

過酷事故向け熱電対式原子炉水位計測システム及び 水素濃度検出システムの開発

Water Level Measurement System in Reactor Pressure Vessel of BWR and Hydrogen Concentration Monitoring System for Severe Accident

(株)東芝	黒田 英彦	Hidehiko KURODA	Nonmember
(株)東芝	岡崎 幸基	Koki OKAZAKI	Nonmember
(株)東芝	白石 藤雄	Fujio SHIRAISHI	Nonmember
(株)東芝	見城 弘章	Hiroaki KENJYO	Nonmember
(株)東芝	磯田 浩一郎	Koichiro ISODA	Nonmember

TEPCO's Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident caused severe accident to lose functions of many instrumentation systems. As a result, many important plant parameters couldn't be monitored. In order to monitor plant parameters in the case of severe accident, new instrumentation systems available in the severe conditions are being developed. Water level in reactor pressure vessel and hydrogen concentration in primary containment vessel are one of the most important parameters. Performance test results about water level measurement sensor and hydrogen sensor in severe environmental conditions are described.

Keywords: Water Level Measurement, Hydrogen Concentration Monitoring, Differential Thermocouple, Hydrogen Storage Alloys, Thermal Conductivity, Electric Resistance

1. 緒言

2011年3月に発生した東日本大震災で被災した福島第一原子力発電所では、設計基準事象を超える過酷事故が発生して多くの計装機能を喪失し、事故対応が困難になった。そこで、安全対策の強化を目的として、過酷事故時の原子炉や格納容器、使用済燃料プールを対象とし、以下の5つのシステムを開発している。

- ・原子炉水位計測システム
- ・水素濃度検出システム
- ・PCV監視計装システム（電極型温度計式水位計）
- ・PCV監視計装システム（CAMS放射線モニタ）
- ・使用済燃料プール計装システム

原子炉水位計については、過酷環境に適用可能な原子炉水位計計測システムとして、差動型熱電対式、超音波

式、放射線式の3方式から構成される原子炉水位計測システムを開発している。差動型熱電対式は通常運転時から燃料溶融が始まるまで継続して原子炉水位を計測し、超音波式は燃料溶融から原子炉底部に溶融堆積するまでの原子炉水位を計測する。放射線式は燃料溶融の有無に関わらず計測を多様化するための水位計である。差動型熱電対式水位計は、通常時の炉心の出力分布を計測するために製品化済みのガンマサーモメータを基本構造とする。これまでに大気圧の沸騰状態で熱伝達率の差から気中と水中が判断できることを試験で確認した。

他方、水素濃度検出システムについては、過酷環境に適用でき、水素吸蔵合金の抵抗変化から濃度を定量する水素吸蔵材料式の水素センサを開発している。これまでに水素吸蔵合金の材料について検討を行い、高温環境や水蒸気雰囲気などに適用可能な水素吸蔵合金としてパラジウムが有効であることを試験で確認した。

過酷事故環境に適用可能な差動型熱電対式水位計および水素吸蔵材料式水素センサについて、開発状況や試験結果について報告する。

2. 差動型熱電対式原子炉水位計測システム

2.1 原子炉水位計の要求仕様

過酷事故時における原子炉水位の計測目的は、炉心燃料の冷却状態の監視である。過酷事故時の原子炉内は、溶融した炉心燃料で冷却水が高温となり、さらに水蒸気雰囲気となる。計測範囲は、炉心燃料が健全な位置にある時の有効燃料上端から、炉心燃料が溶融して堆積する原子炉底部までに設定する必要がある。要求仕様については、別途まとめている SA 計装に要求される環境条件[1]に従い、原子炉圧力容器が損傷する SA2 に対する耐環境性を有する必要がある。詳細は以下のとおりである。

- 計測レンジ: 有効燃料上端から原子炉底部
(差動型熱電対式は事故初期を監視するため、有効燃料上端から有効燃料下端までとする)
- 計測精度: $\pm 1\text{m}$
- 耐熱性: (原子炉内) 冷却水 302°C 、蒸気 500°C
(格納容器内) 300°C
- 耐圧性: (原子炉内) 8.62MPa 、(格納容器内) 1.0MPa
- 耐放射性: (格納容器内) 5MGy
- 使用期間: 72 時間

