をポンプ注入】」や、「薬品注入点から伝熱管までの到達時間【注入点から伝熱管までの距離を接続ホースの長さで調整】」を任意に調整でき、最大4条件の海水処理を並行して行える。なお、薬品注入後の海水は3号機総合排水処理装置に移送し処理される。

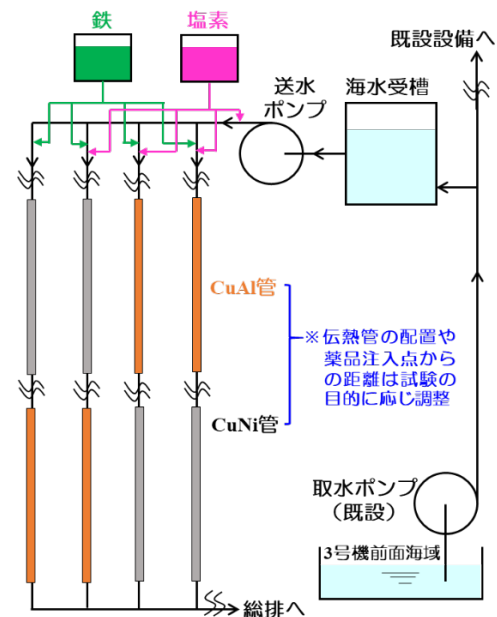


図-3 モデルチューブ試験装置の概要

(2) モデルチューブ試験

(a) 伝熱管性状に与える海水処理の影響に係る試験

本試験では、原子炉補機冷却海水系統において、鉄注入点からの距離が比較的近い CuAl (CCWHx) と CuNi (チラー) を想定し、伝熱管性状に与える海水処理条件の影響を評価した。

表-2 にモデルチューブ試験に供した CuAl と CuNi の化学組成を示す。

伝熱管には主要化学組成が実機と同等のものを選定し、鉄注入点から各管までの到達時間を 10～30 秒に調整した。また、実機伝熱管には鉄皮膜が形成・蓄積されていることを考慮し、表-3 の条件で各管に予め鉄皮膜を形成（以下、「予皮膜形成管」という。）させたうえで、以下の試験に用いた。

表-2 試験用伝熱管の主要化学組成

	化学組成 (weight %)			
	Al	Ni	Fe	Cu
CuAl (C6872)	1.9	0.22	< 0.05	Bal.
CuNi (C7060)	No.Data	10.2	1.6	Bal.

表-3 伝熱管の予皮膜形成条件

管出口残留塩素濃度 (ppm)	鉄注入濃度 (ppm as Fe)	処理期間 (日)
0 (無注入)	①0.050, ②0.075	①13, ②7

① 鉄注入濃度の影響

予皮膜形成管を対象に、表-4 に示す試験条件のとおり、管出口の残留塩素濃度を 0.05ppm に固定したうえで、鉄注入濃度 0～0.015ppm の範囲で 52 日間連続通水（2021/5/21～7/12）を行った後、伝熱管を回収し分析に供した。

表-4 試験条件（鉄濃度の影響）

試験条件	管出口残留塩素濃度 (ppm)	鉄注入濃度 (ppm as Fe)
①	0.05	0 (無注入)
②		0.005
③		0.010
④ (従来処理)		0.015

② 塩素濃度の影響

予皮膜形成管を対象に、表-5 に示す試験条件のとおり、鉄注入濃度 0.010ppm に固定したうえで、管出口の残留塩素濃度 0～0.20ppm の範囲で 50 日間連続通水（2021/7/26～9/14）を行った後、伝熱管を回収し分析に供した。

表-5 試験条件（塩素濃度の影響）

試験条件	管出口残留塩素濃度 (ppm)	鉄注入濃度 (ppm as Fe)
①	0 (無注入)	0.010
②	0.05	
③	0.10	
④	0.20	

(b) 実機海水処理条件の適正化に係る試験

本試験では、原子炉補機冷却海水系統を対象とした海水処理の実機適用を想定し、経験的に当該系統において伝熱性能の低下が認められる春から夏にかけての伝熱管性状の経時変化を、海水処理毎に比較・評価した。

試験は、鉄注入点から伝熱管（表-2）までの到達時間を実機と同等の CuAl (CCWHx) で約 10 秒、CuNi (D/G 空気冷却器) で約 50 秒に調整した。また、表-6 の条件で予皮膜形成を 7 日間（2022/5/9～5/16）実施した後、実機適用を想定するうえで現実的な表-7 の条件で 121 日間連続通水（2022/5/16～9/14）を行いながら、月 1 回の頻度で伝熱管を定期的に回収し分析に供した。

