

JAEAにおける1F関連技術開発の状況

－海水と放射線が材料に与える影響に関する検討－

平成25年3月8日
於：電力中央研究所狛江地区

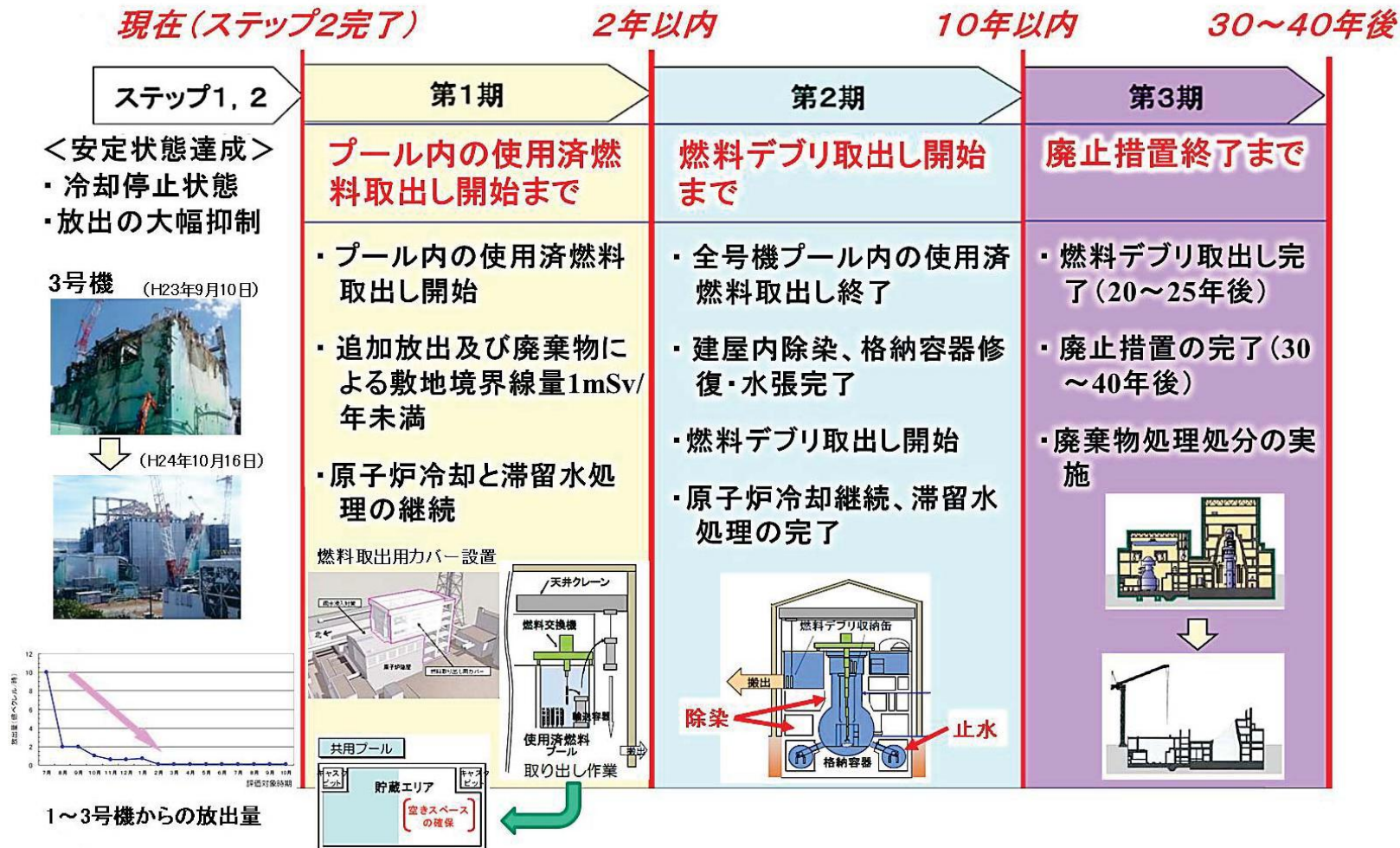
日本原子力研究開発機構
原科研福島技術開発特別チーム
塚田 隆

参考資料：「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置技術に係る原子力機構の取組み」2012年版
URL：<http://www.jaea.go.jp/fukushima/pdf/20121206-02.pdf>

2011年3月11日の大震災と1F原発事故から2年を経ようとしています。この間多くの方々がそれぞれの立場におかれ多大の努力と苦労を重ねられたことに深く敬意を表します。

原子力機構(JAEA)においては、事故直後から学会関係等の活動に多くのスタッフが協力しつつ、同年12月に設置された政府・東京電力中長期対策会議により策定された中長期ロードマップに基づき、各種プロジェクトに係る研究・技術開発を実施している。2012年4月にはJAEAの3拠点(原科研、大洗研、核サ研)に「福島技術開発特別チーム」が設置され活動が強化された。今回は、原科研特別チームが実施している腐食及び水化学への放射線影響に関する研究活動概要を紹介する。

廃止措置等に向けた中長期ロードマップ



東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機の廃止措置等に向けたロードマップ

東京電力(株)福島第一原子力発電所1~4号機は、冷温停止状態を達成し、放射性物質の放出が抑制されていますが、廃止措置終了までには長期間を要するとともに、その完了までにはこれまでに経験したことのない課題を解決していく必要があります。

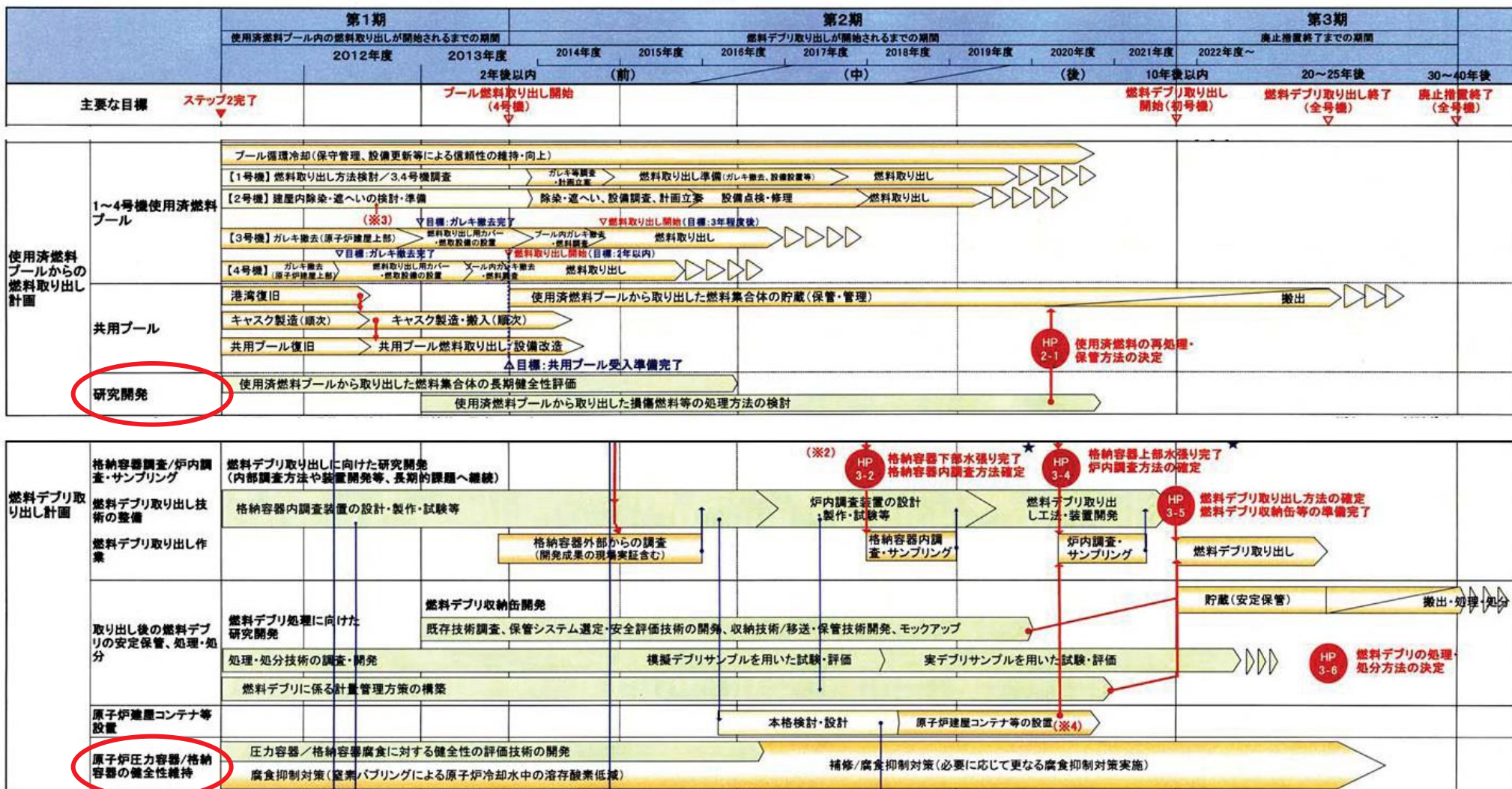
JAEAにおける1F関連技術開発の状況



原子力機構における廃止措置等に向けた研究開発体制

原子力機構では、理事長を本部長とする「福島技術本部」を設置して、1F事故の収束に向けた取組を「復旧技術部」及び各拠点の「福島技術開発特別チーム」を中心に、取り組んでいます。

