

JAERI-M  
82-061

高レベル廃棄物ガラス固化体容器用金属材料の  
耐食性に及ぼすガンマ線照射の影響（Ⅰ）  
(共同研究)

1982年6月

降矢 喬\*・村岡 進・田代 晋吾・荒木 邦夫  
泊里 治夫\*\*・藤原 和雄\*\*・福塚 敏夫\*\*

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

---

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日立高速印刷株式会社

高レベル廃棄物ガラス固化体容器用金属材料の  
耐食性に及ぼすガンマ線照射の影響（I）

日本原子力研究所東海研究所環境安全研究部

降矢 畑・村岡 進・田代晋吾・荒木邦夫

泊里治夫・藤原和雄・福塚敏夫

（1982年5月19日受理）

高レベル放射性廃棄物取扱い施設の安全性評価研究の一環として、高レベル廃棄物の中間貯蔵を想定し、キャニスター、オーバーパックおよび貯蔵施設用金属材料として有望視されているSUS304, SUS304L, SUS304EL, SUS309S, Incoloy825, Inconel600, Inconel625およびSMA50（耐候性鋼）の8種について、応力腐食割れに及ぼすγ線の影響に関する検討を行なった。その結果、水冷貯蔵を想定した条件下ではあらかじめ銳敏化処理したステンレス鋼は、γ線照射により応力腐食割れ感受性を示した。これは、γ線照射によって環境条件の変化、すなわち水の放射線分解によってO<sub>2</sub>などの応力腐食割れを助長する成分が生成したことによるものと考えられる。それ以外の鋼種では、SMA50が全面に錆が発生した他は異常は認められなかった。また、非照射下でも銳敏化ステンレス鋼は、微量Cl<sup>-</sup>と溶存O<sub>2</sub>の共存下では粒界応力腐食割れを生じることが確認された。また、空冷貯蔵を想定した大気中放置下でのγ線照射下においては、いずれの材料も応力腐食割れ感受性を示さないことがわかった。

なお、本研究は、日本原子力研究所と（株）神戸製鋼所において共同にて実施されたものである。

\*) 外来研究員：（株）神戸製鋼所

\*\*) （株）神戸製鋼所：中央研究所

Study on  $\gamma$ -ray irradiation effects on corrosion resistance of alloys  
for storage of high-level waste packages (I)

\*  
Takashi FURUYA, Susumu MURAOKA, Shingo TASHIRO, Kunio ARAKI,  
Haruo TOMARI, Kazuo FUJIWARA \*\* and Toshio FUKUZUKA \*\*

Division of Environment Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI

( Received May 19, 1982 )

The effects of  $\gamma$ -ray irradiation on corrosion resistance have been studied about candidate alloys as high-level waste canisters, overpacks and storage facility materials. The purpose of this study is to evaluate integrity of alloys in the view of safety evaluation for interim storage systems such as water and air cooling system. Stress corrosion cracking ( SCC ) test has been carried out and the double U-bend type specimens were used. The alloys tested were Type 304 ss, Type 304L ss, Type 304EL ss, Type 309s ss, Incoloy 825, Inconel 600, Inconel 625 and SMA 50.

Sensitized Type 304 ss, Type 304L ss and Type 309s ss have been found to be susceptible to SCC because of radiolysis in boiling deionized water with  $\gamma$ -ray irradiation but not without irradiation. It was also confirmed that they were susceptible to SCC under the existence of a little chloride ion and dissolved oxygen even without  $\gamma$ -ray irradiation. Fractographic observation revealed that the cracking mode was completely intergranular. The other alloys were not susceptible to SCC, but SMA 50 rusted over its surface.

On the other hand, no alloy was susceptible to SCC in atmosphere at room temperature even with  $\gamma$ -ray irradiation.

This study was carried out in corporation at JAERI and Kobe Steel Ltd.

**Keywords:** High-level Waste, Interim Storage, Safety Evaluation,  
Canister, Overpack,  $\gamma$ -ray Irradiation, Stress Corrosion Cracking  
Intergranular Cracking

---

\* On leave from Kobe Steel Ltd.

\*\* Central Research Laboratory, Kobe Steel Ltd.

## 目 次

1.はじめに .....	1
2.実験方法 .....	1
2.1 供試材料および熱処理条件 .....	1
2.2 $\gamma$ 線照射 .....	2
2.2.1 $\gamma$ 線源 .....	2
2.2.2 照射方法 .....	2
2.3 物性測定 .....	3
2.3.1 応力腐食割れ感受性の評価 .....	3
2.3.2 走査電顕による応力腐食割れ破面観察 .....	3
2.3.3 顕微鏡組織観察および硬度測定 .....	3
3.実験結果 .....	3
3.1 水冷貯蔵を想定した浸漬による応力腐食割れ試験 .....	3
3.1.1 第一次浸漬試験 .....	3
3.1.2 第二次浸漬試験 .....	4
3.1.3 応力腐食割れ形態の観察 .....	5
3.1.4 顕微鏡による組織観察 .....	5
3.1.5 硬度測定 .....	5
3.2 空冷方式を想定した乾式による応力腐食割れ試験 .....	5
4.考察 .....	6
5.結言 .....	8
謝辞 .....	9
参考文献 .....	9
Appendix .....	11

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	1
2.1 Test materials and heat treatment .....	1
2.2 $\gamma$ -ray irradiation .....	2
2.2.1 $\gamma$ -ray source .....	2
2.2.2 Irradiation .....	2
2.3 Analyses of failures .....	3
2.3.1 Evaluation of susceptibility to SCC ..	3
2.3.2 Fractographic observation .....	3
2.3.3 Observation by optical microscope and measurement of hardness .....	3
3. Result .....	3
3.1 SCC tests in boiling deionized water .....	3
3.1.1 SCC test ( Series I ) .....	3
3.1.2 SCC test ( Series II ) .....	4
3.1.3 Fractografic observation by SEM .....	5
3.1.4 Observation by optical microscope .....	5
3.1.5 Hardness .....	5
3.2 SCC tests in air atmosphere at room temperature .....	5
4. Discussion .....	6
5. Conclusion .....	8
Acknowledgement .....	9
References .....	9
Appendix .....	11

## 1. はじめに

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃液の処理処分については、昭和55年12月に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において策定された指針にそって研究開発がなされている。その指針によれば廃液は、減衰冷却した後、脱硝、濃縮または仮焼してガラス素材と混ぜて溶融し、キャニスターに封入される。このガラス固化された高レベル放射性廃棄物（以下、これをガラス固化体と呼ぶ）は、処分に適する状態になるまで冷却のための一定期間貯蔵ののち、処分されることが考えられている。このガラス固化体には、多量の核分裂生成物が含まれており、キャニスターあるいはその貯蔵施設は、 $\gamma$ 線などの放射線にさらされる。<sup>1)</sup>例えば、DCHAIN codeで計算した放射性物質の含有量に基づきキャニスターが受ける $\gamma$ 線吸収線量を計算すると  $5.6 \times 10^5$  rad/hr になる（計算を Appendix に示す）。

一方、キャニスターおよびその貯蔵施設の材料選定に関しては、現在、各国にて検討中であるが、キャニスター材料としてSUS304をはじめとするオーステナイト系のステンレス鋼が有望視され、また、そのオーバーパック材料としてインコネル600などのニッケルベース合金などが有望視されている。これらの金属材料は、工業界で広く利用され、通常の大気環境下あるいは水溶液中においては優れた耐食性を示すものであるが、放射線照射環境下での耐食性については、一般工業界の材料選定で活用されている法則および理論を適用できる程の十分な情報がないのが現状である。例えば、放射線は腐食反応を促進するという報告がある一方、必ずしも腐食反応を促進する強力な因子ではなく、<sup>2)～5)</sup>腐食反応には影響を与えないばかりか、ある場合には逆に腐食を抑制するという報告も見られる。<sup>6), 7)</sup>特に、放射線照射下における応力腐食割れの研究例は少なく、最近、N. Fujita らの報告および栗林らの報告<sup>8)</sup>が見られる程度である。

本報は、以上の事情に鑑み、高レベル放射性廃棄物取扱い施設の安全性評価研究の一環として、キャニスター、オーバーパックおよび貯蔵施設用の金属材料として有望視されているものについて応力腐食割れに及ぼす $\gamma$ 線照射の影響に関する研究を行なった結果をまとめたものである。

なお、本研究は、日本原子力研究所と（株）神戸製鋼所とにおいて共同で実施された。すなわち、放射線照射による腐食試験および総合的な評価を日本原子力研究所が分担し、供試体の作製および供試体の物性測定とその解析を（株）神戸製鋼所が分担した。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試材料および熱処理条件

供試材料は、(1) SUS304, (2) SUS304L, (3) SUS304EL, (4) SUS309S, (5) Incoloy 825, (6) Inconel 600, (7) Inconel 625, (8) SMA50（耐候性鋼）の8種類であり、その化学成分および溶接による熱影響を模擬した鋭敏化のための熱処理条件を第1表に示す。

なお、試験片への応力付加方法として定歪み法を採用した。すなわち、第1図に示すように試験片

## 1. はじめに

使用済み核燃料の再処理により発生する高レベル放射性廃液の処理処分については、昭和55年12月に原子力委員会放射性廃棄物対策専門部会において策定された指針にそって研究開発がなされている。その指針によれば廃液は、減衰冷却した後、脱硝、濃縮または仮焼してガラス素材と混ぜて溶融し、キャニスターに封入される。このガラス固化された高レベル放射性廃棄物（以下、これをガラス固化体と呼ぶ）は、処分に適する状態になるまで冷却のための一定期間貯蔵ののち、処分されることが考えられている。このガラス固化体には、多量の核分裂生成物が含まれており、キャニスターあるいはその貯蔵施設は、 $\gamma$ 線などの放射線にさらされる。<sup>1)</sup> 例えば、DCHAIN code で計算した放射性物質の含有量に基づきキャニスターが受ける $\gamma$ 線吸収線量を計算すると  $5.6 \times 10^5$  rad/hr になる（計算を Appendix に示す）。

一方、キャニスターおよびその貯蔵施設の材料選定に関しては、現在、各国にて検討中であるが、キャニスター材料としてSUS304をはじめとするオーステナイト系のステンレス鋼が有望視され、また、そのオーバーパック材料としてインコネル600などのニッケルベース合金などが有望視されている。これらの金属材料は、工業界で広く利用され、通常の大気環境下あるいは水溶液中においては優れた耐食性を示すものであるが、放射線照射環境下での耐食性については、一般工業界の材料選定で活用されている法則および理論を適用できる程の十分な情報がないのが現状である。例えば、放射線は腐食反応を促進するという報告がある一方、必ずしも腐食反応を促進する強力な因子ではなく、<sup>2)～5)</sup> 腐食反応には影響を与えないばかりか、ある場合には逆に腐食を抑制するという報告も見られる。<sup>6), 7)</sup> 特に、放射線照射下における応力腐食割れの研究例は少なく、最近、N. Fujita らの報告および栗林らの報告<sup>8)</sup>が見られる程度である。

本報は、以上の事情に鑑み、高レベル放射性廃棄物取扱い施設の安全性評価研究の一環として、キャニスター、オーバーパックおよび貯蔵施設用の金属材料として有望視されているものについて応力腐食割れに及ぼす $\gamma$ 線照射の影響に関する研究を行なった結果をまとめたものである。

なお、本研究は、日本原子力研究所と（株）神戸製鋼所とにおいて共同で実施された。すなわち、放射線照射による腐食試験および総合的な評価を日本原子力研究所が分担し、供試体の作製および供試体の物性測定とその解析を（株）神戸製鋼所が分担した。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試材料および熱処理条件

供試材料は、(1) SUS304, (2) SUS304L, (3) SUS304EL, (4) SUS309S, (5) Incoloy 825, (6) Inconel 600, (7) Inconel 625, (8) SMA50（耐候性鋼）の8種類であり、その化学成分および溶接による熱影響を模擬した鋭敏化のための熱処理条件を第1表に示す。

なお、試験片への応力付加方法として定歪み法を採用した。すなわち、第1図に示すように試験片

の形状をダブルUペンドにした。さらに応力腐食割れの促進を行なうために頂部にVノッチを入れた試験片についても実施した。また、試験片の数は、各鋼種につき各々2個ずつである。

## 2.2 $\gamma$ 線照射

### 2.2.1 $\gamma$ 線源

$\gamma$ 線源として、日本原子力研究所原子炉化学部固体化学研究室のCo-60を使用した。線源量は、45KCi(線源製造時)であり、線源より約35cmの距離に試験片を置いて照射した。その場所における線量率は、約 $1.1 \times 10^5$ R/hrである(実験時昭和56年10月16日現在)。なお、実験装置については以下に詳細に述べるが、本実験ではアルミニウム製水槽(第一次試験)とパイレックスガラス製フラスコ(第二次試験)を使用した。このアルミニウム(5mm厚さ)は、Co-60よりの $\gamma$ 線を約5%吸収し、パイレックスガラスもごくわずかの $\gamma$ 線を吸収するが、少量であるので無視して、すべて線量率は $1.1 \times 10^5$ R/hrとみなした。

### 2.2.2 照射方法

ガラス固化体の中間貯蔵は、水冷方式あるいは空冷方式が各国で検討されている。<sup>9)</sup>本研究では、水冷方式を想定したイオン交換水による浸漬試験および空冷方式を想定した乾式試験を実施した。

#### (1) 浸漬試験

第一次試験として、第2図に示すようにアルミニウム製水槽を用いて応力腐食割れ試験を実施した。なお、各試験片とそれを置いたアルミニウム製の棚とは直接接触しないように、それらの間にガラスウールを敷いた。また、前述の如く、この水槽の中心が照射ケーブル内のCo-60線源より35cmの位置になる様に設置した。使用した水はイオン交換水であり、投げ込みパイプヒータにより沸騰状態にした。なお、アルミニウム製水槽の寸法は、 $310\text{ mm} \times 150\text{ mm} \times 400\text{ mm}$ で、その中に入れたイオン交換水量は約15lであるが、水槽から若干漏出する蒸気による水の減少を補なうため外部より約2l/dayのイオン交換水を自動的に補給できる構造にした。また、比較試験として、 $\gamma$ 線を照射しない試験についても同様に実施した。

