資 料

倉庫に保管した金属のさび発生量調査

伊知地 猛*¹, 河村 浩孝*²

(2013 年 10 月 10 日受理)

(2013 年 11 月 12 日再受理)

Investigation of Amount of Corrosion Products on Alloys Kept in Warehouse Environments

Takeshi ICHIJ*¹ and Hirotaka KAWAMURA*²

In the case of clearance inspection for materials used at nuclear facilities, the applicants of clearance licenses have to show that the radioactivity concentration is lower than the clearance level, and it is necessary for the regulatory body to confirm this claim. Corrosion products might be generated on alloys in the period between the first measurement in the facility and the confirmation measurement by the regulatory body. Corrosion products shield radiation and cause a drop in radiation count rates. In order to investigate the growth of corrosion products on alloys in actual warehouse environments, carbon steel and stainless steel coupon specimens were set in warehouses of five facilities. The weight increases of the coupon specimens caused by the generation of corrosion products were measured over one year at each warehouse. The decrease in the radiation count rate as a result of shielding by the corrosion products on coupon specimens at each warehouse was estimated, referring to a previous report on the relationship between the amount of corrosion products and the decrease in the radiation count rate.

KEY WORDS: corrosion, clearance, inspection, aging, radiation measurement, count rate, alpha-ray, beta-ray.

I 緒 言

クリアランス制度は、原子力施設において用いた資材等について、放射性物質の濃度が「クリアランスレベル」(人の健康への影響を無視できる放射性物質の濃度)以下であることを国が確認する制度のことである。国の確認を受けた資材等は、原子炉等規制法の規制の対象外として、通常の産業廃棄物又は有価物として、廃棄物・リサイクル関係法令の規制を受けることとなる。これら

資材をクリアランスする際には、放射能濃度がクリアランスレベル以下であることを事業者が示し、国が確認する必要があるが、事業者における測定から国による確認までの間に、金属では経年変化によりさびが発生する恐れがある。さびが発生するとさびの遮蔽効果により、放射線計数率の低下の原因となる。実環境の倉庫雰囲気において金属に発生するさび量を把握するため、5つの施設の倉庫環境で炭素鋼及びステンレス鋼に発生するさび量を1年以上にわたり観測した。炭素鋼及びステンレス鋼について、さび量とさびの遮蔽効果による放射線計数効率低減との関係については、ICHIJら¹⁾の報告がある。この報告内容を実データの視点から強化、補完するための資料として、各施設に設置した炭素鋼及びステンレス鋼に発生したさびによる、放射性計数効率の低減度を試算した結果を報告する。

*¹ (一財)電力中央研究所原子力技術研究所放射線安全研究センター; 東京都狛江市岩戸北 2-11-1 (〒201-8511)

Radiation Safety Research Center, Nuclear Technology Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry; 2-11-1, Iwado Kita, Komae-shi, Tokyo 201-8511, Japan.

E-mail: ichiji@criepi.denken.or.jp

*² (一財)電力中央研究所材料科学研究所構造材料領域; 神奈川県横浜須賀市長坂 2-6-1 (〒240-0196)

Sector Structural Materials, Materials Science Research Laboratory, Central Research Institute of Electric Power Industry; 2-6-1, Nagasaka, Yokosuka-shi, Kanagawa 240-0196, Japan.

E-mail: kawamuh@criepi.denken.or.jp

II 方 法

クリアランス物が倉庫で保管された場合に、実環境でどの程度さびが発生するかを調べるため、A～E施設の5か所にある倉庫環境に、炭素鋼 SS400²⁾ 及びステンレス鋼 SUS304^{3, 4)} の試料を片側表面のみを露出させるように塩化ビニールの板に固定し設置し、経過時間、温度湿度情報とさび発生量（試料の重量増加）の関係を調べた。試料は直径 48.9 mm のディスク状で厚さは SS400 が 3.2 mm, SUS304 が 5 mm である。重量測定は 1 カ月ごとに最小表示 0.1 mg の精密電子天秤を用いて実施した。温度及び湿度は株式会社テストー製 testo174H ミニデータロガーを使用し 1 時間ごとに記録した。今後クリアランス物が発生する可能性がある原子力関連施設として、A～E の 5 施設を選択した。A, B 施設は茨城県那珂郡東海村の、海岸からそれぞれ 6 km, 2.5 km 離れた場所に位置する。C 施設は大阪府泉南郡熊取町の海岸から 4 km 離れた場所に位置し、D 施設は神奈川県横須賀市の海岸から 2.5 km の位置にある。E 施設は茨城県那珂郡東海村の、海岸から 5.5 km 離れた場所に位置する。A 及び D 施設は 2011 年 12 月から、B, C 及び E 施設は 2011 年 8 月から 2013 年 2 月までそれぞれ 1 年以上試料を設置し、実環境試験を行った。なお、A～D 施設では倉庫内の棚等に試料を設置したが、E 施設のみクリアランス物を保管容器に入れて保管することを想定し、試料を保管容器内に設置した。

