

平成 26 年度  
原子力発電施設等安全調査研究委託費  
(原子力発電施設等安全調査)  
に関する報告書

---

平成 27 年 3 月

(独) 日本原子力研究開発機構

安全研究センター

## 目次

1. 緒言 .....	3
1.1. 原子炉水質管理技術高度化対策事業 .....	3
1.2. 軽水炉の事故時熱流動の調査 .....	4
2. 全体計画 .....	7
2.1. 原子炉水質管理技術高度化対策事業 .....	7
2.1.1 研究の方法 .....	7
2.1.2 具体的な内容 .....	7
2.2. 軽水炉の事故時熱流動の調査 .....	9
2.2.1 研究方法 .....	9
2.2.2 具体的な研究内容 .....	10
2.2.3 各研究項目の重要性 .....	14
3. 原子炉水質管理技術高度化対策事業 .....	18
3.1. 解析コードの整備 .....	18
3.1.1 ラジオリシス解析コード .....	20
3.1.2 腐食電位解析コード .....	24
3.2. 解析コード検証用データの取得及び整理 .....	28
3.2.1 非照射下における腐食電位測定 .....	28
3.2.2 ハルデン炉で取得された照射下腐食電位測定データ .....	42
3.3. 腐食電位測定データ等を用いた解析コードの検証 .....	49
3.3.1 非照射下における腐食電位測定データを用いた腐食電位解析コードの検証 .....	49
3.3.2 照射下腐食電位測定結果を用いた解析コード検証のためのモデル化 .....	56
3.3.3 照射環境下における水質の評価及び照射下腐食電位測定データと解析値の比較 .....	61
3.3.4 照射環境下で生成された酸化皮膜と解析による腐食環境予測結果との比較 .....	77
3.4. 腐食環境パラメータと経年劣化事象に関する調査 .....	97
3.4.1 PWSCC 試験 .....	97
3.4.2 PWR における DH、ECP と材料劣化に関する調査(文献調査+ラジオリシス解析検討) .....	130
3.4.3 腐食環境パラメータと経年劣化事象に関する調査のまとめ .....	143
4. 軽水炉の事故時熱流動の調査 .....	165
4.1. 前年度までの実施内容 .....	165
4.1.1 模擬炉心・スケール実験 .....	165

4.1.2	格納容器実験.....	166
4.1.3	解析.....	166
4.2.	模擬炉心・スケール実験.....	167
4.2.1	単管炉心伝熱実験装置の製作.....	167
4.2.2	高圧熱流動ループの設計.....	181
4.2.3	大口径垂直配管実験.....	183
4.3.	格納容器実験.....	190
4.3.1	大型格納容器試験装置.....	190
4.3.2	計測予備実験.....	211
4.4.	解析手法の検討.....	218
4.4.1	格子生成時のパラメータ設定が結果に及ぼす影響調査 ~PANDA ベンチマークテストを利用して~.....	218
4.4.2	メッシュタイプが及ぼす計算結果への影響調査.....	228
4.4.3	水平ジェットによる密度成層侵食・崩壊に関する解析.....	232
4.4.4	プールスクラビングに関わるノズル体系に伴う気液二相流の検討解析.....	238
4.5.	文献調査.....	250
4.5.1	PWR ホットレグにおける気液対向流制限 (CCFL) に関する研究.....	250
4.5.2	HYMERS 計画.....	266
4.5.3	リウエット速度に関する研究.....	269
4.5.4	二相流ジェットの不安定性解析.....	274
4.5.5	温度や多成分気体による成層現象、熱や物質伝達等に関する既往研究.....	281
4.6.	今後の計画.....	289
4.6.1	模擬炉心・スケール実験.....	289
4.6.2	大型格納容器試験.....	289
5.	結言.....	293
	参考文献.....	295
	用語の解説.....	306

## 1. 緒言

本事業においては、東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、「福島第一原発事故」という。）等を踏まえたシビアアクシデント時の対策や安全評価手法並びに安全対策の高度化に関連する重要性の高い課題のうち、特に中長期的な対応が必要な課題を中心に、実証試験、試験研究、解析、調査等を実施する。以下では、本事業を構成する「原子炉水質管理技術高度化対策事業」と「軽水炉の事故時熱流動の調査」について、それぞれ、背景や研究目的等を説明する。

### 1.1. 原子炉水質管理技術高度化対策事業

軽水炉プラントの減速材及び冷却材としての役割を果たす水は、炉心及びその周辺で中性子線や $\gamma$ 線などの放射線を受け分解し、酸素や過酸化水素などの酸化剤が生成される。また、冷却材である水は系内を循環するために燃料被覆材や構造材と直接に接し、材料腐食に起因した様々な問題の要因となる。さらに、材料から溶出した腐食生成物は燃料被覆管表面へ付着し、放射線を受けることで放射化する。燃料被覆管表面の放射化物質は、冷却材の流れとともに系内の機器や配管へ移送され表面に付着するため、プラントの線量率上昇の原因となる。このように、冷却材は燃料や構造材料の腐食に伴う諸問題やプラント従事者の被爆上昇に直接的に影響するため、水質管理の最適化による材料腐食環境の緩和や放射化物質の取り込み抑制による線量低減など、種々の対応が検討、導入されており、プラントの水質管理の最適化は、プラントの安全確保に関わる重要な課題である。

沸騰水型軽水炉（BWR）では、燃料表面での沸騰による注入物の燃料表面への析出を避けるために中性の純水が使用される。原子炉内における水の放射線分解で発生する酸化性化学種は、構造材の応力腐食割れ（SCC）の要因となることが知られており、冷却材に水素を注入し水の放射線分解で発生する酸化性化学種濃度を低減させて SCC を緩和させる水質管理が適用されている。しかし、この水素注入水質（HWC）により得られる SCC 緩和効果のメリットを、機器の点検周期などのプラントの運用へ反映されるには至っていない。材料の腐食環境を表す腐食電位（ECP）は、SCC との相関を示す指標として従前より用いられている。日本機械学会が策定した発電用原子力設備規格 維持規格[1]では、ECP に応じた SCC き裂進展速度が規定されており、ECP の値に応じてき裂進展速度を評価することが可能である。現在、維持規格をプラントの運用に適用するために必要となる民間規格の策定の準備が進められている。なお、HWC では、水素注入量の増加に伴い ECP は低下するものの、ある程度以上の水素を注入すると  $16O(n,p)16N$  反応で生じる  $16N$  が揮発性のアンモニア系に変わるため、主蒸気系の線量上昇につながる。そのため、HWC は、水素注入による腐食環境緩和効果と線量上昇の兼ね合いを図りながらの適用が必要となる。

沸騰水型軽水炉（PWR）の一次冷却材中には、炉心の出力制御のためにボロンが添加さ

れるとともに pH 調整剤として LiOH が添加されている。また、水の放射線分解による酸化性化学種の生成を抑制するために高濃度の水素が溶存されている。PWR の一次系に使用される材料の接液面積比は、Ni 基合金（インコネル 600 及び 690 合金）が全体の約 7 割、ステンレス鋼が約 1 割、ジルコニウム合金が約 2 割である。これら材料の腐食形態としては、全面腐食及び一次系冷却材中の応力腐食割れ（PWSCC）がある。PWSCC の発生・進展メカニズムは明らかとはなっていないが、近年の研究により、現在の一次系冷却材中の水素濃度管理範囲で PWSCC のき裂進展速度の極大値を有すること、現在の水素濃度管理範囲より高濃度側もしくは低濃度側でき裂進展速度は低下することが明らかとなっている。国内の PWR では、被ばく低減や PWSCC のき裂発生感受性の低減も期待し、水素濃度管理範囲より低濃度側での運用を目指している[2]。目標とされる水素濃度管理範囲は、現在の保安規定における制限値を下回ることになり、また、水素濃度を低減する際には、水の放射線分解による酸化性化学種の生成が十分に抑制され、ステンレス鋼の SCC 抑制効果が十分に担保されていることを評価・確認する必要がある。

本事業では、既設軽水炉における構造材料の高経年化対応や燃料被覆管健全性の確保を目的とした水質管理の変更に関して、その効果が正しく評価されていることの確認や今後見込まれる保安規定変更等に対応するために必要な技術的知見を収集・整備する。

本報告書では、「原子炉水質管理技術高度化対策事業」に関して、以下の 2.1 章で全体計画について述べ、3 章では本年度の調査内容について述べる。最後に 5 章で結論を纏める。

## 1.2. 軽水炉の事故時熱流動の調査

本調査は、1) 平成 25 年の規制基準の改正、2) 熱水力評価手法の高度化に係る世界的な方向性、3) 国産の事故解析コードの開発、4) 産業界での研究・開発の方向性等を背景とし、原子力規制庁における規制判断や基準類の整備等に役立てるための技術的知見の獲得を目的とするものである。以下にこれらの背景と目的について簡単に説明する。

一つ目の規制基準の改正に関しては、重大事故の発生防止のためのアクシデントマネジメント(AM)策の整備が規制対象となったことが本研究の背景として重要である。AM 策の整備及びその有効性の確認のためには、保守的評価コードではなく、現象を忠実に予測する最適評価コードを必要に応じて用いることが重要である。従来、我が国では、安全研究として最適評価コードの整備がなされてきたものの安全規制では最適評価コードを用いた評価を要求してこなかったこともあり、今後、その性能評価に関する知見を蓄積し、評価手法を高度化させることが重要である。安全解析コードの妥当性評価は、一般に **Verification and Validation (V&V)** と米国等と呼ばれており、この重要性は、我が国でも近年認識されている。V&V においては、安全評価に使用した解析コードが妥当性評価に用いる実験結果を良く再現していることを確認するとともに、解析コードで使用されるモデルの実機適用

性、すなわち、モデルの検証・開発に用いた実験と実機の大きさの違い等の影響（スケール効果）が適切に考慮されていることを確認する必要がある。

同様に、重大事故発生後の影響緩和のための AM 策の整備が規制要求になったことも本事業の背景として重要である。影響緩和のためには、格納容器の閉じ込め機能の喪失に影響する脅威事象の進展挙動やそれに対する AM 策の有効性を評価することが重要である。本事業で研究対象とする熱水力現象に関しては、水素爆発・燃焼や過温破損が格納容器脅威事象と考えられ、これらの挙動についての評価並びに安全対策の有効性を安全審査で確認することが重要である。また、原子炉事故時のソースタームを評価する上でエアロゾル等の FP の移行挙動の予測手法を高度化することも AM 策の有効性を評価する上で重要である。FP 移行挙動は熱流動挙動に密接に関連することから、熱流動評価手法の検討から FP 移行挙動の評価手法を高度化することも期待できる。

二つめの評価手法の高度化に係る方向性に関しては、世界的に、設計基準事故についての安全評価が、保守的な評価から不確かさを考慮した最適評価を用いる方法に移行しつつあることが重要である。この方法では、解析コードによって評価される燃料棒被覆管最高温度(peak cladding temperature: PCT)のような重要な評価指標に対する入力パラメータや評価モデルの不確かさの影響を検討することにより、評価結果の不確かさの幅を適切に評価し、不確かさを踏まえて評価される危険側の評価値が判断基準を満足していることを確認する。この手法は、米国等ですでに安全規制で採用されており、我が国でも導入される方向性がある。OECD/NEA 等の国際機関でなされた評価でも高度化のための課題は多くあるとされていることから、課題を踏まえ必要な知見や基準類を整備することが重要である。

三つ目の背景は、国産コード開発に関連している。近年の社会情勢の変化から、米国等で開発された安全評価用コードのソースコードの入手が困難になったことにも対応し、国産コード整備の重要性が認識されている。また、現在世界的に使用されている安全評価用のコードの多くは、古い時代に開発が開始されたこともあり、コンピューター言語の様式が古く、ソースコードが非常に読みにくく改造がしにくいことも考慮すべきところである。最新のプログラミング技術を用い、改造が容易なコードを開発することは、最新知見を安全評価手法に迅速に反映することや安全研究分野を若手研究者にとって魅力あるものにする観点からも重要である。

四つ目の産業界や学協会での開発・研究の方向性に関しては、福島第一原発事故以前に実施されていた産業界や学協会での様々な検討から概要を理解することができる。例えば、我が国では、BWR の新型燃料の安全審査において、実規模での実証試験により熱水力評価手法の妥当性の確認が行われてきたが、燃料集合体の大型化とともに実証実験が困難にな

ってきていた。これを踏まえ、より高度なサブチャンネル評価手法の整備により、実験を一部代替する手法が重要視され開発が行われてきた。福島第一原発事故後の現時点では、これらに関する研究・開発は活発ではないものの、このような実験を代替するための評価手法の高度化は、安全評価手法の高度化の観点からも重要である。

本研究は、これら新規制基準の策定、安全評価手法の高度化、国による国産コードの開発、民間の研究・開発動向等を背景とし実施するものである。主たる研究対象を、炉心損傷前までの原子炉、及び、炉心損傷後の格納容器での熱水力現象とし、実験を中心とした研究を実施する。これにより、事故時の原子炉及び格納容器での熱水力挙動等に関する工学的理解を向上させ、実験データベースを構築するとともに、解析モデルを整備する。得られた最新の技術的知見は、規制庁による事故解析コードの開発、並びに、安全審査における判断根拠等の整備に役立てられる。

本報告書では、「軽水炉の事故時熱流動の調査」に関して、以下の 2.2 章で全体計画について述べ、4 章では本年度の調査内容について述べる。最後に 5 章で結論をまとめる。

## 2. 全体計画

### 2.1. 原子炉水質管理技術高度化対策事業

#### 2.1.1 研究の方法

軽水炉における構造材料の高経年化対応や燃料被覆管健全性の確保を目的とした水質管理の変更に関して、その効果が正しく評価されていることを確認するとともに、今後見込まれる保安規定変更等に対応するために必要な技術的知見を収集・整備する。BWR では、SSC 緩和のために HWC により ECP を大きく低下させ、所定部位の ECP が目標値を下回ることを確認する必要がある。一方 PWR では、現在の水素濃度管理では十分に低下している ECP が、一次系冷却材中の水素濃度を低減させることで上昇しないことを確認する必要がある。プラント内部の ECP の評価は、ラジオリシス解析と ECP 解析の組み合わせで行われ、解析手法や技術は BWR と PWR で共通である。本事業では、プラント内部の ECP を評価するために必要となる解析手法を整備するとともにそのために必要となる試験を実施する。

#### 2.1.2 具体的な内容

ラジオリシス解析コードの改良及び ECP 解析コードの整備を行うとともに、コードの検証に必要な ECP 測定データをオートクレーブ試験及び非照射下試験ループを用いて取得する。また、改良・整備した解析コードの放射線照射環境下における ECP 評価への適用性を確認するため、ノルウェー ハルデン炉で取得された照射下 ECP 測定データを入手するとともに当該データが取得された試験装置をモデル化し、測定値と解析値の比較を行う。また、放射線照射下で生成した酸化皮膜の分析等により得られる情報から、改良・整備した解析コードの放射線照射環境下における ECP 評価との相関を確認する。さらに、プラント高経年化に対する水化学管理の影響に関して既往知見の調査及び整理を行う。



表 2.1-1 原子炉水質管理技術高度化対策事業の全体計画

H24	H25	H26
水化学管理及び放射線分解解析に関する調査	計測機器の整備	
	解析コードの整備	解析コードの整備 ECP測定試験 照射下ECP測定データの解析 放射線照射下で生成した酸化皮膜分析 プラント高経年化への水化学管理の影響に関する既往知見の調査

## 2.2. 軽水炉の事故時熱流動の調査

### 2.2.1 研究方法

本事業で実施する炉心損傷前の原子炉熱流動に関する研究では、従来から国内外の研究機関により熱水力安全評価に関し多くの研究が実施されてきたこと、及び、熱水力コード開発支援のため広範囲な研究を実施する必要があることから、従来研究を十分踏まえるとともに複数の実験装置を用いて包括的な検討を実施する。複数の実験装置を効率的に整備できるように、汎用性を有する熱流動ループの整備を行なうことにする。また、研究対象とする熱水力現象の選択にあたっては、炉心損傷前の事故時熱水力評価については、最も重要なパラメータである燃料棒被覆管表面最高温度（Peak Cladding Temperature: PCT）に強く影響する現象に着目する。このため、炉心伝熱に直接的に影響する現象、並びに原子炉システム内での熱水力的な相互作用により間接的に PCT に強く影響する現象について検討する。

炉心損傷後の格納容器での熱流動等に関する研究では、近年ヨーロッパの研究機関で実施されている研究を踏まえ、格納容器の健全性に影響する水素爆発・燃焼、並びに、過温破損に関する熱流動挙動等を対象とした研究を実施する。また、放射性物質の移行挙動は、熱流動に強く影響を受けることから、これらについても研究対象とする。

これらについて、実験的な検討を行う際には、実験体系と実機の大きさ等の違いにより生じる現象の違い、いわゆるスケーリング効果について十分な検討を加える必要がある。スケーリング効果の把握には、従来より、物理現象を把握し、重要な現象の影響を無次元数で表し評価する方法がとられている。このためには現象を機構論的に把握するとともに、複数の装置を用いて様々な条件で実験することが効果的である。また、近年では、数値流体力学（Computational Fluid Dynamics; CFD）等の解析手法の高度化を背景とし、関連する重要な素過程を詳細に解析的に考慮することにより実機での現象を評価することも行われつつある。このような素過程まで考慮した詳細評価手法の整備のためには、計測技術に関しても詳細なものが必要となる。

解析に関しては、従来より最適評価手法として整備されてきた集中定数(Lumped Parameter:LP)コードに使用する解析モデルの整備とともに、今後の安全研究や規制の方向性を踏まえ、CFD コードに使用する解析モデルの整備を行う。特に、格納容器のような大規模体系においては三次元的な流動挙動が支配的となるため、CFD 手法を用いることが AM 策の有効性等を詳細に検討するために重要と考えられている。

以上から、本研究では、炉心損傷前の熱水力に関しては、PCT に影響する複数の重要現象に着目し、炉心熱伝達及びスケーリング効果の把握を目指した研究を汎用熱流動ループ

等を整備し実施する。また、炉心損傷後の格納容器での熱水力に関しては、水素爆発・燃焼や過温破損のような格納容器脅威事象、並びに、熱水力挙動に密接に関係する FP 移行挙動に着目した実験を行う。スケーリング効果の把握には、工学的考察に基づく無次元数等を用いた検討とともに、安全評価手法の高度化の方向性を踏まえ CFD 手法を用いた検討を実施する。さらに CFD 手法の検証・開発のために詳細な実験データが必要なことから、二相流計測技術の整備も行うことにする。これら実験で得られたデータベースを活用し、LP コード及び CFD コードの高度化のための解析モデルの整備を行う。

## 2.2.2 具体的な研究内容

上で述べたように、炉心損傷前の熱水力に関する実験では、炉心伝熱、及び、炉心以外の機器でのスケーリング実験を実施する。また、炉心損傷後の格納容器での熱水力に関する実験では、水素挙動や過温破損並びに FP 移行挙動に関する実験を実施する。これらと並行し詳細計測手法を整備するための詳細計測実験も実施する。解析研究に関しては、LP コード及び CFD コードに使用する解析モデルの評価及び開発に関する検討を行う。以下に、その内容とスケジュールについて説明する。

炉心損傷前の熱水力に関する実験のうち、炉心伝熱実験に関しては、JAEA において過去に実施した多くの炉心実験の経験を踏まえ、それらのデータベースを拡充する実験を行う。定常状態での実験のみならず、燃料棒被覆管表面最高温度(PCT)に強く影響する破断直後の急減圧時の挙動（ブローダウン挙動と呼ばれる）や、運転時の異常な過渡変化等の際に生じる可能性のある沸騰遷移事象やその後のドライアウト領域の冷却挙動等に焦点をあてた炉心バンドル実験を行う。また、より詳細な計測を実施することが容易な単管実験等も実施する。実験装置の整備においては、汎用性のある熱流動ループを作成し効率的に装置整備を行うとともに、可能な限りこれまで JAEA で整備してきた設備を活用する。

通常、原子炉機器での事故時挙動を模擬する実験では、実機と同じ形状や熱水力条件で実験することは困難であることから、形状等を縮小したり、圧力・温度・使用流体等の条件を変えた実験（スケーリング実験）を実施する。一般に、スケーリング実験では、実機とは異なる現象が観測される場合が生じ得る。よって、原子炉の事故時挙動を模擬する実験結果に基づき予測モデルを作成する場合には、スケーリングの歪みによる影響を十分検討する必要がある。本研究では、JAEA における原子炉事故模擬実験の経験を活用し、PCT に強く影響しかつスケーリングに関する不確かさが大きいと考えられる現象を対象とし、低圧での空気・水二相流実験や高圧での水・蒸気二相流実験を適切に組み合わせ、スケーリングの影響を明確にするための実験を行う。当面は、従来検討で PCT に強く影響することが示されている SG 入口部斜め配管での対向二相流等に焦点をあてた実験を行う。

炉心損傷後の格納容器での熱流動に関する実験では、格納容器気相部で生じる熱流動、液相部で生じる熱流動、エアロゾル等 FP 挙動に関する実験を実施する。気相部熱流動実験では、OECD/NEA 等での検討で課題となっている基礎的な熱流動現象（噴流、密度成層、自然循環、凝縮等）や、それらに対する幾何形状の影響、並びに、AM 策の有効性等に関する実験を実施する。特に、福島第一原発事故での格納容器損傷原因として考えられている過温破損について、従来格納容器模擬装置を用いた実験がほとんど行われていないことから、高温条件での実験を実施する。AM 策に関する実験では、格納容器の外表面冷却、スプレイ水による冷却、ファンクーラーによる冷却、ベントによる排気効果、窒素ガス注入による置換効果等に関する実験を実施する。FP 移行に関連した実験としては、プールスクラビングや、大空間での重力沈降、壁への付着、それらに対する水蒸気の凝縮・蒸発、並びに、自然循環の影響等に着眼した実験を実施する。

詳細なデータを取得するための計測機器の整備を目的とした詳細計測実験では、当面、ボイド率分布や界面濃度分布等の計測のためのワイヤーメッシュセンサーや 4 センサープローブを用いた計測実験を実施する。ここで、4 センサープローブは、JAEA で開発中の 4 本のプローブによる二相流体の電気抵抗の計測に基づく計測手法である。また、格納容器内の熱水力に関する実験では、速度分布計測のために、光学的な計測手法である粒子画像流速計 (Particle Image Velocimetry; PIV) やレーザードップラー流速計 (Laser Doppler Velocimetry; LDV) 等を用いる。混合ガス成分計測のためには、ガスを吸引し質量分析計等を用いて分析する。これらの計測手法は、特に大型装置への適用等に関してかならずしも確立したものではないことから、詳細計測実験を実施し手法を整備した上で試験装置に使用することにする。

整備された実験データベースは LP コードと CFD コード用の解析モデルの高度化に活用される。ここで LP コードとは、集中定数 (Lumped Parameter) コードのことであり、安全研究で性能が検証され、安全評価において使用されてきたコードである。例えば、RELAP5、TRACE、MELCOR、MAAP 等や、事業者が使用する多くの評価コード、さらには、原子力規制庁が検討を開始した国産コードも LP コードに分類される。比較的大きな検査体積（コントロールボリューム、ノード、セル、メッシュとも呼ばれる）の中での質量・熱量等の保存則を計算することにより、事故の進展挙動等を解析する。LP コードには、保守的評価コードと最適評価 (BE) コードの二種類があり、本研究では BE コードを直接の研究対象とする。LP コードでは生じる現象を簡素化して一次的に取り扱うことが多いが、多次元解析機能の追加等による性能向上等も検討する。また、CFD コードは最新の技術に基づく詳細な解析のためのコードで、商用の汎用コード (FLUENT 等) や各国の規制当局が開発したコードがいくつかある。LP コードの場合と比べて保存則を計算するための検査体積は極めて小さく、システムを極めて多くの検査体積に分割し計算するため、一般に極め

て長時間の計算時間を必要とするが、三次元的な流動を詳細に解析する場合には CFD コードが必要である。

現段階での全体計画の概要を表 2.2-1 に示す。炉心損傷前の熱水力に関する実験では、H24 年度より高圧熱流動ループの整備を開始し、伝熱試験体の一部を設置する。H27 年度以降、実験を行うとともに、装置整備を継続し、バンドル実験装置等の炉心伝熱実験装置を設置し実験を実施する。炉心損傷後の格納容器熱水力に関する実験は、H25 年度から H26 年度にかけて実験装置を整備し、H27 年度より実験を開始するとともに、装置整備を継続する。詳細計測実験はこれらと平行して実施し、熱水力実験の計測に反映させる。これら実験研究の成果を活用し、解析研究を実施する。

表 2.2-1 軽水炉の事故時熱流動の調査

	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30	H31	H32	H33
模擬炉心 ・ スケール実験										
			←	←	←	←	←	←	←	←
				←	←	←	←	←	←	←
格納容器実験										
LSTF実験										
解析評価										

### 2.2.3 各研究項目の重要性

前節でまとめられた研究内容は、本来的には、研究目的に応じた重要性と研究対象に係る現状技術の成熟度の観点から、多くの候補の中から優先度を定めた上で、決められるべきものである。このような検討を行うため、近年、現象を抽出し優先順位づけを行うための表 PIRT (Phenomena Identification and Ranking Table) を作成し、総合的に検討することが行われている。例えば、原子力学会「シビアアクシデント評価」研究専門委員会では、福島第一原子力発電所事故のシミュレーションに対する課題を抽出することを目的とした PIRT の作成がなされている。また、原子力学会の熱流動部会「熱水力安全評価基盤技術高度化検討WG」においても H27 年 3 月を目途に、熱水力技術戦略マップの策定が進められている。ここで、技術マップは、既存の知見や技術の適用限界（技術の到達点）を整理し、さらに、安全審査や評価解析に、新たに必要となる知見や重要度（緊急性、必要性）の検討を狙いとするものであり、項目の広がり異なるものの PIRT と同様な視点で検討がなされる。ただし、これらの PIRT 及び技術マップは、目的等の違いにより、参考にはできるものの本事業での課題抽出のためにはそのまま使用できない。また、一般に、極めて多くの項目を考慮した網羅的な PIRT を作成するためには、多くの専門家が十分な時間や労力をかけることが必要になり、簡単に実施できるものではない。

このため、本事業では、PIRT は作成しないものの、適切な PIRT を作成した場合には、優先度が高い研究項目として、位置づけられることが十分な蓋然性をもって推定される研究項目を、原子力機構における長年の熱水力安全研究の経験や従来研究の調査等に基づき定めている。この検討については、本事業のこれまでの報告書や本報告書の複数の場所で、従来研究の調査という形でまとめられている。ここでは、それらを参照しつつ、主に H27 年度に実施する下記の研究項目について、「目的に応じた重要性」と「関連技術の成熟度」を整理し明確にする。

- 燃料被覆管のリウエット挙動
- 蒸気発生器入口配管での対向二相流制限 CCFL
- 格納容器内水素分布及び温度分布

なお、「目的に応じた重要性」における「目的」は、1.2 章に記載したように、1) 平成 25 年の規制基準の改正、2) 熱水力評価手法の高度化に係る世界的な方向性、3) 国産の事故解析コードの開発、4) 産業界での研究・開発の方向性等を背景にした事業目的である。また、適切な PIRT については、規制庁や学会等での検討を参考にし、今後検討することにする。

### 2.2.3.1. 燃料被覆管のリウエット挙動

BWRの運転時の異常な過渡変化や事故時において、燃料棒被覆管の表面上の液膜が消失し（ドライアウト）、被覆管温度が上昇することが想定される。安全審査では、このような場合にも燃料の健全性やプラントの安全性が確保されるよう、運転時の異常な過渡変化に対しては、ドライアウトが生じないこと、事故に対しては、被覆管温度が制限値以下であることを確認する。

これに関して、2003年、原子力学会では、産業界の要請や安全研究の進展による知見の増大等を理由に運転時の異常な過渡変化時に、ドライアウトをある制限された条件下で許容する基準とそれを確認する方法を学会標準として提案した[1]。その中では、熱水力挙動予測に関し、ドライアウト後の熱伝達率及びリウエット挙動に関し推奨する手法をまとめている。これに関し、4.5.3でまとめるように当研究グループでは、原子力安全・保安院からの受託研究として、熱水力的な検討を行うための実験研究を実施した。

このリウエット挙動について、検討条件を運転時の異常な過渡変化だけに限定せず事故状態まで拡張して検討する場合には、下記のような「本事業の目的に応じた重要性」があると考えられる。

一つ目の重要性は、新規制基準の適合性審査においては、炉心損傷防止の観点から多重故障時の条件を解析する必要性があり、従来の審査と比べてより広い熱水力条件での挙動を検討する必要性が生じることに関連する。よって、解析結果の不確かさを把握する観点から、より広い条件でのドライアウトやリウエット実験を実施することが重要になる。

二つ目の重要性は、本現象の評価技術が、サブチャンネルコードの開発に大いに関連することに関連する。BWR炉心解析を高度化するため、サブチャンネルコードでは、環状噴霧流の三つの流動場である液膜、液滴、蒸気の流動を二相流三流動場モデルを用いて解析する。サブチャンネルコードの整備は、特に、限界熱流束CHF予測手法の確認に際して、バンドルの大型化にともなう実証実験の実施の困難さも考慮し、解析による実験の代替等の観点から産業界で開発が進められてきたところである。技術の進展の方向に対応していることから、規制側においては、評価手法を準備しておくことの重要性が認識され、開発する国産コードにおいて、拡張機能として、三流動場モデルを含めることが予定されている。よってこれを支援するため、本事業において、本モデルの妥当性評価や改良に資するための液膜や液滴挙動に関するデータを取得することは重要である。

三つ目の重要性として、運転時の異常な過渡変化時の判断基準として、液膜の有無ではなく被覆管温度及びドライアウト時間を用いることには、一定の合理性があることから、



関連する評価技術を整備しておくことには、安全研究の進展を踏まえた合理的な判断基準の整備の観点からの重要性があると考えられる。

これらから、新規制基準対応、規制庁でのコード開発の支援、技術の進展方向を踏まえた今後の安全規制の高度化の観点から、三流動場モデルの高度化も狙いとしたリウエット挙動に関する研究を実施することには重要性があると言える。

一方、技術の成熟度に関連し、もともと当研究グループで保安院からの受託事業を実施した背景として、高圧・高流量・高熱流束条件でのリウエット挙動に関する従来研究は我が国において本学会標準の策定に関連して実施された実験にはほぼ限定されたこと、したがって実験的知見が必ずしも多く無かったことが挙げられる。当時、当グループが実施した研究の成果ならびに、その後の検討により抽出された課題については、本報告書の 4.5.3 にまとめられている。そこでは、1) リウエット速度を比較的簡単に圧力、流量、クオリティ等の局所的なパラメータで表すことができるのは、その伝播がリウエット点近傍での濡れ温度等で定まる除熱限界で制限される場合に限定される可能性があること、2) より一般的な条件では三流動場モデルを用いる必要があることが、最近の検討結果を引用し示されている。これら除熱限界や三流動場モデルについての実験的知見は十分にはなく、関連技術は未成熟であると言える。

これらより、本事業の目的に応じた重要性と技術の成熟度の観点から、本研究を実施することの重要性は十分に高いと考える。

#### 2.2.3.2. PWR ホットレグでの対向二相流制限 CCFL

本現象は、PWR のホットレグと蒸気発生器が接続する斜め配管や蒸気発生器入口プレナム付近での炉心からの蒸気流と炉心方向に落下する水の対向二相流に関する現象である。蒸気流は炉心発熱により発生した蒸気や压力容器内の水の減圧沸騰により発生した蒸気で構成され、蒸気発生器での凝縮やコールドレグの破断口からの蒸気放出により駆動される。落下液流は、SG 伝熱管での凝縮水やもともと一次系内にあり蒸気発生器に蓄積した水が重力により下方に落下することにより駆動される。このような条件では、蒸気流量がある制限値を超える場合に落下水量を制限することが知られており、その結果、斜め配管や SG 入口配管に蓄積した水の水頭圧や流動摩擦により、炉心水位を押し下げる方向の圧力が発生する。炉心水位の低下は炉心燃料棒の過熱の原因となることから、安全評価上重要な現象である。実際、従来より原研を含め国内外で行われてきた多くの冷却材喪失事故実験等において、CCFL 挙動の炉心温度に対する影響が確認され、その重要性が認識されている。

この重要性の認識から、80 年代以降最近においても、国内外で多くの実験がなされてい

る。しかしながら、実機に結果を外挿するために必要なスケーリング効果を把握するため、文献を網羅的に調査すると、本報告書の 4.5.1 で示すように、種々のパラメータの影響は十分には整合していない。4.5.1 章では、管径、水平部長さ、斜め管傾斜度・長さ、曲り部及び傾斜管出口形状、圧力、流体の種類の影響に関する従来実験の整理を試みているが、従来実験には多くの整合しない結果が示されている。この不整合なところに着目し、配管口径、形状等のパラメータ効果を明確にすることにより、従来実験全体を説明する整合的な検討が可能になり、スケーリング効果を把握するために重要な知見が得られると考えられる。

これらから、本現象について、安全評価上の重要性、及び、現行技術の成熟度から、適切な視点を持った研究を実施することの重要度は高いと考える。

#### 2.2.3.3. 格納容器内水素分布及び温度分布

本事業では、シビアアクシデント時の格納容器内の熱水力挙動に関し、水素リスクや過温破損等に強く影響する熱水力研究を実施する。実験においては、水素ガス濃度や温度分布の評価手法の整備のために、格納容器内で生じる自然対流、密度成層の生成と浸食、ジェット流、壁面や熱交換器表面への凝縮等の熱水力挙動を検討する。

水素濃度分布を評価することは水素爆発・燃焼が発生する可能性やその影響を評価する上で重要である。良く攪拌される場合には、格納容器内で均一な状況が期待できるが、水蒸気の凝縮による水素ガスの濃縮や密度成層の発生により、局所的に水素濃度が高くなった不均一な状況が生じることが懸念される。水素リスクについての研究の重要性に関しては、本報告書の 4.5.2 に示すように、最新の OECD/NEA の研究プロジェクト HYMERS において、多くの機関が参加していることから、その重要性が国際的に認識されていることが理解できる。温度挙動については、福島原発事故で過温破損により格納容器が損傷したと推定され、そのため、事故の進展や有効な AM 策を整備する上で、温度挙動を予測する手法を整備することは重要と言える。水素ガスの場合と同様に、温度挙動についても分布やそれに影響する因子の把握が重要である。

一方、関連技術の成熟度に関しては、現在実施中の HYMERS 計画において、基礎的現象に係る知見の獲得を目指した実験が計画されていることや、過温破損については、従来、過温破損が問題になるような高温での実験が全く実施されていないことから、従来技術の成熟度の不十分性が理解できる。

よって本事業の目的に応じた重要性並びに関連技術の成熟度の点から、格納容器内の水素分布及び温度分布を予測する手法を高度化する研究の重要性は高いと言える。

### 3. 原子炉水質管理技術高度化対策事業

#### 3.1. 解析コードの整備

放射線照射環境下における ECP 解析でのラジオリシス解析と ECP 解析の関係、及び解析における水の流れの取扱をそれぞれ図 3.1-1 及び図 3.1-2 に示す。放射線照射環境下の ECP を解析的に評価するためには、定数群や解析条件を用いてラジオリシス解析を行い、その場に存在する酸素、水素及び過酸化水素の濃度を評価する。評価された酸素、水素及び過酸化水素濃度は、水の流速等の条件とともに ECP 解析コードの入力となり、その場におけるステンレス鋼の ECP が求められる。水の流れを取り扱う際には、流れの場を複数の領域（ノード）に分割し、上流側のラジオリシス解析で求められた酸素、水素及び過酸化水素濃度が次に続くノードの初期濃度となり当該ノードのラジオリシス解析が実施される。求められた酸素、水素及び過酸化水素濃度は次に続くノードの初期濃度となる。なお、各ノードにおいて図 3.1-1 の計算プロセスが実施されるため、水の流れに沿って各ノードでの ECP が算出できる。

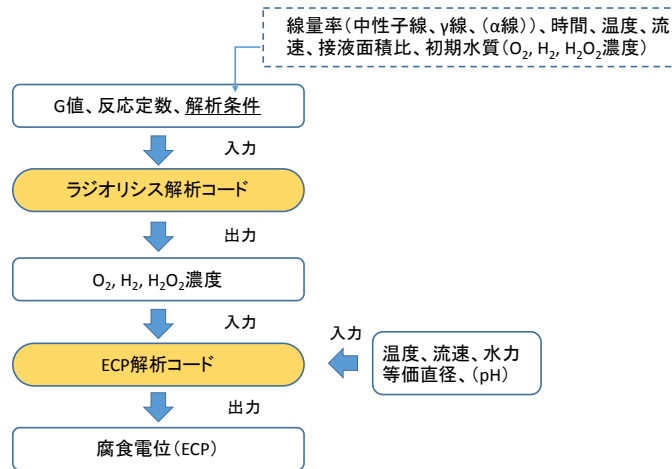


図 3.1-1 ラジオリス解析及び ECP 解析の関係

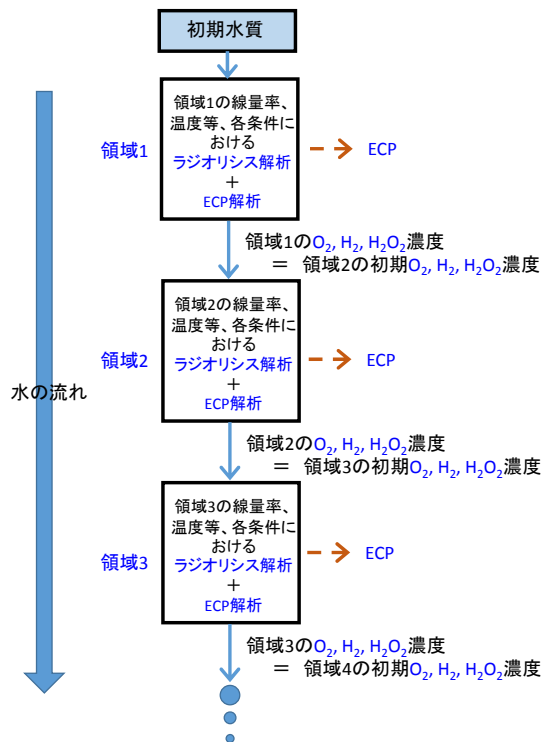


図 3.1-2 解析における水の流れの取扱い

### 3.1.1 ラジオリシス解析コード

ラジオリシス解析コードでは、水が放射線の照射を受けることで生成するラジカル、原子や分子等とそれらの相互作用を計算する。基礎式を式(3.1.1-1)に示す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i^j}{\partial t} = & g^\gamma Q^\gamma + g^n Q^n + g^\alpha Q^\alpha \\ & - \sum k_{mn}^i C_m^j C_n^j - C_i^j \sum k_{is} C_s^j \\ & + \sum k_{mn}^{wi} C_m^j C_n^j - C_i^j \sum k_{is}^w C_s^j \\ & + C_i^{j-1} \frac{G_{in}^j}{V^j} - C_i^j \frac{G_{out}^j}{V^j} \end{aligned} \quad (3.1.1-1)$$

$C$ :化学種の濃度(mol/l)	$g$ :G 値(1/100eV)
$Q$ :水のエネルギー吸収量(Gy/s)	$k$ :2 次反応の反応定数(l/mol/s)
$G$ :流量(m <sup>3</sup> /s)	$V$ :水の体積(m <sup>3</sup> )
$i, m, n, s$ :化学種	$w$ :壁面
$\gamma$ :ガンマ線	$n$ :中性子
$\alpha$ : $\alpha$ 線	$j$ :ノード番号

上式右辺の第一、二項目は中性子線、 $\gamma$ 線及び $\alpha$ 線による放射線分解生成種の直接生成、第三、四項は、2 次反応による生成及び消失項である。第五、六項は、金属表面での反応項、第七、八項は隣接ノードとの接続項である。計算に用いた G 値、2 次反応定数をそれぞれ表 3.1.1-1、表 3.1.1-2 に示す。なお、照射装置内の水温には分布があるため、2 次反応定数を以下のアレニウスの式で補正している。

$$k(T) = k(T_0) \exp \left[ \frac{Q_a}{R} \left( \frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (3.1.1-2)$$

$Q_a$ :活性化エネルギー(J/mol)	$R$ : 気体定数(=8.31J/mol/K)
$T$ :温度(K)	$T_0$ :基準温度(=561K)
$k(T)$ :絶対温度 T における反応定数(l/mol/s)	

ラジオリシスコードでは、水の流れを取り扱うために、図 3.1.1-1 及び式(3.1.1-3)に示すように前ノードの出口濃度を次ノードの初期濃度として計算する。ノードの接続に際しては、ノード間での温度差に起因した水の密度変化を考慮する必要があるため、式(3.1.1-4)に示す密度による濃度補正を行っている。

$$C_i^{j,in} = C_i^{j-1,out} \quad (3.1.1-3)$$

$C_i^{j,in}$ : ノード  $j$  における初期濃度 (mol/l)

$C_i^{j-1,out}$ : ノード  $j-1$  における出口濃度 (mol/l)

$$C_i^{j,in} = \frac{\rho_j}{\rho_{j-1}} C_i^{j-1,out} \quad (3.1.1-4)$$

$\rho_j$ : ノード  $j$  における初期濃度 (mol/l)

$C_i^{j-1,out}$ : ノード  $j-1$  における出口濃度 (mol/l)

水の流れを詳細に扱うためには、分岐流を考慮する必要がある。そこで、ラジオリシス解析コードに分岐流の取扱を導入した。例えば、流れが二つに分岐する場合、すなわちノード 1 がノード 2 とノード 3 に分岐し、ノード 4 で合流する場合、図 3.1.1-2 に示すようにノード  $j+2$  の濃度は  $M$  を混合比として式(3.1.1-5)となる。

$$C_i^4 = M^2 C_i^2 + M^3 C_i^3 \quad (3.1.1-5)$$

$$M^2 = (S_2 x F_2) / (S_2 x F_2 + S_3 x F_3)$$

$$M^3 = (S_3 x F_3) / (S_2 x F_2 + S_3 x F_3)$$

$S_x$ : ノード  $x$  の流路断面積 (m<sup>2</sup>)

$F_x$ : ノード  $x$  の流速 (m/s)

表 3.1.1- 1 G 値

生成種	γ 線	中性子線	α 線
e <sup>-</sup>	3.50	0.60	0.13
H	0.90	0.50	0.12
H <sup>+</sup>	3.50	0.60	0.13
H <sub>2</sub>	0.60	1.50	1.65
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	0.55	1.14	1.55
HO <sub>2</sub>	0.00	0.04	0.00
OH	4.50	1.70	0.45

表 3.1.1- 2 2 次反応定数

反応式	反応定数(558K) (dm <sup>3</sup> /mol/s)		活性化エネルギー (J/mol)	
	順反応	逆反応	順反応	逆反応
H <sup>+</sup> + OH <sup>-</sup> → H <sub>2</sub> O	1.90x10 <sup>12</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> → 2OH	6.3x10 <sup>-4</sup>		6.00x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O → H + OH <sup>-</sup>	2.90x10 <sup>2</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + H <sup>+</sup> → H	2.60x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + OH → OH <sup>-</sup>	2.90x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> → OH + OH <sup>-</sup>	2.40x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H + H → H <sub>2</sub>	9.00x10 <sup>10</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + HO <sub>2</sub> → HO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	3.00x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + O <sub>2</sub> → O <sub>2</sub> <sup>-</sup>	2.60x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
2e <sup>-</sup> + 2H <sub>2</sub> O → H <sub>2</sub> + 2OH <sup>-</sup>	1.75x10 <sup>6</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
2OH → H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	2.50x10 <sup>10</sup>		8.40x10 <sup>3</sup>	
OH <sup>-</sup> + H → e <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O	7.00x10 <sup>8</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + H + H <sub>2</sub> O → OH <sup>-</sup> + H <sub>2</sub>	4.82x10 <sup>9</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + HO <sub>2</sub> <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O → OH + 2OH <sup>-</sup>	5.35x10 <sup>8</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H + OH → H <sub>2</sub> O	2.30x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
OH + H <sub>2</sub> → H + H <sub>2</sub> O	1.40x10 <sup>9</sup>		1.93x10 <sup>4</sup>	
H + O <sub>2</sub> → HO <sub>2</sub>	1.50x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H + HO <sub>2</sub> → H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	3.00x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H + O <sub>2</sub> <sup>-</sup> → HO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	3.00x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
e <sup>-</sup> + O <sub>2</sub> <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O → HO <sub>2</sub> <sup>-</sup> + OH <sup>-</sup>	3.57x10 <sup>9</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
H + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> → OH + H <sub>2</sub> O	2.00x10 <sup>9</sup>		1.89x10 <sup>4</sup>	
OH + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> → H <sub>2</sub> O + HO <sub>2</sub>	4.20x10 <sup>8</sup>		1.43x10 <sup>4</sup>	
OH + HO <sub>2</sub> → H <sub>2</sub> O + O <sub>2</sub>	1.00x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
2HO <sub>2</sub> → H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> + O <sub>2</sub>	5.00x10 <sup>7</sup>		1.89x10 <sup>4</sup>	
HO <sub>2</sub> → O <sub>2</sub> <sup>-</sup> + H <sup>+</sup>	3.90x10 <sup>5</sup> *	7.70x10 <sup>11</sup>	1.26x10 <sup>4</sup>	1.26x10 <sup>4</sup>
HO <sub>2</sub> + O <sub>2</sub> <sup>-</sup> → O <sub>2</sub> + HO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	5.00x10 <sup>8</sup>		1.89x10 <sup>4</sup>	
O <sub>2</sub> <sup>-</sup> + OH → OH <sup>-</sup> + O <sub>2</sub>	2.90x10 <sup>11</sup>		1.26x10 <sup>4</sup>	
2O <sub>2</sub> <sup>-</sup> + 2H <sub>2</sub> O → O <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> + 2OH <sup>-</sup>	1.27x10 <sup>5</sup>		1.89x10 <sup>4</sup>	
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> + OH <sup>-</sup> → HO <sub>2</sub> <sup>-</sup> + H <sub>2</sub> O	1.00x10 <sup>10</sup>	2.14x10 <sup>5</sup>	1.26x10 <sup>4</sup>	1.26x10 <sup>4</sup>
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> → 1/2O <sub>2</sub> + H <sub>2</sub> O	1.40x10 <sup>2</sup>		6.00x10 <sup>4</sup>	

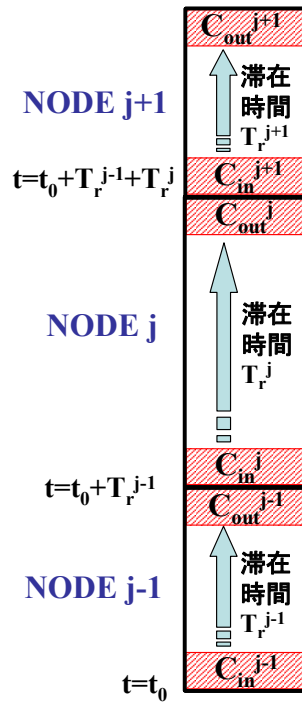


図 3.1.1-1 コード内におけるノード接続

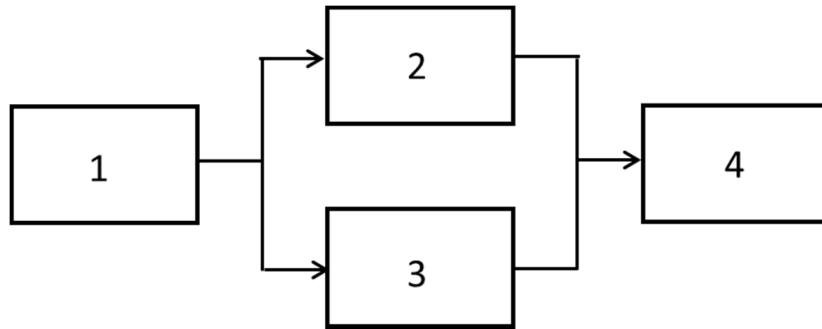


図 3.1.1-2 流路分岐の取扱い



### 3.1.2 腐食電位解析コード

混成電位モデルに基づき ECP 解析コードを整備した。混成電位モデルの基本式は以下で与えられる。

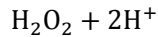
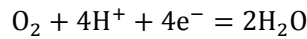
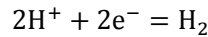
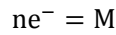
$$\sum_{j=1}^n i_{R/O,j}(E) + i_{\text{corr}}(E) = 0 \quad (3.1.2-1)$$

