

平成 30 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06675

研究課題名(和文)放射線照射下の表面励起効果を考慮した腐食促進機構の解明

研究課題名(英文) Study of corrosion mechanism in consideration of surface excitation effect under irradiation

研究代表者

小河 浩晃(Ogawa, Hiroaki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究職

研究者番号：10414559

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、表面励起起因の「新しい腐食促進モデル」を展開し、「水の放射線分解のイオン種の増加量」から、放射線照射場の腐食促進機構の解明を行うことを目的とする。放射線照射は、量子機構の高崎研のCo60照射施設を利用した。水の放射線分解によるイオン種量は、pH法、電気伝導率法、酸化還元電位法を採用し、測定を実施した。Co60照射中は、pHが酸性側に傾き、電気伝導率は、増加傾向を示した。この結果は、水の放射線分解により、H⁺とOH⁻が増加したことを意味している。本研究により、H⁺とOH⁻のイオン種量が、推定評価値として10倍程度増加することが分かった。

研究成果の概要(英文)：Radiation field makes corrosion of the materials (Zr, SUS etc) accelerate. The objective of our research is to clarify corrosion mechanism of them under the radiation field. In this work, we especially have taken notice of the effect of surface excitation occurring on the material's surface. The amounts of ions (H⁺, OH⁻) in water, which are caused by water radiolysis in Co-60 gamma ray, have been measured by using the methods, which are pH, electrical conductivity, and Oxidation-Reduction potential (ORP). Under the irradiation, the pH in the water decreases to pH=5, meanwhile the electrical conductivity increase. From the results of the three methods, it is estimated that the amounts of the ions in the water are increased to 10 times as compared to those in non-irradiation field.

研究分野：原子力材料

キーワード：放射線分解 表面励起

1. 研究開始当初の背景

原子力プラントの炉心材料に使用されているステンレス鋼、Ni 基合金、Zr 系合金などでは、放射線照射場であるため、それらの腐食促進の支配因子として、水/水蒸気の放射線分解から算出されるイオン種量が重要となる。また、一般的に、水/水蒸気の放射線分解による材料の腐食では、酸素による「酸化膜成長」と、「水素のバルク内への拡散・浸透」の同時進行が特徴である。

(1) 従来モデル

従来モデルは次の通りである。炉内環境では、放射線照射によって、水/水蒸気が放射線分解し、 H^+ 、 OH^- 、 O^- 等が多量に生じる（一般に G 値として評価されている）。酸素起因のイオン種は、極めて活性であるため、反応において、高酸素ポテンシャル条件を想定できる。それらのイオン種の生成により、「反応環境が高酸素ポテンシャル条件となり、腐食が促進される」というものであった。確かに、「非放射線照射場と比較して、放射線照射場では、腐食が促進する」という事象は、この G 値起因の腐食モデルで説明できるが、「放射線照射場の腐食量は、さらに桁以上大きい」という事象は、全く説明できない。すなわち、放射線照射場の腐食量を理解するためには、水/水蒸気の放射線分解で生じるイオン種量よりも、多量のイオン種（さらに高い酸素ポテンシャル条件）が生成していないと仮定する必要がある。

(2) 新しい腐食モデル

我々は、図 1 に示す次のような材料の表面励起効果による腐食促進モデルを提唱する。

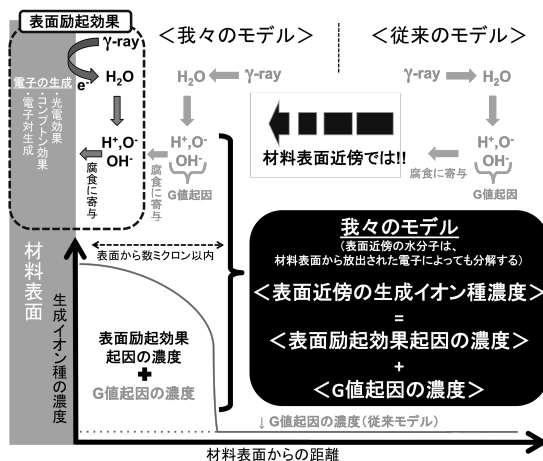


図 1 新しい腐食促進モデル

放射線照射場の金属表面では、光電効果、コンプトン効果、電子対生成によって多量の電子が生成され、それらの電子は、金属表面から放出（電子線の放出）される。このとき、金属表面付近の水/水蒸気は、2 種類の照射、すなわち、直接的な放射線照射と金属表面から放出される電子線の照射を受けることになり、高収率でイオン種が生成される。この