2.2 差動型熱電対式原子炉水位計のシステム構成

(1) 測定原理

測定原理を Fig.1 に示す。水位計の測温点は、ヒータおよび差動型熱電対で構成される。差動型熱電対の 2 つの接点の一方は、外部との間に断熱層を持つ構造である。断熱層がある接点は、ヒータ発熱時の外部冷却材への熱伝導が小さく温度が高くなることから温接点と呼ばれ、断熱層がない接点は、熱伝導が大きく外部冷却材と同じ温度となることから冷接点と呼ばれる。

温接点は断熱層があるため、外部が水中や気中であることに問わずヒータの発熱で温度が上昇する。他方、冷接点は外部が気中の時には気体の熱伝達率が小さく、冷接点は温接点と同様に温度が高くなって両接点の温度差は小さい。しかし、外部が水中の時は水の熱伝達率が大きいことから冷接点の温度が上昇しないため、両接点に大きな温度差が生じる。

差動型熱電対には温度差により起電力が生じる。ヒータを加熱した際の気中及び水中での差動型熱電対の出力電圧の変化を Fig.2 に示す。外部が気中の時は両接点の温度差が小さいことから温度差に比例する出力電圧の波高値は小さい。逆に、外部が水中の時は両接点に大きな温

度差が生じ、温度差に比例する出力電圧の波高値は大きくなる。差動型熱電対式水位計は、出力電圧の波高値の違いから水中と気中を判定する。

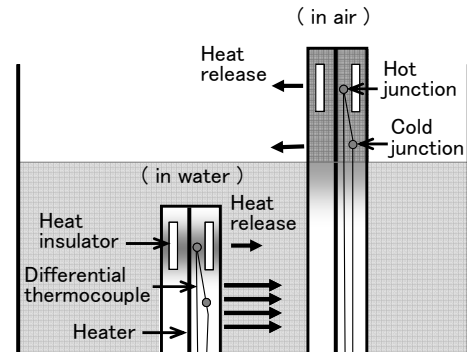


Fig.1 Measurement principle

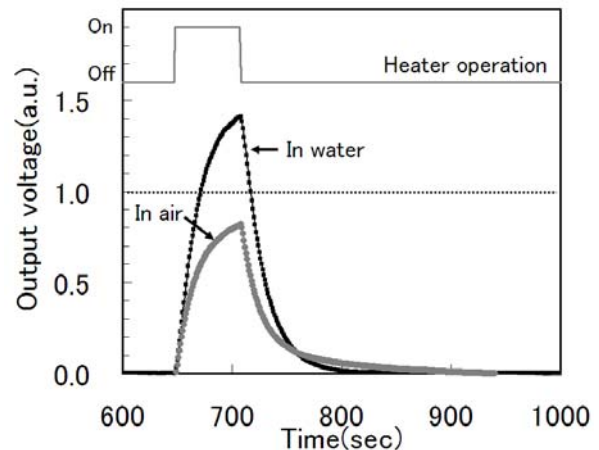


Fig.2 Transient response in water and air

(2) システム構成

システム構成を Fig.3 に示す。差動型熱電対式水位計を炉心内部に配置し、出力電圧をケーブルで中央制御室へ伝送する。中央制御室に設置した信号処理装置で、ヒータ制御、水位判定及び表示/記録を行う。消費電力を抑えるため、ヒータ加熱を間欠的に行う (パルスヒーティング) 方式を採用する。

差動型熱電対式水位計は LPRM (Local Power Range Monitor: 局部領域出力モニタ) 検出器集合体内に設置し、1本の水位計で9個の測温点を上下方向に配置することが可能である。LPRM 検出器集合体には複数の LPRM と差動型熱電対式水位計が束ねられており、原子炉底部の案内管から炉心に挿入される。

差動型熱電対式水位計は、炉心燃料の核分裂反応で発生するガンマ線による発熱から通常プラント運転時の炉

心出力分布を求めるガンマサーモメータと基本構造が同じである。ガンマサーモメータは実機試験を終えており、製品化を完了している。

試験用の水位計の構造を Fig.4 に示す。A-A 断面図に示すように直径 7.87mm の水位計の中心にヒータが設置され、ヒータを取り囲むように差動型熱電対が設置される。A-A 断面図は冷接点であり、差動型熱電対の外側は熱伝導率の高いコアチューブで被覆される。B-B 断面図は温接点であり、コアチューブの外側にアルゴンガスを封入した断熱層がある。

