研究論文

85. 原子炉内におけるアルミニウムの腐食について, (Ⅲ)

腐 食 試 験

野 村 末 雄*

*On the Corrosion of Aluminium in Reactor, (Ⅲ)**Corrosion test*

By Sueo NOMURA

The effect of irradiation on the corrosion of 2 S aluminium in flowing water has been studied under the following conditions:

Temperature : 70° or 50°C

Flow rate : 3.0 or 1.6 m/sec

Water conditions : continuously demineralized or not demineralized

Irradiation : ca. 600 kWh (at 40 kW for 15 hr)

Time : 75 hr in total

Under such conditions, the corrosion of 2S aluminium in pile loop water was found to be mostly affected by water quality, as well as the radiochemical changes of water rather than the radiation effects on aluminium specimens itself.

The pile-irradiation in JRR-I was found to cause decrease in the corrosion of aluminium in continuously demineralized water, especially at higher flow rate of water, but it rather increased corrosion in non-demineralized water. These behaviors observed are explained in this report based on the changes of oxidation potentials of water.

The effects of temperature, positions of samples in loop and volume of water per unit area of sample have also been studied.

緒 言

前報⁽¹⁾で述べた原子炉内ループを用い、市販 2 S アルミニウムの原子炉内放射線照射下における流動純水による腐食試験を行ない、原子炉運転停止中に同じループを用いて得られた同種の実験結果と比較した。そして腐食に及ぼす放射線の影響を前報⁽²⁾に述べた水質の変化、水の流速、温度等との関連において考察し、また腐食試験片のループ内における立体的配置や水量と試験片の全表面積との比率が腐食に及ぼす影響等についても検討した。

I. 実験と結果

使用した試験片は厚さ 4 mm の 2 S アルミニウムの圧延板から切断、削り出しによって所定の形に造った。この試片を 400°C, 1 時間焼ナマシ後 10% NaOH 溶液

中で 80°C で 1.5 分間エッチし、よく水洗後アルコール、ついでベンゾールで洗浄し、真空デシケータ中で乾燥、使用直前に感度 10^{-5} g の自動天秤で秤量した。試験片の化学組成は Table 1 に示すとおりである。

Table 1 Chemical composition of the aluminium specimens

Al	Fe	Si	Cu	Mn	Zn
Balance	0.36	0.24	0.10	0.08	0.08

試験片は前報⁽¹⁾に記載したループの Test section 内における熱中性子束の分布曲線に従って、中性子束の強い部分と弱い部分に配置し、中性子束の影響を見るのに便利ようにした。すなわち、サンプルホルダー

* 日本原子力研究所 原子力工学部金属研究室 (Metallurgy Res. Group, Reactor Engng. Div., Japan Atomic Energy Res. Inst.)

のチェインリンクの第1, 2, 3, 4, 5, 6節と第10, 13節の各節に、第1節以外は試験片を2枚ずつ合計15枚挿入して実験した。この時の Test section 内の状態、試片の配置は Fig. 1 に示すとおりで、第6節の中央が炉心から約 100 cm の所に相当する。Fig. 1 には参考のために各位置における熱中性子束の分布状態と γ 線強度も示した。なお、試験片を5枚にへらし、試片の全表面積と水量との比率を変えて実験を行なった時は第1, 2節と第13節に試片を挿入した。

Fig. 1 Schematic diagram of in-pile test section under corrosion testing, and the distributions of thermal neutron and γ -ray in the test section at 40 kW