ここで、

$i_{R/O,j}(E)$  : 腐食電位 E における j 成分の酸化または還元電流密度(A/m<sup>2</sup>)

$i_{\text{corr}}(E)$  : 腐食電位 E におけるステンレス鋼の腐食に伴うアノード電流密度(A/m<sup>2</sup>)である。

混成電位モデルでは、以下に示される反応を考慮した<sup>[1]</sup>。アノード反応としてステンレス鋼の腐食反応及び水素の反応、カソード反応として酸素の反応と過酸化水素の反応である。



電流密度の計算には、以下の Butler-Volmer の式を用いた<sup>[1]</sup>。

$$i_{R/O}(E) = \frac{\exp\left(\frac{\eta(E)}{b_a}\right) - \exp\left(-\frac{\eta(E)}{b_c}\right)}{\frac{1}{i_{R/O}^0} + \frac{1}{i_{l,a}} \exp\left(\frac{\eta(E)}{b_a}\right) - \frac{1}{i_{l,c}} \exp\left(-\frac{\eta(E)}{b_c}\right)} \quad (3.1.2-2)$$

$i_{R/O}$  : 電流密度(A/m<sup>2</sup>)

$i_{R/O}^0$  : 交換電流密度(A/m<sup>2</sup>)

$i_{l,a}$  : アノード反応の限界電流密度(A/m<sup>2</sup>)

$i_{l,c}$  : カソード反応の限界電流密度(A/m<sup>2</sup>)

$b_a$  : アノード反応のターフェル勾配

$b_c$  : カソード反応のターフェル勾配

$\eta(E)$  : 腐食電位と平衡電位の差(V)

$$\eta(E) = E - E_{R/O}^e$$

E : 腐食電位(V-SHE)

$E_{R/O}^e$  : 平衡電位(V-SHE)

各反応の平衡電位は、以下に示す式で求められる。

1)水素

$$E_{H_2}^e = E_{H_2}^0 + \frac{2.303 \times R \times T}{2 \times F} \times \log\left(\frac{[H^+]^2}{P_{H_2}}\right) \quad (3.1.2-3)$$

$E_{H_2}^0$  : 標準酸化還元電位

$[H^+]$  : 水素イオン濃度(mol/kg)

2)酸素

$$E_{O_2}^e = E_{O_2}^0 + \frac{2.303 \times R \times T}{4 \times F} \times \log([H^+]^4 \times P_{O_2}) \quad (3.1.2-4)$$

$E_{O_2}^0$  : 標準酸化還元電位(V-SHE)

$P_{O_2}$  : 酸素ガス分圧

3)過酸化水素

$$E_{H_2O_2}^e = E_{H_2O_2}^0 + \frac{2.303 \times R \times T}{2 \times F} \times \log([H^+]^2 \times [H_2O_2]) \quad (3.1.2-5)$$

$E_{H_2O_2}^0$  : 標準酸化還元電位(V-SHE)

$[H_2O_2]$  : 過酸化水素濃度(mol/L)

交換電流密度は、以下に示す MacDonalld の式を用いた<sup>[2]</sup>。

1)水素

$$i_{H_2}^0 = 114.841 \times C_{H_2}^{0.5} \times \exp\left(\frac{-14244}{R \times T}\right) \quad (3.1.2-6)$$

$C_{H_2}$  : 水素濃度(mol/L)

2)酸素

$$i_{O_2}^0 = 114.841 \times C_{O_2}^{0.48633} \times \exp\left(\frac{-14244}{R \times T}\right) \quad (3.1.2-7)$$

$C_{O_2}$  : 酸素濃度(mol/L)

3)過酸化水素

$$i_{H_2O_2}^0 = 114.841 \times C_{H_2O_2}^{0.48633} \times \exp\left(\frac{-14244}{R \times T}\right) \quad (3.1.2-8)$$

$C_{H_2O_2}$  : 過酸化水素濃度(mol/L)

交換電流密度について、MacDonalld は実測との良い一致を得るため SF (Scaling factor)を導入しており、ここでは水素の交換電流密度について MacDonalld の推奨する 0.05<sup>[2]</sup>を採用した。

限界電流密度は、以下の式で表される<sup>[1]</sup>。

$$i_{l,H_2} = \pm 0.023 \times n \times F \times D \times C_{O/R}^b \times Re^{0.8} \times Sc^{0.4}/d \quad (3.1.2-9)$$

$D$  : 拡散係数(m<sup>2</sup>/s)

$C_{O/R}^b$  : バルク領域の濃度(mol/m<sup>3</sup>)

$Sc_{O_2}$  : シュミット数

$Re$  : レイノルズ数

$d$  : 水力等価直径(m)

なお、拡散定数については、以下に示す MacDonalld の式を用いた<sup>[2]</sup>。

### 1)水素

$$D_{H_2} = 1/10000 \times e^{-5.700267 - \frac{296.7439}{T} - \frac{288379.2}{T^2}} \quad (3.1.2-10)$$

### 2)酸素

$$D_{O_2} = 8.03 \times 10^{-7} \times e^{-\frac{3490}{R \times T}} \quad (3.1.2-11)$$

### 3)過酸化水素

$$D_{O_2} = 8.03 \times 10^{-7} \times e^{-\frac{3490}{R \times T}} \quad (3.1.2-12)$$

ステンレス鋼のアノード分極曲線は、酸素に対して図 3.1.2-1 の Hishida らのデータ<sup>[3]</sup>を、過酸化水素に対して図 3.1.2-2 の Wada らのデータ<sup>[4]</sup>を用い、酸素と過酸化水素が混在する環境では以下に示すように重み付けによりアノード電流を求めた<sup>[4]</sup>。

$$i_M = w_{O_2} i_{M,O_2} + w_{H_2O_2} i_{M,H_2O_2} \quad (3.1.2-13)$$

$$w_{O_2} = \frac{i_{O_2}}{(i_{O_2} + i_{H_2O_2})}$$

$$w_{H_2O_2} = \frac{i_{H_2O_2}}{(i_{O_2} + i_{H_2O_2})}$$

なお、アノード分極曲線はひとつであることが本質ではあるが、実際にはアノード分極特性は表面被膜性状で変化するために、ひとつの分極曲線であらゆる状況における分極特性を表現するのは不可能である。また、過酸化水素が存在すると、過酸化水素の酸化反応によるアノード電流が生じる<sup>[4]</sup>ため、アノード分極曲線はさらに変化することになる。

過酸化水素の酸化電流については、それを数式化するに足るデータが存在しないことから、ECP 解析プログラムでは明示的に取り込めない。しかし、アノード分極特性として考えた場合には、過酸化水素が存在する場合にはステンレス鋼のアノード分極曲線に過酸化水素の酸化反応分が加わることになるため、酸素単独の場合とは異なる分極曲線が存在することになる。この様な状況を取り扱うため、ECP 解析プログラムでは、酸素と過酸化水素のそれぞれに対応したアノード分極曲線を用いることとした。

ステンレス鋼表面では、酸素と過酸化水素はそれぞれのアノード分極曲線に応じて腐食反応が生じることになり、酸素と過酸化水素のそれぞれの濃度に応じた電流が流れることになる。そのため、ECP 解析プログラムでは、それぞれの濃度、すなわち電流密度の大きさに応じた重み付けによる取り扱いをしている。

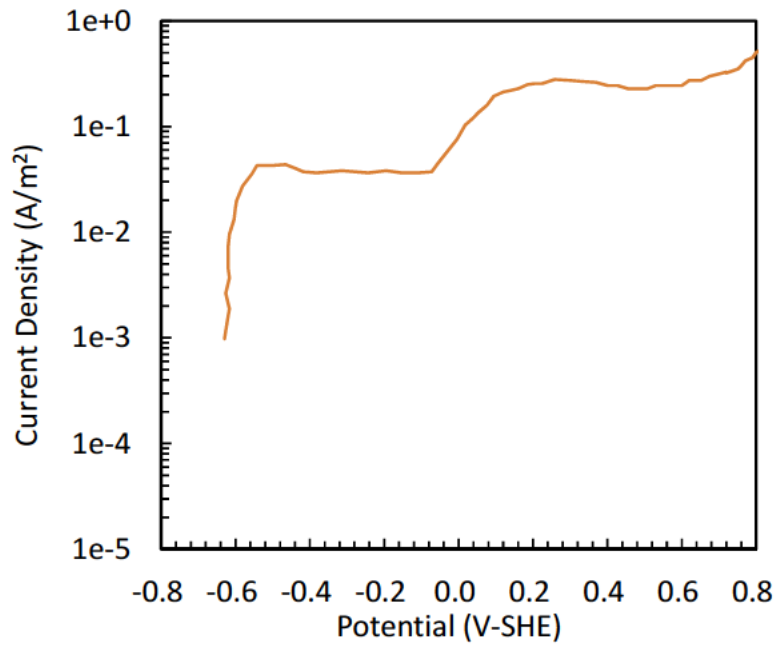


図 3.1.2-1 ステンレス鋼のアノード分極曲線<sup>[3]</sup> (酸素)

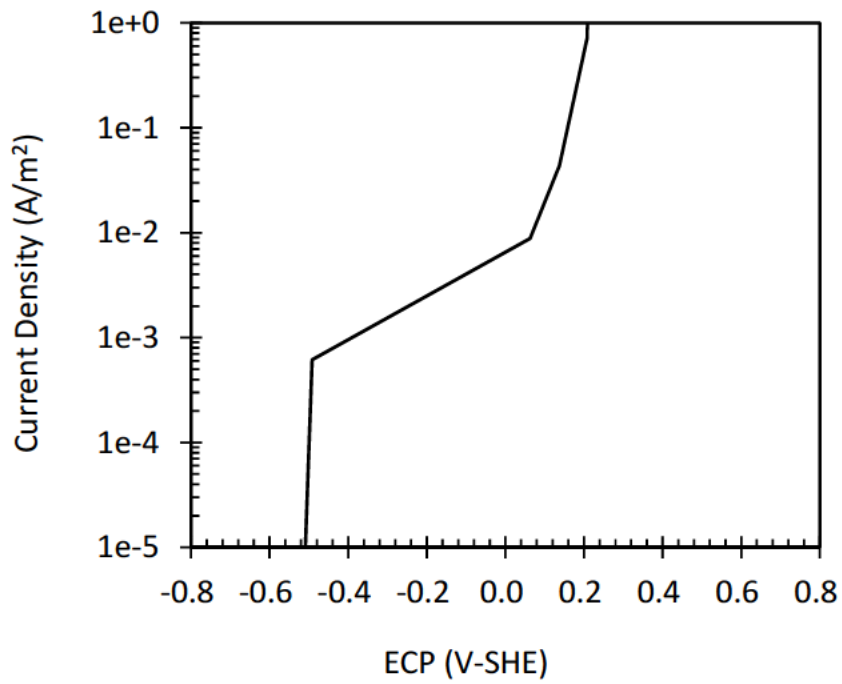


図 3.1.2-2 ステンレス鋼のアノード分極曲線<sup>[4]</sup> (過酸化水素)

## 3.2. 解析コード検証用データの取得及び整理

### 3.2.1 非照射下における腐食電位測定

非照射下における高温高压水中での ECP を測定した。試験では、実験室レベルでの ECP 測定で一般的に用いられる高温高压オートクレーブ試験装置のほか、ハルデン炉の非照射下試験ループ (ATL) を用いた。

試験マトリックスを表 3.2.1-1 に示す。本試験は BWR 条件模擬環境及び PWR 条件模擬環境にて実施した。

BWR 条件については、O<sub>2</sub> 濃度及び H<sub>2</sub> 濃度をそれぞれパラメータとするとともに、O<sub>2</sub> 及び H<sub>2</sub> 混在条件での ECP 測定も実施した。実機 BWR の炉内水質に関して、市川ら<sup>[1]</sup> は原子炉内部における ECP と化学種 (H<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) 濃度の関係 (図 3.2.1-1 参照) を評価しており、給水 H<sub>2</sub> 濃度 500ppb 以上 (評価部位では 50ppb 程度に相当) では O<sub>2</sub> と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> はほぼなくなっている。O<sub>2</sub> 及び H<sub>2</sub> 混在条件では、これら炉内で想定されている化学種濃度を考慮した。

PWR 条件については、H<sub>2</sub> 濃度をパラメータとするとともに、B 及び Li 混在下での ECP 測定を実施した。

#### 3.2.1.1. 腐食電位測定結果

##### 3.2.1.1.1. BWR 条件模擬環境

###### (1) オートクレーブ試験(1)

高温高压オートクレーブ試験装置の外観を図 3.2.1-2 に示す。オートクレーブには、ステンレス鋼試験片と 3~4 種類の参照電極を配置し、ステンレス鋼と各参照電極間の電位をエレクトロメータで測定した。試験は、温度 288°C 及び圧力 8.5MPa で実施した。本試験で用いた参照電極を表 3.2.1-2 に示す。

水素注入条件でのステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-3 (1) (20ppb H<sub>2</sub> {0~20h まで}) 及び図 3.2.1-3 (2) (50ppb H<sub>2</sub>, 200ppb H<sub>2</sub>) に示す。

酸素注入条件でのステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-3 (3) (20ppb O<sub>2</sub>) 及び図 3.2.1-3 (4) (50ppb O<sub>2</sub>, 200ppb O<sub>2</sub> {0~155h まで}) に示す。Ag/AgCl 外部参照型は不安定であったため、本条件における ECP 評価では除外した。

水素+酸素混在条件でのステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-3 (1) (10ppb H<sub>2</sub>+100ppb O<sub>2</sub> {20h 以降}) 及び図 3.2.1-3 (4) (10ppb H<sub>2</sub>+200ppb O<sub>2</sub> {155h 以降}) に示す。

###### (2) ATL 試験

ATL の概略図を図 3.2.1-4 に示す。図 3.2.1-5 に示すように、6 体の ECP センサーを配置し、ステンレス鋼と各参照電極間の電位をエレクトロメータで測定した。試験は、温度 288°C 及び圧力 8MPa で実施した。試験で用いた参照電極を表 3.2.1-2 に示す。

ステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-6 (1.7ppm H<sub>2</sub>, 2.5ppm H<sub>2</sub>, 200ppb O<sub>2</sub>, 7ppm O<sub>2</sub>)

に示す。300 h 付近で開始した 200ppb O<sub>2</sub> 条件では、ECP の安定に長時間要することが予想されたため、7ppm O<sub>2</sub> 条件を実施した後に、再度 200ppb O<sub>2</sub> 条件を実施した。

#### 3.2.1.1.2. PWR 条件模擬環境

##### (1) オートクレーブ試験(1)

図 3.2.1-2 に示すオートクレーブに、ステンレス鋼試験片と 3 種類の参照電極を配置し、ステンレス鋼と各参照電極間の電位をエレクトロメータで測定した。試験は、温度 320℃及び圧力 15MPa で実施した。本試験で用いた参照電極を表 3.2.1-2 に示す。

ステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-7 (200, 500, 1000, 1500, 2000, 2600ppb H<sub>2</sub>) に示す。

##### (2) ATL 試験

図 3.2.1-5 に示す ECP 測定リグに、3 種類の参照電極を配置し、ステンレス鋼と各参照電極間の電位をエレクトロメータで測定した。試験は、温度 320℃及び圧力 15MPa で実施した。本試験で用いた参照電極を表 3.2.1-2 に示す。

ステンレス鋼の ECP 測定結果を図 3.2.1-8 (500, 2000, 2600, 3000ppb H<sub>2</sub>) に示す。

##### (3) オートクレーブ試験(2)

オートクレーブの外観を図 3.2.1-9 に示す。オートクレーブには、参照型電極を配置し、ステンレス鋼と参照電極間の電位をエレクトロメータで測定した。試験は、温度 320℃及び圧力 15MPa で実施した。(試験方法の詳細は、3.4 章に記載)

ステンレス鋼の ECP 測定結果を表 3.2.1-3 (2.6ppm H<sub>2</sub>, 2.6ppm H<sub>2</sub>+1000ppm B+3ppm Li) に示す。1000ppm B 及び 3ppm Li の注入による pH の上昇で、これらの注入の無い場合と比較して 140mV 程度の ECP の低下が確認された。

表 3.2.1-1 試験マトリクス

水質条件			ATL試験	オートクレーブ試験(1)	オートクレーブ試験(2)	
BWR (288°C)	O <sub>2</sub>	20 ppb		●		
		50 ppb		●		
		200 ppb	●	●		
		7 ppm	●			
	H <sub>2</sub>	20 ppb		●		
		50 ppb		●		
		200ppb		●		
		1.7 ppm	●			
		2.5 ppm	●			
	O <sub>2</sub> +H <sub>2</sub>	100 ppb O <sub>2</sub> + 10 ppb H <sub>2</sub>			●	
		200 ppb O <sub>2</sub> + 10 ppb H <sub>2</sub>			●	
PWR (320°C)	H <sub>2</sub>	200 ppb		●		
		500 ppb	●	●		
		1 ppm		●		
		1.5 ppm		●		
		2 ppm	●	●		
		2.6 ppm	●	●	●	
		3 ppm	●			
	H <sub>2</sub> +B+Li	2.6 ppm H <sub>2</sub> + 1000 ppm B + 3ppm Li				●

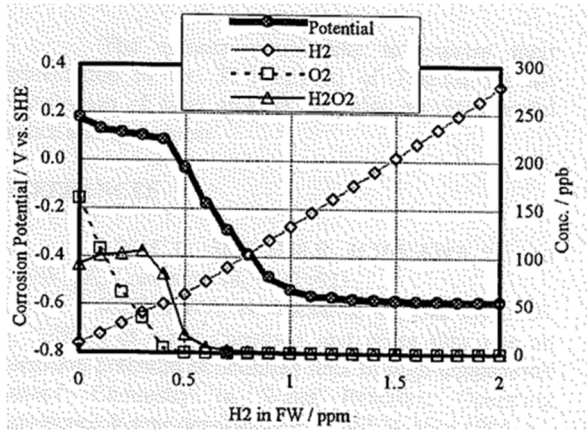
表 3.2.1-2 試験に使用した電極

	電極の種類	
	BWR	PWR
ATL 試験	ZrO <sub>2</sub> (1) ZrO <sub>2</sub> (2) Pt	ZrO <sub>2</sub> (1) ZrO <sub>2</sub> (2) Pt
オートクレーブ 試験(1)	ZrO <sub>2</sub> Pt Ag/AgCl	ZrO <sub>2</sub> Pt Ag/AgCl
オートクレーブ 試験(2)	—	Ag/AgCl

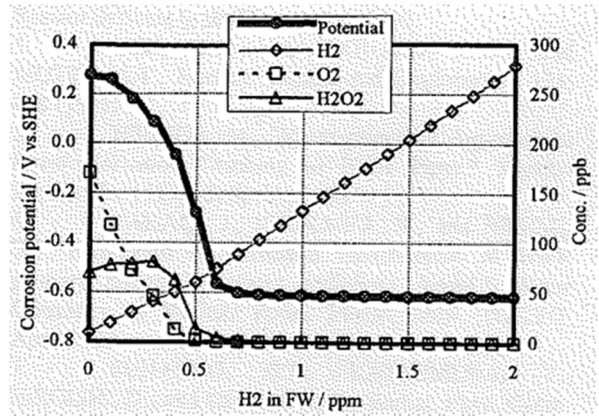
表 3.2.1-3 ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(2))

	水質	
	2.6ppm H <sub>2</sub>	2.6ppm H <sub>2</sub> + 1000ppm B + 3ppm Li
ECP(mV-SHE)	-620	-757





(ジェットポンプ出口における評価データ)



(炉内計装案内管における評価データ)

図 3.2.1-1 原子炉内部における ECP と化学種 ( $H_2$ ,  $O_2$ ,  $H_2O_2$ ) 濃度 (解析値) [1]

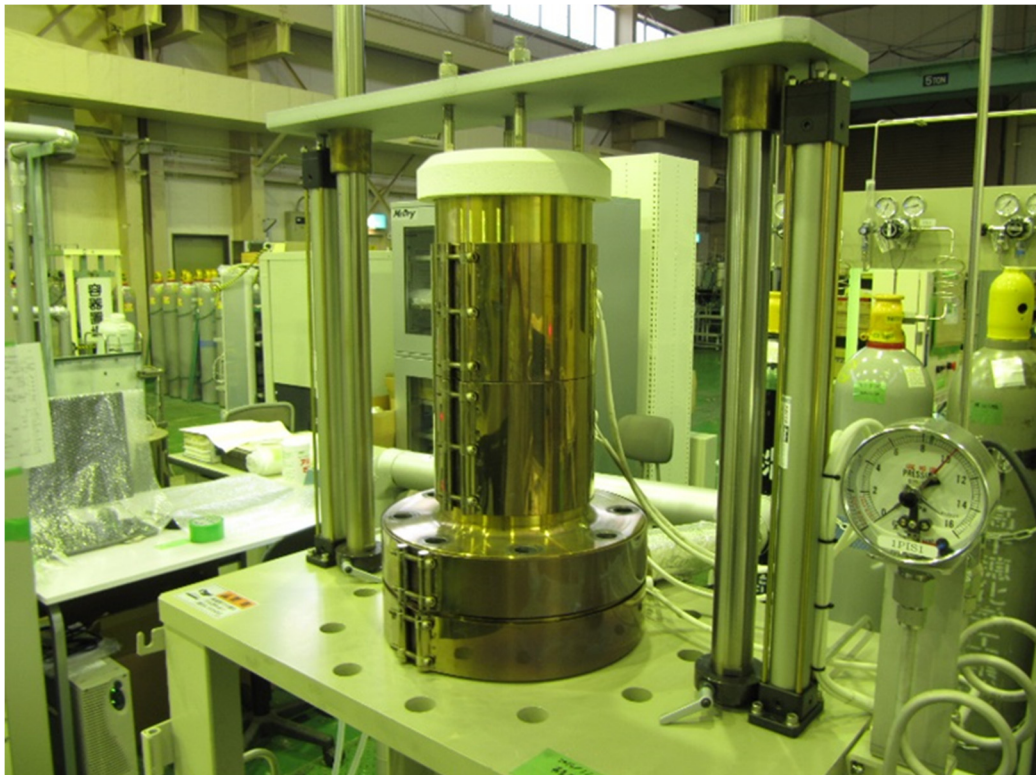


図 3.2.1-2 オートクレーブ外観

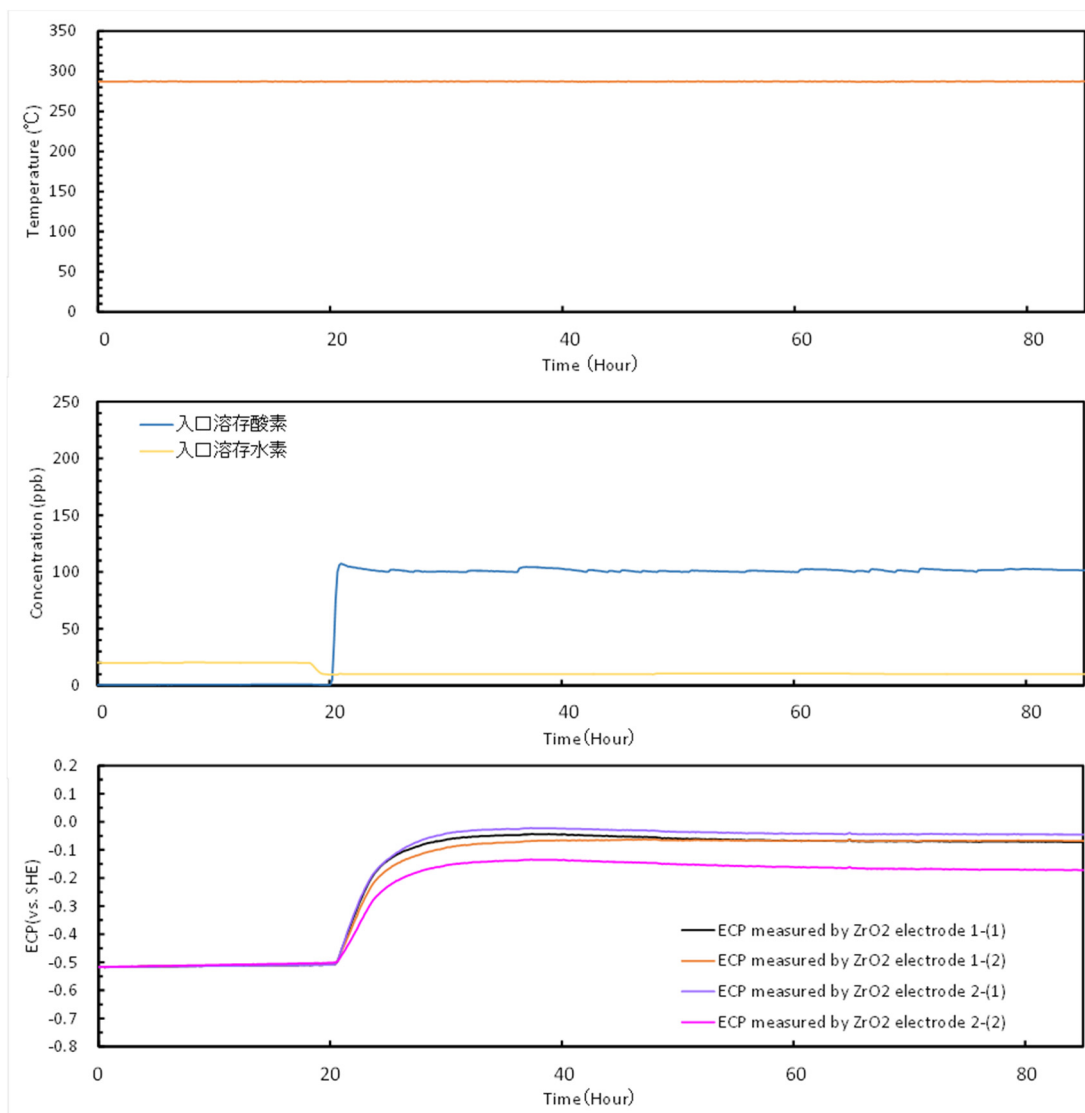


図 3.2.1-3 (1) ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(1), BWR)  
(20ppb H<sub>2</sub>, 100ppb O<sub>2</sub>+10ppb H<sub>2</sub>)

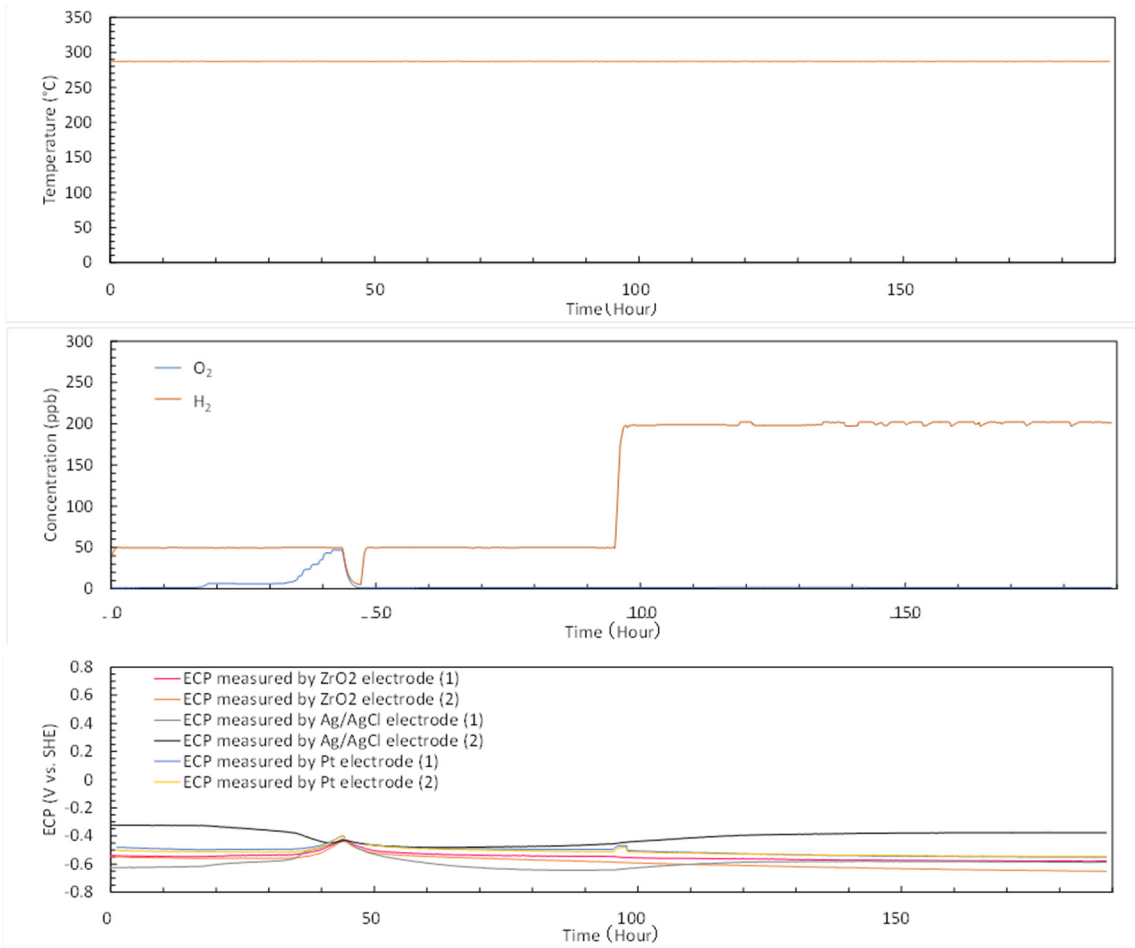


図 3.2.1-3 (2) ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(1), BWR)  
(50ppb H<sub>2</sub>, 200ppb H<sub>2</sub>)

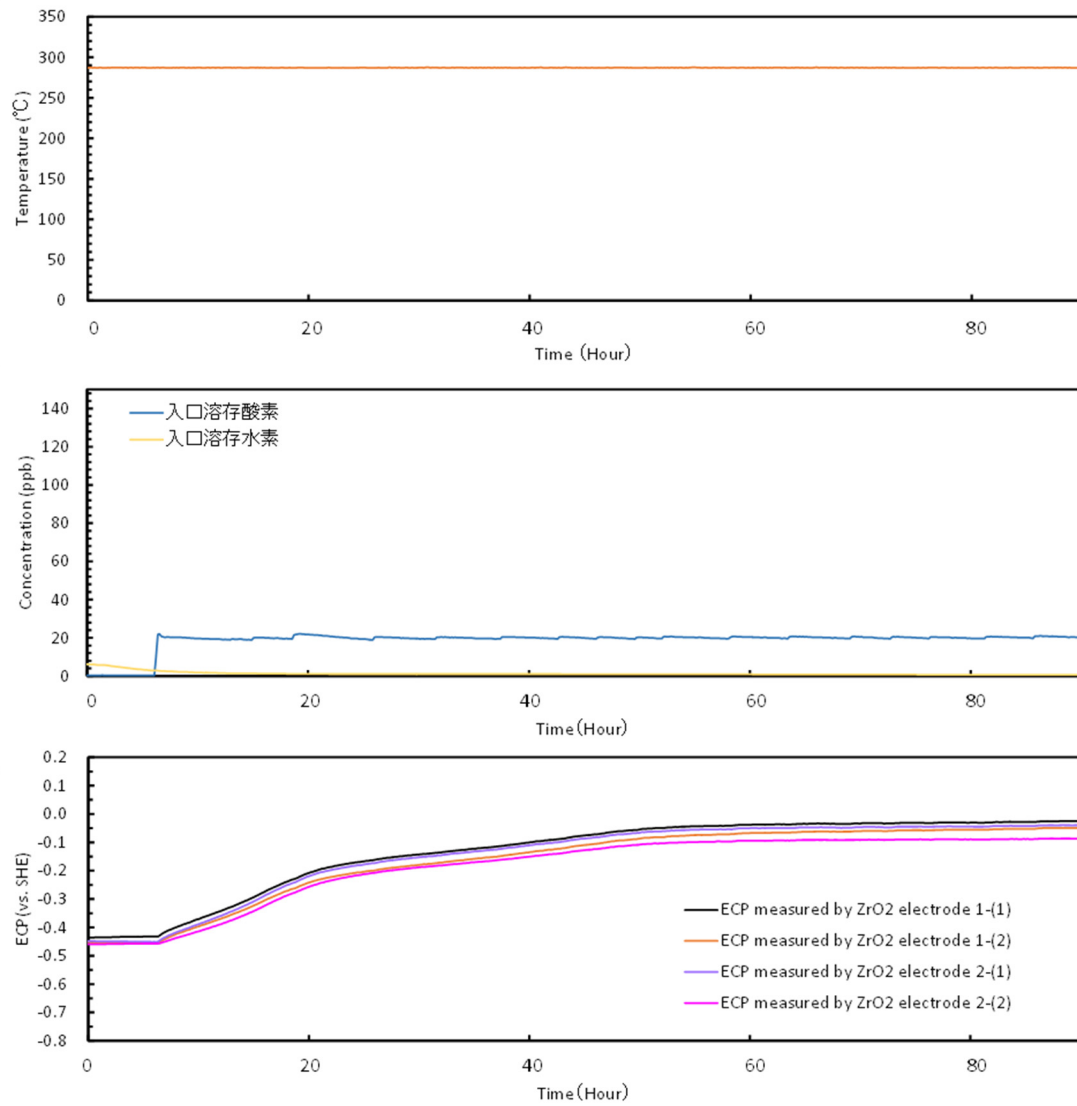


図 3.2.1-3 (3) ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(1), BWR)  
(20ppb O<sub>2</sub>)

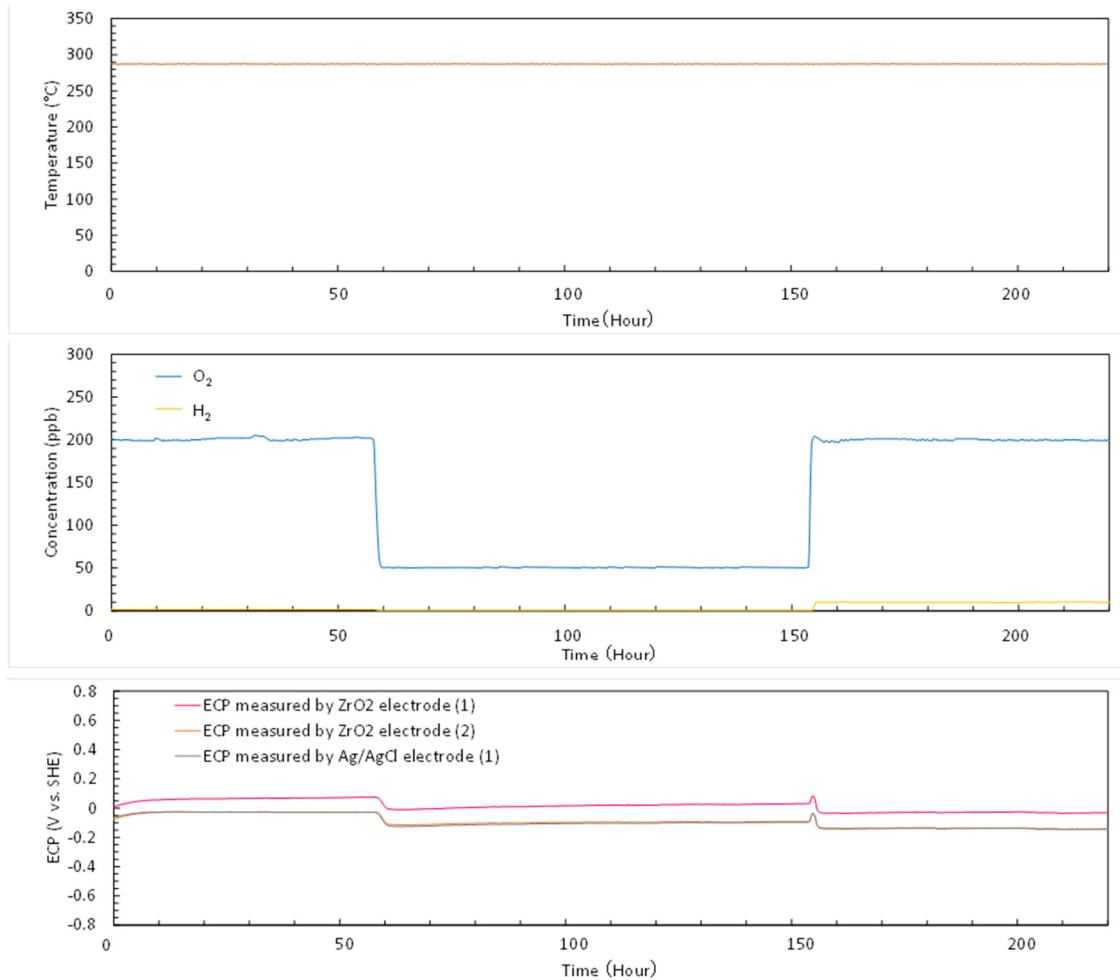


図 3.2.1-3 (4) ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(1), BWR)  
(50ppb O<sub>2</sub>, 200ppb O<sub>2</sub>, 200ppb O<sub>2</sub>+10ppb H<sub>2</sub>)

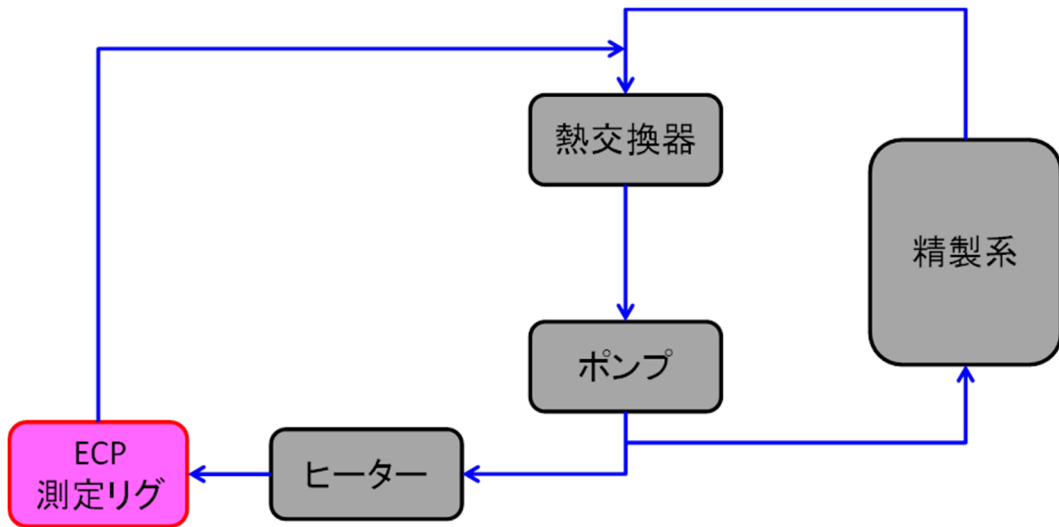


図 3.2.1-4 ATL の概略図

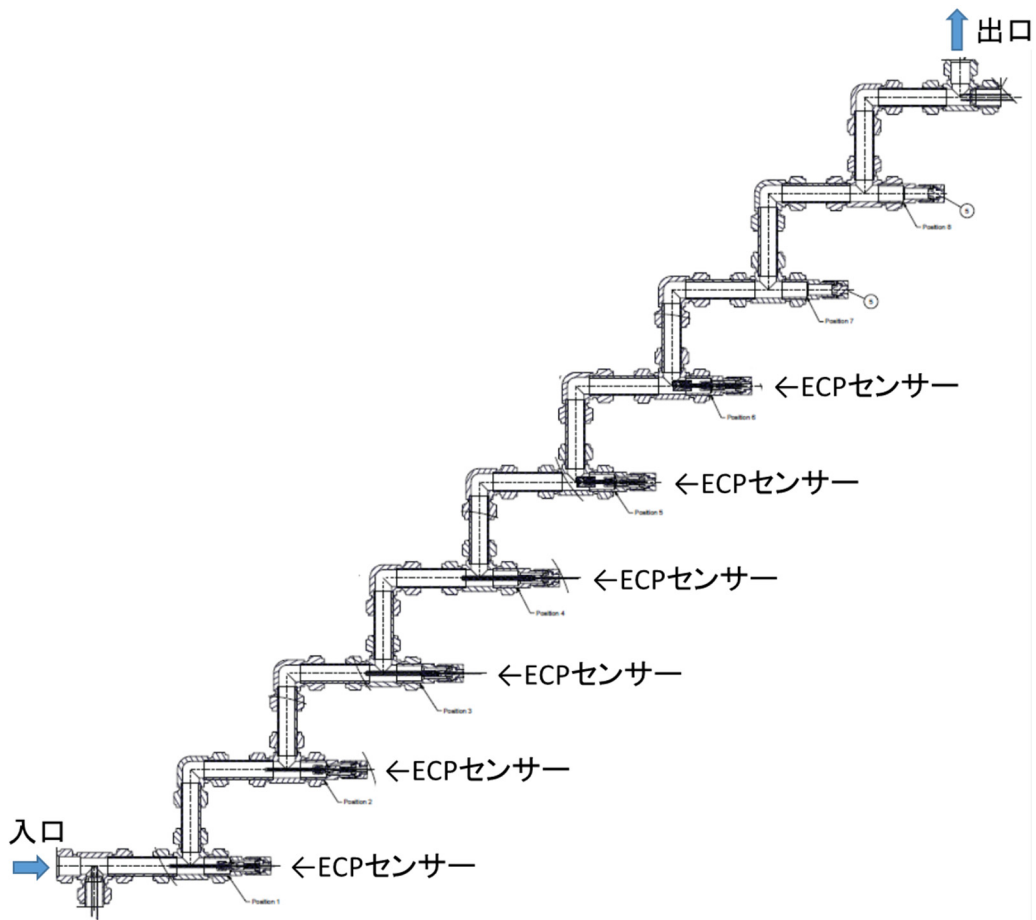


図 3.2.1-5 ATL リグ内のセンサー配置

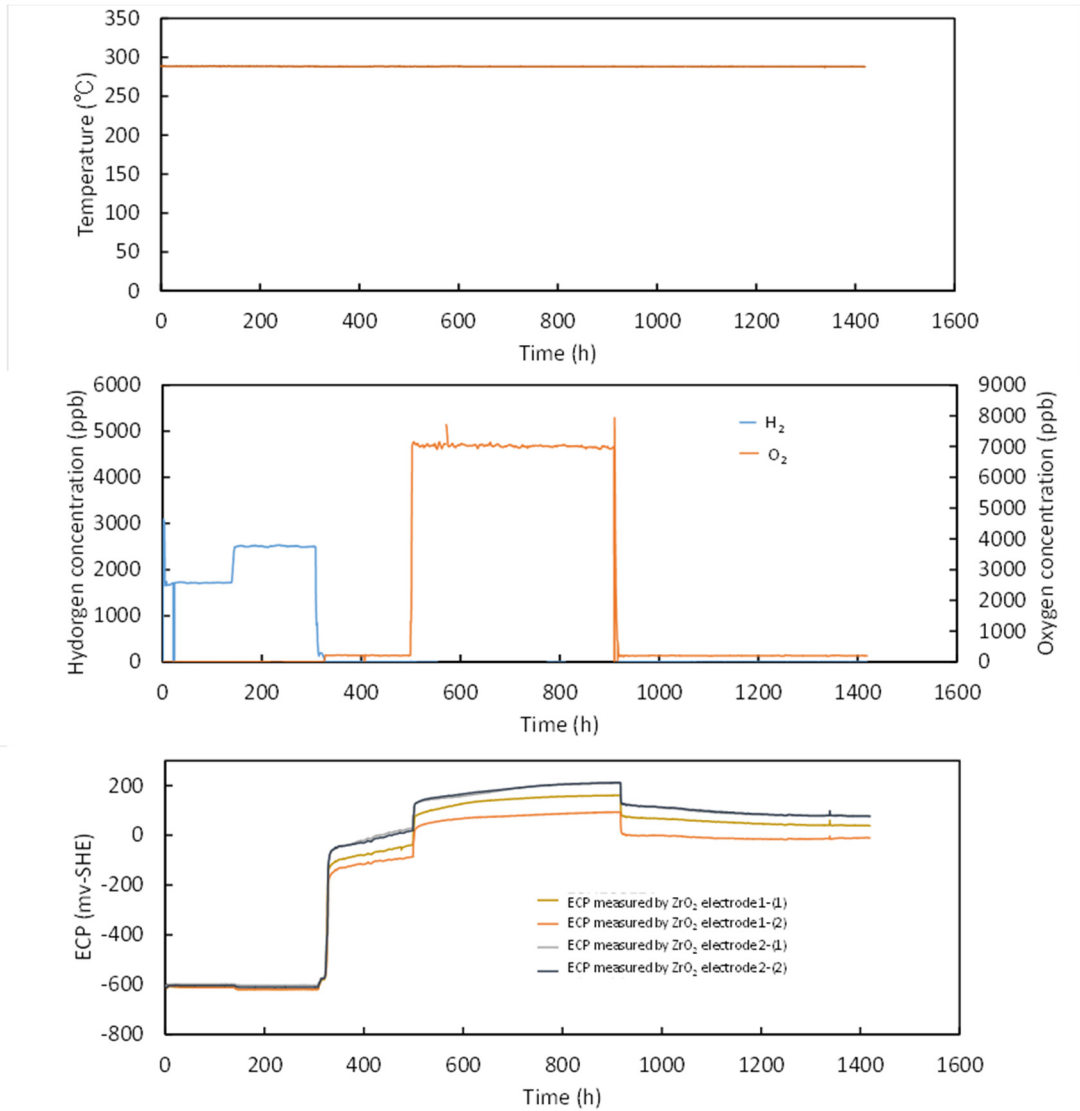


図 3.2.1-6 ECP 測定結果 (ATL 試験, BWR)  
 (1.7ppm H<sub>2</sub>, 2.5ppm H<sub>2</sub>, 200ppb O<sub>2</sub>, 7ppm O<sub>2</sub>)

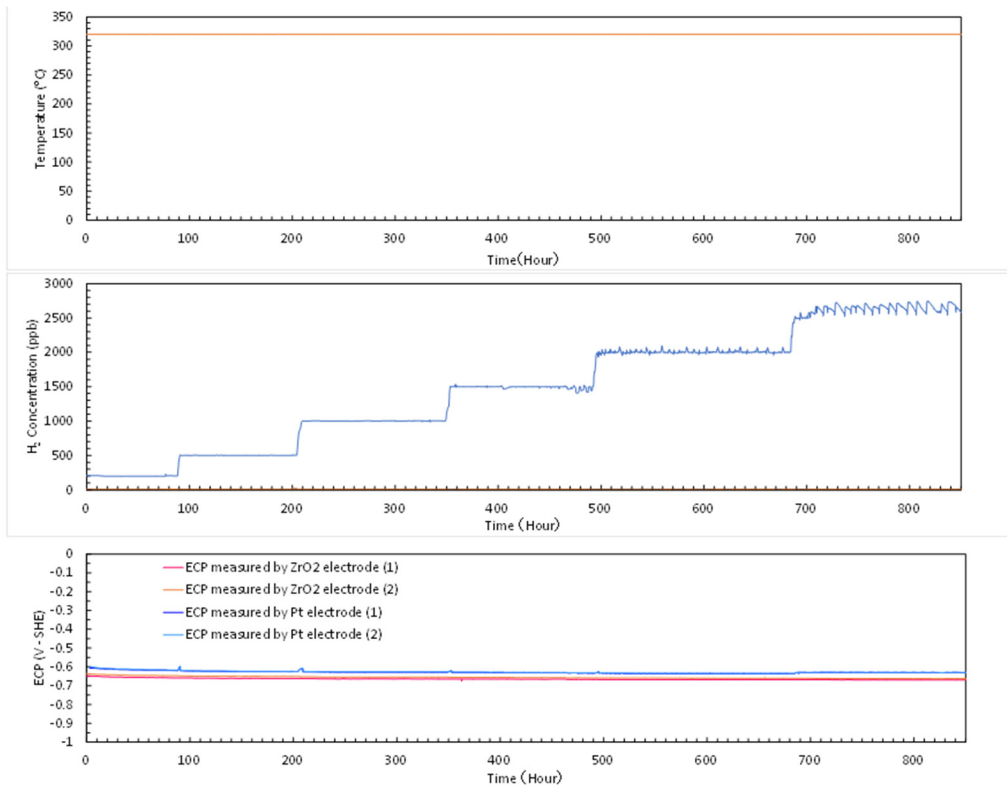


図 3.2.1-7 ECP 測定結果 (オートクレーブ試験(1), PWR)  
(200, 500, 1000, 1500, 2000, 2600ppb H<sub>2</sub>)