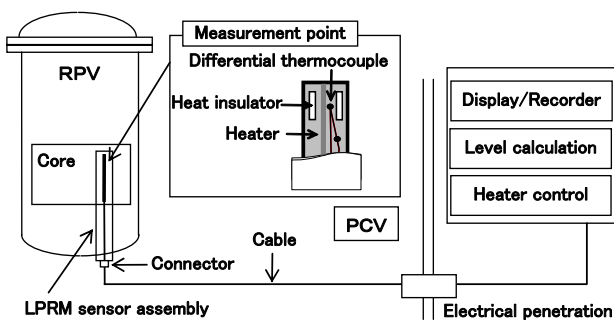


Fig.3 Water Level Measurement System in Reactor Pressure Vessel of BWR

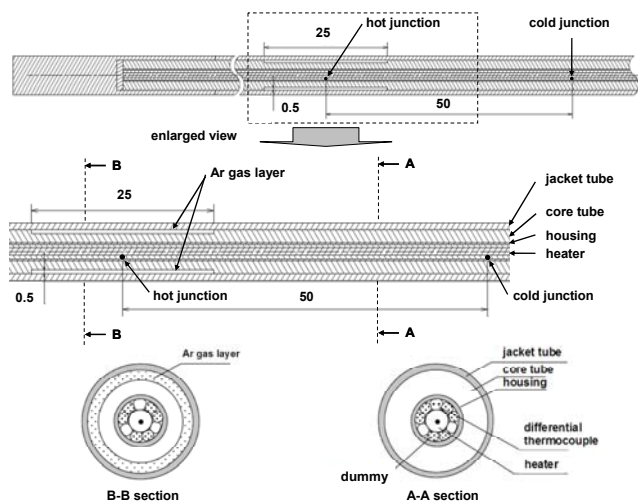


Fig.4 Water level measurement sensor

2.3 基礎試験

(1) 沸騰環境の試験

原子炉内の冷却水は高温状態および沸騰状態にあり、このような環境では水中と蒸気中の熱伝達率差が小さくなるため、水中と蒸気中の判定が困難になる可能性がある。そこで、沸騰状態においても、水中と蒸気中の差動型熱電対の出力電圧に差があることを確認した。

試験では、ヒータの加熱時間を 40 秒とし、大気圧環境において沸騰水中と蒸気中との差動型熱電対式の出力電圧の時間変化を測定した。測温点は 3 点で、X1、X2 は水中、X3 は蒸気中である。

試験結果を Fig.5 に示す。図には、2 回連続して測定した時の沸騰水中と蒸気中での出力電圧の変化を示している。沸騰水中の水中と蒸気中の出力電圧は、ヒータ加熱で上昇を開始して加熱停止時に最大となり、その後減衰する。水中の X1、X2 はほぼ同一の測定値となった。水中の出力電圧の波高値は 1.3mV であり、蒸気中の波高値 0.8mV に比べて大きく、沸騰状態でも出力電圧に差があることがわかった。閾値を 1.0mV 程度に設定することで沸騰水中と蒸気中を判定できる。なお、蒸気中の 125 秒、220 秒、250 秒などにパルス状の電圧上昇が見られる。これは沸騰で発生した蒸気が凝縮して水位計の表面を流れ落ち、測温点の冷接点を通してヒータ熱を吸収することで、瞬間的に温接点との温度差が大きくなるのが原因と推定している。