表-6 伝熱管の予皮膜形成条件

管出口残留塩素濃度 (ppm)	鉄注入濃度 (ppm as Fe)	処理期間 (日)
0 (無注入)	0.10	7

表-7 試験条件

試験条件	管出口残留塩素濃度 (ppm)	鉄注入濃度 (ppm as Fe)	対象	
			CuAl	CuNi
① (従来処理)	0.05	0.015	○	○
②	0.05	0.010	○	○
③	0.15	0.010	—	○

(3) 伝熱管の性状分析

回収した伝熱管の性状評価として、以下の分析を実施した。

(a) 付着物性状分析

① 生物皮膜量

伝熱管内面に形成された生物皮膜量は、伝熱性能と高い負の相関を示すことが知られている^{3,6)}。そこで、試験前後の伝熱管の質量 W および容積 V （管内が満水となる海水容積）の変化から、以下の計算により生物皮膜量 W_{fd} を求めた。

海水通水にともなう伝熱管の腐食減肉を考慮すると、伝熱管の質量変化 ΔW は、付着した生物皮膜質量 W_f と減肉質量 W_c から式【1】で、容積変化 ΔV は、生物皮膜容積 V_f と減肉容積 V_c から式【2】で表すことができる。ここで、伝熱管比重 d (CuAl: 8.40g/cm³, CuNi: 8.94g/cm³) と生物皮膜比重 1g/cm³（水分が主）は式【3】【4】であるから、これらの連立式【5】【6】と管内面積 S から、生物皮膜量 W_{fd} が得られる。また、経時的に生物皮膜量を比較することで、任意の期間での生物皮膜増加量を算出できる。なお、本計算においては、母材由来の酸化物（酸化皮膜）量が多いほど、生物皮膜量の算出結果に正の誤差を含む可能性がある。

$$\Delta W = W_f - W_c \quad \cdots \text{【1】}$$

$$\Delta V = V_c - V_f \quad \cdots \text{【2】}$$

$$W_c = dV_c \quad \cdots \text{【3】}$$

$$W_f = V_f \quad \cdots \text{【4】}$$

$$W_c = \frac{-d(\Delta V + \Delta W)}{d-1} \quad \cdots \text{【5】}$$

$$W_{fd} = \frac{\Delta W + W_c}{S} \quad \cdots \text{【6】}$$

② 鉄皮膜量

鉄皮膜量は、酸洗浄液（5%塩酸/0.5%インヒビター溶液）を用いて伝熱管内をブラシ洗浄し、回収した溶液と鉄濃度より得た管内面の全鉄量から、未使用管を対象に同処理を行い得た母材由来の鉄量を減算して求めた。

(b) 伝熱性能

伝熱性能は、電気加熱法（電気化学協会・海生生物汚損対策懇談会制定「復水器引抜管汚れ係数測定方法」）により伝熱管の熱貫流率を測定し、未使用伝熱管に対する比率として求めた。

(c) 付着物構造評価

管内面における生物皮膜や鉄皮膜等の付着物状態（構造）は、伝熱管を樹脂包埋・研磨処理後、電子線マイクロアナライザによるエネルギー分散型X線分光分析により得た、管断面部の元素分布（MAP）像より評価した。

3.2 試験結果および考察

(1) 伝熱管性状に与える海水処理条件の影響

予皮膜形成以降の伝熱管性状の変化と海水処理条件の関係のうち、生物皮膜増加量との関係を図-4に、鉄皮膜増加量との関係を図-5に示す。

(a) 生物皮膜増加量

生物皮膜量の増減は、両材質ともに鉄注入濃度よりも塩素濃度の影響を大きく受け、既形成の生物皮膜に対して管出口の残留塩素濃度 0.05～0.10ppm で増加抑制（維持）効果が、0.20ppm で減少効果が認められ、試験海域等は異なるが既報の調査とも比較的一致した結果^{4,5)}であった。また、CuAl は、CuNi と比較して塩素の影響度が大きいことに加え、実機相当の低残留塩素濃度（0.05ppm）下では、鉄注入濃度 0.015ppm のみ 0.010ppm 以下の処理と比較して生物皮膜量の増加が認められた。この原因は明確には不明だが、低塩素濃度下では、注入された鉄イオン（還元性物質）濃度が高いほど消費される塩素の割合も多くなるため、特に塩素の効果度が大きい CuAl の生物皮膜形成に影響を与えた可能性が考えられる。