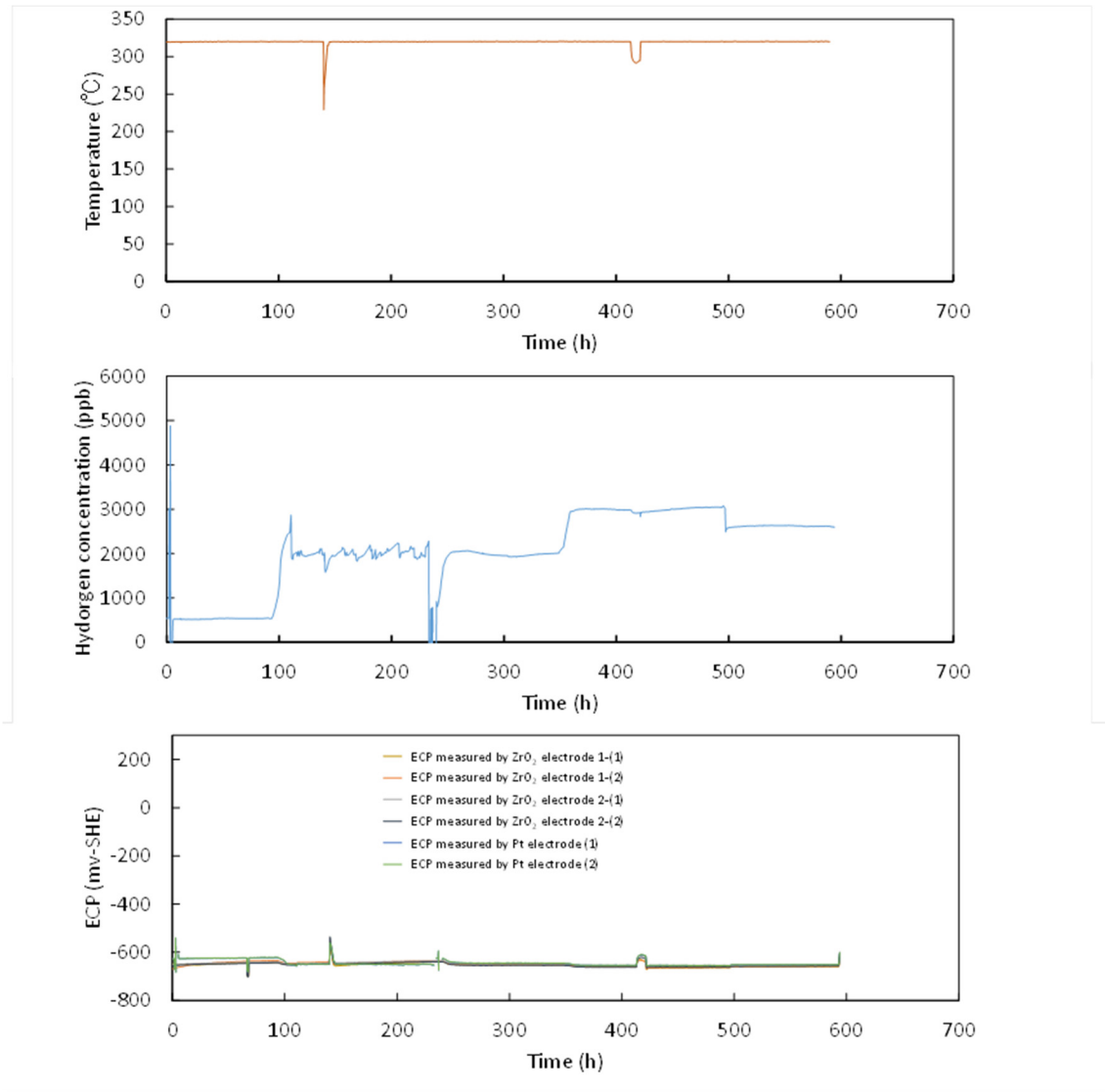


図 3.2.1-8 ECP 測定結果 (ATL 試験, PWR)  
(500, 2000, 2600, 3000ppb H<sub>2</sub>)



図 3.2.1-9 オートクレーブ外観

## 3.2.2 ハルデン炉で取得された照射下腐食電位測定データ

### 3.2.2.1. BWR 模擬環境試験

ハルデン炉で2体の照射リグを用いて取得された照射環境下における ECP 測定データが報告されている<sup>[1]</sup>。本事業では、報告された ECP 測定データ等を入手し、解析コードの検証に用いるために整理した。照射環境下における ECP 測定データが取得された照射リグの概略構造を図 3.2.2-1 に示す。何れの照射リグも、冷却材は導水管により上部から下部へと流れた後、上昇流として試験片等の表面を流れる。これらの照射リグには、き裂進展試験片が装荷され、試験片近傍の中性子線束を調整するためにブースター燃料が試験片を取り囲むように配置されている。照射リグ 1 では、Pt 型 ECP センサーが照射リグの下段及び中段に、ZrO<sub>2</sub> 隔膜型 ECP センサーが照射リグ上段に一体ずつ配置されている。照射リグ 2 では、Pt 型 ECP センサーが下段に 1 体及び上段に 2 体、ZrO<sub>2</sub> 隔膜型 ECP センサーが照射リグ上段に一体配置されている。これらの照射リグは図 3.2.2-2 に示す照射試験ループに接続され、照射リグの内部に高温高压水が供給される。なお、照射試験ループには一体の照射リグのみ接続される。照射試験ループはワンスルー型であり、タンクから供給された水がポンプで昇圧された後、熱交換器及びヒーターで昇温され BWR の温度圧力条件を模擬した高温高压水が照射リグ内部に供給される。照射リグから戻る水は熱交換器及び冷却器で冷却され全量が精製系で精製される。

照射リグ 1 で取得された ECP 測定データ、測定時における供給水中の酸素及び水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口の水温を図 3.2.2-3 に示す。図中で大凡 800 時間までが水素注入条件、それ以降が酸素注入条件である。水素注入条件における供給水中水素濃度は大凡 2ppm、酸素注入条件における供給水中酸素濃度は大凡 6ppm であった。照射リグの出入り口温度はほぼ等しく、280～290℃の範囲であった。なお、Pt 型 ECP センサーは水中に溶存する酸素に対する水素のモル比が 2 以上で可逆的な電位を与える<sup>[2]</sup>とされていることもあり、酸素注入条件での測定ではデータは整理されていない。

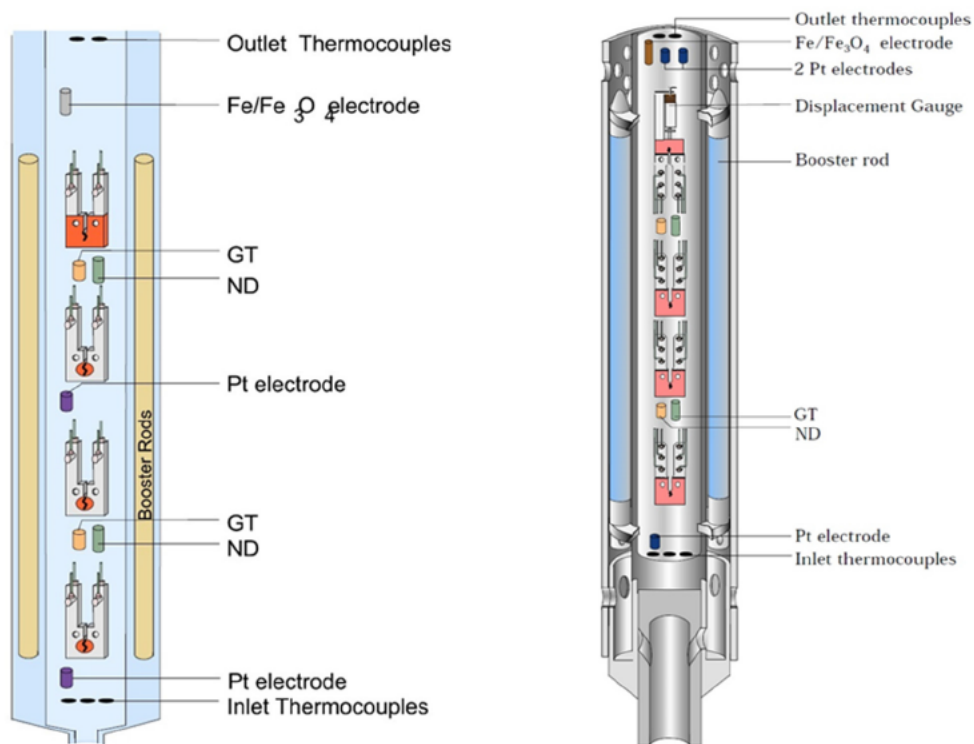
照射リグ 2 で取得された ECP 測定データ、測定時における供給水中の酸素及び水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口の水温を図 3.2.2-4 に示す。図中で大凡 260 時間までが水素注入条件、それ以降が酸素注入条件である。水素注入条件における供給水中水素濃度は大凡 2ppm、酸素注入条件における供給水中酸素濃度は大凡 200～400ppb であった。照射リグの出入り口温度はほぼ等しく、260～280℃の範囲であった。なお、供給水中の酸素または水素濃度に対して戻り水中の濃度は半分程度であり、これは当該試験期間直前まで試験装置が脱気条件で運用されていたためと考えられる。リグ 1 の場合と同様に、酸素注入条件での測定では Pt 型 ECP センサーのデータは整理されていない。

### 3.2.2.2. PWR 模擬環境試験

PWR 模擬環境条件では、1 体の照射リグを用いて ECP 測定データが測定されている<sup>[1]</sup>。照射環境下における ECP 測定データが取得された照射リグの概略構造を図 3.2.2-5 に示す。

照射リグ内部の冷却材は、BWR 試験に用いられたものと同様に導水管で導かれた水がリグ下部から上方に流れる。照射リグの中心付近には、試験用の燃料棒が装荷されており、照射リグの下段に Pt 型 ECP センサーと Pd 型 ECP センサーが一体ずつ配置されている。この照射リグは、図 3.2.2-6 に示す照射試験ループに接続され、照射リグの内部に高温高压水が供給される。この照射試験ループは BWR 模擬環境試験で用いられたものとは異なり、2本の照射試験リグが同時に接続されている。

照射リグで取得された ECP 測定データ、測定時における供給水中の水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口の水温を図 3.2.2-7 に示す。供給水中の水素濃度は大凡 2ppm から 4ppm の範囲、照射リグの入口温度は約 310℃、出口温度は約 320 であった。PWR 模擬環境であるため、供給水中には約 1000ppm の B と約 3ppm の Li が添加されている。pH は大凡 7.1 である。



リグ 1

リグ 2

図 3.2.2-1 BWR 模擬環境条件で ECP データが取得された照射リグの構造

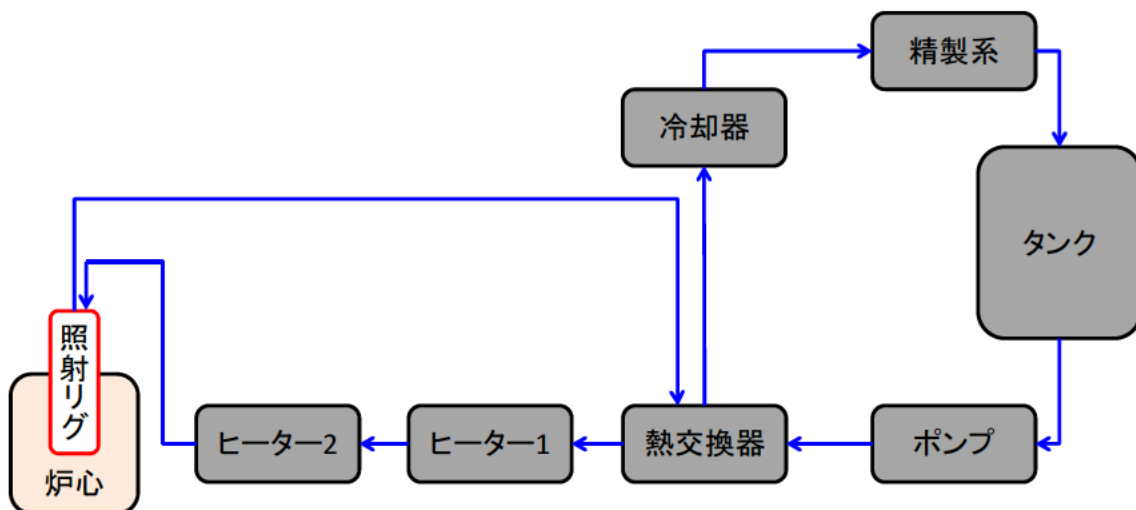
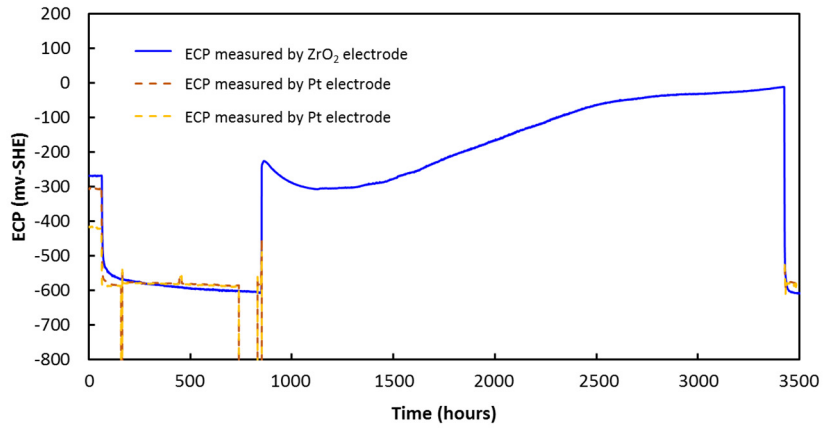
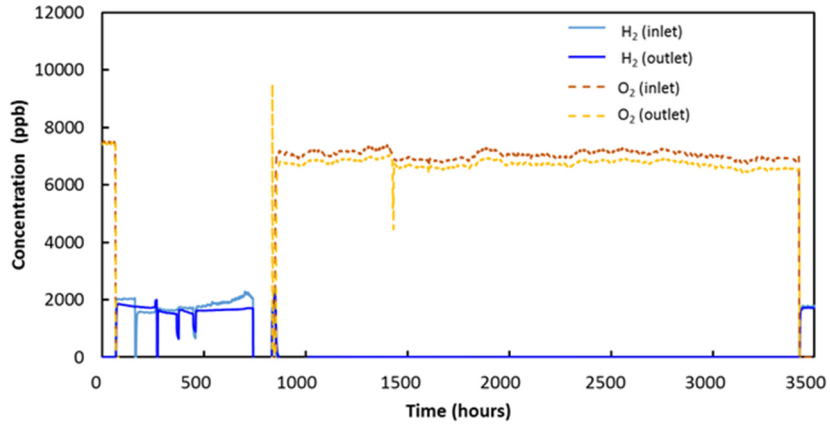


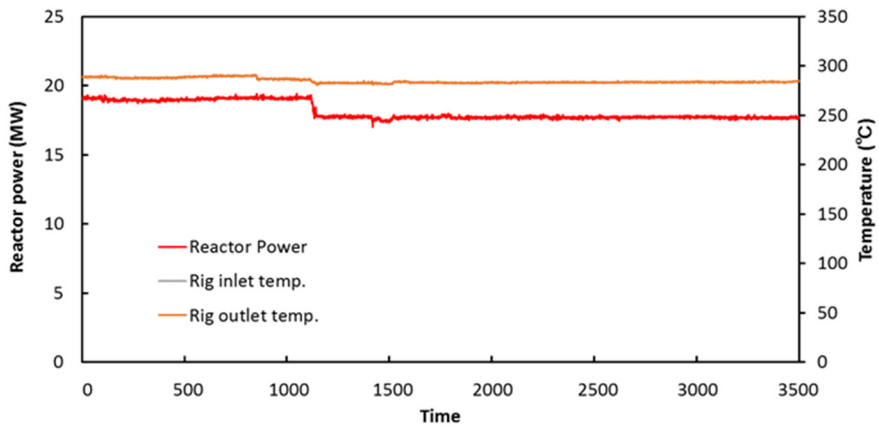
図 3.2.2-2 照射試験ループの構造



(a)ECP 測定データ

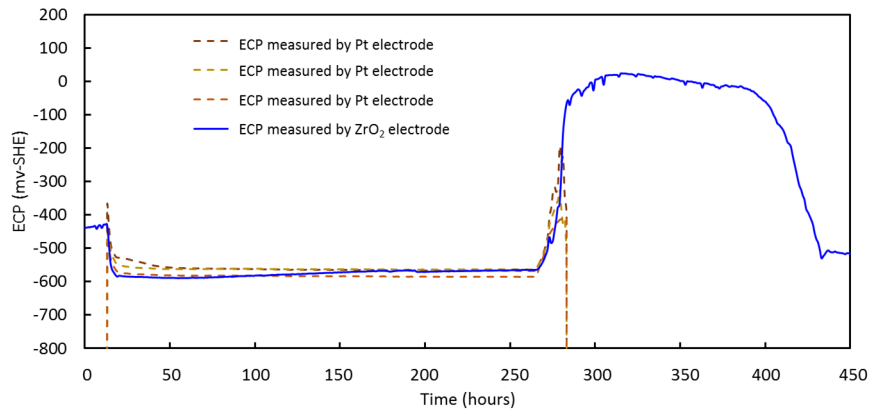


(b)供給水中の酸素及び水素濃度

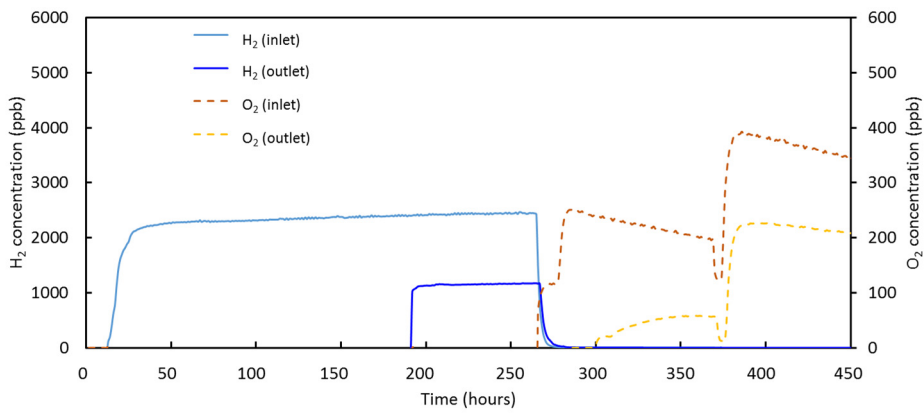


(c)原子炉出力及び照射リグの出入口水温

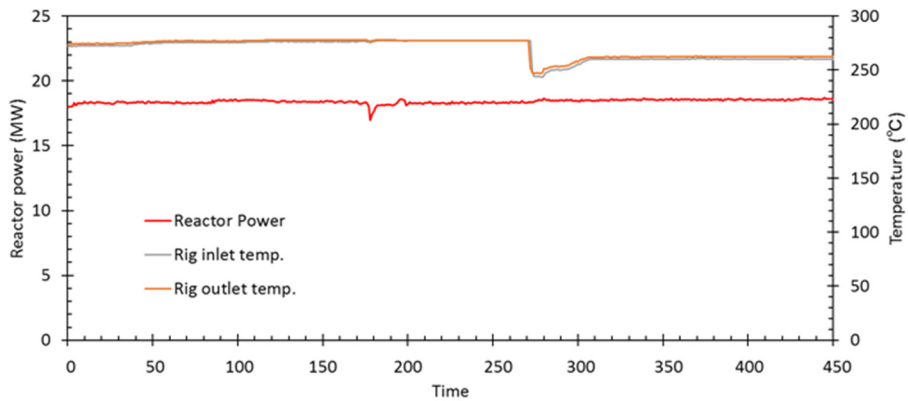
図 3.2.2-3 照射リグ 1 で測定された ECP 測定データ、測定時の供給水中酸素・水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口水温



(a)ECP 測定データ



(b)供給水中の酸素及び水素濃度



(c)原子炉出力及び照射リグの出入口水温

図 3.2.2-4 照射リグ 2 で測定された ECP 測定データ、測定時の供給水中酸素・水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口水温

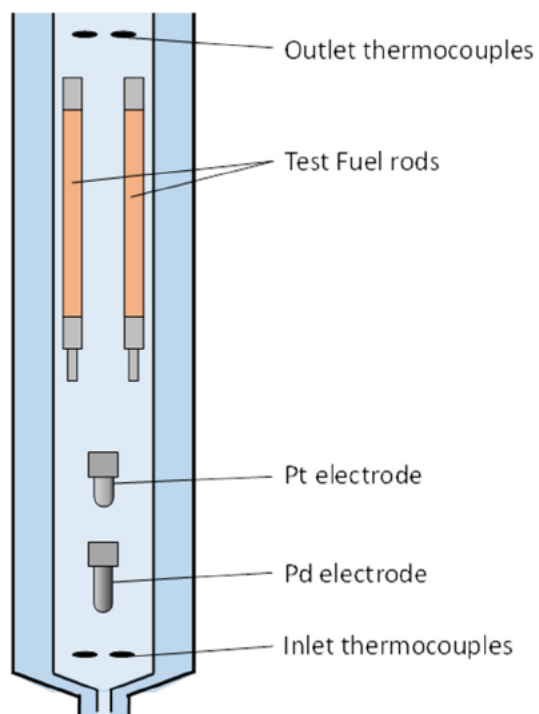


図 3.2.2-5 PWR 模擬環境条件で ECP データが取得された照射リグの構造

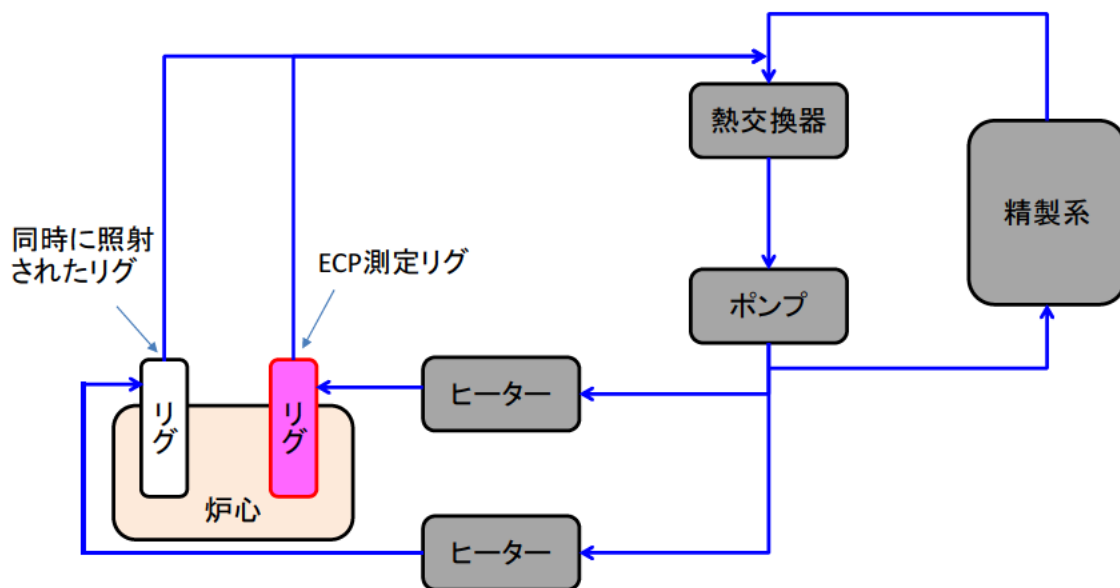
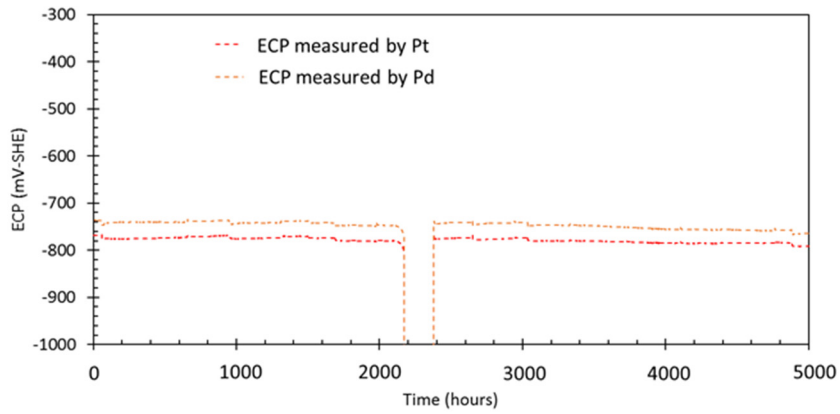
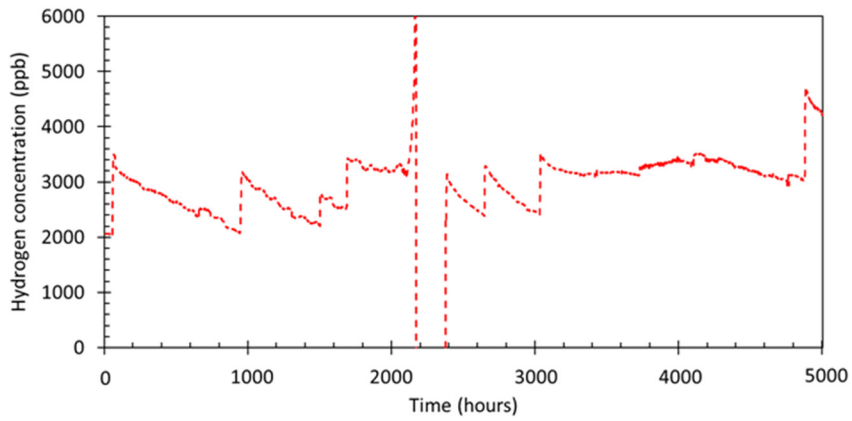


図 3.2.2-6 照射試験ループの構造

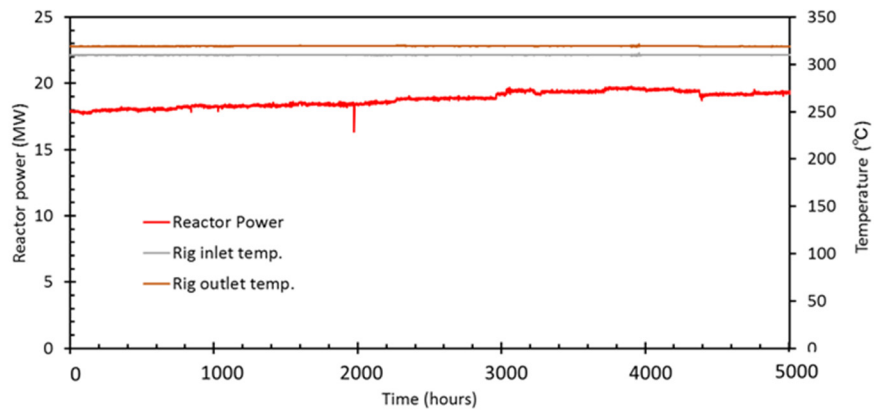




(a)ECP 測定データ



(b)供給水中の酸素及び水素濃度



(c)原子炉出力及び照射リグの出入口水温

図 3.2.2-7 照射リグで測定された ECP 測定データ、測定時の供給水中水素濃度及び原子炉出力と照射リグ出入口水温

### 3.3. 腐食電位測定データ等を用いた解析コードの検証

#### 3.3.1 非照射下における腐食電位測定データを用いた腐食電位解析コードの検証

ECP 解析コードの検証のため、本事業で取得した非照射下での ECP 測定データ (3.2.1.1 章参照) と解析コードによる計算値との比較、及び文献に報告されている ECP 測定値と解析コードによる計算値との比較検討を行った。

##### 3.3.1.1. 試験データに基づく検証

###### (1) BWR 条件

3.2.1.1.1 にて取得した ECP 測定値に対して、 $H_2$  濃度・ $O_2$  濃度・温度・試験部の流動条件等から ECP 解析コードにより ECP を計算し、比較した。ECP 測定値を横軸に、同計算値を縦軸にプロットして比較した結果を図 3.3.1-1 { (1)  $H_2$  注入条件、(2)  $O_2$  注入条件、(3)  $H_2 + O_2$  混在条件} に示す。なお、オートクレーブ試験(1)の流速は 0.01m/s、ATL 試験の流速は 0.13m/s である。その結果、(2)  $O_2$  注入条件の 20ppb  $O_2$  を除き、計算値と測定値との差は概ね $\pm 100mV$  の範囲 (Wada ら<sup>[1]</sup>の報告を参考に $\pm 100mV$  以内を目安) にあり、比較的良い一致を示した。

$O_2$  濃度 20ppb 付近は、図 3.3.1-2<sup>[2]</sup>に示すように ECP が過渡的に変化する領域であり、電位-電流密度の関係で見るとステンレス鋼のアノード電流密度の水平領域と酸素の反応によるカソード電流密度が漸近する状態となる。この領域では、微少なカソード電流密度の変化に対して ECP が大きく変化する。因みに、酸素 20ppb における ECP 解析では、酸素濃度、温度及び流動条件から得られるカソード電流密度が、ステンレス鋼のアノード電流密度の水平領域を若干下回る状態となっている。ECP 解析コードでは、Hishida らにより測定されたステンレス鋼のアノード分極曲線<sup>[3]</sup>を使用しているが、アノード分極曲線はステンレス鋼表面の皮膜性状で変化する。予備酸化処理の有無に応じたステンレス鋼のアノード分極曲線が Kim らにより調べられており<sup>[4]</sup>、図 3.3.1-3 に示すようにステンレス鋼表面に酸化皮膜が付与されることでアノード電流密度が一桁低下する、すなわち予備酸化処理なしの状態より被膜抵抗が 10 倍程度増加することが示されている。酸素 20ppb での ECP 測定には、既に長期間高温水中で使用されたステンレス鋼を用いているため、実際の測定におけるアノード電流密度は、ECP 解析プログラムで使用しているものよりも被膜抵抗により低下していることが想定される。そこで、被膜抵抗によるアノード電流密度の低下を考慮して酸素濃度 20ppb における ECP を計算した。計算のイメージを図 3.3.1-4 に示す。計算の結果、被膜抵抗が 7 倍となると ECP は $-44mV-SHE$  となり、Kim らにより報告されたアノード電流密度の低下の程度にも大凡対応するとともに、図 3.3.1-1 に示すように測定結果とも良く一致する。

###### (2) PWR 条件

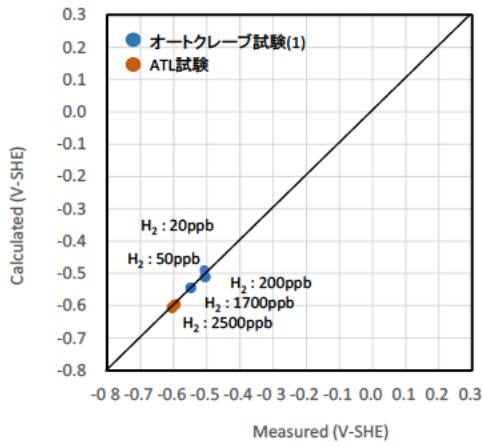
3.2.1.1.2 にて取得した ECP 測定値に対して、ECP 解析コードにより ECP を計算した。

ECP 測定値を横軸に、同計算値を縦軸にプロットして比較した結果を図 3.3.1-5 に示す。比較の結果、計算値は測定値と良く一致した。また B と Li が混在する環境では、pH の変化分を考慮することで解析は実測を再現できることを確認した。

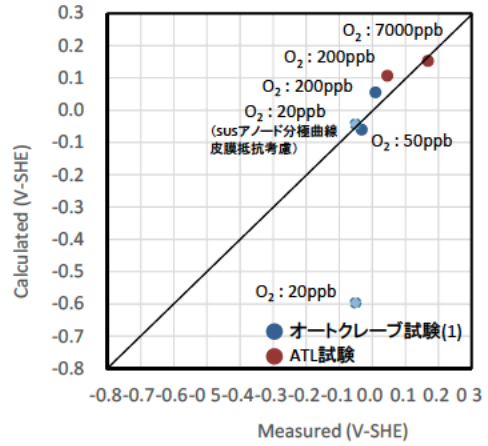
### 3.3.1.2. 文献データに基づく検証

O<sub>2</sub>+H<sub>2</sub> 混在条件下及び H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>+H<sub>2</sub> 混在条件下で得られた ECP 測定値が報告<sup>5)</sup>されており、同報告に示された ECP 測定データを用いて計算値との比較を行った。比較に際しては、図 3.2.1-1 に示した原子炉内部で想定される濃度条件を参考に、H<sub>2</sub> 濃度：10～50ppb、O<sub>2</sub> 及び H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度：60～200ppb 程度を目安とした。文献に示された ECP 測定値を横軸に、ECP 計算値を縦軸にプロットした結果を図 3.3.1-6 {(1) H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> 混在条件、(2) H<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混在条件 (10 ppb H<sub>2</sub>)、(3) H<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混在条件 (50ppb H<sub>2</sub>)} に示す。計算値は測定値に対して大凡±100mV の範囲内であった。

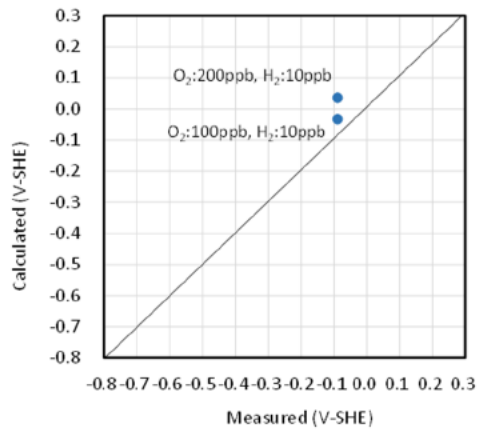
O<sub>2</sub> 濃度に対する ECP 変化及び H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度に対する ECP 変化を、文献データを用いて確認した。O<sub>2</sub> 濃度に対する ECP 変化及び H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度に対する ECP 変化を解析で評価した結果をそれぞれ、図 3.3.1-7 及び図 3.3.1-8 に示す。ここに纏められたデータは複数の論文で報告されたデータを纏めたものであるため、ECP の計算では一定の流速条件を仮定している。同図に示すように、解析は O<sub>2</sub> 及び H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度の変化に伴う ECP の変化を良く再現している。



(1) H<sub>2</sub> 注入条件



(2) O<sub>2</sub> 注入条件



(3) H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> 混在条件 (H<sub>2</sub> : 10ppb)

図 3.3.1-1 試験データと計算値との比較 (BWR 条件)

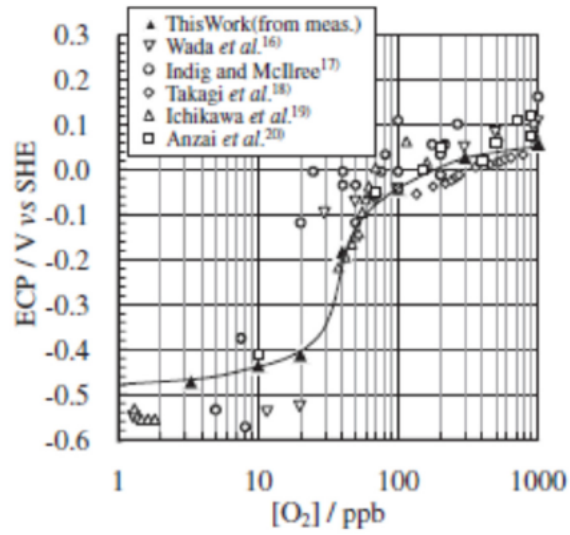


図 3.3.1-2 酸素濃度と ECP の関係<sup>[2]</sup>

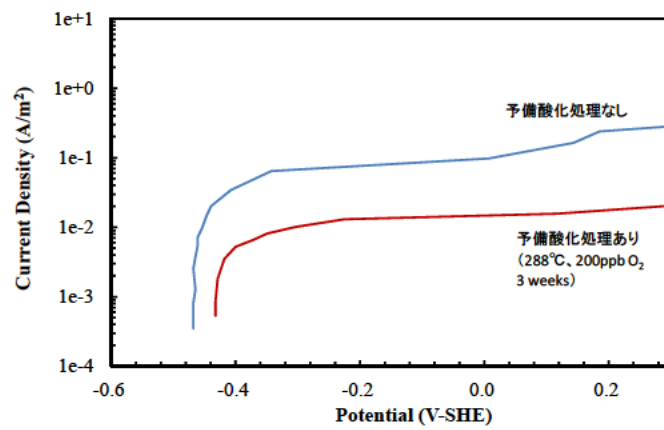


図 3.3.1-3 予備酸化処理の有無によるアノード分極曲線の違い<sup>[4]</sup>

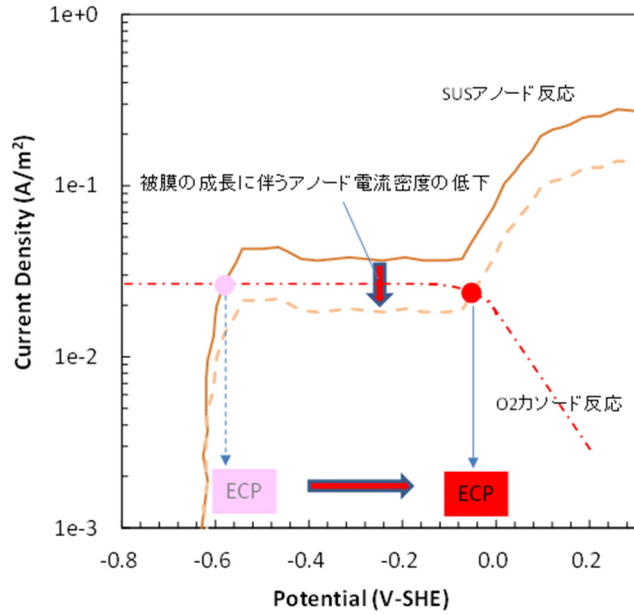


図 3.3.1-4 ECP と電流密度との関係（概念図）

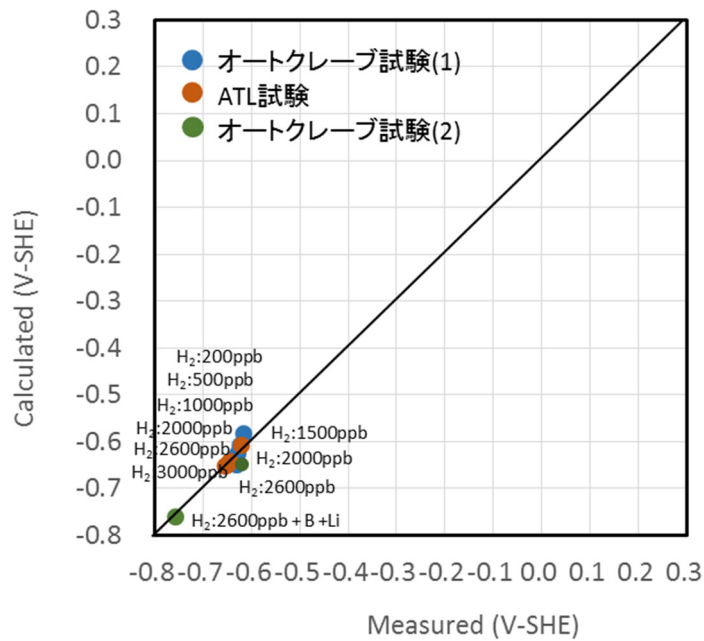
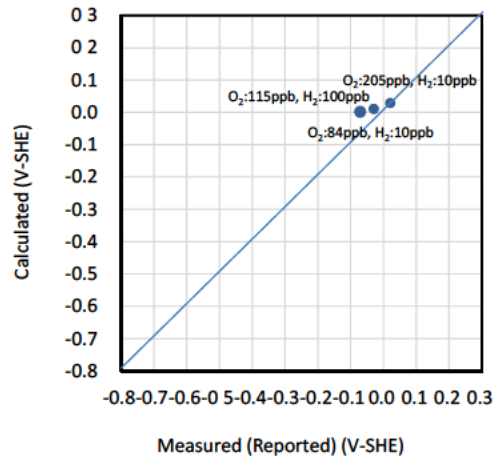
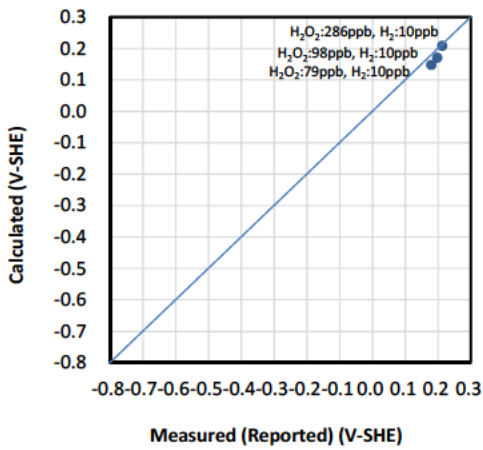


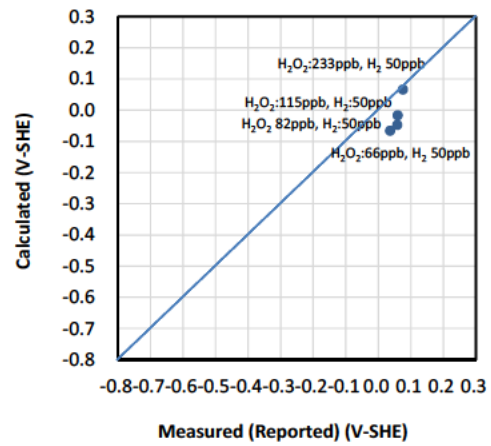
図 3.3.1-5 試験データと計算値との比較（PWR 条件）



(1) H<sub>2</sub>+O<sub>2</sub> 混在条件



(2) H<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混在条件 (10ppb H<sub>2</sub>)



(3) H<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混在条件 (50ppb H<sub>2</sub>)

図 3.3.1-6 文献データ<sup>[5]</sup> と計算値との比較

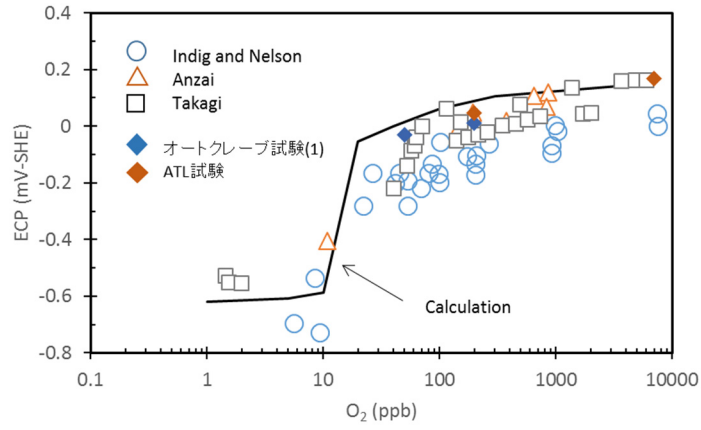


図 3.3.1-7  $O_2$  濃度と ECP (文献データ<sup>[6]</sup> と計算値との比較)

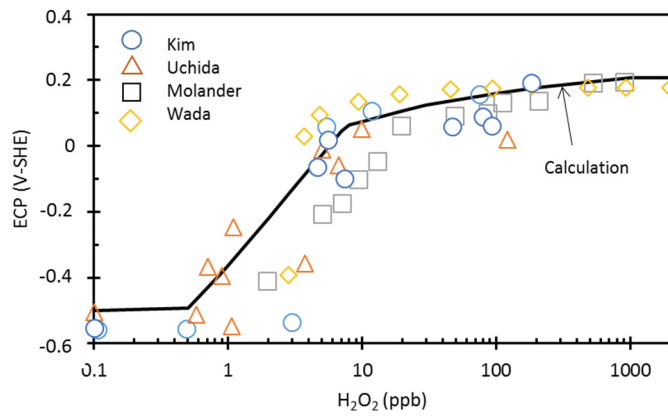


図 3.3.1-8  $H_2O_2$  濃度と ECP (文献データ<sup>[7]</sup> と計算値との比較)



### 3.3.2 照射下腐食電位測定結果を用いた解析コード検証のためのモデル化

#### 3.3.2.1. ハルデン炉照射試験装置のモデル化

##### 3.3.2.1.1 BWR 模擬環境試験

3.1 章で述べたように、ラジオリシス解析では評価対象の水の流れを複数の領域（ノード）に区切りモデル化する必要がある。モデル化に際しては、評価対象の構造、温度や照射の有無を考慮してノードを区切る必要がある。照射リグ 1 の解析モデルを図 3.3.2-1 に示す。照射リグに供給された冷却水は導水管で照射リグ底部へ導かれた後、上昇流となり ECP センサーや照射試験片の表面を流れ照射試験ループへ戻る。照射リグ内部の下降流を 18 個のノード、上昇流は 19 個のノードに分割した。なお、下降流が上昇流に変化するリグ下端領域は 1 個のノードとした。図 3.3.2-1 では各ノードは等間隔で示されているが、ノードの大きさは均一でなく、照射リグ内部の構造、中性子線や  $\gamma$  線の分布が考慮されている。照射リグ 2 についても同様にモデル化しているが、下降流は 19 個のノード、上昇流は 20 個のノードに分割した。なお、下降流が上昇流に変化するリグ下端領域は 1 個のノードとした。照射リグを多数ノードに分割した後、各ノードにおける接液面積、断面積、体積、長さを評価し、解析の際の入力条件とした。また、これら構造に係る情報に基づき、温度圧力や流量から各ノードにおける水の滞在時間や流速を求めている。照射試験ループについては、機器の構造や配管径の違いなどを考慮し、全体を 29 個のノードに分割した。照射試験ループの解析モデルを図 3.3.2-3 に示す。

##### 3.3.2.1.2 PWR 模擬環境試験

PWR 模擬環境試験で ECP 計測に使用された照射リグについても、前節と同様な方法でモデル化した。図 3.3.2-4 に示すように、下降流は 21 個のノード、上昇流は 21 のノードに分割した。下降流が上昇流に変化するリグ下端領域は 1 個のノードとした。照射リグを多数ノードに分割した後、各ノードにおける接液面積、断面積、体積、長さを評価し、解析の際の入力条件とした。また、これら構造に係る情報に基づき、温度圧力や流量から各ノードにおける水の滞在時間や流速を求めた。照射試験ループは、図 3.3.2-5 に示すように 2 本の照射リグが接続されおり、精製系も分岐しているためそれぞれの分岐位置を加味した上で複数のノードにモデル化した。なお、ECP 計測用照射リグと同時に照射されたリグについても、同様にモデル化して解析へ組み込んだ。