第一次試験でのイオン交換水を補給する方法においては、補給水より試験水中へ、応力腐食割れの誘因となる溶存酸素および塩化物(大気中に含まれている塩化物と考えられる)の混入が考えられた。それを改良するため第二次試験として第3図に示すようなパイレックスガラス製の1lフラスコおよびコンデンサーを使用して、試験片鋼種を少数に限定して試験を行なった。使用した水は、第一次試験と同様イオン交換水であり、外部より電熱器で加熱して沸騰状態にした。なお、この場合、発生した蒸気は、コンデンサーによってほとんど還流されるので、途中の水補給は、塩素イオン分析用のサンプリングによる不足分を補なう以外には行なわなかった。また、この補給水は、脱気のため予め沸騰させたイオン交換水を使用した。比較試験として、 $\gamma$ 線を照射しない試験についても同様に行なった。

また、応力腐食割れに及ぼす因子の中で、液中の塩素イオンは、最も大きな影響を与える因子の一つであるとされていることから、液中の塩素イオン濃度をJISK1010の吸光光度法により測定した。これは、試料にチオシアント酸水銀(II)と硫酸鉄(III)アンモニウムを加えた時、塩素イオンによって置換されたチオシアント酸イオンと鉄(III)とが反応して生じるだいだい赤の吸光度を

測定して塩素イオンを定量する方法である。

### (2) 乾式試験

第一次浸漬試験で使用したアルミニウム製棚と同様のものを使用し、その中に各試験片を置いて常温空気の雰囲気中で $\gamma$ 線照射を行なった。第一次浸漬試験と同様に、各試験片アルミニウム製棚とが直接接触しない様にそれらの間にガラスウールを敷いた。また、比較試験として、 $\gamma$ 線を照射しない試験についても同様に行なった。

### (3) 照射時間

照射時間は、第一次浸漬試験および乾式試験では最長180日間にした。その時の全照射線量は、約 $5.2 \times 10^8$  Rである。なお、SUS304およびSUS304ELについては、途中、7日、14日、30日、60日および90日間にてもサンプリングした。また、第二次浸漬試験においては、供試した試験片は、SUS304およびSUS304ELの2鋼種のみとし、7日、14日、30および60日間照射し、照射量との関係を調べた。なお、60日間の全照射線量は、約 $1.7 \times 10^8$  Rである。

## 2.3 物性測定

### 2.3.1 応力腐食割れ感受性の評価

各供試鋼の $\gamma$ 線照射下および非照射下での応力腐食割れにおける割れ感受性の評価は、試験後試験片の目視観察および試験片長手方向切断面の光学顕微鏡観察により、割れの有無、割れ深さおよび割れの数を測定することによって行なった。

### 2.3.2 走査電顕による応力腐食割れ破面観察

第一次のイオン交換水浸漬における180日間浸漬試験片について、試験中に生じた応力腐食割れの破面形態を走査電顕により観察し、 $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響を調べた。

### 2.3.3 顕微鏡組織観察および硬度測定

$\gamma$ 線照射によって、各供試鋼の組織および硬度が変化するかどうかを調べるために、 $\gamma$ 線照射前後の試験片について、顕微鏡組織観察および硬度測定を行なった。顕微鏡組織観察のためのエッティング液は、SMA50（耐候性鋼）にはナイタルを、他の供試鋼には全て王水を用いた。硬度は、ビックース硬度計を用いて測定した。

## 3. 実験結果

### 3.1 水冷貯蔵を想定した浸漬による応力腐食割れ試験

#### 3.1.1 第一次試験

##### (1) 応力腐食割れ感受性評価

第2表にアルミニウム製水槽を用いた沸騰イオン交換水中における応力腐食割れ試験（第一次試験）結果をまとめて示す。第2表より明らかなように、 $\gamma$ 線照射、非照射の区別なくSUS304、

測定して塩素イオンを定量する方法である。

### (2) 乾式試験

第一次浸漬試験で使用したアルミニウム製棚と同様のものを使用し、その中に各試験片を置いて常温空気の雰囲気中で $\gamma$ 線照射を行なった。第一次浸漬試験と同様に、各試験片アルミニウム製棚とが直接接触しない様にそれらの間にガラスウールを敷いた。また、比較試験として、 $\gamma$ 線を照射しない試験についても同様に行なった。

### (3) 照射時間

照射時間は、第一次浸漬試験および乾式試験では最長180日間にした。その時の全照射線量は、約 $5.2 \times 10^8$  Rである。なお、SUS304およびSUS304ELについては、途中、7日、14日、30日、60日および90日間にてもサンプリングした。また、第二次浸漬試験においては、供試した試験片は、SUS304およびSUS304ELの2鋼種のみとし、7日、14日、30および60日間照射し、照射量との関係を調べた。なお、60日間の全照射線量は、約 $1.7 \times 10^8$  Rである。

## 2.3 物性測定

### 2.3.1 応力腐食割れ感受性の評価

各供試鋼の $\gamma$ 線照射下および非照射下での応力腐食割れにおける割れ感受性の評価は、試験後試験片の目視観察および試験片長手方向切断面の光学顕微鏡観察により、割れの有無、割れ深さおよび割れの数を測定することによって行なった。

### 2.3.2 走査電顕による応力腐食割れ破面観察

第一次のイオン交換水浸漬における180日間浸漬試験片について、試験中に生じた応力腐食割れの破面形態を走査電顕により観察し、 $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響を調べた。

### 2.3.3 顕微鏡組織観察および硬度測定

$\gamma$ 線照射によって、各供試鋼の組織および硬度が変化するかどうかを調べるために、 $\gamma$ 線照射前後の試験片について、顕微鏡組織観察および硬度測定を行なった。顕微鏡組織観察のためのエッティング液は、SMA50（耐候性鋼）にはナイタルを、他の供試鋼には全て王水を用いた。硬度は、ビックース硬度計を用いて測定した。

## 3. 実験結果

### 3.1 水冷貯蔵を想定した浸漬による応力腐食割れ試験

#### 3.1.1 第一次試験

##### (1) 応力腐食割れ感受性評価

第2表にアルミニウム製水槽を用いた沸騰イオン交換水中における応力腐食割れ試験（第一次試験）結果をまとめて示す。第2表より明らかなように、 $\gamma$ 線照射、非照射の区別なくSUS304、

SUS304LおよびSUS309S鋼に応力腐食割れが生じ、他の鋼種（SUS304EL, Inconel 600, Inconel 625およびSMA50）には応力腐食割れは認められなかった。

SUS304鋼に生じた応力腐食割れは、7日、14日および30日間の浸漬試験では、 $\gamma$ 線照射の有無、ダブルU-ベンド試験片のVノッチの有無の区別なく、ダブルU-ベンドの内側試験片のみに認められた。これは、ダブルU-ベンド法によって附与された隙間が応力腐食割れを加速していることを示すものである。60日、90日および180日間の浸漬試験では、Vノッチ無しのダブルU-ベンド試験片は、内側試験片にのみ応力腐食割れが生じたが、Vノッチ付きのダブルU-ベンド試験片は、内側試験片のみならず外側試験片にも応力腐食割れが生じた。

Vノッチ付きダブルU-ベンド試験片に生じた応力腐食割れは、内側試験片の場合には、Vノッチの底部より生じるもの、Vノッチの底部およびVノッチ部以外の部の両部で生じるものおよびVノッチ以外の部分のみに生じるもの3通りがあったが、外側試験片の場合には、応力腐食割れが生じたものは、必ずVノッチ底部から生じた。これらの応力腐食割れ形態は、後述するように、全て典型的な粒界割れであり、7日間の浸漬試験では、その割れ深さが1.3～1.8mmで14日間以上の浸漬試験では、いずれも厚さ2mmの試験片を貫通する激しいものであった。

SUS304LおよびSUS309S鋼については、180日間の浸漬試験のみ実施したが、SUS304鋼と同様に、ダブルU-ベンドの内側試験片は全て厚さ2mmの試験片を貫通する応力腐食割れが発生した。

第3表に、SUS304鋼の7日、14日および30日間の浸漬試験によって生じた応力腐食割れの割れ数を計測した結果を示す。全体に、 $\gamma$ 線を照射しない場合に比べて、 $\gamma$ 線を照射した場合の方が、割れの数が増し、 $\gamma$ 線照射によって、応力腐食割れ感受性が高まる傾向が認められたが、明確なものではなかった。

## (2) 試験液中の塩素イオン濃度測定

第4表に、第一次試験における試験水中の塩素イオン濃度を測定した結果を示す。測定は、 $\gamma$ 線照射および非照射下のそれぞれについて、7日、14日、30日、60日および90日間浸漬試験後の試験水を採取して行なった。これらの期間において、試験水は、7日間浸漬後、14日間浸漬後および30日間浸漬試験後にそれぞれ更新した。

この表からわかるように、試験水には0.2～3.8ppmの塩素イオンが存在していた。通常、比抵抗が $5 \times 10^6 \Omega \text{cm}$ 以上のイオン交換水中の塩素イオン濃度は0.1ppm以下であるので、これらの塩素イオンは、アルミニウム製水槽への補給水から混入したものと考えられる。（この補給水もイオン交換水を用いているが、実験場所の環境条件、即ち海岸地帯の大気に接しているのが原因と考えられる。）

## 3.1.2 第二次試験

### (1) 応力腐食割れ感受性評価

上記のように、第一次試験において応力腐食割れが生じたのは、SUS304, SUS304LおよびSUS309S鋼であり、非照射のものにも生じたことからこれらの応力腐食割れ感受性に及ぼす $\gamma$ 線照射の影響はあまり明確なものではなかった。 $\gamma$ 線照射をしない場合の沸騰イオン交換水中でも応力腐食割れが生じたのは、上記の塩素イオンの混入と、補給水中の溶存酸素が原因と考えられた。

そこで、第3図に示した様なガラス製のフラスコ（容量1ℓ）とコンデンサーを用いて、試験液

を補給しない方法により応力腐食割れ試験（第二次試験）を行なった。この応力腐食割れ試験には、SUS 304 鋼と SUS 304 EL 鋼のみを供した。その結果を第 4 図および第 5 表に示す。

その結果、応力腐食割れを生じたのは、SUS 304 鋼の  $\gamma$  線照射の場合だけであり、7 日間浸漬試験では、0.8 ~ 1.1 mm 深さの割れが発生し、14 日間、30 日間と浸漬時間が長くなるとともに割れは深くなり、60 日間浸漬時間では割れは厚さ 2 mm の試験片を貫通していた。そして、第一次試験と同様、V ノッチ無しのダブル U - ベンド試験片では、応力腐食割れは、内側試験片にのみ認められ、V ノッチ付きダブル U - ベンド試験片の場合では、内側試験片は、ノッチ底およびノッチ部以外の部分で応力腐食割れが認められると共に外側試験片のノッチ底からも応力腐食割れが生じた。

SUS 304 鋼の非照射の場合および SUS 304 EL 鋼の  $\gamma$  線照射および非照射の場合には応力腐食割れは認められなかった。

#### (2) 試験水中の塩素イオン濃度測定

第 6 表に、第二次試験における試験水中の塩素イオン濃度を測定した結果を示す。その結果、 $\gamma$  線照射および非照射下における応力腐食割れの試験水には両者共に、含有する塩素は 0.7 ppm 以下であった。これらの含有量は、第一次試験の場合に比べて全体に少ないが、それでも、イオン含有量分析限界値である 0.1 ppm より多く含有する場合が認められた。

#### 3.1.3 応力腐食割れ形態の観察

第一次試験および第二次試験において生じた SUS 304, SUS 304 L および SUS 309 S の応力腐食割れ形態の光学顕微鏡による観察結果を写真 1 ~ 写真 3 に示す。また、第一次試験における SUS 304 および SUS 309 S 鋼の応力腐食割れ破面の走査電顕による観察結果を写真 4 と写真 5 に示す。

これらの写真から明らかなように、SUS 304, SUS 304 L および SUS 309 S 鋼に生じた応力腐食割れは典型的な粒界割れであり、 $\gamma$  線照射下と非照射下による相異は全く認められなかった。

#### 3.1.4 顕微鏡による組織観察

各供試鋼について第一次浸漬試験における 180 日後の  $\gamma$  線照射および非照射のそれぞれの場合の光学顕微鏡組織を写真 6 および写真 7 に示す。写真から明らかなように、 $\gamma$  線照射下と非照射下の場合とでは、それらの組織には何らの相異も認められなかった。

#### 3.1.5 硬度測定

第一次浸漬試験の 180 日後の各供試鋼試験片について、 $\gamma$  線照射および非照射のそれぞれの場合の硬度測定結果を第 7 表に示す。

$\gamma$  線照射下と非照射下の場合とでは、それらの硬度にはほとんど変化がなく、いずれも通常のばらつきの範囲内にあった。

### 3.2 空冷方式を想定した乾式による応力腐食割れ試験

常温の大気中における応力腐食割れ試験（試験期間および  $\gamma$  線照射条件は、全てイオン交換水浸漬試験と同じ）の結果は、いずれの鋼種とも  $\gamma$  線照射下および非照射下の両者において応力腐食割れは

