



軽水炉内における一次冷却水の放射線 分解水質評価に関する研究

平成25年度安全研究センター成果報告会

平成26年1月15日(水)

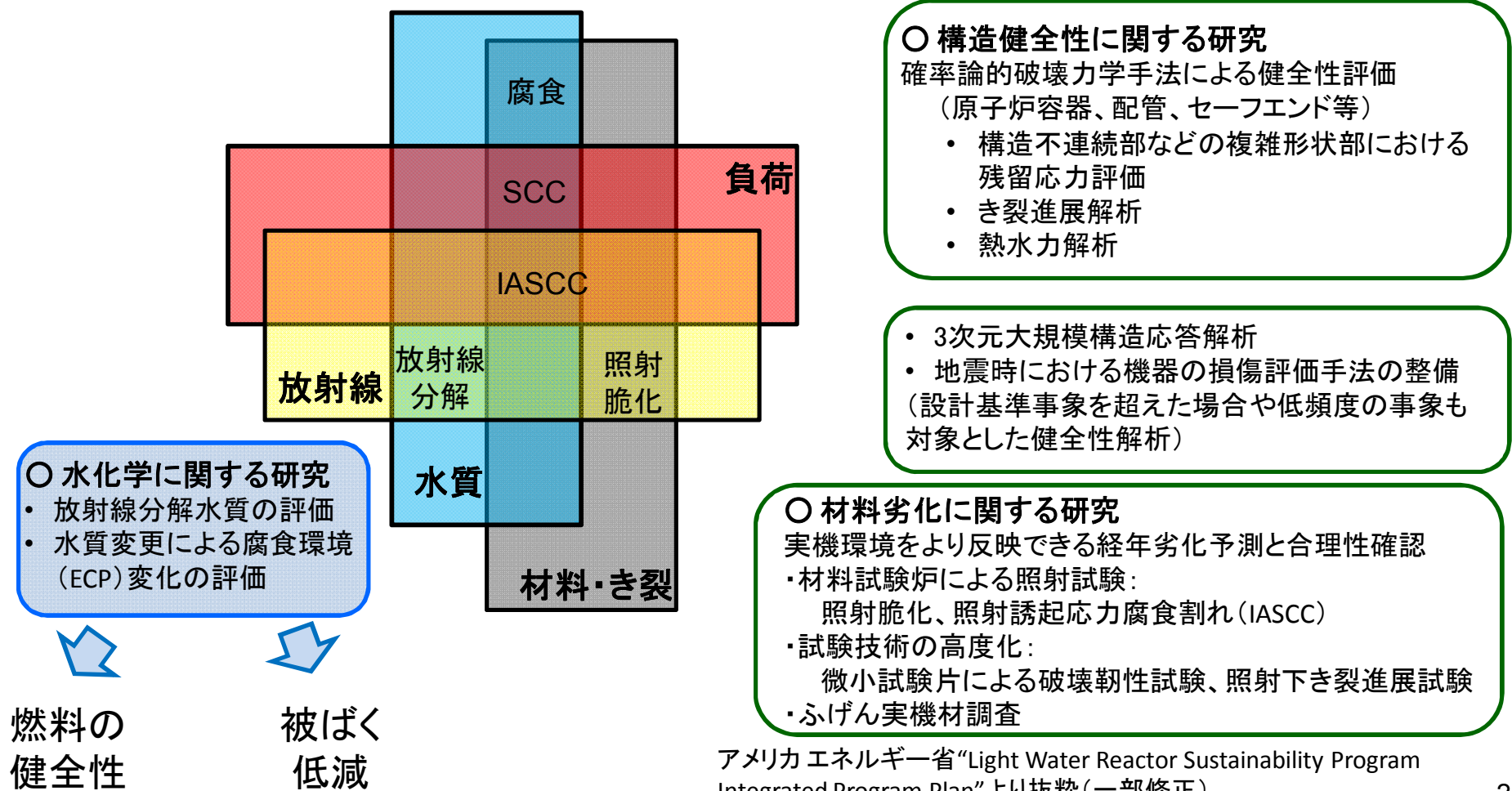
端 邦樹

軽水炉長期化対応研究ユニット
材料・水化学研究グループ

本報告の一部は、原子力規制庁(当時、原子力安全・保安院)からの委託による「軽水炉燃材料詳細健全性調査」の一環として実施したものである。

安全研究センターにおける 原子炉構造材料に関する研究

目的: 軽水炉の運転期間延長認可、高経年化対策に関する技術的妥当性の規制判断等に資する



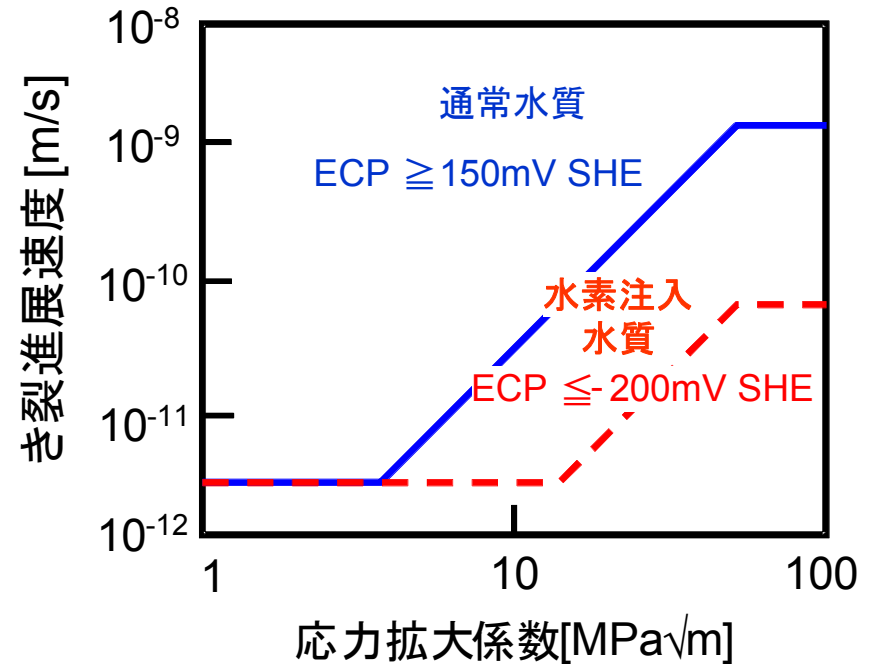
軽水炉の水化学を取り巻く状況

沸騰水型軽水炉(BWR)における水化学管理

- 炉内の腐食環境を緩和するため、水素注入水質(HWC)を適用し、炉内各部位における水素注入の効果を腐食電位(ECP)によって評価