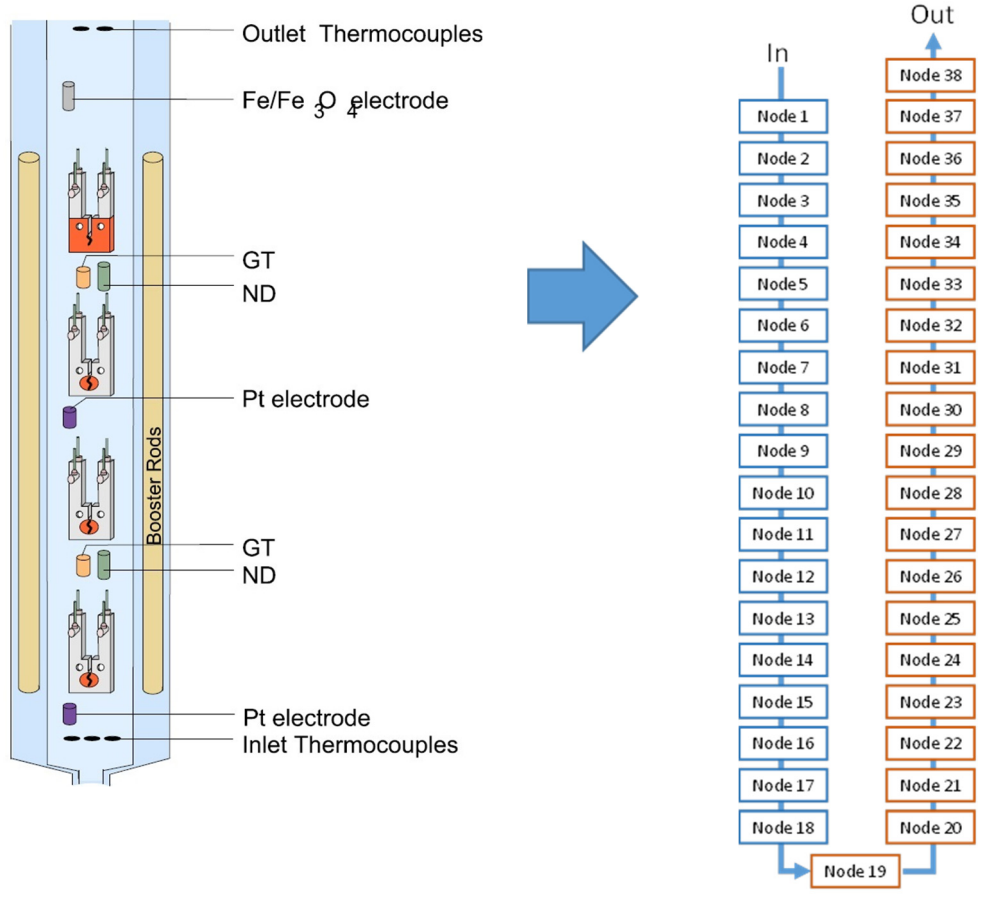


図 3.3.2-1 照射リグ 1 の解析モデル

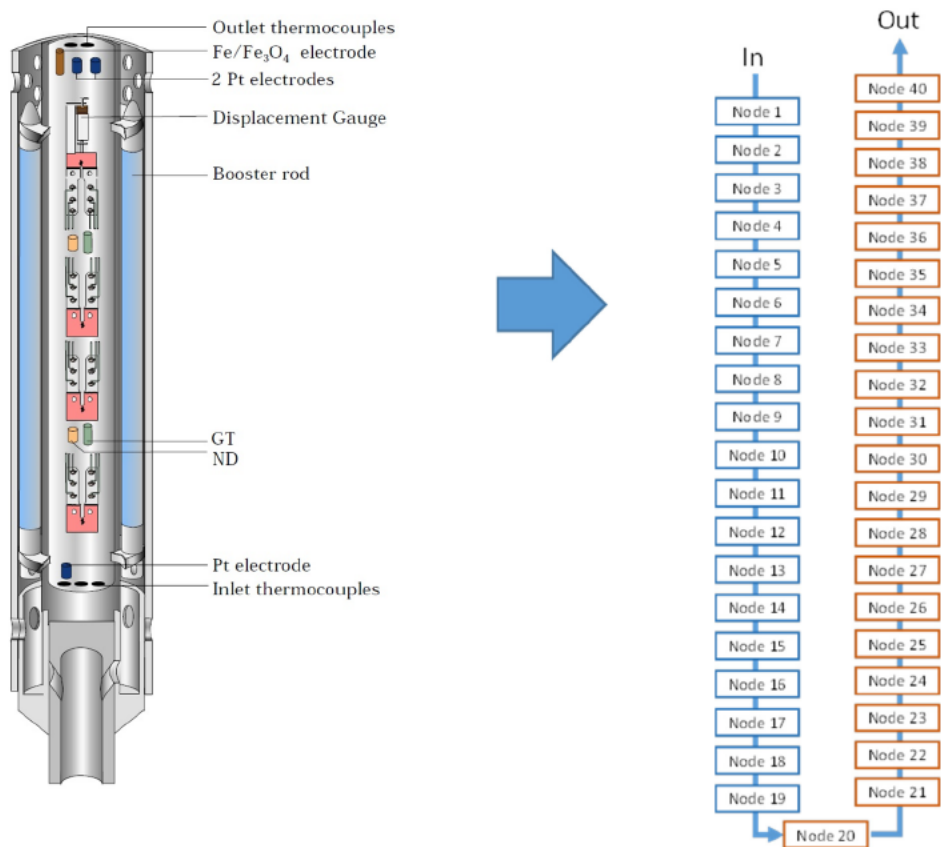


図 3.3.2-2 照射リグ 2 の解析モデル

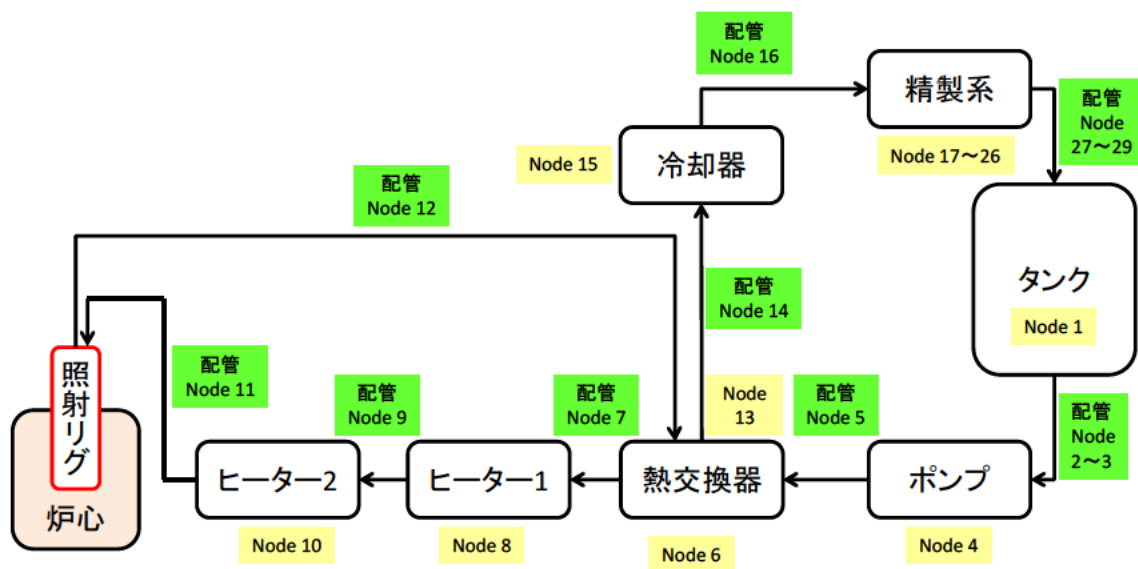


図 3.3.2-3 照射試験ループの解析モデル

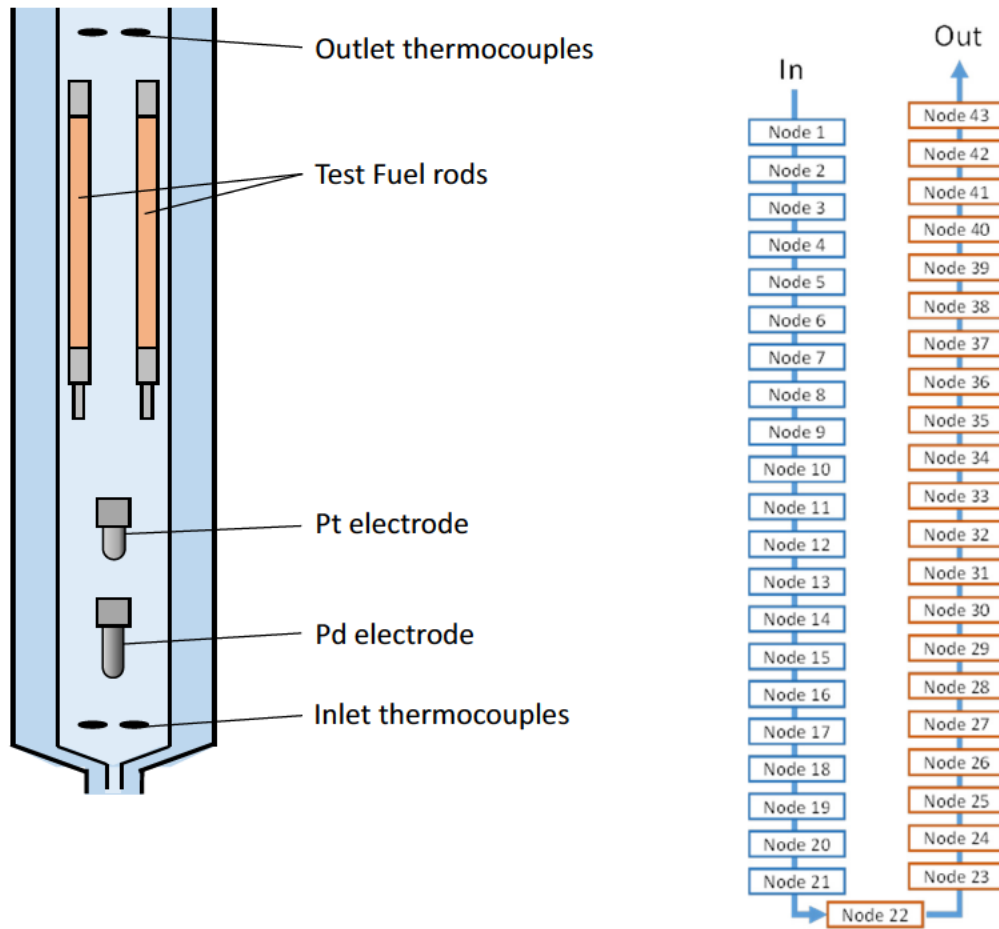


図 3.3.2-4 照射リグの解析モデル

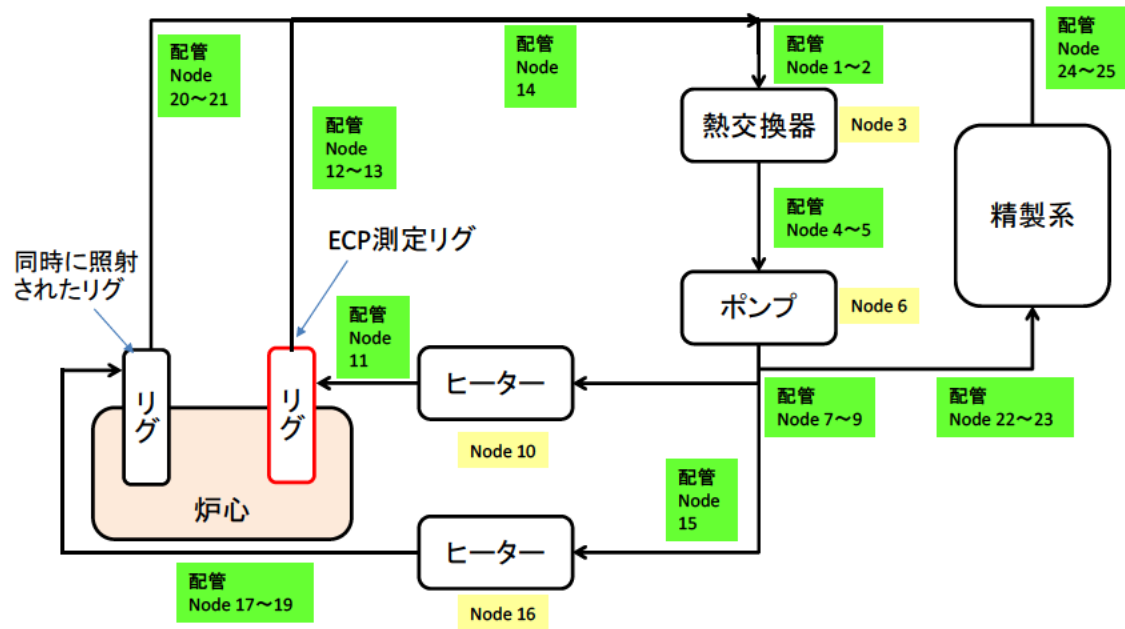


図 3.3.2-5 照射試験ループの解析モデル

### 3.3.3 照射環境下における水質の評価及び照射下腐食電位測定データと解析値の比較

#### 3.3.3.1. BWR 模擬環境試験

3.2 及び 3.3.2 で整理した照射下 ECP 測定時の試験装置運転情報や解析モデルを用いて照射環境下 ECP 測定時における照射リグ内の水質を評価するとともに評価された水質等に基づき ECP を評価した。

##### (1) 照射リグ内の水質評価

###### (1)-1 照射リグ 1

水素注入条件及び酸素注入条件における照射リグ 1 内部の水質を評価した。水素注入条件については、図 3.2.2-3 に示した時刻歴データの 500h 付近を対象とし解析を実施した。なお、タンクから供給される水に含まれる水素濃度は 1780ppb である。リグ内部の各ノードにおける温度、圧力、流速及び水の滞在時間を表 3.3.3-1 に示す。酸素注入条件については、図 3.2.2-3 に示した時刻歴データの 3500h 付近を対象とし解析を実施した。タンクから供給される水に含まれる酸素濃度は 6930ppb である。照射リグ 1 内部にて水が中性子線及び  $\gamma$  線から受ける吸収線量率を図 3.3.3-1 に示す。同図には、ECP の計測位置を併記した。横軸は炉心の高さ、すなわちリグの長さ方向に対応しており、左側がリグの下方、右側がリグの上方に対応する。なお、リグ上方の 250cm 近傍は、表 3.3.3-1 及び表 3.3.3-2 のノード 36 に対応する。中性子線と  $\gamma$  線による水の吸収線量率は、ピークで大凡 2kGy/s 程度であり、軽水炉の炉心外周近傍に相当するものと推測される。ラジオリシス解析に用いた G 値を表 3.3.3-3 に示す。

照射リグから照射試験ループへ戻った水中に含まれる化学種濃度について、測定値（図 3.3.2-3 の精製系で測定）と解析値の比較を図 3.3.3-2 に示す。水素注入条件、酸素注入条件ともに解析では測定値を再現していることを確認した。

水素注入条件における照射リグ 1 内部の化学種濃度分布を図 3.3.3-3 に示す。水の放射線分解により過酸化水素が湧き出し、その量はリグの上部と下部の ECP 計測部で 10ppb 程度、リグ中央付近の ECP 測定部で 25ppb 程度と推測された。高い濃度の水素が供給水に注入されているため、酸素の湧き出しは抑制されている。

酸素注入条件における照射リグ 1 内部の化学種濃度分布を図 3.3.3-4 に示す。供給水中に高濃度の酸素が注入されているため、照射領域の過酸化水素濃度も高い。照射領域では水素も湧き出しておりその量は 160ppb 程度と見積もられた。

###### (1)-2 照射リグ 2

水素注入条件及び酸素注入条件における照射リグ 2 内部の水質を評価した。水素注入条件については、図 3.2.2-4 に示した時刻歴データの 200h 付近を対象とし解析を実施した。なお、タンクから供給される水に含まれる水素濃度は 2410ppb である。リグ内部の各ノードにおける温度、圧力、流速及び水の滞在時間を表 3.3.3-4 に示す。酸素注入条件については、

図 3.2.2-4 に示した時刻歴データの 320h 付近を対象とし解析を実施した。タンクから供給される水に含まれる酸素濃度は 220ppb である。照射リグ 1 内部にて水が中性子線及び  $\gamma$  線から受ける吸収線量率を図 3.3.3-5 に示す。同図には、ECP の計測位置を併記している。前述のように、横軸はリグの長さ方向に対応しており、左側がリグの下方、右側がリグの上方に対応する。なお、リグ上方の 250cm 近傍は、表 3.3.3-1 及び表 3.3.3-2 のノード 38 に対応する。照射リグ 2 内部における中性子線と  $\gamma$  線による水の吸収線量率は、照射リグ 1 と同等であった。

水素注入条件における照射リグ 2 内部の化学種濃度分布を図 3.3.3-6 に示す。照射リグ内部の化学種濃度分布は照射リグ 1 の場合と同様であり、水の放射線分解により湧き出した過酸化水素は照射リグ下部の ECP 測定部位で 14ppb 程度、照射リグの上部 ECP 測定部位で 7ppb 程度であった。

酸素注入条件における照射リグ 2 内部の化学種濃度分布を図 3.3.3-7 に示す。200ppb 程度の酸素が供給水中に存在することで、照射リグ内部では過酸化水素は 400ppb 程度、酸素は 300ppb 程度、水素は 40ppb 程度存在することが推測された。

## (2) 水質評価結果にもとづく ECP の評価

前述のラジオリス解析結果を基に、照射リグ内部の ECP 測定部位における ECP を評価した。図 3.3.3-8 に示すように、ECP の測定値と解析値は大凡 $\pm 100\text{mV}$  の範囲<sup>[1]</sup>に入っており、解析は妥当であると判断した。

### 3.3.3.2. PWR 模擬環境試験

3.2 及び 3.3.2 で整理した照射下 ECP 測定時の試験装置運転情報や解析モデルを用いて照射環境下 ECP 測定時における照射リグ内の水質を評価するとともに評価された水質等に基づき ECP を評価した。

#### (1) 照射リグ内の水質評価

PWR 模擬環境試験における照射リグ内部の水質を評価した。評価にあたっては、ハルデン炉で取得されたデータから 3 点を抽出し、図 3.2.2-7 に示した時刻歴データの①100h 付近、②3500h 付近及び③5000h 付近を対象として解析を実施した。評価①、評価②及び評価③における水質条件を表 3.3.3-6 に示す。また、評価①～③におけるリグ内部の各ノードでの温度、圧力、流速及び水の滞在時間を表 3.3.3-7 から表 3.3.3-9 に示す。照射リグ内部で水が中性子線、 $\gamma$  線及び  $\alpha$  線から受ける吸収線量率を図 3.3.3-9 に示す。同図には、ECP の計測位置を併記した。PWR 模擬環境試験では、ケミカルシムとして添加されているホウ素の  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  反応による  $\alpha$  線を考慮している。なお、中性子線、 $\gamma$  線及び  $\alpha$  線による水の吸収線量率は、ピークで大凡  $2\text{kGy/s}$  程度であった。使用した G 値を表 3.3.3-10 に示す。

評価①～③における照射リグ内部の化学種濃度分布を図 3.3.3-10 から図 3.3.3-12 に示す。何れの場合も照射リグ内部の水質分布は同様であり、水の放射線分解により湧き出した過酸化水素は ECP 測定部位それぞれ 10ppb 程度及び 15ppb 程度であった。

(2) 水質評価結果にもとづく ECP の評価

ラジオリシス解析結果を基に、評価①～③における照射リグ内部の ECP 測定部位の ECP を評価した。図 3.3.3-13 に示すように、解析値は測定値より高めの予測を与えるが、ECP の測定値と解析値は大凡±100mV の範囲<sup>[1]</sup>に入っており、解析は妥当であると判断した。

表 3.3.3-1 照射リグ 1 内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間（水素注入条件）

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速(m/s)	滞在時間 (s)
20	556	8.9	0.02	3.1
21	556	8.9	0.02	2.1
22	557	8.9	0.04	1.3
23	557	8.9	0.03	2.9
24	558	8.9	0.02	4.8
25	558	8.9	0.03	3.7
26	558	8.9	0.03	2.1
27	559	8.9	0.02	5.3
28	559	8.9	0.04	2.7
29	560	8.9	0.02	5.0
30	561	8.9	0.04	2.8
31	561	8.9	0.02	1.9
32	561	8.9	0.02	2.3
33	562	8.9	0.02	6.6
34	562	8.9	0.02	8.4
35	562	8.9	0.03	8.0
36	562	8.9	0.06	2.6
37	562	8.9	0.06	39.4
38	562	8.9	2.41	0.1



表 3.3.3-2 照射リグ 1 内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間（酸素注入条件）

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速(m/s)	滞在時間 (s)
20	553	8.9	0.02	3.1
21	553	8.9	0.02	2.1
22	553	8.9	0.04	1.3
23	553	8.9	0.03	2.9
24	554	8.9	0.02	4.8
25	554	8.9	0.03	3.8
26	554	8.9	0.03	2.2
27	555	8.9	0.02	5.4
28	555	8.9	0.04	2.8
29	556	8.9	0.02	5.1
30	556	8.9	0.04	2.9
31	556	8.9	0.02	1.9
32	556	8.9	0.02	2.3
33	557	8.9	0.02	6.8
34	557	8.9	0.02	8.5
35	557	8.9	0.02	8.1
36	557	8.9	0.06	2.7
37	557	8.9	0.06	40.3
38	557	8.9	2.35	0.1

表 3.3.3-3 G 値一覧

	e <sup>-</sup>	H	H <sup>+</sup>	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	HO <sub>2</sub>	OH
Gamma	3.50	0.90	3.50	0.60	0.55	0.00	4.50
Neutron	0.60	0.50	0.60	1.50	1.14	0.04	1.70

表 3.3.3-4 照射リグ 2 内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間（水素注入条件）

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速(m/s)	滞在時間 (s)
21	550	8.1	0.02	4.0
22	550	8.1	0.02	2.7
23	550	8.1	0.03	1.7
24	550	8.1	0.02	3.8
25	550	8.1	0.02	6.3
26	550	8.1	0.03	4.7
27	550	8.1	0.02	5.6
28	550	8.1	0.03	4.6
29	550	8.1	0.02	5.3
30	550	8.1	0.02	5.6
31	550	8.1	0.03	3.7
32	550	8.1	0.03	3.4
33	550	8.1	0.02	3.9
34	550	8.1	0.02	3.6
35	550	8.1	0.02	2.5
36	550	8.1	0.02	6.1
37	550	8.1	0.02	21.3
38	550	8.1	0.05	0.9
39	550	8.1	0.05	26.7
40	550	8.1	0.05	25.0

表 3.3.3-5 照射リグ 2 内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間（酸素注入条件）

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速(m/s)	滞在時間 (s)
21	533	8.1	0.02	4.4
22	533	8.1	0.02	3.0
23	533	8.1	0.03	1.9
24	533	8.1	0.02	4.2
25	534	8.1	0.01	7.0
26	534	8.1	0.02	5.3
27	534	8.1	0.01	6.2
28	534	8.1	0.02	5.1
29	534	8.1	0.01	5.9
30	534	8.1	0.02	6.2
31	535	8.1	0.02	4.1
32	535	8.1	0.02	3.8
33	535	8.1	0.02	4.3
34	535	8.1	0.01	4.0
35	535	8.1	0.02	2.8
36	535	8.1	0.02	6.8
37	535	8.1	0.02	23.7
38	535	8.1	0.04	0.9
39	535	8.1	0.04	29.7
40	535	8.1	0.05	27.8

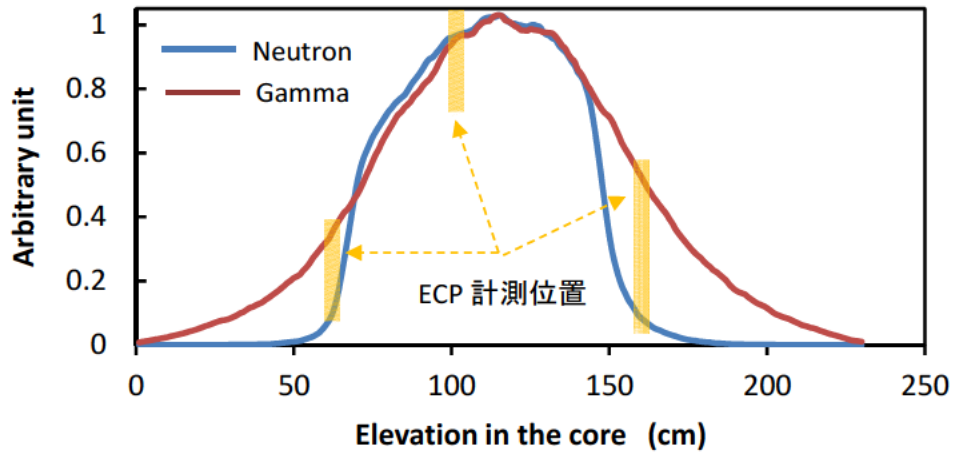


図 3.3.3-1 照射リグ 1 内部における水の吸収線量率の分布

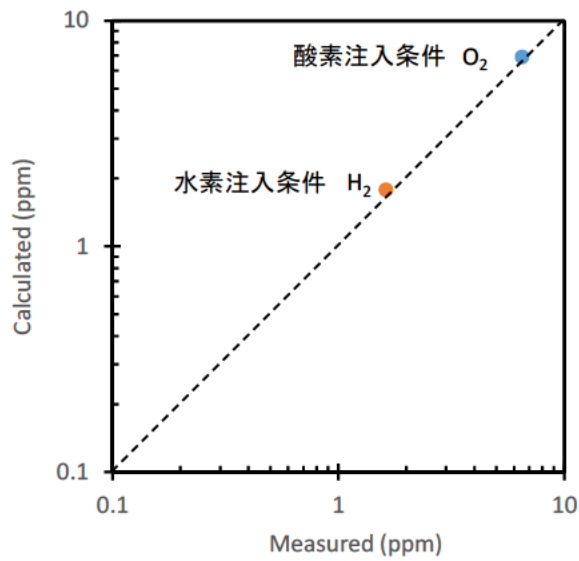
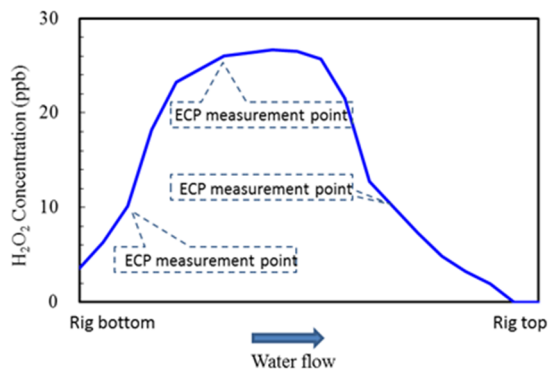
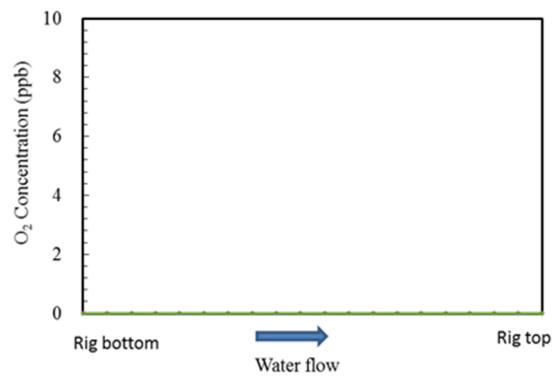


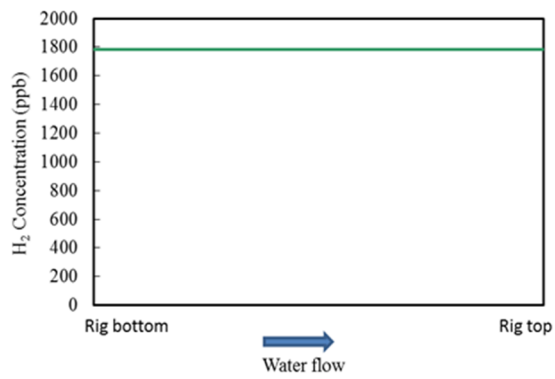
図 3.3.3-2 ループへ戻る水中に含まれる化学種濃度の測定値と解析値の比較



(a) 過酸化水素濃度分布

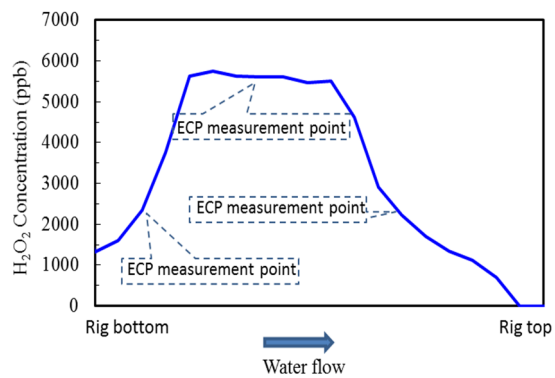


(b) 酸素濃度分布

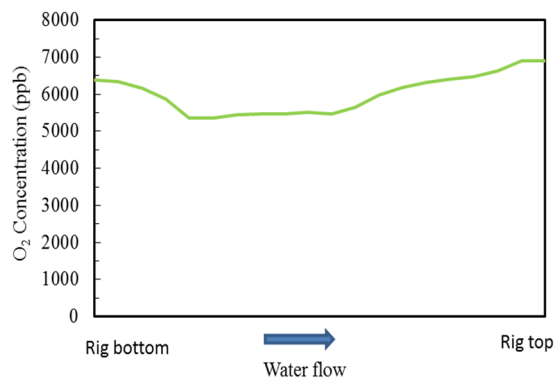


(c) 水素濃度分布

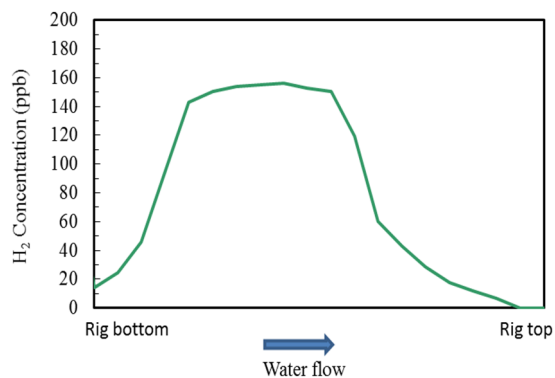
図 3.3.3-3 照射リグ 1 内部の水質分布 (水素注入条件)



(a) 過酸化水素濃度分布



(b) 酸素濃度分布



(c) 水素濃度分布

図 3.3.3-4 照射リグ 1 内部の水質分布 (酸素注入条件)

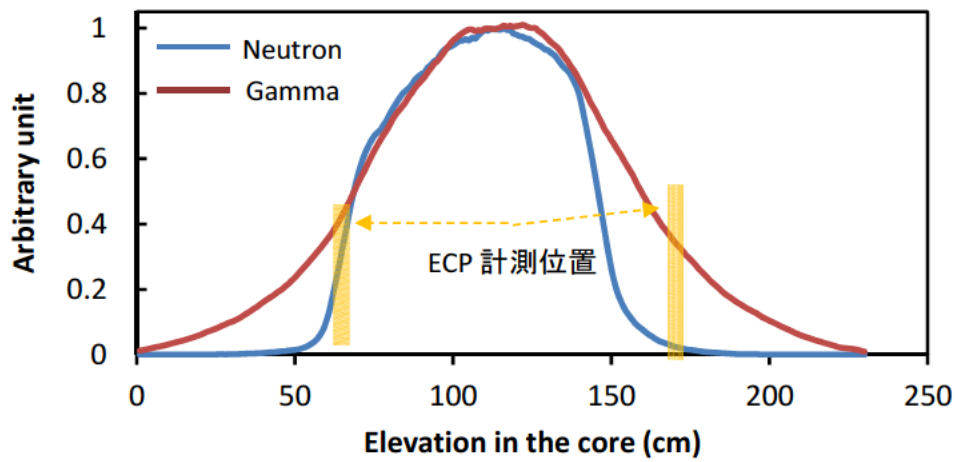
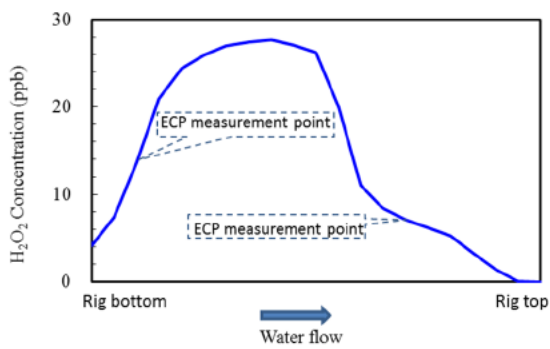
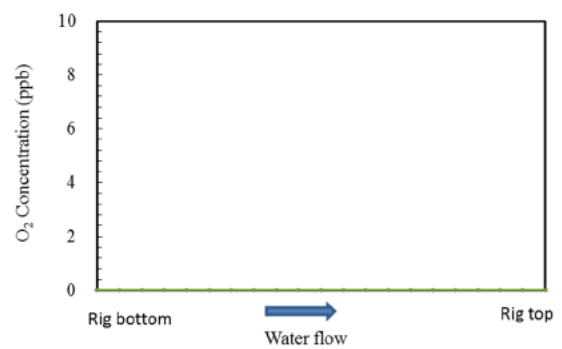


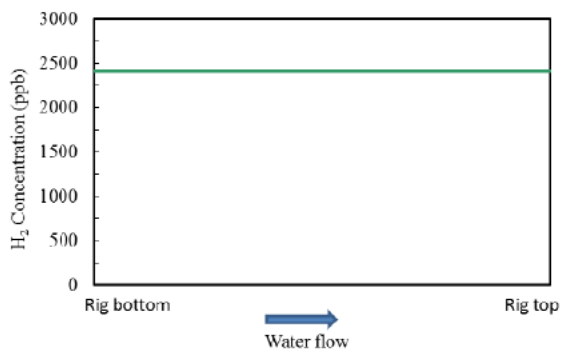
図 3.3.3-5 照射リグ 2 内部における水の吸収線量率の分布



(a) 過酸化水素濃度分布

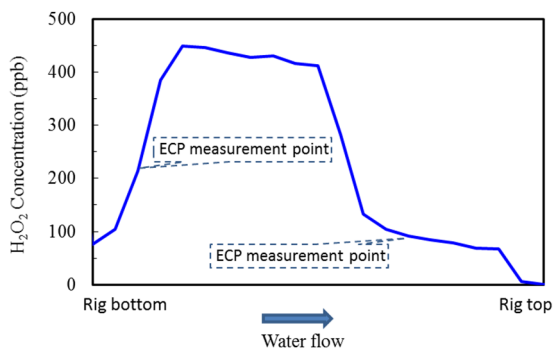


(b) 酸素濃度分布

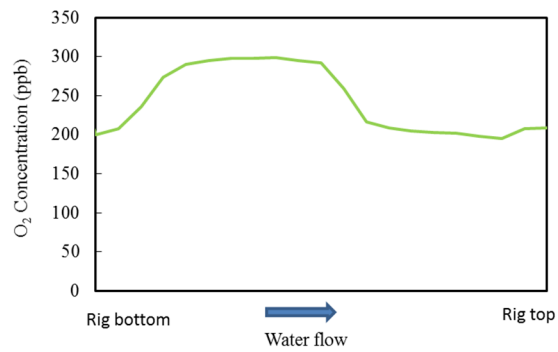


(c) 水素濃度分布

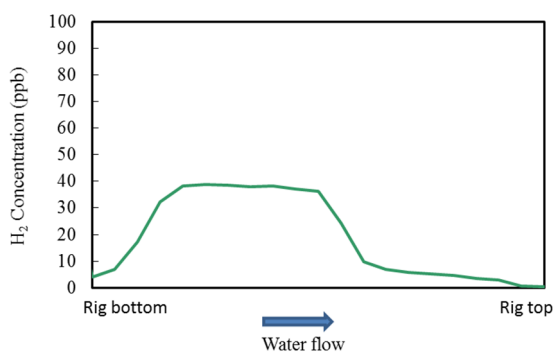
図 3.3.3-6 照射リグ 2 内部の水質分布 (水素注入条件)



(a) 過酸化水素濃度分布



(b) 酸素濃度分布



(c) 水素濃度分布

図 3.3.3-7 照射リグ 2 内部の水質分布 (酸素注入条件)

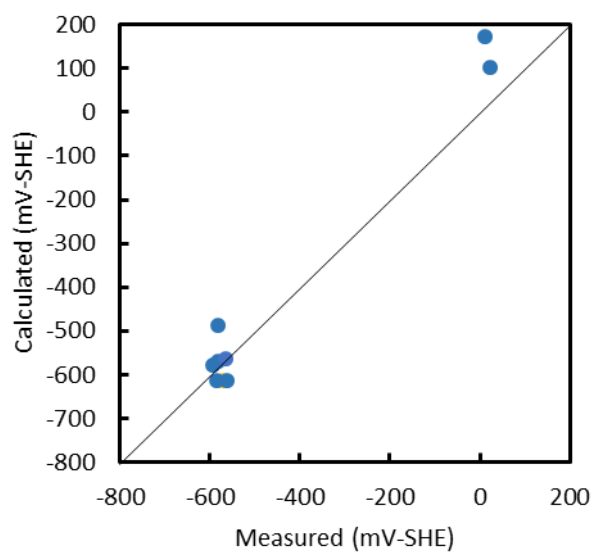


図 3.3.3-8 ECP 測定結果と解析結果の比較

表 3.3.3-6 PWR 模擬環境試験における水質条件

	評価①	評価②	評価③
給水中水素濃度 (ppb)	3170	3166	4478
ホウ素濃度 (ppm)	1034	1034	1030
pH	7.1	7.1	7.1

表 3.3.3-7 評価①における照射リグ内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速(m/s)	滞在時間 (s)
23	583	15.5	0.30	0.2
24	583	15.5	0.27	0.4
25	583	15.5	0.24	0.4
26	583	15.5	0.26	0.3
27	583	15.5	0.24	0.6
28	583	15.5	0.29	0.3
29	583	15.5	0.30	0.3
30	584	15.5	0.30	0.4
31	584	15.5	0.31	0.4
32	585	15.5	0.31	0.4
33	586	15.5	0.30	0.4
34	586	15.5	0.30	0.3
35	587	15.5	0.29	0.3
36	587	15.5	0.25	0.5
37	588	15.5	0.28	0.7
38	590	15.5	0.28	0.7
39	591	15.5	0.28	0.7
40	591	15.5	0.27	0.3
41	592	15.5	0.27	0.7
42	592	15.5	0.65	3.0
43	592	15.5	0.50	0.8



表 3.3.3-8 評価②における照射リグ内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速 (m/s)	滞在時間 (s)
23	583	15.6	0.31	0.2
24	583	15.6	0.27	0.4
25	583	15.6	0.25	0.4
26	583	15.6	0.27	0.3
27	583	15.6	0.25	0.6
28	583	15.6	0.30	0.3
29	583	15.6	0.31	0.2
30	584	15.6	0.31	0.4
31	584	15.6	0.31	0.4
32	585	15.6	0.31	0.3
33	586	15.6	0.31	0.4
34	586	15.6	0.31	0.3
35	587	15.6	0.30	0.3
36	587	15.6	0.26	0.5
37	589	15.6	0.28	0.7
38	590	15.6	0.29	0.7
39	591	15.6	0.29	0.7
40	591	15.6	0.28	0.2
41	592	15.6	0.28	0.6
42	592	15.6	0.67	2.9
43	592	15.6	0.52	0.8

表 3.3.3-9 評価③における照射リグ内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速 (m/s)	滞在時間 (s)
23	583	15.6	0.30	0.2
24	583	15.6	0.27	0.4
25	583	15.6	0.25	0.4
26	583	15.6	0.26	0.3
27	583	15.6	0.25	0.6
28	583	15.6	0.29	0.3
29	583	15.6	0.30	0.2
30	584	15.6	0.30	0.4
31	584	15.6	0.31	0.4
32	585	15.6	0.31	0.4
33	586	15.6	0.31	0.4
34	586	15.6	0.30	0.3
35	587	15.6	0.30	0.3
36	587	15.6	0.25	0.5
37	588	15.6	0.28	0.7
38	589	15.6	0.28	0.7
39	591	15.6	0.28	0.7
40	591	15.6	0.28	0.3
41	592	15.6	0.28	0.7
42	592	15.6	0.66	2.9
43	592	15.6	0.51	0.8

表 3.3.3-10 G 値一覧

	e <sup>-</sup>	H	H <sup>+</sup>	H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	HO <sub>2</sub>	OH
Gamma	3.50	0.90	3.50	0.60	0.55	0.00	4.50
Neutron	0.60	0.50	0.60	1.50	1.14	0.04	1.70
Alfa <sup>[2]</sup>	0.13	0.12	0.13	1.65	1.55	0.00	0.45

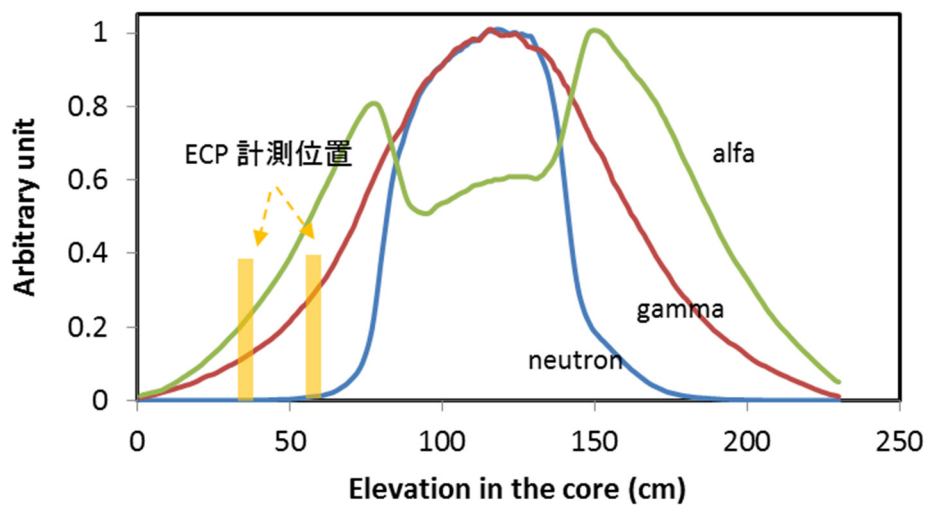
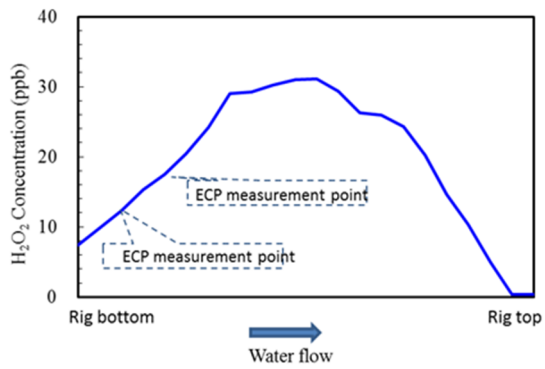
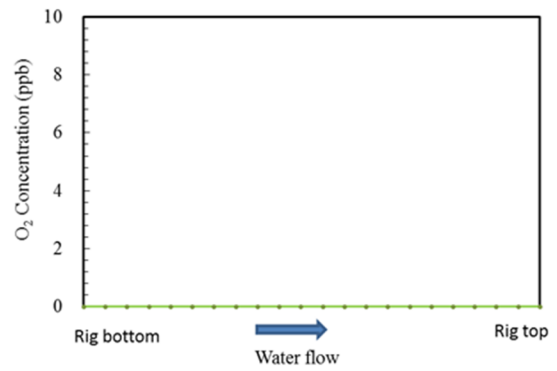


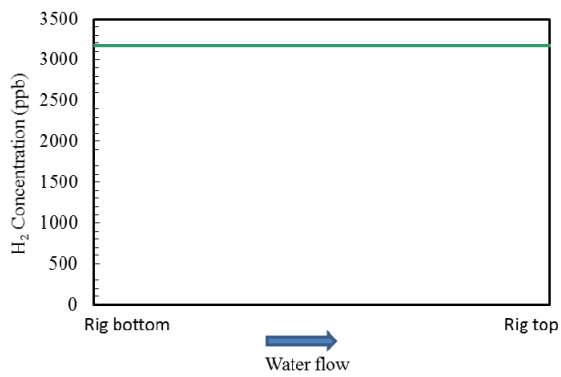
図 3.3.3-9 照射リグ内部における水の吸収線量率の分布



(a) 過酸化水素濃度分布

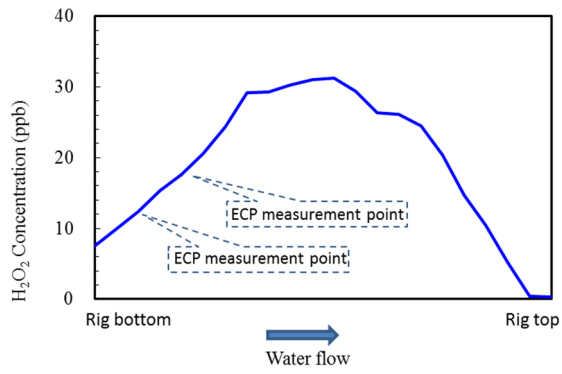


(b) 酸素濃度分布

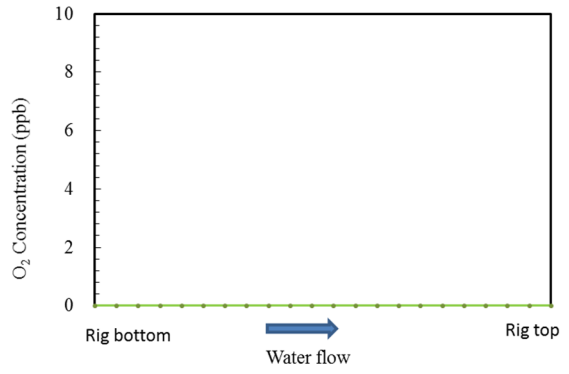


(c) 水素濃度分布

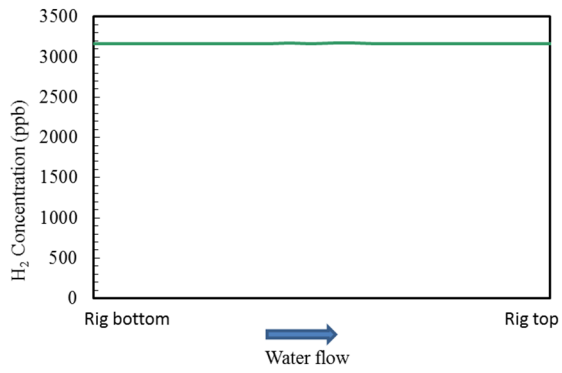
図 3.3.3-10 評価①における照射リグ内部の水質分布



(a) 過酸化水素濃度分布

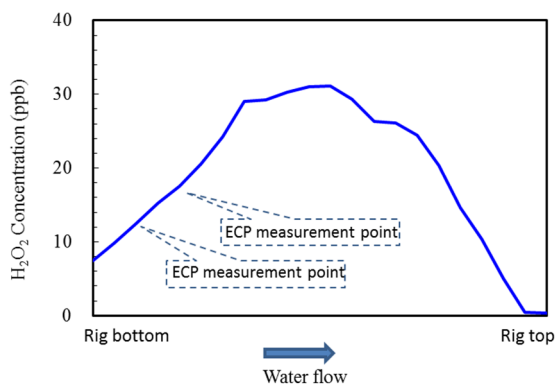


(b) 酸素濃度分布

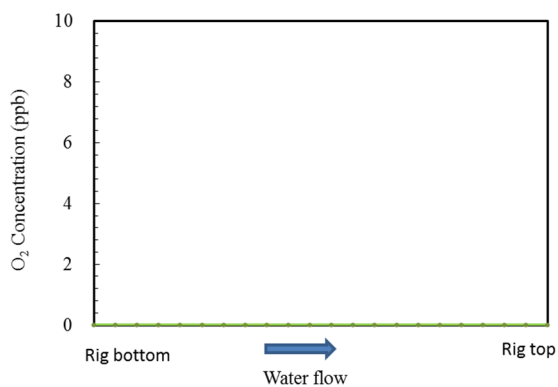


(c) 水素濃度分布

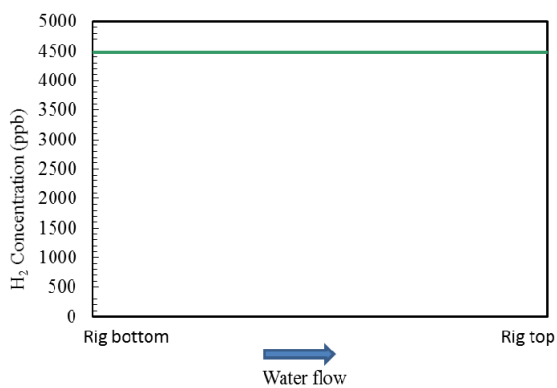
図 3.3.3-11 評価②における照射リグ内部の水質分布



(a) 過酸化水素濃度分布



(b) 酸素濃度分布



(c) 水素濃度分布

図 3.3.3-12 評価③における照射リグ内部の水質分布

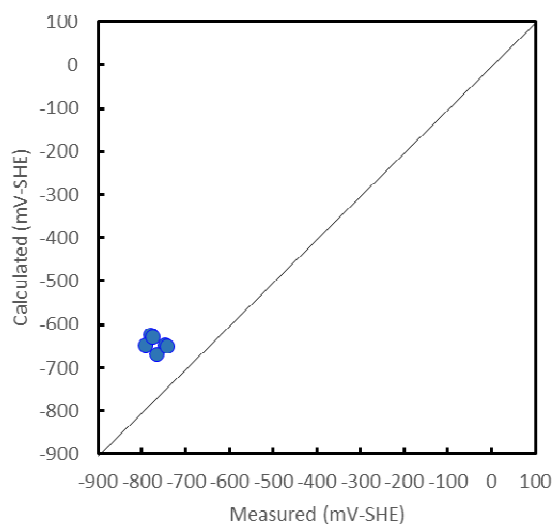


図 3.3.3-13 ECP 測定結果と解析結果の比較

### 3.3.4 照射環境下で生成された酸化皮膜と解析による腐食環境予測結果との比較

ハルデン炉の照射リグ内高温水にステンレス鋼(SUS316L)を浸漬し、放射線分解水質条件下において表面に生成した酸化皮膜を詳細に分析するとともに、照射試験時の水質及び腐食環境を解析評価した結果を比較し、腐食環境評価の妥当性及びこれらの評価に資するための知見を得ることを目的とした。