腐食試験の条件は、ループの水温は主に70℃で、一部は50℃*流速は3 m/secと1.6 m/sec、水質は水の一部をたえず精製する場合としない場合について行なった。精製する水の量は主流量の約2.5~5.0%でこれによってかなりよく水の純度が維持できた。ループの水量と試験片の全表面積の比率は試験片が15枚の場合に約4.5 l/dm²であり、5枚の場合は13.5 l/dm²となる。腐食時間はすべて75時間としたが、これはJRR-1の40 kW運転が週に連続3日間、1日5時間**だけ行なわれるためにこれ以上連続して実験をつづけることは、いたずらに炉の運転停止中のループ実験時間を増してますます放射線照射の効果を不明瞭にするおそれがあるからである。原子炉の運転休止期間中を利用して同じ条件で白試験を行なったが、原子炉は運転停止中においてもかなりの残留放射能をもっており、その強さは炉の運転が停止してはば定常状態に達した後(約20時間)においてもループのTest sectionの先端で0.5~1.0 $\times 10^3$ r/hr の γ 線強度を呈する** 。それゆえ上記白試験も放射線の全くない状態での実験ではないから、この程度の強さの γ 線が水の分解に及ぼす効果を見るために、⁶⁰Co の γ 線を利用して静止純水での比較参照試

験を行なった。これはループを造っているのと同種のステンレス鋼製試験管に純水を入れ、⁶⁰Co の γ 線線量率が 5×10^3 r/hr と 1×10^4 r/hr の所に静置して発生する H₂O₂ の量を測定した。この結果は Table 2 に掲げるとおりである。

Table 2 Radiolytic production of H₂O₂ in H₂O by ⁶⁰Co γ -ray

Temperature(C)	R. T.	40	R. T.	R. T.
Dose rate (r/hr)	5×10^3	5×10^3	4×10^3	1×10^3
Time (hr)	1	1	100	100
Total dose (r)	5×10^3	5×10^3	4×10^7	1×10^5
H ₂ O ₂ (mole/l)	1.41×10^{-2}	1.26×10^{-2}	1.30×10^{-2}	0

また原子炉の出力が40 kW と 0 kW の定常状態において Test section の先端における放射能とその強さの推定値、および全75時間中40 kW運転が15時間の場合に同上個所がうける放射線量を Table 3 に掲げた。この表の40 kWにおける γ 線強度の値にはループ装置自体や水が誘発する放射能を考慮していないが、これはその時の炉心から発生する γ 線強度に比較すると無視できる強さと考えられるからである。

試験片の腐食量は試験後の試片の重量変化と水中に溶出したアルミニウムの量から計算によって求めたが⁽³⁾、この場合アルミニウム試片の表面被膜の組成はバイライト(Al₂O₃·3H₂O)として計算した⁽⁴⁾⁽⁵⁾。この方法⁽³⁾によれば試片の真の腐食量が腐食後の試片をなら変化させることなく算出できるので、試片は引きつづいて連続に腐食試験に供することができる。ループの水をたえず精製している場合には、ループの水中に溶出したアルミニウムの全量は実験終了後精製に用いたイオン交換樹脂を再生し、その再生液を集めてその中のアルミニウムの分析結果から算出した。アルミニウムの分析は本島氏の方法⁽⁶⁾に従った。

以上の条件および方法によって行なった実験結果を一括して Table 4 に示した。Table 4 の照射量は便宜上炉出力(kWh)で示してあるが、これを照射をうけ

* JRR-3の燃料被覆アルミニウムが冷却重水と接触する表面での最高温度は70℃、最低温度は約50℃である。

** JRR-1では毎週火、水、木曜日の午前11時頃から午後4時頃まで40 kW運転が行なわれるのが通例なので、ループ実験は火曜日の午前10時から金曜日の午後1時まで運転した。

** JRR-1管理室における測定値から推定した。

Table 3 Irradiation data at the top of the test section

	Reactor power (kW)	Intensity	Total power (kWh)	Total amount of irradiation
Thermal neutron	40 0	3×10^{11} n/cm ² ·sec 0	600 † 0 ††	1.6×10^{16} n/cm ² 0
γ-Ray	40 0	$3-4 \times 10^5$ r/hr $0.5-1.0 \times 10^5$ r/hr	600 † 0 ††	$4.5 \sim 6.0 \times 10^6$ r $4.0 \sim 7.5 \times 10^4$ r

