放射線誘起表面活性による軽水炉内の腐食・伝熱特性の向上に関する基礎研究 Fundamental study on improvements of corrosion protection and boiling heat transfer characteristics by Radiation induced surface activation

波津久達也^{#,A)}, 井原智則 ^{A)}, Wilson Susanto^{A)}, 師岡愼一 ^{B)}, 阿部弘亨 ^{C)}, 叶野翔 ^{C)}, 岡本孝司 ^{C)} Tatsuya Hazuku ^{#,A)}, Tomonori Ihara ^{A)}, Wilson Susanto ^{A)}, Shinichi Morooka ^{B)}, Hiroaki Abe ^{C)}, Sho Kano ^{C)}, Koji Okamoto ^{C)} ^{A)} Tokyo University of Marine Science and Technology ^{B)} Waseda University, ^{C)} The University of Tokyo

Abstract

A supercritical water-cooled reactor (SCWR) is one of the 4th generation nuclear reactors, which is based on the light water reactor technology and the thermal power generation technology. The system is simple, compact and high thermal efficiency. Therefore, it is considered to have high safety and economic performance. On the other hand, the radiation induced surface activation (RISA) phenomenon enhances metal surface wettability, boiling heat transfer and anticorrosive effects by the electrical interaction between the base material and the surface of oxidized film. It implies that RISA phenomenon can contribute the much higher performance of SCWR and improve the safety features. The purpose of this study is to evaluate the effect of oxidized metal and γ -ray irradiation on metal surface wettability in high pressure and high temperature conditions. In this experiment, the test section was pressurized at 12 MPa with nitrogen gas using pressure vessel and was heated up to temperatures of 20, 150, 200, 250 and 290 centigrade. Two types of material; a stainless-304 and austenitic stainless steel named PNC1520, which is considered as a potential material of fuel-cladding tube of the SCWR, were used as specimens. The oxide film on the specimen was formed in supercritical water at 380 centigrade and 22 MPa. About 600 kGy Co-60 γ-ray source was used for irradiation. The results showed that the difference of oxidization on wettability was insignificant at room temperature before γ -ray irradiation while contact angles on the oxidized specimen decreased at high temperatures. The water growth rate on oxidized material slightly lower compare to non-oxidized material. This result suggests oxide film formation on metal surface plays an important role in surface wettability enhancement by the RISA.

Keyword: Radiation induced surface activation (RISA), Wettability, Boiling heat transfer, Supercritical, Light water reactor

1. はじめに

超臨界圧軽水冷却炉(Supercritical water-cooled reactor, SCWR)は、我が国の優れた軽水炉技術と火力発電技術を基にした第4世代原子炉の中で唯一の日本発の概念炉であり、システムが単純でコンパクト、高熱効率であることから、高い経済性と安全性を有している^[1,2]。

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気的相互作用により熱 伝達向上及び防食効果を生ずる現象である^[3-6]。

SCWRにおいては、中・大規模の冷却材喪失事故 等に起因したシビアアクシデント発生時に圧力が過 渡的に変化するが、特に亜臨界圧近傍は、膜沸騰や ドライアウトの形成により炉心が熱水力的に非常に 過酷な環境に曝される可能性が高い。したがって、 放射線照射環境下でかつ亜臨界圧条件における濡れ 性と沸騰伝熱特性の関係を評価することは、SCWR の設計と安全性評価において極めて重要となる。

本研究では、SCWR における RISA の出現可能性 を評価するため、2017 年度及び 2018 年度の原子力 機構施設利用共同研究において、圧力 14 MPa、温度 300℃までの雰囲気下で、γ線照射前後の金属材料表 面の液滴接触角を計測し、高温高圧下の RISA によ る濡れ性の向上を確認した^[7,8]。また、温度 300℃の 飽和純水中において、γ線照射前後の金属材料の腐 食電位及び分極を計測し、高温高圧下における RISA による金属材料の電気化学的特性の変化を評価した ^[7,8]。2019 年度は、引き続き、γ線照射前後の試験体 を用いて、特に材料表面の超臨界水酸化膜の影響に 着目し、温度、試験体材質を変化させた際の濡れ性 に関するデータベースを拡充することで、亜臨界圧 条件下における RISA による濡れ性向上効果をより 詳細に評価した。

2. 実験装置及び実験方法

高温高圧下の濡れ性の計測は前報⁽⁷⁾と同じ装置を 用いて行われた。装置は、液滴を遠隔で注入するシ ングルプランジャーポンプを有する液滴供給装置、 Fig. 1 に示す 50 mmφ、高さ 150 mm、厚さ 40 mm の ステンレス製高温高圧容器から構成される。高温高 圧容器壁には、8 本のヒータが埋め込まれ、容器全 体が所定の温度に加熱される。容器内部は、ガスボ ンベから供給される窒素ガスとブースターポンプに より、所定のシステム圧力に加圧される。圧力容器 内でシリンジから液滴を下部より注入し、試験片上 面を液滴が広がる様相の画像を、高速度ビデオカメ ラによりサンプリングタイム 1 ms でデータ収録装置

[19018]



Figure 1. Apparatus for wettability measurement ^[7,8].