- HWC環境下のECP、き裂進展速度の関係は維持規格に示されている
- 原子力学会では、維持規格適用のため、水素注入量の設定や炉内のECPを確認する方法を標準化する目的で「HWC標準」の策定が進められている



日本機械学会「発電用原子力設備規格 維持規格」より

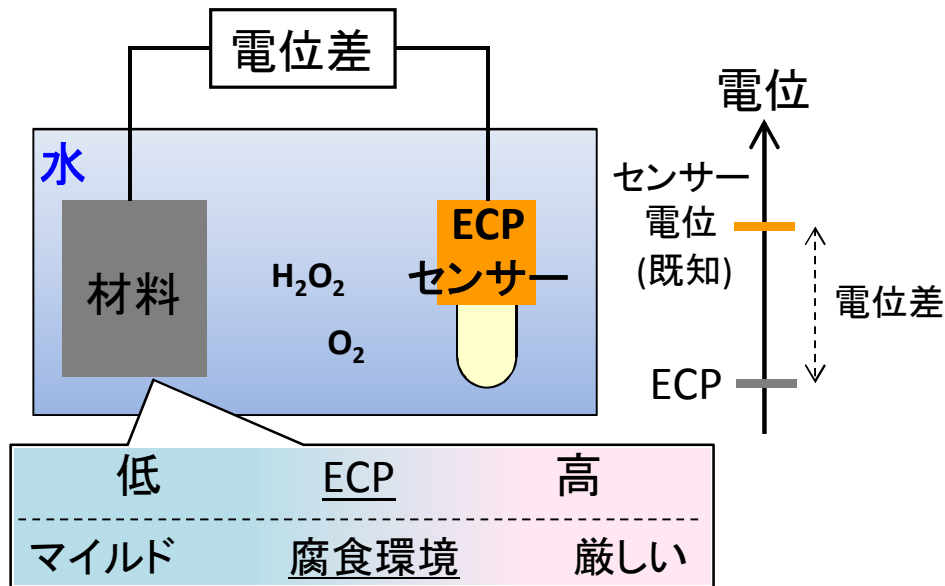
冷却水への海水流入

- H23.5 浜岡5号機における原子炉停止・減圧操作中の海水流入
- 復水器の伝熱管の破損により約400 m³の海水が流入
- 塩分除去作業はH24年度に終了し、現在は炉内点検に向けた作業が進められている

原子力規制庁ホームページ「第1回浜岡原子力発電所5号機の海水流入事象に関する監視・評価検討会」より

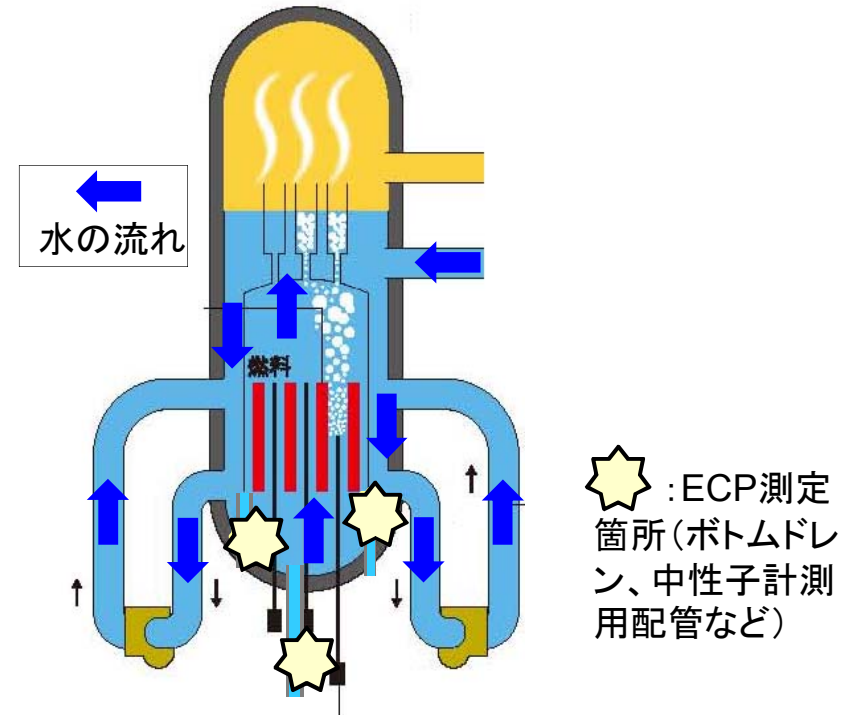
腐食電位 (ECP)

