

水の放射線分解シミュレーションに係る 研究活動と今後の課題

2008年 6月13日

株式会社 東 芝
高木 純一

ラジオリシスワークショップ経緯

軽水炉冷却材の放射線分解と電気化学に関する国際ワークショップ

International Workshop on LWR Coolant Water Radiolysis and Electrochemistry

◆本ワークショップは、原子炉水化学分野において、水の放射線分解モデルと電気化学的腐食電位モデルの共通理解を深めることを目的として開始

◆当初、軽水炉、特にBWRの炉内構造物健全性確保のための腐食環境評価に重点を置いて専門家間の議論を開始

◆その後、関心領域がPWR・VVERの水化学、燃料関連、バックエンド、再処理、超臨界水炉、等、多岐に亘るようになり、参加国数も増加

◆第6回では、当初目的の「放射線分解モデル」、「腐食電位モデル」の実機適用性に関して中間総括を実施し、現状の適用限界を確認

◆なお、韓国での原子炉水化学国際会議に併設開催としたが、主催は当学会「水化学標準」研究専門委員会であり、これまでの経験を活用し、会員相互の協力のもとに運営

目次

- ◆ラジオリシスワークショップ経緯
- ◆Radiolysis Workshop 2006
- ◆シミュレーション手法の概要
- ◆ワークショップでの検討状況
- ◆今後の課題

ラジオリシスワークショップ経緯

軽水炉冷却材の放射線分解と電気化学に関する
国際ワークショップ開催経緯

回数	開催年月	開催地	主催
第1回	1998年10月	東京(日本)	日本原子力学会※
第2回	1999年10月	川崎(日本)	日本原子力学会※
第3回	2000年10月	Winfrith(英国)	英国原子力学会(BNES)
第4回	2002年4月	Avignon(仏国)	仏国原子力学会(SFEN)
第5回	2004年10月	San Francisco(米国)	米国電力中央研究所(EPR)
第6回	2006年10月	済州島(韓国)	日本原子力学会※

Radiolysis Workshop 2006

(1) Session 1 Radiolysis & ECP modeling for LWRs

プレナリーペーパー(4件)

目黒(原電): LWRの材料問題としてSCC(Stress Corrosion Cracking、応力腐食割れ)、FAC(Flow Assisted Corrosion、流れ加速型腐食)に着目。BWR、PWRの材料問題を、水素/酸素環境から統一的に理解し、実効的管理指針を提案。

Christensen(Studsvik): ラジオリシスモデルの入力データとなる反応速度定数、G値につき総括。高温での不確定性は将来課題だが、現状のモデルは有用と評価。

石樽(アイソトープ協会): ECPモデルは有用だが、課題が多く(交換電流密度、拡散限界電流密度)、特にラジオリシスによるH₂O₂、OHラジカルの扱いを考慮すべきと指摘。

Elliot(AECL): OH + H₂ → H₂O + Hの高温での反応速度に注意喚起を促し、モデルは定性的には良い知見を与えるが、定量性には注意が必要との見解を提示。

高木、原子力学会誌(2007)

Radiolysis Workshop 2006

(3) Session 3 Other Applications

他炉型への適用、加速器試験の報告例 5件の発表あり

勝村(東大): 超臨界水条件で水の放射線分解G値を測定し、水和電子(eaq-)のG値は温度上昇、密度増加とともに減少傾向にあると報告。

佐藤、三輪(JAEA): JMTR水化学ループのラジオリシス解析、腐食電位測定を実施し、H₂O₂挙動の重要性を指摘。

Feron(CEA): 欧州各国協力による腐食電位測定用の参照電極の検証を行い、YSZ(Yttria-Stabilized Zirconia、イットリア安定化ジルコニア)、外部参照Ag/AgCl、Pt/Rhを用いた電極を炉内用として開発。

Corbel(CEA): SUS316Lの腐食電位をプロトン/電子線照射下で測定し、電位は低下傾向を示すこと、線量効果のあることを報告。

高木、原子力学会誌(2007)