III 結果と考察

A 施設における温度湿度の変化を Fig. 1、さび発生による試料重量増加を Fig. 2 に、B 施設における温度湿度の変化を Fig. 3、さび発生による試料重量増加を Fig. 4 に、C 施設における温度湿度の変化を Fig. 5、さび発生による試料重量増加を Fig. 6 に、D 施設における温度湿度の変化を Fig. 7、さび発生による試料重量増加を Fig. 8 に、E 施設における温度湿度の変化を Fig. 9、さび発生による試料重量増加を Fig. 10 に示す。B 施設の 2012 年 4 月の温度湿度データは温湿度測定装置の不具合のため欠測となった。なお、さび発生量が極端に少なかった E 施設以外の実環境試験で発生したさびを X 線回折装置で分析したところ、ICHII ら¹⁾ が報告したさび発生加速試験で発生したさびと同じ FeOOH であることがわかった。E 施設の試料からは分析できる十分な量のさびが採取できなかったため、さびの成分分析は実施しなかった。

Fig. 1 Temperature and relative humidity in the A-facility environment.

Fig. 2 Areal density of increased weight of SS400 and SUS304 test samples at A-facility.

A～E 各施設で実施した実環境試験において得られた結果及び、ICHII ら¹⁾ が報告したさび量とさびの遮蔽効果による放射線計数効率低下との関係から求めた各施設の試料のさび最大発生量の時（試料重量最大増加時）の放射線計数効率低下の推定結果を Table 1 にまとめる。

Fig. 3 Temperature and relative humidity in the B-facility environment.

Fig. 5 Temperature and relative humidity in the C-facility environment.

Fig. 4 Areal density of increased weight of SS400 and SUS304 test samples at B-facility.

Fig. 6 Areal density of increased weight of SS400 and SUS304 test samples at C-facility.

α 線放出核種としては実験データがある ^{241}Am 及びウランクリアランスの際に重要な核種となる ^{238}U , β 線放出核種としては原子力発電所における主な汚染源となる ^{60}Co について推定した。 ^{241}Am (5.4 MeV) と ^{238}U (4.2 MeV) の α 線、及び ^{60}Co の β 線それぞれの放射線計数効率低

下 Y と試料重量増加分 X (mg cm^{-2}) の関係として、具体的には以下の (1)~(5) 式に当てはめて推定した。

【 ^{241}Am (5.4 MeV : α 線) の透過率】

○ SS400

$$Y = 1 - 0.190X$$

(1)

Fig. 7 Temperature and relative humidity in the D-facility environment.

Fig. 9 Temperature and relative humidity in the E-facility environment.

Fig. 8 Areal density of increased weight of SS400 and SUS304 test samples at D-facility.

Fig. 10 Areal density of increased weight of SS400 and SUS304 test samples at E-facility.

○ SUS304

$$Y = 1 - 0.248X \quad (2)$$

【 ^{238}U (4.2 MeV : α 線) の透過率】

○ SS400

$$Y = 1 - 0.282X \quad (3)$$

○ SUS304

$$Y = 1 - 0.368X \quad (4)$$

【 ^{60}Co の β 線の透過率】

$$Y = \frac{1}{X} \int_0^X \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin\theta e^{-\frac{0.169r}{\cos\theta}} d\theta dt \quad (5)$$

Table 1 Increased weight of samples and estimation of decrease in radiation count rate at A-E facilities.