(b) 鉄皮膜増加量

鉄皮膜量の増減は、両材質ともに鉄と塩素濃度双方の影響を大きく受け、それぞれ鉄注入濃度の上昇にともない鉄皮膜増加量も多くなるが、鉄注入濃度 0.010ppm 以上では増加量に差がなかった。

また、CuAl では、鉄無注入を除き今回の試験条件の範囲では鉄皮膜量を増加傾向に維持できたが、CuNi では鉄無注入下でも鉄皮膜量の増加が認められた。これは、CuNi 自体に 1～2%の鉄を含むため、酸化皮膜内に僅かながら鉄が存在する可能性や、海水中の鉄以外に母材側からの鉄供給により皮膜形成が維持されたものと推察される。なお、既報⁶⁾のとおり、両材質ともに塩素濃度の上昇は鉄皮膜形成に対して抑制的に働くことを確認した。

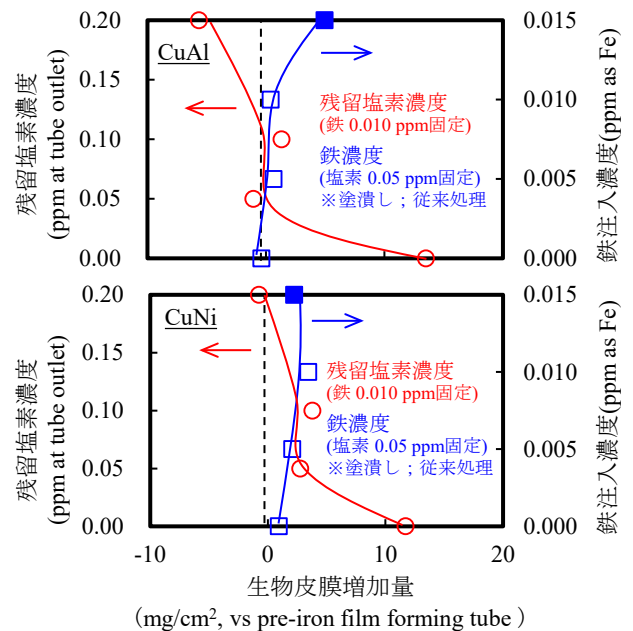


図-4 生物皮膜増加量と海水処理条件の関係

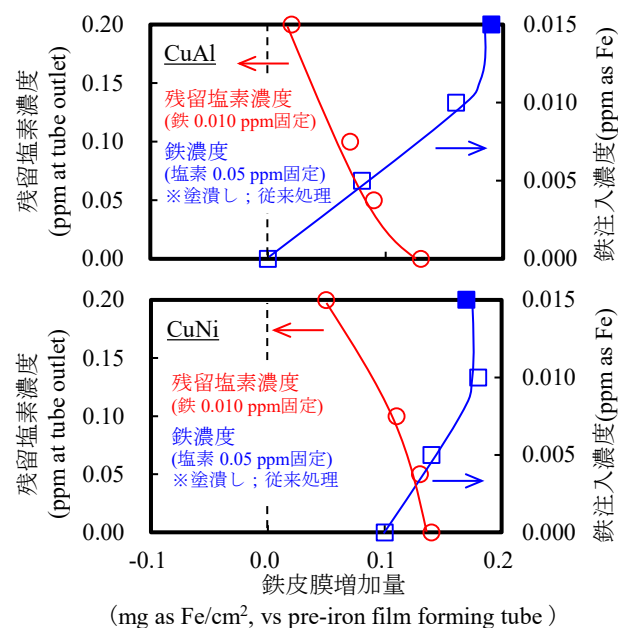


図-5 鉄皮膜増加量と海水処理条件の関係

以上の結果から、材質に関わらず生物皮膜量は塩素の、鉄皮膜量は鉄と塩素濃度双方の影響を受けるが、その影響度は材質間で異なることが判った。CCWHx とチラーを想定した場合、系統全体（流量 4,220t/Hr）の塩素注入濃度を従来よりも上昇させる処理は生物皮膜量の低減には有効だが、CCWHx の防食面で不利となることや、環境負荷の面も考慮すると現実的ではない。一方、塩素注入濃度は従来のまま、鉄注入濃度を 0.010ppm に低減する処理では、両機器の防食性を維持しつつ CCWHx の生物皮膜量を低減できる可能性を得た。