全く認められず、SMA 50（耐候性鋼）が錆を発生した以外は何らの変化も認められなかった。

## 4. 考 察

### (1) 溶存酸素の影響

アルミニウム製水槽を用いた第一次浸漬試験においては、SUS 304, SUS 304L および SUS 309S 鋼は、 $\gamma$ 線照射の有無にかかわらず粒界応力腐食割れを生じたのに対して、ガラス製フラスコとコンデンサーを用いた第二次浸漬試験においては、SUS 304 鋼が、 $\gamma$ 線照射下においてのみ粒界応力腐食割れを生じ、 $\gamma$ 線を照射しない場合には全く応力腐食割れを生じなかった。これら第一次浸漬試験と第二次浸漬試験の試験方法の相異は、容器の他に、第一次浸漬試験においてはアルミニウム製水槽より若干漏出する水蒸気を補うため、外部よりイオン交換水を自動的に補給（蒸気により漏出して液面が下がるとサイフォンによってアルミニウム製水槽に常温のイオン交換水が流入する。1日約 2 ℥の補給水が流入した。）したのに対して、第二次浸漬試験においては、塩素イオン分析用の試験液を採取した分だけイオン交換水を補給したにすぎないという相異があった。また、この後者においては、補給するイオン交換水は、予め沸騰させて脱気し  $O_2$  の混入を極力避けた。したがって、上記の応力腐食割れ挙動の相異は、この補給水に起因するものと考えられる。

塩素イオン濃度が本試験における濃度よりもさらに低い高温純水中におけるステンレス鋼の粒界応力腐食割れが 1974 年に米国の軽水炉 (Dresden 2 号) の配管系に使用されていた 304 鋼ステンレス鋼管溶接継手の溶接熱影響部に発見された。その後の多くの研究により、その原因是、溶接熱影響による Cr 炭化物の粒界析出に起因する Cr 欠乏層の生成（この状態を鋭敏化と呼ぶことにする），<sup>10)</sup> 高い引張り応力および高温純水中の溶存酸素の 3 者の相乗作用によることが明らかにされている。すなわち、鋭敏化ステンレス鋼が粒界応力腐食割れを起こすためには溶存酸素のような酸化剤の存在が不可欠であり、0.2 ppm 程度の溶存酸素でも粒界応力腐食割れ感受性を示すが、0.1 ppm 以下ではほとんど感受性を示さなくなる。<sup>11), 12)</sup> また、塩化物の存在は、この応力腐食割れを加速するが、溶存酸素が<sup>13), 14), 15)</sup> ほとんど無い場合には、塩化物の存在のみでは応力腐食割れを生じないことも確認されている。

本試験においては、第 4 表および第 6 表に示したように、第一次浸漬試験および第二次浸漬試験における試験水中の塩素イオン含有量は、若干、前者の方が多かったものの、応力腐食割れ感受性を左右する程の差はなかった。したがって、 $\gamma$ 線を照射しない場合、第一次浸漬試験では応力腐食割れを生じ、第二次浸漬試験では応力腐食割れを生じなかったのは、前者の試験における補給水中の溶存酸素の作用によるものと推察される。

### (2) $\gamma$ 線照射の影響

上記のように、第一次浸漬試験においては、補給水中の溶存酸素の作用によって $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響があまり明確ではなかったが、第二次浸漬試験においては $\gamma$ 線照射の影響が明らかであった。

写真 6, 写真 7 および第 7 表に示したように、各供試鋼は 180 日間の照射（全照射量  $5.2 \times 10^8$  R）によっても、それらの鋼の組織および硬度には何らの変化も認められなかつたこと、あるいは、乾式の試験において 180 日間の照射によっても応力腐食割れは発生しなかつたことから、 $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響は放射線分解生成物に依存することが明らかである。

全く認められず、SMA 50（耐候性鋼）が鏽を発生した以外は何らの変化も認められなかった。

## 4. 考 察

### (1) 溶存酸素の影響

アルミニウム製水槽を用いた第一次浸漬試験においては、SUS 304, SUS 304L および SUS 309S 鋼は、 $\gamma$ 線照射の有無にかかわらず粒界応力腐食割れを生じたのに対して、ガラス製フラスコとコンデンサーを用いた第二次浸漬試験においては、SUS 304 鋼が、 $\gamma$ 線照射下においてのみ粒界応力腐食割れを生じ、 $\gamma$ 線を照射しない場合には全く応力腐食割れを生じなかった。これら第一次浸漬試験と第二次浸漬試験の試験方法の相異は、容器の他に、第一次浸漬試験においてはアルミニウム製水槽より若干漏出する水蒸気を補うため、外部よりイオン交換水を自動的に補給（蒸気により漏出して液面が下がるとサイフォンによってアルミニウム製水槽に常温のイオン交換水が流入する。1日約 2 ℥の補給水が流入した。）したのに対して、第二次浸漬試験においては、塩素イオン分析用の試験液を採取した分だけイオン交換水を補給したにすぎないという相異があった。また、この後者においては、補給するイオン交換水は、予め沸騰させて脱気し  $O_2$  の混入を極力避けた。したがって、上記の応力腐食割れ挙動の相異は、この補給水に起因するものと考えられる。

塩素イオン濃度が本試験における濃度よりもさらに低い高温純水中におけるステンレス鋼の粒界応力腐食割れが 1974 年に米国の軽水炉（Dresden 2 号）の配管系に使用されていた 304 鋼ステンレス鋼管溶接継手の溶接熱影響部に発見された。その後の多くの研究により、その原因是、溶接熱影響による Cr 炭化物の粒界析出に起因する Cr 欠乏層の生成（この状態を鋭敏化と呼ぶことにする）、<sup>10)</sup> 高い引張り応力および高温純水中の溶存酸素の 3 者の相乗作用によることが明らかにされている。すなわち、鋭敏化ステンレス鋼が粒界応力腐食割れを起こすためには溶存酸素のような酸化剤の存在が<sup>11), 12)</sup> 不可欠であり、0.2 ppm 程度の溶存酸素でも粒界応力腐食割れ感受性を示すが、0.1 ppm 以下ではほとんど感受性を示さなくなる。<sup>12)</sup> また、塩化物の存在は、この応力腐食割れを加速するが、溶存酸素が<sup>13), 14), 15)</sup> ほとんど無い場合には、塩化物の存在のみでは応力腐食割れを生じないことも確認されている。

本試験においては、第 4 表および第 6 表に示したように、第一次浸漬試験および第二次浸漬試験における試験水中の塩素イオン含有量は、若干、前者の方が多かったものの、応力腐食割れ感受性を左右する程の差はなかった。したがって、 $\gamma$ 線を照射しない場合、第一次浸漬試験では応力腐食割れを生じ、第二次浸漬試験では応力腐食割れを生じなかったのは、前者の試験における補給水中の溶存酸素の作用によるものと推察される。

### (2) $\gamma$ 線照射の影響

上記のように、第一次浸漬試験においては、補給水中の溶存酸素の作用によって $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響があまり明確ではなかったが、第二次浸漬試験においては $\gamma$ 線照射の影響が明らかであった。

写真 6, 写真 7 および第 7 表に示したように、各供試鋼は 180 日間の照射（全照射量  $5.2 \times 10^8$  R）によっても、それらの鋼の組織および硬度には何らの変化も認められなかったこと、あるいは、乾式の試験において 180 日間の照射によっても応力腐食割れは発生しなかったことから、 $\gamma$ 線照射の応力腐食割れに及ぼす影響は放射線分解生成物に依存することが明らかである。

3) 5)

A. V. Byalobzheskii や W. N. Rankin は、18-8ステンレス鋼の水溶液中での腐食速度が  $\gamma$  線照射の影響によって減少し、その原因は不働態皮膜の強化によると報告している。このことは、 $\gamma$  線照射によって腐食環境中の酸化力が増加、すなわち、酸化剤濃度が増加したことを意味している。また、水は、放射線分解により  $O_2$ ,  $O_2^-$ ,  $HO_2^-$  等酸化剤として作用する物質を生成すると言われている。<sup>16)</sup>

本研究においては、 $\gamma$  線照射による環境条件の変化について解明するに到らなかったが、第二次浸漬試験におけるように、外部からの溶存酸素の混入を除外した条件下においては  $\gamma$  線照射の場合にのみ応力腐食割れが生じ、その割れ形態も溶存酸素を含む照射しない高温純水中における鋭敏化 304 鋼の粒界応力腐食割れと全く同様であった。また、V ノッチの附与されていないダブル U - ベンド試験片においては、ダブル U - ベンド試験片の内側試験片にのみ応力腐食割れが生じるという隙間の応力腐食割れ加速効果が認められたことから、 $\gamma$  線の照射によって、 $O_2$  等の酸化剤として作用する物質が生成したことはまず間違いないものと思われる。<sup>17), 18)</sup>

#### (3) 隙間の影響

第 2 表および第 5 表に示した結果から明らかのように、V ノッチの無いダブル U - ベンド試験片による応力腐食割れ試験の結果、応力腐食割れは、全てダブル U - ベンド試験片の内側試験片にのみ生じ、外側試験片には生じなかった。

本研究に用いたこのダブル U - ベンド法のような定歪式応力腐食割れ試験においては、高温純水中にて鋭敏化 304 ステンレス鋼が粒界応力腐食割れを生じるためには、溶存酸素と共に、隙間の存在が必要であることが明らかにされている。<sup>17), 18), 19)</sup> 溶存酸素と隙間の共存によって、隙間内外に、いわゆる酸素濃淡電池が形成され、隙間内部はアノード、隙間外部はカソードとなり、隙間内部での溶出金属イオンの加水分解によって pH が低下し、Cr 欠乏部の不働態皮膜が破壊される pH 値になったとき、粒界応力腐食割れが生じることが電気化学的検討により裏付けられている。<sup>17), 18), 19)</sup>

本研究においても、上記考察のように、 $\gamma$  線照射による酸化剤物質の生成により、酸化剤濃淡電池形成に基づく隙間腐食の発生と隙間内部での pH の低下をもたらしたものと推察される。

一方、V ノッチ付きのダブル U - ベンド試験片では、ダブル U - ベンド試験片の外側試験片にも粒界応力腐食割れが発生した。この場合、内側試験片では、ノッチ部以外の部分でも応力腐食割れが生じ、これは、上記の V ノッチ無しのダブル U - ベンド試験片に生じた応力腐食割れと同様の機構によるものである。一方、外側試験片の場合には、応力腐食割れが生じたのは、ノッチ底に限定されていた。写真 8 は、ダブル U - ベンド加工後の V ノッチ部の一例を示す。この写真に認められるように、V ノッチ底には、曲げ加工による機械的な割れが生じていた。したがって、このような割れが存在する場合には、この割れ部分が隙間として作用したものと考えられる。しかしながら、外側試験片のノッチ底から応力腐食割れが生じたのは、60 日間以上の浸漬試験においてであり、180 日間浸漬試験においても応力腐食割れが生じない場合もあった。これは、V ノッチの機械加工のばらつき等に原因しているものと思われる。このノッチ底の曲げ加工による機械的な割れは、ダブル U - ベンド試験片による幾可学的隙間としての作用が弱い。

#### (4) 鋼種の影響

第 2 表および第 5 表から明らかなように、本研究による供試鋼のうちで、粒界応力腐食割れ感受性を示したものは、SUS304, SUS304L および SUS309S の 3 鋼種であった。

供試鋼は、いずれも溶体化熱処理後、700 °C × 100 min + 空冷 + 500 °C × 24 hr + 空冷という

銳敏化熱処理を施した。したがって、C含有量の比較的多いSUS304, SUS304LおよびSUS309S鋼では、Cr炭化物の粒界析出に基づくCr欠乏層が生成していたことはまず間違いないものと思われる。溶存酸素を含む高温純水中における18-8系ステンレス鋼の粒界応力腐食割れに及ぼす鋼中C含有量の影響に関する報告は多数あるが、いずれも、C含有量が、0.020%以下の場合には、<sup>20)</sup>粒界応力腐食割れ感受性が著しく低下するとされており、本研究においてもC含有量が0.015%のSUS304ELは粒界応力腐食割れ感受性を示さず、良い一致が認められた。

Incoloy 825およびInconel 625は、いずれも安定化元素(TiおよびNb)が多量に含まれていることによって上記熱処理ではCr欠乏層は生成しないので、粒界応力腐食割れは生じなかった。

Inconel 600は、Incoloy 825およびInconel 625と異なり、TiあるいはNbのような安定化元素は含まれていないが粒界応力腐食割れは生じなかった。この理由として、次のような事も考えられる。すなわち、Inconel 600は、高Ni含有量のため、CおよびCrの拡散が速く、そのため700°C前後で長時間加熱されると、Cr欠乏層へのCrの再拡散によってCr欠乏層が回復し、<sup>21), 22)</sup>粒界応力腐食割れ感受性が低下するとの報告がある。本研究においても、写真8に示したようにInconel 600の顕微鏡組織には粒界析出物が多量に認められることから、上記700°C×100minの熱処理によってCr欠乏層の回復が生じているものと思われること、および試験環境温度が低い(100°C)ことのため応力腐食割れが生じなかつたものと推察される。

## 5. 結 言

高レベル放射性廃棄物取扱い施設の安全性評価研究の一環として、高レベル廃棄物の中間貯蔵を想定して、キャニスター、オーバーパックおよび貯蔵施設用の金属材料として有望視されているものの応力腐食割れに及ぼす $\gamma$ 線の影響の検討を行なった。特に、その有力な候補材料として考えられているステンレス鋼の耐応力腐食割れ性について評価した。

その結果、銳敏化したステンレス鋼は、水冷貯蔵のような浸漬条件下では $\gamma$ 線照射によって粒界応力腐食割れ感受性を示したが、空冷貯蔵時を想定した大気中放置下においては応力腐食割れ感受性を示さないことが判った。銳敏化ステンレス鋼がこのような条件下で粒界応力腐食割れを生じたのは、 $\gamma$ 線照射によって金属の性質が変化するからではなく、 $\gamma$ 線照射によって環境条件の変化すなわち水の放射線分解によってO<sub>2</sub>等が生成するからであると考えられる。また、 $\gamma$ 線照射をしなくとも、銳敏化ステンレス鋼は、微量の塩素イオンと溶存酸素が共存する場合には、粒界応力腐食割れを生じることが確認された。このことは、水冷貯蔵時の水質管理の重要性を意味するものである。