廃止措置に向けた中長期ロードマップの主要スケジュール



▲現在

出展: http://www.tepco.co.jp/cc/press/betu11_j/images/111221c.pdf

平成24年7月30日

原子力災害対策本部
政府・東京電力中長期対策会議

研究開発推進本部

使用済
燃料
プール
燃料
取り出し
ワーキン
グ
チーム

燃料デブリ取り出し準備ワー

機器・装置開発等
サブワーキングチーム (SWT)

(1-1) 使用済燃料プールから取り出した燃料集合体他の長期健全性評価 (2011年～2017年度)

<目的>

- ◇ 使用済燃料プール内の燃料集合体は海水に曝されたことから、長期に亘って健全に保管する場合の影響を評価する必要がある。

<概要>

- ◇ 福島第一1～4号機の使用済燃料プールから取り出した燃料集合体の実際の状況を踏まえ、海水に曝された燃料集合体に関する材料試験を行うことで健全性を評価し、必要に応じて長期保管に向けた腐食対策を検討する。

(2-①-8) 圧力容器／格納容器の健全性評価技術の開発 (2011年～2016年度)

<目的>

- ◇ 海水が注入された原子炉圧力容器／原子炉格納容器は、今後も長期に亘り、希釈海水環境に曝されることが想定される。燃料デブリ取り出しまでの期間、機器の健全性を確保し、安定的な冷却を継続する必要がある。
- ◇ 原子炉圧力容器を支える鉄筋コンクリート構造物（原子炉圧力容器ペDESTAL）についても、高温履歴や海水浸漬の影響を確認する必要がある。

<概要>

- ◇ 原子炉圧力容器及び原子炉格納容器の腐食劣化進行の適切な評価・予測に必要な腐食データを取得する。また、原子炉圧力容器ペDESTALの鉄筋腐食やコンクリート劣化に関するデータを取得し、構造健全性評価を行う。また、腐食・劣化抑制策を適用し、その効果を確認する。

JAEAは、12の個別研究開発プロジェクトに参与している

「政府・東京電力中長期対策会議」は平成25年2月8日廃止され「東京電力福島第一原子力発電所廃炉対策推進会議」が設置された。

- 使用済燃料プールの燃料集合体は、福島第一原子力発電所構内の共用プールに移送して保管される。使用済燃料プールおよび燃料集合体の構成材料は、海水に曝されたことから塩化物イオン等の不純物の付着および放射線の影響を評価する必要がある。
- 長期保管中に付着物及び放射線に起因する腐食が燃料集合体や共用プールの構造物の健全性に及ぼす影響を評価し、健全性確保のための対策を講じる必要がある。このため、使用済燃料プールの状況を踏まえ、海水に曝された材料に関する腐食試験を行う。
- 共用プールに保管する燃料集合体の長期健全性評価に資するため、共用プールから取出された集合体の検査のための準備および先行して必要な各種部材の耐久性データを原科研／大洗研のホットラボで分担して取得する。

1. 使用済燃料保管プール内の材料耐久性評価

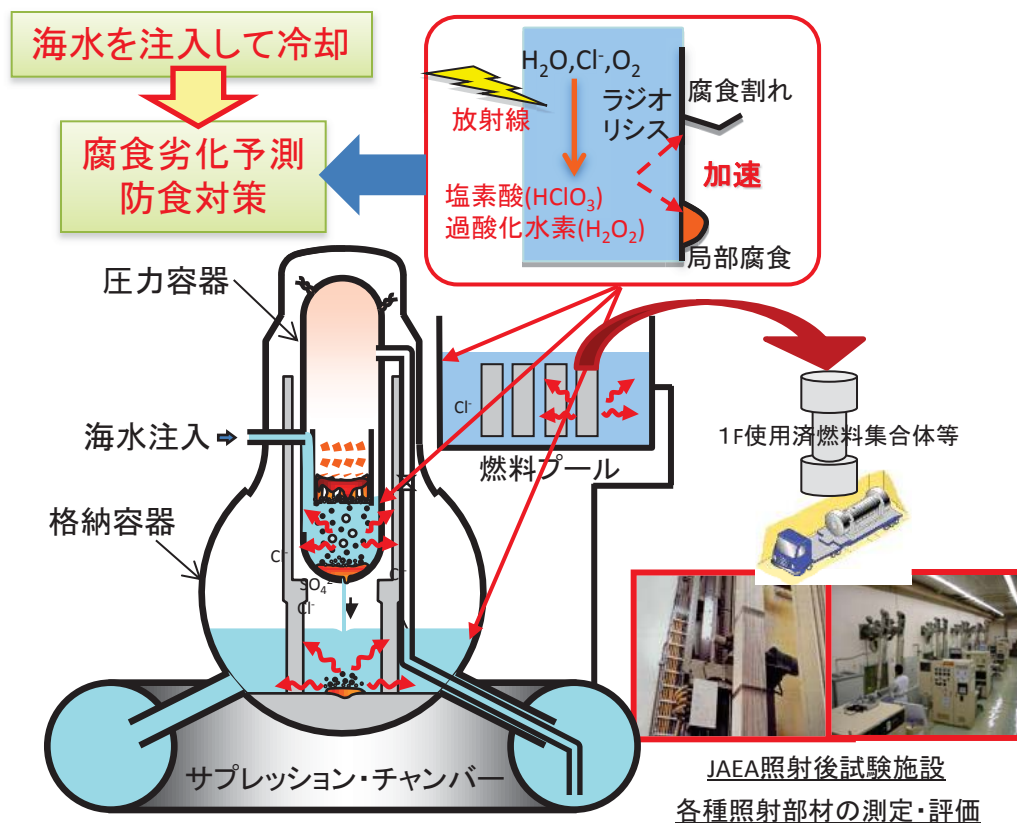
- プール内貼り材の耐久性評価と防食対策
- ジルカロイ被覆管の耐久性評価と防食対策

2. 放射線と海水の相乗作用に係る基礎試験

- 放射線下でのラジオリシス現象把握
- 放射線と海水の相乗作用による影響評価

3. 塩水浸漬された燃料集合体の健全性評価

- 集合体の耐久性評価非破壊評価技術開発
- 各種部材の耐久性評価



海水成分および放射線が各種部材の腐食劣化に及ぼす影響調査、腐食抑制策および集合体健全性評価法の開発

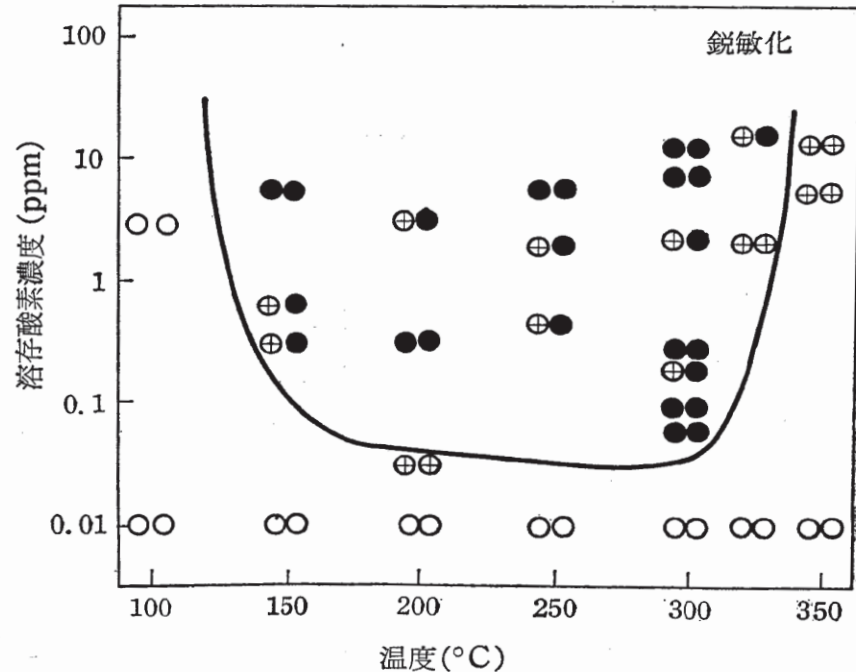
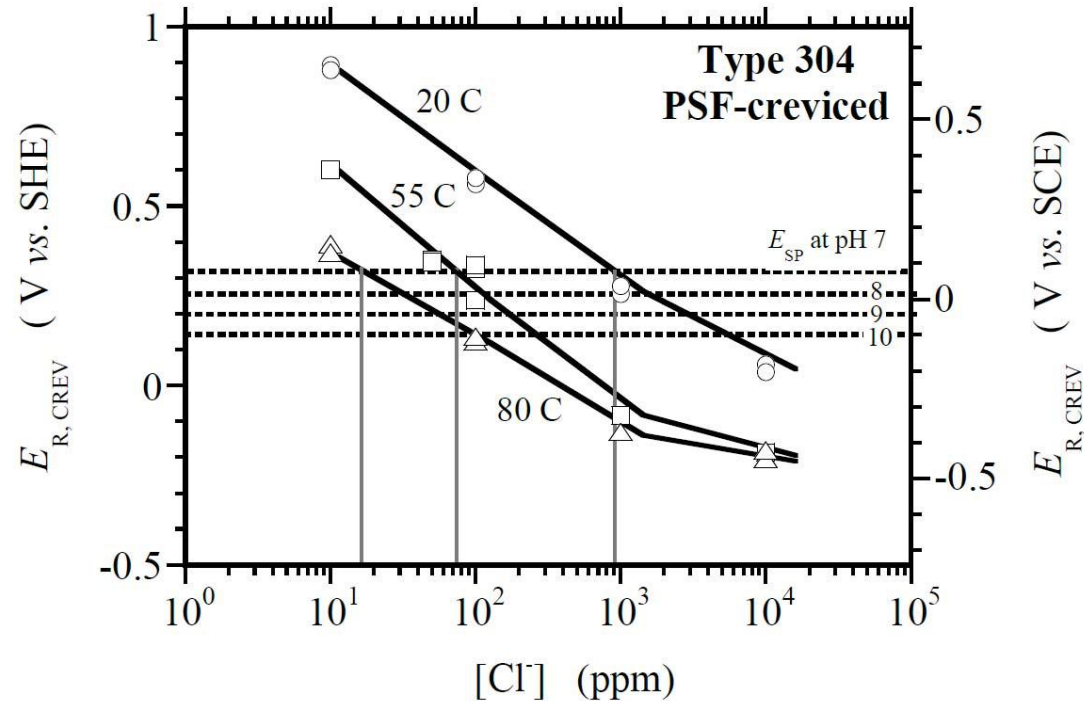


