

放射線照射環境下の腐食現象の解明に関する研究

Study for mechanism of corrosion under irradiation environments

佐藤智徳¹⁾ 端邦樹¹⁾ 石島暖大¹⁾ 上野文義¹⁾ 加治芳行¹⁾

Tomonori Sato Kuniki Hata Yasuhiro Ishijima Fumiyoshi Ueno Yoshiyuki Kaji

井上博之²⁾ 多田英司³⁾ 阿部博志⁴⁾ 秋山英二⁴⁾

Hiroyuki Inoue Eiji Tada Hiroshi Abe Eiji Akiyama

田口光正⁵⁾ 清藤一⁵⁾

Mitsumasa Taguchi Hajime Seito

¹⁾JAEA ²⁾阪府大 ³⁾東工大 ⁴⁾東北大 ⁵⁾量研

(概要)

福島第一原発の廃炉の安定的な実施において重要な知見である、放射線照射下腐食データベース構築のため、放射線照射下腐食試験および試験後の各種分析が可能な試験環境を整備した。また、鉄イオンが存在する条件下では、ガンマ線照射により溶液の pH が低下すること、過酸化水素濃度や水素濃度が線量の増加に伴い増加することを確認した。ホウ酸塩及び NaCl を含む溶液でのガンマ線照射下腐食試験から、ホウ酸塩が増加するにしたがって、腐食形態が全面腐食から局部腐食、不働態に変化すること、塩化物イオンが増加するにしたがって、脱不働態化することがわかった。また、希釈人工海水に炭素鋼試験片を全浸漬、および半浸漬させた条件下でガンマ線照射下腐食試験を実施し、半浸漬、特に喫水部での腐食速度が全浸漬条件よりも大きく、液滴落下条件も含めて、ガンマ線照射下では非照射下よりもさらに腐食速度が大きくなることがわかった。

キーワード：福島第一原発、腐食、放射線、ラジオリシス、データベース構築

1. 目的¹⁾

福島第一原子力発電所(1F)においては、①重要な構造物を倒壊させない、②冷却系配管の流量を維持する、③放射性物質のバウンダリ機能を有している原子炉格納容器(PCV)等からの漏えいを防止する、ことが重要である。これらに対して影響する現象の1つは、腐食であるが、腐食反応を律速する環境要因に関しては、現状十分にデータが得られている訳ではなく、また、作業の進展に伴い時々刻々と変化し得る。そこで、1F 廃炉で必要となるラジオリシスデータと構造材料の腐食データを取得することを主要な目的とする。本研究でターゲットとする腐食環境領域を図1に示す。

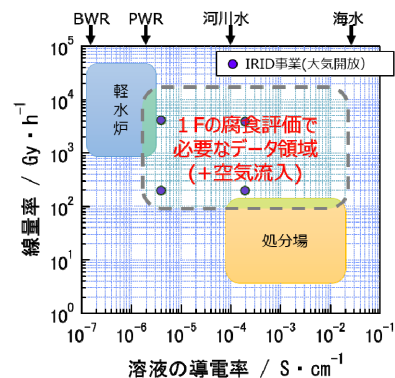


図1 1Fで想定される腐食環境領域

2. 実施内容

2.1 ガンマ線照射下腐食試験環境の整備¹⁾

照射下腐食に関するデータベース構築のためには、照射下試験によるデータ取得が不可欠である。ガンマ線照射下での腐食試験後の試験液中には、ラジオリシス生成物と腐食生成物が混在するため、腐食生成物の1つである溶出鉄、酸化鉄などが、過酸化水素分析を妨害してしまう。そのため、共存腐食生成物を除去し、過酸化水素を分析する分析手法を確立した。