ECPの測定



- ECPは材料の腐食環境を電気化学的に示した値
- 水の放射線分解によって発生する過酸化水素、酸素等の酸化剤の濃度によって決まる
- 腐食環境をIn-situに評価できる

炉内のECP評価



限られた部位でのECP測定 (直接測定)

低い線量率での測定値のみ

プラント全体 (高線量域) のECP評価 (解析評価)

高線量の部位のECPは解析による外挿

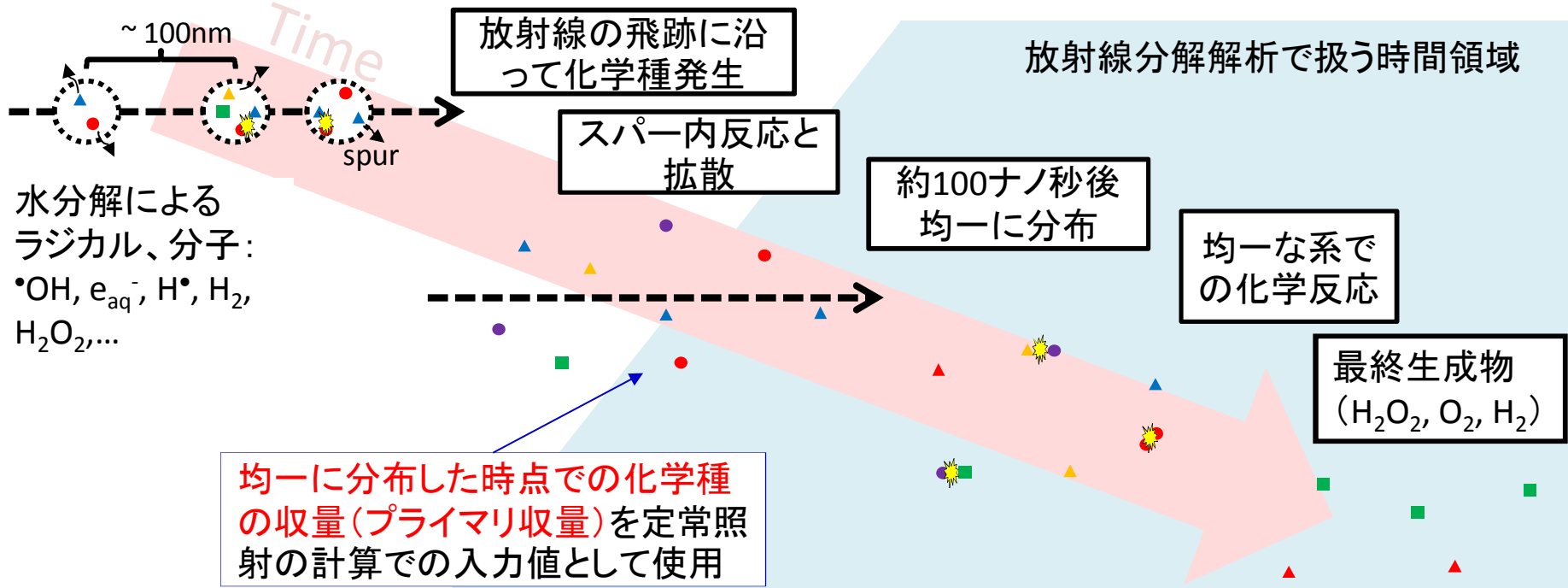
解析評価技術の向上が重要

研究の目的

- 炉内腐食環境評価の妥当性判断、HWC標準等の規格の技術評価に必要な知見を得るため、幅広い条件での照射試験による水化学データ取得を計画
 - ECP測定データと合わせた水質データを取得するため、試験環境下での水質を解析的に評価する
 - ⇒ 放射線分解解析・ECP解析コードの開発・検証

- 放射線分解解析コードの塩水系への活用
 - 海水や塩水の放射線分解挙動に関する先行研究は少なく、照射下塩水の腐食への影響などは十分に理解されていない
 - ⇒ 塩水の放射線分解挙動把握のための基礎データの取得・評価
 - 塩水の放射線分解で生成する酸化剤による腐食環境を明らかにし、炉内への海水流入等が起こった際の構造材料への影響を評価するための知見を得ることを目指す。

水の放射線分解解析コードの開発



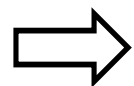
放射線分解解析コード

$$\frac{dc_i}{dt} = G_i D - \sum k_{ij} c_i c_j + \sum k_{kl} c_k c_l$$

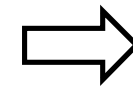
解析に必要なパラメータ

- c_x : 化学種xの濃度
- D : 線量率
- G_x : 化学種xのプライマリ収量
- k_{xy} : 化学種xとyの反応の速度定数

生成物濃度の時間変化 = 放射線のエネルギーによって生成する量(濃度)
+ 二次反応によって減衰・生成する量(濃度)