(2) 実機を想定した海水処理の適正化に係る調査

各海水処理における伝熱管性状（伝熱性能・生物皮膜量・鉄皮膜量）の経時変化について、CuAl の結果を図-6 に、CuNi の結果を図-7 に示す。また、図-8 には各管断面部の MAP 像を示す。

(a) CCWHx を想定した海水処理の比較

CCWHx を想定した CuAl の伝熱性能は、鉄注入濃度 0.015ppm では 8 月に 80% まで、0.010ppm では 83% まで低下した。一方、鉄注入濃度低減時は、伝熱性能の低下速度が緩やかで、生物皮膜量も少なく維持できており、前項の結果と併せても鉄注入濃度の低減は CCWHx の伝熱性能維持に一定の効果を有することを確認した。さらに、鉄皮膜量は、注入濃度に応じて付着速度に差が認められたが、飽和皮膜量や皮膜厚さは同程度で、皮膜の部分欠陥等も認められておらず、鉄注入濃度低減による防食性への悪影響はないものと推察される。

(b) D/G 空気冷却器を想定した海水処理の比較

D/G 空気冷却器を想定した CuNi の伝熱性能は、従来処理では 8 月に 77% まで低下したが、鉄注入濃度低減により 81%、さらに塩素濃度上昇時は 86% と高く維持できた。また、鉄注入濃度低減かつ塩素濃度上昇時は、生物皮膜量の増加を顕著に低減でき、鉄皮膜量等も処理間で差がないことから、空気冷却器の伝熱性能維持には、特に塩素濃度の上昇が効果的であることを確認した。なお、CuNi では、CuAl と比較して母材表面に厚く均一な酸化皮膜層が形成されており、局部腐食が発生しづらい一因と推察されるが、酸化皮膜と鉄皮膜の間には生物皮膜を含む等、密着性の悪い 3 層構造となっており、このような材質間での付着物構造の違いが、海水処理に対する伝熱管性状の挙動差に影響した可能性が高い。