によりデータを収録する。画像解析によって接触角 を計測し、濡れ性を評価する。温度条件は20~290℃、 圧力は窒素を封入することで約 12 MPa としている ^[7-9]。

試験片には、SUS304 材及び SCWR の候補材であ る PNC1520 材を用いた。試験片の寸法は、 $16 \times 16 \times$ 3 mm試験片表面は 800, 1200, 2000, 4000 番の紙やすり そして 0.3 ミクロンのアルミナ粒子で研磨後、超音 波洗浄器でアセトン、エタノール、純水を用いて洗 浄した。この状態での試験片をノーマル SUS あるい はノーマル PNC と呼ぶ。また、試験片の状態を、① 非照射、② γ 線照射、③SCW 酸化処理+ γ 線照射と した。したがって、試験片は2材料・3 状態の6 種類 を用いた。試験片表面の酸化処理は、洗浄した試験 片を SCW 条件下(温度 380℃、圧力 22 MPa) に約 2 週間保持して行われた。SCW 酸化処理後の試験片表 面の粗さをレーザー顕微鏡で計測した結果、平均粗 さは約 2 μ m であった。また、試験片は各温度条件に つき 1 枚の試験片を使用した。

試験片の液滴注入部の概略図及び写真を Fig. 2 に 示す。試験片中心に開けた 1 mm 程度の穴にシリン ジを通すことで試験片下部から表面に水を注入し、 試験片表面に液滴を形成する。従来の上部注入時に 発生する液滴の落下やシリンジと液滴の接触による 液滴形状の変形を少なくすることにより特に高い濡 れ性を持つ試験片の測定時において、より正確な液 滴挙動を測定することが可能となる^[7-9]。

試験片上に形成する液滴の接触角 θ は、高速度ビ デオで測定された画像より球冠形状を仮定した液滴



Figure 2. Droplet injection part^[8].

の径 w 及び高さ h を測定し、以下の式で表される θ/2 法を用いて求めた。

$$2\theta = 2\frac{180}{\pi}\tan^{-1}\frac{2h}{w} \tag{1}$$

γ線照射には、量子科学技術研究開発機構 (National institutes for quantum and radiological science and technology, QST)の高崎量子応用研究所の 60Co γ線照射装置を用いた。γ線の線量率は約10kGy/hr、 積算線量は最大 1000 kGy である。

本計測では、 γ 線照射前後の接触角を測定してお り、両者の試験において、 γ 線照射以外の試験条件は 同一にしている。したがって、両者の接触角の変化 を比較することにより、濡れ性への γ 線照射の影響、 つまり RISA 効果を評価できると考えている。ただ し、今回の試験では放射線の照射は試験前に実施し ている。一方、実機の照射は連続して行われており、 本試験での照射による濡れ性の変化は、実機に比較 してより保守的な値である^[7-9]。

3. 実験結果及び考察

高温高圧下における基本的な濡れ挙動を評価する ため、酸化処理していない SUS 304 と PNC 1520 及 び超臨界水中で酸化処理した SUS 304 と PNC 1520 の各試験片の圧力 12 MPa、温度 20℃から 290℃にお ける液滴の濡れ広がり特性と液滴接触角の時間変化 を測定した。先ず、濡れ広がり特性の評価において は、撮影した液滴画像から以下の式で与えられる液 滴の体積を計測し、5 秒間あたりの平均体積成長速 度(Q)を求めた^[9]。

$$V = \frac{2}{3}\pi \left(\frac{w}{2}\right)^2 h \tag{2}$$

Fig.3 及び Fig.4 に、それぞれ、酸化処理していな い試験片及び超臨界水中で酸化処理した試験片の液 滴体積成長速度の温度依存性を示す。液滴体積成長 速度は常温から 150℃もしくは 200℃まで増加し、 200℃以上では温度の上昇に伴って蒸発により徐々 に減少している。γ線の照射、非照射の両条件とも、 酸化処理した試験片の液滴体積成長速度は、酸化処 理していない試験片と比較して低くなっているが、 その差は僅かである。

Fig.5に0.5秒ごとに計測した液滴接触角の時間変化を示す。液滴供給開始直後は液滴形状が安定していないことから2°前後の変動があるが、供給開始後3秒以上では変動が少なくなっている。これらの結果から、本実験では、液滴供給開始後5秒における画像を用いて液滴接触角を整理した。

Fig. 6 及び Fig. 7 に、酸化処理を行っていない SUS304 と PNC1520 の各試験片において測定された 液滴接触角の温度依存性を示す。何れの試験片もγ 線照射前の試験片は温度の上昇に伴って液滴接触角 が減少し、各温度域の値はほぼ同等である。一方、 γ線照射後の試験片は、全ての温度条件において室

[19018]



Figure 3. Correlation water growth rate and temperature on non-oxidized material ^[9].



Figure 4. Correlation water growth rate and temperature on oxidized material ^[9].