図 1 高温食塩水中における SUS 27 の応力腐食
(塩素イオン濃度: 500 ppm, 付加応力: 20 kg/mm²)

SUS27(SUS304) の腐食は温度と溶存酸素濃度を下げることで抑制 前川ら、防蝕技術、16,122(1667)



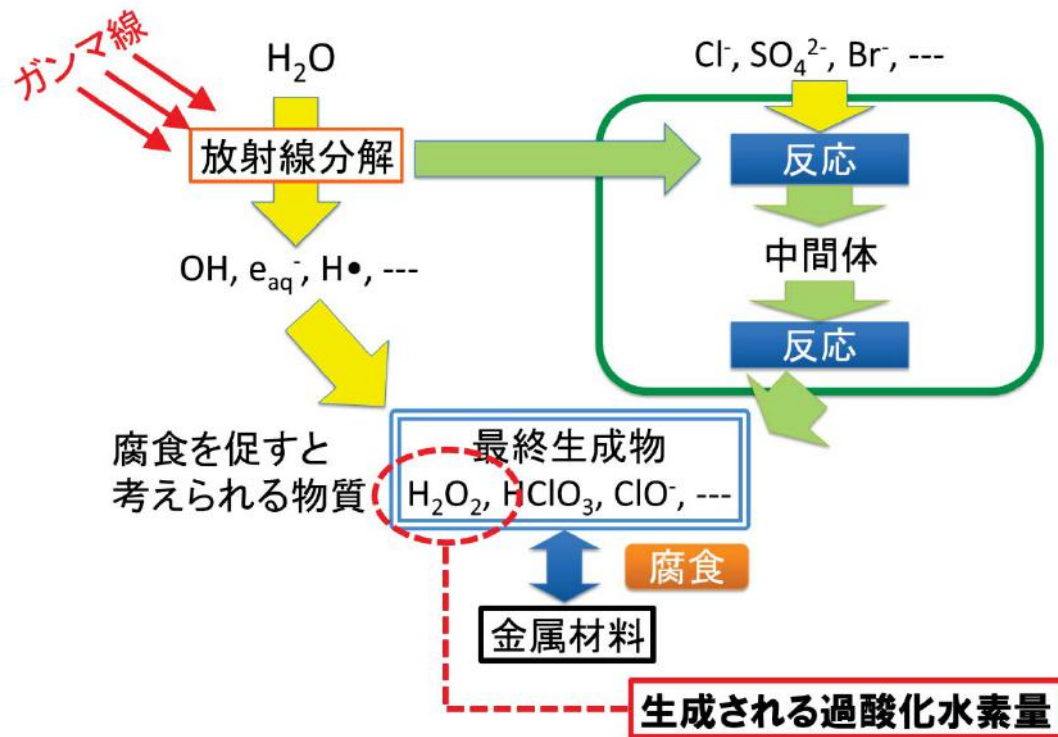
SUS304鋼のすきま腐食再不働態化電位は塩化物イオン濃度を下げることで上昇

T. Fukuda, M. Akashi: FOCUS'91, ANS, No. 700174, pp. 201-206 (1992).

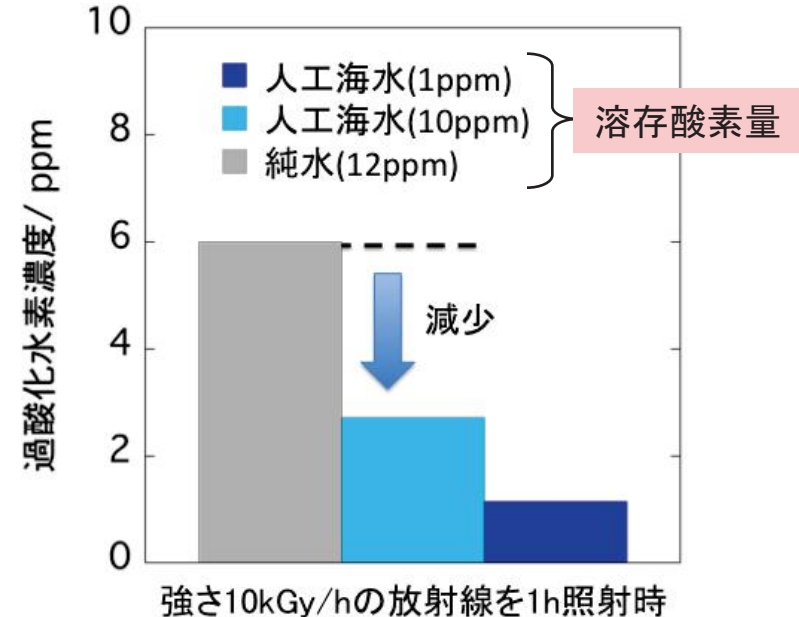
SUS304ライナー材の腐食は、温度低下、塩化物イオン濃度低下、溶存酸素低下で抑制可能
水の放射線分解で生成する過酸化水素(H₂O₂)は浸漬電位の上昇により腐食加速の可能性

JAEAではH₂O₂と溶存酸素の影響とその抑制に関する検討から開始

- プール内の燃料が発する放射線により水の放射線分解が起こる。
- 放射線分解への海水成分の影響はほとんど知られていなかった。

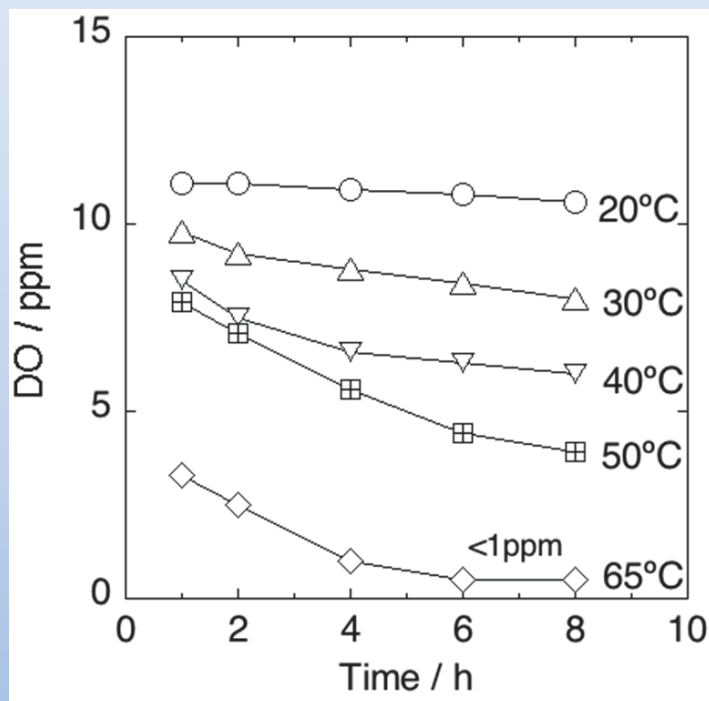


海水をガンマ線照射したときに生じる過酸化水素の濃度を測定

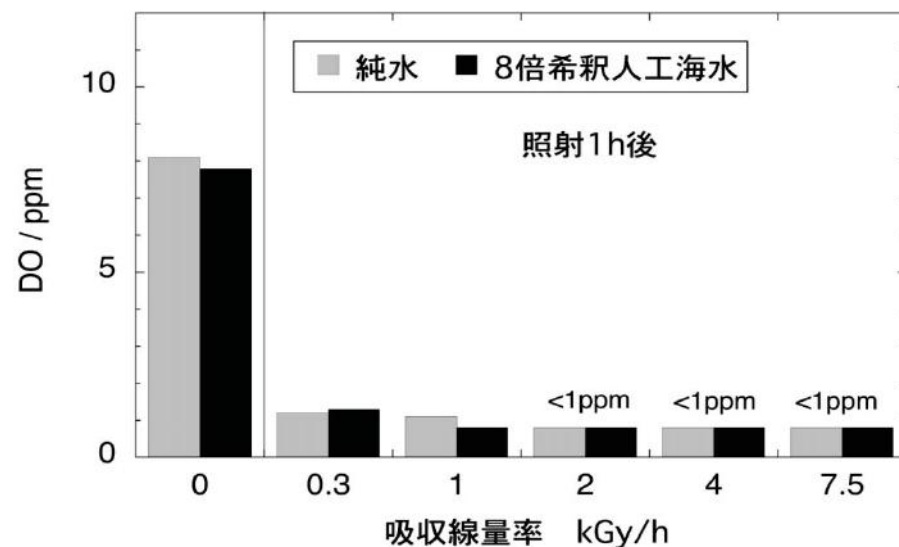


- 海水中では純水中に比べて過酸化水素の発生量が少ない。
- 水中に溶存している酸素の量を低下させると、過酸化水素の発生量を下げられる。
- 使用済燃料プールにおいて脱酸素剤の添加が腐食を抑えるために有効である。