#### 3.3.4.1. 照射試験時の水質及び腐食環境予測

酸化皮膜分析には、ハルデン炉で照射されたステンレス鋼平板試験片を用いた。照射はBWR 模擬水質条件で行われ、図 3.3.4-1 に示すように照射リグ内部の高さ方向における試験片の装荷位置を変えることで 3 つの中性子束レベルが与えられたものである。試験での照射条件である高速中性子束及び  $\gamma$  発熱率を表 3.3.4-1 に示す。照射リグは、図 3.3.4-2 に示す照射試験ループに接続された。当該照射試験ループのモデル化に十分な、構造に係る情報は入手出来なかったが、3.3.2.1.2 節で示した照射試験ループと同じ循環型であること、ハルデン炉が所有する照射試験ループは構造や配置が同等であることから、3.3.2.1.2 節で作成した解析モデルを使用した。ただし、照射試験ループにより配管長さや一部配管径が若干異なる可能性がある。そこで、配管長さや配管径の影響を事前に検討した。配管長さについては、 $\pm 10\text{m}$  の差を考慮し、配管径の差異については流量の変化として $\pm 10\%$ の違いを考慮した。その結果、配管の長さは照射リグ内部の化学種濃度に影響を与えないこと、流量変化は照射リグ内部の化学種濃度に若干影響するがその程度は約 $\pm 3\%$ であり以後の評価に有意な影響を与えないことから、3.3.2.1.2 節で作成した解析モデルを使用することは妥当と判断した。照射リグは、図 3.3.4-3 に示すように下降流と上昇流をそれぞれ 15 個のノードに分割した。照射試験は、酸素濃度 1995ppb で実施された。リグ内部の各ノードにおける温度、圧力、流速及び水の滞在時間を表 3.3.4-2 に示す。

計算された照射リグ内部の水質を図 3.3.4-4 に示す。何れの領域においても高い濃度の過酸化水素酸素が存在していることが推測される。これら化学種濃度から評価された試験片装荷位置における ECP 評価結果を表 3.3.4-3 に示す。何れの試験片装荷位置においても予測される ECP は約 200mV-SHE であった。

表 3.3.4-1 試験片照射時の高速中性子束及び  $\gamma$  発熱率

照射位置	中性子線束 ( $n/cm^2s$ )	$\gamma$ 発熱率 (W/g)
High flux	$2.9 \times 10^{13}$	1.04
Middle flux	$0.5 \times 10^{13}$	0.65
Low flux	$0.3 \times 10^{13}$	0.48

表 3.3.4-2 照射リグ内部の温度、圧力、流速及び水の滞在時間

Node	温度(K)	圧力 (MPa)	流速 (m/s)	滞在時間 (s)
17	560	8.1	0.25	0.3
18	560	8.1	0.27	1.5
19	560	8.1	0.28	0.3
20	560	8.1	0.39	0.2
21	560	8.1	0.28	0.3
22	560	8.1	0.39	0.2
23	560	8.1	0.54	0.3
24	560	8.1	0.28	0.5
25	560	8.1	0.39	0.2
26	560	8.1	0.54	0.4
27	560	8.1	0.60	0.1
28	560	8.1	0.25	1.3
29	560	8.1	0.48	0.7
30	560	8.1	0.48	2.4
31	560	8.1	0.53	2.6

表 3.3.4-3 試験片照射位置における水質と ECP 評価結果

	H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> (ppb)	O <sub>2</sub> (ppb)	H <sub>2</sub> (ppb)	ECP (mV-SHE)
High flux	2755	1728	119	210
Mid. Flux	880	1904	29	208
Low flux	780	1901	23	206

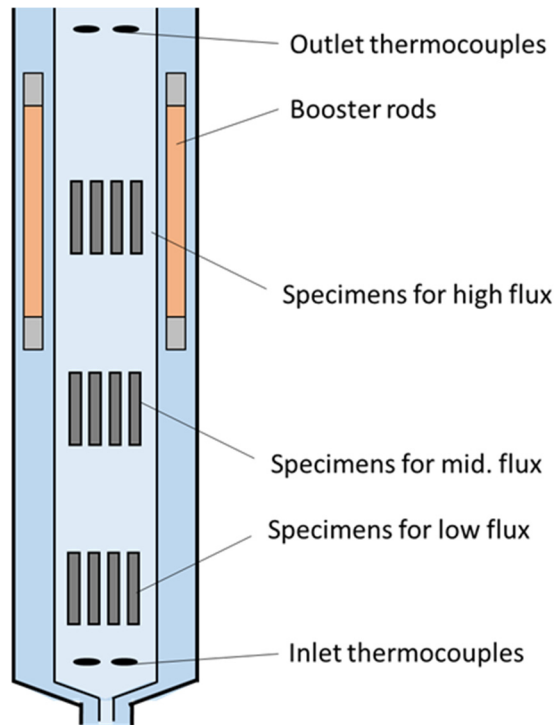


図 3.3.4-1 照射リグ内における試験片装荷位置

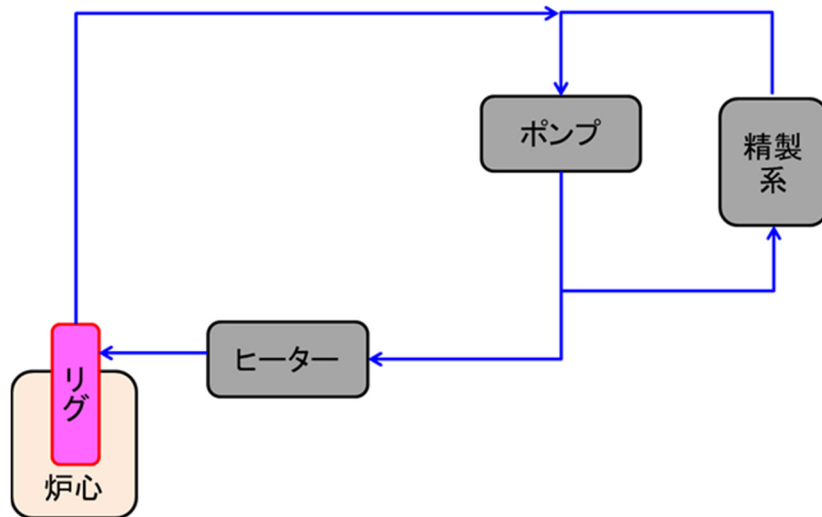


図 3.3.4-2 照射試験ループの概略構造図



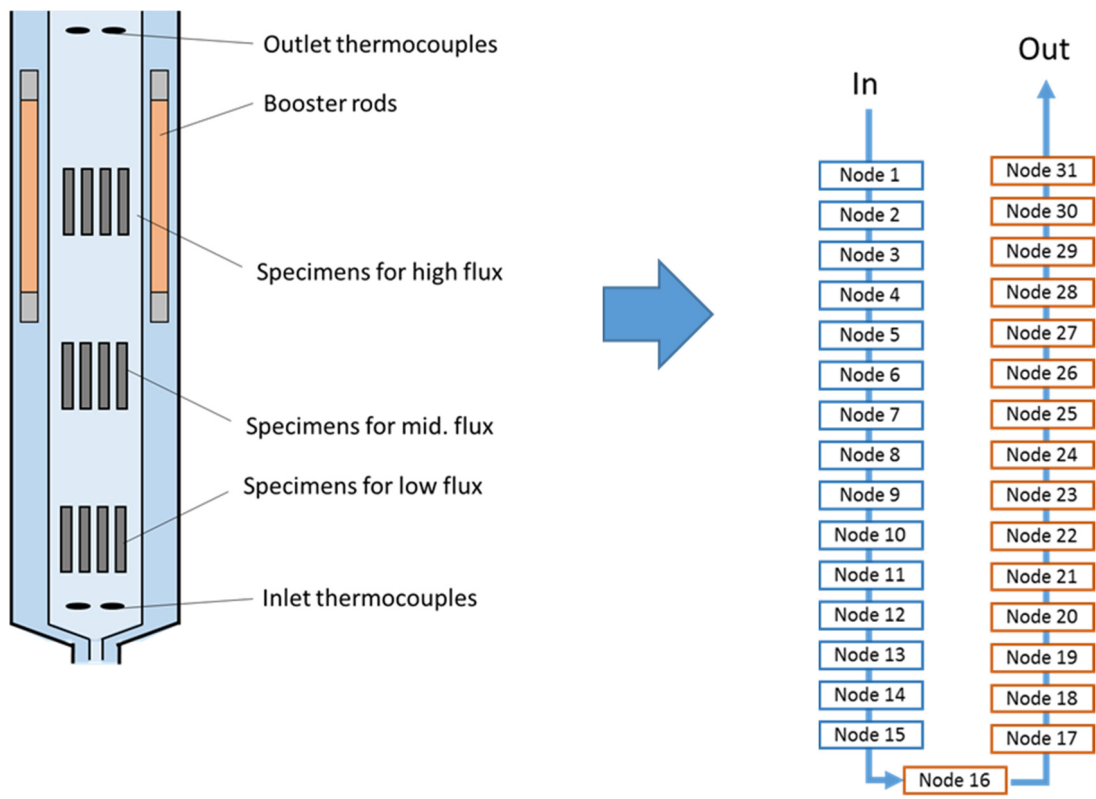


図 3.3.4-3 照射リグの解析モデル

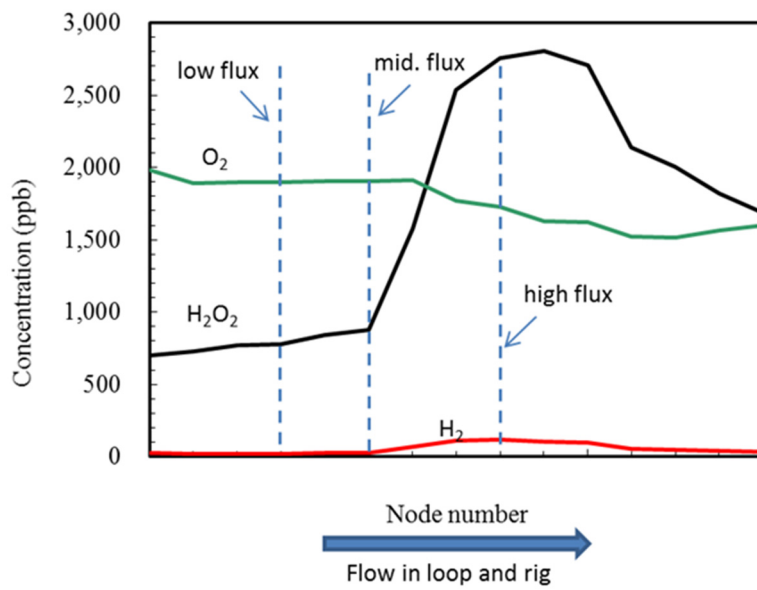


図 3.3.4-4 照射リグ内部の水質分布

### 3.3.4.2. 照射環境下で生成した酸化皮膜の分析及び腐食環境予測結果との相関に係る考察

#### (1)供試材と試験マトリクス

ハルデン炉照射リグにて浸漬試験した SUS316L の化学成分を表 3.3.4-4 に示す。

ハルデン炉における照射下浸漬試験状況を調査したところ、試験リグ番号 IFA-727.1 及び IFA-727.2 において代表的な BWR 炉心模擬条件下(溶存酸素 2 ppm、温度 287°C)でかつ低、中及び高中性子束の領域で照射された試験片があり、かつハルデン炉シェラーホットラボに保管されていることが分かった。図 3.3.4-5 (1)、(2)に、それぞれ試験リグ番号 IFA-727.1 と IFA-727.2 の試験片装荷位置並びに相対的な $\gamma$ 線の線量率分布を示す。図 3.3.4-5 (1)に示すように、領域①、②及び③における相対的な $\gamma$ 線の線量率は凡そ 3 レベルに区分されることが判った。そこで当該領域に装荷された浸漬試験片を選定した。

試験に供した SUS316L の中性子フラックス、浸漬時間等の試験マトリクスを表 3.3.4-5 に示す。それぞれの試験片の選定理由を以下に示す。

#### ①試験片 ID. A、B、C

中性子束レベルの相違の影響確認

#### ②試験片 ID. D、E、F、G

中性子束高レベル条件( $2.5 \sim 3.2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{s} > 1 \text{ MeV}$ )において、酸化皮膜形成に及ぼす放射線( $\gamma$ 線、中性子線)線量率効果の確認

#### (2)実験方法

照射環境下高温水浸漬によって試験片表面に生成した酸化皮膜を対象として、SEM による表面観察及び斜め研磨した後の断面観察、並びにラマン分光分析による酸化皮膜の同定を行った。

酸化皮膜の観察は、以下に着目して実施した。

#### ① 表面 SEM 観察：表面酸化物の変化(高電位酸化物、ヘマタイト等の検出)

観察箇所：浸漬試験片の各面毎 3 箇所

観察倍率：250、1000、2000、4000 倍(4 水準)

#### ② 斜め研磨による断面 SEM 観察：金属/酸化物界面における酸化状態と酸化皮膜の厚さ評価

観察箇所：浸漬試験片の片面 1 箇所

観察倍率：25 倍(研磨面外観)、3000～10000 倍(詳細観察)

#### ③ ラマン分光：酸化皮膜の化学形態

分析箇所：浸漬試験片の各面毎 3 箇所

断面 SEM 観察の前処理に用いた斜め研磨法の概略を図 3.3.4-6 に示す。浸漬試験片の観察面が下向きになるように  $10^\circ$  の角度を持たせた試験片ホルダーに試験片をセットし、試験片とホルダーをエポキシ樹脂に埋め込んで下側から研磨する方法である。従って上方から研磨面を観察すると、表面の酸化皮膜と母相のステンレス鋼を断面方向に観察することが出

来る。なおこの写真から酸化皮膜厚さを求めるには、測定した厚さに  $\sin 10^\circ$  を乗じる必要がある。

今回観察した浸漬試験片はいずれも放射化しているため、いずれの作業もハルデンプロジェクトが管理運営するシェラーホットラボ施設において、遠隔作業にて実施した。

表 3.3.4-4 供試材 SUS316L 鋼の化学成分 (wt %)

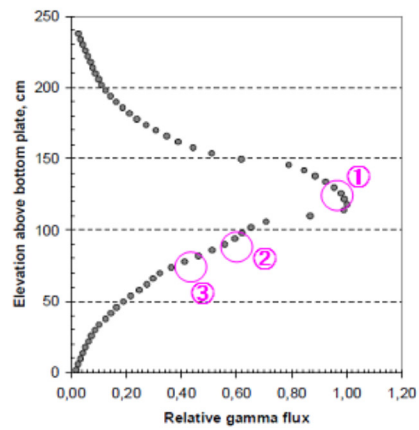
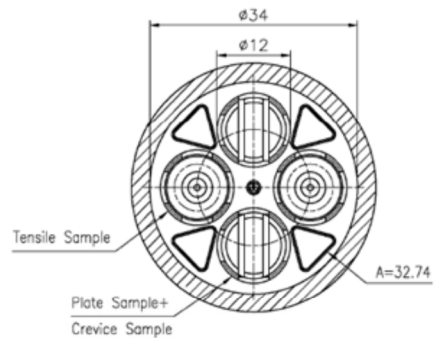
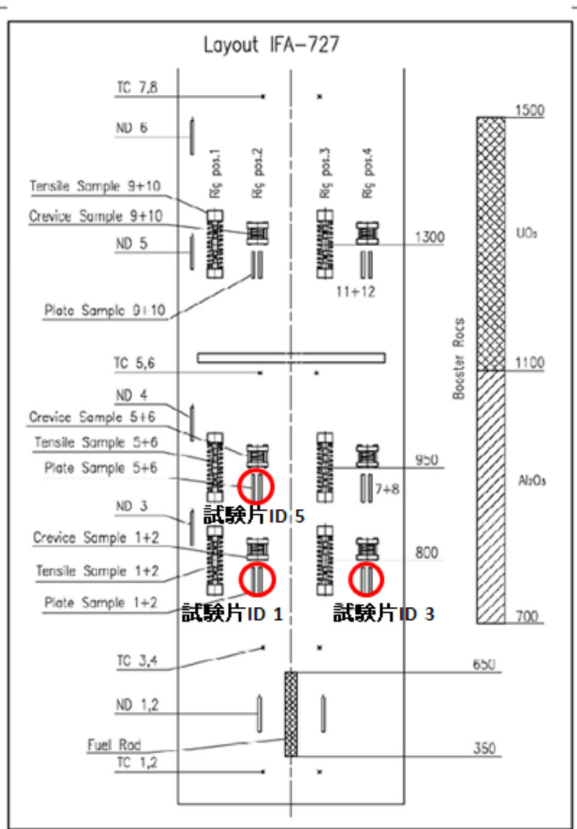
	C	Si	Mn	P	Ni	Cr	Mo	N
316L	0.018	0.47	0.82	0.028	12.06	17.68	2.17	0.039

表 3.3.4-5 試験マトリクス

試験片 ID	中性子フラックス ( $E > 1 \text{ MeV}$ )	浸漬時間 (時間)	表面 SEM	断面 SEM	ラマ ン	備考 (付録※記載の ID)
A	$3 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	2233	○	○	○	ID “1”
B	$5 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	2233	○	○	—	ID “3”
C	$2.9 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	2233	○	○	—	ID “5”
D	$2.5 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	864	○	○	○	ID “-1”
E	$2.8 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	528	○	○	○	ID “-3”
F	$2.8 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	1181	○	○	○	ID “-5”
G	$3.2 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$	2572	○	○	—	ID “-7”

凡例 ○: 実施 —: 実施せず

※) 東北大委託研究報告書

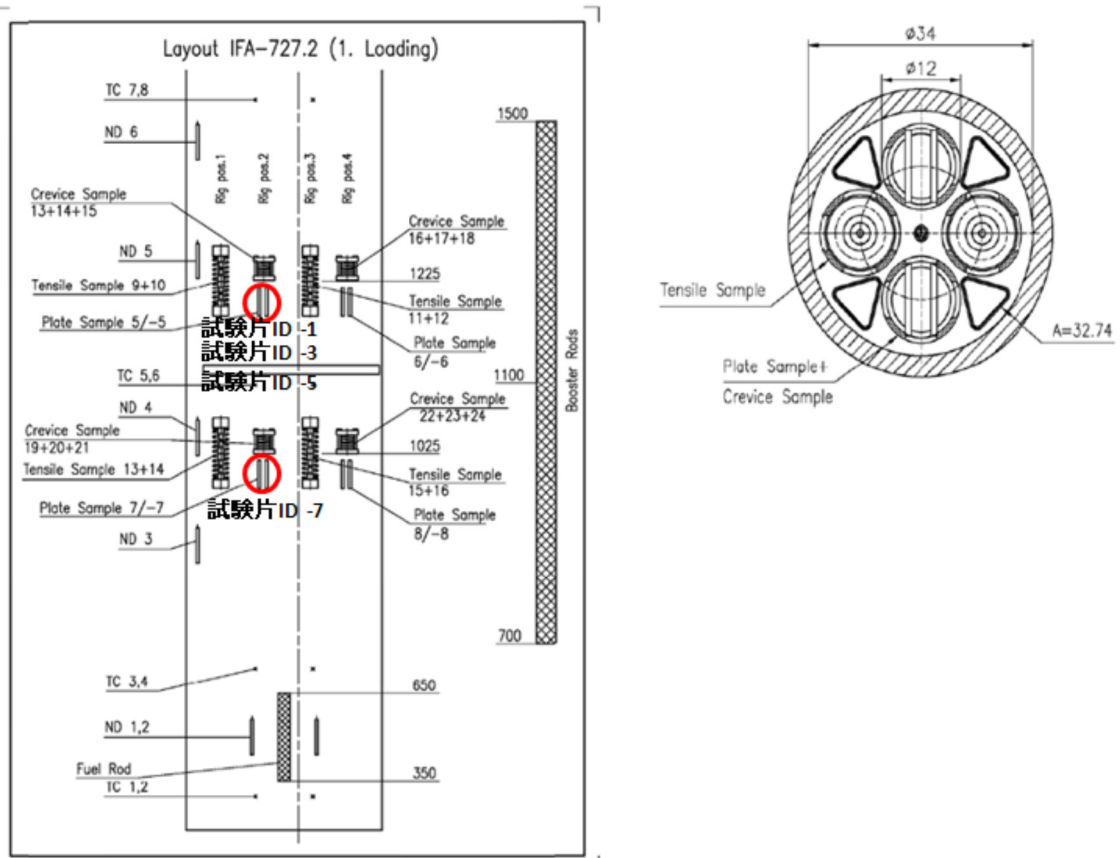


平板試験片の位置とフラックスレベル

①：高レベル、②：中レベル、③：低レベル

(1) 試験リグ番号 IFA-727.1

図 3.3.4-5(1) 試験リグ内平板試験片の位置とフラックスレベル  
及び選定した 316L 平板試験片の装荷位置(赤丸)



(2) 試験リグ番号 IFA-727.2

図 3.3.4-5(2) 試験リグ内平板試験片の位置とフラックスレベル及び選定した 316L 平板試験片の装荷位置(赤丸)(続き)

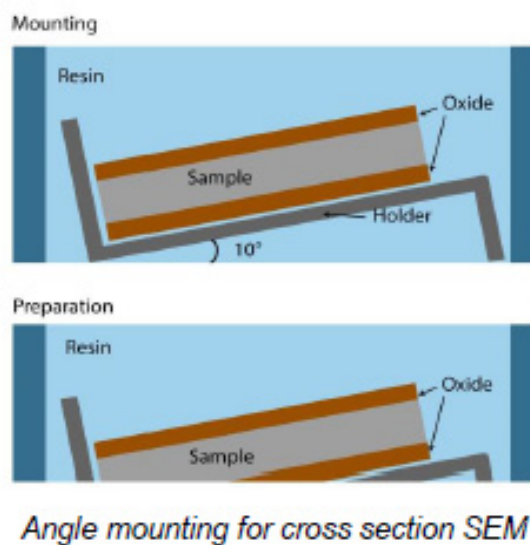


図 3.3.4-6 断面 SEM 観察前処理用斜め研磨法(概念図)

### (3)実験結果

#### ① 表面 SEM 観察

図 3.3.4-7 は、試験片 ID. A の片面について表面 SEM 観察した結果の例を示す。平板試験片の表面に形成した酸化皮膜は、下地に緻密な層、その上面に 1~3  $\mu\text{m}$  程度の大きさの結晶体の形成が認められた。また一部の試験片では、図中の詳細観察位置 1 に見られるような島状形態のものも認められた。

#### ② 斜め研磨による断面 SEM 観察

図 3.3.4-8 は、試験片 ID. A の片面について斜め研磨による断面 SEM 観察した結果の例を示す。それぞれの図中には、各断面から推定された基材(Matrix)、酸化皮膜(Oxide)、ならびに研磨のために埋め込んだエポキシ(Epoxy)の各部位を併せて示す。

写真の下側から基材(SUS316L)と緻密な酸化膜層が観察され、表面層に形成した結晶組織が一部認められた。この写真に基づき、緻密な酸化膜層の厚さを同定した。

#### ③ ラマン分光分析

図 3.3.4-9 は、試験片 ID. A の片面についてラマン分光分析を行った結果の例を示す。形成された酸化物の同定には、同じく図 3.3.4-9 に示した種々の酸化物の標準試薬粉末から得られたラマンスペクトルの検量線を用いた。この結果では  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が同定され、他の酸化物の明瞭なピークは認められなかった。

以上、試験片 ID. A を対象として実施した結果を例として示したが、その他の試験結果については、添付資料「照射場で生成した酸化皮膜に関する研究成果報告書」に掲載した。

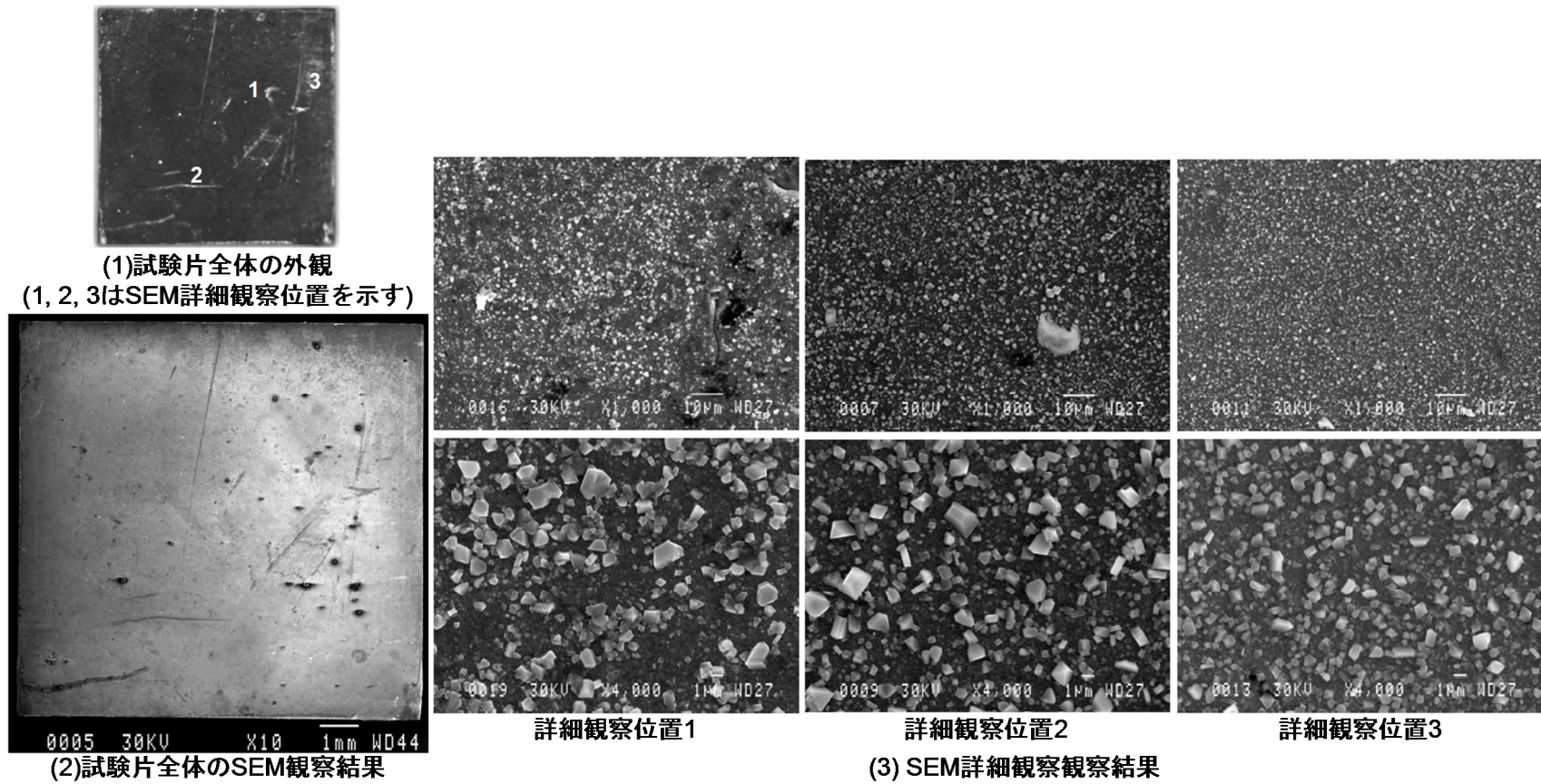
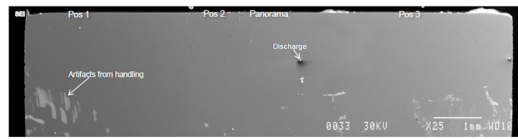
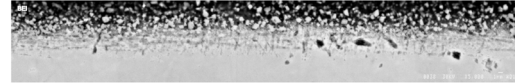


図 3.3.4-7 表面 SEM 観察結果(例)

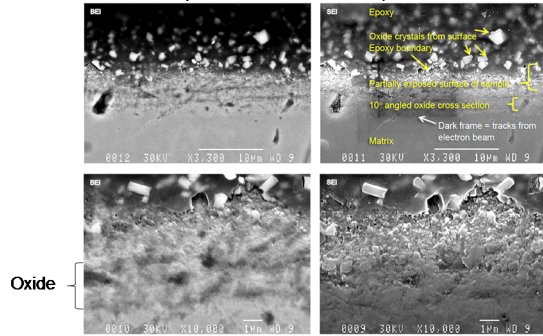
試験片 ID. A (2ppmDO 高温水中浸漬 時間 2233 時間 中性子束  $3 \times 10^{15}(\text{n}/\text{m}^2/\text{s} > 1 \text{ MeV})$ )



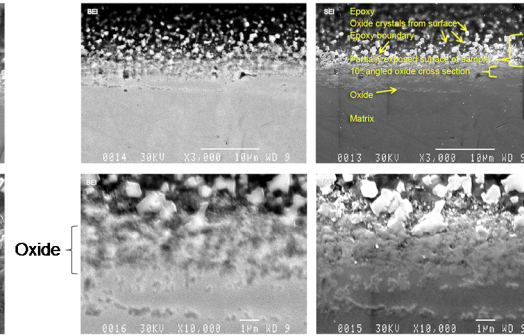
(1)断面SEM観察用試験片の外観  
(Pos 1~3は断面観察位置)



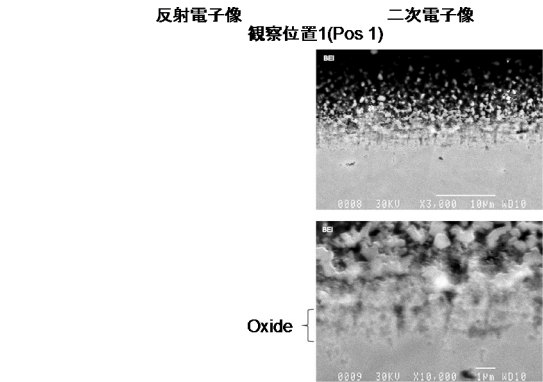
(2)断面SEM観察結果(つなぎ写真)



反射電子像 二次電子像  
観察位置1(Pos 1)



反射電子像 二次電子像  
観察位置2(Pos 2)

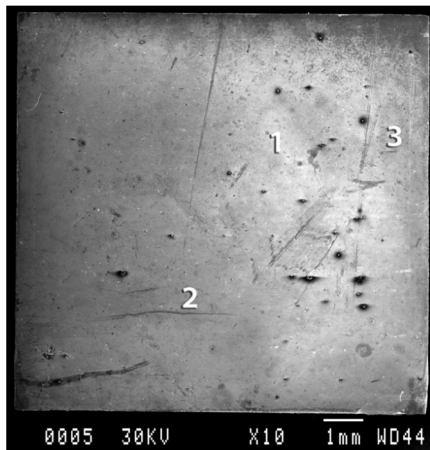


反射電子像 二次電子像  
観察位置3(Pos 3)

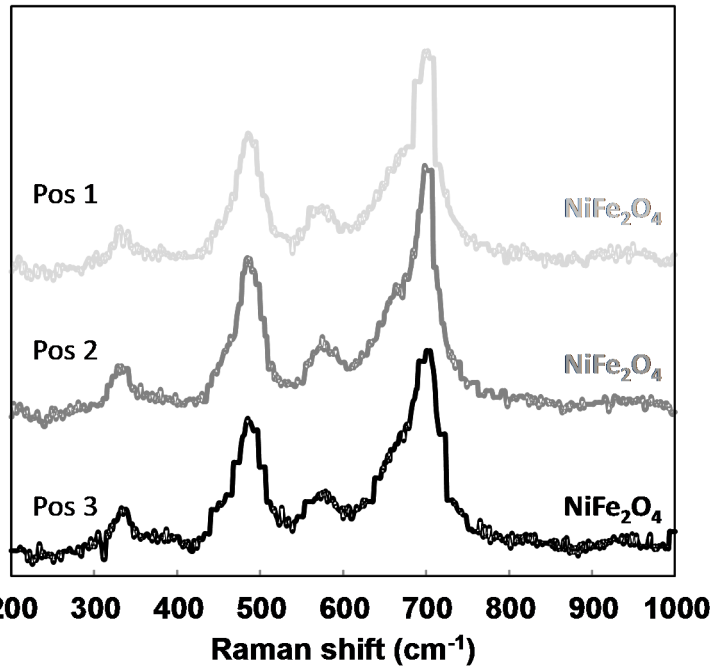
図 3.3.4-8 斜め研磨による断面 SEM 観察結果(例)

試験片 ID. A (2ppmDO 高温水中浸漬 時間 2233 時間 中性子束  $3 \times 10^{15} (\text{n}/\text{m}^2/\text{s} > 1 \text{ MeV})$ )





試験片全体の外観  
(1, 2, 3はラマン分析位置を示す)



200 300 400 500 600 700 800 900 1000  
Raman shift (cm<sup>-1</sup>)

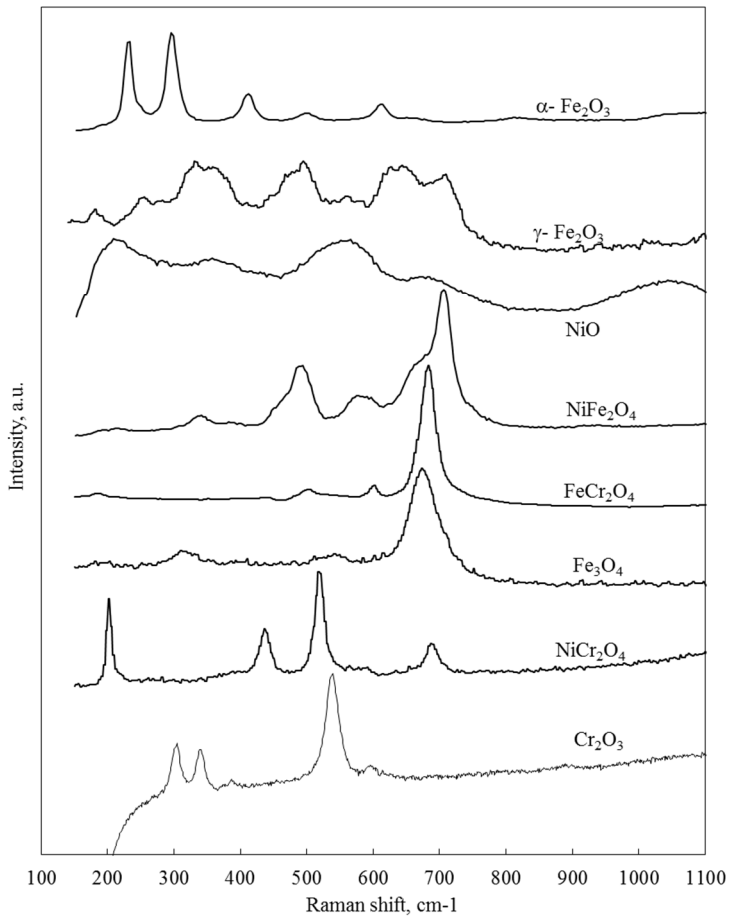


図 3.3.4-9 ラマン分光分析結果(上段)(例)及び標準試薬を用いた検量線(下段)  
試験片 ID. A (2ppmDO 高温水中浸漬 時間 2233 時間 中性子束  $3 \times 10^{15}(\text{n}/\text{m}^2/\text{s} > 1 \text{ MeV})$ )

#### (4)結果の検討

##### ① ラマン分光分析結果の解釈

照射下高温水環境に浸漬した SUS316L 平板試験片の表面に形成した酸化皮膜をラマン分光分析法で分析したところ、全ての試験片において主に  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  からなるラマンスペクトルを観測した。また表面の SEM 観察の結果では、いずれの試験片においても最表面の小さな結晶体とその下部に微細な形態の酸化皮膜が形成していることを確認した。ラマンスペクトルは表層から約 10~20 nm 程度の深さにある物質を同定していることから、今般の結果は表層の結晶体ならびに微細な形態の酸化物の双方からの信号であると考えられ、表面 SEM 観察で認められた小さな結晶体と下部に形成した酸化物のいずれも  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が中心に構成されているものと考えられる。

図 3.3.4-10 (1)~(3)は、Fe-Cr-Ni 三元系の 287°Cにおける Fe 種、Cr 種及び Ni 種に対する電位-pH 図を示す。電位-pH 図の作成には OUTOKUMPU 社の HSC Chemistry 5.0 ソフトを使用した。この図から、287°Cの純水(pH=5.6)においては  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  と  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が平衡状態にあり、その電位領域は  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  でおおよそ 0.0~0.3 V、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  でおおよそ-0.2~0.5 V の範囲にあることが判る。水のラジオリシスと ECP 解析コードの結果より、今回の照射下高温水環境での ECP は 200 mV-SHE と評価されたことから、主として  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が形成していたことと矛盾せず、ECP 評価結果は妥当であったと考えられる。

前節に詳述したように、今回実施した SUS316L の照射下高温水浸漬試験環境では、水のラジオリシスによって過酸化水素が生成し、780ppb(Low flux)~2755ppb(High flux)溶解していると評価された。一方酸素については、放射線の線量率に寄らず 2000ppb 弱の濃度であると評価された。このことより、浸漬試験の環境は放射線照射の効果によって過酸化水素が高濃度に存在する環境であったことが判る。

過酸化水素が存在する環境下における酸化皮膜の形成については、Wada ら<sup>[1]</sup>及び Miyazawa ら<sup>[2]</sup>が、酸素が溶存した高温水と過酸化水素( $\text{H}_2\text{O}_2$ )が溶存した高温水に SUS304 ステンレス鋼を浸漬し、ラマン分光分析や X 線回折を用いて表面に形成された酸化皮膜の分析を行っている。その結果の一例を図 3.3.4-11 に示す<sup>[2]</sup>。Miyazawara らは、溶存酸素が高い環境で形成する酸化皮膜は $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ならびに  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  である一方、 $\text{H}_2\text{O}_2$  を含む環境では  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  の形成がより明確となったことを報告している。今回実施した照射下環境における過酸化水素の濃度は Miyazawa らの条件の 3 倍から 10 倍となっており、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  がより安定に存在する環境であったと考えられる。

また非照射条件ではあるが、SUS304 ステンレス鋼の管状試験片の皮膜形成に及ぼす流速の影響についての検討結果においては、流速を 0.055 m/sec(低流速)ならびに 1.1 m/sec(高流速)の 2 条件下にて形成した酸化皮膜をラマン分光分析および ESCA で分析したところ、低流速条件下で形成した外層皮膜の主成分は $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ならびに  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  であったのに対し、高流速条件下で形成した酸化皮膜は  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  であったと報告している<sup>[3]</sup>。今回の浸漬試験を実施した照射リグ内の流速は 0.25~0.6 m/s と様々であったが、Lu らが報告している低

流速条件よりも流速は大きかった。

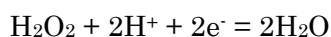
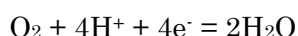
以上の既往知見との比較より、照射下高温水環境下での浸漬試験で得られた酸化皮膜分析の結果は、

①水のラジオリシスで生成した  $\text{H}_2\text{O}_2$  の存在

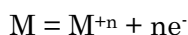
②比較的速い流速条件

の2つの原因が重畳し、 $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  の形成がより促進され易い条件下にあったと考えられる。一方既往の文献において形成したと報告されている  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{FeCr}_2\text{O}_4$  等の酸化物については、形成していなかったか若しくは形成していても信号のバックグラウンドから分離できない程度に微弱であった可能性がある。加えて今回用いた供試材は SUS316L ステンレス鋼であり、既往の知見において検討されている SUS304 よりも Ni 含有量が高いことから  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  の形成が顕著となる可能性も考えられる。いずれにせよ今回の浸漬条件は、主に  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が形成しやすい条件であったと思われる。

さてここでステンレス鋼の腐食電位に関わる酸化還元反応における溶存酸素と  $\text{H}_2\text{O}_2$  の寄与について考える。溶存酸素と  $\text{H}_2\text{O}_2$  の関与するカソード反応として、下記のそれぞれの反応が指摘されている<sup>[4]</sup>。



一方金属の酸化に関わるアノード反応は一般に下記の式で表される。



ECP はこれらの反応に伴う電荷の授受が平衡状態となった点で決まるものであるが、実際には酸素と  $\text{H}_2\text{O}_2$  の寄与をそれぞれ分離して評価することは困難である。それぞれの寄与を個々に検証するためには、溶存酸素と  $\text{H}_2\text{O}_2$  の還元反応に必要な水素イオンのモル数が異なる点に着目し、例えば酸化皮膜中における水素イオン濃度をパラメトリックに設定して反応に伴う電子の生成を制御し、溶存酸素と  $\text{H}_2\text{O}_2$  の寄与を分離して検討する等のアプローチが有効であると考えられる。いずれにせよ、このような条件下における酸化皮膜の形成機構を検討するに当たっては、水素(イオン)の役割の点からも考察可能な試験を計画立案していく必要があり、環境効果の明示につながるものと期待される。

## ② 断面 SEM による皮膜厚さ測定結果の解釈

図 3.3.4-12 に今回得られた皮膜厚さと浸漬時間の関係でプロットした結果を示す。なお比較のため、実験室のオートクレーブにて浸漬した非照射データとハルデン炉において同様な条件で照射下浸漬試験した結果<sup>[1], [2]</sup>を\*印を示して併記した。

図中緑色白抜き◇で示した High Flux 条件での皮膜厚さの時間依存性に着目すると、浸漬時間の経過とともに皮膜厚さが増加する傾向が見られた。また■で示した非照射データも右上がりの傾向を示しているが、照射下で形成した酸化皮膜に比べて薄いことが判る。非照射条件での浸漬試験はオートクレーブを用いており、ハルデン炉の照射リグに比べて流速

が遅い。Luらは、非照射下で流速の異なる条件でステンレス鋼を高温水浸漬すると速くなると皮膜の成長は抑制されることを報告している<sup>13)</sup>。このことから、流速の速い照射リグ内では、流速の遅いオートクレーブ内に比べて酸化皮膜の成長は抑制されると思われるが、流速が大きい照射リグ中においても非照射環境より皮膜成長が認められたことは、皮膜の成長に過酸化水素が大きく寄与していたことが示唆される。

一般に酸化皮膜の成長は、下式で表される放物線則に従うことが知られている。

$$d = k\sqrt{t} \quad (3.3.4-1)$$

ここで、 $d$ は皮膜厚さ、 $k$ は放物線速度定数、 $t$ は時間である。酸化皮膜の厚さが放物線則に乗るのは皮膜内におけるイオン拡散が律速過程である場合に良く一致することが知られており、500時間以上経過して酸化皮膜が定常状態にある時の酸化皮膜の厚さに対しては、おおむねこの考え方が当てはまる。

浸漬時間 2233 時間の試験結果を比較すると、線量率の増加に伴って酸化皮膜厚さの飽和値が増加する傾向が見られた。これは、放射線の線量率の増加に伴って速度定数  $k$  が大きくなり、結果として 2000 時間以上で観察された定常状態での皮膜厚さが大きくなったものと考えられる。但し酸化皮膜成長を速度論的な観点で検討するに当たっては、酸化皮膜の内層と外層の性状とそれぞれの皮膜厚さを精緻に評価する必要があると思われる。

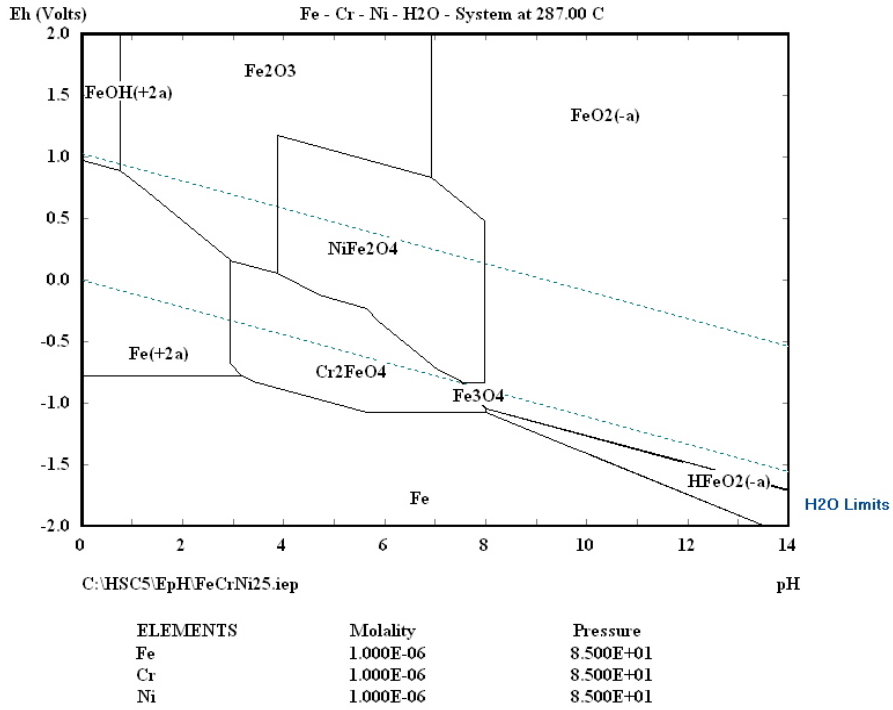


図 3.3.4-10 (1) Fe-Cr-Ni 三元系における Fe 種に対する 287°Cにおける電位-pH 図  
 $(\text{Fe}[\text{aq}])_{\text{tot}} = [\text{Cr}(\text{aq})]_{\text{tot}} = [\text{Ni}(\text{aq})]_{\text{tot}} = 10^{-6} \text{ molal.}$

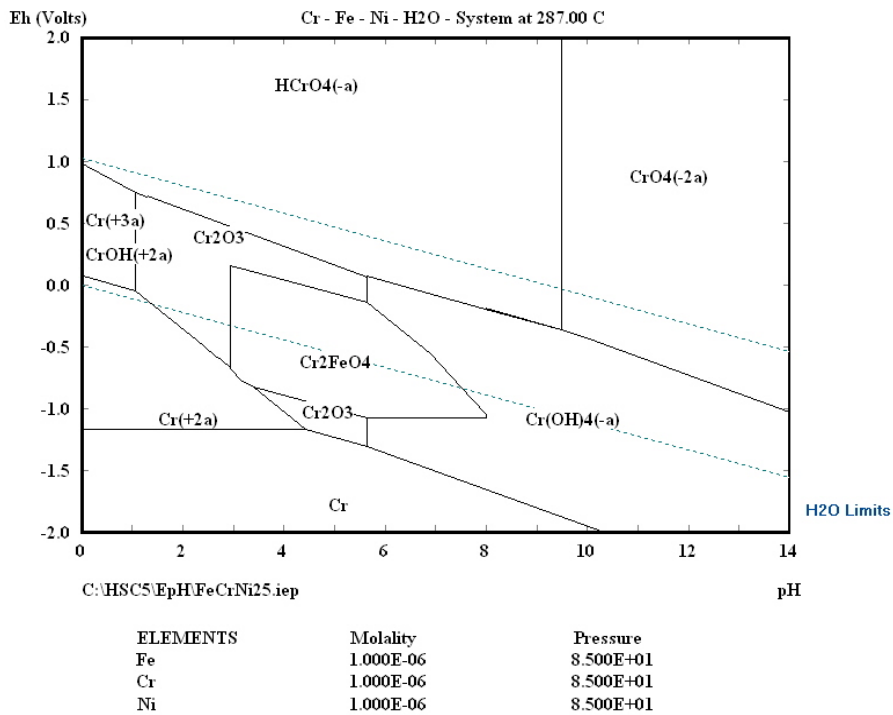


図 3.3.4-10(2) Fe-Cr-Ni 三元系における Cr 種に対する 287°Cにおける電位-pH 図  
 $(\text{Fe}[\text{aq}])_{\text{tot}} = [\text{Cr}(\text{aq})]_{\text{tot}} = [\text{Ni}(\text{aq})]_{\text{tot}} = 10^{-6} \text{ molal.}$