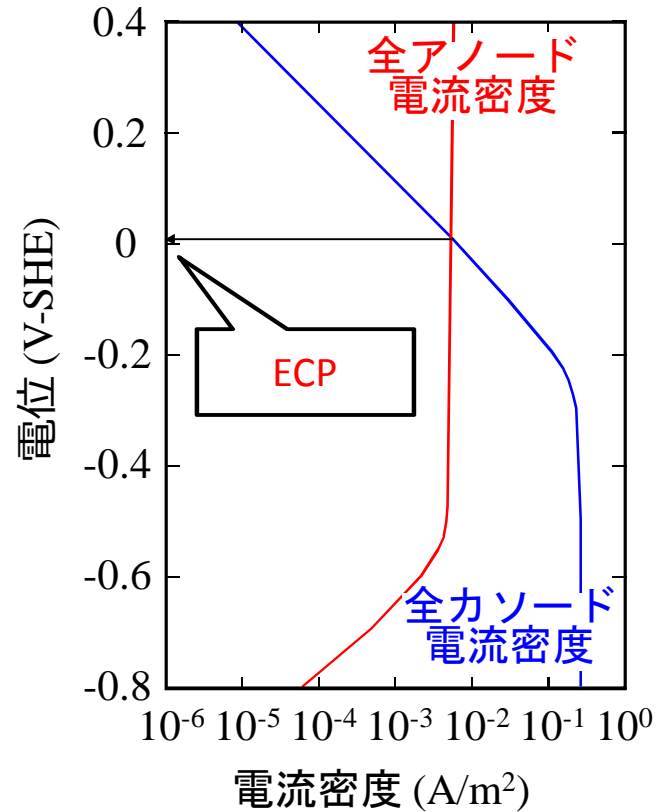
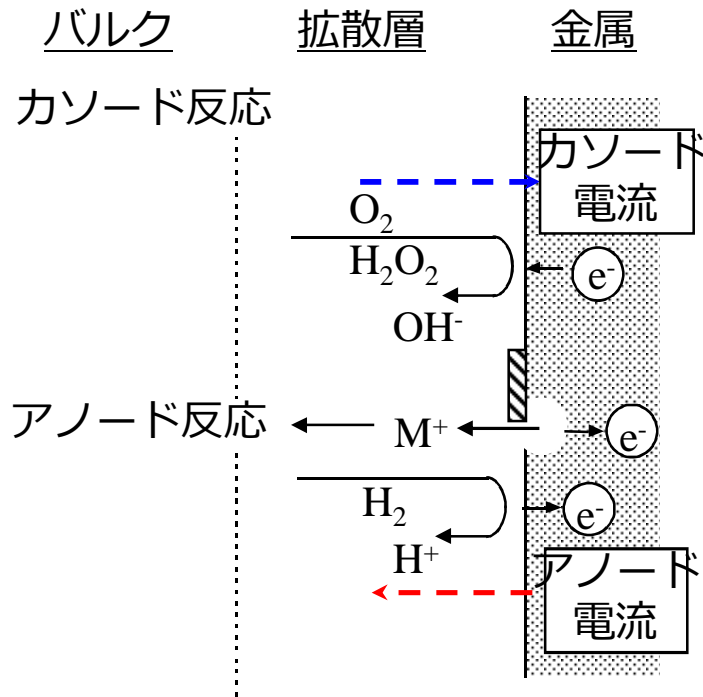


最終的なH₂O₂, O₂の濃度を評価



ECPを評価

ECP解析コードの開発



材料表面における過酸化水素や酸素の還元反応(カソード反応)で生起するカソード電流とステンレス及び水素の酸化反応(アノード反応)によって生起するアノード電流が釣り合う電位を計算

$$I_A(\varphi) + I_C(\varphi) = 0$$

$I_A(\varphi)$ 全アノード電流密度

$I_C(\varphi)$ 全カソード電流密度

既往の研究成果を用いた検証

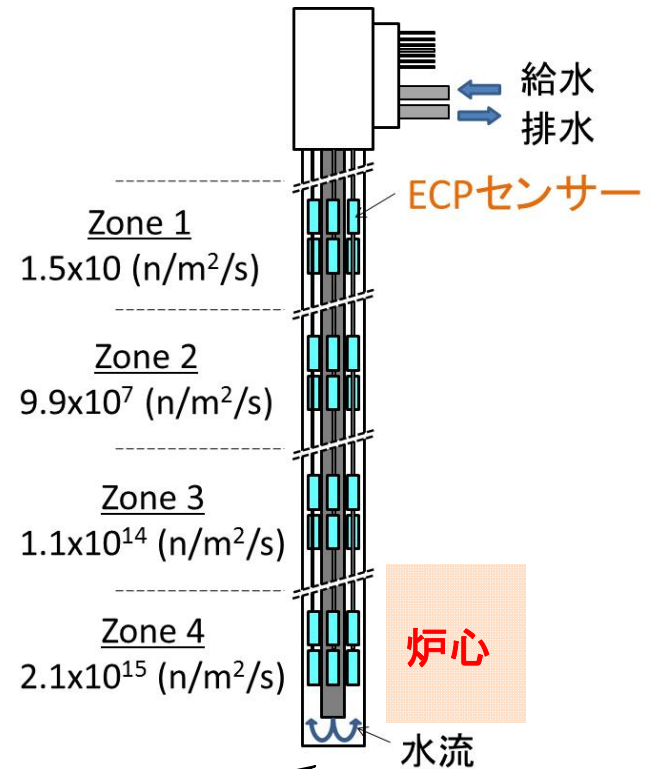
照射下ECP測定データは報告が限られており、系統立った試験条件の下に得られたデータは極めて少ない

チェコ LVR-15炉で行われたECPセンサーの性能試験データ

- 低線量率～BWR炉心シュラウド相当の線量率においてECPを測定
- 3種類のECPセンサーを使用
- 水素注入有/無の測定データを取得

使用されたECPセンサー

| 名称 | 使用可能環境 |
|----------|----------------|
| 白金型 | 水素注入 |
| ジルコニア型 | 水素注入/ 水素注入無 |
| Ag/AgCl型 | 水素注入/ 水素注入無 |