† Reactor was operated for 15 hr at 40 kW and for 60 hr at 0 kW

†† Reactor was operated for 75 hr at 0 kW

Table 4 Results of the in-pile loop corrosion test of 2 S aluminium

Exp. No.	Temp. (°C)	Time (hr)	Flow rate (m/sec)	Water quality	Irradiation (kWh)	Weight change (mg/cm ²)	Dissolved Al (mg)	Total corroded Al (mg/75hr)	Average rate (mg/cm ² ·hr)	pH
1	70	75	3.0	P	670.3	0.053 ± 0.038	158.0	243.8	0.135	5.63
2	70	75	3.0	P	—	0.121 ± 0.023	192.8	304.6	0.169	5.32
3	70	75	1.6	P	649.2	0.143 ± 0.018	143.4	233.3	0.130	5.54
4	70	75	1.6	P	—	0.188 ± 0.029	145.6	242.4	0.135	5.33
5	70	75	3.0	N	631.5	0.086 ± 0.011	12.1	28.6	0.016	6.43
6	70	75	3.0	N	—	0.137 ± 0.024	5.06	24.6	0.014	6.63
7	70	75	1.6	N	649.5	0.073 ± 0.029	7.24	19.9	0.011	6.43
8	70	75	1.6	N	—	0.127 ± 0.024	1.72	18.7	0.010	6.22
9†	70	75	3.0	P	382.9	-0.033 ± 0.024	126.0	190.4	0.324	6.06
10	50	75	3.0	P	576.5	0.079 ± 0.025	150.7	233.8	0.130	6.42
11	50	75	3.0	N	504.2	-0.060 ± 0.018	11.6	(14.2)	(0.008)	6.37

† Surface area of aluminium samples/volume of water is 3 times less than that of others.

P: Loop water are partially demineralized continuously

N: Not demineralized

た放射線量に換算するには40 kWにおける値からはほぼ比例的に導けばよい。たとえば総出力 600 kWh であれば、その時にループの Test section の先端がうける全熱中性子量は

$$3 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec} \times 3600 \text{ sec} \times \frac{600 \text{ kWh}}{40 \text{ kW}} \\ \approx 1.6 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$$

で全γ線量は40 kWが15時間 (600 kWh)、炉停止期間 (0 kW) が60時間、全体で75時間の場合には

$$(3 \sim 4) \times 10^5 \text{ r/hr} \times 15 \text{ hr} + (0.5 \sim 1.0) \times 10^5 \text{ r/hr} \times 60 \text{ hr} \approx (4.5 \sim 6) \times 10^6 \text{ r}$$

となる。また白試験(0 kW が75時間)の時には熱中性子量は0, 全γ線量は Test section の先端で、

$$(0.5 \sim 1.0) \times 10^5 \text{ r/hr} \times 75 \text{ hr} \approx (4 \sim 7.5) \times 10^4 \text{ r}$$

となる。

また Table 4 の重量変化には全試片の変化量の代数平均値と標準誤差を示し, pH の値は前報⁽²⁾の値を使用した。

腐食試験後の各試験片の重量変化量を各試片の Test section 内における位置に対してプロットしてみると Fig. 2 の(a), (b), (c), (d)にみられる結果がえられた。ただし図の各点は第1節を除いて他はすべて2枚の試片の平均値であり、図からわかるようにみな大体似た分布曲線を示すが、特に水条件の同じ場合には相似の曲線を示している。

II. 結果の考察

この腐食実験はさきに述べた制約から連続して75時間以上実施できなかったため、このような短時間の試験結果から腐食の全体を論ずることはできないが、この実験はすべて同一条件で同時に製造されたただ1種類の試料の多数(15枚)を1回の試験に用いて行なったこと、腐食量の比較を単に重量変化のみでなく、これと溶解アルミニウム量から導いた全腐食量によって比較したこと、ループの運転や水質の管理に充分注意を払ったこと等によって実験結果にはかなり明らかな傾向と相互の関連性が常にみられたので、アルミニウ