イオン種が、金属表面と直接的に反応を生じ、腐食反応を促進させるのである。また、金属表面から放出される電子線の放出距離（平均自由行程）は、凝縮系であることから、非常に短く、高収率のイオン種生成領域は、表面から数マイクロン以内の極表面近傍に限定されることに注意しなくてはならない。

2. 研究の目的

本研究では、表面励起起因の「新しい腐食促進モデル」を展開し、「水の放射線分解のイオン種の増加量」から、放射線照射場の腐食促進機構の解明を行うことを目的とする。具体的には、Co-60 照射下で、表面効果の有無による水の放射線分解による水の解離度の違いを pH 法、電気伝導率法、酸化還元電位法の 3 種類の手法を用いて測定し、イオン種 (H^+ 、 OH^-) 量を算出する。また、溶存ガスによる水の放射線分解への影響について調べる。さらに、表面励起効果の増大を期待して、水にガラスビーズを分散させ、水の放射線分解へ影響も調べる。

3. 研究の方法

放射線照射は、量子科学技術研究開発機構の高崎量子応用研究研の Co-60 照射施設を利用する。その γ 線の強度は、線源直前で、10kGy/h であり、本研究での照射条件である。照射時間は、30-90 分間とする。使用する水は、市販の精製水（イオン交換後、さらに蒸留したもの）を使用する。水量は 200-250ml である。表面励起効果を評価するために、次の観点から、研究を進める。(1) 水の放射線分解によるイオン種量は、pH 法、電気伝導率法、酸化還元電位法から評価する。また、(2) 水の放射線分解と溶存ガスとの関係性を調べるため、水素、酸素、窒素、アルゴン、二酸化炭素を水に溶解させる。さらに、(3) 表面励起効果を調べるため、水にガラスビーズを分散させる。

4. 研究成果

(1) 水の放射線分解によるイオン種量

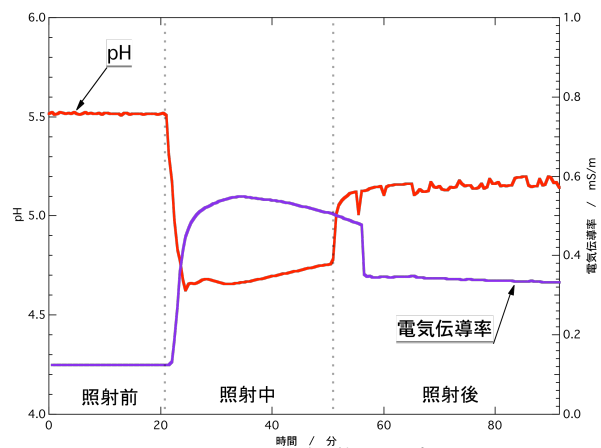


図 2 pH、電気伝導率の変化

図2に水のpH、電気伝導率の変化の一例を示す。Co-60照射中は、pHが酸性側に傾き、電気伝導率は、増加傾向を示した。pHと電気伝導率との間に相関関係が明瞭に見られた。照射後では、pH、電気伝導率共に、照射前の値には、戻らなかった。この原因に関しては、水の放射線分解による過酸化水素やオゾンの生成を確認しているが、本研究では、原因の特定に至っていない。

(2) 水の放射線分解と溶存ガスとの関係性

図3に溶存ガスのORP変化を示す。代表として、水素、酸素、二酸化炭素の結果を示す。水素のORPは、還元性であるため、マイナス値を示し、酸素、二酸化炭素のORPは、酸化性であるため、プラス値を示した。照射中は、水素では、プラスに、酸素、二酸化炭素では、マイナスへ、大きく変化した。それぞれのガスによる還元性及び酸化性の環境が、照射により、緩和させる傾向が見られた。本研究では、原因の特定に至っていない。