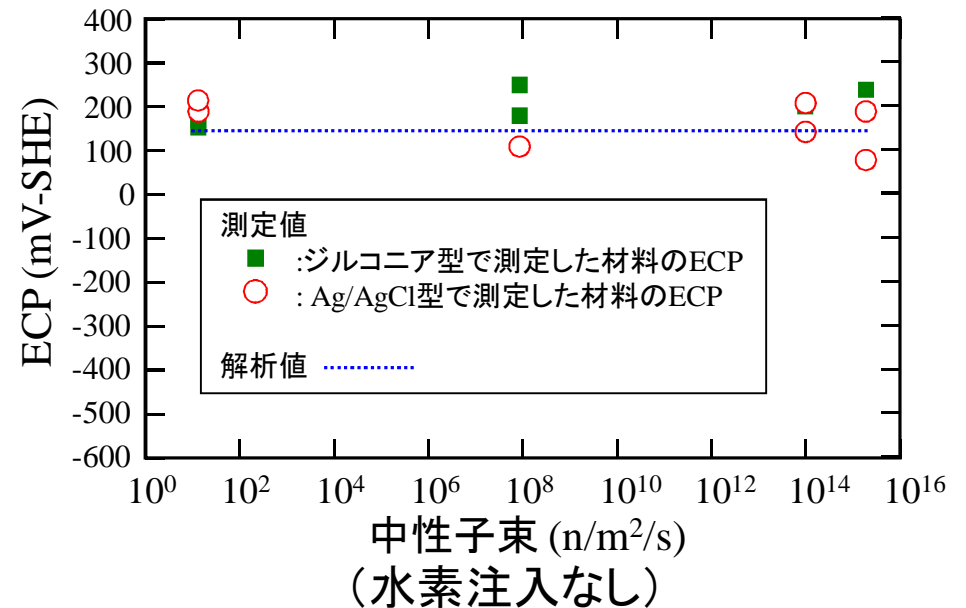
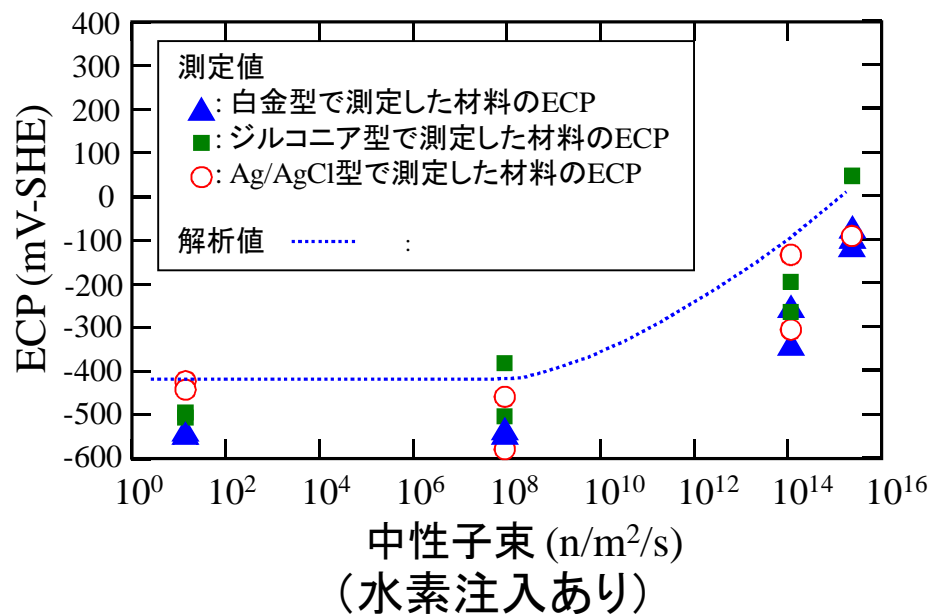
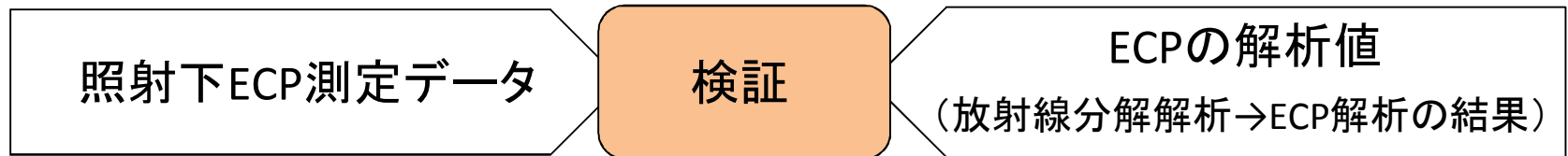