(a) Water condition : 70°C, flow rate of 3 m/sec and demineralized

(b) Water condition : 70°C, flow rate of 3 m/sec and non-demineralized

(c) Water condition : 70°C, flow rate of 1.6 m/sec and demineralized

(d) Water condition : 70°C, flow rate of 1.6 m/sec and non-demineralized

Fig. 2 Weight changes of aluminium specimens at various positions in the test section after corroded in water for 75hr
— under irradiation
---x--- without "

ムの初期腐食状態についてある程度の知見が得られたものと信ぜられる。

さて、以上の図および表から原子炉内のループ試験の場合にアルミニウムの初期腐食に及ぼす諸因子についてつぎのように考えられる。

1. 放射線の効果

(1) 重量変化について

Table 4 にみられるように水の条件が同じ場合には照射を受けている場合の方が常に重量変化が少ない。そしてその状態をおのおの場合について Fig. 2 から詳細に検討すればつぎのことが判明する。

- (i) 常に白試験の場合の方が重量増加が大きい。
- (ii) 照射を受けた場合と白試験の場合との重量変化の分布曲線は水条件が同じ場合によく相似している
- (iii) 照射の場合の曲線は白試験の場合に比して一般に曲線が右方にいくに従って下降する傾向をもつ。
- (iv) Fig. 2 の (a), (c) すなわち水を精製している場合には特に両曲線の間隔が左方の熱中性子の強い所で (サンプルホルダーの第1～3または4節) 狭く、右方で広い。これに反して図の (b), (d) の水を精製しない場合には両曲線の間隔は常にほぼ同じである。
- (v) 全体としてどの分布曲線もみな似ているが、詳細にみれば図の (a), (b), (c), (d) のおのおのも特徴を持っている。
- (vi) 常にサンプルホルダーの第10節の試片は高い重量増加を示し、第13節のそれは低い。

上の(i)から全体として放射線は試片の重量増加を抑制する傾向を有し、これが各試片の Test section 内の位置のいかんにかかわらず全体にみられること、(ii), (v), (vi) から重量変化の分布曲線の形が Test section 内の放射線の強弱よりもむしろ水の条件や試験片の配置によって支配されることなどがわかり、したがって試験片の腐食に支配的な影響を与えるものは個々の試片の位置における放射線の強弱よりはむしろ全体的な放射線による水質の変化や水の条件などによると考えられる。そして水の分解に与える影響の強さや Fig. 1 にみられるその影響を及ぼす範囲の広さなどから熱中性子よりもγ線の方が水質の変化に大きい作用を与えていることが予想される。

(2) 溶解アルミニウム量について

一般に予想されまた Table 4 の結果にみられるように、水が精製され流速も早いほど溶解量は多い。そして放射線の効果は水を精製している場合には溶解量をへらし、精製しない時には溶解量を増して水質によって全く逆の作用を呈する。

(3) 全腐食量と平均腐食速度

(1)と(2)から計算によってえられた全腐食量は

Table 4 から明らかにわかるように、水を精製している場合の方が大きく、水質の腐食に与える効果がきわめて大きいことを示している。そして全腐食量は水を精製している時には溶出したアルミニウムの量によって、また水を精製しない時には重量増加量によって主に支配されることがわかる。これは水を精製している時にはアルミニウムの溶解速度が早く、精製しない時には溶解速度が遅くて酸化被膜の成長速度が優先すると考えれば当然である。そして放射線が全腐食量に与える効果は水を精製している時には腐食をへらし、水を精製しない時にはむしろ腐食を増す傾向があり、その効果は流速の早くほど大きい。