一方、本研究において、材料側因子の詳細な検討は行なわなかったが、一般に、銳敏化ステンレス鋼の粒界応力腐食割れは、Cr炭化物の粒界析出に基づくCr欠乏層の生成に起因することが明らかとなっており、本研究結果においても、C含有量の少ないSUS304EL鋼やTi, Nbの安定化元素を含有するIncoloy 825, Inconel 625は優れた耐粒界応力腐食割れ性を示した。

なお、本応力腐食割れ研究においては、 $\gamma$ 線照射の線量率は1条件であり、試験液も沸騰イオン交換水のみを使用したが、今後の課題としては、これら環境条件の検討、電気化学的手法を用いた解析などがあり、今後実施する予定である。

銳敏化熱処理を施した。したがって、C含有量の比較的多いSUS304, SUS304LおよびSUS309S鋼では、Cr炭化物の粒界析出に基づくCr欠乏層が生成していたことはまず間違いないものと思われる。溶存酸素を含む高温純水中における18-8系ステンレス鋼の粒界応力腐食割れに及ぼす鋼中C含有量の影響に関する報告は多数あるが、いずれも、C含有量が、0.020%以下の場合には、<sup>20)</sup>粒界応力腐食割れ感受性が著しく低下するとされており、本研究においてもC含有量が0.015%のSUS304ELは粒界応力腐食割れ感受性を示さず、良い一致が認められた。

Incoloy 825およびInconel 625は、いずれも安定化元素(TiおよびNb)が多量に含まれていることによって上記熱処理ではCr欠乏層は生成しないので、粒界応力腐食割れは生じなかった。

Inconel 600は、Incoloy 825およびInconel 625と異なり、TiあるいはNbのような安定化元素は含まれていないが粒界応力腐食割れは生じなかった。この理由として、次のような事も考えられる。すなわち、Inconel 600は、高Ni含有量のため、CおよびCrの拡散が速く、そのため700°C前後で長時間加熱されると、Cr欠乏層へのCrの再拡散によってCr欠乏層が回復し、<sup>21), 22)</sup>粒界応力腐食割れ感受性が低下するとの報告がある。本研究においても、写真8に示したようにInconel 600の顕微鏡組織には粒界析出物が多量に認められることから、上記700°C×100minの熱処理によってCr欠乏層の回復が生じているものと思われること、および試験環境温度が低い(100°C)ことのため応力腐食割れが生じなかつたものと推察される。

## 5. 結 言

高レベル放射性廃棄物取扱い施設の安全性評価研究の一環として、高レベル廃棄物の中間貯蔵を想定して、キャニスター、オーバーパックおよび貯蔵施設用の金属材料として有望視されているものの応力腐食割れに及ぼす $\gamma$ 線の影響の検討を行なった。特に、その有力な候補材料として考えられているステンレス鋼の耐応力腐食割れ性について評価した。

その結果、銳敏化したステンレス鋼は、水冷貯蔵のような浸漬条件下では $\gamma$ 線照射によって粒界応力腐食割れ感受性を示したが、空冷貯蔵時を想定した大気中放置下においては応力腐食割れ感受性を示さないことが判った。銳敏化ステンレス鋼がこのような条件下で粒界応力腐食割れを生じたのは、 $\gamma$ 線照射によって金属の性質が変化するからではなく、 $\gamma$ 線照射によって環境条件の変化すなわち水の放射線分解によってO<sub>2</sub>等が生成するからであると考えられる。また、 $\gamma$ 線照射をしなくとも、銳敏化ステンレス鋼は、微量の塩素イオンと溶存酸素が共存する場合には、粒界応力腐食割れを生じることが確認された。このことは、水冷貯蔵時の水質管理の重要性を意味するものである。

一方、本研究において、材料側因子の詳細な検討は行なわなかったが、一般に、銳敏化ステンレス鋼の粒界応力腐食割れは、Cr炭化物の粒界析出に基づくCr欠乏層の生成に起因することが明らかとなっており、本研究結果においても、C含有量の少ないSUS304EL鋼やTi, Nbの安定化元素を含有するIncoloy 825, Inconel 625は優れた耐粒界応力腐食割れ性を示した。

なお、本応力腐食割れ研究においては、 $\gamma$ 線照射の線量率は1条件であり、試験液も沸騰イオン交換水のみを使用したが、今後の課題としては、これら環境条件の検討、電気化学的手法を用いた解析などがあり、今後実施する予定である。

## 謝 辞

本研究を実施するに当り、終始、激励と御助言をいただいた環境安全研究部 今井和彦部長に感謝致します。また、本研究をまとめるに当り、有益な御助言をいただいた燃料工学部 近藤達男次長に感謝致します。さらに、本研究の遂行に当り、御助言と御助力をいただいた環境安全研究部高レベル廃棄物処理研究室 妹尾宗明副主任研究員に感謝致します。また、 $\gamma$ 線照射に当り、御助力をいただいた原子炉化学部固体化学研究室 長山尚主査、大久保隆氏、塩素イオン分析に当り、快く装置をお貸し下さった上御助力をいただいた材料試験炉部照射第三課 青山功課長、山本克宗係長、横内猪一郎主査および動力試験炉部動力試験炉技術課 畠山睦夫係長、鎌田崇主査に感謝致します。

また、腐食試験に当り、有益な御助言をいただいた（株）神戸製鋼所中央研究所 下郡一利次席研究員に感謝致します。

## 参考文献

- 1) 田坂 : JAERI-1250 ('77)
- 2) 大野、吉川 : 原子力工業, 20 4 ('74)
- 3) A. V. Byalobzheskii (translated by A. Aladjem) : Israel Program for Scientific Translation Ltd. ('70) (translated from Russian)
- 4) J. W. Braithwaite and M. A. Molecke : Nuclear and Chemical Waste Management, 1 1 ('80)
- 5) W. N. Rankin : DP-MS-80-47 ('80)
- 6) N. Fujita, M. Akiyama and T. Tamura : Corrosion NACE, 37 6 ('81)
- 7) 室井、藤田、秋山 : 日本原子力学会年会要旨集 第1分冊, ('81)
- 8) 栗林、岡林 : 日本金属学会春季大会一般講演概要 ('81)
- 9) 降矢、村岡、田代 : JAERI-M 82-007 ('82)
- 10) 例えば、C. F. Cheng : J. of Nuclear Materials, 56 11 ('75)
- 11) F. P. Ford and M. J. Pouich : Corrosion, 35 569 ('79)
- 12) M. E. Indig and A. R. McIllee : Paper presented to NACE Corrosion /'78, paper No 190
- 13) 杉本、前川、香川 : 防食技術, 14 4 p.11 ('65)
- 14) 小若 : 鉄と鋼, 60 3 p.105 ('74)
- 15) 清水 : 原子力工業, 21 7 p.19 ('76)
- 16) 例えば、O. Allen : "The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solution", D. Van Nostrand ('61)
- 17) T. Fukuzuka, K. Shimogori, K. Fujiwara and H. Tomari : Proceedings, Seminar on Countermeasures for Pipe Cracking in BWRs, paper No 33. EPRI, WS-79-174, Workshop Report ('80)
- 18) 藤原、泊里、下郡、福塚 : 防食技術, 30 p.270 ('81)
- 19) K. Fujiwara, H. Tomari, K. Shimogori and T. Fukuzuka : Corrosion, 38

## 謝 辞

本研究を実施するに当り、終始、激励と御助言をいただいた環境安全研究部 今井和彦部長に感謝致します。また、本研究をまとめるに当り、有益な御助言をいただいた燃料工学部 近藤達男次長に感謝致します。さらに、本研究の遂行に当り、御助言と御助力をいただいた環境安全研究部高レベル廃棄物処理研究室 妹尾宗明副主任研究員に感謝致します。また、 $\gamma$ 線照射に当り、御助力をいただいた原子炉化学部固体化学研究室 長山尚主査、大久保隆氏、塩素イオン分析に当り、快く装置をお貸し下さった上御助力をいただいた材料試験炉部照射第三課 青山功課長、山本克宗係長、横内猪一郎主査および動力試験炉部動力試験炉技術課 畠山睦夫係長、鎌田崇主査に感謝致します。

また、腐食試験に当り、有益な御助言をいただいた（株）神戸製鋼所中央研究所 下郡一利次席研究員に感謝致します。

## 参考文献

- 1) 田坂 : JAERI-1250 ('77)
- 2) 大野、吉川 : 原子力工業, 20 4 ('74)
- 3) A. V. Byalobzheskii (translated by A. Aladjem) : Israel Program for Scientific Translation Ltd. ('70) (translated from Russian)
- 4) J. W. Braithwaite and M. A. Molecke : Nuclear and Chemical Waste Management, 1 1 ('80)
- 5) W. N. Rankin : DP-MS-80-47 ('80)
- 6) N. Fujita, M. Akiyama and T. Tamura : Corrosion NACE, 37 6 ('81)
- 7) 室井、藤田、秋山 : 日本原子力学会年会要旨集 第1分冊, ('81)
- 8) 栗林、岡林 : 日本金属学会春季大会一般講演概要 ('81)
- 9) 降矢、村岡、田代 : JAERI-M 82-007 ('82)
- 10) 例えば、C. F. Cheng : J. of Nuclear Materials, 56 11 ('75)
- 11) F. P. Ford and M. J. Pouich : Corrosion, 35 569 ('79)
- 12) M. E. Indig and A. R. McIllee : Paper presented to NACE Corrosion /'78, paper No 190
- 13) 杉本、前川、香川 : 防食技術, 14 4 p.11 ('65)
- 14) 小若 : 鉄と鋼, 60 3 p.105 ('74)
- 15) 清水 : 原子力工業, 21 7 p.19 ('76)
- 16) 例えば、O. Allen : "The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solution", D. Van Nostrand ('61)
- 17) T. Fukuzuka, K. Shimogori, K. Fujiwara and H. Tomari : Proceedings, Seminar on Countermeasures for Pipe Cracking in BWRs, paper No 33. EPRI, WS-79-174, Workshop Report ('80)
- 18) 藤原、泊里、下郡、福塚 : 防食技術, 30 p.270 ('81)
- 19) K. Fujiwara, H. Tomari, K. Shimogori and T. Fukuzuka : Corrosion, 38

- 2 p. 69 ('82)
- 20) T. Fukuzuka, K. Shimogori, K. Fujiwara and H. Tomari : Proceedings, Seminar on Countermeasures for pipe Cracking in BWRS, paper № 46, EPRI, WS-79-174, Workshop Report ('80)
- 21) 浜田, 丸山, 仲尾, 山崎 : 腐食防食討論会, p. 200 ('79)
- 22) M. Kowaka, H. Nagano, T. Kudo and Y. Okada : Nuclear Technology 55 ('81) p. 394
- 23) 木村 : 「放射線データブック」地人書店
- 24) 日本アイソトープ協会編 : 「ラジオアイソトープ」丸善

## Appendix

高レベル廃棄物固化体充填時のステンレス製  
キャニスターの $\gamma$ 線吸収線量

## (1) 計算に当っての前提条件

- i) 放射性核種がガラス固化体の中心部に線源として存在する。
- ii) 線源よりキャニスター内側までの距離を 20 cm とする (キャニスターの内径を 40 cm とする)。  
ガラス固化体の充填高さを 120 cm とする。
- iii) 線源よりキャニスターまでは $\gamma$ 線が吸収されないとする。その他の放射線はガラス固化体で  
全量吸収されるものとする。
- iv) 廃棄物は、炉取出し後 5 年でガラス固化される (Burn up 33,000 MWD/TUO<sub>2</sub>)。
- v) 燃料 1 トン当たり 150 ℓ のガラス固化体が 1 本できる。
- vi) activity は DCHAIN code の計算値を用いる。
- vii) ステンレス鋼の密度、質量吸収係数は鉄と同じとする。

## (2) 吸収エネルギーの計算

## i) エネルギー吸収の基本式

エネルギーの吸収は  $E = E_0 e^{-\mu \ell}$

$$E_0 - E = E_0 - E_0 e^{-\mu \ell} = E_0 (1 - e^{-\mu \ell}) \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここで、

$E_0$  : 線源のエネルギー (erg)

$E$  : 吸収後のエネルギー (erg)

$\mu$  : 吸収係数 ( $\text{cm}^{-1}$ )

$\ell$  : 吸収される部分の厚さ (cm)

ii)  $\gamma$ 光子数の計算式

キャニスターのガラス充填高さ 120 cm、線源より 20 cm の距離においてキャニスターの 1 cm<sup>2</sup>を  
毎秒通過する $\gamma$ 光子数  $N_p$  は

$$N_p = \frac{3.7 \times 10^{10} \times A \times r}{2\pi \times 20 \times 120} (\text{個}/\text{cm}^2) \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

ここで、

$A$  : activity (Ci)

$r$  :  $\gamma$ 光子の放出確率 (Table of Isotope 7 ed. より)

$3.7 \times 10^{10}$  : 壊変数 (個/Ci. sec)

## iii) 計算

キャニスター 1 cm × 1 cm × 0.5 cm 当りの吸収エネルギー  $E_f$  は (1), (2) 式を用いて

$$\begin{aligned} E_f &= N_p \times E_p \times (1 - e^{-\mu_{Fe} \rho_{Fe} \ell_{Fe}}) (\text{MeV/sec}) \\ &= 2.455 \times 10^6 \times A \times r \times E_p \times (1 - e^{-\mu_{Fe} \rho_{Fe} \ell_{Fe}}) (\text{MeV/sec}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= 2.455 \times 10^6 \times A \times E_p \times r \times (1 - e^{-\mu_F \rho_F \ell_F}) \\
 &\quad \times 5.738 \times 10^{-3} (\text{erg}/\text{hr})
 \end{aligned}$$

$$= 1.409 \times 10^4 \times A \times E_p \times r \times (1 - e^{-\mu_F \rho_F \ell_F}) (\text{erg}/\text{hr})$$