Radiolysis Workshop 2006

(2) Session 2 BWR application/PWR/CANDU-PHWR application

BWR分野 日本側モデル標準化動向

山本(東芝)、和田(日立): 放射線分解モデル、腐食電位モデルにて、それぞれ感度解析を実施し、影響度の大きいパラメータを指摘。

内田(JAEA): 国内原子力学会におけるモデル標準化動向について解説。

Henshaw(Nexia): EPRIとBNFL(旧Harwell)による、米国BWRVIP(BWR Vessel and Internals Project)向けモデルにつき報告。

Yeh(Tsin-Hua): 出力増加を行ったプラントの放射線分解挙動を予測。

堀田(CRC): 3次元流動解析と組合せた炉内腐食環境評価の取組みを報告。

PWR分野 水素添加濃度低減動向(従来25~35cc-STP/kg-H₂O)

梅原(三菱): 解析により、数cc-STP/kg-H₂OでもPWSCCを抑制可能と評価。

市毛(原電): 敦賀-2実績に基づき、15cc-STP/kg-H₂Oまで低減可能と評価。

高木、原子力学会誌(2007)

Radiolysis Workshop 2006

(4) Session 4 Fuel and Corrosion

キャニスター腐食関連、PWR燃料関連 欧州より3件報告あり

Walters(Nexia): 燃料キャニスター中の酸素濃度を評価。腐食消費により初期の4年程度しか問題にならない。

Corbel(CEA): 使用済み燃料の長期保管に当たり、界面でのαラジオリシスと腐食との関連を検討。

Tigeras(EDF): PWR燃料の振る舞いとラジオリシスとの関係を総括し、AOA(Axial Offset Anomaly、PWR燃料での軸方向出力分布異常)において、水素濃度とNi形態との関連に言及。

高木、原子力学会誌(2007)

Radiolysis Workshop 2006

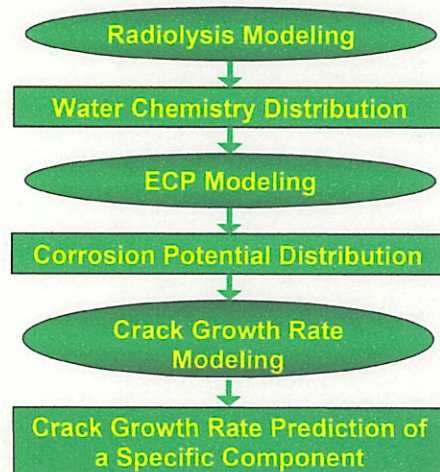
(5)まとめ

- ◆これまで6回のワークショップを重ね、放射線分解モデル、腐食電位モデルに対する議論を深めてきた。
- ◆「放射線分解モデル」の妥当性はほぼ検証されつつあるが、高温のデータはさらに蓄積が必要である。
- ◆「腐食電位モデル」に関しては、不確定なパラメータが多く、さらなるデータの蓄積、ベンチマークが必要と言える。
- ◆最近の動向としては、線量率分布、流速分布を考慮し、3次元化の方向性が見られる。
- ◆今後、ワークショップ名称を改訂し、より広範囲の原子力分野におけるラジオリシス・電気化学の議論を継続することが望まれる。
- ◆その発展性・継続性については、開催形態を含め、参加者の合意形成を図りつつ、幹事メンバーで協議していく。

高木、原子力学会誌(2007)

シミュレーション手法の概要

◆ BWR1次系予防保全水化学の評価手法



Takagi, Water Chemistry Seminar (2001)

Radiolysis Workshop 2006

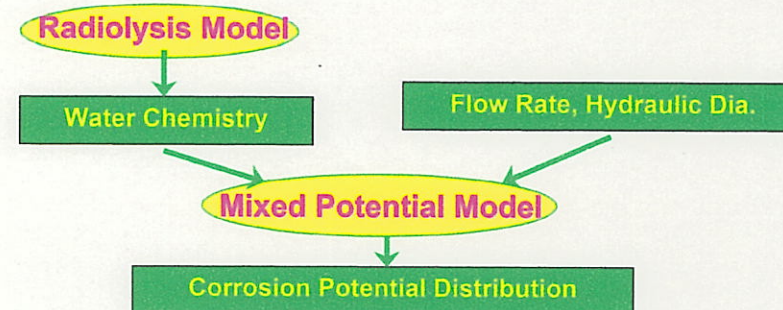


韓国・済州島コンベンションセンターにてワークショップメンバーと

高木、原子力学会誌(2007)