平均腐食速度は全腐食量を全試験片の表面積と試験時間とで割った単位面積と単位時間当りの腐食量であるが、明らかに全腐食量と同じ傾向がみられる。

以上の現象を総括的に考察してみると、よく知られているようにアルミニウムの流動水による腐食反応は溶解に伴う重量減少と、酸化または水酸化による表面被膜の生成に伴う重量増加の両者の競合反応と考えられるから、いま理想被膜生成量という量を仮定すると、これは溶解量を零とした時の理想的な被膜の生成量または生成能力であって、もし溶解アルミニウム量を x 、試片の表面に残留している表面被膜中のアルミニウム量を y とすると、理想被膜生成量は $(x+y)$ になり、これは Table 4 の全腐食量(全反応量)と等しくなる。すなわち、試片はその時の水条件下において y 量のアルミニウムの溶出をみながらなお x 量のアルミニウムに相当する表面被膜を残したのであるから、合計して $(x+y)$ という理想的または潜在的な表面被膜生成能力をもつと考える。

そこで溶解アルミニウム量、表面に残留している被膜中のアルミニウム量、全腐食反応アルミニウム量(理想被膜生成量)の原子炉内放射線照射時と白試験時の実験データ、および両者の比率を Table 5 に示した。試験片が同種で水の条件が同じ時には全腐食反応量したがって理想被膜生成量も同一であるはずであるから Table 5 の第 3 欄と第 1 欄はそれぞれ放射線が被膜の成長能力と溶解の両者に及ぼす効果を示しており、その比率から水を精製している場合には放射線は被膜の成長と溶解の両者をほぼ同じ割合で抑制し、水を精製していない場合には被膜の成長と溶解の両者とも促進するが、特に溶解を促進していることがわかる。

特に後者の場合には、被膜の潜在的な生成能力の比率が溶解量の比率の増加にはるかに及ばないため、試験片の表面に残留する被膜はむしろ放射線照射下の方

Table 5 Irradiation effect on the corrosion of aluminium in water

Exp. No.	Dissolved Al		Al in total surface film		Total corroded Al (amount of ideal film growth)	
	(mg)	(%)	(mg)	(%)	(mg)	(mg)
1	158.0	82.0	85.8	76.7	243.8	80.0
2	192.8		111.8		304.6	
3	143.4	98.5	89.9	92.9	233.3	96.2
4	145.6		96.8		242.4	
5	12.1	239.1	16.5	84.6	28.6	116.3
6	5.06		19.5		24.6	
7	7.24	420.9	12.7	74.3	19.9	106.4
8	1.72		17.1		18.7	

が少ない結果になることを示している。

つぎに、水の精製と非精製の場合に放射線が腐食挙動において示す逆の作用を、前報⁽²⁾に述べた酸化還元電位の変化と関連して説明してみる。Huddle らによればアルミニウムと水との腐食反応を電気化学的反応と考え、これを陽極反応と陰極反応とに分けて考えると、100℃以下の純水中では陽極反応として、

が考えられ、他方陰極反応としては、

が考えられる。

ところが水を精製しているときには、放射線によって水の pH はほとんど変わらず、酸化電位は低下するからその原因として上の陰極反応における(4)、(5)の左辺、すなわち O_2 濃度と M^{+z} の減少が考えられる*。そしてこの水中の O_2 や M^{+z} (特に高原子価の金属たとえば Fe^{+++} イオンが考えられる)の濃度の減少は必然的に(4)、(5)の反応を抑制する。ところが Huddle らによれば、アルミニウムと純水との反応は 100℃ 以下ではほぼ陰極反応によって支配されるから、(4)、(5)の反応量の減少は必然的にそれぞれ陽極反応の(2)、(1)したがって被膜生成と溶解との両反応を抑制する

ことになる。水を精製しない場合は上と全く逆の作用によって(2), (1)の反応が増すが, この場合には水を精製していないので, 特に溶解している金属イオンの影響が大きくなり, したがって(1)の溶解反応が高次の金属イオンとの置換反応によって促進されることが期待され**, Table 4の結果もそれを裏書きしている。