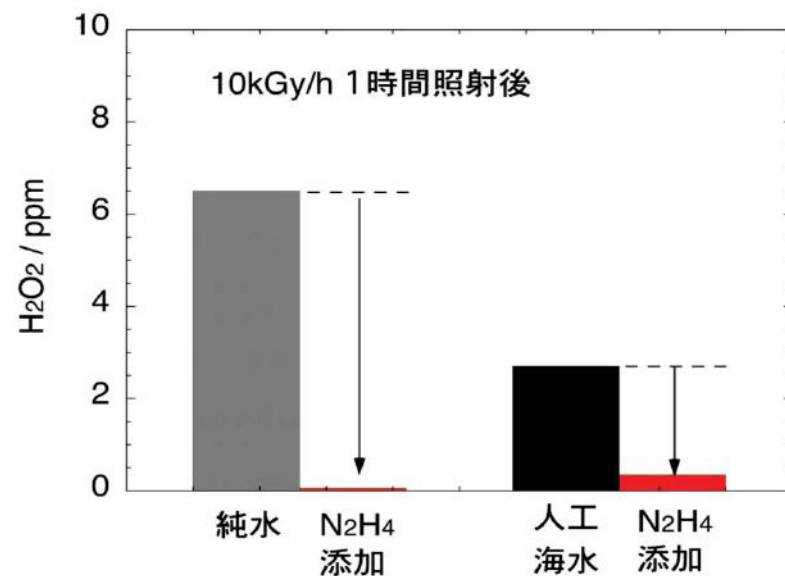
火力発電所等の知見としてヒドラジン(H_2N_2)を水中に添加すると高温で溶存酸素を低減し、腐食抑制作用があることが知られていた



温度が低下した現状の影響評価が必要

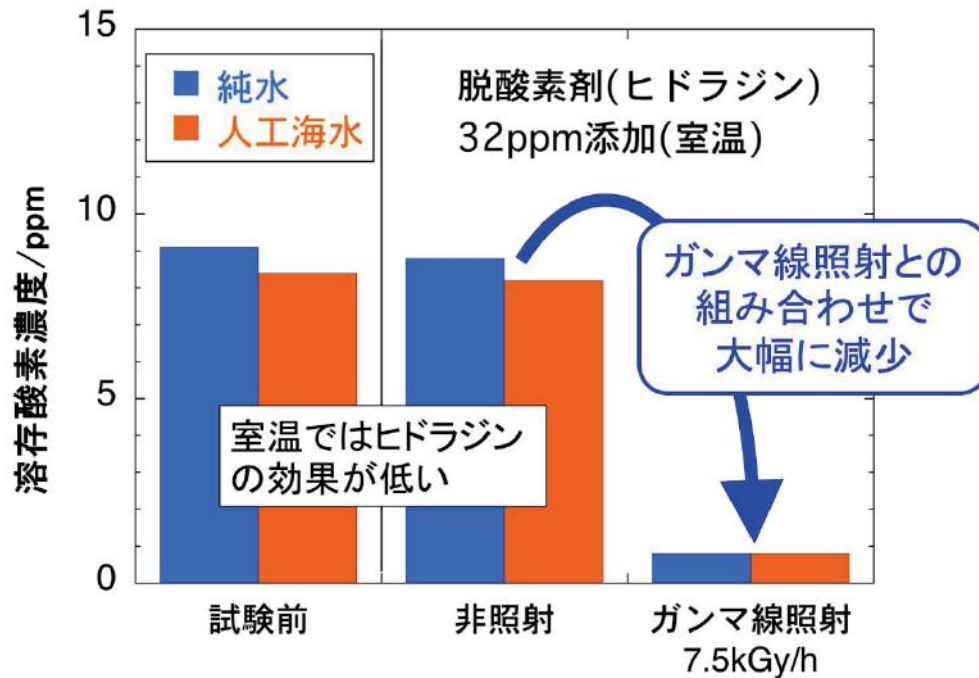


吸収線量率が高いと短時間でDOは削減された。



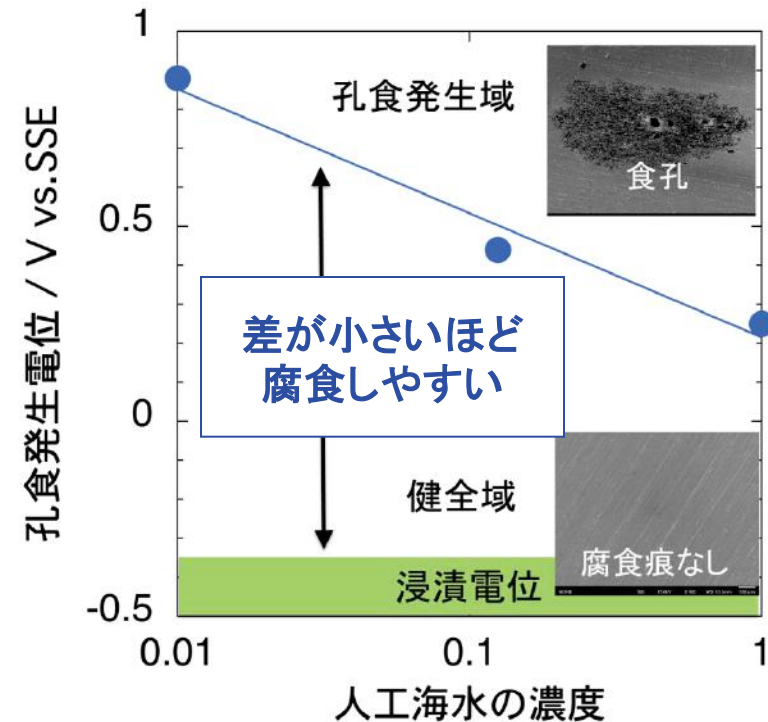
N_2H_4 を添加すると、 H_2O_2 の生成は抑制された。

溶存酸素除去剤の放射線下での有効性確認



- 室温では溶存酸素除去効果が小さいと言われるヒドラジン投入が、ガンマ線照射下では効果が大きい。
- ヒドラジン投入により、溶存酸素と過酸化水素の濃度が減少し、材料の腐食が抑制できる。

塩分による燃料被覆管の局部腐食発生の可能性の検討



- ジルカロイ燃料被覆管は塩分濃度が高いほど腐食しやすくなる。
- プール水中の塩分濃度を低下させることにより安全に保管が可能である。

電気化学的手法による腐食特性の評価

試験条件

試料電極: ジルカロイ2素材(未照射)

参照電極: Ag/AgCl/飽和KCl(SSE)

対極: 白金板

温度: 30、50、80°C 空気開放下

試験溶液

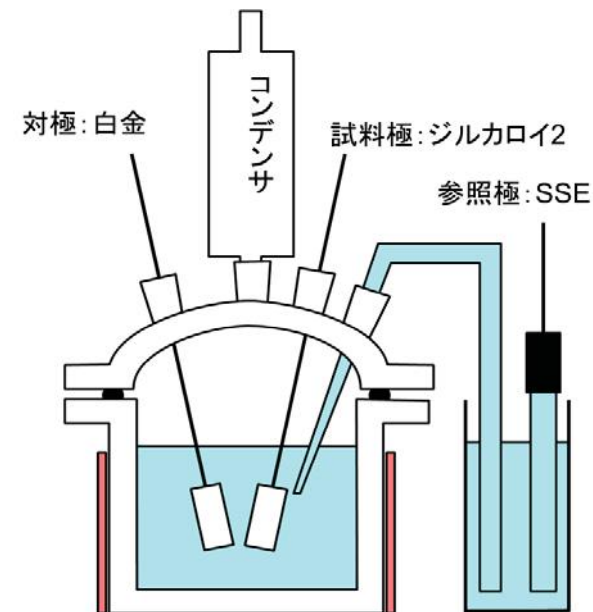
0.25M NaCl, 0.25M Na₂SO₄

1, 2, 8, 10, 100倍希釈人工海水

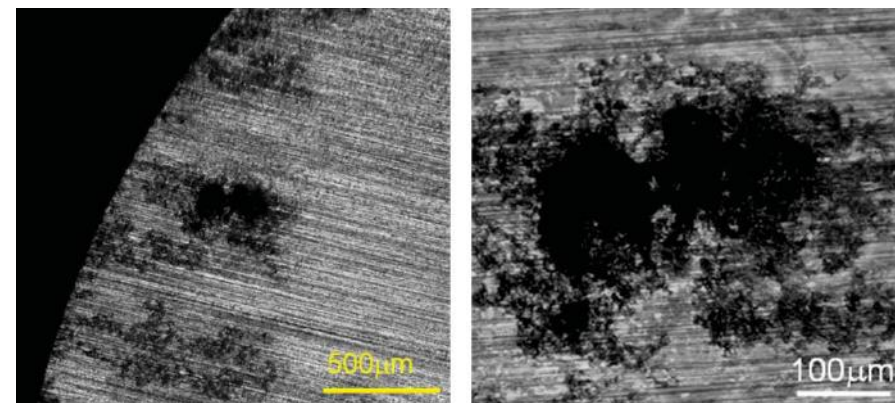
8倍希釈人工海水+0.0625M Na₂SO₄

評価法

- ・20mV/minで浸漬電位から1mA/cm²まで動電位アノード分極し、100μA/cm²を最後に超えた電位を孔食電位とした
- ・JIS法に従った腐食すき間再不動態化電位より評価した