ここで、

$N_p$  :  $\gamma$  光子数, (2) 式より)

$E_p$  :  $\gamma$  光子のエネルギー (MeV/個), (Table of Radioisotope, 7 ed. より)

$\mu_{Fe}$  : 鉄の質量吸収係数, 第 5 図, 「放射線データブック」<sup>23)</sup>

$\rho_{Fe}$  : 鉄の密度 (7.8 g/cm<sup>3</sup>)

$\ell_{Fe}$  : キャニスターの厚さ (0.5 cm)

A : activity, (DCHAIN code 計算より)

以上の計算結果を第 8 表に示す。その結果, キャニスターの 1 cm × 1 cm × 0.5 cm<sup>t</sup> 当りの吸収エネルギーは,  $2.17 \times 10^8$  erg/hr である。この値を rad/hr に換算すると 1 cm × 1 cm × 0.5 cm<sup>t</sup> の重量は 3.9 g であり,  $100 \text{ erg/g} = 1 \text{ rad}$  であることから  $(2.17 \times 10^8)/(100 \times 3.9) = 5.6 \times 10^5$  rad/hr である。

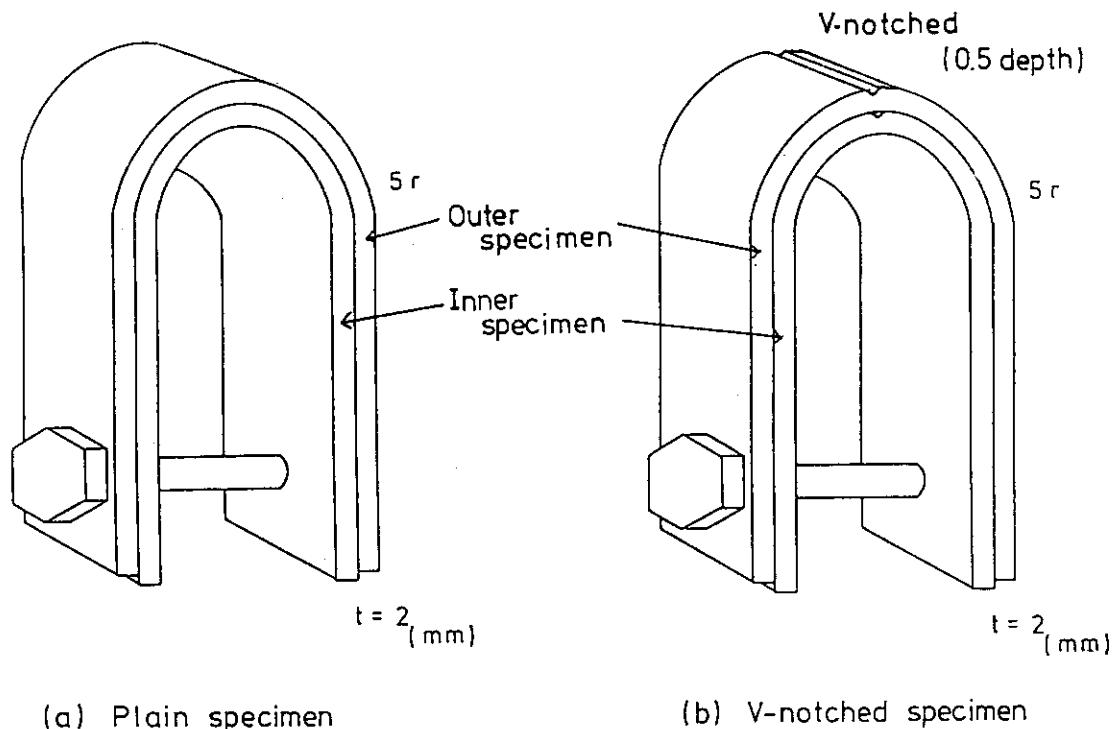


Fig.1 Schematic diagram of double U-bend type specimen

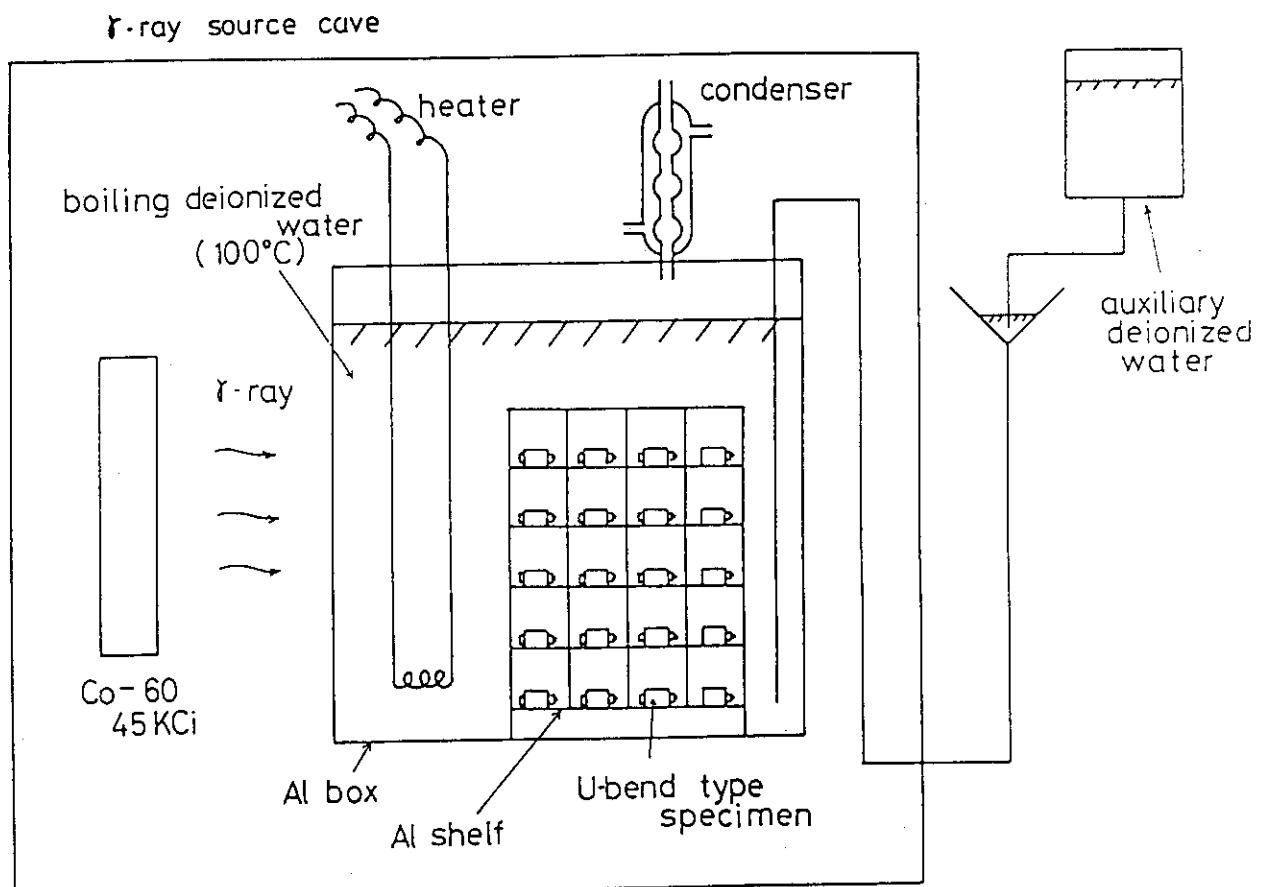
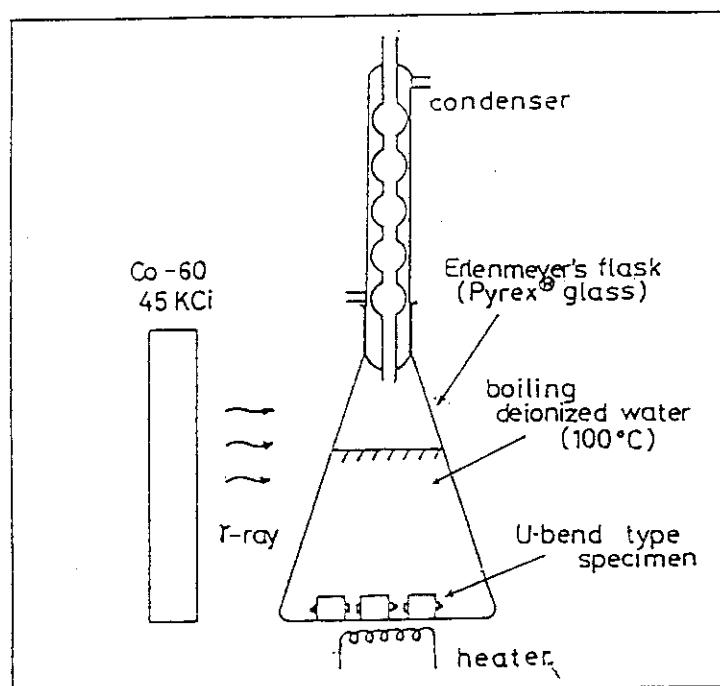
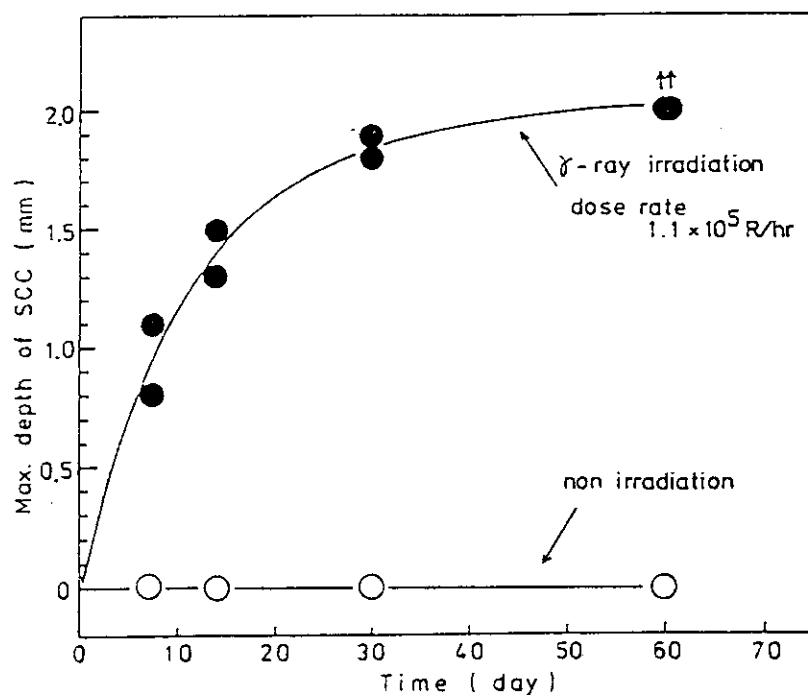


Fig. 2 Schematic diagram of  $\gamma$ -ray irradiation ( Series I )

$\gamma$ -ray source caveFig.3 Schematic diagram of  $\gamma$ -ray irradiation ( Series II )Fig.4 Effects of  $\gamma$ -ray irradiation  
on SCC failures of sensitized  
Type 304 ss. ( Series II )