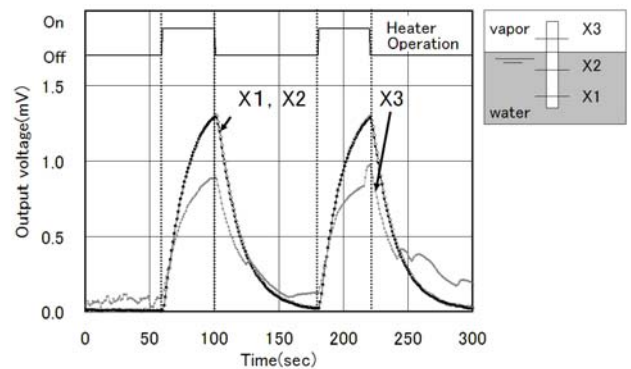


Fig.5 Voltage response to pulse heating in the atmosphere

(2) 高温高圧環境の試験

過酷事故時の原子炉内で想定される圧力 7.5MPa、温度 290°C の高温高圧環境で水位計測が可能であることを確認した。試験では圧力容器内に試験用の水位計を設置し、容器内の圧力を 7.5MPa に設定することで過酷事故時の高温高圧環境を模擬した。ヒータを 60 秒間加熱し、3 つの測定点について熱起電力の時間変化を測定した。測定点が水中の時の試験結果を Fig.6、気中の時の試験結果を Fig.7 にそれぞれ示す。水中と気中の出力電圧は、沸騰水中時と同様、ヒータ加熱で上昇を開始して加熱停止時に最大となり、その後減衰する。水中の波高値の 3 つの平均は約 1.2mV であり、気中の

波高値の平均0.8mVに比べて大きい。以上より高温高圧環境でも、蒸気中と水中の出力電圧に差があることがわかった。閾値を1.0mV程度に設定することで、高温高圧環境でも沸騰水中と蒸気中の判定が可能である。なお、Fig.7の時間30秒に見られるパルス状の電圧上昇は、Fig.5と同様、蒸気の凝縮水で冷接点のヒータ熱が吸収され、瞬間的に温接点との温度差が大きくなるのが原因と推定している。

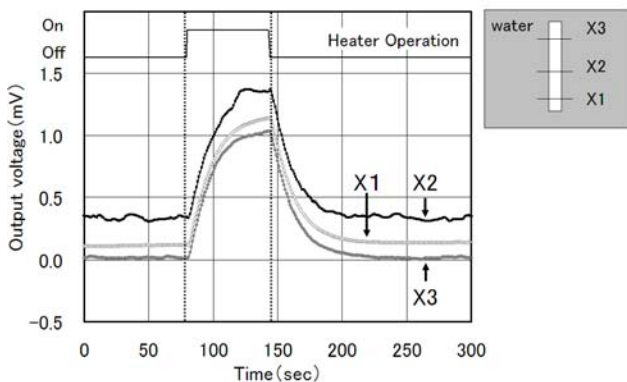


Fig.6 Voltage response to pulse heating in water at 290°C

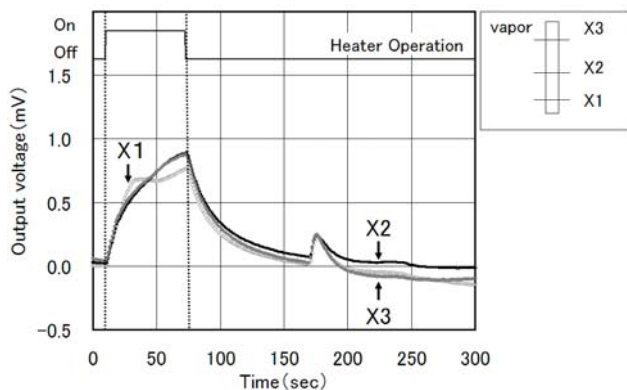


Fig.7 Voltage response to pulse heating in vapor at 7.5MPa

3. 水素吸蔵材料式水素濃度検出システム

3.1 水素濃度検出システムの要求仕様

格納容器内の水素濃度計測の目的は、高温になった炉心燃料や燃料被覆管が水蒸気と接触することで発生する水素の監視である。この場合、格納容器内に堆積した炉心燃料に冷却水が接触することで高温の水蒸気雰囲気となる。要求仕様については、別途まとめているSA計装に要求される環境条件[1]に従い、格納容器が損傷するSA3a