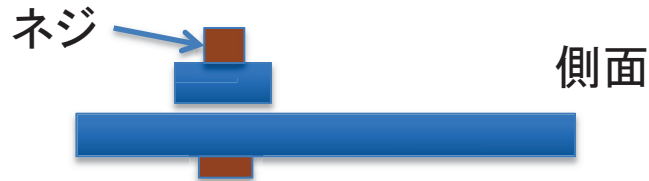
電気化学測定セルの模式図



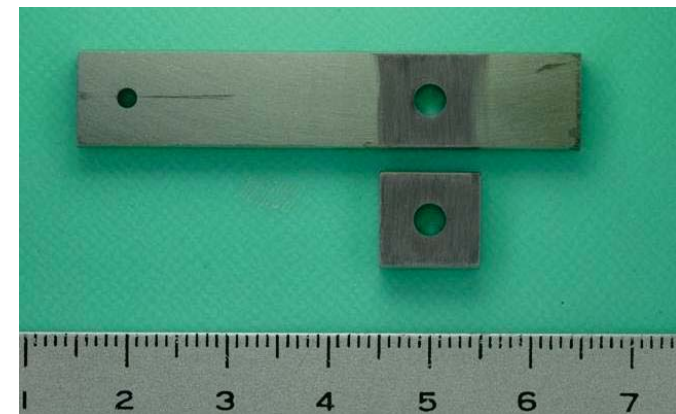
試験後の表面の顕微鏡写真

目的： 海水成分が残留するSFP内においてジルカロイ被覆管に孔食及びすきま腐食による損傷が発生する可能性を検討する。

ジルカロイ-2板材を2枚重ねた
すき間腐食試験片



試験実施場所：
高崎量子応用研究所
コバルト照射棟



人工海水中1ヶ月ガンマ線7.5kGy/h
照射後の試料外観写真

ジルカロイ-2板材の化学組成 (mass%)

Sn	Fe	Cr	Ni	O	Zr
1.40	0.16	0.10	0.06	0.12	Bal.

実機に比べて厳しい条件である、人工海水に1ヶ月間、ガンマ線を7.5kGy/hで照射した後においても、すき間部に孔食及びすき間腐食はしなかった。

- 使用済み燃料プール及び燃料集合体の使用材料の海水成分を含む水中における腐食可能性及び放射線の影響の検討、さらにそれらに関係する海水成分を含む水の放射線分解挙動について検討した。
- 燃料プールに脱溶存酸素剤であるヒドラジンを注入する場合、比較的低温でもガンマ線の照射効果により有効に脱酸素することを示した。
- 未使用被覆管ジルカロイの希釈海中での局部腐食発生の可能性は低いことを示した。また、使用済み被覆管ジルカロイについても同様であることをホットラボ試験により示した。
- 今後の検討課題：
 - 燃料プール内に落下したコンクリート片や砂礫により水質が局所的に悪化している可能性とその腐食への影響
 - ガレキによる傷や水質変化が被覆管等の腐食に与える影響
 - 実機から取り出される燃料集合体の健全性評価の方法(検査法)

- 海水が注入された原子炉圧力容器／格納容器は、今後も長期に亘り、希釈海水環境に曝されることが想定される。この環境においては容器の構成材料に腐食による劣化損傷が進行する可能性がある。このため、燃料デブリ取り出しまでの期間、機器の健全性を確保し、安定的な冷却を継続するための評価・対策技術を開発する必要がある。
- 原子炉圧力容器及び格納容器の腐食劣化損傷の適切な評価・予測に必要な、腐食挙動および放射線の影響に関するデータを取得する。
- 腐食劣化抑制策の検討とその有効性の確認および実機容器の構造材料の余寿命評価の方法に係る検討を行う。

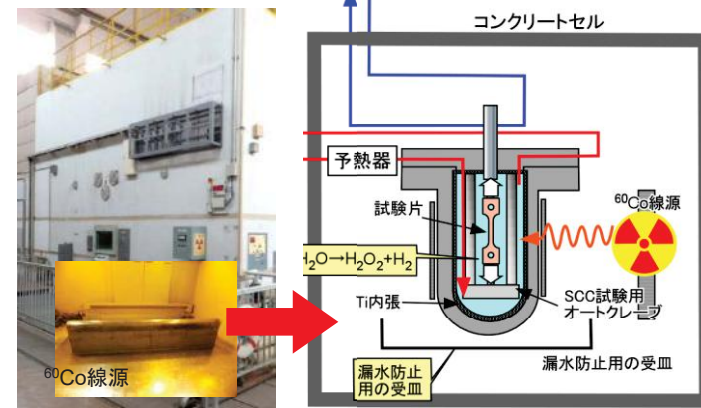
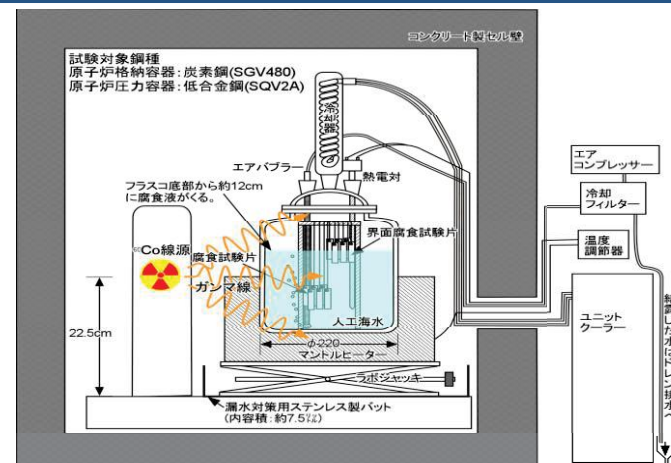
RPV/PCV鋼の腐食挙動に及ぼす海水と放射線の影響評価

① 容器鋼材の腐食劣化挙動および放射線影響の評価

●高崎量子応用研究所のガンマ線照射施設に照射下腐食試験装置を設置し、照射下の希釈海水環境におけるRPV/PCV鋼材の腐食試験を実施し、腐食速度に与える照射および水質条件の影響に関するデータを取得する。

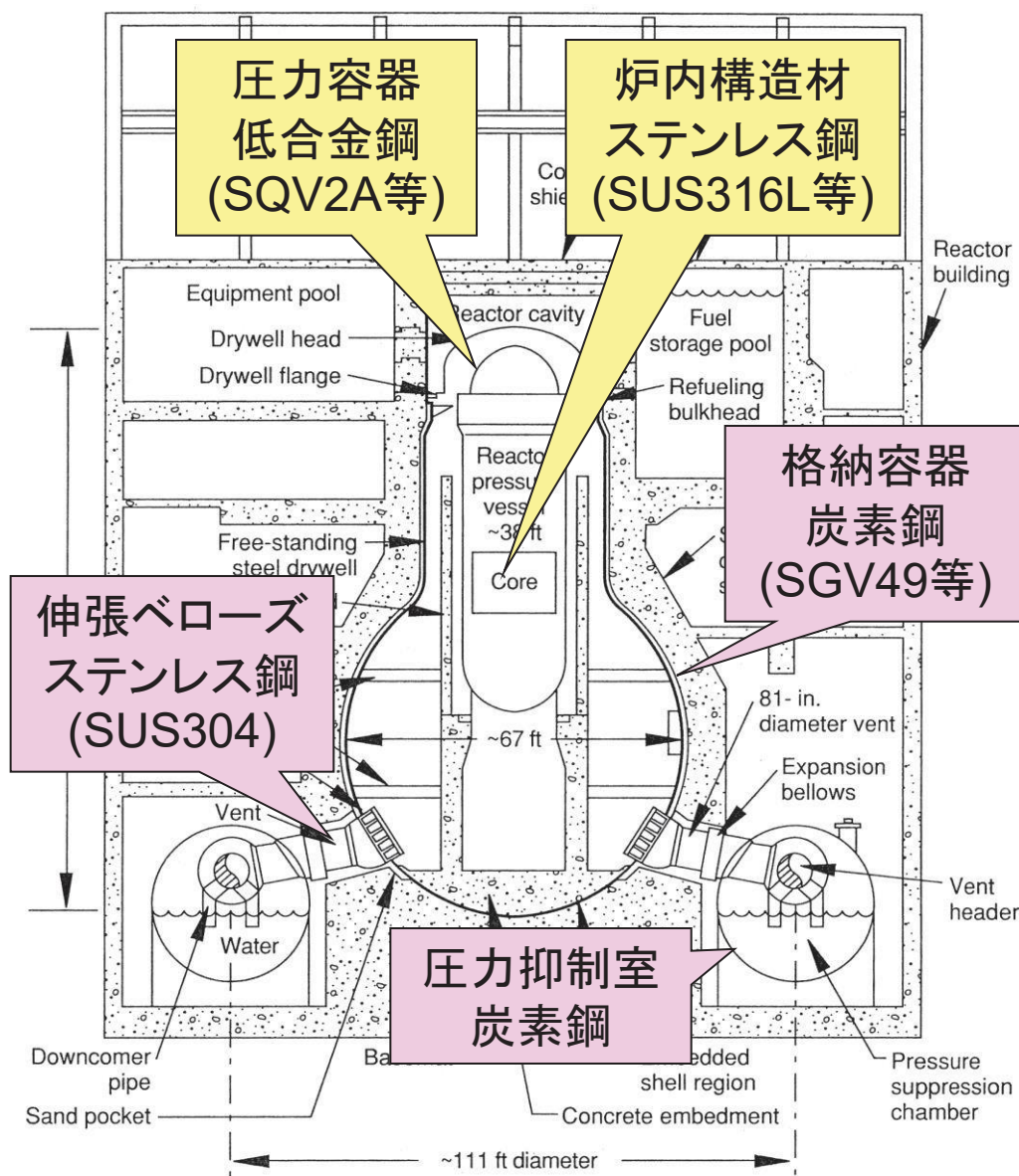
② 腐食劣化抑制策および構造物材料の余寿命の評価

●脱酸素剤(ヒドラジン)や防錆剤などによる腐食劣化抑制策の照射下における有効性を確認するとともに、取得した腐食および放射線影響データから材料の腐食劣化に関わる余寿命を評価する手法の検討を行う。



