

# 放射線誘起表面活性効果を用いた超臨界圧軽水冷却炉の基盤技術研究

(受託者) 国立大学法人東京海洋大学

(研究代表者) 波津久達也 学術研究院

(再委託先) 国立大学法人東京大学、学校法人早稲田大学

(研究期間) 平成27年度～30年度

## 1. 研究の背景とねらい

超臨界圧軽水冷却炉は、経済性に優れた我が国提唱の第4世代原子炉であり、その概念炉の設計研究が進められている。一方、放射線誘起表面活性 (Radiation Induced Surface Activation, RISA) は、放射線照射下で基盤材料及び酸化被膜熱伝達表面の電氣的相互作用により熱伝達率の向上及び防食効果を生ずる、これも我が国で世界に先駆けて確認された現象であり、その特性が鋭意研究されている。

本研究は RISA を用いた超臨界圧軽水冷却高速炉の基盤技術研究というまったく新しい研究開発であり、(1) 超臨界圧条件下における RISA 材料の電気化学特性に関する研究、(2) 超臨界圧条件下における RISA 材料の表面特性に関する研究、及び(3) 亜臨界圧力条件下における RISA 材料の濡れ性に関する研究、の実施により超臨界圧力条件下及び亜臨界圧力条件下における RISA による金属材料の電気化学的特性、表面特性及び濡れ性向上を定量的に評価し、超臨界圧軽水冷却炉の基礎的設計指針に反映することを目的としている。もとより実炉内の強放射線環境における超臨界圧力実験は非常に困難であり、この研究ではサイクロトロン加速器による放射化試験、 $\gamma$ 線放射施設を使用した放射線実験に限定するため、実炉に適用した場合の安全性向上または経済的効果などを定量的に示すことはできない。したがって、弱放射線環境において RISA 効果が超臨界圧力・亜臨界圧力下で生ずるかを明らかにするという基礎的な実験を目的としている。

## 2. これまでの研究成果

### (1) 超臨界圧条件下における RISA 材料の電気化学特性に関する研究

これまでに報告例のない温度 350°C までの条件における金属材料の電気化学特性 (腐食電位、分極) を計測するための実験体系、手法を整備した。表面にテフロン材を施したステンレス棒を試験体リード線として用いた場合、300°C を超過する温度条件において被覆が破壊して絶縁を十分確保できないこと、また、酸化物絶縁被膜を施したジルコニウム製のリード線では、試験体との材質の差異により異種金属間の電位を測定する問題が生じることを確認した。これらの結果を踏まえ、試験体と同種金属の SUS316 製金属棒表面にテフロンとセラミック管を絶縁被覆として施した新たなリード線を製作した。また、非放射線照射環境において温度 250°C から 350°C の高温高圧環境下の金属材料の電気化学計測実験を実施し、腐食電位と分極曲線に関する実験データを取得した (図 1)。得られた腐食電位の温度依存性に関する実験データを、300°C までの温度条件において取得された他者の実験データと比較した (図 2, 表 1)。その結果、実験装置構成による差異は見られるものの、腐食電位のオーダーと温度に対する変化傾向は概ね一致することを確認した。

東北大学サイクロトロン加速器における高エネルギーイオン照射により製作した SUS304 放射化試験片の電気化学計測予備実験を実施した。その結果、温度 300°C において放射化後の試験片の腐食電位は、放射化前のそれと比較して低い値を示したが (図 2)、アノード分極曲線の

大きな差異は見られなかった (図3)。

今後、放射化前後およびγ線照射環境下の金属材料の高温高压下における電気化学計測実験を実施し、非放射線環境下の実験データとの比較から、高温高压下の金属材料の電気化学特性向上に及ぼすRISA効果を評価する。