2. 水質の効果

すでに1.において述べ, また Table 4からも明らかなように, 現在著者の用いた条件の程度の放射線, 水温, 流速などにおいては, アルミニウムの流動水による腐食にもっとも支配的な影響をもっているものは水質, すなわちここでは水の精製の有無であって, これが他のすべての因子よりも優先している。これは水が精製されて純粋なほど水中へのアルミニウムの溶解は当然増加し, しかもこのような流動条件では溶解度は飽和平衡に達しにくいから, 溶解はますます増大して水を精製しない場合との差は大きくなる。このように水の純度がループ実験で金属の腐食に大きい影響をもつことは Ayres⁽⁹⁾, Draley⁽¹⁰⁾らによっても実証されている。

3. 流速の効果

本研究の結果によれば, 流速の早いほど腐食ははげしく, したがって放射線や水質の変化が腐食に及ぼす影響も顕著である。しかし一般に考えられる侵食はここで使用した3 m/sec程度の流速では大したことはなく, Table 4の結果も流速より水質の方が支配的な作用をもっていることを示している**。また流速の早いほど腐食量が大きくて腐食速度も増すのは, 流速が早いほど水と試片との接触する機会が増し, あるいは水の実効反応量が増すことになるから, 腐食の増大するのは当然であろう。

4. (試験片全表面積/水量)比の効果

この比率が小さいほど1試片当りの水量はふえるから, アルミニウムの溶解量も増すことが予想されるが Table 4のNo. 1とNo. 9の結果を比較すればわかるように, No. 9では明らかに溶解量がまして重量変化は負の値を示している。No. 9の実験では試片数は5枚でその全表面積がNo. 1の場合の1/3になるから, 単位面積当りの水量は3倍になる。そこで両者の場合の平均1枚当りの溶解アルミニウム量を計算すると, No. 1では158 mg/15 ÷ 10.5 mg, No. 9では126 mg/5 ÷ 25.2 mgとなり, その比は2.4倍でほぼ3倍に近い値を示している。また平均腐食速度もNo. 1とNo. 9で約2.4倍となりほぼ3倍に近い。これが3倍にならないのは, No. 1とNo. 9において試験片の立体的配置に相似性が

乏しいのも大きい原因の1つであろう。

5. 試験片の立体的配置の効果

すでに1.の(vi)においても述べたように, Fig. 2の重量変化の分布曲線をみれば, 起伏に大小の差はあってもいずれの場合も大体第1～3節の付近は高く, 第4～6節では低く, 第10節は高く第13節で低い曲線を示し, これらが試験片の立体的配置またはこれに伴う流体力学的な作用に関係のあることを示唆している。特に1.の(vi)で述べたように, 常に第10節の試片は重量増加が大きく第13節のそれは少ないが, これには Fig. 1にみられる第10, 13節の試片の特徴ある配置がかなり影響していると考えられる。たとえば第13節の試片の位置は直角の水流入管にきわめて近く, この位置においては水流がまだ完全に整っておらず, かなり乱れていることが予想され, その上この位置の試片は純粋な水にもっとも早く接触するから, 当然溶解が盛んで被膜の成長は遅いと考えられる。第10節の試片が常に高い重量変化量を示す原因は明確でなく, 流体力学的な効果についてはさらに研究する必要がある。

つぎに各節の2枚の試片について, その重量変化量を比較すると, 前方すなわちループの水にさきに接触する試片の方が後の試片より一般に重量増加が少なく62例中45例がこの現象を示し, その他5例は両者の差がなく, また7例は逆の現象を示した。結局73%の確率で2枚並んだ試片のうち最初に水に当たる試片の重量増加が少ない傾向がみられた。これは流体力学的な効果(衝突がおこる)と, さきに水と接触するために溶解がおこりやすいからであると考えられる。このように数個の試片を並べて流動水中で腐食試験を行なう時