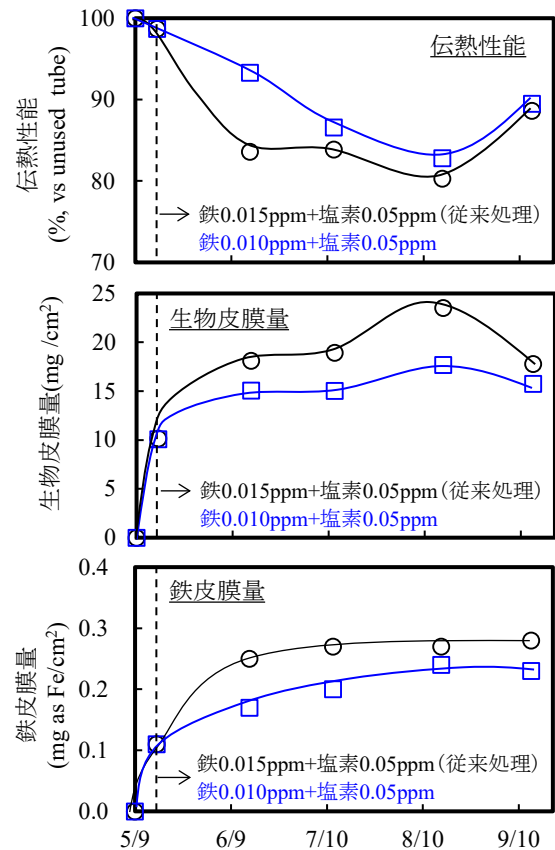


図-6 CuAl 性状の経時変化と海水処理の関係

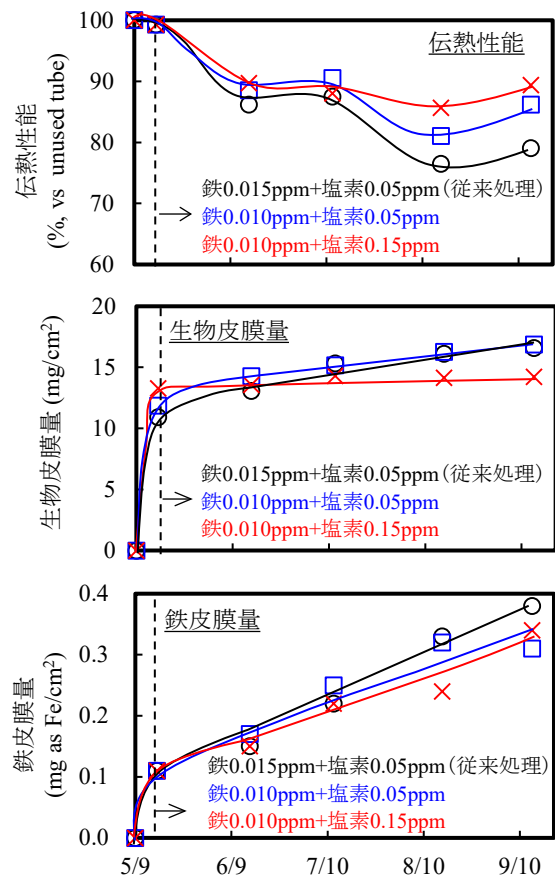
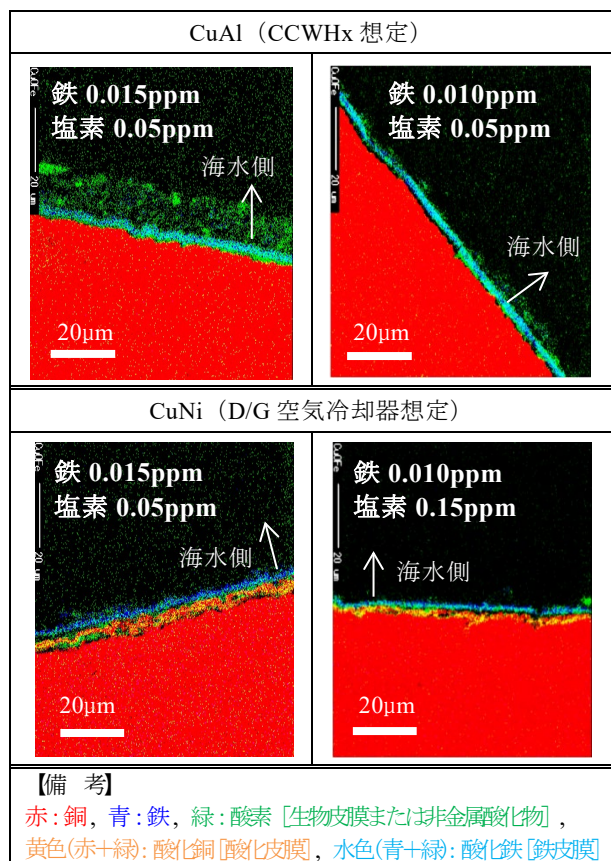


図-7 CuNi 性状の経時変化と海水処理の関係



以上の結果から、当該系統に設置された各熱交換器の伝熱性向上と防食性維持を両立するうえでは、鉄注入濃度を従来の 0.015ppm から 0.010ppm に低減するとともに、これまで未使用であった D/G 海水系統（海水流量 680t/Hr）への追加塩素注入系統を使用し、空気冷却器のみ局所的に残留塩素濃度 0.15ppm 以上とする海水処理が適正と考えられる。なお、実機と同様に、本試験においても春から夏（5～8月）にかけて伝熱性能の低下が認められたが、その後自然に回復しており、この推移は鉄皮膜量よりも生物皮膜量の挙動と良く一致している。従って、当該系統の夏季における伝熱性能低下の原因は、主に生物皮膜形成によるものと推察される。

4. 原子炉補機冷却海水系統を対象とした海水処理の適正化とその効果について

原子炉補機冷却海水系統においては、モデルチューブ試験の結果を基に、プラント状態を考慮しながら、段階的に海水処理の変更を行った。

表-8 に当該系統の海水処理の変遷を、図-9 に D/G 空気冷却器の伝熱性能の目安となる吸気温度

と海水温の差の年間推移について、海水処理条件毎に整理した結果を示す。なお、図-9 には、空気冷却器の設計条件並びに吸気温度と海水温の差より求めた、伝熱性能も併せて示す。

3-15 サイクル運転における従来処理では、特に 6～8 月にかけて吸気温度と海水温の差が 20℃以上となっており、伝熱性能が 70%前後まで低下していたと考えられる。