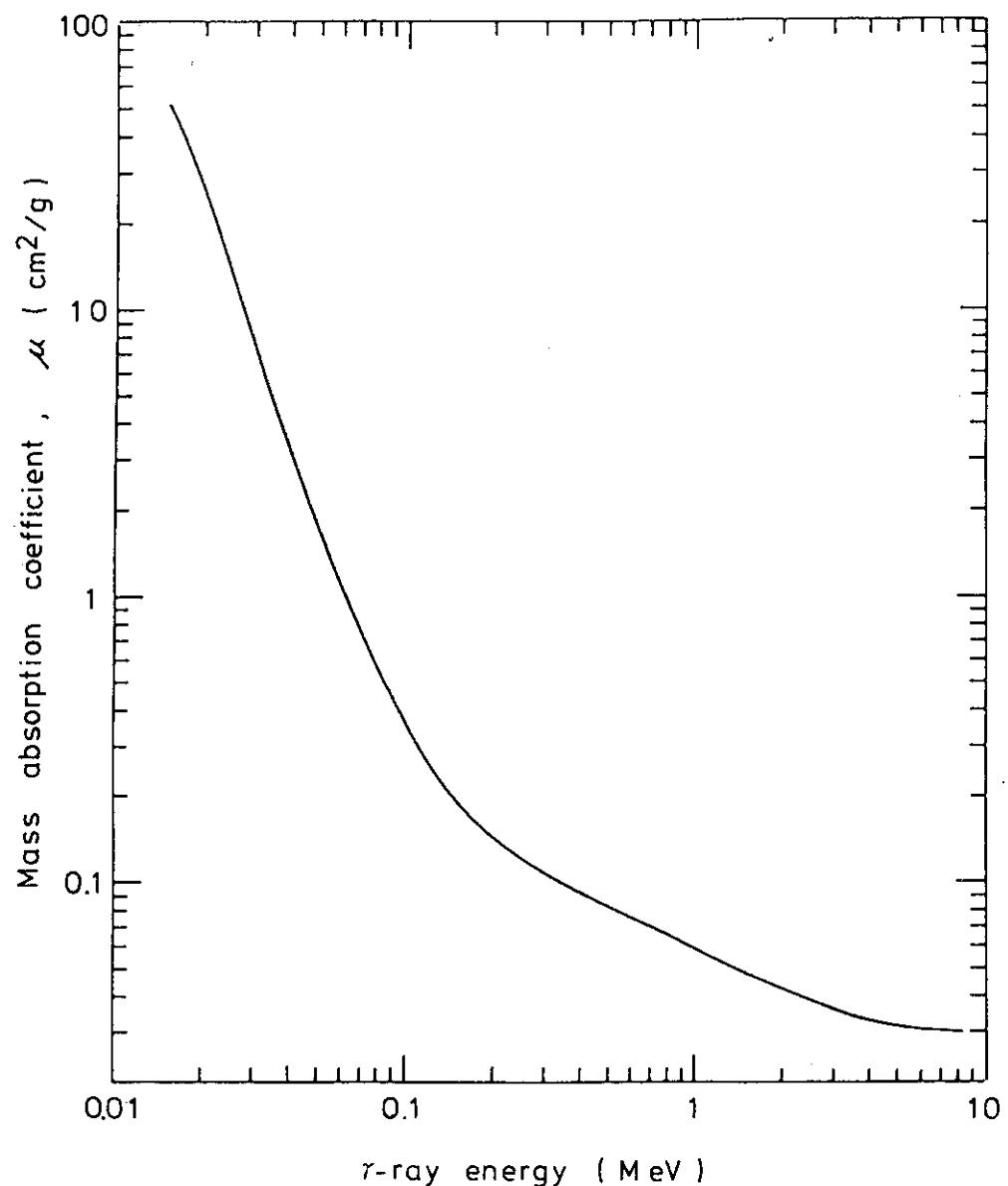


Fig. 5 Mass absorption coefficient of Iron

Table 1 Chemical composition and heat treatment

Alloy	Element ( % )							Heat treatment		
	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Al	others
Type 304 ss	0.075	0.52	0.95	0.010	0.024	9.2	18.22	---	---	---
Type 304L ss	0.035	0.46	0.96	0.032	0.004	8.52	18.11	---	---	700 °C x 100 min → Air cooling → 500 °C x 24 hr → Air cooling
Type 304EL ss	0.015	0.59	1.50	0.034	0.003	10.20	18.16	---	---	1050°C x 30min → Water cooling → 700°C x 100min → Air cooling → 500°C x 24hr → Air cooling
Type 309S ss	0.14	0.56	1.53	0.023	<0.005	14.30	23.76	---	---	---
Incoloy 825	0.003	0.34	0.68	0.020	0.002	40.66	22.41	3.00	0.20	{ Cu;2.0 Ti;0.8 Fe;6-10 Ni;0.5max.
Inconel 600	0.050	0.33	0.50	0.004	0.001	bal.	15.37	---	0.16	{ Cu;3.65 Nb;3.65 Ti;0.2
Inconel 625	0.05	0.25	0.25	0.007	0.008	61.0	21.5	9.00	0.20	{ Cu;0.31 Ti;0.2
S M A 5 0	0.13	0.27	1.02	0.018	0.009	---	0.48	---	---	700 °C x 100 min → Air cooling → 500 °C x 24 hr → Air cooling

Table 2 SCC test in boiling deionized water ( Series I )

[ Dose rate ;  $1.1 \times 10^5$  R/hr ]  
 Specimen numbers for each test ; 2

Ally	Time (day)	$\gamma$ -ray irradiation			Non irradiation	
		Total dose (R)	Max. depth of SCC ( mm )		Max. depth of SCC ( mm )	
			Plain	V-notched	Plain	V-notched
Type 304 ss	7	$2.0 \times 10^7$	1.5/0*, 0.7/0	1.8/0 , 1.8/0	1.3/0 , 0.6/0	>1.5/0 , 1.3/0
	14	$4.0 \times 10^7$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>1.5/0 , >1.5/0
	30	$8.6 \times 10^7$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0
	60	$1.7 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0
	90	$2.6 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>1.5/1.5 , >1.5/1.5
Type 304L ss	180	$5.2 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>1.5/1.5 , >1.5/0
	180	$5.2 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>2/0 , >2/0	>1.5/1.5 , >1.5/0
Type 304EL ss	7	$2.0 \times 10^7$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	14	$4.0 \times 10^7$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	30	$8.6 \times 10^7$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	60	$1.7 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	90	$2.6 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
Type 309S ss	180	$5.2 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	180	$5.2 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	— , —	>2/0 , 0/0	— , —
Incoloy 825	180	$5.2 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
Inconel 600	180	$5.2 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
Inconel 625	180	$5.2 \times 10^8$	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
SMA 50	180	$5.2 \times 10^8$	0/0 , 0/0	— , —	0/0 , 0/0	— , —

\*1 ; Max. depth of SCC on inner specimen

\*2 ; Max. depth of SCC on outer specimen

\*3 ; &gt;2 : failed from other than V-notched root

\*4 ; &gt;1.5 : failed from V-notched root

\*5 ; Pitting corrosion was observed

Table 3 Number of SCC failures on Type 304 ss inner specimen in boiling deionized water. ( Series I )

[ Dose rate ;  $1.1 \times 10^5$  R/h ]  
 Specimen numbers for each test ; 2

Time ( day )	$\gamma$ -ray irradiation			Non irradiation	
	Total dose ( R )	Number of SCC failure		Number of SCC failure	
		Plain	V-notched	Plain	V-notched
7	$2.0 \times 10^7$	5 , 2	5 , 3	3 , 2	1 , 2
14	$4.0 \times 10^7$	9 , 5	9 , 4	9 , 7	1 , 1
30	$8.6 \times 10^7$	5 , >10	>10 , 10	4 , >10	2 , 3

Table 4 Chloride ion concentration in boiling deionized water  
(Series I)

Time (day)		7	14	30	60	90	180
Chloride ion concentration (ppm)	$\gamma$ -ray irradiation	1.0	0.2	0.3	0.2	0.3	
	non irradiation	1.1	1.0	3.8	0.2	0.7	
Immersed period for specimen	7 (day)	→					
	14		→				
	30			→			
	60				→		
	90					→	
	180						→
Exchange of water		Λ	Λ	Λ			

Table 5 SCC test in boiling deionized water ( Series II )  
Dose rate ;  $1.1 \times 10^5$  R/hr  
Specimen number for each test ; 2

Alloy	Time (day)	$\gamma$ -ray irradiation			Non irradiation	
		Total dose (R)	Max. depth of SCC (mm)		Plain	V-notched
			Plain	V-notched		
Type 304 ss	7	$2.0 \times 10^7$	0.8/0 **, 1.1/0	—	0/0 , 0/0	—
	14	$4.0 \times 10^7$	1.5/0 , 1.3/0	—	0/0 , 0/0	—
	30	$8.6 \times 10^7$	1.8/0 , 1.9/0	—	0/0 , 0/0	—
	60	$1.7 \times 10^8$	>2/0 , >2/0	>1.5/>1.5, >1.5/>1.5	0/0 , 0/0	0/0 , 0/0
	7	$2.0 \times 10^7$	0/0 , 0/0	—	0/0 , 0/0	—
Type 304EL ss	14	$4.0 \times 10^7$	0/0 , 0/0	—	0/0 , 0/0	—
	30	$8.6 \times 10^7$	0/0 , 0/0	—	0/0 , 0/0	—
	60	$1.7 \times 10^8$	0/0 , 0/0	—	0/0 , 0/0	—

\* ; Max. depth of SCC on inner specimen.

\*\* ; Max. depth of SCC on outer specimen.

\*\*\* ; &gt;1.5 : failed from V-notched root.

Table 6 Chloride ion concentration in boiling deionized water  
(Series II)

Time (day)			30	44	51	74
Chloride ion concentration (ppm)	γ-ray irradiation	Flask A	0.3	0.3	<0.1	<0.1
		• B	0.7	0.4	<0.1	0.1
non irradiation	• A	0.2		<0.1	0.3	
	• B	0.1		<0.1	0.2	
7 (day)				→		
14				→	→	
30				→	→	
60				→		
Exchange of water			Λ	Λ		

Table 7 Vickers hardness of alloys after immersion for 180 days in boiling deionized water (Series I)

Alloys	Hardness* (Hv=10Kg)	
	γ-ray irradiation	non irradiation
Type 304 ss	1 6 8	1 6 6
Type 304L ss	1 6 1	1 6 3
Type 304EL ss	1 6 4	1 6 4
Type 309S ss	1 7 7	1 7 6
Incoloy 825	1 4 5	1 4 7
Inconel 600	1 6 1	1 5 9
Inconel 625	2 0 3	2 0 1
SMA 50	1 6 5	1 6 6

\* average value of three measurements

Table 8 Parameters used for calculating mass absorption energy of Iron

Radionuclide	Activity ( Ci )	$\gamma$ -ray energy ( Mev )	$\gamma$ -ray emission ratio (decay <sup>-1</sup> )	Mass absorption coefficient of Iron ( cm <sup>2</sup> /g )	Mass absorption energy of Iron (Mev/sec)	Mass absorption energy of Iron (erg/hr)
Rh - 106	$1.14 \times 10^4$	0.512	0.205	0.084	$4.68 \times 10^8$	$2.69 \times 10^6$
"	"	0.622	0.098	0.974	$2.45 \times 10^8$	$1.41 \times 10^6$
Sb - 125	$2.05 \times 10^4$	0.176	0.071	0.167	$1.73 \times 10^8$	$9.93 \times 10^5$
"	"	0.428	0.304	0.091	$1.12 \times 10^9$	$6.45 \times 10^6$
"	"	0.463	0.107	0.087	$4.12 \times 10^8$	$2.37 \times 10^6$
"	"	0.601	0.181	0.077	$8.16 \times 10^8$	$4.68 \times 10^6$
"	"	0.607	0.051	0.077	$2.32 \times 10^8$	$1.33 \times 10^6$
"	"	0.636	0.115	0.076	$5.43 \times 10^8$	$3.11 \times 10^6$
Cs - 134	$2.47 \times 10^4$	0.563	0.080	0.080	$4.21 \times 10^8$	$2.42 \times 10^6$
"	"	0.569	0.140	0.079	$7.36 \times 10^8$	$4.23 \times 10^6$
"	"	0.605	0.980	0.077	$5.36 \times 10^9$	$3.08 \times 10^7$
"	"	0.796	0.880	0.067	$5.62 \times 10^9$	$3.22 \times 10^7$
"	"	0.802	0.090	0.067	$5.79 \times 10^8$	$3.32 \times 10^6$
Cs - 137	$9.40 \times 10^4$	0.662	0.851	0.073	$1.85 \times 10^{10}$	$1.06 \times 10^8$
Ce - 144	$9.53 \times 10^3$	0.134	0.108	0.225	$1.14 \times 10^8$	$6.51 \times 10^5$
Pr - 144	$9.53 \times 10^3$	0.695	0.015	0.072	$3.43 \times 10^7$	$1.97 \times 10^5$
"	"	1.487	0.003	0.049	$1.04 \times 10^7$	$5.98 \times 10^4$
"	"	2.186	0.007	0.042	$3.10 \times 10^7$	$1.78 \times 10^5$
Eu - 154	$6.49 \times 10^3$	0.123	0.390	0.260	$2.80 \times 10^8$	$1.60 \times 10^6$
"	"	0.248	0.068	0.126	$5.99 \times 10^7$	$3.44 \times 10^5$
"	"	0.592	0.050	0.079	$7.18 \times 10^7$	$4.12 \times 10^5$
"	"	0.723	0.202	0.070	$3.19 \times 10^8$	$1.83 \times 10^6$
"	"	0.757	0.043	0.069	$7.03 \times 10^7$	$4.03 \times 10^5$
"	"	0.873	0.117	0.064	$2.06 \times 10^8$	$1.18 \times 10^6$
"	"	0.996	0.099	0.060	$1.88 \times 10^8$	$1.08 \times 10^6$
"	"	1.005	0.170	0.059	$3.21 \times 10^8$	$1.84 \times 10^6$
"	"	1.275	0.336	0.053	$7.32 \times 10^8$	$4.20 \times 10^6$
Eu - 155	$3.30 \times 10^3$	0.087	0.320	0.470	$1.09 \times 10^8$	$6.24 \times 10^5$
"	"	0.105	0.200	0.234	$5.84 \times 10^7$	$3.35 \times 10^5$
Total						$2.17 \times 10^8$