高崎研照射棟

照射下高温水中腐食試験



海水注入期間と注入量

	海水注入期間	海水注入量
1号機	3/12 19:04~ 3/25 15:37	約2,842m ³
2号機	3/14 19:54~ 3/26終了時不明	約9,197m ³
3号機	3/13 13:12~ 3/25 18:02	約4,495m ³

出典：原子力安全に関するIAEA閣僚会議に対する日本国政府の報告書
原子力災害対策本部、平成23年6月

表 2.1 海水の主要成分¹⁾

主 な 成 分	ppm	epm
塩 化 物 Cl ⁻	18980.0	535.3
硫 酸 塩 SO ₄ ²⁻	2649.0	55.1
重 炭 酸 塩 HCO ₃ ⁻	139.7	2.3
臭 化 物 Br ⁻	64.6	0.8
ふ っ 化 物 F ⁻	1.3	0.1
ほ う 酸 H ₃ BO ₃	26.0	
		593.6
ナトリウム Na ⁺	10556.1	459.0
マグネシウム Mg ²⁺	1272.0	104.6
カルシウム Ca ²⁺	400.1	20.0
カリウム K ⁺	380.0	9.7
ストロンチウム Sr ²⁺	13.3	0.3
		593.6

BWR Mark-Iの断面図

出典：Aging and life extension of major light water reactor components, INEL (1993)

出典：腐食防食協会編「腐食・防食ハンドブック」、丸善、p.171

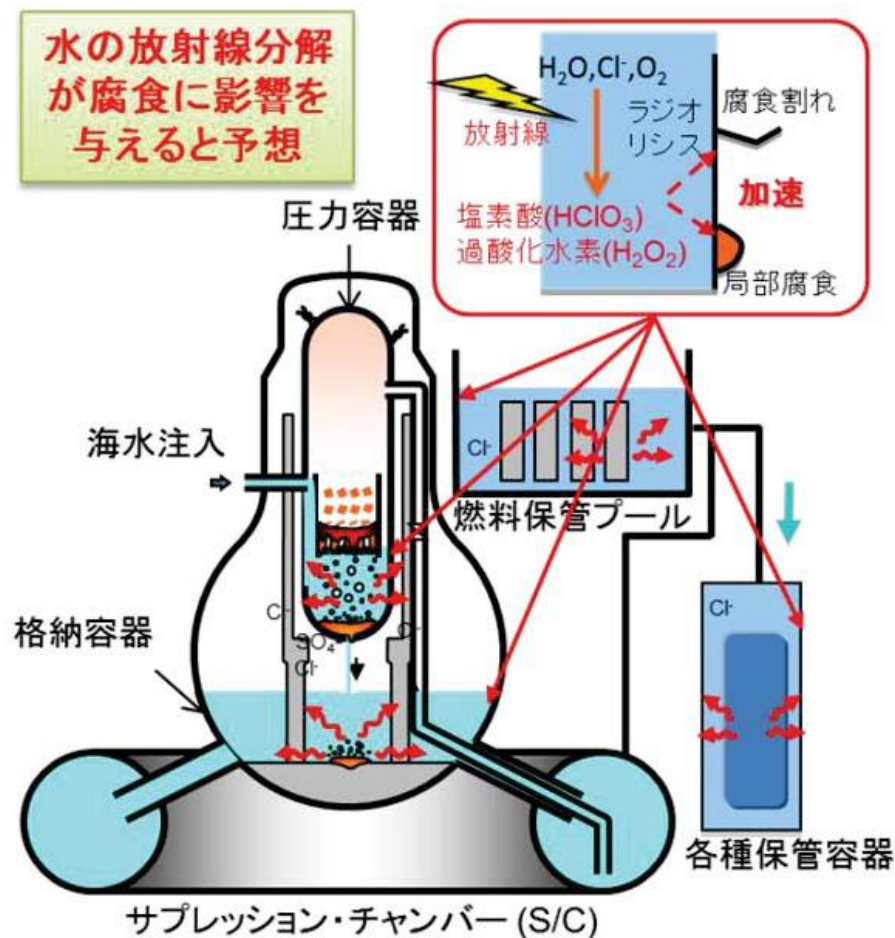
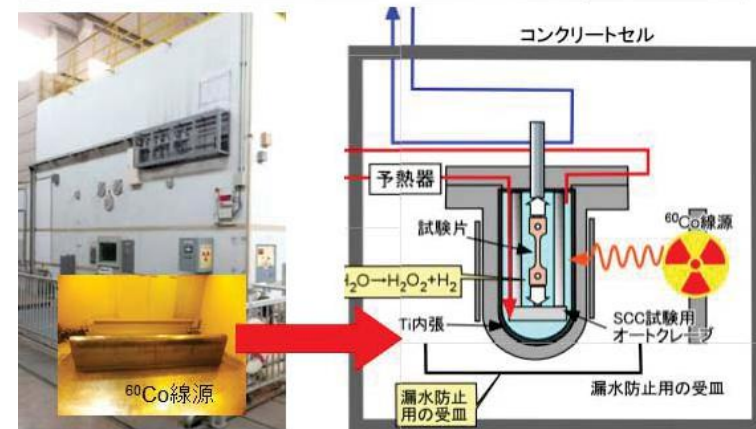
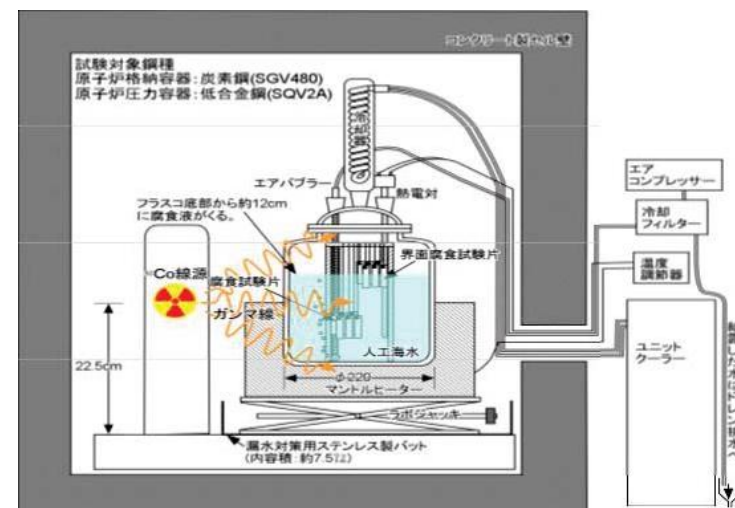


図1 圧力容器／格納容器等に入った海水の放射線分解

原子炉内やSFPに注入された海水は、炉内の燃料が発する放射線の影響により分解（放射線分解＝ラジオリシス）します。そして発生する活性な化学種（過酸化水素など）は容器などを構成する金属材料の腐食を加速するため、放射線が腐食に与える影響を評価することが必要です。

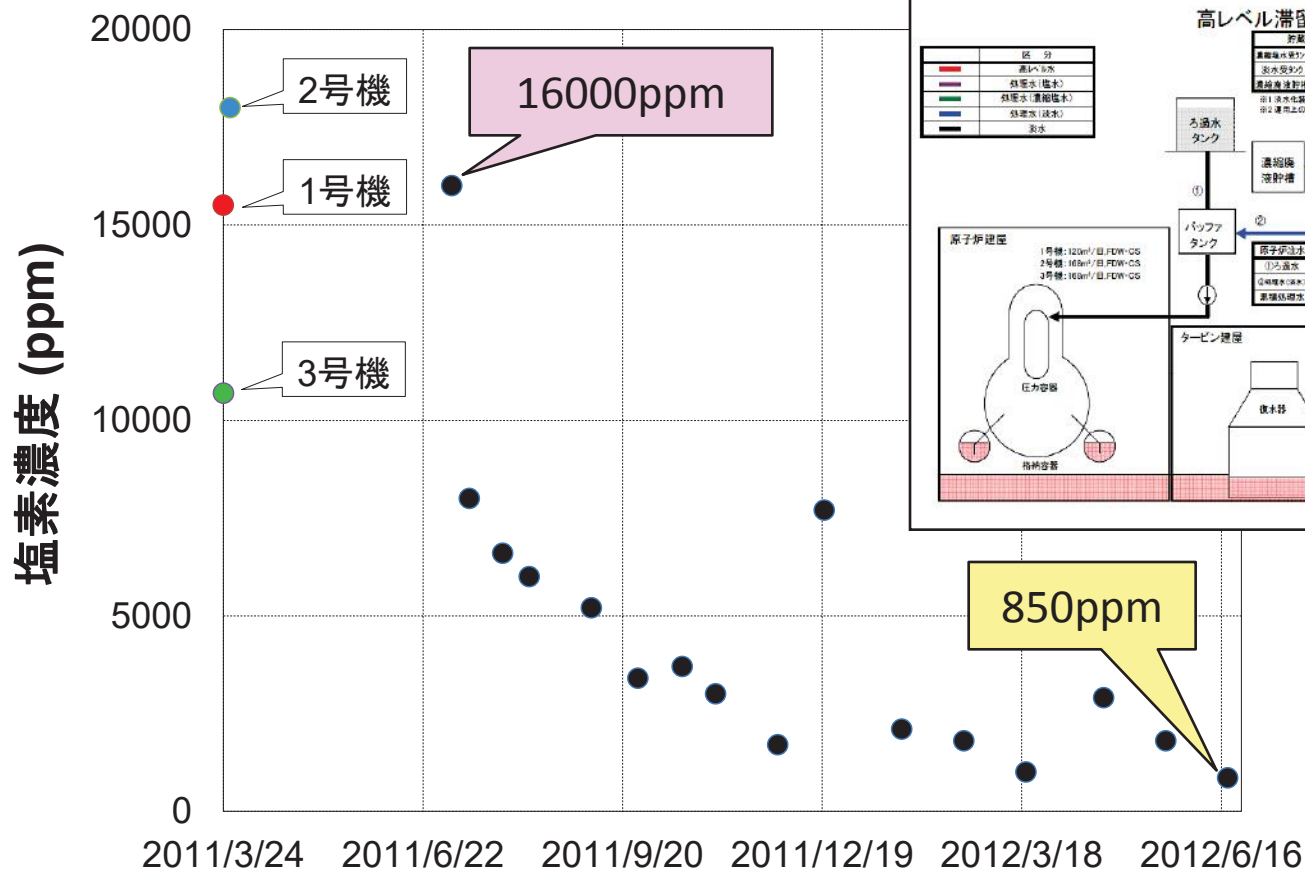


高崎研照射棟

照射下高温水中腐食試験

図2 高崎量子応用研究所における照射下腐食試験

1Fで海水成分を含む水に接している材料の腐食挙動を調べるためには、ガンマ線照射下の腐食試験が必要です。このため高崎量子応用研究所のガンマ線照射施設で試験を実施しています。