* 現在実施中の⁶⁰Coγ線ループにおいて純水中で放射線によって明らかに溶解O₂の減少がみられた。また水の一部をたえず精製している時でも水中に微量の(非精製の1/10ぐらい)金属イオン(Al, Fe, Cu, Mn)の存在が前報⁽⁹⁾のγ線スペクトル解析と分光化学分析の結果からえられているが, アニオンについては最初に入れた純水中に含まれている以外に外から入る可能性はない。また(3)の水素発生については純水は原子炉放射線で分解して水素を発生しにくいことがよく知られており, たとえH⁺+2e→2HとなってもAlの純水中の水素過電圧が高いので, H₂とならず2H+½O₂→H₂Oとなり, O₂をへらす可能性がある。

** たとえば Al+3Fe⁺⁺⁺→Al⁺⁺⁺+3Fe⁺⁺

または Al+Fe⁺⁺⁺→Al⁺⁺⁺+Fe

** もし侵食が大きい作用をもっているならば, 水質のいかにかわらず同じ流速においてもっと近似した腐食量または速度を示すはずである。

に、一番最初の試片が他に比して大きい重量減少を示すことは著者らの他の実験⁽⁷⁾⁽¹¹⁾や Krenz ら⁽¹²⁾の実験においても認められているが、Krenz はこれを溶解のおこりやすさによって説明している。

6. 温度の効果

70°と50°の場合の比較は、50°の結果がまだ少ないので充分議論することはできないが、Table 4 の No. 1, 5 と No. 10, 11 の結果の比較から、アルミニウムの溶解量が温度によってあまり変わらないことがわかる。それゆえ50°と70°における腐食の差は主に表面被膜の成長速度差に起因すると考えられる。なお、No. 11 の全腐食量と平均腐食速度は重量変化量(減少量)が溶解アルミニウム量よりも多いため、この重量減少量を全腐食量とみなして計算してその値をとった。このような現象は試片から一たん溶解したアルミニウムの一部がループのパイプなどの壁に沈着したためと考えられる。温度が低くて水を精製しない場合には、充分このようなことが考えられ、この場合には全腐食量の算出に用いた計算式は成立しない。

7. 中性子の効果

さきに1.の(Ⅲ), (Ⅳ)で述べたように、照射の場合には重量変化の分布曲線は Fig. 2 にみられるとおり一般に右方にいくに従って下降し、特にループの水を精製している時には第1～3節の試片は白試験の結果に近づいている。このような Test section 内における位置による腐食の変化が、それらの立体的配置とこれに伴う流体力学的な原因によるならば、照射と非照射とによって変化はないはずであるから、上に述べた場合にみられる曲線の差異は明らかに放射線的作用によると考えられる。ところがこれをγ線の作用と考えれば、すでに前に述べてきたように、γ線は全体的に水質を変化させて重量増加を抑制し、溶解をも抑える作用をもっている。それゆえ、もし Test section の先端部のγ線が強い所でアルミニウムの溶解が阻止されて、被膜の成長に大差がないようであれば、上の現象はγ線によって説明できるが、もしγ線が被膜の成長を抑制して溶解に大差ないように作用する時には、試験片の重量増加はむしろ減少してついに白試験の場合の曲線との差は Test section の先端部で大きくなるはずである。

それゆえこの場合には中性子の効果が考えられる。そして上記の現象が水を精製した時にいちじるしく、精製しない時にはみられないので、中性子の金属に対する放射線損傷の結果としてよりも、中性子による水の分解、変質などに起因すると考える方が妥当である。

中性子などの重粒子とγ線などの軽粒子線によって水の分解生成物にかなり差のあることはよく知られているが、ここに述べただけの実験結果からは、それがいづれに起因するかを明らかにすることは不可能であって今後の研究にまきたい。