シミュレーション手法の概要

◆ 腐食電位評価手法BWR1次系予防保全水化学の評価手法

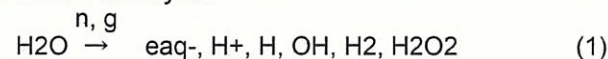


Takagi, Water Chemistry Seminar (2001)

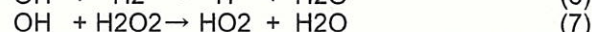
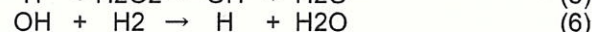
シミュレーション手法の概要

◆水の放射線分解反応 (1/2)

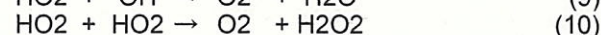
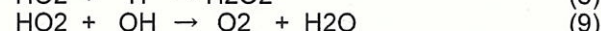
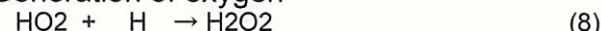
□ Water radiolysis



□ Secondary reactions



□ Generation of oxygen

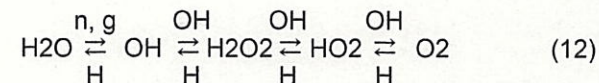
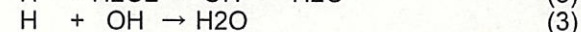
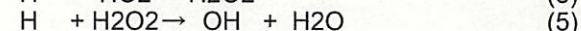


Takagi, Water Chemistry Seminar (1999)

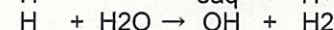
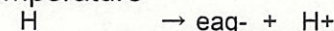
シミュレーション手法の概要

◆水の放射線分解反応 (2/2)

□ Hydrogen injection effect



□ Back reactions needed to be considered at high temperature



Takagi, Water Chemistry Seminar (2001)

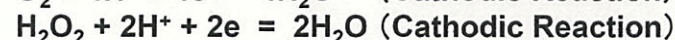
シミュレーション手法の概要

- ◆ 腐食電位とは、エバンス図上でアノード電流とカソード電流とが釣り合った点での電位と定義

- ◆ $i_a = i_c$ at $E = E_{\text{corr}}$

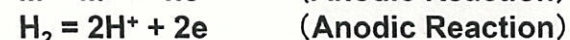
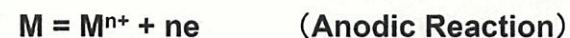
Decrease in Oxygen and Hydrogen Peroxide

Enhance the recombination reactions:



Increase in Anodic Reaction of Hydrogen

Enhance the anodic reaction of hydrogen:

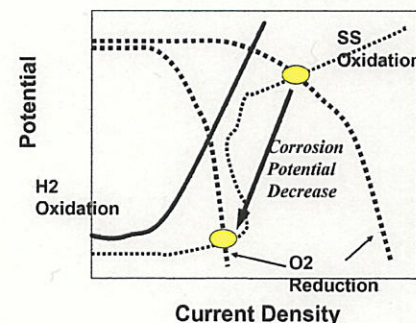


Takagi, Water Chemistry Seminar (2001)