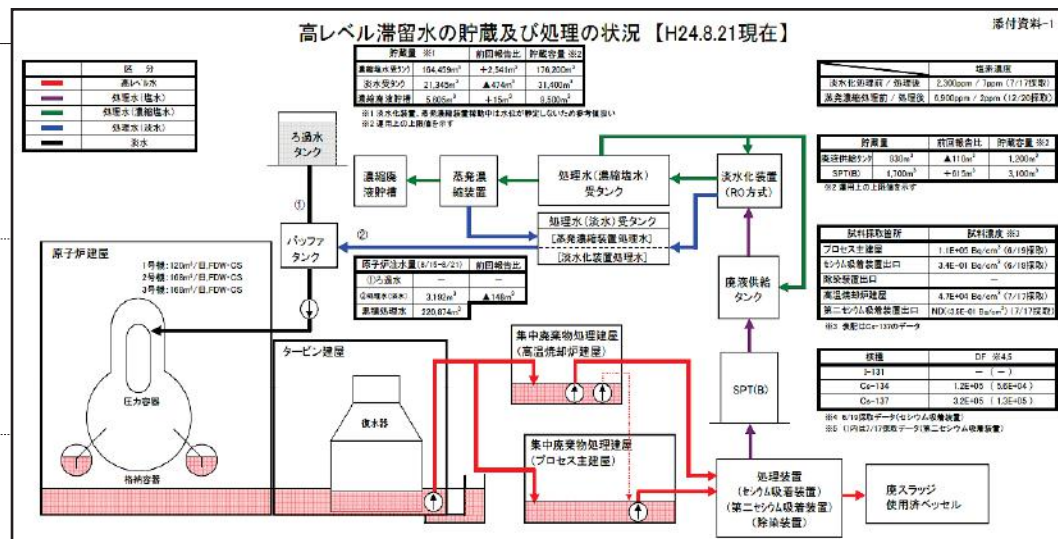


サンプル採取日

高レベル滞留水の塩素濃度測定結果^[1]

出典:[1] 福島第一原子力発電所における高濃度の放射性物質を含むたまり水の貯蔵および処理の状況について(第3報～第56報), 東京電力(株), 平成23年7月13日～平成24年7月18日

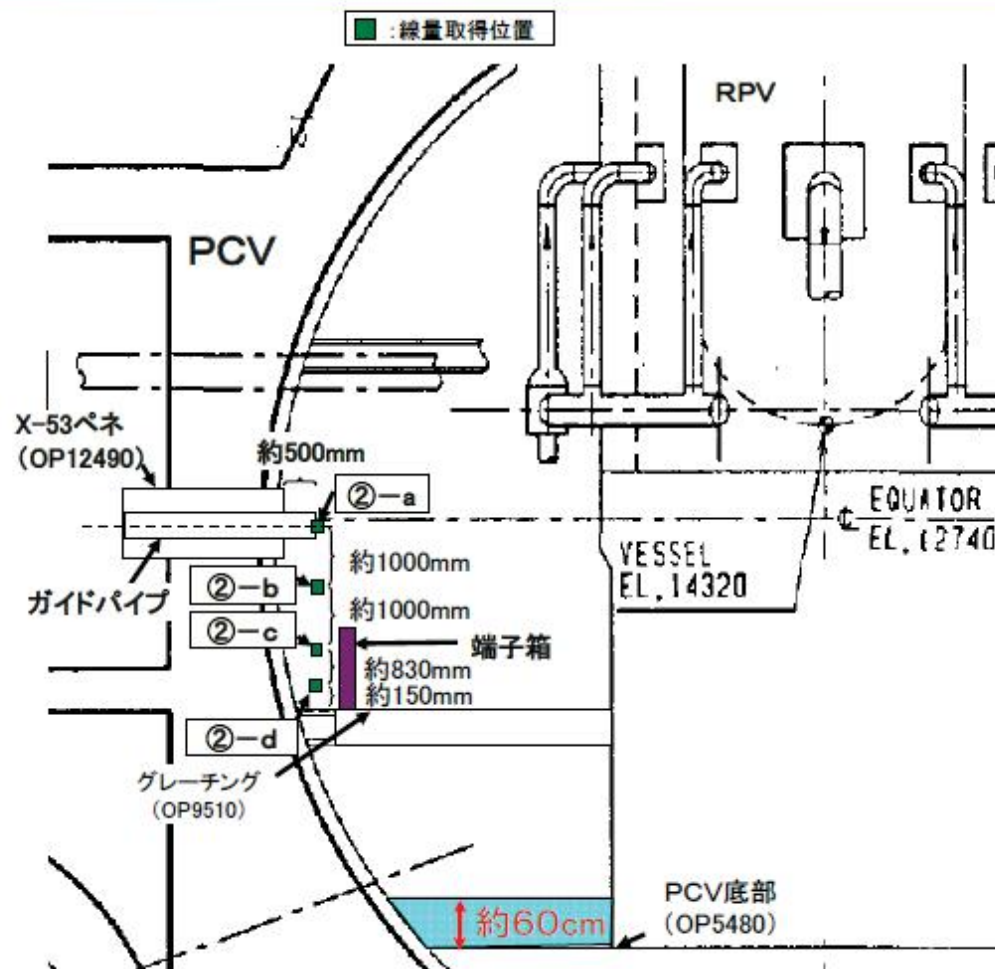
[2] 福島第一原子力発電所2号機原子炉建屋地下階の滞留水サンプリング結果について, 東京電力(株), 平成24年6月29日



2号機原子炉建屋三角
コーナー滞留水: 50ppm
(2012年6月28日採取)[2]

■ 格納容器内の塩素濃度は未測定だが1000ppm以下の試験が妥当と判断

2. 調査結果 (雰囲気線量 (内壁から約500mm))



線量測定結果

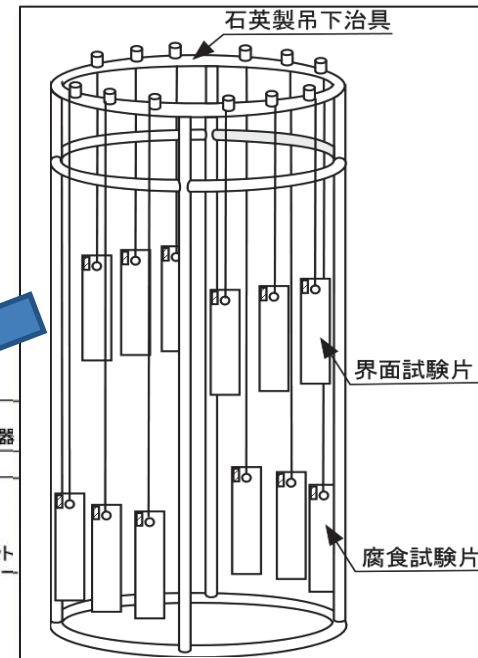
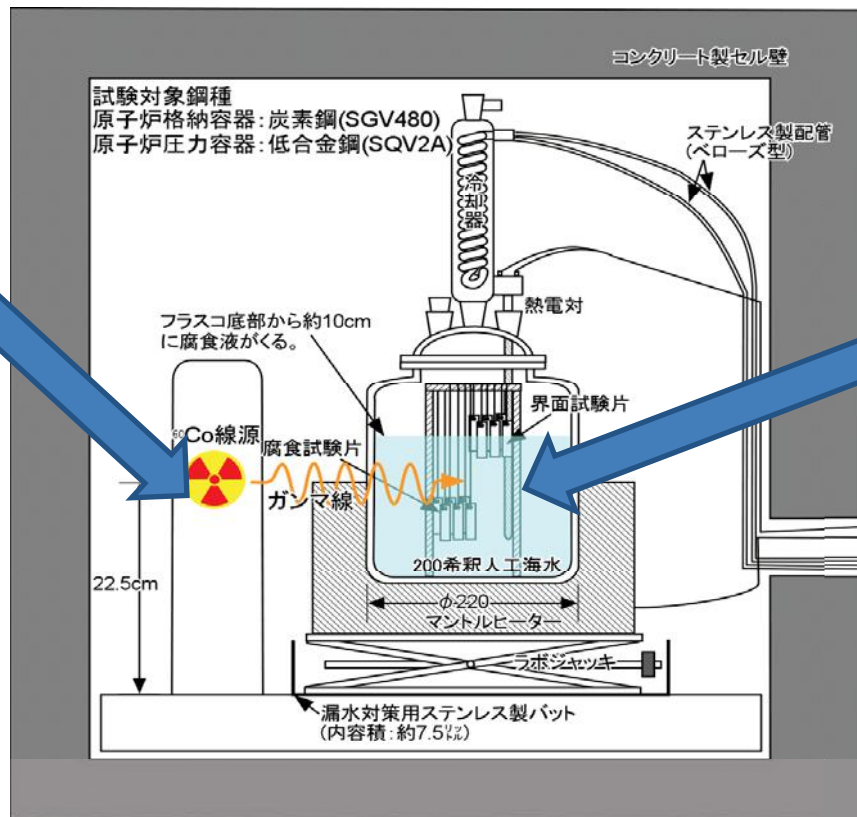
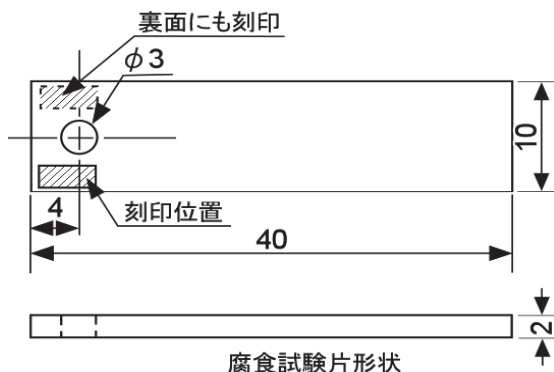
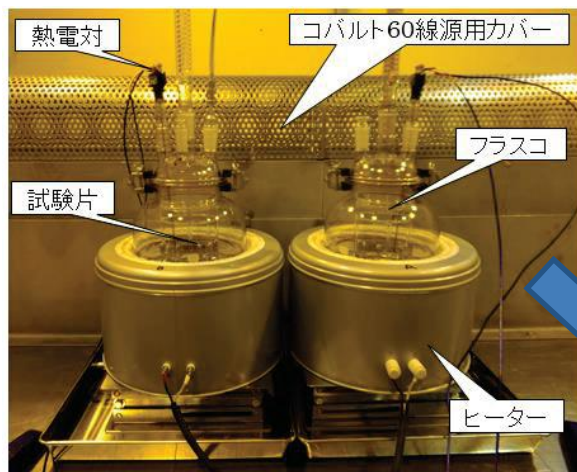
②-a	31.1	Sv/h
②-b	48.0	Sv/h
②-c	41.4	Sv/h
②-d	37.3	Sv/h