8. その他

さきに Table 2 に白試験すなわち零出力時における残留γ線の効果をみるために行なった比較参照試験の結果を示したが、その結果は⁶⁰Coのγ線線量率が10³r/hrのところでは水の分解生成物である H₂O₂ が認められなかった。それゆえ 10³r/hr の線量率では水の分解のおこりにくいことが予想される。特に原子炉内放射線は⁶⁰Coγ線よりも水の分解収率の悪いこと、ループ実験温度がこの参照試験温度より高くかつ流動水であること等を考えると、たとえ H₂O₂ のみによって水の分解量を推定することは不充分であるとしても、白試験時においては Test section の先端でやっと 10³r/hr のγ線線量率であるので、この場合には放射線の影響はあまり考えなくてよいと思われる。

Ⅲ. 結 論

JRR-1の炉内ループによるアルミニウムの水による初期腐食は

- (1) 水質すなわち水の精製の有無によってもっとも大きく影響される。
- (2) 放射線はわれわれの使用した程度の強さや量では、水を精製している時には腐食を抑制し、精製しない場合にはむしろ腐食を増す傾向がある。
- (3) 原子炉の放射線はループの Test section 内の個々の位置にある試片に対してよりも、全体としての水質をかえることによって腐食に大きい影響を与える。そしてその影響は水の純度が高く、流速の早いほど大きい。
- (4) 試片の表面積と水量との比率、および Test section 内における試片の立体的配置も腐食に影響を与え、特に試験片の単位表面積当りの水量が多いほどアルミニウムの溶解はふえて腐食ははげしくなる。
- (5) その他、温度の効果や中性子の効果についても述べたが、これらについてはさらに研究する必要がある。

また流動水によるアルミニウムの腐食を表面被膜の成長反応とアルミニウム溶解反応の両者の競合反応として考え、放射線の影響を Huddle の説を用いて解析して考えた。

最後にこの実験にご指導をいただいた金属研究室室長川崎正之主任研究員、実験にご協力をいただいた当研究室の伊藤昇氏、近藤靖子、近藤達男両研究員、また実験にご援助をいただいたJRR-1管理室の方々、結果に有益なご討論をいただいた京都大学理学部可知裕次教授に厚く謝意を表します。

(1960年9月2日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) 野村末雄：本誌，**2**，No.6，337～342 (1960)。
- (2) 野村末雄：同上，**2**，No.8，468～475 (1960)。
- (3) 野村末雄，近藤達男，伊藤昇：“第3回原子力シンポジウム報告集”，Ⅲ-18，131 (1959)。
- (4) R. K. HART: *Trans. Farad. Soc.*, **50**, 269 (1954); **53**, 1020 (1957)。
- (5) 軽金属協会編：“原子炉用アルミニウム合金に関する研究”，137 (1960)。
- (6) 本島健次：日 化，**76**，903 (1955)。
- (7) 川崎正之，野村末雄，伊丹宏治，伊藤昇：金属学会発表予定 (札幌)，(昭35)。
- (8) R. A. V. HUDDLE: *A/Conf.*, P/411 (1955)。
- (9) J. A. AYRES, *et al.*: *ibid.*, 15/P/1430 (1958)。
- (10) J. E. DRALEY, W. E. RUTHER: *ibid.*, 15/P/714。
- (11) 野村末雄，伊藤昇，田村幸三：(未発表)。
- (12) F. H. KRENZ, A. E. HUNTON: *AEC L-758*, (1958)。

「会費一括扱い」をご利用下さい

会員の便宜のため「一括扱い」の制度がつぎの要領で設けられておりますのでご利用下さい。ご希望の方は事務局へお申越し願います。

- (1) 同一所属機関で，正会員・学生会員が原則として10名以上の場合を対象とする。
- (2) 責任者(会費の集金その他本会との連絡に当る)1名を定め，一括扱い会員の氏名一覧2部を作り，1部を事務局に，1部を責任者の手許に備え，異動その他変更ある場合は連絡する。
- (3) 一括扱いに限り会費分納の特例を認める。
- (4) 責任者には，集金額の5%の金額を謝礼する。
- (5) 集金額は一たん事務局に全額送金し，事務局で精算のうえあらためて謝礼を送付する。
- (6) 会費以外にも集金を要する場合は前2項を準用する。