に対する耐環境性を有する必要がある。詳細は以下のとおりである。

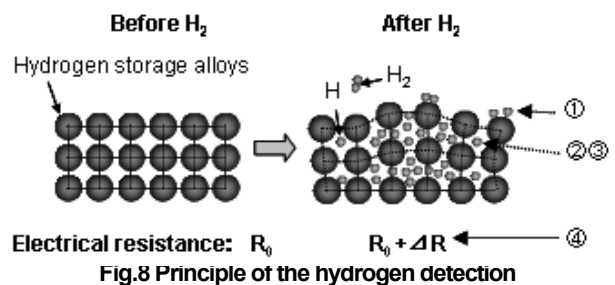
- ・ 計測レンジ：0~30vol.%
- ・ 計測精度：±2%F.S.
- ・ 応答時間：40秒以下（90%応答）
- ・ 耐熱性：（格納容器内）蒸気700°C
- ・ 耐圧性：（格納容器内）1.0MPa
- ・ 耐放射性：（格納容器内）5MGy
- ・ 使用期間：72時間

3.2 水素濃度検出システムの構成

(1) 測定原理

水素吸蔵合金が水素を吸蔵すると電気抵抗が増加する性質を利用して水素濃度を計測する。メカニズムをFig.8に示す。[2][3]

- ①水素分子（H₂）が水素吸蔵合金の表面に吸着、解離して水素原子（H）を生成する。
- ②水素原子が水素吸蔵合金の内部へ拡散し、格子の空隙に侵入し、固溶体を形成する。
- ③水素原子のポテンシャルと、固溶した水素原子によって生じた格子の歪みで自由電子が散乱される。
- ④自由電子の散乱で水素吸蔵合金の比抵抗が増加する。



水素分子の分圧と金属中の水素原子密度との間には、α相（水素原子が固溶している状態）の場合、式3-1に示すジューバルツの法則が成立し、水素原子密度は水素分圧の1/2乗に比例する。

$$\chi \propto \sqrt{P} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta H_s}{R_{const} T}\right) \quad (\chi \ll 1) \quad \text{式3-1}$$

ここで、 χ ：水素吸蔵合金中の水素原子密度、 P ：水素分圧、 ΔH_s ：溶解熱、 R_{const} ：気体定数、 T ：絶対温度である。さらに、 α 相では水素原子密度が抵抗の変化率に比例する[4]ことから、次式が成立する。

$$\frac{R - R_0}{R_0} = \frac{\Delta R}{R_0} \propto \sqrt{P} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta H_s}{R_{const} T}\right) \quad \text{式3-2}$$

ここで、 R ：水素吸蔵後の水素吸蔵合金の抵抗、 R_0 ：水素吸蔵前の水素吸蔵合金の抵抗、 $\Delta R = R - R_0$ である。抵抗変化率（ $\Delta R/R_0$ ）を測定することで水素分圧を求めることができる。得られた水素分圧と絶対圧から水素濃度を算出する。

(2) システム構成

システム構成を Fig.9 に示す。水素吸蔵材料式水素センサを格納容器内に配置し、抵抗値を中央制御室に設置した測定装置で計測する。また、機械式等の圧力センサで格納容器内の全圧を計測する。計測した抵抗値と全圧から水素濃度を算出し、表示/記録を行う。

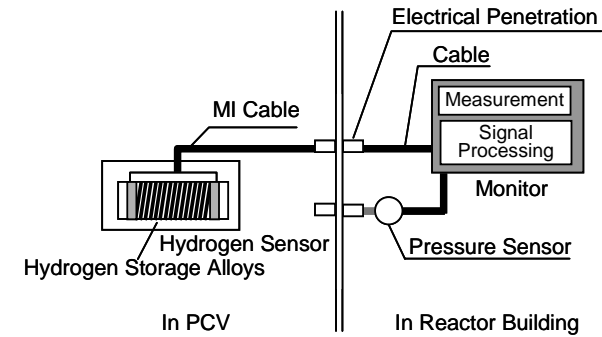


Fig.9 Configuration of hydrogen concentration measurement system in primary containment vessel

3.3 基礎試験

水素センサは格納容器内に設置されるため、過酷事故時には高温高湿の雰囲気中に晒される。このため、温度及び水蒸気が水素センサに及ぼす影響について、以下の項目を試験により評価した。