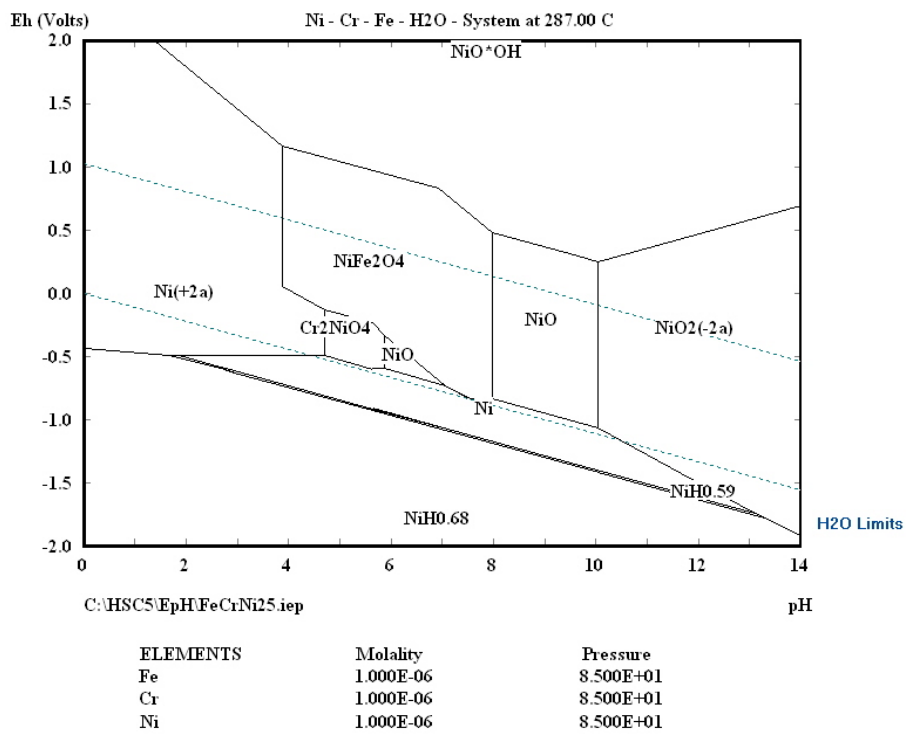


図 3.3.4-10 (3) Fe-Cr-Ni 三元系における Ni 種に対する 287°Cにおける電位・pH 図  
 $(\text{Fe}[\text{aq}])_{\text{tot}} = [\text{Cr}(\text{aq})]_{\text{tot}} = [\text{Ni}(\text{aq})]_{\text{tot}} = 10^{-6} \text{ molal}$

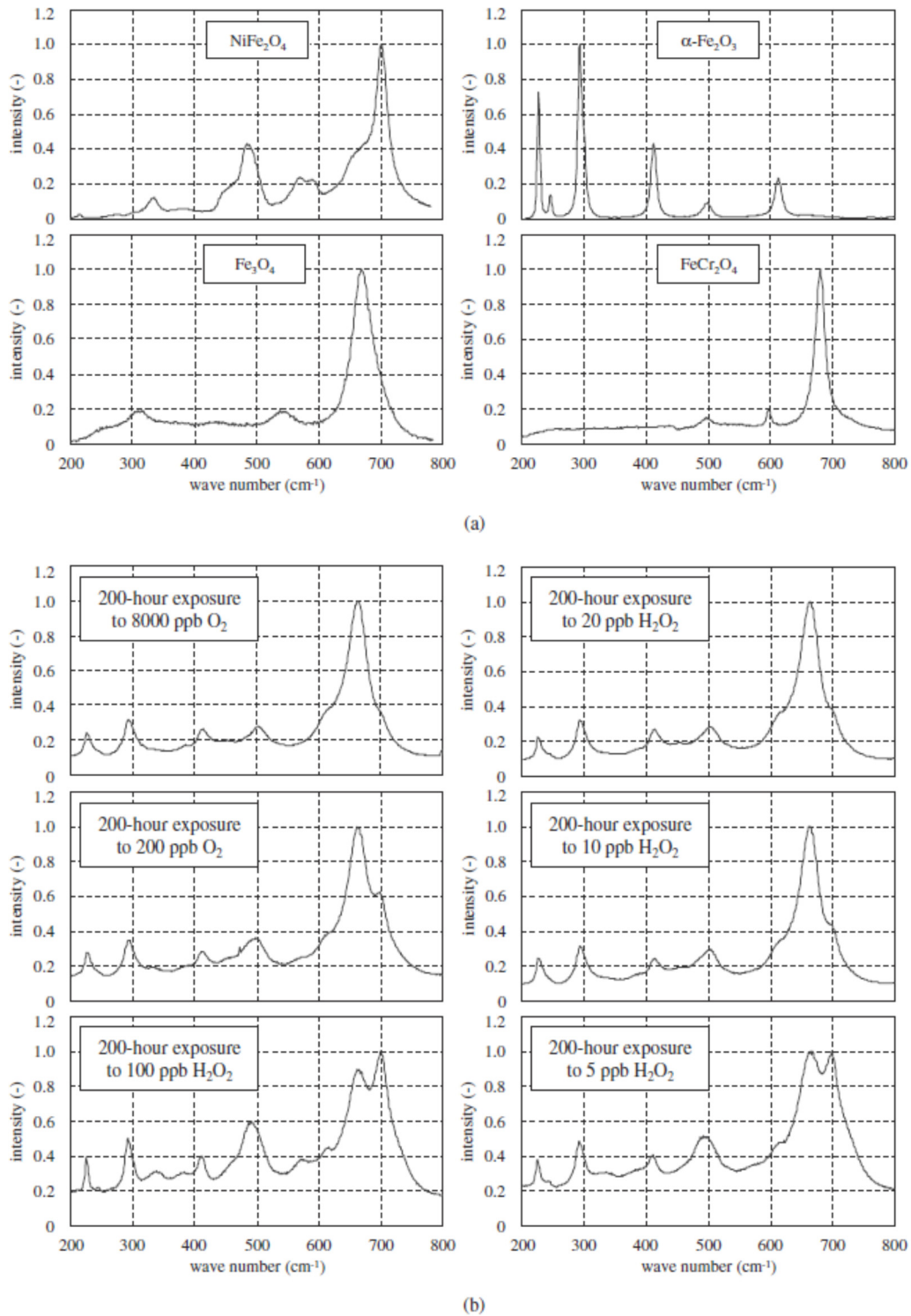


Fig. 3 Laser Raman spectra: (a) Standard oxides and (b) oxides on the specimens exposed to  $\text{H}_2\text{O}_2$  or  $\text{O}_2$

図 3.3.4-11 酸素及び過酸化水素を添加した高温水に浸漬した SUS304 から得られたレーザーラマンスペクトルの例<sup>2)</sup>

(a)スペクトルの検量線, (b)各濃度の酸素及び過酸化水素環境に浸漬した試験片の分析結果

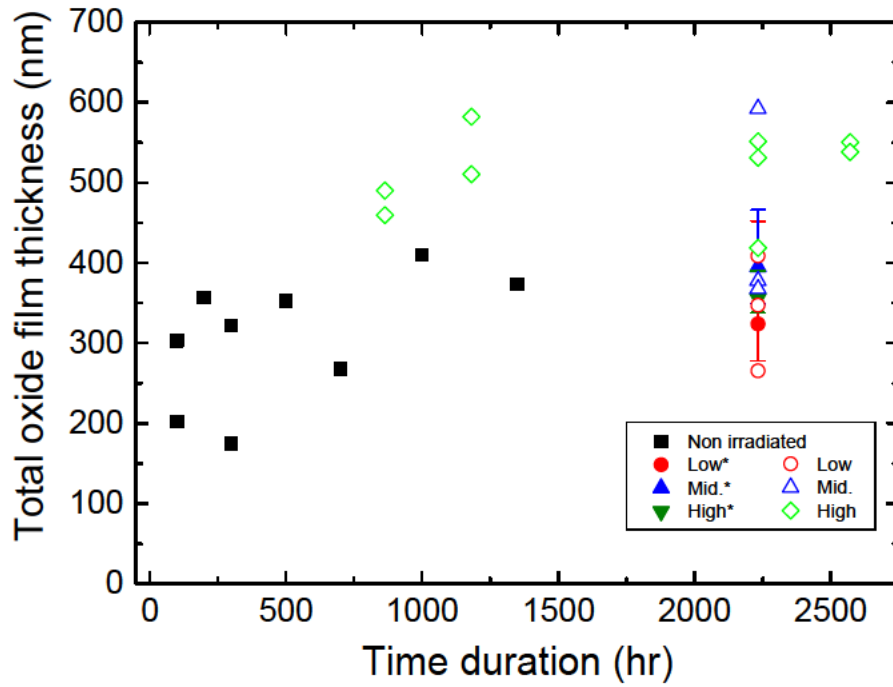


図 3.3.4-12 照射下高温水環境下での浸漬試験で形成した皮膜厚さと浸漬時間の関係  
(凡例の\*は、文献[5], [6]により得られた皮膜厚さを示す)



### 3.3.4.3. 本章のまとめ

ハルデン炉において実施された BWR 炉心模擬条件(溶存酸素 2 ppm、温度 287°C)の放射線照射下高温水浸漬試験に供された SUS316L 試験片を対象として、表面に形成した酸化皮膜の性状及び厚さを、表面及び斜め研磨による断面 SEM 観察、ラマン分光分析を用いて評価した。主な結果は以下の通りであった。

- ① 照射リグ内の水のラジオリシスを、解析コードを用いて評価したところ、放射線の線量率が過酸化水素の生成量に影響することが判った。一方で線量率の相違は ECP に大きく影響せず、いずれも凡そ 200 mV-SHE であった。
- ② 表面 SEM 観察及び断面 SEM 観察の結果、試験片表面には緻密な下地層と結晶性の高い表面層の酸化皮膜の形成が認められた。
- ③ ラマン分光分析の結果、試験片の全てにおいて主として  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  のスペクトルが観察された。高温での Fe-Ni-Cr 合金の電位-pH 図より、ECP=200 mV-SHE では  $\text{NiFe}_2\text{O}_4$  が安定に存在することから、水のラジオリシスと ECP 解析コードより評価した ECP は妥当であったと評価した。
- ④ 断面 SEM 観察の結果、酸化皮膜厚さは浸漬時間に伴い増加する傾向を示した。また線量率の相違する条件で同一時間浸漬した後の酸化皮膜厚さは、線量率が大きいほど厚くなる傾向が見られた。その理由として、酸化皮膜の成長を拡散律速モデルで考えた場合、放射線の線量率は 1/2 乗測の係数の違いに影響していると考えられる。

これまでに、放射線照射下高温水環境でステンレス鋼の表面に形成する酸化皮膜の性状及び厚さに関するデータを系統的に取得した例はほとんど無く、また浸漬試験条件での流速や水のラジオリシスを考慮した ECP 解析結果も含めて貴重な知見が得られた。特に、ECP の測定とデータ評価をより精緻に行うためには試料極表面の酸化皮膜の状態を考慮する必要がある、との指摘も踏まえると、ECP を決定する様々な因子を考える上で照射下高温水環境での試料極側の表面状態の理解に寄与するものであると思われる。

### 3.4. 腐食環境パラメータと経年劣化事象に関する調査

PWRの1次系では、高濃度の水素を注入するために腐食電位(ECP)に対する材料劣化を考慮する必要性が低く、関連する知見に乏しい。今後、溶存水素濃度(DH)の最適化が進められるに際しては、ニッケル基合金やステンレス鋼の劣化に対するDHの影響を明らかにしておく必要がある。DHはECPと直接の関係に有り、ラジオリシスで生成する $O_2$ や $H_2O_2$ 等の酸化剤濃度とECP、材料劣化の相関について、既往知見に基づき見通しを得ておく必要がある。本調査では、構造材料の劣化に着目してPWR環境における材料劣化事象とDH(ECP)の相関について既往研究成果の調査と整理を行い、ラジオリシスで生成する酸化剤濃度との相関を調べた。併せて、PWR1次系模擬環境においてニッケル基合金のSCC(PWSCC)試験を実施し、現在知見のないものの今後重要となるSCCと添加元素(Zn)とECPの関連について検討を行った。

#### 3.4.1 PWSCC 試験

##### 3.4.1.1. 試験方法

###### (1) 供試材及び試験片形状

供試材として、PWSCC感受性を有し従来から評価に適用されている600合金に対して、試験期間中に有意なき裂が進展するように10%の一軸引張り冷間加工を付与したのを用いた。材料試験として冷間加工前後における硬さを測定した。

き裂進展試験片として、試験容器寸法を考慮し0.7T-CT試験片を採用した(図3.4.1-1)。またき裂進展方向がT-L方向(図3.4.1-2、図3.4.1-3参照)に平行となるよう試験片加工用のブロックを切り出した。

###### (2) 試験水質条件

図3.4.1-4に示すとおり、PWSCC試験水質としてはPWSCC感受性が高く、過去にJNESで取得されているPWSCC進展評価の水質(1800ppm as B、3.5ppm as Li RCS水)を採用した。なお、試験温度は実機加速条件となる360℃、亜鉛注入条件は国内原子力プラント実績相当となる5~10ppbを管理目標に設定した。DH濃度は30cc-STP/kg・ $H_2O$ 、Zn注入有り無しの2条件を設定し、Zn注入時の濃度は5~10ppbとした。

###### (3) 荷重条件(試験K値)

荷重条件は、試験期間中に安定的なき裂進展が見込まれ、かつ過度に厳しい条件にならない条件として、試験開始時の目標K値が20~25MPa $\sqrt{m}$ となるよう荷重を設定した。なお、SCC試験前にCT試験片に対して導入した疲労予き裂は、段階的に荷重を下げ、SCC試験時のK値を超えないように20MPa $\sqrt{m}$ を最終K値になるように導入した。(温度：常温、波形：sin波(30Hz)、最終K値：20MPa $\sqrt{m}$ 、目標深さ：2mm)

#### (4) その他の試験条件等

- ① 試験装置: 0.7T-CT 2 連吊り試験装置 1 ループ(Zn あり)×1Run  
(ア) 0.7T-CT 2 連吊り試験装置 1 ループ(Zn 無し)×1Run
- ② 電位計測: 320℃条件(計 4 回)+SCC 試験時(計 2 回)実施
- ③ 試験時間: 最大 1,000 時間
- ④ 繰返し数: 1 条件あたり 2 (うち 1 個を破面調査)

#### (5) き裂進展モニタリング手法

試験中のき裂進展挙動は PDM 計測にて行った。なお、計測および評価手法は独立行政法人原子力安全基盤機構から発行されている「H17 年度 Ni 基合金応力腐食割れ(SCC)進展評価技術調査(定荷重試験)に関する報告書」<sup>[4]</sup>に記載内容を踏襲した。図 3.4.1-5 に当該頁の抜粋を示す。

#### (6) 腐食電位モニタリング

Zn 注入の腐食電位への影響について評価するため、表 3.4.1-1 に示す条件において SUS316 およびインコネル 600 における腐食電位(vs SHE)を計測した。

照合電極については圧力平衡型外部照合電極(EPBR; External Pressure Balanced Reference Electrode)および固体電解質型照合電極を用い、事前に Pt 電極で検定を行い、水素標準電極(SHE; standard hydrogen electrode)換算で評価を実施した。照合電極の構造および外観状況を図 3.4.1-6、図 3.4.1-7 に示す。

以下に照合電極の検定要領を示すと共に、水素電極電位(理論値)の求め方について記す。

##### <照合電極検定要領>

- ① 補給水タンクに脱気水を水張りし、水素加圧で環境中の溶存水素濃度を約 30cc/kg H<sub>2</sub>O に調整する。調整完了後に分析により溶存水素量を測定する。
- ② 電極槽に Pt 電極、固体電解質型照合電極及び EPBR 電極並びに試料電極(インコネル 600 および SUS316)を取付ける(図 3.4.1-6)。
- ③ 水素添加水を電極槽に送水し、出口の溶存酸素濃度が脱気条件になってからタンクに回収する。
- ④ 補給水ポンプにより、徐々に 15MPa まで昇圧し、水素添加水で 290℃まで昇温する。
- ⑤ Pt 電位(vs EPBR)および Pt 電位(vs 固体電解質型照合電極)の安定を確認する。
- ⑥ 安定した Pt 電位(vs EPBR)と理論値を比較し EPBR を検定する。同時に EPBR と固体電解質型照合電極の電位差も確認する。
- ⑦ 電極槽を計測温度(320℃)まで昇温し、再度検定を行う。

<水素電極電位 理論値>

$$\begin{aligned} E &= RT/nF \times \ln_a H^+ / P_{H_2}^{1/2} \\ &= -\ln[10] \times R/F \times T \times (\log_a H^{+1} - 1/2 \times \log P_{H_2}) \text{ (V)} \\ &= -0.1985 \times T \times \text{pH} - 0.09925 \times T \times \log P_{H_2} \text{ (mV)} \end{aligned} \quad (3.4.1-1)$$

反応式は  $H^+ + e \rightleftharpoons 1/2 H_2$

$P_{H_2}$ : 水素ガス分圧

n: 反応に関する電子数  $n=1$

T: 絶対温度(K)

R: ガス定数(1.987cal/K・mol)

F: ファラデー定数(23049cal/V・g-equiv)

#### (7) 循環式試験装置

本試験に供した循環式オートクレーブの外観および系統図を図 3.4.1-9～図 3.4.1-15 に示す。本試験においては Zn 注入用循環試験装置(PL-3B)、Zn 注入無循環試験装置(PL-3A)および Zn 注入無電位計測装置(小型循環装置)の計 3 装置を用いて試験を実施した。

なお、Zn 注入用試験装置は試験開始前に予備運転を実施し、試験容器および配管系統の内面酸化物に Zn を事前に取り込ませることで、SCC 試験中に安定した Zn 濃度管理ができるように調整を行った。

表 3.4.1-1 腐食電位計測条件

	Zn 注入なし条件		Zn 注入あり条件	
H <sub>2</sub>	○	○	○	○
Zn	—	—	○	○
B, Li (100 0ppm as B, 3 ppm as Li*)	—	○	—	○
温度(°C)	(320)	(320)	(320)	(320)
	基準 ECP	B, Li の影響確認	Zn の影響確認	B, Li, Zn の影響確認

\*ハルデン炉で電位計測した水質に設定<sup>[4]</sup>

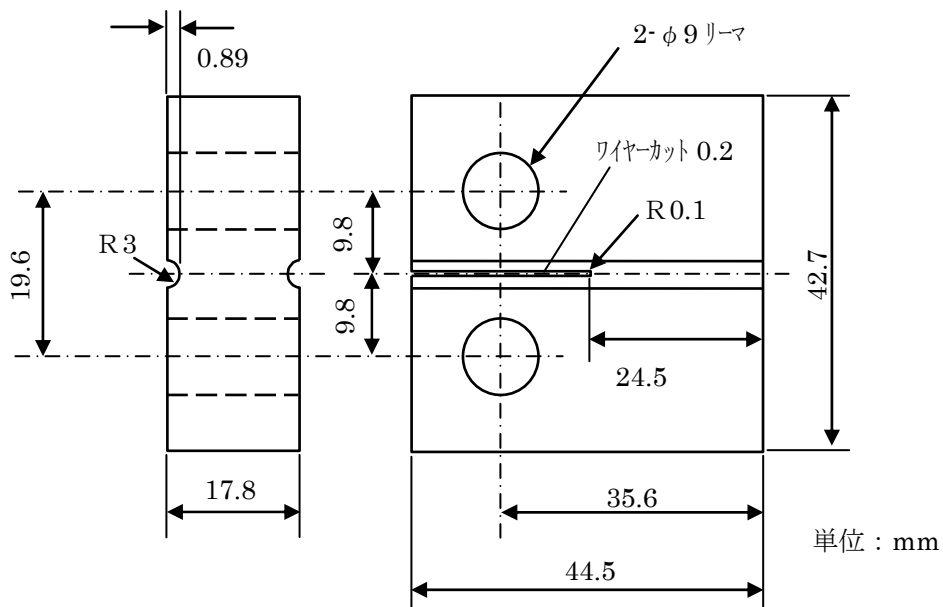


図 3.4.1-1 0.7T-CT 試験片の構造および寸法<sup>[1]</sup>

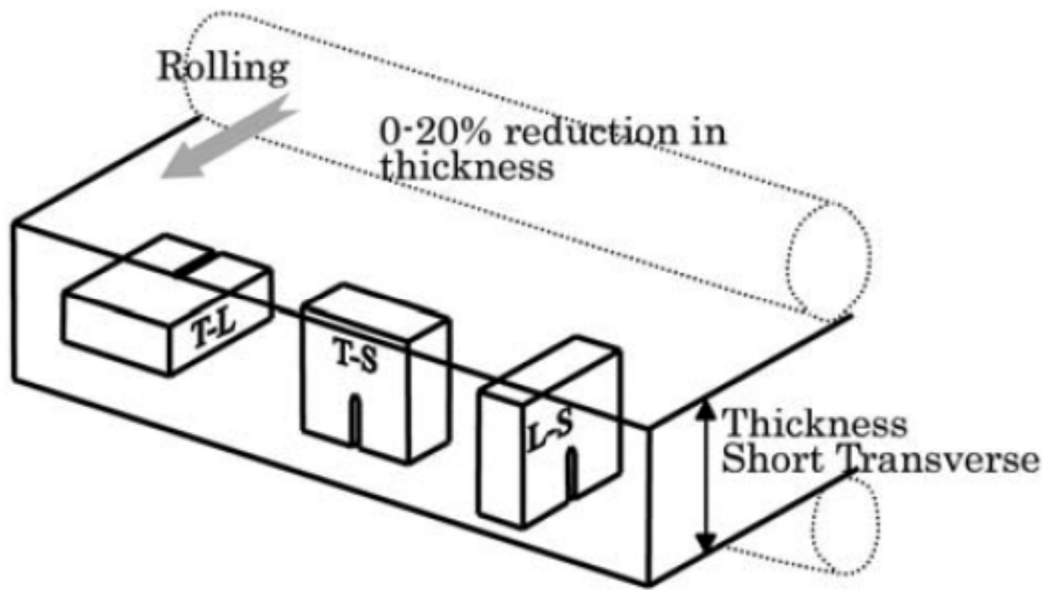


図 3.4.1-2 試験片の冷間圧延(加工)方位<sup>[2]</sup>

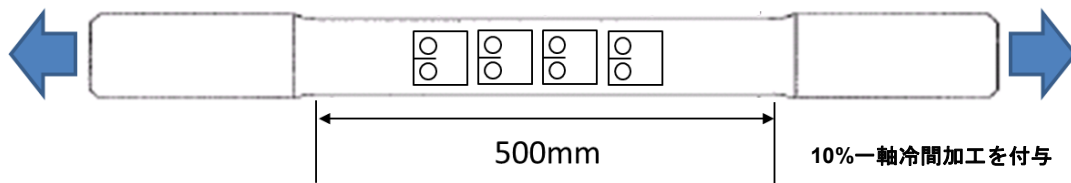


図 3.4.1-3 冷間加工付与用素材と CT 試験片切り出しイメージ

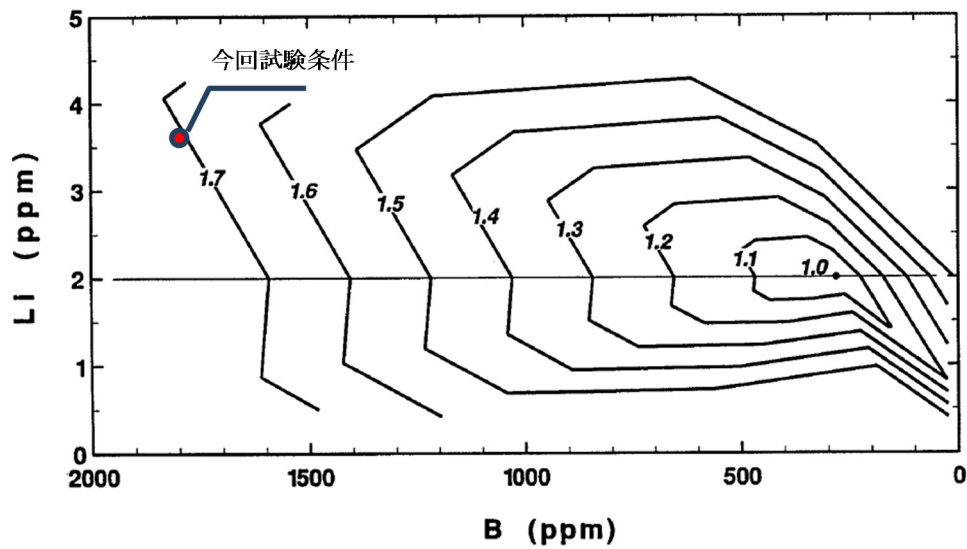


図 3.4.1-4 PWSCC 感受性に対する B,Li 濃度の関係  
(280ppm as B, 2ppm as Li に対する SCC 破面率比データ)<sup>[3]</sup>

## 測定原理

・ 交番定電流による電位差（電圧）の計測

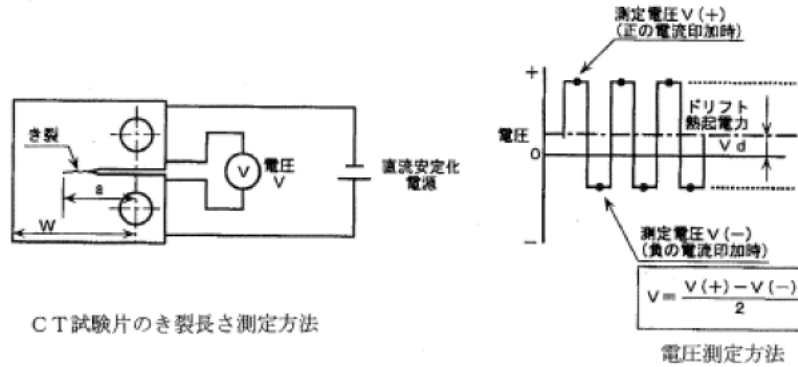


図 3.2.1-10 電位差法によるき裂長さ測定方法

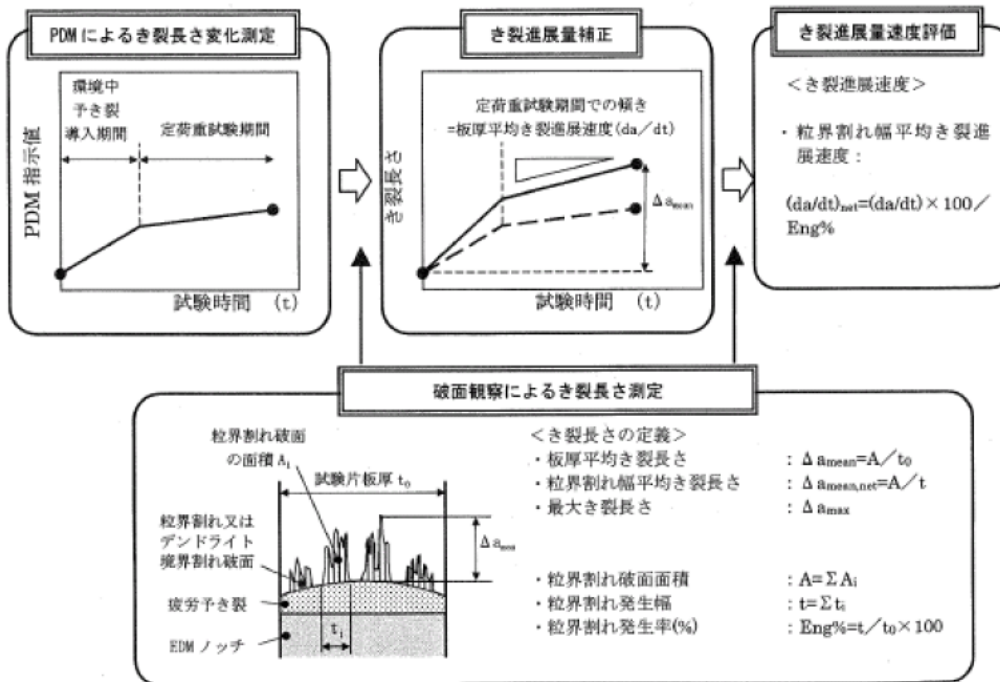


図 3.2.1-11 電位差法により測定されたき裂長さとき裂進展速度の評価方法

図 3.4.1-5 電位差法により測定されたき裂長さとき裂進展速度の評価方法<sup>[1]</sup>

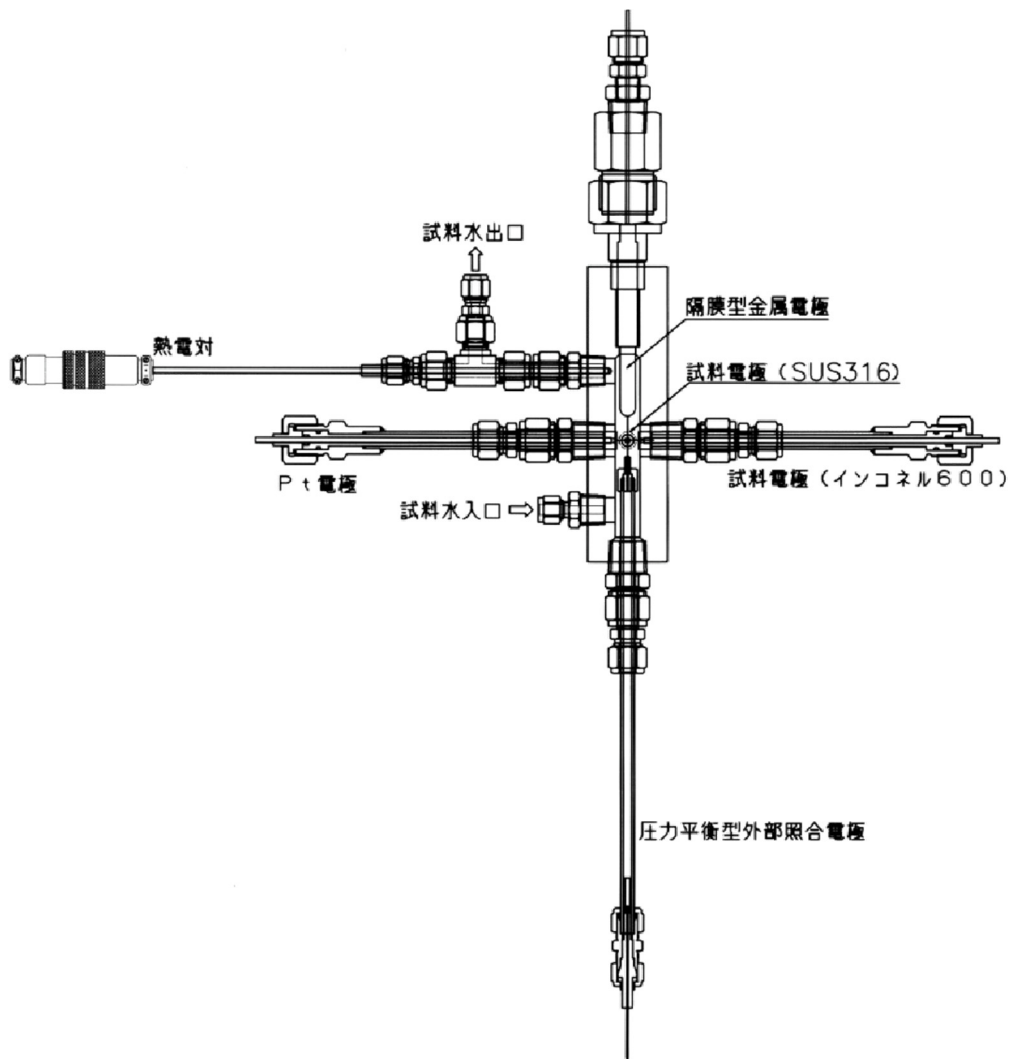
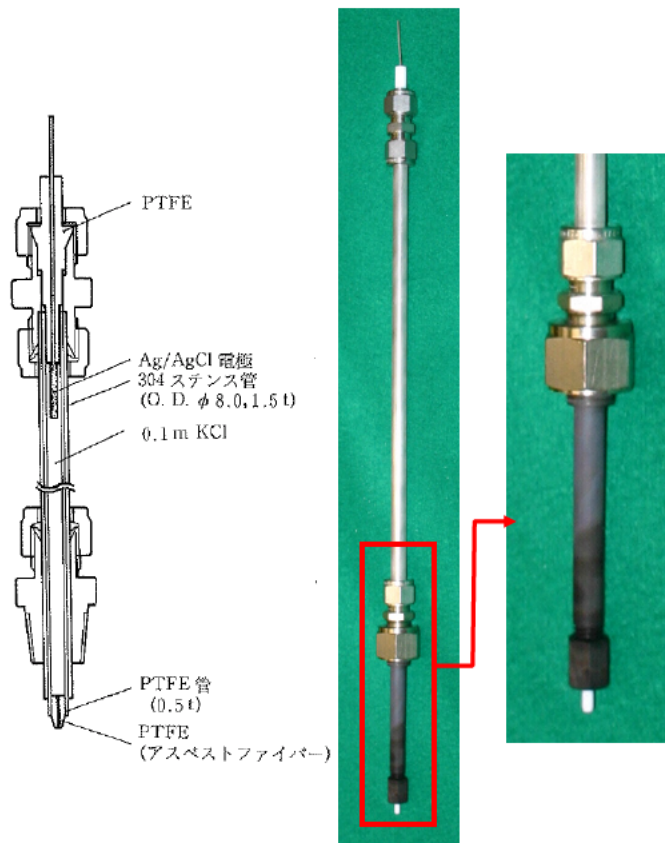
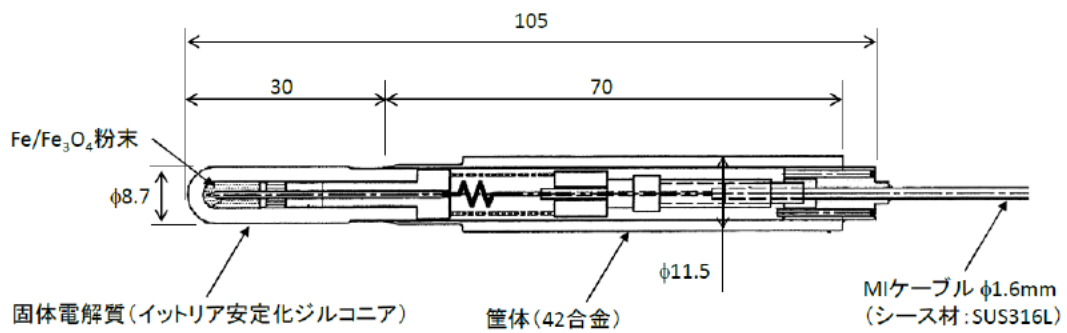


図 3.4.1-6 電極槽と各電極の取付構造





(1) EPBR 電極<sup>[5]</sup>



(2) 固体電解質型照合電極

図 3.4.1-7 照合電極構造図面および外観

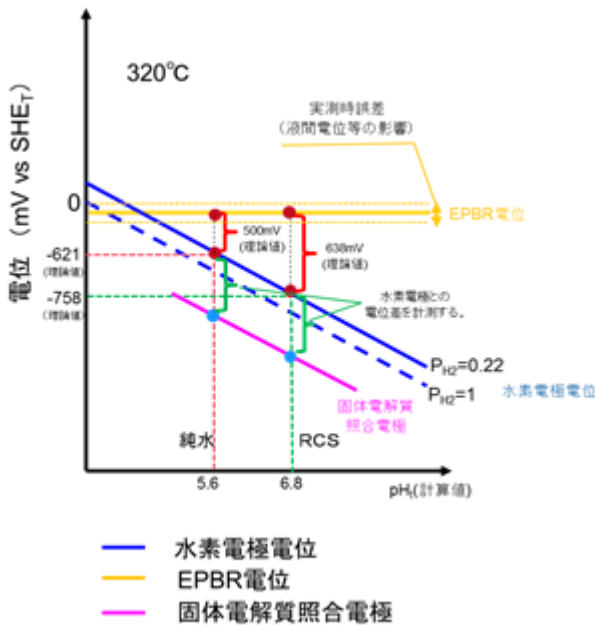
【参考】水素電極電位と計測イメージ

水素電極電位 理論値		純水					
温度 T (°C)	pH	溶存水素 D H <sub>2</sub> (cc/kg · H <sub>2</sub> O)	ヘンリー定数 H	水素のモル分率 X	水素分圧 P H <sub>2</sub>	水素電極電位 E (mV)	電位 vs EPBR (mV)
25	7.00	30	7.4976E+04	2.4107E-05	1.8074	-422	-708
50	6.64	30	7.7946E+04	2.4107E-05	1.8790	-435	-694
100	6.13	30	6.9712E+04	2.4107E-05	1.6805	-462	-671
150	5.81	30	5.5884E+04	2.4107E-05	1.3472	-493	-651
200	5.61	30	3.9216E+04	2.4107E-05	0.9454	-526	-624
250	5.53	30	2.3668E+04	2.4107E-05	0.5706	-561	-585
280	5.53	30	1.6293E+04	2.4107E-05	0.3928	-585	-553
290	5.54	30	1.4227E+04	2.4107E-05	0.3430	-593	-541
300	5.56	30	1.2354E+04	2.4107E-05	0.2978	-602	-529
320	5.60	30	9.1632E+03	2.4107E-05	0.2209	-621	-500

RCS水(1000ppm as B, 3ppm as Li)							
290	6.63	30	1.4227E+04	2.4107E-05	0.3430	-715	-663
320	6.77	30	9.1632E+03	2.4107E-05	0.2209	-758	-638

pH計算：pH計算コードを使用。  
 EPBRの電位計算コードは 計算コードを使用。  
 ヘンリー定数：IAPWS guideline statement,1990による。



- <EPBRによる腐食電位評価>
- ・ 純水およびRCS環境における水素電極との電位差を確認し理論値からのズレを評価する。このズレ量を加味してEPBRによる腐食電位評価をSHE換算する。
- <固体電解質照合電極>
- ・ 水素電極と同様にpHに対して応答する事を確認。
  - ・ 水素電極に対する電位差を確認してSHE換算を実施する。

図 3.4.1-8 水素電極電位と計測方法(概念図)