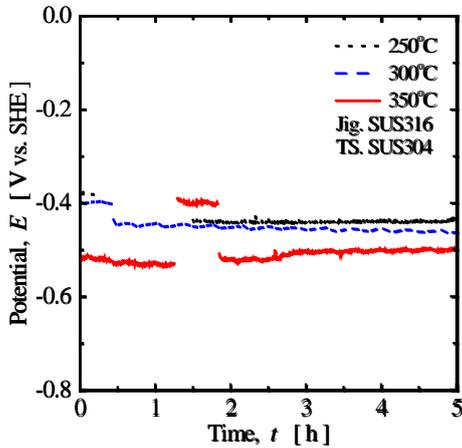


図1 SUS304の腐食電位特性

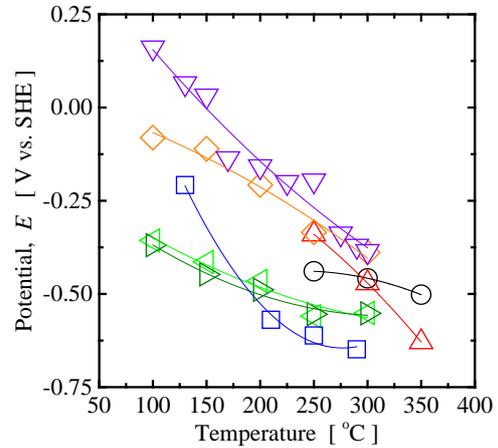


図2 腐食電位の温度依存性

表1 高温高压下の腐食試験比較<sup>(1-4)</sup> (プロットは図2に対応)

Plots	○	△	□	◁	▷	◇	▽
Author	Present study		M. Hishida (1985)	X. Li (2013)		H. Sun (2009)	T. Sunaba (2007)
Material	SUS304 (Jig.SUS316)	SUS304 (Jig.Zr)	SUS304	Alloy 690	Alloy 800	SUS304	SUS304
Solution	Water		Water	Water		Lithium borate buffer solution	0.1 M KCl

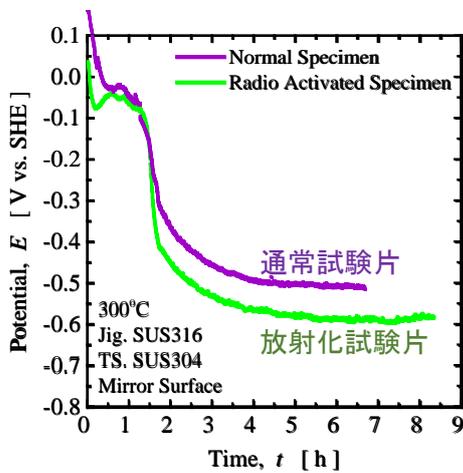


図3 腐食電位 (SUS304, 300°C)

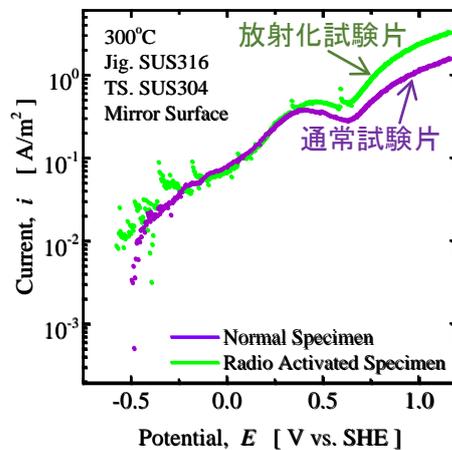


図4 分極曲線 (SUS304, 300°C)

(2) 超臨界圧条件下における RISA 材料の表面特性に関する研究

SUS304 鋼と超臨界圧軽水炉の燃料被覆管材料の候補材料の一つである PNC1520 鋼に大気酸化によって酸化膜を成形し、UV ならびに  $\gamma$  線照射前後における濡れ性を評価した。その結果、両鋼材において、UV 照射により濡れ性が向上した。一方、微弱  $\gamma$  線照射条件下においては、照射前後の濡れ性の変化は確認されなかった。酸化膜の組成等に依存した RISA 効果の発現のためのしきい値が存在する可能性を示唆した。