2.2 ラジオリシスデータセット整備及びデータベース化²⁾

ラジオリシスへの影響があると考えられる鉄イオンを対象とし、ガンマ線照射下での水分分解生成物発生量を測定した。並行して鉄イオンを含む水溶液のラジオリシス挙動を予測するシミュレーションを既存のデータセットを用いて実施し、実験データとの比較によりデータセットを検証した。結果を図2に示す。照射後減衰を考慮しない場合、計算値は測定値と近い値を示すが、照射後の減衰を考慮すると計算値は測定値を過大に評価した。図に示すように、過酸化水素は照射後に大きく減衰しており、その主な原因は Fe^{2+} ($\text{Fe}^{2+} +$

$\text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{Fe}^{3+} + \text{OH}^- + \cdot\text{OH}$ であると考えられる。この反応は過酸化水素の挙動に大きく影響を与えることは感度解析からも確認されており、詳細な値の確認が必要であり、今後の課題である。

2.3 炭素鋼の脱不動態化におよぼすガンマ線照射の影響評価³⁾

再臨界防止として利用が検討されているホウ酸塩は、水中に高濃度で添加すると、炭素鋼の不動態化を引き起こし、それにより炭素鋼の全面腐食を抑制するが、一方で、脱不動態化による局部腐食発生リスクがある。この脱不動態化におけるガンマ線照射の影響を明らかにするために、ガンマ線照射環境下における炭素鋼の腐食電位を測定する電気化学計測システムを利用し、種々の濃度の塩化物イオンを含むホウ酸ナトリウム水溶液中において、共通試験片の浸漬試験を実施した。測定された腐食電位と表面観察・分析結果をもとに、ガンマ線照射環境下における炭素鋼の腐食挙動、脱不動態化挙動について整理し、腐食特性マップを作成した。図3に示す腐食特性マップより、ホウ酸塩が増加するにしたがって、腐食形態が全面腐食から局部腐食、不動態に変化すること、塩化物イオンが増加するにしたがって、脱不動態化することがわかった。

2.4 湿潤・乾燥環境でのガンマ線照射による腐食影響評価⁴⁾

格納容器周辺を想定した腐食環境では、湿潤で水滴がしたり落ちる部位、水蒸気結露による水膜や喫水面近傍における濡れ乾き条件等に、ガンマ線照射が重畳することが考えられるが、当該環境における腐食データは極めて限られている。そこで、湿潤・乾燥環境でのガンマ線照射による腐食影響を評価するために、全浸漬、半浸漬、気中、上部からの液滴落下条件における腐食速度に及ぼすガンマ線の影響に関するデータを取得した。実験に使用した腐食試験セル概要を図4に示す。試験片は炭素鋼とし、50℃、20000倍希釈人工海水を用いて試験を実施した。腐食速度評価結果を表1に示す。半浸漬、特に喫水部での腐食速度が全浸漬条件よりも大きく、液滴落下条件も含めて、ガンマ線照射下では非照射下よりもさらに腐食速度が大きくなることがわかった。

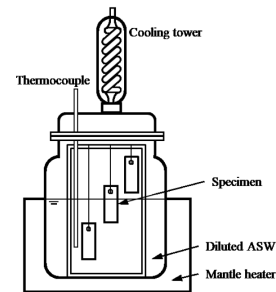


図4 腐食試験セル

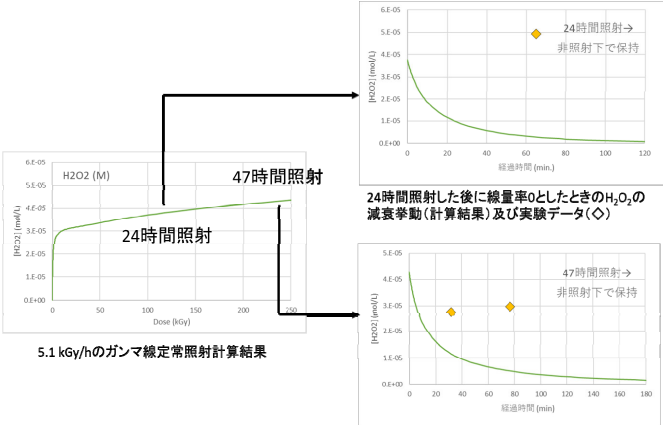


図2 Ar脱気した0.1 mM FeSO₄水溶液に5.1 kGy/hでガンマ線を照射した時のH₂O₂濃度のラジオリシス計算(—)及び実験結果(◇)