BWR炉心
シュラウドに相当

照射キャプセル

解析コードの検証

照射下ECP測定(実験)データに基づく解析コードの検証

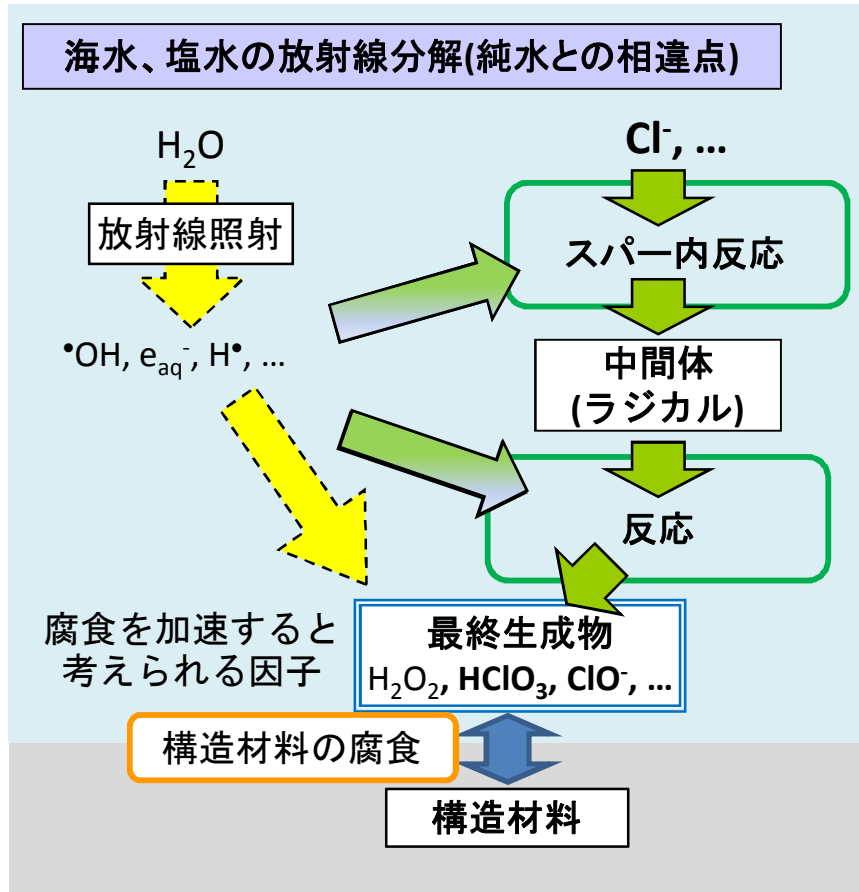


照射下におけるECP測定値と計算値の比較

ECP解析結果は、線量率の変化(場の変化)に応じたECPの変化を良く再現

解析コードを炉内環境の評価の判断に適用していくには、より広範囲の線量率、水質条件におけるECP, H₂O₂, O₂, H₂の系統的なデータが必要

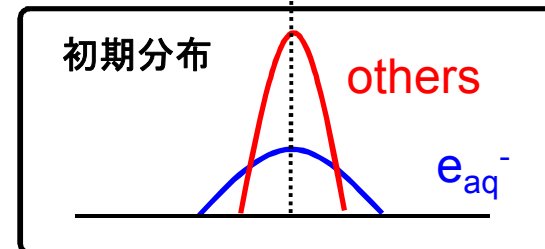
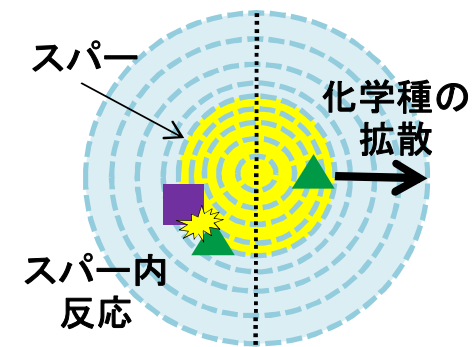
塩水の放射線分解解析コード



塩分存在下の放射線分解

- スパーク内反応への塩化物イオンの寄与
- 塩化物イオン等に由来する化学種(ラジカル等)や水分解化学種の反応

純水の系とは異なるプライマリ収量のデータセットが必要

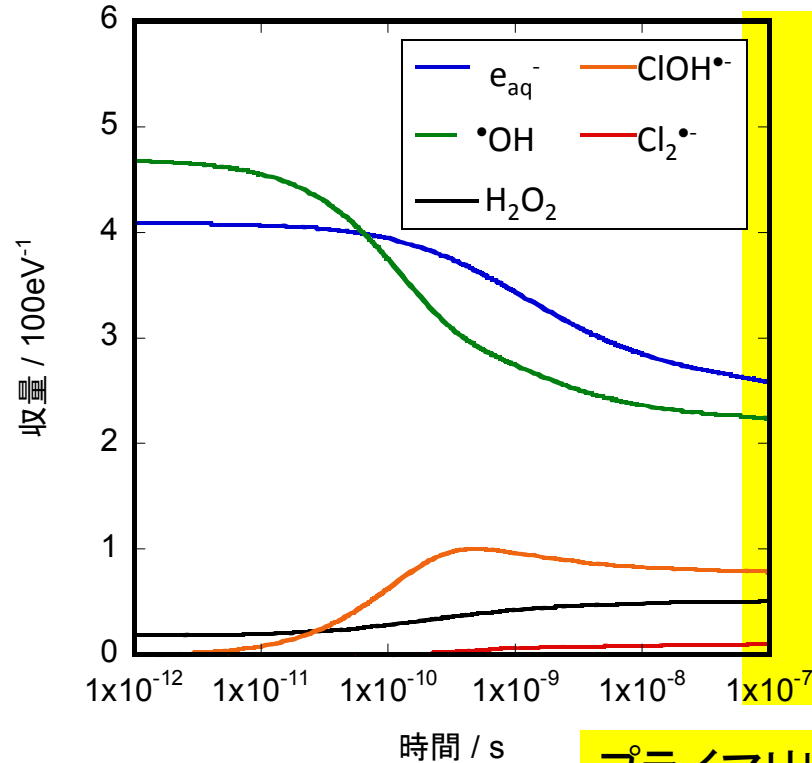


- Cl^- の化学反応式^[1]をコードに追加
- ガンマ線照射下のスパーク内反応をモデル化^[2]
スパーク内外を複数の領域に分割し、領域毎に濃度勾配をつけた化学種の初期分布及び領域間での拡散を考慮

[1] M. Kelm, FZKA6977 report, 2004. [2] S. Yamashita, et al. Free Radical Res. 46(7) 861-871 (2012).

