

PWR 一次冷却水環境の照射下での水素注入効果の評価

8. ラジオリシス評価に及ぼす“ $\text{OH} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ ”の順反応及び逆反応の影響

The effects of hydrogen addition on the corrosive conditions of PWR primary coolant under irradiation

8. Evaluation of the effects of $\text{OH} + \text{H} \rightleftharpoons \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ reaction and its back reaction on water radiolysis

* 端 邦樹¹, 内田 俊介¹, 埴 悟史¹, 知見 康弘¹, 佐藤 智徳¹

¹原子力機構

JAEA において開発した腐食電位解析コードにおいて、ラジオリシスによる水分解生成物の発生量を精度よく見積もるため、最新知見を反映させたラジオリシスデータセットの整備を進めた。本稿では、 $\text{OH} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ の順反応及び逆反応の速度定数の変化が過酸化水素の発生量に与える影響を報告する。

キーワード： PWR, 水の放射線分解, ラジオリシス解析, 腐食電位解析, OH ラジカル

1. 緒言

JAEA では、これまで、軽水炉の一次系冷却水の腐食電位 (ECP) を推定する解析コードを開発してきた。その一環として、炉心領域でのラジオリシスにおける化学反応の速度定数が過酸化水素 (H_2O_2) 等の水分解生成物の発生量に与える影響の評価も進めている。前回の発表では、ヒドロキシルラジカルと水素の反応 ($\text{OH} + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{H} + \text{H}_2\text{O}$ 、以下「反応 1」という) の逆反応に対して、最近の報告値 ($1.6 \times 10^4 \text{ L/mol s}$ [1]) を取り入れることで H_2O_2 濃度が顕著に増加することを示した。また、 H_2O_2 濃度の変化に伴い ECP も変化するため、既往実験データとの整合性を得る点から他の速度定数も最適化する必要があることがわかった。本稿では、反応 1 の順反応に着目し、速度定数の変化と H_2O_2 発生量の関係を調べた結果を報告する。

2. ラジオリシス解析

JAEA で整備したラジオリシス解析コードを用いた [2]。PWR 一次系冷却水条件とし、反応 1 の順反応の速度定数 (k_f) を、これまでに使用してきた $1.4 \times 10^9 \text{ L/mol s}$ に対して 1/10 から 10 倍の範囲で変化させた。逆反応の速度定数 (k_b) も報告値の範囲で変化させた [1, 3]。

3. 解析結果

図 1 (a) は k_b を $1.6 \times 10^4 \text{ L/mol s}$ としたときの水素 (H_2) 添加量と発生した H_2O_2 の濃度について、 k_f を変化させて計算した時の結果である。速度定数の変化は、 H_2O_2 濃度に大きな影響を与えた。Elliot らの報告では k_b ($1.33 \times 10^3 \text{ L/mol s}$) に対して、 k_f として $8 \times 10^8 \text{ L/mol s}$ 程度の値が提唱されていた [3]。この順反応の速度定数を採用すると、赤い破線で示した $7 \times 10^8 \text{ L/mol s}$ に近い結果を示すことになる。図 2 は k_f と k_b を同時に変化させ、反応速度定数の比に相当する平衡定数を揃えた時の結果である。この場合、解析結果は速度定数の変化にあまり依存しなかった。

4. 結論

本稿では、ECP 解析コードにおけるラジオリシス解析に最新知見を反映させることを目的に、反応 1 の速度定数が H_2O_2 濃度に与える影響を詳細に調べた。 H_2O_2 濃度は k_f や k_b の変化に対して大きく変化した。平衡定数が一定であれば、 H_2O_2 濃度に対する速度定数の変化の影響は小さいことがわかった。 k_b が更新されて以降、 k_f の更新に関する報告はまだ無いが、 H_2O_2 発生量への影響の大きさの点から、 k_f についても再評価が必要であると考えられる。

【参考文献】 [1] Y. Muroya, et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 19, 30834–30841 (2017). [2] 端ほか、日本原子力学会 2022 春の年会、1J05. [3] A. Elliot and D. Bartels, AECL report 153-127160-450-001 (2009).

*Kuniki Hata¹, Shunsuke Uchida¹, Satoshi Hanawa¹, Yasuhiro Chimi¹ and Tomonori Satoh¹

¹JAEA

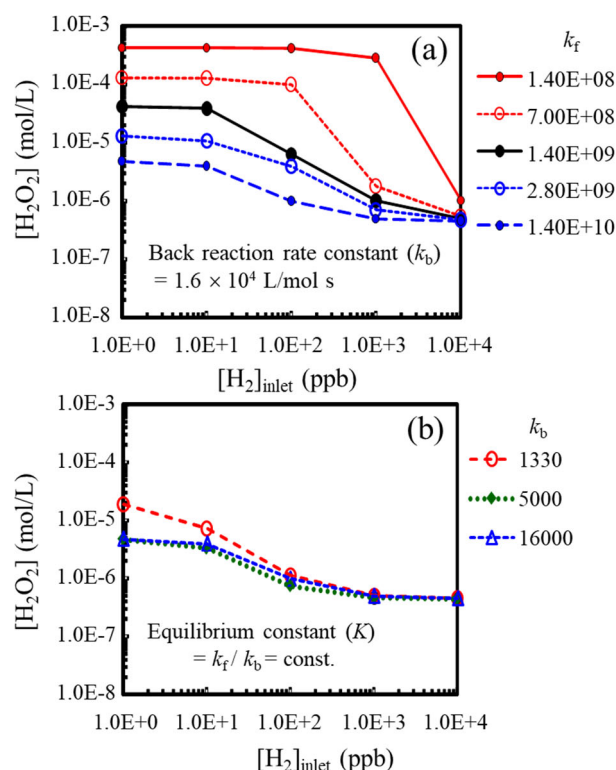


図 1 H_2 添加量に対する H_2O_2 濃度の変化。(a) 逆反応速度定数を固定したときの順反応速度定数の影響。(b) 平衡定数を固定した時の逆反応速度定数の影響。