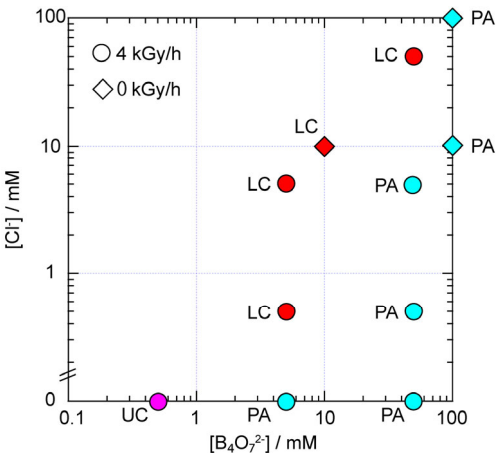


図3 各種溶液における照射、非照射試験から求められた腐食形態マップ
(○印：照射環境(4 kGy/h)、◇印：非照射環境、UC：全面腐食、LC：局部腐食、PA：不動態)

表1 全浸漬、半浸漬での腐食速度測定結果

Corrosion rate [mm/year]	0 kGy/h	2.76 kGy/h
Full immersion (Weight loss average)	0.255	0.421
Partial immersion (Weight loss average)	0.280	0.561
At water line (Section average)	0.759	1.02
At water line (Section maximum)	1.22	2.02

3. まとめと今後の展開

1Fの廃炉の安定的な実施において重要な知見である、放射線照射下腐食データベース構築のため、放射線照射下腐食試験および試験後の各種分析が可能な試験環境を整備した。腐食生成物混在環境での過酸化水

素分析法を確立した。鉄イオンが存在する条件下での照射試験を実施し、解析との比較を行った。照射後の過酸化水素の減衰を考慮すると、解析結果は試験結果より小さくなるが、減衰を考慮しない場合には解析結果と実測とが比較的近い値となることから、過酸化水素濃度において鉄イオンの影響、とくに照射後の減衰の詳細な評価が必要であることが明確となった。ホウ酸塩及び NaCl を含む溶液でのガンマ線照射下腐食試験から、ホウ酸塩が増加するにしたがって、腐食形態が全面腐食から局部腐食、不動態に変化すること、塩化物イオンが増加するにしたがって、脱不動態化することがわかった。さらに、希釈人工海水に炭素鋼試験片を全浸漬および半浸漬させた条件下でガンマ線照射下腐食試験を実施し、半浸漬、特に喫水部での腐食速度が全浸漬条件よりも大きく、液滴落下条件も含めて、ガンマ線照射下では非照射下よりもさらに腐食速度が大きくなることがわかった。今後は、放射線照射下腐食挙動に関する知見をさらに拡充していき、1F の腐食評価に利用可能なデータベースを構築する。

4. 引用(参照)文献等

- 1) 加治ほか、「放射線環境下での腐食データベースの構築 (1)全体概要」 第66回材料と環境討論会原子力学会 2019 年春の年会講演集 A-307
- 2) 端ほか、「放射線環境下での腐食データベースの構築 (2)炉内滞留水環境を考慮したラジオリシスデータセットの構築」 第66回材料と環境討論会原子力学会 2019 年春の年会講演集 A-308
- 3) 多田ほか、「放射線環境下での腐食データベースの構築 (4)塩化物イオンを含むホウ酸塩環境中における炭素鋼の腐食挙動におよぼすガンマ線照射の影響」 第66回材料と環境討論会原子力学会 2019 年春の年会講演集 A-310
- 4) 有賀ほか、「放射線環境下での腐食データベースの構築 (3)喫水部における炭素鋼の腐食速度に及ぼすガンマ線照射の影響評価」 第66回材料と環境討論会原子力学会 2019 年春の年会講演集 A-309