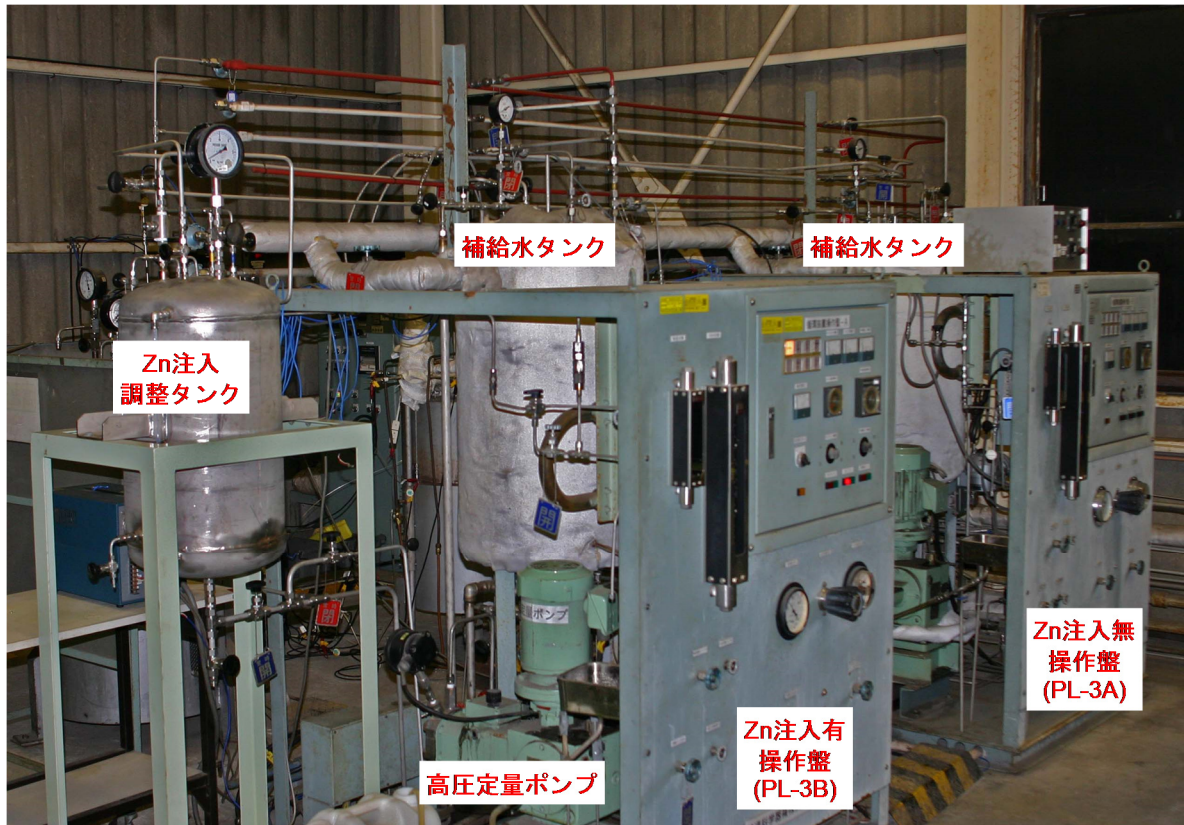


図 3.4.1-9 循環装置およびタンク外観

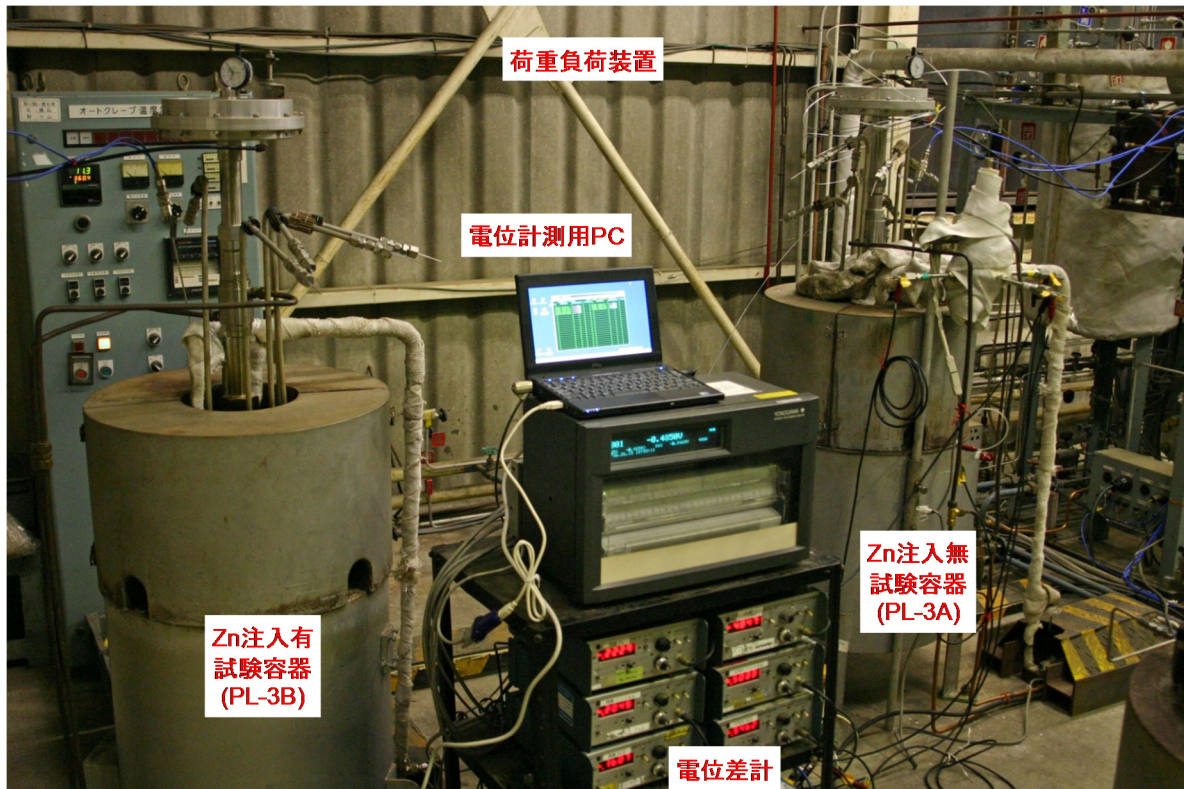


図 3.4.1-10 試験容器外観

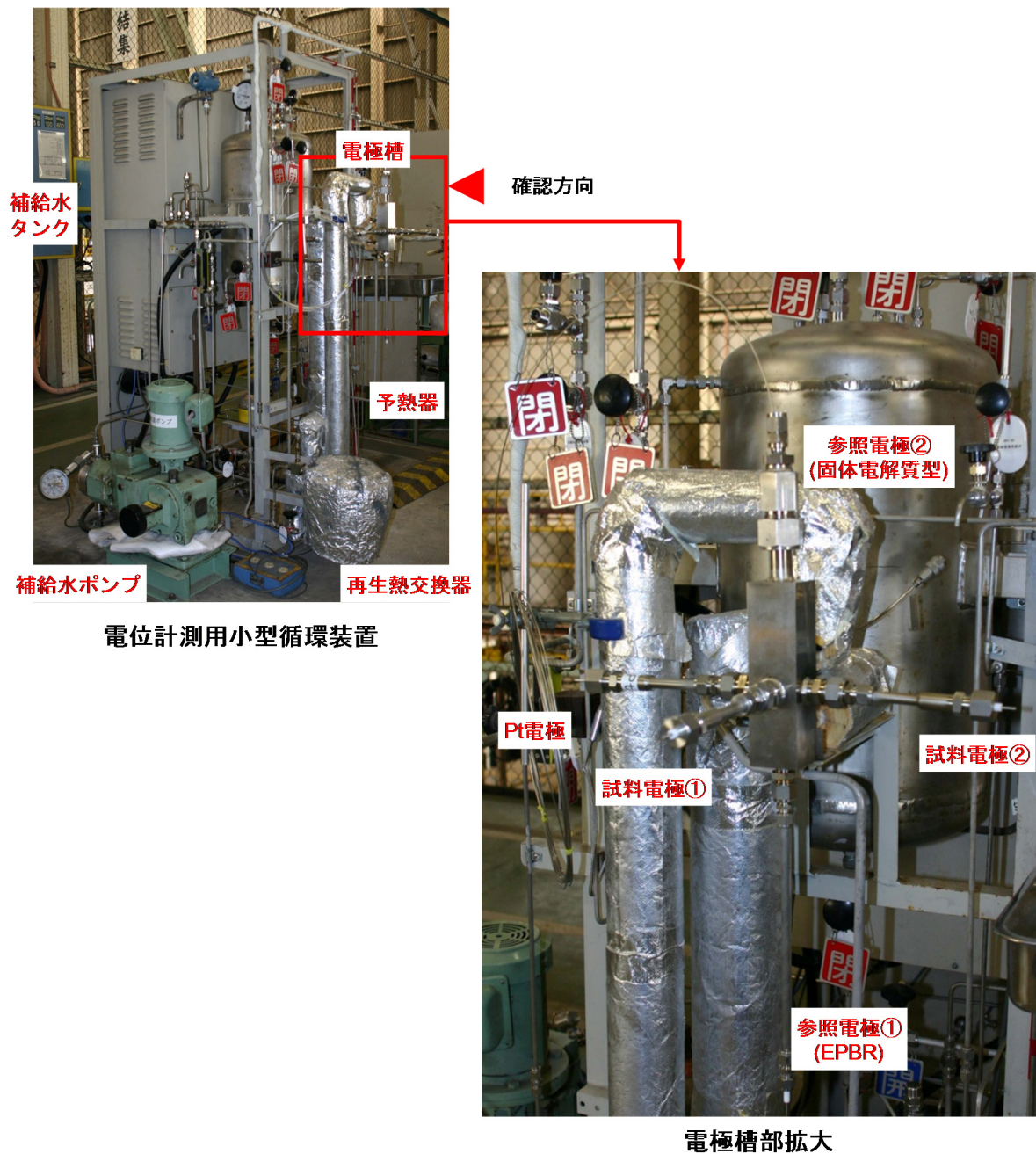


図 3.4.1-11 小型循環装置外観

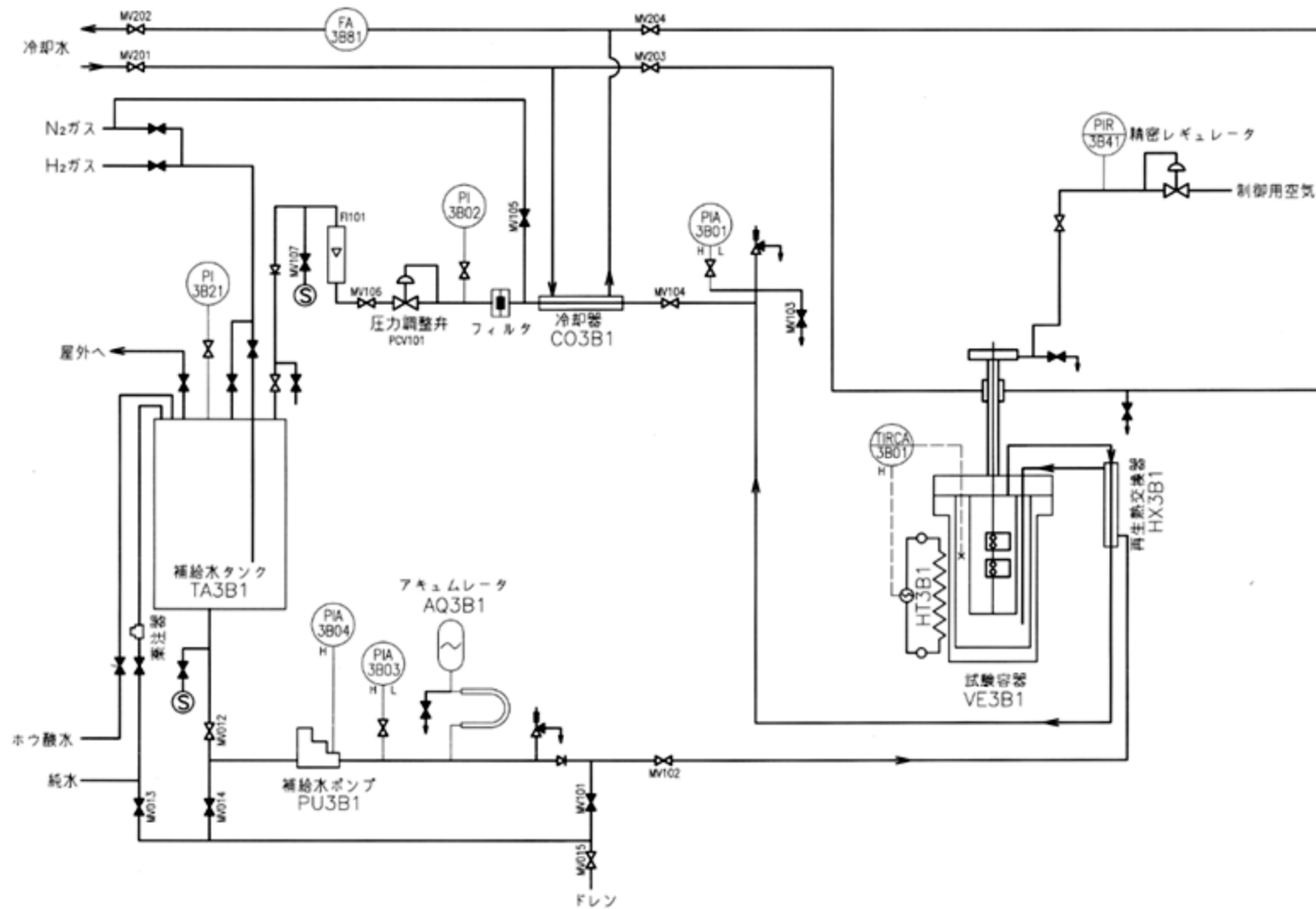


図 3.4.1-12 PL-3A 循環試験装置(Zn 注入なし)系統図

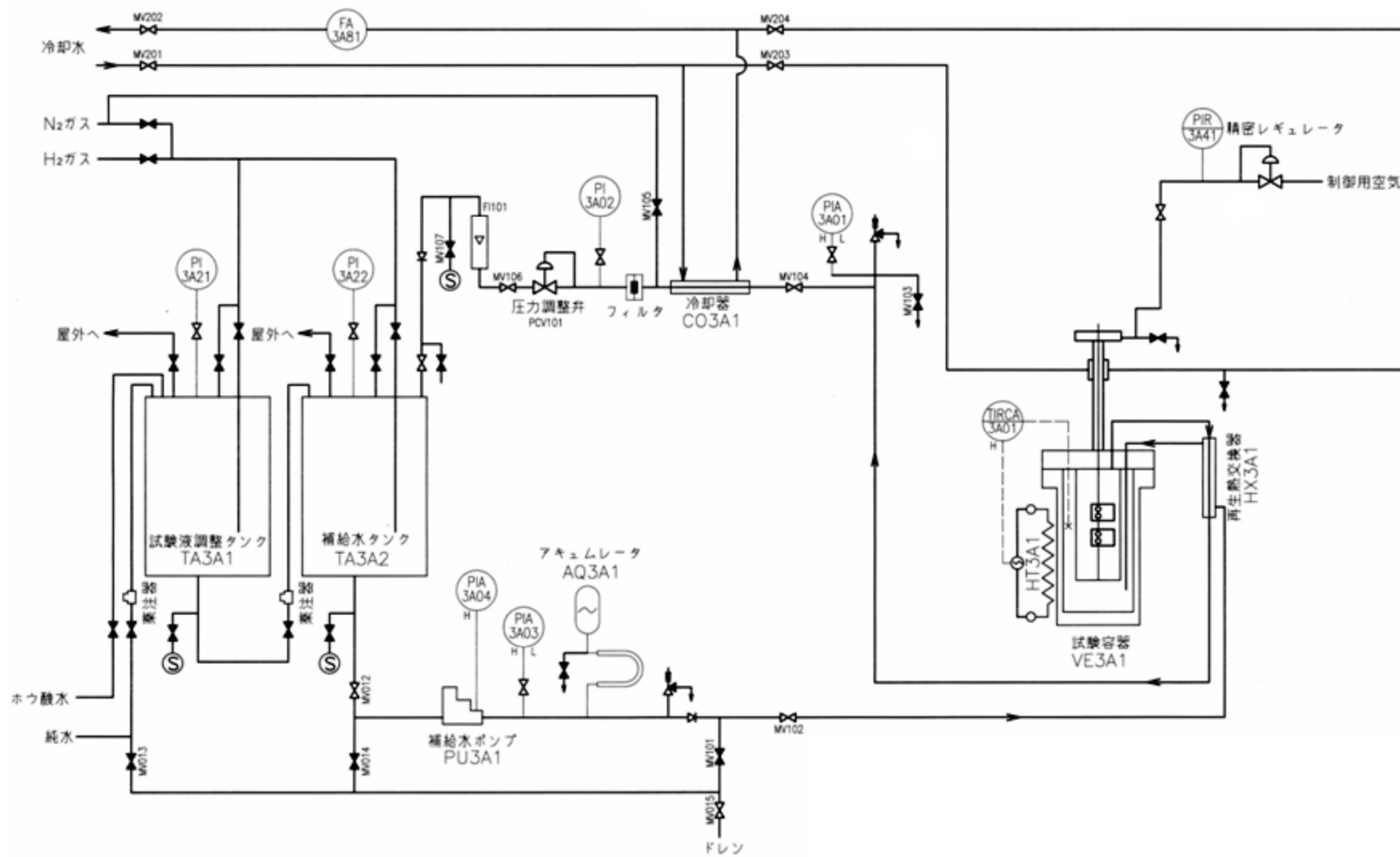


図 3.4.1-13 PL-3B 循環試験装置(Zn 注入あり)系統図  
 (補給水タンクの前段に Zn 濃度調整のための調整タンクを設置)

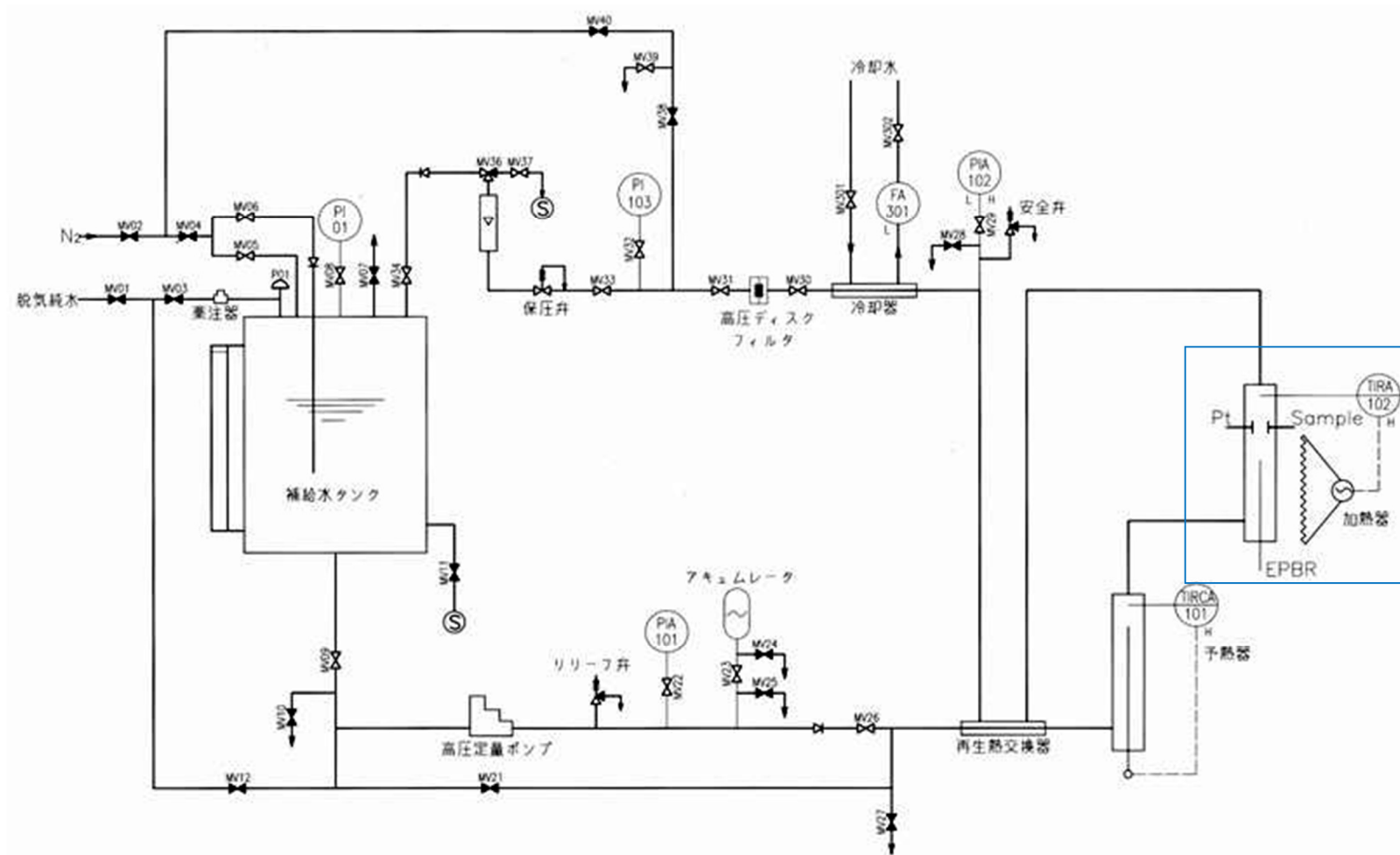


図 3.4.1-14 小型循環試験装置系統図



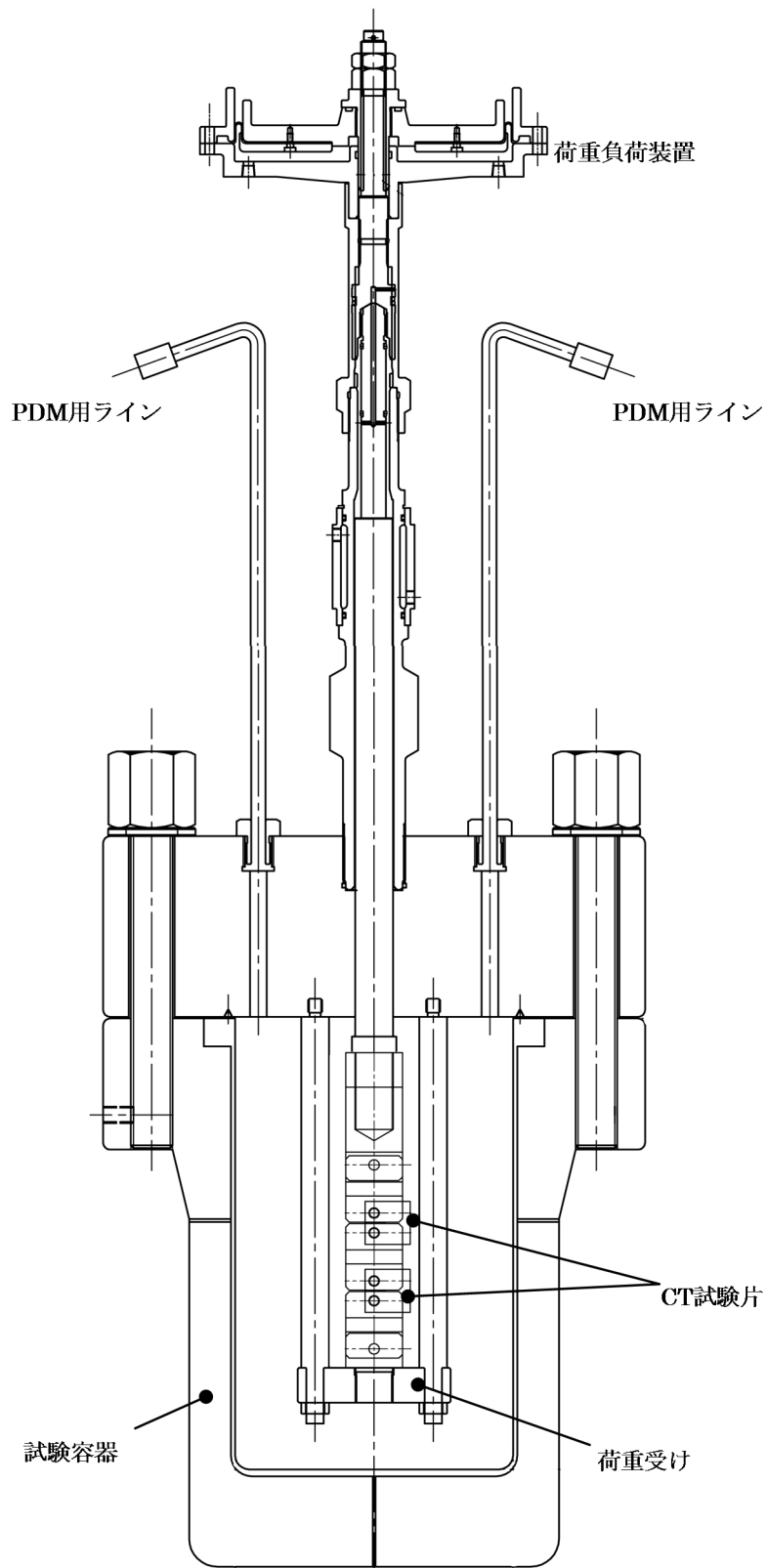


図 3.4.1-15 試験用圧力容器および荷重負荷装置構造図

### 3.4.1.2. 試験結果

#### (1) 試験片製作

PWSCC 試験に供した 600 合金の化学成分表および機械特性を表 3.4.1-2、表 3.4.1-3 に示す。手配材料が規格を満足していることを確認し、10%の一軸引張冷間加工を付与した後、安定伸びが確認された部位から TL 方向に 0.7T-CT 試験片を切り出した。

試験前後の硬さ計測結果を表 3.4.1-4 に示す。なお、CT 試験片に対しては約 2mm の疲労予き裂を付与し、SCC 試験に供した。

#### (2) Zn 注入予備試験(Zn 皮膜付与試験)時の試験環境パラメータ

Zn 注入条件下での PWSCC 試験においては、試験に先んじて試験系統(配管、タンク等)の内面酸化皮膜に Zn を取り込ませ、試験中の Zn 消費を抑制するための予備試験を実施した。Zn 注入時にはホウ酸亜鉛( $2\text{ZnO} \cdot 3\text{B}_2\text{O}_3 \cdot 3.5\text{H}_2\text{O}$ 、水酸化 Li に溶解して注入)および酸化亜鉛(ZnO、ホウ酸水に溶解して注入)を注入用試薬として用いており、狙い値である Zn 濃度 5~10ppb に調整するため、初期の Zn 濃度を 100ppb に設定し、徐々に調整タンク中の Zn 濃度を低くする事で系統内濃度を調整した。

(3) PWSCC 試験時の試験環境パラメータ表 3.4.1-5、表 3.4.1-6 および図 3.4.1-16 に SCC 試験中の運転管理データ一覧を示す。各条件は目標値からの逸脱なく、安定した温度、水質管理を達成した。

#### (4) き裂進展速度評価試験の結果

##### ① Zn 注入なし

Zn 注入なしの試験条件で約 920 時間の PWSCC 進展試験を実施した。試験後の破面観察結果および PDM 計測結果を図 3.4.1-17 および図 3.4.1-18 に示すが、PDM 計測によりき裂は試験開始初期から進展傾向が認められ、約 100 時間試験後からほぼ一定の傾きでき裂が進展している事が確認された。

SCC 進展部では PWSCC の特徴である粒界型 SCC(IGSCC)が認められた。

SCC 進展速度評価には PDM 計測上安定したき裂進展が認められている領域として、試験終了時から約 200 時間毎に 5 区間に分割して K 値とき裂進展速度の関係を纏めた。結果として 2 サンプル間の差異なく、K 値に対して同等のき裂進展速度を確認した。

##### ② Zn 注入あり

Zn 注入の試験条件では Zn 注入を実施しなかったものと同様に試験開始初期から有意な PDM の立ち上がりが確認され、き裂進展傾向を示したことから、約 700 時間の PWSCC 進展試験後に評価を実施した。

試験後の破面観察結果および PDM 計測結果を図 3.4.1-19 および図 3.4.1-20 に示すが、Zn

注入を実施しない条件と同様に、約 100 時間試験後からほぼ一定の傾きでき裂が進展している事が確認され、SCC 進展部では PWSCC の特徴である粒界型 SCC(IGSCC)が認められた。

SCC 進展速度評価には PDM 計測上安定したき裂進展が認められている領域として、試験終了時から約 200 時間毎に 3 区間に分割して K 値とき裂進展速度の関係を纏めた。結果として 2 サンプル間の差異なく、K 値に対して同等のき裂進展速度を確認した。

#### (5) 腐食電位計測試験の結果

290℃および 320℃における各水質環境での電位計測結果を表 3.4.1-7 に示す。結果として Zn 注入の有無による SUS316、インコネル 600 合金への電位への影響は認められず、いずれの材料においても純水(320℃、溶存水素濃度: 30cc/kg・H<sub>2</sub>O、Zn 注入有および無)の腐食電位で約-620 (mV vs SHE)、RCS 水(320℃、1000 ppm as B、3ppm as Li、溶存水素濃度: 30cc/kg・H<sub>2</sub>O、Zn 注入有および無)では約-760 (mV vs SHE)である事が確認された。

表 3.4.1-2 化学成分分析結果

wt%	C	Mn	Fe	S	Si	Cu	Ni	Cr	P
ミルシート	0.08	0.28	9.29	0.001	0.30	0.07	74.17	15.80	0.007
規格値	0.15 以下	1.0 以下	6.00- 10.00	0.015 以下	0.50 以下	0.50 以下	72.0 以上	14.0- 17.0	-

表 3.4.1-3 機械的特性評価

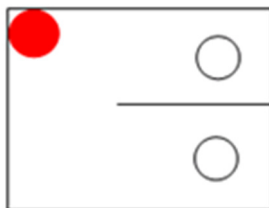
	0.2%耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	伸び (%)	絞り (R/A)(%)	ロックウェル 硬さ
ミルシート	411	732	35.2	60.8	92.1 注)
規格値	235-628	579-833	50-30	-	75-95

\*ビッカース換算で約 200

表 3.4.1-4 機械的特性評価

試験片	硬さ測定結果(HV1)			平均値
素材硬さ	212	210	212	211
CT 試験片硬さ (10%加工後)	259	262	262	261

CT 試験片



硬さ計測位置

備考：素材は 10%一軸冷間加工前の材料に対して実施。計測前に#400 エメリー紙からバフ研磨まで実施し、材料表層の加工層の影響を除去して計測を実施した。

表 3.4.1-5 水質管理結果(Zn 注入なし)

Zn注入無 PL-3B水質実績

サンプリング日時	pH at25°C	B mg/l	Li mg/l	DH2 cc/kg H <sub>2</sub> O	備考
2014/12/26 9:15					試験開始
2014/12/26 10:00	6.30	1770	3.55		
2014/12/26 16:00				27	
2014/12/27 14:30				28	
2014/12/27 17:00				30	
2015/1/6 11:10	6.35	1760	3.55		
2015/1/6 17:50				31	
2015/1/13 10:30		1760	3.50		
2015/1/13 16:20				30	
2015/1/19 11:50		1760	3.50		
2015/1/19 18:00				30	
2015/1/26 11:20		1750	3.45		
2015/1/27 16:00				29	
2015/2/2 14:30	6.35	1750	3.60		
2015/2/2 16:00				29	
2015/2/2 18:15					試験終了
最小値	6.30	1750	3.45	27	
最大値	6.35	1770	3.60	31	
平均値	6.33	1758	3.53	29	
(参考)目標値*	6.25±0.15	1800±180	3.5±0.35	30±5	

\*水質管理目標値は平成 21 年度 Ni 基合金応力腐食割れ進展評価技術実証に関する報告書を参考に設定した。

表 3.4.1-6 水質管理結果(Zn 注入あり)

Zn注入有 PL-3A水質実績

サンプリング日時	pH at25°C	B mg/l	Li mg/l	Zn μg/l	DH2 cm3/kg	備考
2015/1/21 11:20						試験開始
2015/1/21 11:40	6.35	1760	3.45	6		
2015/1/21 19:00					30	
2015/1/22 10:40				5		
2015/1/22 16:00						
2015/1/23 11:00				5		
2015/1/23 14:00						
2015/1/26 9:00				6		
2015/1/26 9:20						
2015/1/26 11:20		1760	3.45			
2015/1/27 11:50					28	
2015/1/28 9:20				6		
2015/1/28 17:00					29	
2015/1/30 8:40				6		
2015/1/30 9:30						
2015/2/2 8:50				6		
2015/2/2 9:10						
2015/2/2 14:30		1760	3.50			
2015/2/2 16:30					29	
2015/2/4 11:00				7		
2015/2/6 9:30				7		
2015/2/6 9:40						
2015/2/9 11:30		1760	3.50	8		
2015/2/9 17:40					31	
2015/2/13 13:40				6		
2015/2/16 10:50	6.35	1760	3.50	6		
2015/2/16 17:30					30	
2015/2/19 15:20						試験終了
最小値	6.35	1760	3.45	5	28	
最大値	6.35	1760	3.50	8	31	
平均値	6.35	1760	3.48	6	30	
(参考)目標値*	6.25±0.15	1800±180	3.5±0.35	5~10	30±5	

\*水質管理目標値は平成 21 年度 Ni 基合金応力腐食割れ進展評価技術実証に関する報告書を参考に設定した。(Zn 注入濃度除く)

表 3.4.1-7 腐食電位計測結果

測定温度 (°C)			290 <sup>注1)</sup>				320			
測定水質			純水+DH		RCS		純水+DH		RCS	
Zn(ppb)			なし	4	なし	12	なし	5	なし	10
DH (cc/kg)			27	32	28	31	30	31	30	31
pH <sub>T</sub>			5.54	5.54	6.63	6.63	5.60	5.60	6.77	6.77
測定電位差 (mV)	EPBR基準	Pt	-587	-586	-704	-710	-577	-579	-709	-704
		インコネル600	-586	-581	-703	-706	-576	-575	-707	-699
		SUS316	-587	-583	-704	-707	-576	-584	-708	-705
		隔膜電極	-638	-633	-745	-755	-746	-660	-887	-774
	隔膜電極基準	Pt	53	49	43	47	171	82	179	71
		インコネル600	55	53	45	50	173	86	181	75
SUS316		55	52	45	49	173	77	181	70	
理論水素電極電位 (mV vs SHE <sub>T</sub> )			-591	-595	-713	-716	-621	-621	-758	-759
SHE換算値 <sup>注2)</sup>			-52	-52	-52	-52	-121	-121	-121	-121
Pt vs EPBR計測値に対するSHE換算理論値 (mV vs SHE <sub>T</sub> )			-639	-638	-756	-762	-698	-700	-830	-825
EPBR電極の計測値と理論値とのずれ			48	43	43	46	77	80	72	66
計測電位(vsEPBR)のSHE <sub>T</sub> への補正值			-4	-9	-9	-6	-44	-42	-49	-55
計測電位(vs隔膜)のSHE <sub>T</sub> への補正值			-642	-642	-754	-761	-790	-702	-936	-829
SHE (mV vs SHE) 補正後の電位差	Pt	EPBR基準	-591	-595	-713	-716	-621	-621	-758	-759
		隔膜電極基準	-589	-593	-711	-714	-619	-620	-757	-758
	インコネル600	EPBR基準	-590	-590	-712	-712	-620	-617	-756	-754
		隔膜電極基準	-587	-589	-709	-711	-617	-616	-755	-754
	SUS316	EPBR基準	-591	-592	-713	-713	-620	-626	-757	-760
		隔膜電極基準	-587	-590	-709	-712	-617	-625	-755	-759

注1) 290°Cについては参考に取得したものである。  
 注2) EPBRの理論換算値は参考資料【4.2-5】に基づく。  
 備考：腐食電位計測値は電位安定後の3時間平均値を示している。  
 純水+DH(30cc/kg)のpHはpH(at 25°C)=7, pH(at 300°C)=5.56 (pH計算コード)。

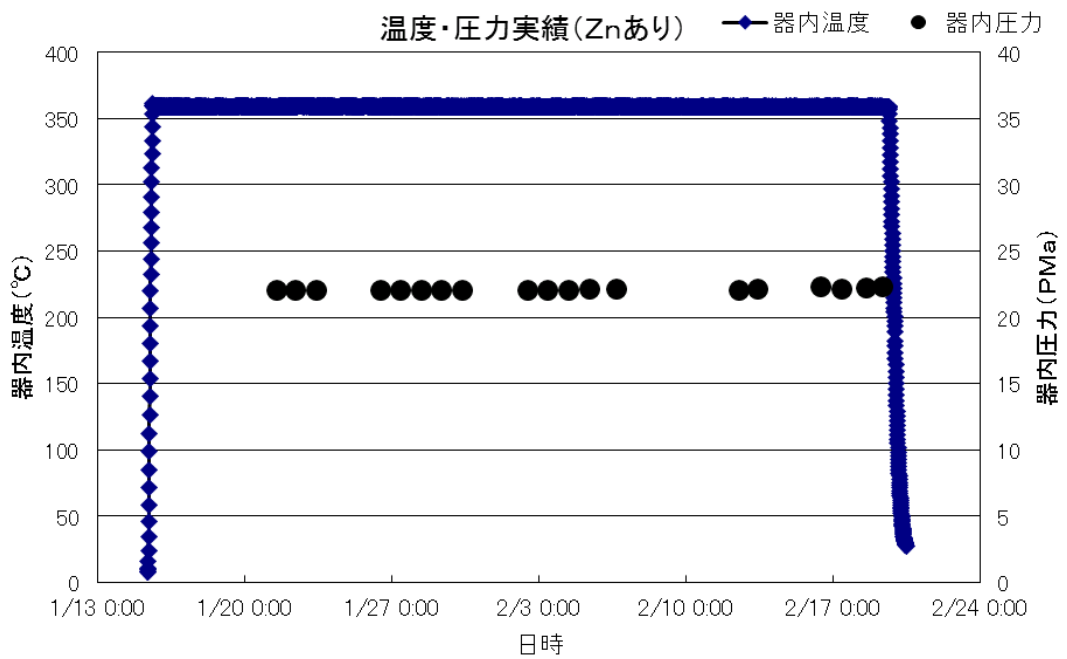
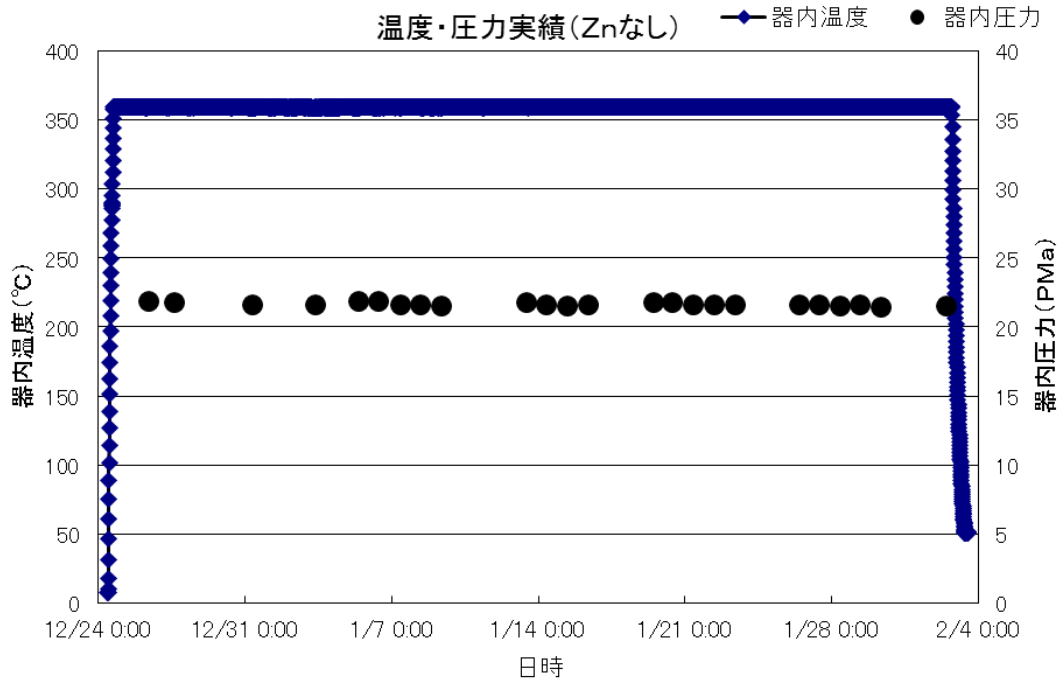
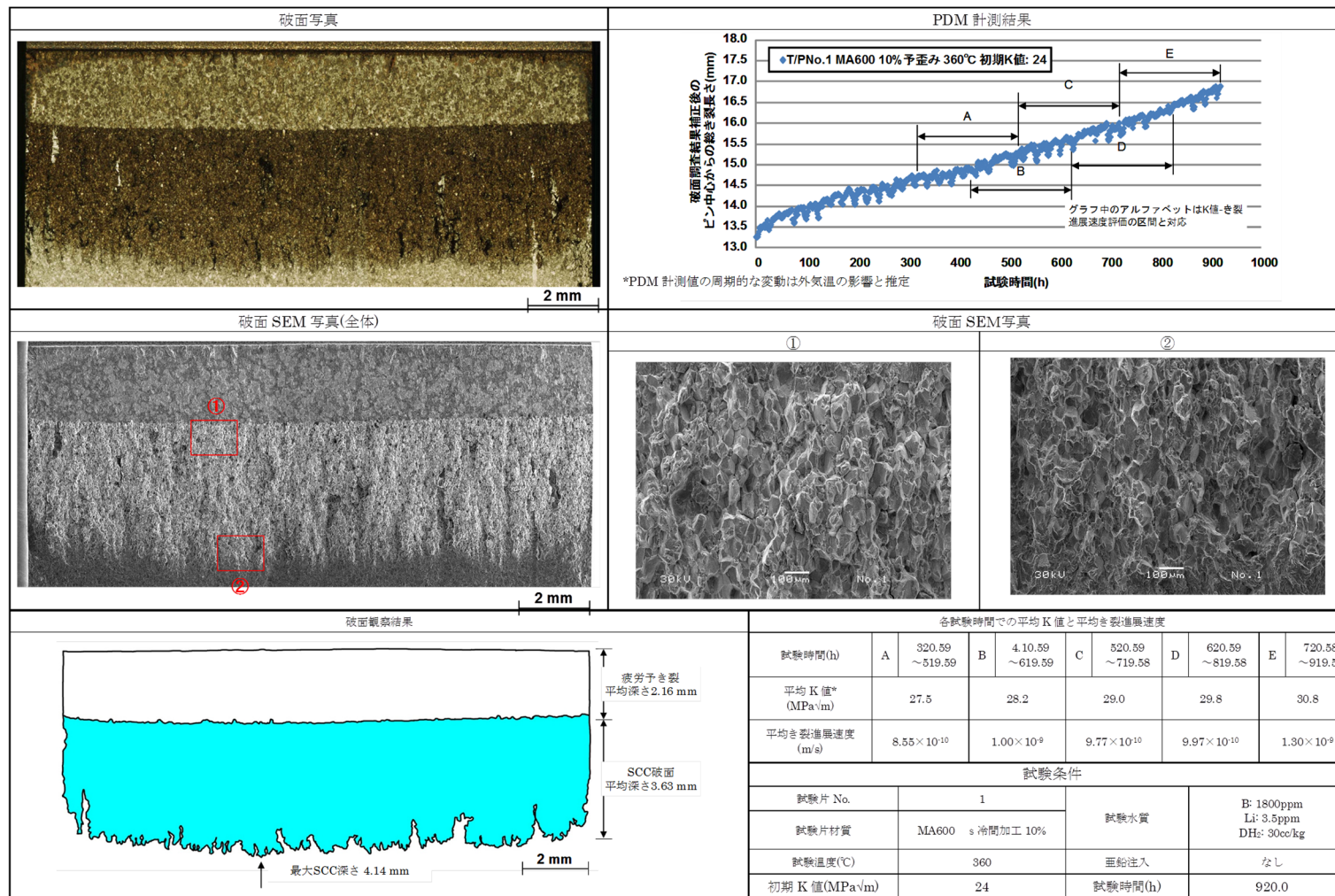


図 3.4.1-16 PWSCC 試験時の温度・圧力データ





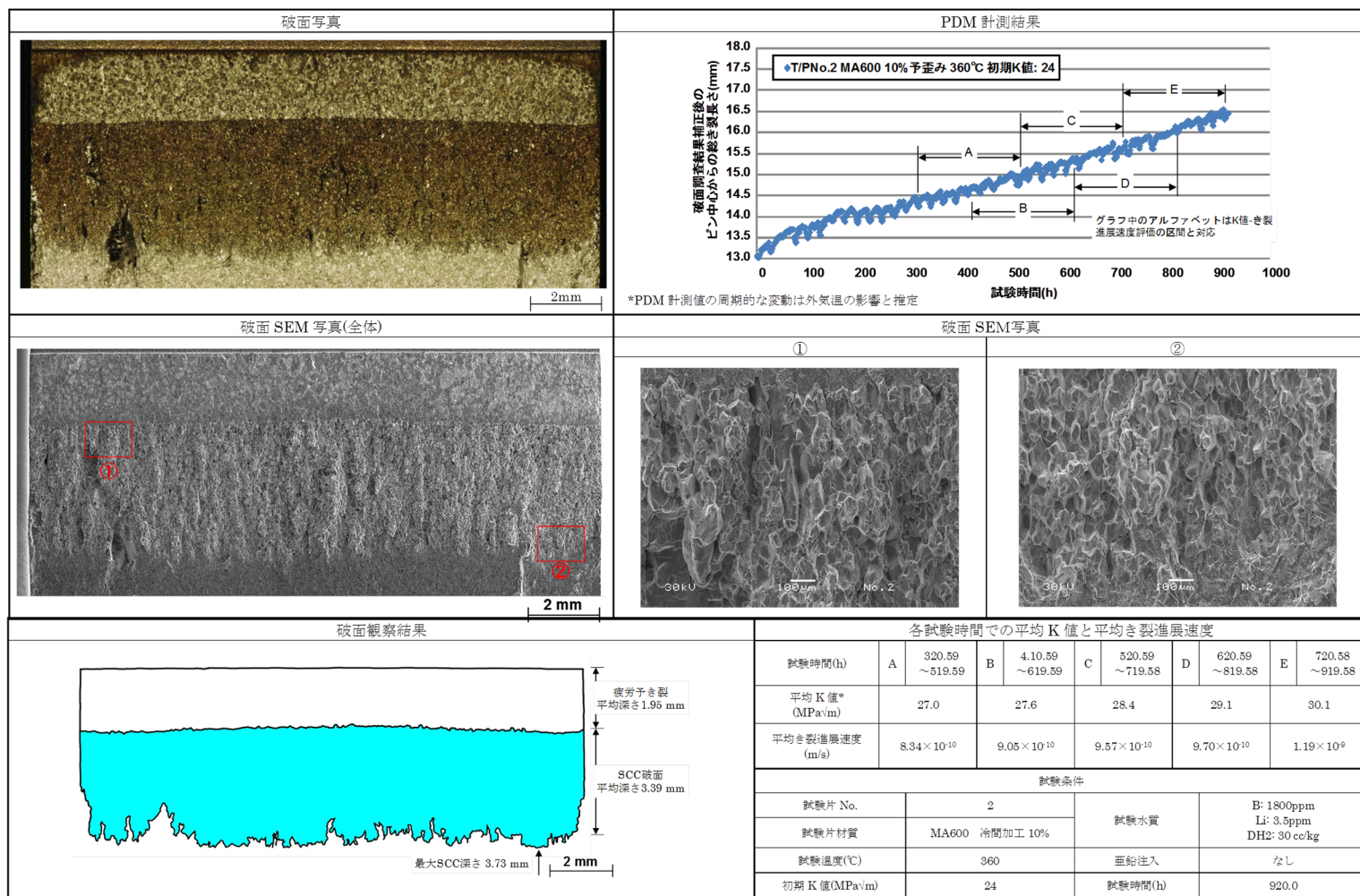


図 3.4.1-18 SCC 速度評価および破面観察結果(Zn 注入無 No. 2) (平均 K 値：評価区間における平均 K 値)

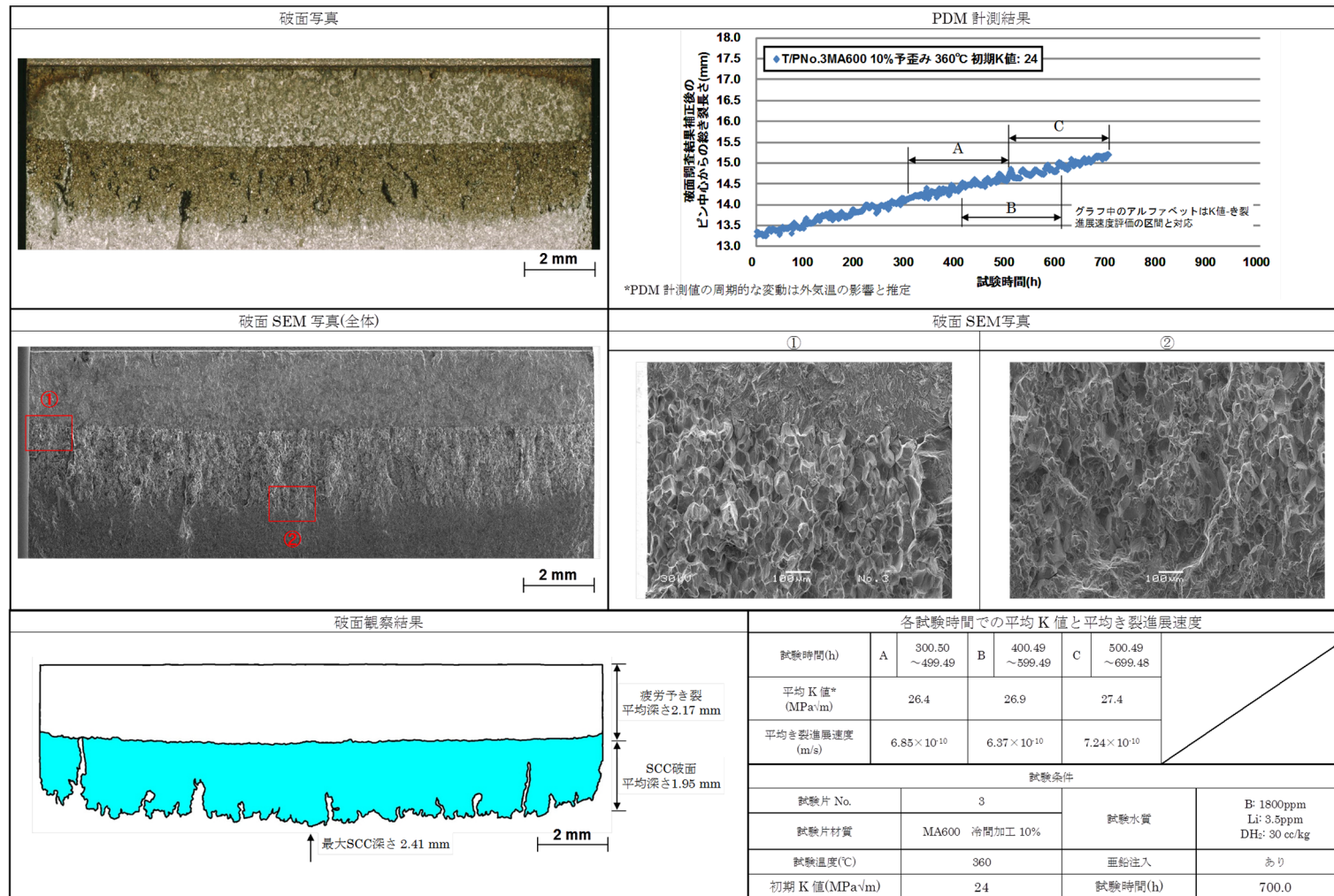


図 3.4.1-19 SCC 進展速度評価および破面観察結果(Zn 注入有 No.3)(\*平均 K 値: 評価区間における平均 K 値)

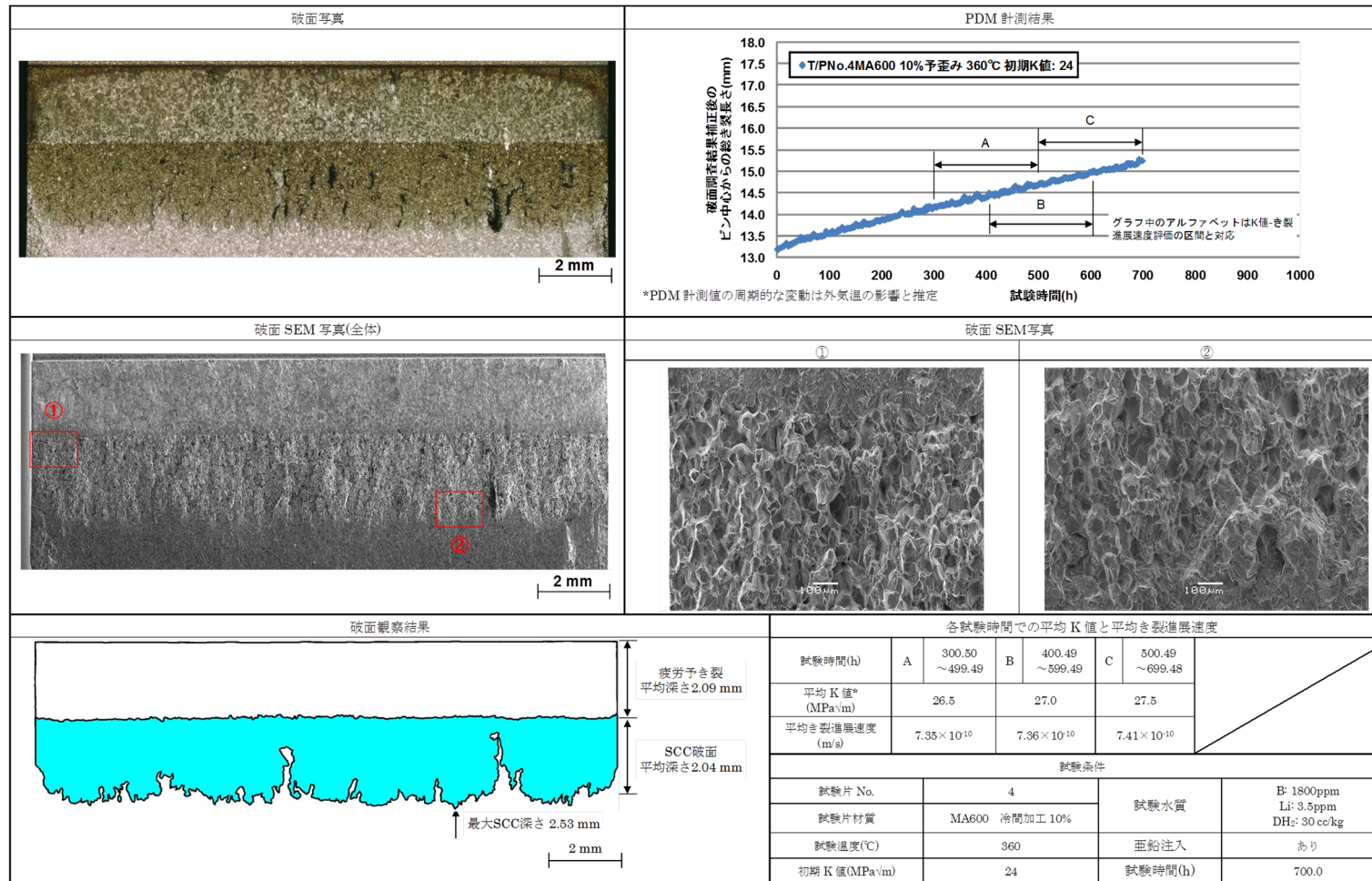


図 3.4.1-20 SCC 進展速度評価および破面観察結果(Zn 注入有 No.4)(\*平均 K 値: 評価区間における平均 K 値)

### 3.4.1.3. 結果の検討

#### (1) 既往のき裂進展速度データとの比較

表 3.4.1-8 に Zn 注入の有無に対するき裂進展速度の比較した結果を示す。繰返し 2 の限定された条件ではあったが、過去の試験と比較してバラつきの少ない結果が得られた。また同程度の K 値で比較すると、Zn 注入実施条件でのき裂進展速度はやや抑制される傾向が見られた。

また図 3.4.1-21 に、冷間加工無しまたは 4%冷間加工した 600 合金を供試材とした既往のき裂進展速度データ<sup>1)</sup>との比較を示す。今回の試験で得られたき裂進展速度は、Zn 注入ありなしに関わらず過去の試験で得られたき裂進展速度よりも高い値となった。一般に 600 合金に加工を付与するとき裂進展速度は大きくなることが知られている(図 3.4.1-22)。図 3.4.1-22 に示した結果の供試材と異なるためき裂進展速度を直接比較することは出来ないが、定性的には当初計画通り冷間加工による加速効果が見られたものであり、定性的には 600 合金への冷間加工がき裂進展速度に及ぼす影響は Zn 注入環境においても等価であると考えられる

以上のことより、10%冷間加工した 600 合金を用いてき裂進展速度に及ぼす Zn 注入あり、なしの影響を評価したところ、若干のき裂進展速度の相違は見られたものの Zn 注入の影響は顕著でなかったものと思われる。

#### (2) 既往の腐食電位計測結果との比較

図 3.4.1-23 および図 3.4.1-24 に示す軽水炉中の各種材料の腐食電位および電位・pH 図と軽水炉環境の整理から、PWR 一次系の環境では脱気環境後にいずれの材料の腐食電位もほぼ一定となり、 $-750\text{mV vs SHE}$  ( $\sim 325^\circ\text{C}$ ) 近傍になると考えられ、今回の計測結果は既往のデータと一致している事を確認した。