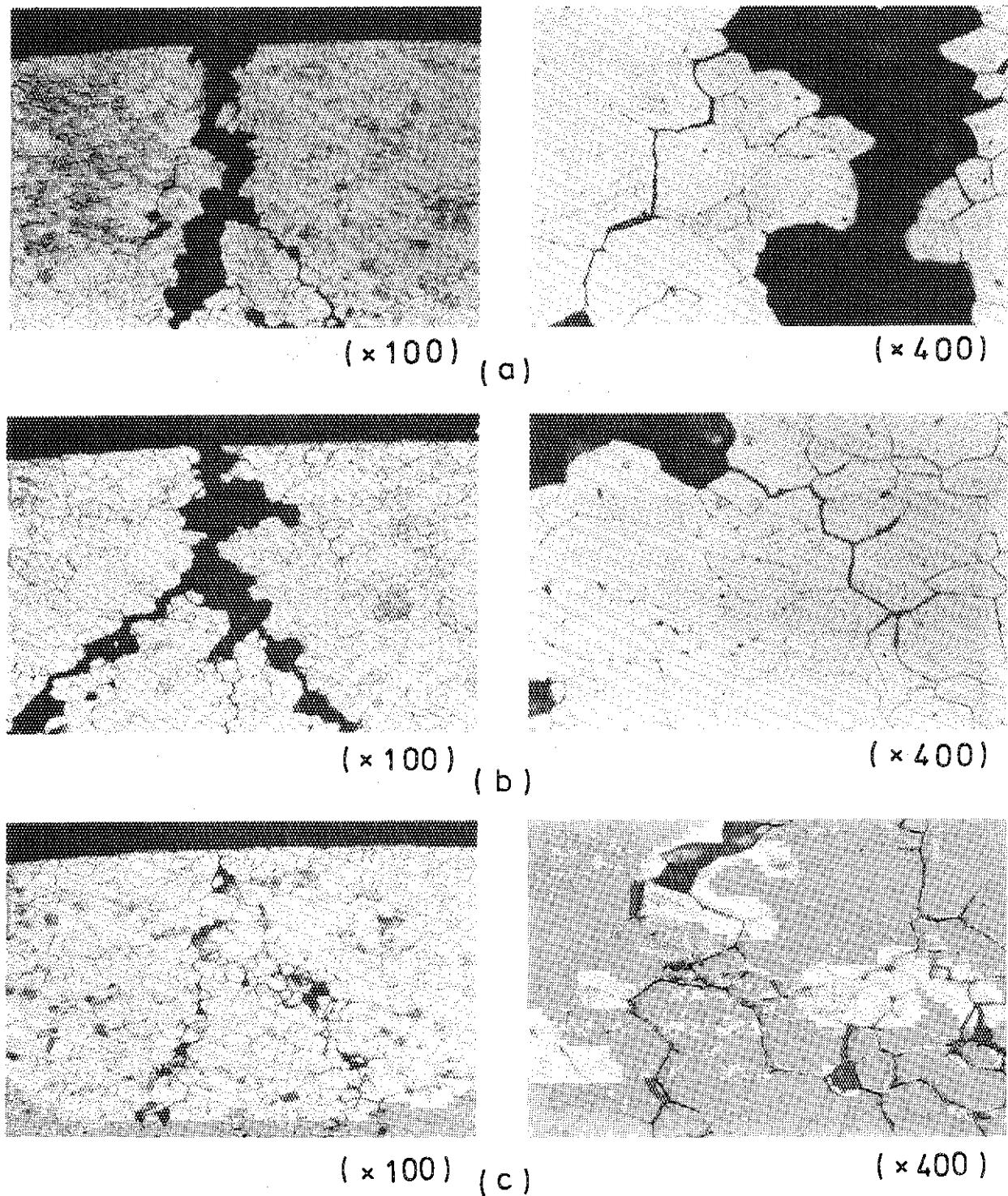


Photo. 1 SCC modes in Type 304 SS specimen after immersion in boiling deionized water for 180 days under non irradiation (a),  $\gamma$ -ray irradiation (b) (Series I) and for 7 days under  $\gamma$ -ray irradiation (c) (Series II)

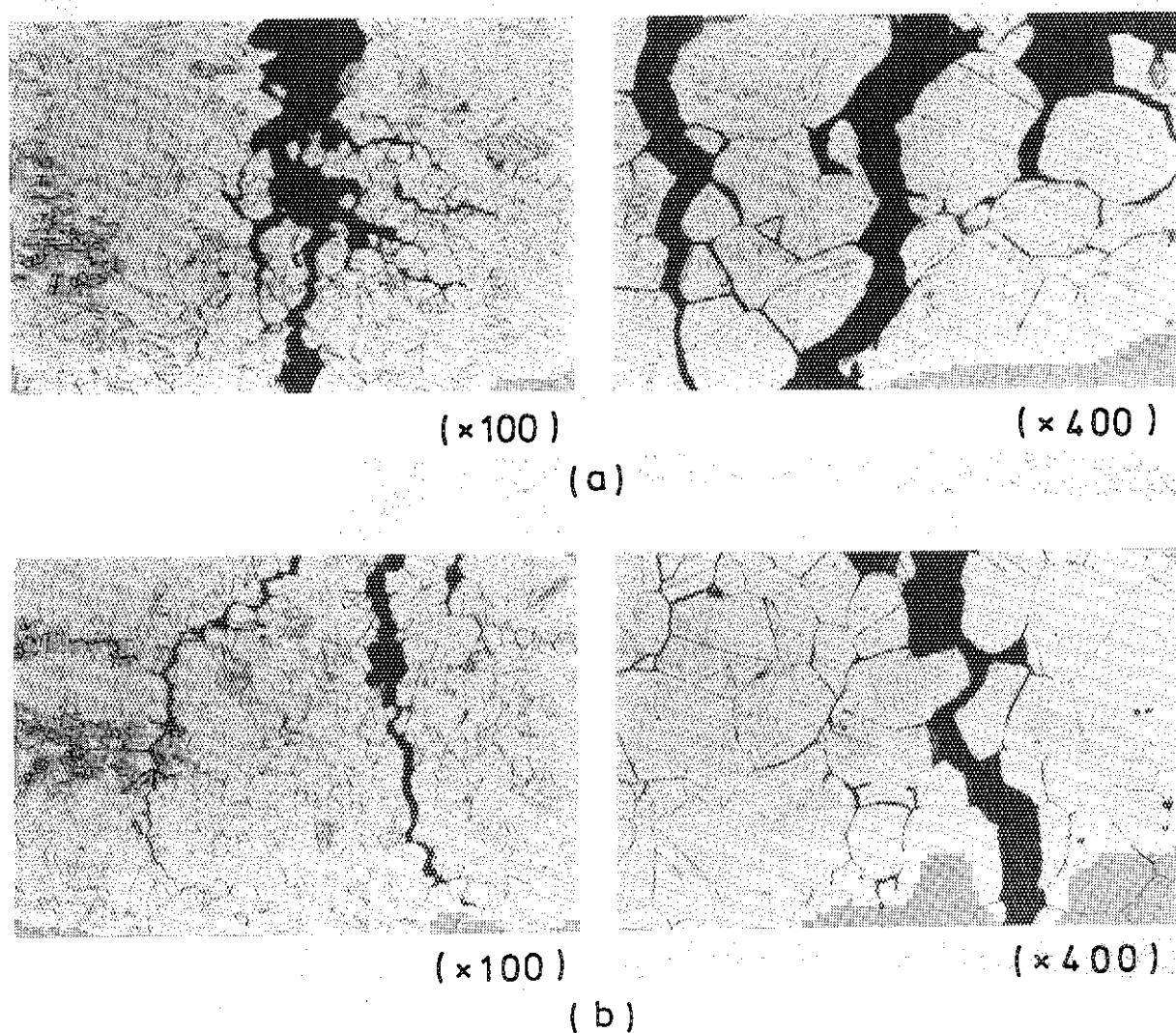
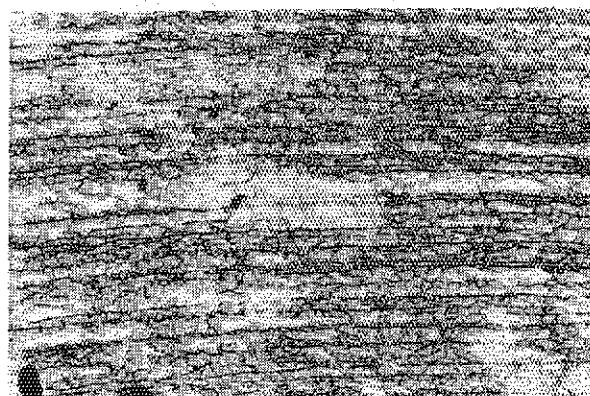
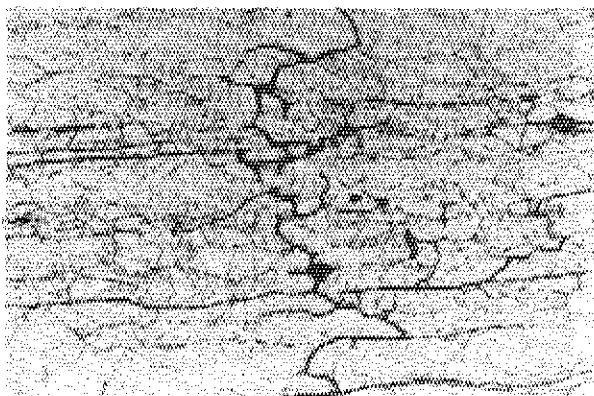


Photo. 2 SCC modes in Type 304 SS specimen after immersion in boiling deionized water for 180 days under non irradiation (a) and  $\gamma$ -ray irradiation (b)  
( Series I )

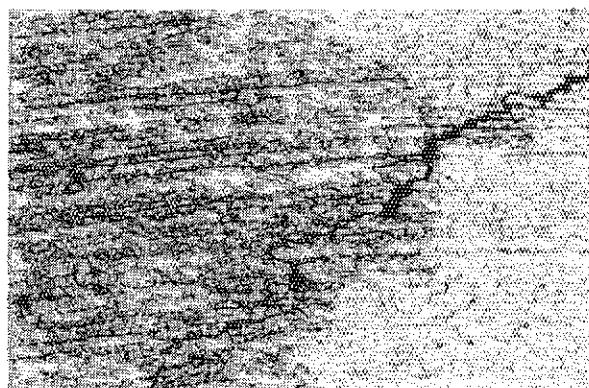


( $\times 100$ )

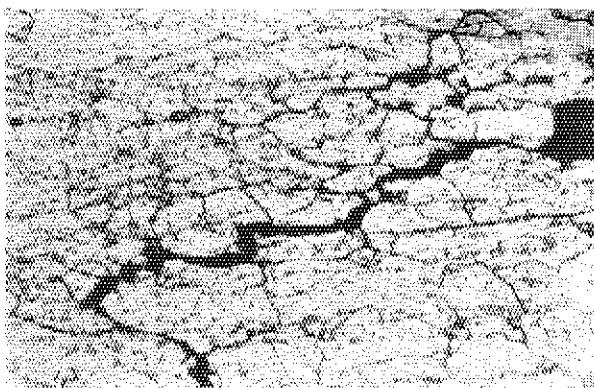


( $\times 400$ )

(a)



( $\times 100$ )



( $\times 400$ )

(b)

Photo.3 SCC modes in Type 309S SS specimen after immersion in boiling deionized water for 180 days under non irradiation (a) and  $\gamma$ -ray irradiation (b)  
( Series I )

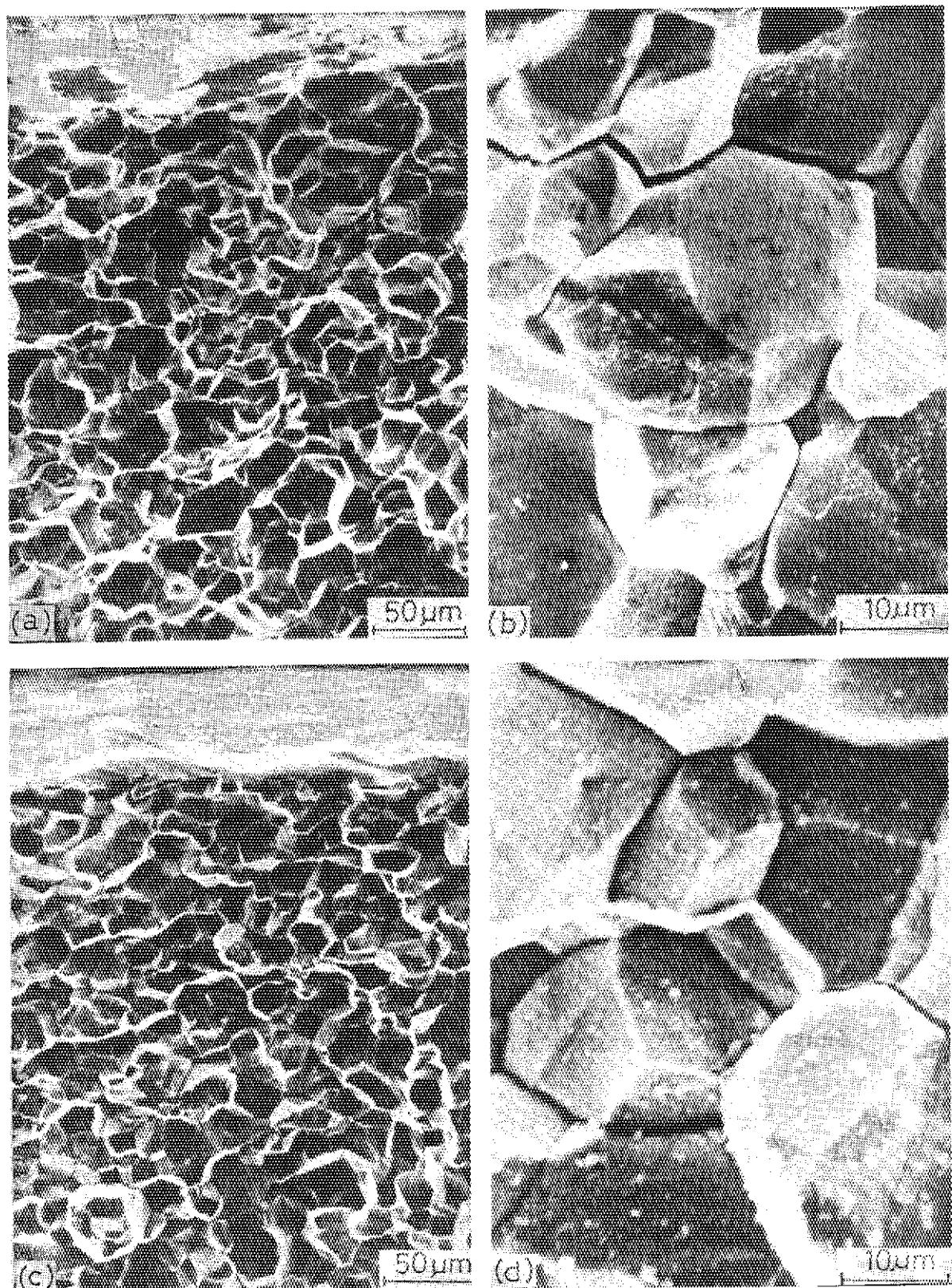


Photo.4 SCC modes in Type 304 SS specimen after immersion in boiling deionized water for 180 days under non irradiation (a,b) and  $\gamma$ -ray irradiation (c,d)  
( Series I )