また、SUS304 鋼と SUS316 鋼を超臨界圧条件下において腐食試験を行い（図 5）、暴露中に形成される酸化膜の定性分析を実施した。これら腐食材に対して、UV ならびにイオン照射を行い、照射前後における濡れ性の評価を行った。その結果、腐食試験前後において濡れ性の変化を確認し、これらは、腐食試験中に試料表面に不均一に形成した  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  による試料表面凹凸に依存した結果であることを試料表面の詳細分析により確認した（図 6）。また、UV ならびにイオン照射前後（放射化前後）において試料表面での濡れ性を確認した。UV 照射では、腐食前の受入れ材ならびに腐食材ともに、濡れ性が改善する傾向にあったが（図 7）、イオン照射（放射化試験片）では、濡れ性の変化は確認されなかった（図 8）。

今後、放射線照射前後および超臨界圧暴露前後の金属材料表面を詳細分析し、高温腐食させた材料表面の濡れ性や表面構造等に及ぼす放射線照射の影響を評価する。

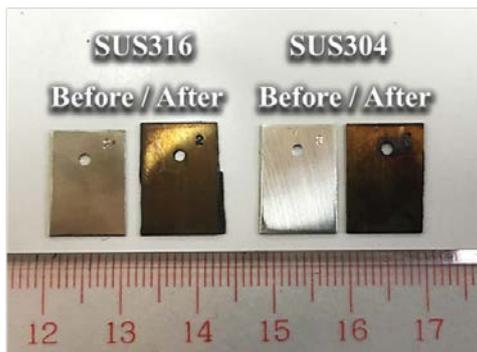


図 5 超臨界腐食試験前後の SUS316 及び SUS304 の表面様相

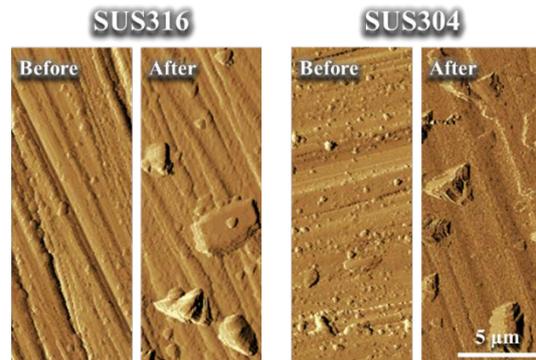


図 6 超臨界腐食試験前後の SUS316 及び SUS304 の AFM 像

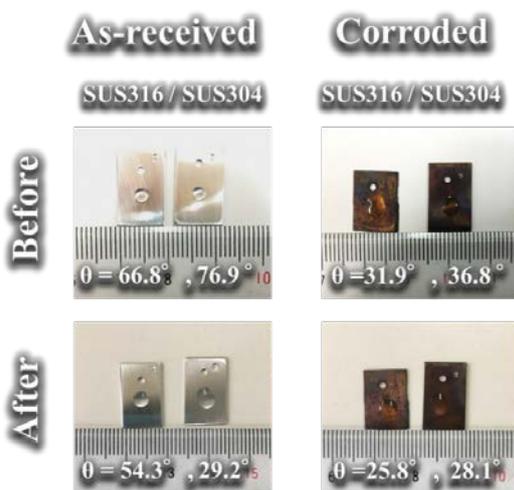


図 7 超臨界暴露前後および UV 照射前後の SUS 材の濡れ性



図 8 超臨界暴露前後およびイオン照射前後の SUS 材の濡れ性

### (3) 亜臨界圧力条件下における RISA 材料の濡れ性に関する研究

非放射線環境において常温から 300°C までの高温高压下の SUS304 鋼の濡れ性計測実験を実施し、液滴接触角、液滴濡れ長さ及び小孔内液通過特性に関する実験データを取得した。また、京都大学原子炉実験所及び高崎量子応用研究所のコバルト 60  $\gamma$  線照射施設において SUS304 試験片を照射し、 $\gamma$  線照射後の試験体の濡れ性を計測した (図 9, 10)。従前の RISA 研究に関する報告と同様に、常温から 200°C までの条件において  $\gamma$  線照射により濡れ性が顕著に向上 (液滴接触角が減少) するが、250°C 以上の条件では、濡れ性の向上効果が減少することが確認された。