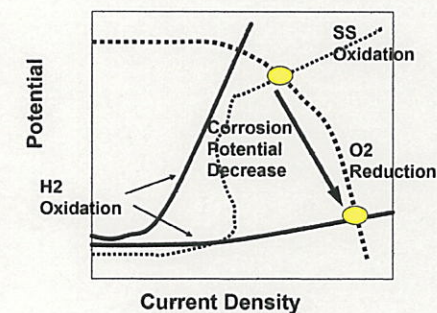
シミュレーション手法の概要

◆腐食電位低減の考え方

■カソード電流制御

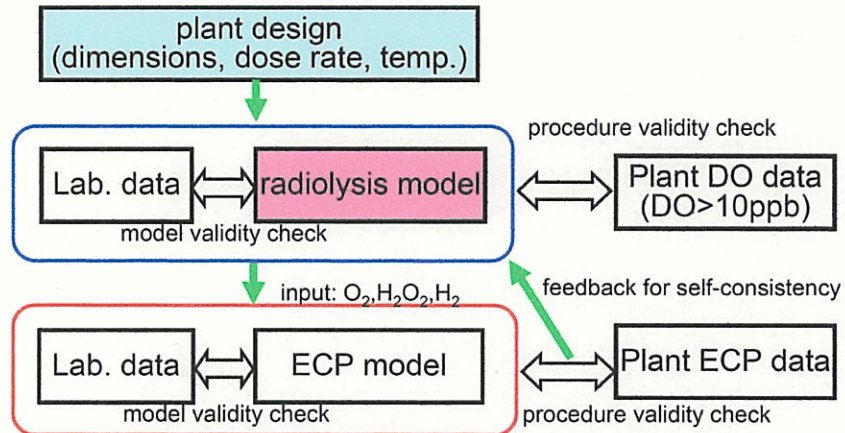


■アノード電流制御



Takagi, Water Chemistry Seminar (2001)

ワークショップでの検討状況



- Radiolysis model validity affects the ECP mode.
- Consistency of whole procedure is needed.

Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

- ◆ 3 sets of g-values were selected from the viewpoint of g(H₂O₂).

		e _{-aq}	H ⁺	H	H ₂	OH	H ₂ O ₂	HO ₂	
g(1)	Gamma	3.41	3.41	0.87	0.60	4.86	0.31	-	Toshiba /Hitachi
	Neutron	0.68	0.68	0.52	1.52	1.80	1.22	-	
g(2)	Gamma	3.54	3.54	0.94	0.56	3.48	1.06	-	Tokyo univ.
	Neutron	0.68	0.68	0.52	1.52	1.66	1.29	-	
g(3)	Gamma	3.50	3.50	0.90	0.60	4.50	0.55	-	Studsvik
	Neutron	0.65	0.65	0.45	1.26	1.77	0.85	0.05	

g(1):Y. Wada et al., Proc. 8th Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power System Water Reactors 574(1997)

g(2):G. R. Sunaryo et al., Radiat. Phys. Chem, 45, 307 (1995)

g(3):H. Christensen, et al., Water Chemistry in Nuclear Reactor Systems 7, 2, BNES 138 (1996)

Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

- ◆ 4 reactions were selected which related to OH radicals to evaluate the effect of the rate constant.

	Reaction	X 1/10	Base case*	X 10
R(1)	OH + H ₂ = H + H ₂ O	1.27E+08	1.27E+09	1.27E+09
R(2)	H + H ₂ O ₂ = OH + H ₂ O	3.07E+08	3.07E+09	3.07E+10
R(3)	OH + H ₂ O ₂ = H ₂ O + HO ₂	3.91E+07	3.91E+08	3.91E+09
R(4)	O ₂ ⁻ + OH = OH ⁻ + O ₂	1.27E+10	1.27E+11	1.27E+12

*:N.Ichikawa 2nd Workshop on LWR Coolant Water Radiolysis and Electrochemistry (1999)

Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

- ◆ Dose rate at the downcomer

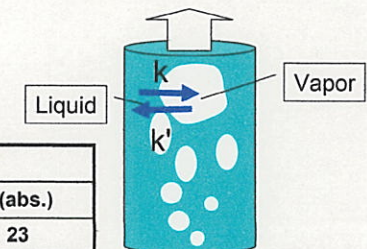
- Base case is the typical dose rate at the downcomer of BWR5.