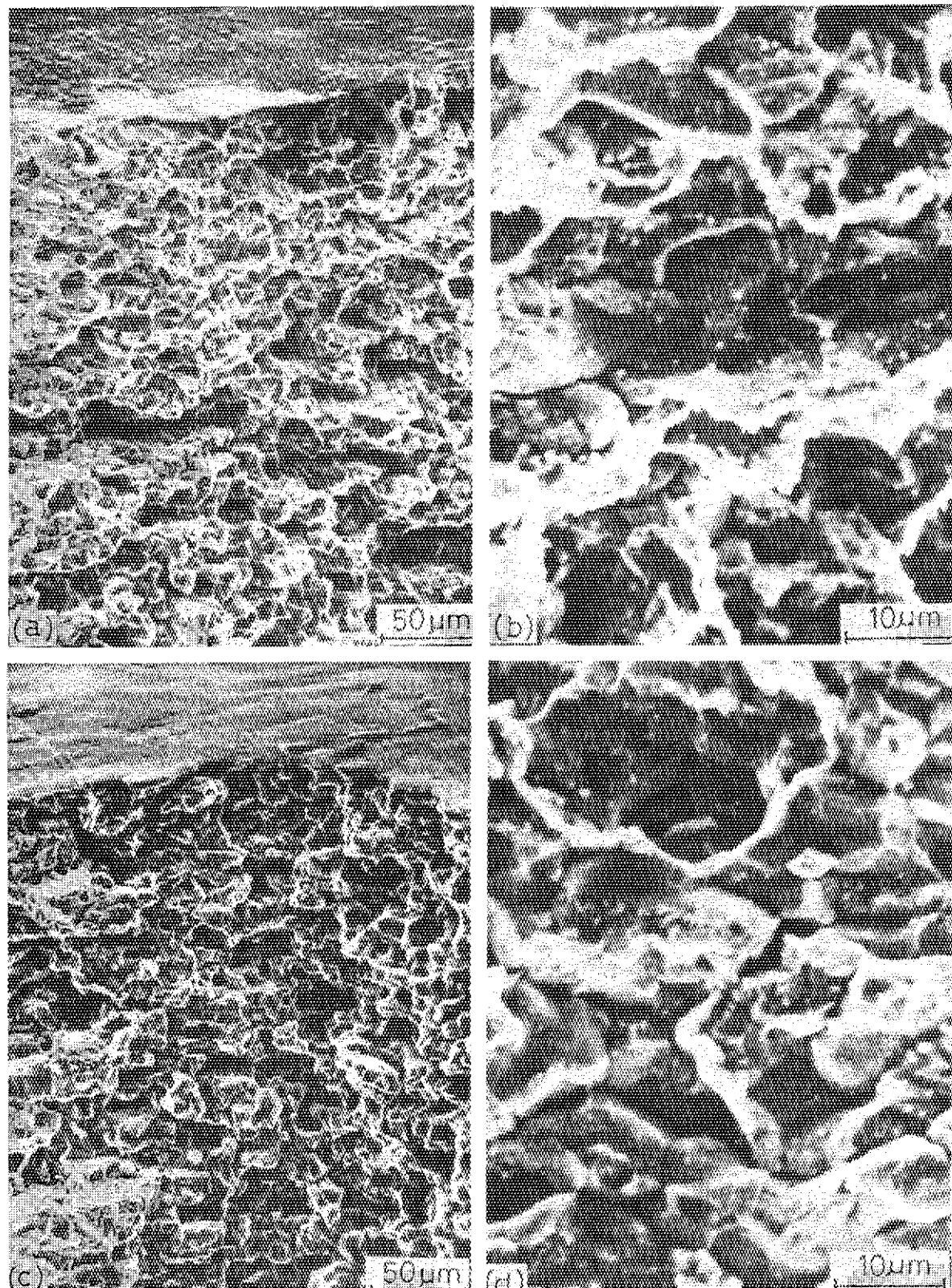


Photo.5 SCC modes in Type 309S SS specimen after immersion in boiling deionized water for 180 days under non irradiation (a,b) and  $\gamma$ -ray irradiation (c,d)  
( Series I )

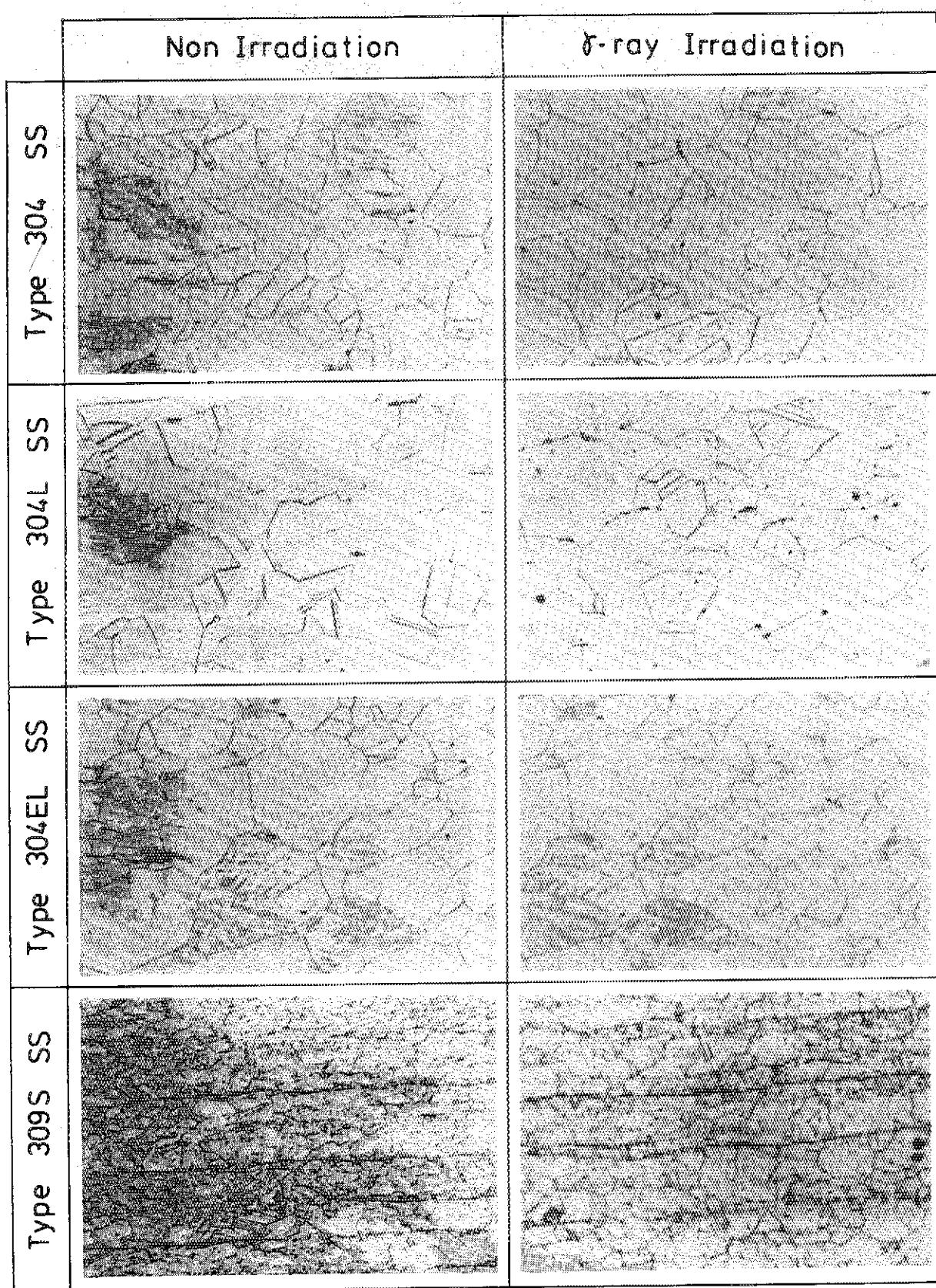
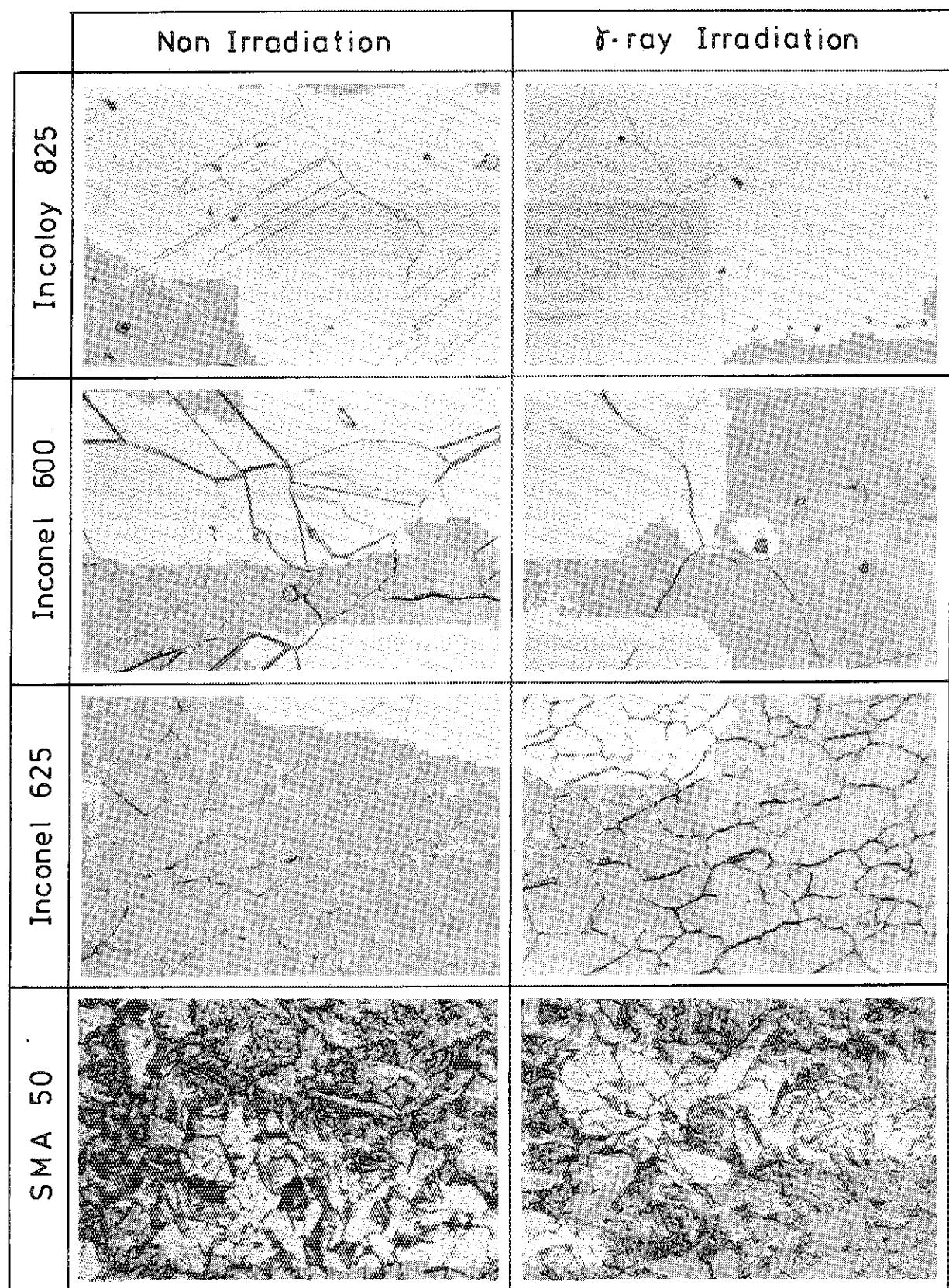
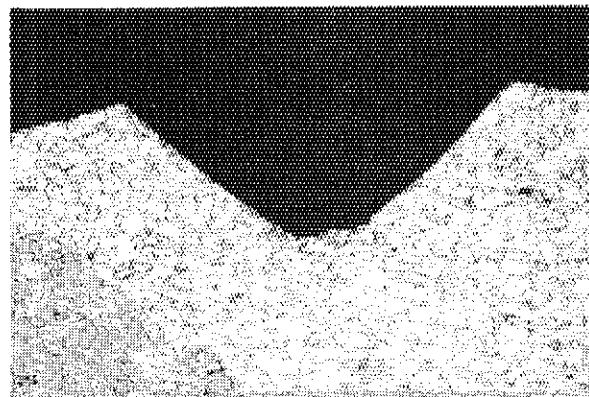
 $(\times 400)$ 

Photo.6 Comparison between  $\gamma$ -ray irradiation and non irradiation on the microstructure of alloys after immersion for 180 days in boiling deionized water ( Series I )

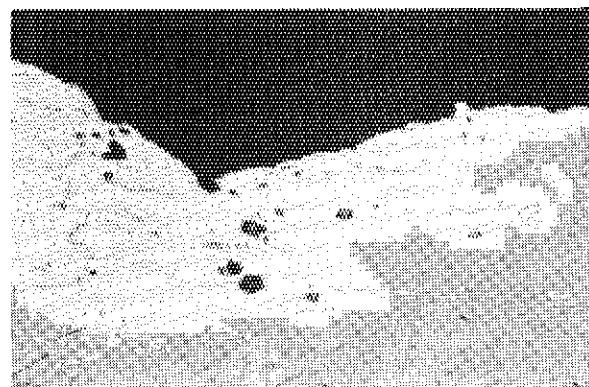


( x 400 )

Photo. 7 Comparison between  $\gamma$ -ray irradiation and non irradiation  
on the microstructure of alloys after immersion for 180 days  
in boiling deionized water ( Series I )



( $\times 50$ )



( $\times 400$ )

Photo. 8      Typical cross section of V-notched  
specimen after bending.