- (1) 抵抗変化率の水素分圧依存性、温度依存性
- (2) 抵抗変化率の水蒸気分圧依存性

試作した水素センサの構造及び外観を Fig.10 に示す。水素吸蔵合金として Pd (パラジウム) を採用し、直径 $50\mu\text{m}$ 、長さ 1.9m の Pd ワイヤを外径 1cm のアルミナ管に巻きつける構造とした。Pd ワイヤ同士の接触を防止するため石英を主成分とするグラスファイバを間に巻き、Pd ワイヤの端部にリード線 (Ni、直径 0.5mm) を圧着で接合した。また、試験装置概略図を Fig.11 に示す。水素センサを温度制御が可能なチェンバ内に収容し、4端子法抵抗計 (精度：約 $10\text{m}\Omega$) を用いて Pd ワイヤの抵抗を測定する。試験ガスには水素ガスと窒素ガスの混合ガスを用い、水蒸気分圧を制御可能な装置とした (精度： 2kPa)。

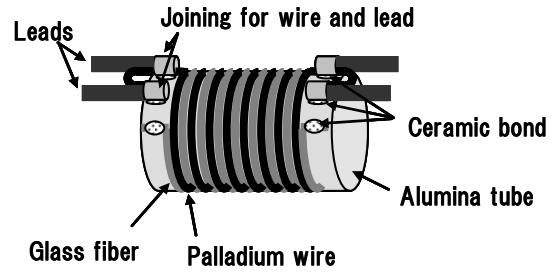


Fig.10 Structure and appearance of the hydrogen sensor for experiments

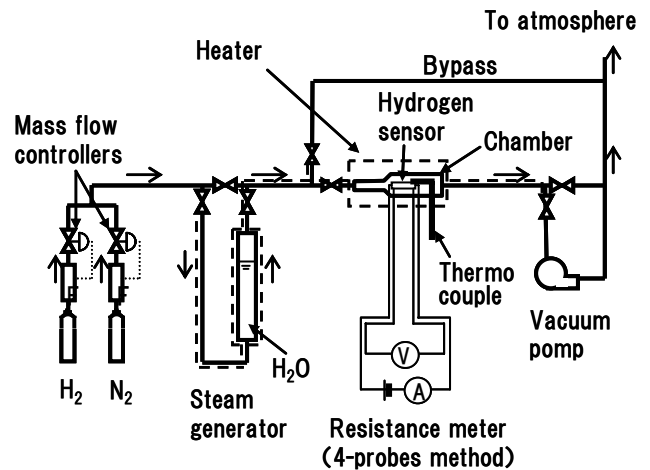


Fig.11 Test loop configuration

(1) 抵抗変化率の水素分圧依存性、温度依存性

水素分圧： $0.1\sim 101\text{kPa}$ 、温度： $110\sim 700^\circ\text{C}$ の範囲で抵抗変化率を測定した。一例として水素センサ温度： 700°C 、水素分圧： 4kPa における抵抗の波形を Fig.12 に示す。立ち上がりの 90% 応答時間は 3 秒以下であり、水素濃度の変化に対する応答性の高さを確認できた。 700°C で 0.1kPa の水素を検出可能であることも確認できた。ただし、水素分圧 0.1kPa では応答時間が長くなっており、今回の測定時間では水素の吸収及び放出が平衡に達していなかった可能性が考えられる。

各試験温度での水素分圧と抵抗変化率との相関を Fig.13 に示す。図中の直線は、各温度について水素分圧が 1kPa 以上のデータを累乗近似したものである。累乗指数は $0.54\sim 0.57$ であった。これから、水素分圧： $1\sim 101\text{kPa}$ 、