	X 1/2	Base case	X 2
Dose rate (100eVsec/L)			
gamma	0.64E+17	1.28E+17	2.56E+17
neutron	2.30E+19	4.59E+19	9.18E+19

- ◆ Gas transfer coefficient

- $\Delta C_L = -kC_L + k'C_V$
- K' : x1/2, Base case, x2
- Base case : currently used value

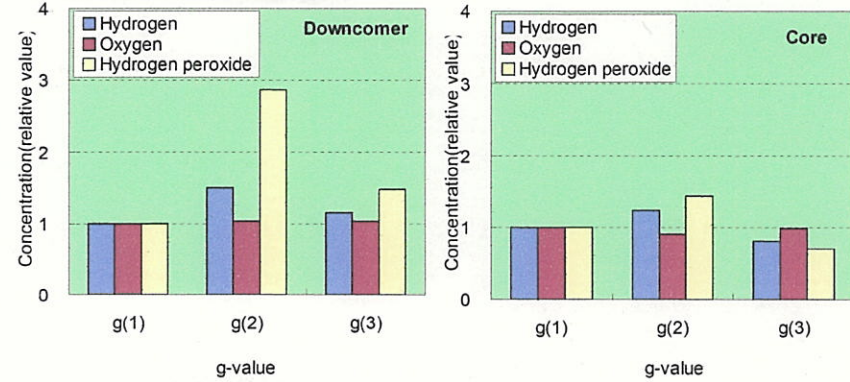
Base case	Gas transfer coef./s ⁻¹	
	K(rel.)	k'(abs.)
	100	23



Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

◆G値依存性の感度解析

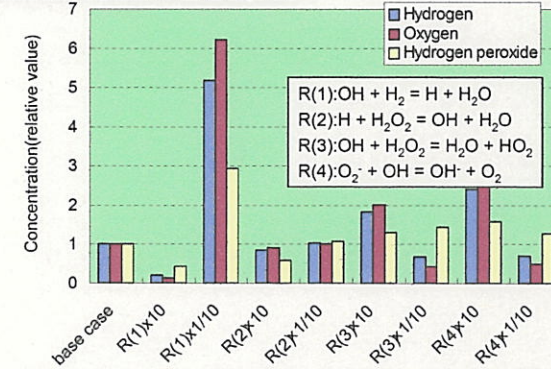


- Normalized by the results of g(1)
- At the downcomer, ratio of the dose rate (g/n) is high.
- g(H2O2) of gamma ray affects the concentration of H2O2.

Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

◆反応速度依存性の感度解析



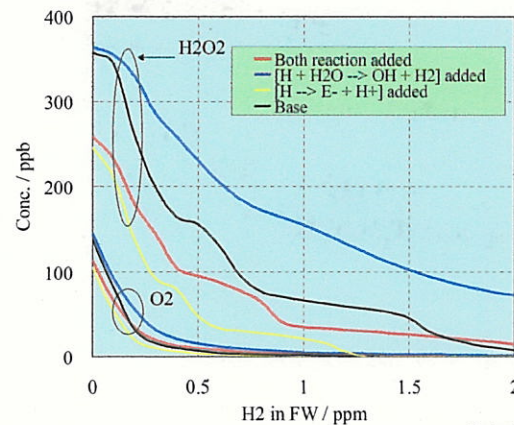
- Normalized by the results of base case rate constant
- The effect of OH+H2=H+H2O is significant.
- Accurate rate constants of key reactions are important.

Yamamoto, 6th Radiolysis Workshop (2006)

ワークショップでの検討状況

◆ Parametric study for key back reactions :

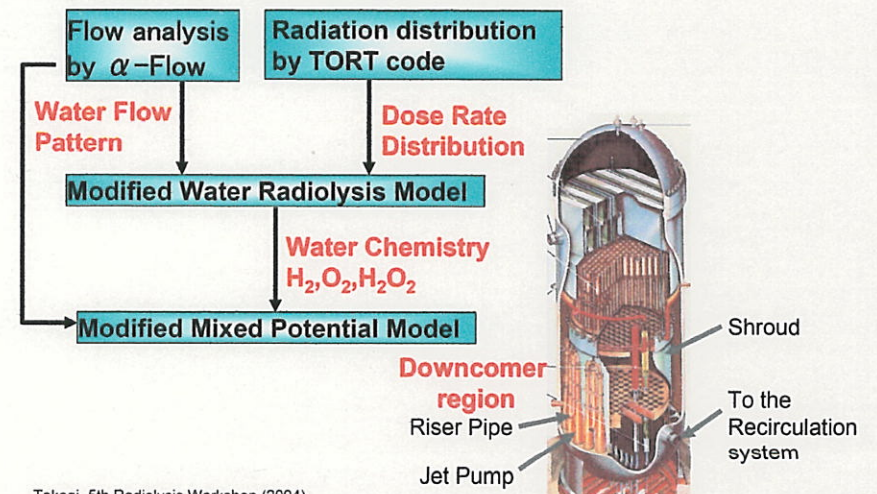
- $H \rightarrow e^- + H^+$
- $H + H_2O \rightarrow OH + H_2$