Figure 5. Contact angle time series on SUS materials ^[9].



Figure 6. Contact angle on SUS 304 before and after γray radiation ^[9].



Figure 7. Contact angle on PNC 1520 before and after γ -ray radiation ^[9].

温条件において接触角が40°未満となり、RISAにより濡れ性が向上しているが、温度の上昇に伴ってγ線照射前後の値の差異は小さくなる傾向が示されている。これは、温度上昇に伴う水の表面張力の減少により濡れ性が向上し、RISAによる濡れ性向上効果が相対的に小さくなるためである。

Fig.8は、酸化処理の有無及びγ線照射前後におけ る各試験片の液滴接触角の温度依存性を示している。 常温から250℃においては、酸化処理後でかつγ線 照射後の試験片が他のデータに比較して接触角が小 さくなっている。したがって、酸化処理がRISA効果 の発現に有効であることがわかった。一方、290℃で は、水の表面張力が小さくなり、非照射照射でかつ 酸化処理していない状態でも濡れ性が向上するため、 RISA 効果による顕著な濡れ性の向上は得られてい ない。これらの結果は前報^[7]と同様の傾向であり、試 験結果の信頼性が確認された。

[19018]



Figure 8. Effect of oxide film to the contact angle on the SUS 304 and PNC 1520 metals surface ^[9].

従前の研究によって考えられている RISA の発現 機構では、RISA 効果は酸化被膜中の電子が放射線に よって励起され発現する現象である。したがって、 実際の SCWR では、超臨界水中の長期暴露によって より厚い安定的な酸化被膜が形成することで y 線照 射による電子励起が促進し、RISA 効果が増大するこ とが期待できると考える。

4. まとめ

材質に関わらず、照射試験片が非照射時に比べ接触角が減少した。また、温度上昇に従い、y線照射後の試験片と非照射試験片の接触角の差(RISA 効果)は小さくなる傾向を示した。これは、温度上昇に伴う水の表面張力の減少により濡れ性が向上し、RISAによる濡れ性向上効果が相対的に小さくなるためである。

酸化処理後でかつγ線照射後の試験片が他の条件 と比較して接触角が小さくなった。したがって、酸 化処理が RISA 効果の発現に有効であることが確認 された。

PNC1520 及び **SUS304** とも超臨界水酸化処理の有 無、 γ 線照射と非照射による濡れ性への影響の傾向 はほぼ同等であった。 本研究により広範囲の温度・圧力条件においてγ 線照射前後及び放射化前後の濡れ性に関するデータ を採取し RISA 効果を評価したが、強放射線が連続 的に照射されている環境下での濡れ性の直接計測は 行われておらず、今後、放射線強度に対する RISA に よる濡れ性の向上効果を評価する必要がある。また、 最終的には接触角の減少により亜臨界水条件におけ る液膜破断や膜沸騰による除熱限界がどれほど向上 するかを実験的に検証する試験が必要となる。

参考文献

- [1] 鹿野文寿, 土屋由美子, 斎藤宣久, 大川雅弘, 超臨界
 [王水冷却炉の材料開発, 東芝レビュー, Vol. 59, No. 12, pp. 60-63, 2004.
- [2] 简芳明, Super fast reactor R&D projects in Japan, Proceedings of 19th International Conference on Nuclear Engineering, pp. 430-434, 2011.
- [3] 賞雅寬而,岡本孝司,三島嘉一郎,古谷正裕,放射線 誘起表面活性,日本原子力学会誌,Vol. 45, No. 2, pp. 112-117,2003.
- [4] 賞雅寛而、阿部弘亨、秋葉美幸、安永龍哉、放射線誘 起表面活性効果による高性能原子炉技術開発 「放射 線照射による表面活性効果を用いた炉内伝熱・防食技 術の向上技術」、日本原子力学会誌、Vol. 49, No. 1, pp. 45-50, 2007.
- [5] 賞雅寛而, 放射線誘起表面活性による濡れ性の機構と その制御, 伝熱, Vol. 46, No. 194, pp. 28-33, 2007.
- [6] Y. Sibamoto, T. Yonomoto, H. Nakamura, Y. Kukita, In-pile experiment in JMTR on the radiation induced surface activation (RISA) effect on flow-boiling heat transfer, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 44, No. 2, pp. 183-193, 2007.
- [7] 波津久達也、井原智則、田口涼太、Wilson Susanto、師岡 慎一、阿部弘亨、叶野翔、岡本孝司、放射線誘起表面 活性による軽水炉内の腐食・伝熱特性の向上に関する 基礎研究、平成 30 年度原子力機構施設利用共同研究, 一般研究成果報告書,18017,2019.
- [8] 文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業 原子 カシステム研究開発事業「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」平成 30 年 度成果報告書, 3.3-3, 2019.
- [9] W. Susanto, T. Ihara, T. Hazuku, S. Morooka, S. Kano, Surface wettability enhancement on oxide film coated-steels due to gamma-ray irradiation, Mechanical Engineering Journal, ID: 19-00585(早期公開), 2020.