出典:「2号機原子炉格納容器」内部調査(2回目)について, 東京電力(株), 平成24年3月28日

■ ガンマ線量率: 数kGy/hでの照射試験は加速条件として妥当と判断

ガンマ線照射下腐食試験の方法

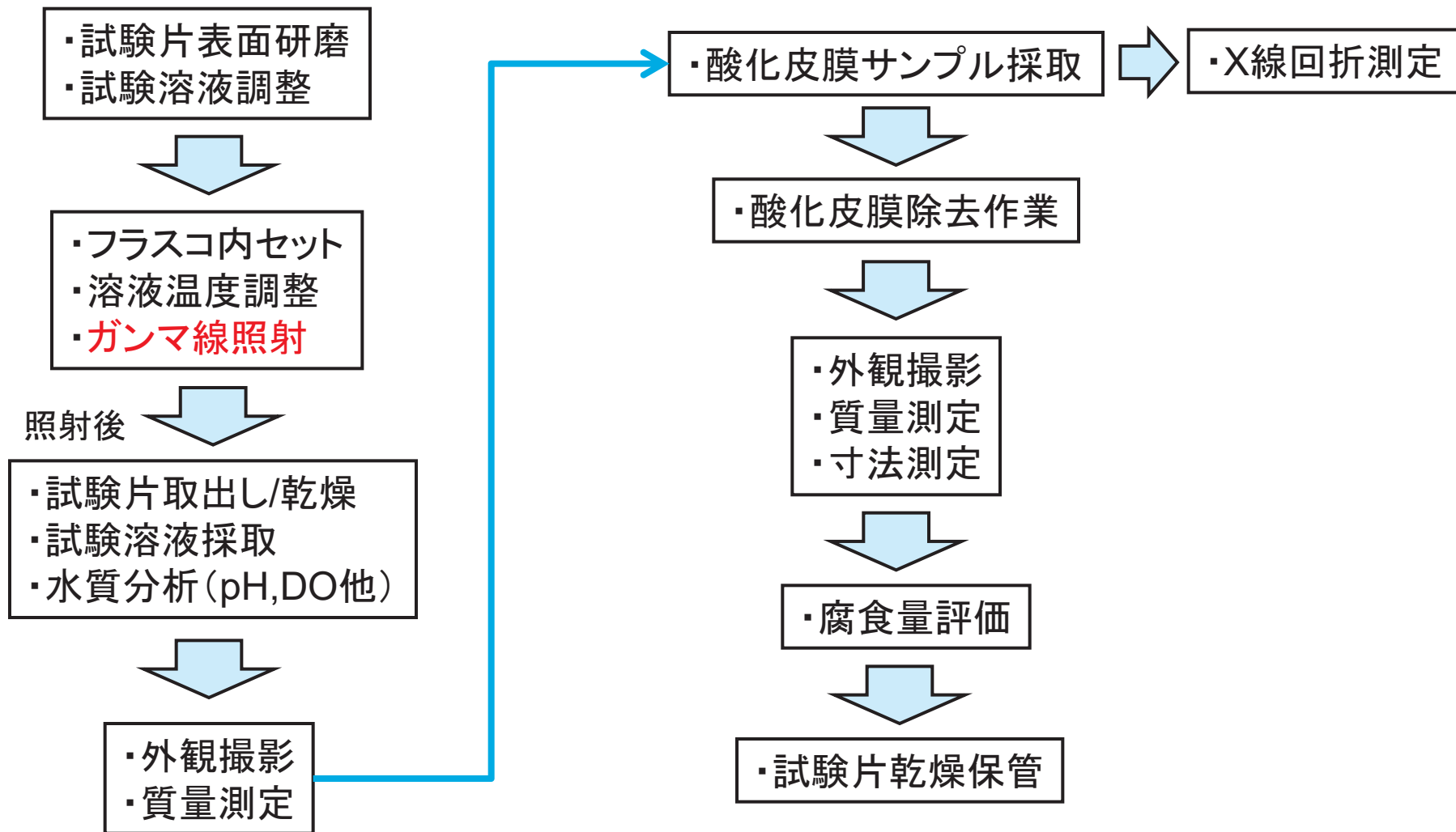
ガンマ線照射下腐食試験装置



フラスコ内の試験片配置

腐食試験条件:

水質: 200倍希釈人工海水 (塩素イオン濃度: 約100ppm)
 温度: 50℃、80℃
 浸漬時間: 50h、100h、500h
 ガンマ線量率: 0.23kGy/h、3.5kGy/h



腐食試験前後の試験片写真(格納容器鋼)

試験前

試験後

酸化皮膜除去後

炭素鋼

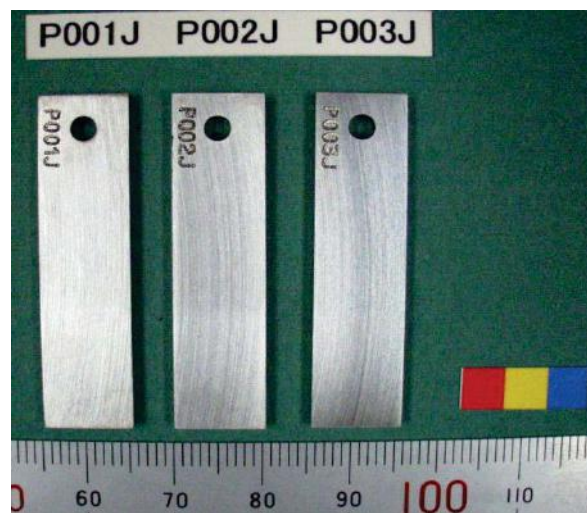


図 ガンマ線照射下塩素環境中腐食試験

照射室床下のプールからコバルト60ガンマ線源が線源用カバー内に上昇することでガンマ線照射が開始されます。温度50℃、200倍希釈の人工海水に50時間浸漬した炭素鋼は赤く錆びています。

200倍希釈人工海水
50℃、50h浸漬、密閉系
ガンマ線50h照射
吸収線量率: 3.52kGy/h

- 圧力容器と格納容器の鋼材について、ガンマ線照射下で50℃、200倍希釈人工海水中において500時間までの腐食試験を実施した。
- 線量率が低い場合(実機格納容器内で実測された線量率の数倍)には、照射による腐食減量の増加はほとんど見られなかった。
- 高い線量率(実機格納容器内実測値の約100倍)でガンマ線照射した場合の腐食減量は、非照射の場合に比べ2倍弱の増加となった。
- 今後の検討課題:
 - 格納容器内の各種腐食抑制策に対する放射線の影響評価
 - 事故直後の高温(200℃程度)が鋼材の腐食に与えた影響評価
 - 異種金属接触部やすき間部における腐食加速の可能性検討
 - 容器内に落下した燃料デブリの存在が腐食に与える影響

- JAEAでは、燃料保管プール、燃料集合体、格納容器、圧力容器の各金属材料の腐食に対する放射線と海水成分の影響について、ガンマ線照射下腐食試験等を行い検討している。また、従来知見がほとんどない海水成分を含む水の放射線分解について評価技術の検討を進めている。
- 現在まで得られた知見からは、1F使用済燃料プール及び格納容器内の放射線環境下で、金属材料の腐食が照射影響により大きく加速される可能性は低いと考えられる。
- 今後、1F実機において実測、分析・観察される現場の状況を材料試験及び解析評価の条件に適宜反映させ、中長期健全性評価の精度向上に資する。