Takagi, 5th Radiolysis Workshop (2004)

ワークショップでの検討状況

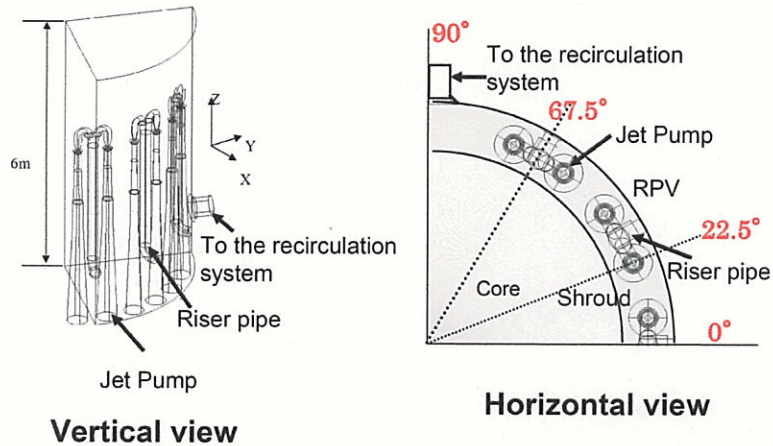
◆3次元解析による解析精度向上の取組み



Takagi, 5th Radiolysis Workshop (2004)

ワークショップでの検討状況

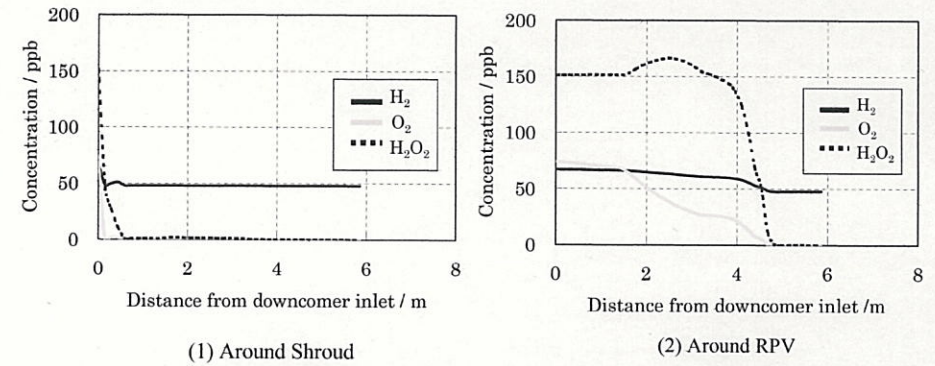
◆ダウンカマー領域の3次元的な取扱い



Takagi, 5th Radiolysis Workshop (2004)

ワークショップでの検討状況

◆90° 方向での解析例



Water chemistry around Shroud
(0.4ppm H₂ in feed water)

Water chemistry around RPV
(0.4ppm H₂ in feed water)

Takagi, 5th Radiolysis Workshop (2004)

今後の課題

◆これまでの取組み・成果

- ラジオリシスモデル、ECPモデルの開発
- 炉外での測定による解析結果の妥当性検証

◆問題点

- G値、反応速度定数の精査
- 線量率分布の詳細評価
- 局所ラジオリシスの評価(拡散境膜、クレビス)
- Mixed Potential Model の適用限界

◆今後の課題

- 炉内ECP測定による解析モデルの妥当性検証
- 炉内全域の予防保全効果の予測評価