収量の時間変化の計算結果

NaCl 0.5 M, pH7, O₂なし



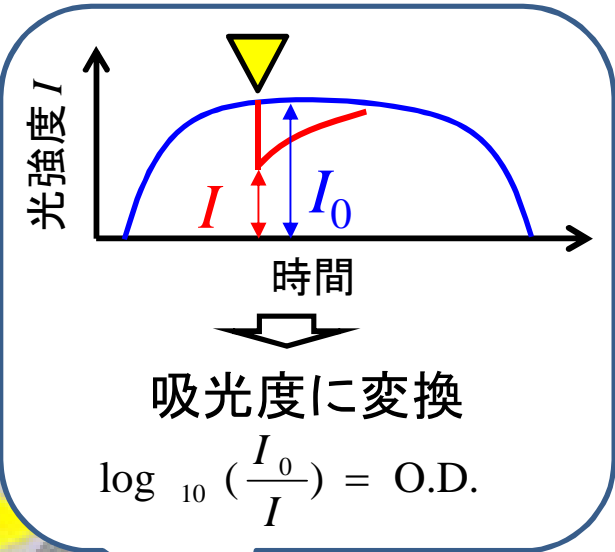
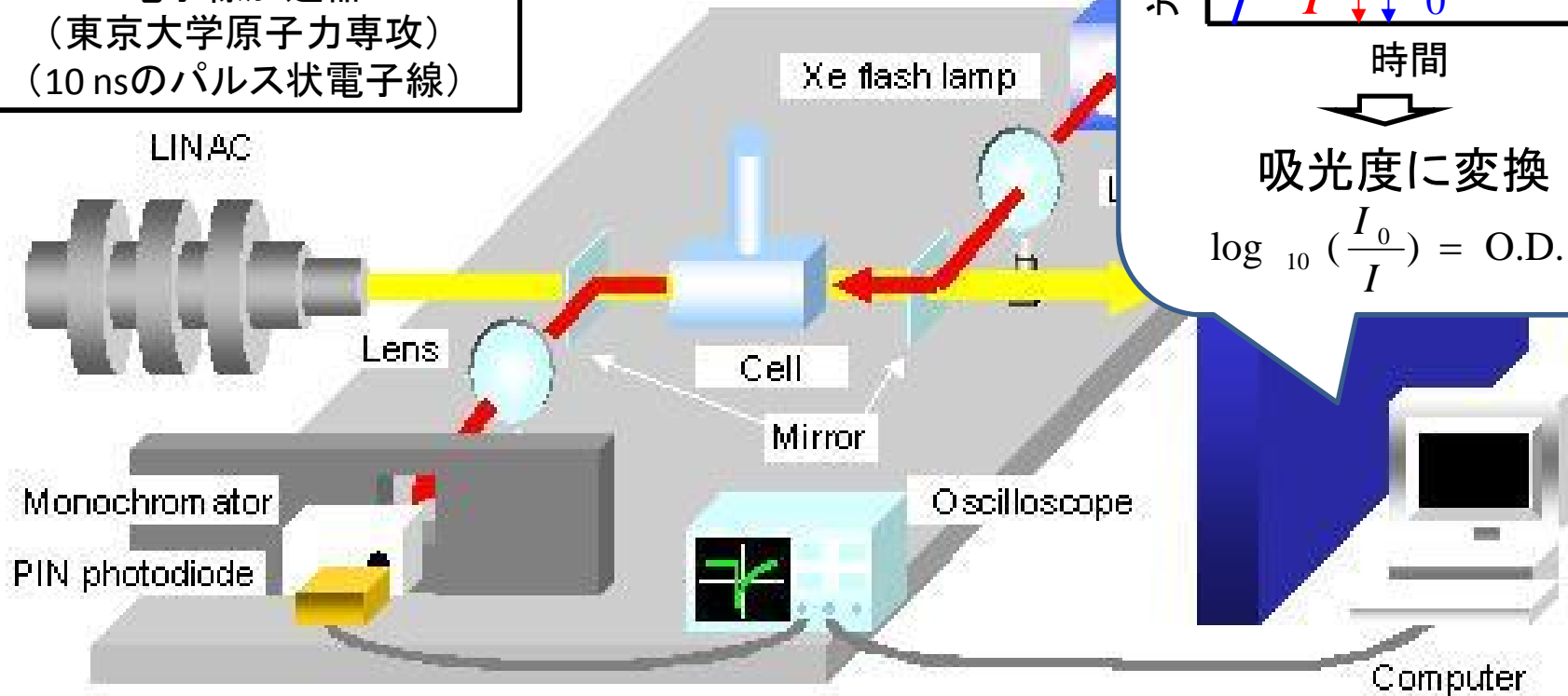
| 0.5 M NaClの プライマリ収量 | | | |
|-------------------------------|------|-------------------------------|------|
| e _{aq} ⁻ | 2.58 | H ₂ | 0.55 |
| H [•] | 0.48 | Cl ₂ ^{•-} | 0.11 |
| H ⁺ | 3.55 | ClOH ^{•-} | 0.79 |
| •OH | 2.24 | - H ₂ O | 4.16 |
| OH ⁻ | 1.08 | - Cl ⁻ | 1.01 |
| H ₂ O ₂ | 0.51 | | |