温度：110～700℃の範囲で、式3-2で示されるジーベルツの法則がほぼ成立することが確認できた。

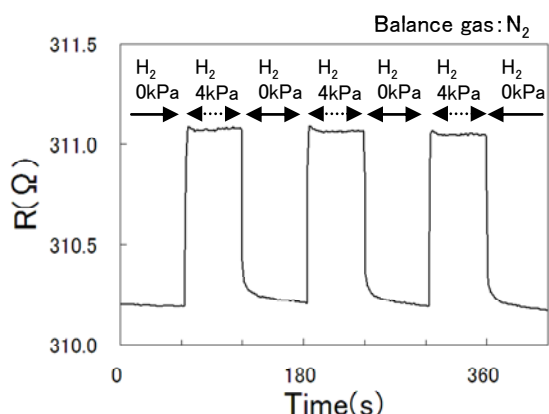


Fig.12 Transient response to step changes in H₂ pressure at 700°C

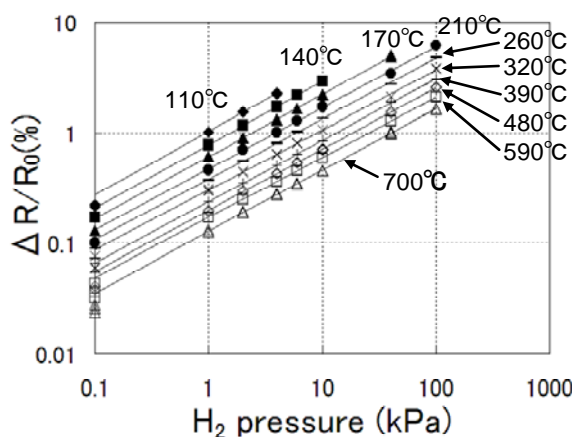


Fig.13 $\Delta R/R_0$ vs. H₂ pressure

(2) 抵抗変化率の水蒸気分圧依存性

水素分圧：4kPa、温度：210℃の一定の条件で、水蒸気分圧：0～85kPaの範囲で変化させて抵抗変化率を測定した。水蒸気分圧と抵抗変化率との相関を Fig.14 に示す。抵抗変化率の変化は誤差範囲内であり、水蒸気分圧は抵抗変化率にほとんど影響を及ぼさないことが確認できた。

過酷事故時の水蒸気環境下における、水素吸蔵材料式での水素濃度計測の有効性を確認できた。

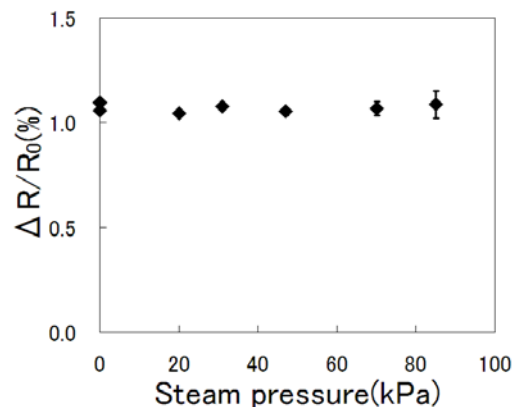


Fig.14 $\Delta R/R_0$ vs. steam pressure

4. 結言

差動型熱電対式原子炉水位計測システムについては、過酷事故を模擬した290℃/7.5MPaの高温高圧環境で基礎試験を行い、ヒータ加熱時の温度上昇による差動型熱電対の出力電圧から水中と気中を判定できることが確認できた。水素吸蔵材料式の水素濃度検出システムについては、過酷事故時の格納容器内で想定される700℃の高温環境や水蒸気雰囲気下でも水素濃度を計測可能であることが確認できた。

引き続き、実機適用に必要な過酷事故時の適用性評価を進める。

なお、本研究は、国内電力11社（北海道電力、東北電力、東京電力、中部電力、北陸電力、関西電力、中国電力、四国電力、九州電力、日本原子力発電、電源開発）および国内プラントメーカー3社（日立GEニュークリア・エナジー、東芝、三菱重工業）の共同研究成果の一部であり、経済産業省 資源エネルギー庁の発電用原子炉等安全対策高度化技術開発補助金交付事業として実施している。

参考文献

- [1] 池内武司、他、“軽水炉型原子力発電プラントのシビアアクシデント時の計装システムの開発”、保全学会第10回学術講演会（2013）
- [2] 有賀哲也、“パラジウムによる水素吸収と水素化反応”、表面科学 Vol.27, No.6, pp.341—347（2006）
- [3] 深井他、“材料学シリーズ 水素と金属 次世代への材料学”、内田老鶴圃、pp.89（1998）
- [4] W. Lindsay, et. al., “Electrical resistance of alpha hydrogen-palladium,” J. Chem. Phys, 36, pp.1229（1962）

（平成25年6月21日）