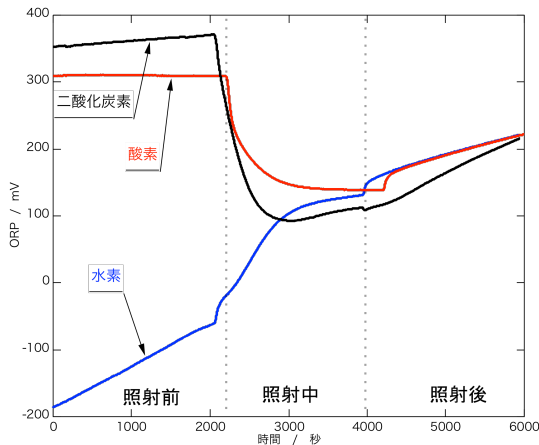


図3 ORPの変化(水素、酸素、二酸化炭素)

(3) ガラスビーズ分散

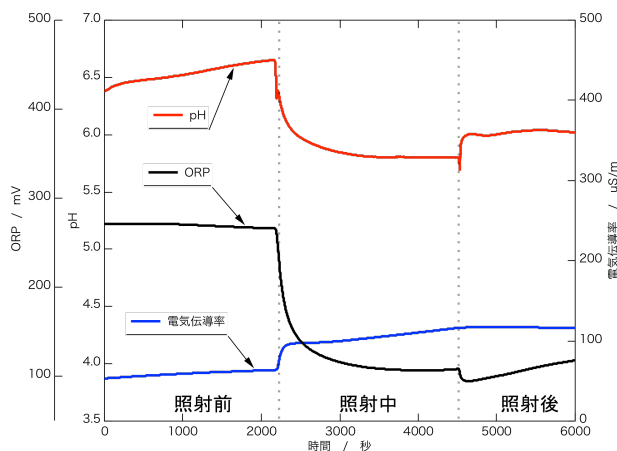


図4 ガラスビーズ分散のpH、電気伝導率及びORPの変化

表面励起効果の増大を期待して、ガラスビーズを分散させた。その結果を図4に示す。照射中のpH、電気伝導率及びORPはこれまで

と結果と同様な傾向を示した。pHは酸性に傾いたが、期待していたほどではなかった。ガラスビーズにより、表面積が増加するため、表面励起効果の増大を期待したが、逆に、放射線分解で生成したイオン種の再結合が、強く作用していると思われる結果となった。ガラスビーズの今回の条件では、明瞭な表面励起効果の増大は見られなかった。

(4) 結果とまとめ

これらの結果から、H⁺とOH⁻のイオン種量が、評価値として10倍程度に増加することが分かった。本件で提案する「新しい腐食促進モデル」では、放射線環境下に置かれた湿式型の材料腐食は、水の放射線分解で生じるイオン種量の増加が、一つのキー因子に挙げている。本研究によって「新しい腐食促進モデル」の有効性が確認できた。

また、今回、新しい知見として、「新しい腐食促進モデル」では、解釈でない結果も得られており、また、再現できない挙動も観測されている。

(5) 今後の展望

- 今後の展望を以下に列記する。
- ・本研究で得られた知見を参考にして「新しい腐食促進モデル」をさらに発展させる。
 - ・測定において、再現性のない実験条件もあるため、再現性を確保する。
 - ・本研究では、原因の特定に至っていない事象もあるため、その事象解明のための研究を進める。
 - ・実験条件によっては、測定データが乱れる場合があるため、データの信頼性向上を確立する。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 0件)

[学会発表] (計 0件)

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

名称：
 発明者：
 権利者：
 種類：
 番号：
 出願年月日：
 国内外の別：

○取得状況 (計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小河 浩晃 (OGAWA, Hiroaki)
国立研究開発法人 日本原子力研究開発
機構・原子力科学研究部門・原子力基礎工
学研究センター・研究職
研究者番号：10414559

(2) 研究分担者

井岡 郁夫 (IOKA, Ikuo)
国立研究開発法人 日本原子力研究開発
機構・原子力科学研究部門・原子力基礎工
学研究センター・研究職
研究者番号：10354804

以下の項目は該当なし。

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()