今後、 $\gamma$  線照射後及び放射化後の濡れ性を高温高压下において計測し、非放射線環境下において取得した実験データとの比較から、高温高压下の濡れ性向上に及ぼす RISA 効果を評価する

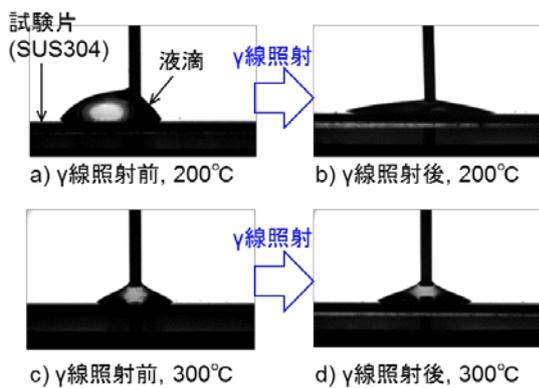


図 9  $\gamma$  線照射前後の SUS304 上の液滴画像

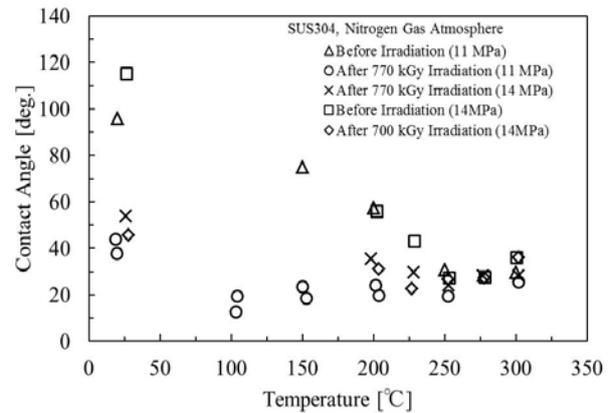


図 10  $\gamma$  線照射前後の液滴接触角の温度依存性

### 3. 今後の研究

- (1) 高温高压下において放射化金属材料の電気化学特性に関する実験データを取得し、非放射化金属材料の実験データとの比較から、放射化金属材料の RISA 効果の発現有無を確認する。また、超臨界条件曝露前後の金属材料の電気化学特性に関する実験データを  $\gamma$  線照射環境下において取得し、非放射線環境下の実験データとの比較から、高温高压下の金属材料の電気化学特性向上に及ぼす RISA 効果を評価する。
- (2) 放射線照射前後および超臨界条件曝露前後の金属材料表面を原子間力顕微鏡、顕微ラマン分光装置等を用いて観察および分析する。これにより高温腐食させた材料表面の濡れ性や表面構造等に及ぼす放射線照射の影響を評価する。
- (3)  $\gamma$  線照射後の金属材料の濡れ性を高温高压下において計測し、非放射線環境下において取得した実験データとの比較から、高温高压下の濡れ性向上に及ぼす RISA 効果を評価する。また、放射化金属材料の濡れ性を常温下および高温高压下において計測し、放射化金属材料の RISA 効果による濡れ性向上の発現有無を確認する。

### 4. 参考文献

- (1) M. Hishida, T. Kawakubo, Y. Yamashita, H. Hirayama, TOSHIBA REVIEW, No. 151, SPRING (1985)
- (2) X. Li, J. Wang, E. Han, W. Ke, Corrosion Science, 67, 169-178 (2013)
- (3) H. Sun, X. Wu, E. Han, Corrosion Science, 51, 2840-2847 (2009)
- (4) T. Sunaba, T. Fujii, K. Tachibana, Zairyo-to-Kankyo, Vol. 56, pp. 70-75 (2007)