海水相当濃度のNaCl水溶液の放射線分解におけるプライマリ収量を取得

検証のためのパルスラジオリシス実験

短寿命のラジカルを直接観測し、計算結果を評価する

電子線加速器
(東京大学原子力専攻)
(10 nsのパルス状電子線)



- 試料水溶液に10nsの電子線パルス照射
- 照射と同期させたフラッシュランプの白色光を試料に通し、照射直後の光吸収の時間変化をオシロスコープで検出 → 高時間分解能の吸光測定
- 照射によって生じる物質の生成分解挙動を測定

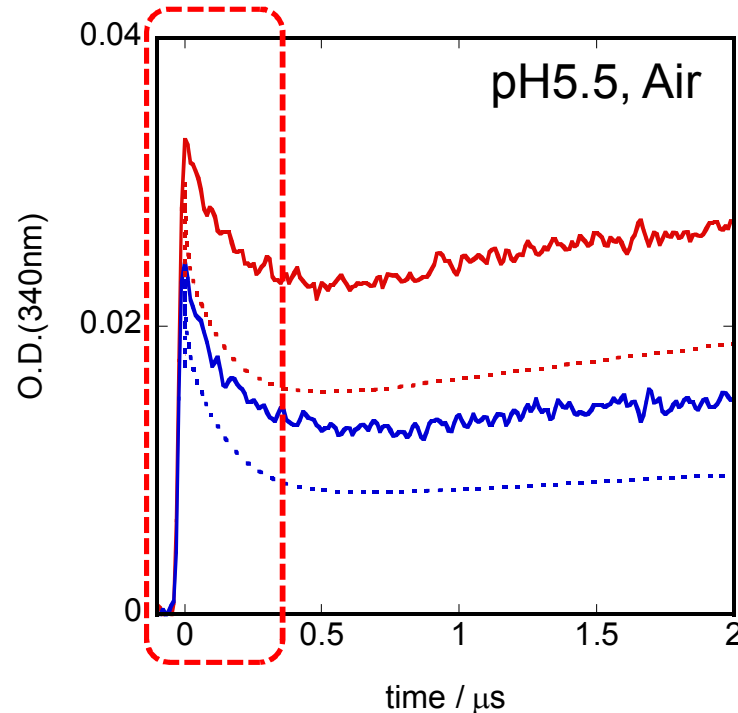
パルスラジオリシス実験結果との比較

実線: 実験、破線: 計算 (収量→吸光度(O.D.)に変換※)

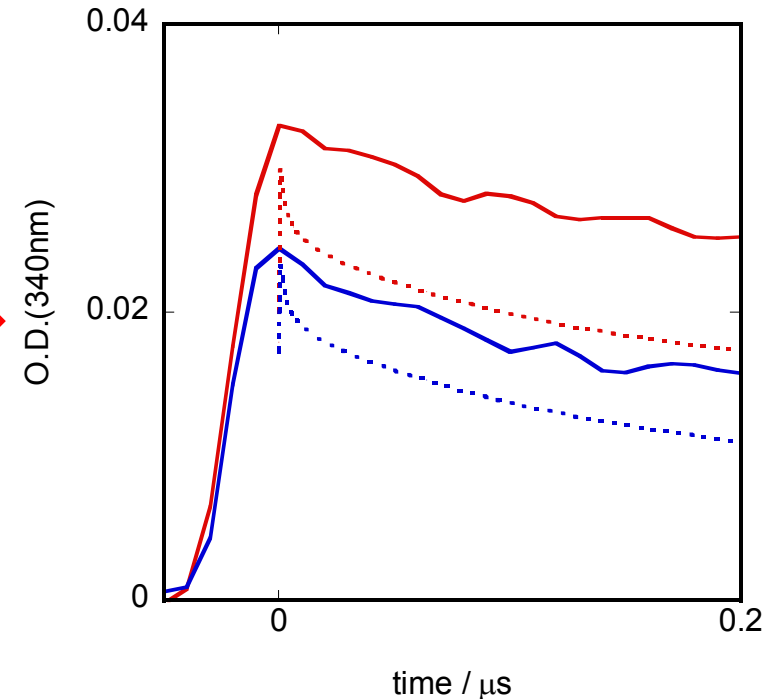
[NaCl] = 0.5 M (赤), 0.25 M (青)

※ $O.D. = \epsilon c l$ ϵ : モル吸光係数
 l : 光路長

$c = \alpha \rho G D$ α : 係数
 ρ : 溶液密度



拡大



- $t \cong 0$: 解析結果は実験結果をほぼ再現
- マイクロ秒の時間領域: 解析結果 < 実験結果

パラメータの感度解析を行ったところ、NaCl系の反応速度定数の中に計算結果に大きな影響を与える速度定数があることを確認
→速度定数を再測定し、既存のデータセットの見直しを行う

まとめと今後の展開

現在までに、

- 炉内腐食環境評価の妥当性判断や規格の技術評価に資するデータ取得を目的とした照射試験を計画
 - ・ 炉内のECP評価に必要な解析コードの開発と検証
- 照射下塩水の放射線分解に関する基礎データを取得するため、解析コードを塩水系に展開し、プライマリ収量の評価を実施

今後

- 試験炉を用いた照射試験を開始し、系統的なデータの取得を行う
- NaCl系の反応速度定数等のデータの再測定を行い、信頼性のある照射下塩水の放射線分解基礎データを整備する
 - ・ 照射下塩水が構造材料に与える影響を評価するための知見を得ることを目指す。