一方、3-16 サイクル運転では、D/G 海水系統への追加塩素注入により、生物皮膜形成が抑制されたことで同時期の吸気温度と海水温の差を 17℃以下（伝熱性能 85%前後）に、3-17 サイクル運転では、追加塩素注入を継続しつつ鉄注入濃度を 0.010ppm に低減させたことで、過剰な鉄付着も抑制され、年間をとおして吸気温度と海水温の差を 15℃以下（伝熱性能 90%前後）に維持できた。さらに、定期点検時に測定した CCWHx の鉄皮膜量は、鉄注入濃度低減前後で差がなく、現在まで渦電流探傷試験等でも伝熱管の健全性に異常が認められていないことから、海水処理の変更が当該系統の防食性に悪影響を及ぼさないことを確認した。なお、鉄注入濃度低減により、硫酸第一鉄の薬品費や溶解作業頻度の低減等、副次的な効果も得られている。

以上の結果から、モデルチューブ試験の結果を基に立案した海水処理条件の実機適用により、課題であった D/G 空気冷却器の伝熱性能向上と系統全体の防食性維持の両立が成されたことを確認した。

表-8 3号機原子炉補機冷却海水系統における海水処理の変遷（3-15 サイクル運転以降）

	サイクル運転		
	3-15	3-16	3-17
運転期間	2018/10～ 2019/12	2021/12～ 2023/2	2023/6～ 2024/7
海水ポンプ出口 塩素注入濃度 (ppm)	0.20	0.20	0.20
D/G 追加塩素 注入濃度(ppm)	0	≥0.15	≥0.15
鉄注入濃度 (ppm as Fe)	0.015	0.015	0.010

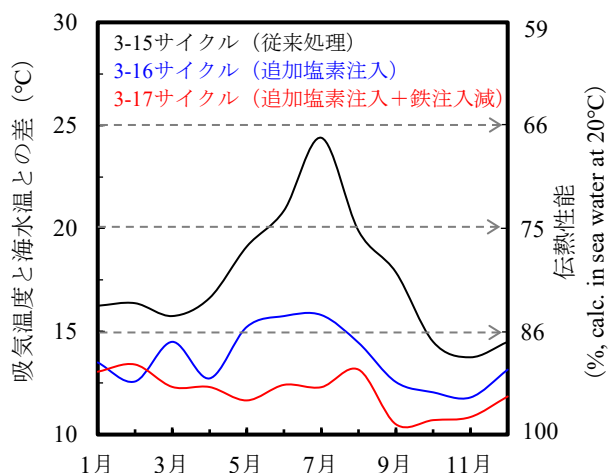


図-9 D/G 空気冷却器における吸気温度と海水温の差並びに伝熱性能の推移

5. まとめ

伊方3号機海水系統設備の保守・管理の高度化に係る取り組みの一環として、原子炉補機冷却海水系統を対象とした海水処理条件の最適化を目的に、発電所構内にて実海水と伝熱管を用いたモデルチューブ試験を実施した。

その結果、当該系統の伝熱管材質や機器構成・配置等を考慮したうえで、伝熱性能向上と防食性維持を両立するには、取水海水の塩素注入濃度は従来の0.20ppmのまま、鉄注入濃度を0.010ppmに低減するとともに、これまで未使用であった追加塩素注入系統を使用し、D/G海水系統のみ局所的に残留塩素濃度を0.15ppm以上に上昇させる処理が適正と判断した。さらに、実機プラントデータから、当該処理の実機適用により、課題であったD/G空気冷却器の伝熱性能向上と系統全体の防食性維持の両立が成されたものと評価した。

【謝辞】

本研究を実施するにあたり、ご協力頂いた関係各位に深謝の意を表します。

【参考文献】

- 1) 電気化学協会海生生物汚損対策懇談会：「海生生物汚損対策マニュアル」，技報堂出版（1911）
- 2) 火力原子力発電技術協会：「発電所海水設備の汚損対策ハンドブック」，恒星社厚生閣（2014）
- 3) 藤井哲、川邊允志：「復水器－理論と実際－」，愛智出版（2001）

- 4) 古田岳志，野方靖行，石井晴人：「模擬管路を用いた付着生物に対する塩素注入効果の評価」，火力原子力発電，Vol.67 No.1（2016）
- 5) 古田岳志，野方靖行，小林卓也，石井晴人：「模擬管路試験法による次亜塩素酸ナトリウム溶液と海水電解液との防汚効果の比較」，日本マリンエンジニアリング学会誌，第54巻 第6号（2019）
- 6) 火力原子力発電技術協会：「復水器及び復水器管管理ハンドブック」（2005）