図 3.4.1-25 に Zn の電位・pH 線図を示す。Zn/ZnO の酸化還元電位は PWR 一次系水環境よりもさらに低い電位であることが判る。このことより、PWR 一次系水環境において Zn は酸化還元反応を起こさないため、腐食電位へ影響を及ぼさなかったのではないかと考えられる。

表 3.4.1-8 き裂進展速度データまとめ

亜鉛なし	No.1	試験時間	(h)	320.59	420.59	520.59	620.59	720.58
				∩	∩	∩	∩	∩
				519.59	619.59	719.58	819.58	919.58
	平均K値	(MPa√m)	27.5	28.2	29.0	29.8	30.8	
	da/dt	(m/s)	$8.55 \times 10^{-10}$	$1.00 \times 10^{-9}$	$9.77 \times 10^{-10}$	$9.97 \times 10^{-10}$	$1.30 \times 10^{-9}$	
	No.2	試験時間	(h)	320.59	420.59	520.59	620.59	720.58
			∩	∩	∩	∩	∩	
			519.59	619.59	719.58	819.58	919.58	
平均K値	(MPa√m)	27.0	27.6	28.4	29.1	30.1		
da/dt	(m/s)	$8.34 \times 10^{-10}$	$9.05 \times 10^{-10}$	$9.57 \times 10^{-10}$	$9.70 \times 10^{-10}$	$1.19 \times 10^{-9}$		
亜鉛あり	No.3	試験時間	(h)	300.5	400.49	500.49	/	/
				∩	∩	∩		
				499.49	599.49	699.49		
	平均K値	(MPa√m)	26.4	26.9	27.4	/	/	
	da/dt	(m/s)	$6.85 \times 10^{-10}$	$6.37 \times 10^{-10}$	$7.24 \times 10^{-10}$			
No.4	試験時間	(h)	300.5	400.49	500.49	/	/	
			∩	∩	∩			
			499.49	599.49	699.49			
平均K値	(MPa√m)	26.5	27.0	27.5	/	/		
da/dt	(m/s)	$7.35 \times 10^{-10}$	$7.36 \times 10^{-10}$	$7.41 \times 10^{-10}$				

\* 平均 K 値とは評価区間における初期 K 値と最終 K 値の平均値である。

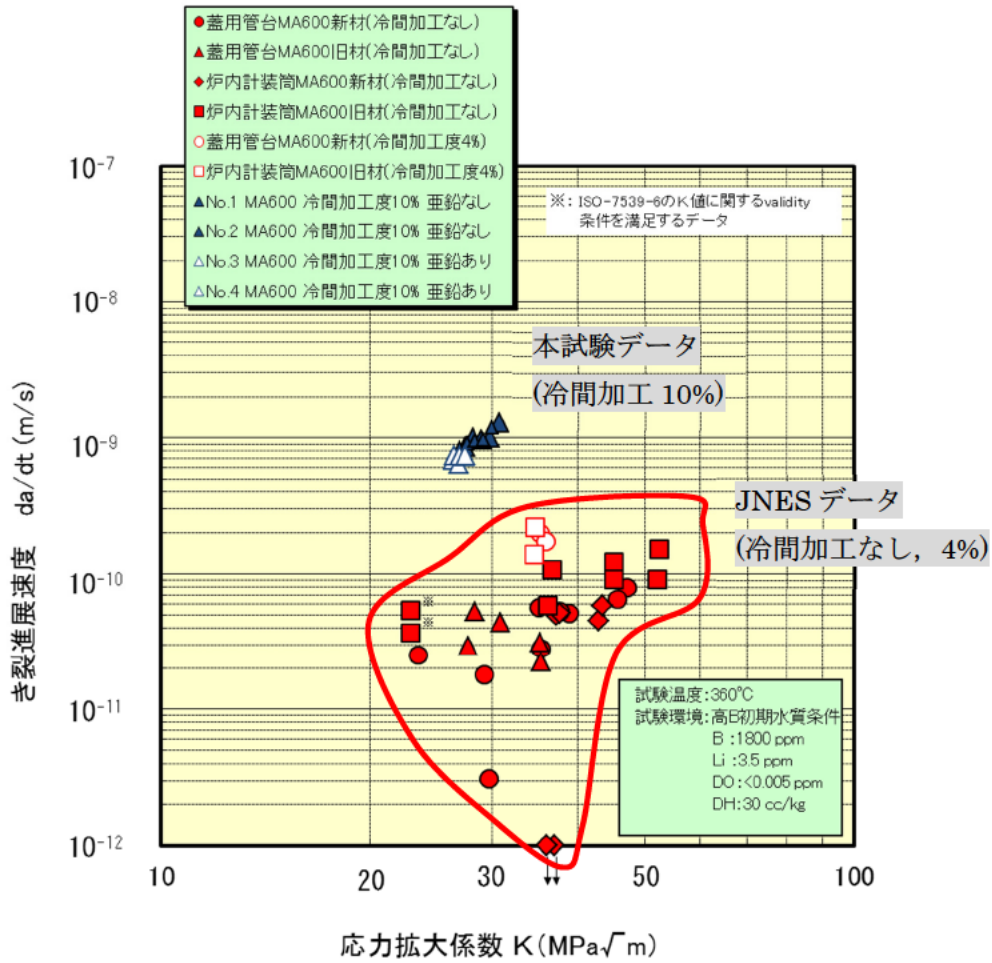


図 3.4.1-21 既往のき裂進展速度と取得データの比較

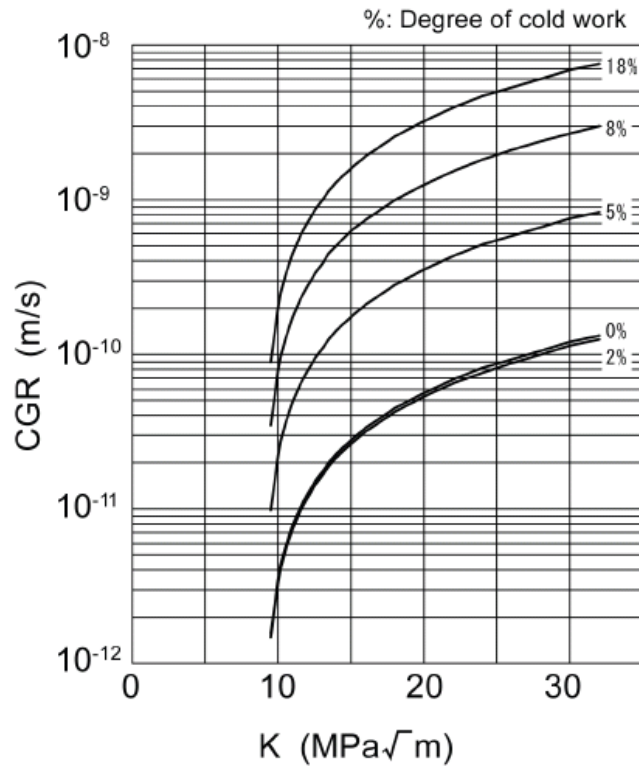


図 3.4.1-22 TT600 合金の 360°C RCS 水中におけるき裂進展速度への加工度の影響<sup>[6]</sup>

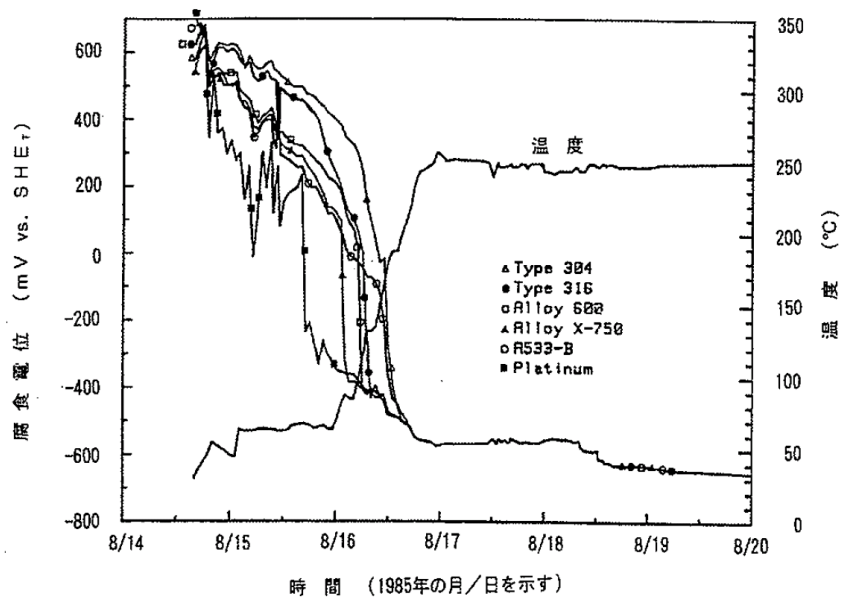


図 3.4.1-23 PWR 一次系における 6 種類の金属の腐食電位計測結果<sup>[7]</sup>



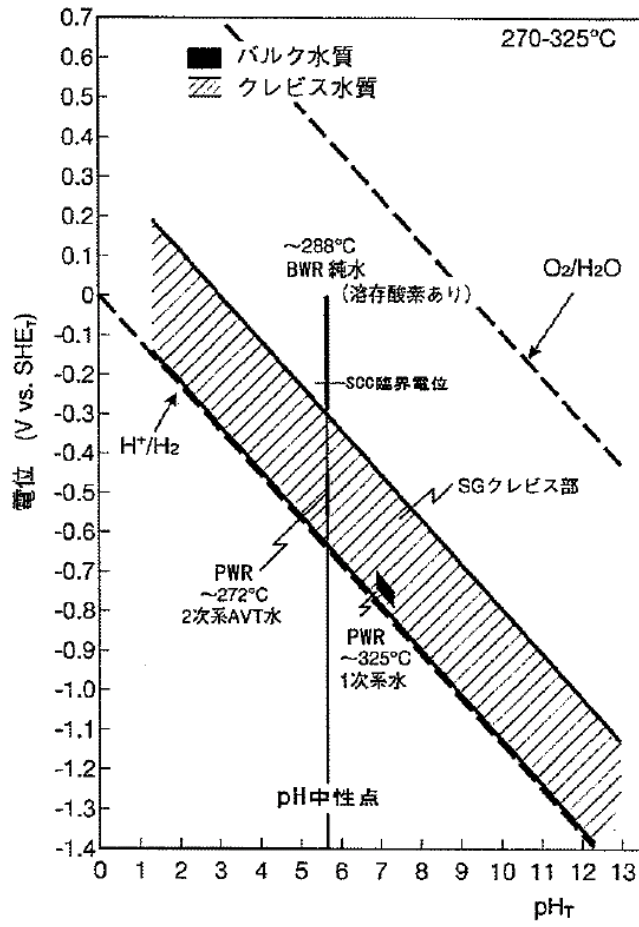


図 3.4.1-24 高温の電位-pH 図上に示した軽水炉環境<sup>[8]</sup>

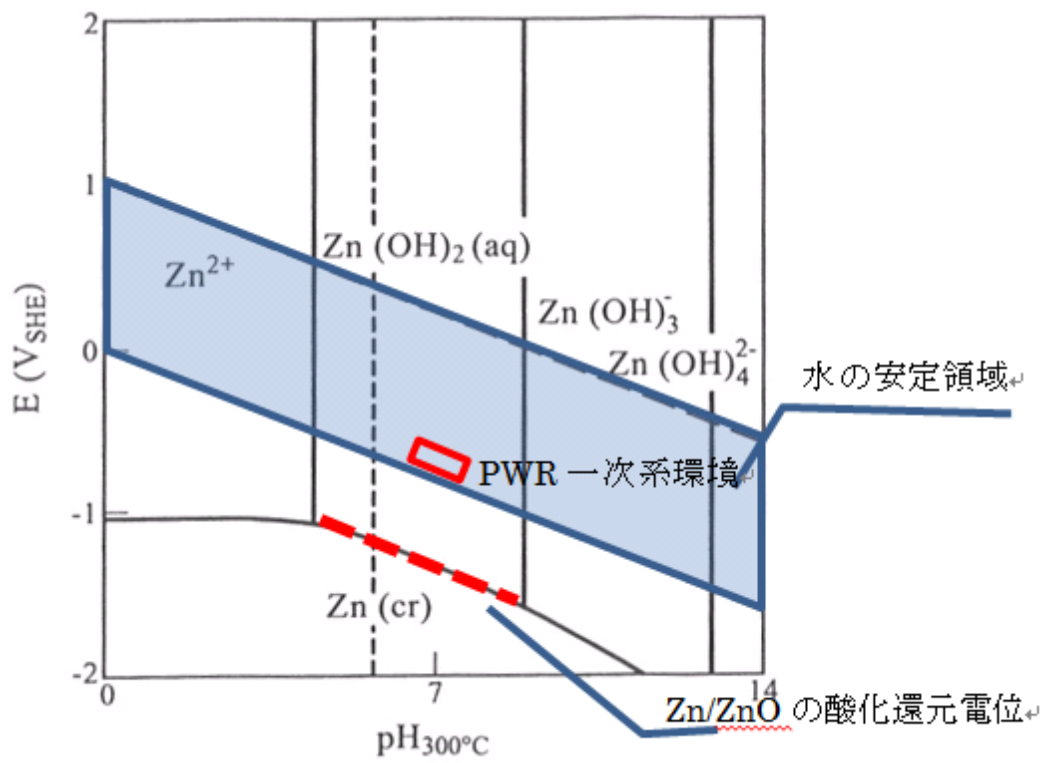


図 3.4.1-25 Zn の電位-pH 線図(300°C)<sup>[9]</sup>

## 3.4.2 PWR における DH、ECP と材料劣化に関する調査(文献調査+ラジオリシス解析検討)

### 3.4.2.1. 文献調査

#### (1) 調査方法

最新動向調査として過去 10 年間における原子力材料劣化に関する公開文献を調査し、水質影響を俯瞰的にまとめることとした。なお、主要データについては一件一葉に纏めてデータベース化した。

調査対象としたジャーナル、国際会議等プロシーディングス等の主要なものを以下に示す。

- ・ Environmental Degradation Conference
- ・ Fontevraud
- ・ INSS ジャーナル(2005 以降)
- ・ 溶存水素ワークショップ(2007)

#### (2) 文献調査結果

主要な確認結果は以下の通りであった。なお文献調査により抽出されたものは、一件一葉形式に纏め、添付 3.4 に示した。

##### ① Ni 基合金 PWSCC について

###### ①-1 溶存水素濃度の影響

- ・ 600 合金の PWSCC 進展速度に対して溶存水素濃度依存性が認められる。き裂進展速度は実験結果として Ni/NiO の平衡水素濃度近傍に感受性のピークを持つことが確認されており、酸化皮膜の安定状態がき裂進展速度に影響を及ぼしている可能性がある。
- ・ 同じく PWSCC 発生に対しても溶存水素濃度依存性は認められ、一般に低濃度であるほどき裂発生時間が長くなる傾向が示されている。しかし、発生試験については実機加速温度でのデータが主体であり、実機温度データは十分とは言えない。
- ・ 600 合金よりも Cr を多く含有する 690 合金については PWSCC 感受性が低いことが知られているが、水質依存性に関するデータは少なく、一部の報告で 600 合金と同様の傾向を示すことが示されている。

###### ①-2 Zn 注入の影響

- ・ Zn 注入により PWSCC 発生および進展が抑制されるとの報告がなされている。ただし、いずれの報告も Zn 注入濃度が高いため、国内注入実績(5~10ppb)における感受性についてはほとんどデータがない。

##### ② ステンレス鋼の SCC について

###### ②-1 溶存水素濃度の影響

- ・ ステンレス鋼の SCC については溶存水素の影響は認められなかった。なお、脱気環境

下では鋭敏化材が非鋭敏化材よりも耐 SCC 性に優れた結果を示しており、粒界炭化物が SCC 感受性低下に寄与している可能性がある。

#### ②-2 溶存酸素の影響

- ・ 溶存酸素濃度が高いほどき裂進展速度は増加する。

#### ②-3 温度の影響

- ・ Ni 基合金の PWSCC が 360°C程度まではアレニウス則に従うのに対して、ステンレス鋼の SCC 進展速度は 320°C付近にピークを持つことが確認されている。

#### ③ その他の事項

- ・ 溶存水素濃度の腐食電位への影響評価では、水の放射線分解を考慮したモデルでも電位に対してドラスティックに影響する濃度は 5 cc/kg・H<sub>2</sub>O 以下の濃度であり、現行の管理下限値(15 cc/kg・H<sub>2</sub>O)以下の領域でも問題にならない可能性がある。
- ・ 燃料被覆管のクラッド形成については起動初期から Zn 注入をする事でクラッド付着量を低減できる可能性がある。一方、運転途中から Zn 注入を適用した場合のクラッド厚みは Zn 注入を実施しないものと大差なかった。

### 3.4.2.2. PWR 一次系水質環境でのラジオリシス評価及び ECP 評価の調査結果

#### (1) ラジオリシス解析に関する既往知見調査

##### ① Sunaryo らの解析<sup>[1]</sup>

Sunaryo らは、PWR の一次冷却水に水素を添加したときのラジオリシス評価を実施した。溶存水素濃度が 30cc/kg のときの H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度と O<sub>2</sub> 濃度の評価結果を図 3.4.2-1 に示す。図 3.4.2-1 における照射条件は、(a) γ 線: 1 Gy/s、(b) γ 線: 10 kGy/s、(c)高速中性子線: 10 kGy/s、(d) γ 線: 10 kGy/s、高速中性子線: 10 kGy/s、α 線: 10 kGy/s であるが、いずれのケースも水素を添加することで、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度と O<sub>2</sub> 濃度が低く保たれている。

##### ② Macdonald らの解析<sup>[2]</sup>

PWR 一次系の放射線分解生成物の濃度を評価し、H<sub>2</sub>,O<sub>2</sub>,H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度から、腐食電位(ECP)を評価した。溶存水素濃度が通常(=25 cc(STP)/kg)で、供給水中の溶存酸素濃度を 5ppb とし、溶存水素濃度を変化させたときの ECP の評価結果を図 3.4.2-2 に示す。図 3.4.2-2 から、供給水中の溶存水素濃度が低くなるほど、ECP が高くなる傾向にある。本結果から、ECP の評価には、溶存水素濃度が重要な因子であることがわかる。

#### ③ ラジオリシス解析

##### ③-1 解析に当たっての考え方

PWR では、水の放射線分解を抑制するために、水素が添加されている。PWR に準じる水質環境においてラジオリシス解析を実施している文献のモデルをベースに、解析結果を比較する。

### ③-2 使用モデル

PWR 水質環境での解析を実施している以下の文献のモデルを参照した。

- ・ AECL レポート(2009)<sup>[3]</sup>
- ・ Sunaryo(2008)<sup>[1]</sup>
- ・ Macdonald(2007)<sup>[2]</sup>

これらの文献で使用している高温（300℃）での反応速度定数を表 3.4.2-1 に示す。

反応式は数多くあるが、他の文献で引用の多い反応として、黄色いセルで表示した値を使用した。今回、これに相当する反応式の反応速度定数として、Sunaryo ら及び Macdonald らの値（表 3.4.2-1 のオレンジ色のセルの値）を使用して、解析結果を比較した。

#### (iii) 解析条件

解析には、PWR の運転中の代表的な水質条件を設定した。線量率条件を表 3.4.2-2 に示す。

また、水質条件と流れにおける水の滞在時間を表 3.4.2-3 に示す。水質条件では、溶存水素濃度をパラメータにして、放射線分解生成物濃度への影響を把握した。

#### (iv) 解析結果

溶存水素濃度をパラメータとした場合の H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度の時間変化を図 3.4.2-3～図 3.4.2-12 に示す。

図 3.4.2-3 から、DH=30cc/kg-H<sub>2</sub>O の場合、AECL と Sunaryo のモデルの照射場における H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度の計算結果は、ほぼ同じ結果になっている。DH 濃度が低下すると、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度は上昇する傾向にあるが、いずれのモデルも同様の傾向を示している。

表 3.4.2-1 から、AECL と Sunaryo のモデルで使用している反応式は、比較的共通しているものが多く、使用している反応速度定数にも一部の反応(R2 など)を除けば、比較的近い値となっている。このため、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度の計算結果は、ほぼ同じ結果になったと考えられる。

なお、非照射場において、Sunaryo のモデルで H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度が少し低下傾向にあるのは、表 3.4.2-1 の H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度の分解反応(R22a)が考慮されていることによると考えられる。

次に図 3.4.2-4 から、DH=30cc/kg-H<sub>2</sub>O の場合、Macdonald のモデルの照射場における H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度の計算結果は、AECL のモデルに比べると、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度が高めになり O<sub>2</sub> 濃度が低めになっている。他の DH 濃度においても同様の傾向を示している。

表 3.4.2-1 から、Macdonald のモデルで使用している反応式は、BWR でのモデルに基づい

ており、AECL のモデルで使用している反応式と少し異なっている。Macdonald のモデルは、反応速度定数の温度依存性をアレニウス型で表現しているが、300°Cの高温では、AECL のモデルの使用数値と少し差が見られる。特に、DH による水の分解抑制に重要な反応式 (R32f)の反応速度定数に大きな差が見られる。このため、AECL と Macdonald のモデルで H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度の計算結果に違いが生じたと考えられる。

そこで、Macdonald のモデルにおいて、下記反応の反応速度定数のみを AECL の値を使用した場合の計算結果を図 3.4.2-13 に示す。



図 3.4.2-13 から、上記反応の反応速度定数が大きくなることで、Macdonald のモデルで H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 濃度及び O<sub>2</sub> 濃度が大きく上昇している。このことから、水の分解反応には、上記反応の影響が大きいことがわかる。

表 3.4.2-1 (1/2) 高温での反応速度定数

No.	反応式	反応速度定数(L/mol/sec)(高温)		
		300°C AECL	300°C Sunaryo	300°C Macdonald
R 2	$\text{eaq}^- + \text{eaq}^- + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + 2\text{OH}^-$	6.00E+06	6.59E+11	5.68E+10
R 3	$\text{H}\cdot + \text{H}\cdot \rightarrow \text{H}_2$	1.04E+11	1.00E+11	1.14E+11
R 4	$\text{OH}\cdot + \text{OH}\cdot \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2$	9.86E+09	2.09E+10	5.12E+10
R 5	$\text{eaq}^- + \text{H}\cdot + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{OH}^-$	4.97E+11	5.66E+11	2.84E+11
R 6	$\text{eaq}^- + \text{OH}\cdot \rightarrow \text{OH}^-$	3.72E+11	1.40E+11	2.73E+11
R 7	$\text{H}\cdot + \text{OH}\cdot \rightarrow \text{H}_2\text{O}$	6.34E+10	6.87E+10	2.27E+11
R 8	$\text{eaq}^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{OH}\cdot + \text{OH}^-$	2.85E+11	2.76E+11	1.48E+11
R 9	$\text{eaq}^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^-$	2.18E+11	2.78E+11	2.16E+11
R 10	$\text{eaq}^- + \text{O}_2^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + 2\text{OH}^-$	1.61E+11	3.57E+11	-
R 11	$\text{eaq}^- + \text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{HO}_2^-$	1.61E+11	1.78E+11	2.27E+11
R 12	$\text{H}\cdot + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{OH}\cdot$	2.15E+09	1.13E+09	1.69E+09
R 13	$\text{H}\cdot + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2\cdot$	6.06E+10	1.03E+11	2.16E+11
R 14	$\text{H}\cdot + \text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2$ (or 2OH)	2.14E+11	7.78E+10	2.27E+11
R 15	$\text{H}\cdot + \text{O}_2^- \rightarrow \text{HO}_2^-$	2.14E+11	7.78E+10	2.27E+11
R 16	$\text{OH}\cdot + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2\cdot + \text{H}_2\text{O}$	4.23E+08	5.91E+08	4.24E+08
R 17	$\text{OH}\cdot + \text{O}_2^- \rightarrow \text{OH}^- + \text{O}_2$	8.98E+10	8.97E+10	1.36E+11
R 18	$\text{OH}\cdot + \text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$	3.20E+10	3.20E+10	1.36E+11
R 19	$\text{HO}_2\cdot + \text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2$	4.10E+07	2.69E+07	1.03E+08
R 20	$\text{O}_2^- + \text{HO}_2\cdot + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2 + \text{OH}^-$	-	5.66E+08	-
R 21	$2\text{O}_2^- + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2 + 2\text{OH}^-$	-	7.02E+07	6.52E+08
R 22	$\text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow 1/2\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O}$	-	-	3.22E-01
R 22a	$\text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow 2\text{OH}\cdot$	-	2.14E-01	2.85E-01

注) 文献に記載がないものは、'-'とした。

表 3.4.2-1 (2/2) 高温での反応速度定数

No.	反応式	反応速度定数(L/mol/sec)(高温)		
		300°C AECL	300°C Sunaryo	300°C Macdonald
R 23f	$\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}^+ + \text{OH}^-$	6.52E-02	6.90E-02	2.96E-04
R 23b	$\text{H}^+ + \text{OH}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}$	1.13E+12	1.07E+12	1.64E+12
R 24f	$\text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}^+ + \text{HO}_2^-$	2.52E+01	4.15E+00	-
R 24b	$\text{H}^+ + \text{HO}_2^- \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2$	5.68E+11	6.12E+11	-
R 25f	$\text{OH}^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{HO}_2^-$	1.36E+11	1.47E+11	6.90E+09
R 25b	$\text{HO}_2^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2\text{O}_2 + \text{OH}^-$	1.76E+08	1.39E+08	1.16E+05
R 26f	$\text{OH}^- \rightarrow \text{H}^+ + \text{O}^-$	2.52E+01	4.15E+01	-
R 26b	$\text{H}^+ + \text{O}^- \rightarrow \text{OH}^-$	5.68E+11	6.12E+11	-
R 27f	$\text{OH}\cdot + \text{OH}^- \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}^-$	1.36E+11	1.47E+11	-
R 27b	$\text{O}^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{OH}\cdot + \text{OH}^-$	1.76E+08	1.39E+08	-
R 28f	$\text{HO}_2\cdot \rightarrow \text{H}^+ + \text{O}_2^-$	1.55E+05	1.98E+05	9.09E+06
R 28b	$\text{H}^+ + \text{O}_2^- \rightarrow \text{HO}_2\cdot$	5.68E+11	6.12E+11	5.68E+11
R 29f	$\text{HO}_2\cdot + \text{OH}^- \rightarrow \text{O}_2^- + \text{H}_2\text{O}$	2.87E+04	1.47E+11	-
R 29b	$\text{O}_2^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{HO}_2\cdot + \text{OH}^-$	1.36E+11	-	-
R 30f	$\text{H}\cdot \rightarrow \text{eaq}^- + \text{H}^+$	1.64E+05	1.40E+05	-
R 30b	$\text{eaq}^- + \text{H}^+ \rightarrow \text{H}\cdot$	7.11E+11	5.15E+11	2.73E+11
R 31f	$\text{H}\cdot + \text{OH}^- \rightarrow \text{eaq}^- + \text{H}_2\text{O}$	8.01E+09	4.22E+10	2.27E+08
R 31b	$\text{eaq}^- + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}\cdot + \text{OH}^-$	2.01E+03	9.94E+03	1.82E+02
R 32f	$\text{H}\cdot + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{OH}\cdot$	2.09E+03	5.77E+03	1.18E-03
R 32b	$\text{H}_2 + \text{OH}\cdot \rightarrow \text{H}\cdot + \text{H}_2\text{O}$	7.83E+08	1.40E+09	1.41E+09
R 33	$\text{OH}\cdot + \text{HO}_2^- \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2^-$	8.18E+10	-	-
R 34	$\text{O}^- + \text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{OH}^- + \text{HO}_2$	-	1.13E+10	-
R 35	$\text{O}^- + \text{HO}_2^- \rightarrow \text{OH}^- + \text{O}_2^-$	8.76E+10	-	-
R 36	$\text{O}^- + \text{H}_2 \rightarrow \text{H} + \text{OH}^-$	1.55E+09	1.75E+09	-
R 37f	$\text{O}^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3^-$	3.26E+10	3.24E+10	-
R 37b	$\text{O}^- + \text{O}_2 \leftarrow \text{O}_3^-$	1.99E+07	1.88E+07	-

注) 文献に記載がないものは、'-'とした。

表 3.4.2-2 解析に使用する線量率データ

	種類	単位	線量率
照射場 1	γ 線	W/g	$3.75 \times 10^{-3}$
	中性子線	W/g	$1.25 \times 10^{-2}$
	α 線	W/g	$1.97 \times 10^{-3}$
照射場 2	γ 線	W/g	1.5
	中性子線	W/g	5
	α 線	W/g	0.786

表 3.4.2-3 解析に使用する水質条件と水の滞在時間

項目	使用数値
① pH (at 300°C)	6.8
② ボロン濃度(ppm)	1200
③ 溶存水素濃度(cc/kg-H <sub>2</sub> O)	0.5, 1, 5, 15, 30
④ 流れにおける水の滞在時間(sec)	
・ 照射場 1	0.5
↓	↓
・ 非照射場 1	1.1
↓	↓
・ 照射場 2	0.75
↓	↓
・ 非照射場 2	(0.5)
↓	} 7.3 ↓
・ 非照射場 3	



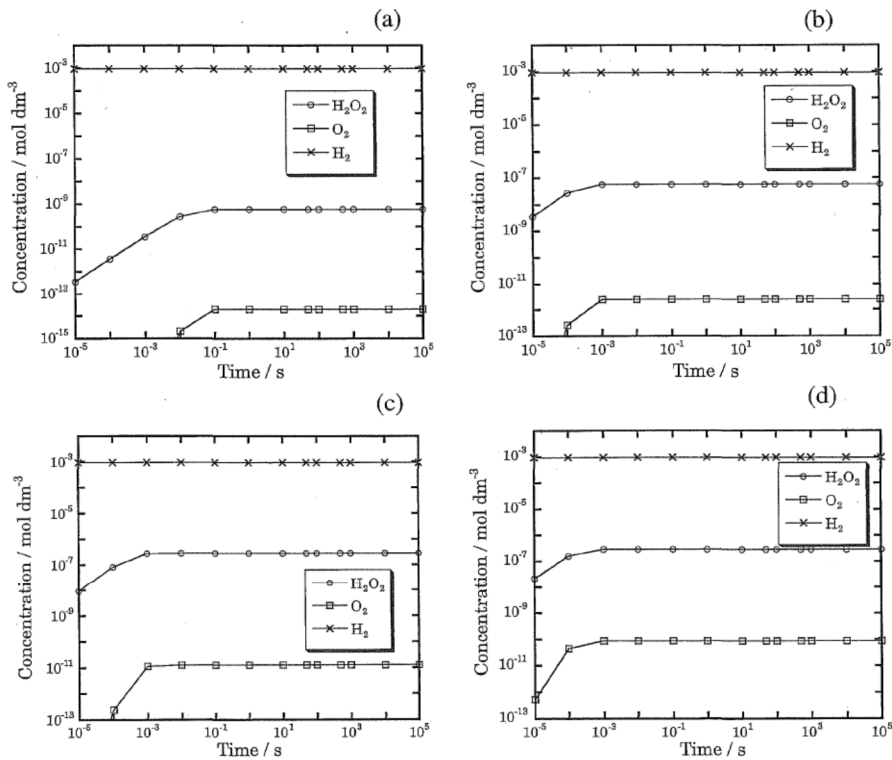


Fig. 7 Time variations of radiolytic molecular products in the presence of DH at  $30 \text{ cm}^3 \text{ kg}^{-1}$  at  $300^\circ\text{C}$ . (a)  $\gamma$ -Rays ( $1 \text{ Gy s}^{-1}$ ), (b)  $\gamma$ -rays ( $10 \text{ kGy s}^{-1}$ ), (c) fast neutrons ( $10 \text{ kGy s}^{-1}$ ), and (d)  $\gamma$ -rays ( $10 \text{ kGy s}^{-1}$ ), fast neutrons ( $10 \text{ kGy s}^{-1}$ ), and  $\alpha$ -rays ( $10 \text{ kGy s}^{-1}$ ).

図 3.4.2-1  $300^\circ\text{C}$ 、溶存水素濃度  $30 \text{ cc/kg-H}_2\text{O}$  のときの  $\text{H}_2\text{O}_2$  濃度と  $\text{O}_2$  濃度の時間変化<sup>[1]</sup>

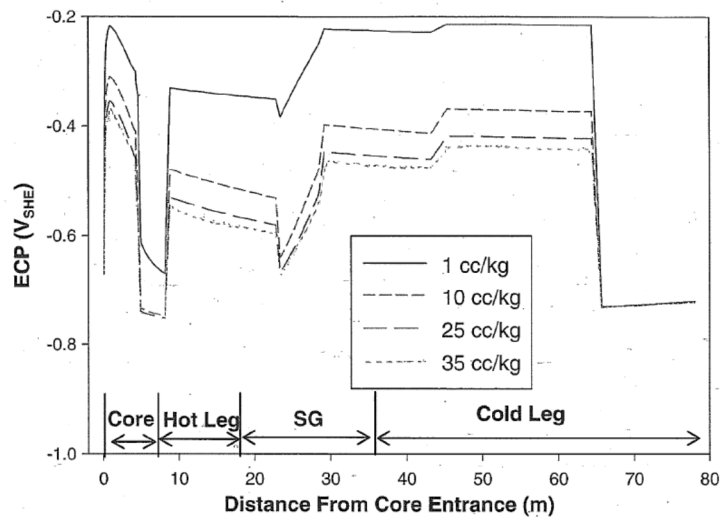


Fig. 5. Calculated ECP in the primary loop of a PWR. Constant  $\text{O}_2$  concentration is 5 ppb and  $\text{H}_2$  concentration was varied as indicated. The model uses the 'High' set of radiolytic yields.

図 3.4.2-2 溶存水素濃度を変化させたときの ECP の評価結果<sup>[2]</sup>

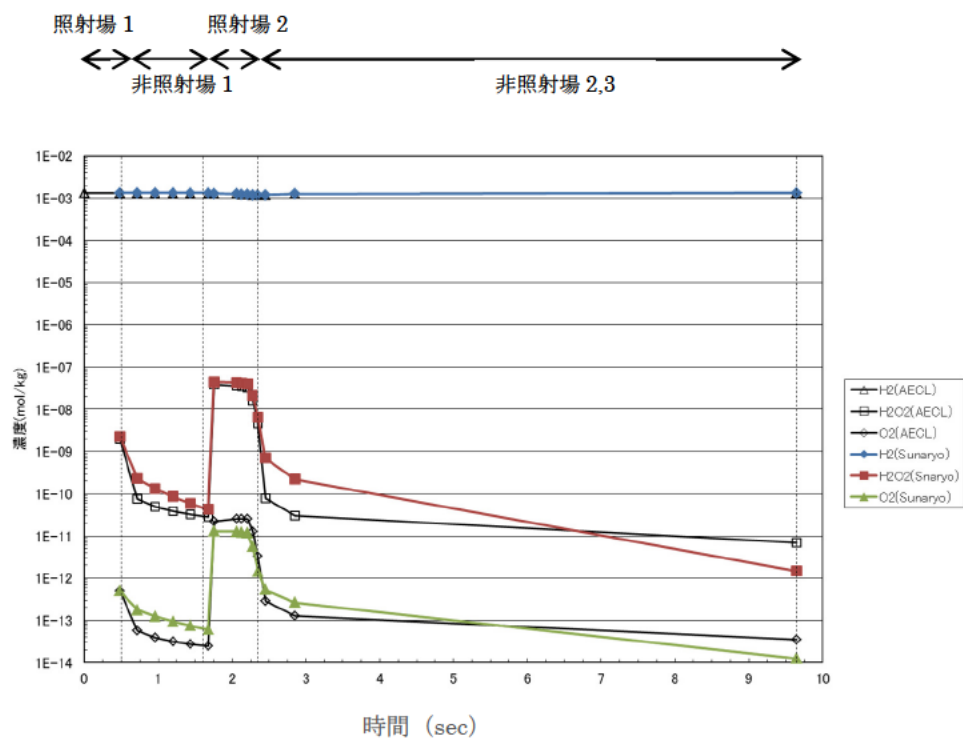


図 3.4.2-3 AECL と Sunaryo のモデルに基づく計算結果の比較(DH=30cc/kg-H<sub>2</sub>O)

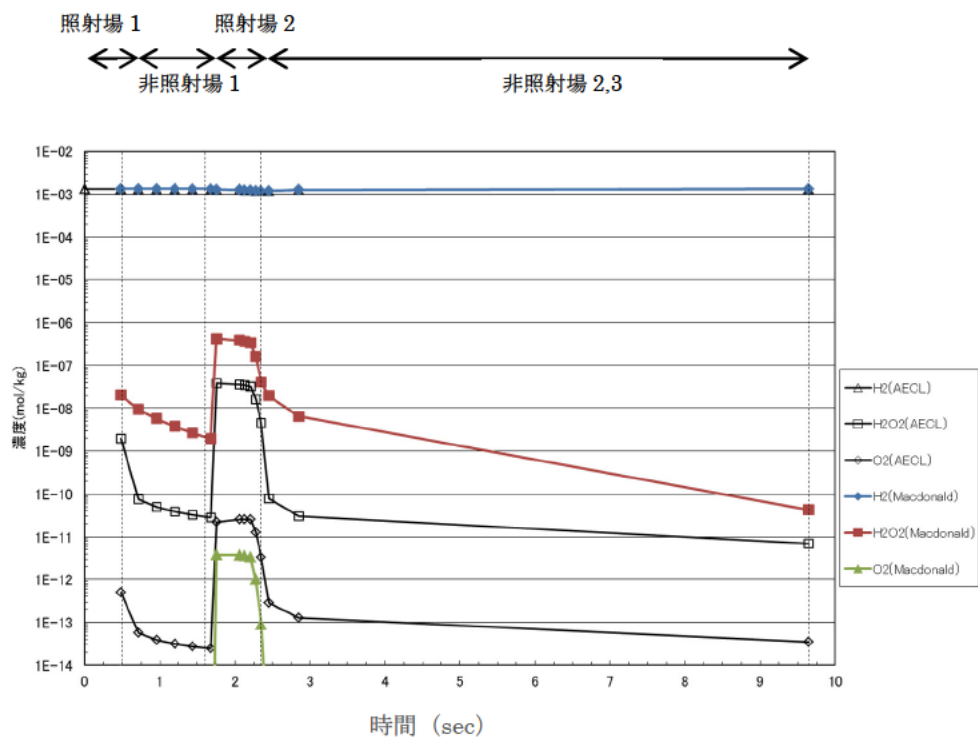


図 3.4.2-4 AECL と Macdonald のモデルに基づく計算結果の比較(DH=30cc/kg-H<sub>2</sub>O)

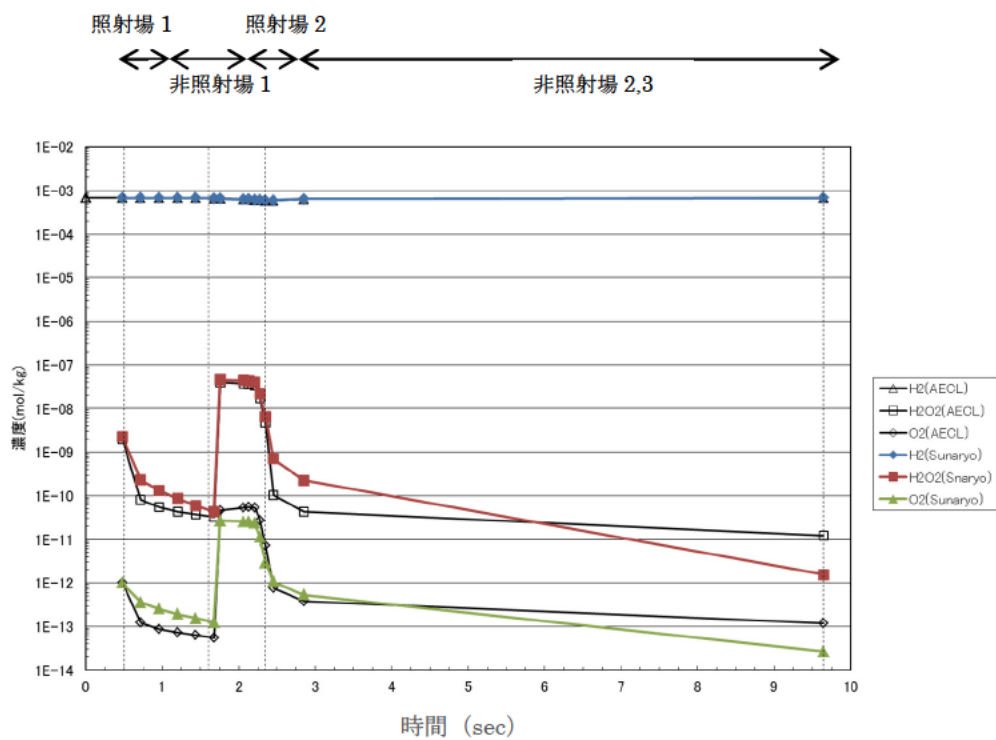


図 3.4.2-5 AECL と Sunaryo のモデルに基づく計算結果の比較(DH=15cc/kg-H<sub>2</sub>O)

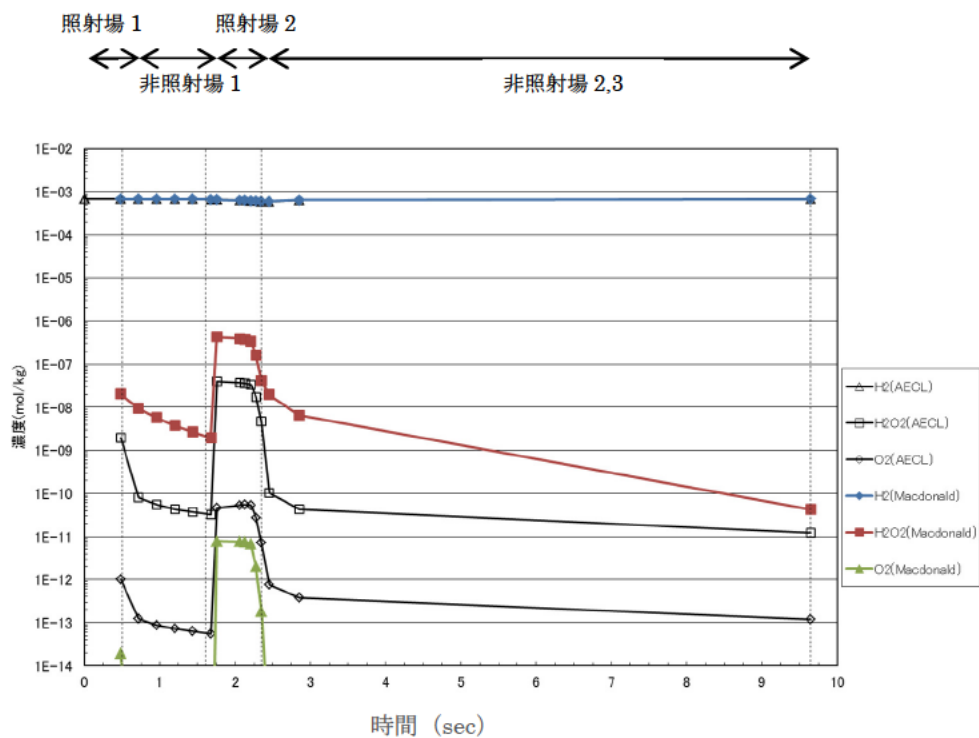


図 3.4.2-6 AECL と Macdonald のモデルに基づく計算結果の比較(DH=15cc/kg-H<sub>2</sub>O)

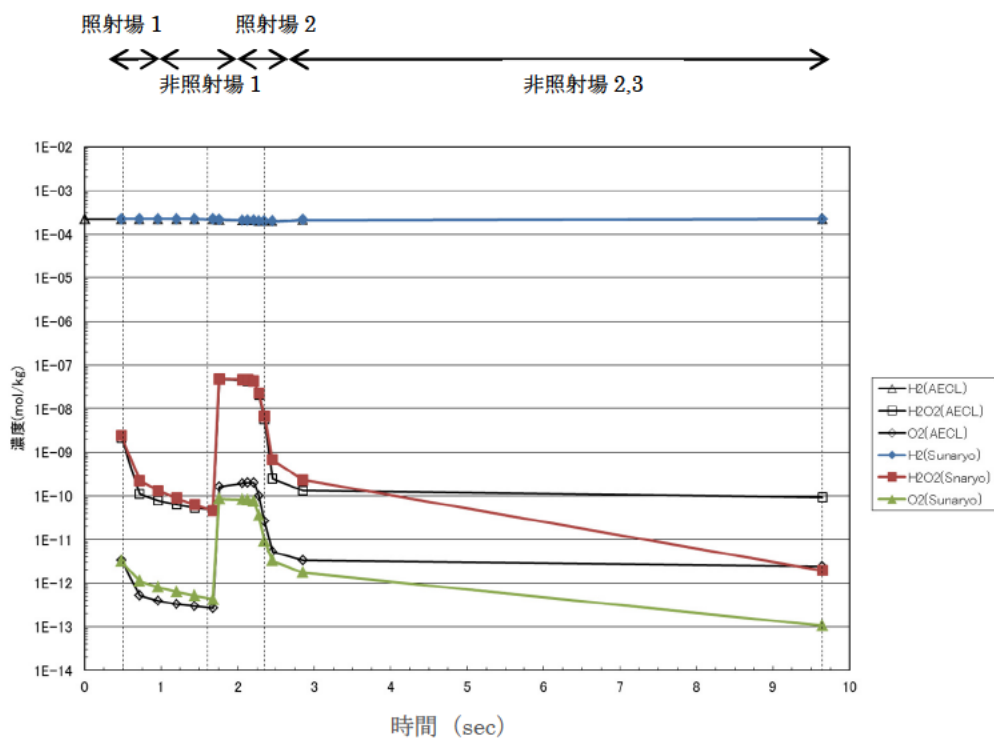


図 3.4.2-7 AECL と Sunaryo のモデルに基づく計算結果の比較(DH=5cc/kg-H<sub>2</sub>O)

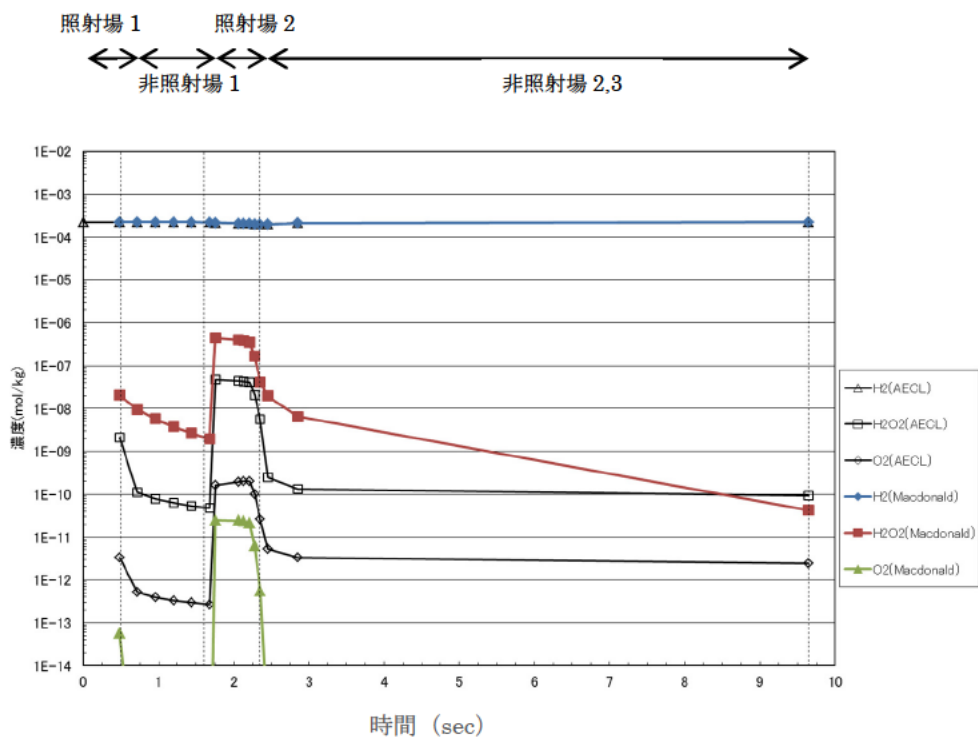


図 3.4.2-8 AECL と Macdonald のモデルに基づく計算結果の比較(DH=5cc/kg-H<sub>2</sub>O)