	A-facility		B-facility		C-facility		D-facility		E-facility	
Materials of test samples	SS400	SUS304	SS400	SUS304	SS400	SUS304	SS400	SUS304	SS400	SUS304
Elapsed time (month)	14	14	18	18	18	18	14	14	18	18
Areal density of increased weight (mg cm ⁻²)	1.1	2.5 × 10 ⁻¹	2.1	4.3 × 10 ⁻¹	6.3 × 10 ⁻¹	6.9 × 10 ⁻²	6.3 × 10 ⁻¹	9.0 × 10 ⁻²	0.0	0.0
Decrease of radiation count rate of ²⁴¹ Am	0.80	0.94	0.60	0.89	0.88	0.98	0.88	0.98	1.00	1.00
Decrease of radiation count rate of ²³⁸ U	0.70	0.91	0.40	0.84	0.82	0.97	0.82	0.97	1.00	1.00
Decrease of radiation count rate of ⁶⁰ Co	0.75	0.91	0.63	0.87	0.83	0.97	0.83	0.96	1.00	1.00

ステンレス鋼 SUS304 に関しては、A～E の各施設で 14 カ月もしくは 18 カ月経過しても ²⁴¹Am 及び ²³⁸U から放出される α 線、⁶⁰Co から放出される β 線に関して放射線計数効率の低下は 0.8 を下回らないと推定された。炭素鋼 SS400 では C、D 及び E 施設では 14 カ月もしくは 18 カ月経過しても ²⁴¹Am 及び ²³⁸U から放出される α 線、⁶⁰Co から放出される β 線に関して放射線計数効率の低下は 0.8 を下回らないと推定された。試験実施から 14 カ月経過した A 施設における放射線計数効率の低下は、²⁴¹Am から放出される α 線、²³⁸U から放出される α 線、⁶⁰Co から放出される β 線に関してそれぞれ、0.80、0.70、0.75 と推定された。試験実施から 18 カ月経過した B 施設における放射線計数効率の低下は、²⁴¹Am から放出される α 線、²³⁸U から放出される α 線、⁶⁰Co から放出される β 線に関してそれぞれ、0.60、0.40、0.63 と推定された。B 施設は他の施設より海が近いこととあわせて、ほとんどの月に最大湿度が 100% 近くまで達しており、さび発生・増進の臨界湿度⁵⁾に達する時間が他の設置場所に比べ長かったことが、他の施設よりさびの進行が進んだ原因と思われる。一方保管容器に入れて保管した E 施設では 18 カ月経過してもほとんどさびが発生しなかった。(財)日本ウエザリングテストセンター発行の大気暴露試験ハンドブック⁶⁾によると、金属材料の腐食の主要因として、「ぬれ時間」、「海塩粒子」、「硫酸化物」の 3 因子であるとの記載がある。保管容器に入れたことで、腐食の主要因である海塩粒子等の影響を受けにくくなったためと考えられる。

IV 結 言

実環境の倉庫雰囲気において金属に発生するさび量を把握するため、5 つの施設の倉庫環境で炭素鋼及びステンレス鋼に発生するさび量を 1 年以上にわたり観測し、

各施設の倉庫環境におけるさび発生量のデータが得られた。本結果と ICHII ら¹⁾が報告したさび量とさびの遮蔽効果による放射線計数効率低減との関係から、各施設の試料のさび最大発生量の時（試料重量最大増加時）の放射線計数効率低下の程度を推定することができた。

なお、さびの発生条件にはさまざまな因子が関係するため、今回の実環境試験の結果は、各施設である期間実施したさび発生試験の一例を示したものととして扱うべきと考える。

参 考 文 献

- 1) T. ICHII, H. KAWAMURA; Effects of corrosion products generated from carbon steel and stainless steel on radiation-counting efficiency. *Jpn. J. Health Phys.*, **48**, 171–179 (2013) (in Japanese).
- 2) Japanese Industrial Standard Committee; Rolled steels for general structure JIS G 3101, JAPANESE INDUSTRIAL STANDARD, (2010) (in Japanese).
- 3) Japanese Industrial Standard Committee; Hot-rolled stainless steel plate, sheet and strip JIS G 4304, JAPANESE INDUSTRIAL STANDARD, (2005) (in Japanese).
- 4) Japanese Industrial Standard Committee; Cold-rolled stainless steel plate, sheet and strip JIS G 4305, JAPANESE INDUSTRIAL STANDARD, (2010) (in Japanese).
- 5) 松島 巖:「腐食防食の実務知識」, (2002), (株)オーム社, 東京.
- 6) (財)日本ウエザリングテストセンター; 大気暴露試験ハンドブック, (2007).

伊知地 猛 (いちぢ たけし)

早稲田大学大学院物理学及び応用物理学
専攻修士課程修了後、電力中央研究所に
入所。現在の所属は原子力技術研究所放
射線安全研究センター。環境放射能研究
(特にラドン及び壊変生成物の挙動に関
する研究)、放射線計測、放射線防護に関する研究に従事。

E-mail: ichiji@criepi.denken.or.jp