PWR1次系環境での非鋭敏化SUS 316の粒界型応力腐食割れ 感受性に及ぼす温度,水素濃度およびほう酸濃度の影響

Influence of Temperature, Hydrogen and Boric Acid Concentration on IGSCC Susceptibility of Unsensitized 316 Stainless Steel

有岡 孝司 (Koji Arioka)*

要約 PWR1次系環境での非鋭敏化SUS 316の粒界型応力腐食割れ(IGSCC)感受性に及ぼす温度,水素濃度およびほう酸濃度の影響を予歪み付きSSRT試験により検討した.温度に関してはアレニウス型の単調な温度依存性が認められ,得られた活性化エネルギーは21.6 kcal/molであった.この温度依存性は水素注入のBWR環境を模擬した高温純水中での結果と類似の値を示しており,またPWR環境での照射された冷間加工SUS 316(CW 316 SS)のそれとも類似している.水素濃度に関しては,PWR1次系水質管理範囲内では水素濃度の上昇と共にIGSCC感受性が上昇する傾向が認められた.この傾向は照射CW 316 SSで得られている傾向と類似している.またほう酸添加の影響については,顕著なほう酸添加の影響が認められ,高濃度のほう酸環境でIGSCC感受性が抑制される結果が得られた.IGSCC感受性が環境因子の影響を受けるというこの実験事実は亀裂の進展過程に亀裂先端での溶解反応が何らかの形で関与していることを示唆しているものと考えられる.以上の結果に加え破面形態の詳細観察結果も含め考察した結果,今後詳細な検討が必要であるが,非照射・非鋭敏化SUS 316のIGSCCと照射SUS 316のIASCCは類似のメカニズムで発生・進展しているものと推定される.

キーワード SUS 316, IGSCC, 水素, ほう酸, IASCC

Abstract IGSCC susceptibility of unsensitized 316SS under PWR primary water was studied as a function of solution temperature, dissolved hydrogen, and boric acid concentration by SSRT test using specimens with cold deformed hump. IGSCC growth rate was dependent on temperature and the obtained activation energy was 21.6K cal/mol. Regarding the influence of dissolved hydrogen, there was a simple monotonic increase in crack growth rate with the increasing hydrogen concentration within the PWR primary water chemistry specifications. Also, there was a remarkable difference in IGSCC susceptibility with regard to the effect of boric acid concentration. Within the tested concentration, the IGSCC susceptibility under high concentrated boric acid solution(2300ppm B) was inhibited in comparison with that under 500ppm B. These temperature and dissolved hydrogen dependencies of IGSCC susceptibility were similar to the literature on published data on irradiated 316SS. Although further study is required to clarify the mechanism, however the similarity of the dependencies suggests that the rate-limited IGSCC process of un-irradiated 316SS is related to that of IASCC.

Keywords SUS316, IGSCC, hydrogen, boric acid, IASCC

1. 研究の背景と目的

BWRプラントでは、再循環ラインのステンレス配 管の溶接熱影響部でIGSCCによる不具合が多く発生 したことから結果的にオーステナイト系ステンレス 鋼のIGSCC感受性に及ぼす、環境因子(酸素濃度, 不純物濃度,温度),材料因子(鋭敏化SUS 304/316), 応力条件(閾値),及び溶接接施工法(内面冷却法な ど)など充実した検討が実施されている.^{(1)~(4)} 一方PWRではキャノピーシール溶接部⁽⁵⁾,及び安 全注入系第一隔離弁の上流側⁽⁶⁾などの酸素滞留部での 実機不具合事例の報告はあるものの,脱気され水素 の添加されたRCS条件でのIGSCCでの発生事例は炉内 構造物であるバッフルフォーマーボルトの照射誘起 応力腐食割れ(IASCC)以外に報告例が無い.^{(7)~(9)} これらPWRとBWRのステンレス鋼のIGSCC感受性の 差を理解し対策を設定する為に,多くの研究が行わ れIGSCC感受性におよぼす酸素濃度および電位の影

^{* (}株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

響が調べられた. さらにその検証として実機での電 位測定が行われPWRのRCS条件でのステンレス鋼の 電位はIGSCC発生の臨界電位に比べ十分に低いこと が確認されている.^{(7)~(9)} その結果として, PWR環 境でのオーステナイト系ステンレス鋼のIGSCC研究 は酸素滞留域を模擬した研究が主体となり,^{(10)~(12)}脱 気され水素が添加されているRCS条件での系統的な 研究は殆ど報告されていないのが実態である.

しかし,最近Andresenらが鋭敏化していないSUS 316 を冷間加工した材料を用いたCT試験で,従来報告さ れているIGSCCの臨界電位に比べ十分低いPWR条件 に近い水素濃度(18 cc/kg)の288 ℃純水中で IGSCC感受性を示すことを報告⁽¹³⁾⁽⁴⁾している.また,ほ う酸水中でも多少Li濃度が実機の管理範囲(< 2.2 ppm)に比べ高い条件(108 ppmB+6.9 ppmLi+18 cc/kgDH2)ではあるがハンプ付SSRT試験でIGSCC 感受性があることが過去から指摘されている⁽¹⁵⁾⁽⁶⁾. 以上の報告例はPWR環境でのIGSCC感受性を示唆す るものではあるが,実機PWR環境そのものの環境条 件での試験結果では無いことから,今後のプラント 保全計画を考える上で,PWRの1次系水質スペック を満足する環境条件でのIGSCC感受性の有無を明確 にする必要がある.

1 次系ケミカルシムの最適化の基本的な考え方は 以下の3 要素のバランスをとる形で設定されている. (a)構成材料の健全性確保(現在:水の放射分解によ る酸素発生を抑制する為の水素添加濃度下限値の設 定(DH2>15 cc/kgDH2など) (b)燃料被覆管の耐 食性確保(現在:高濃度Li条件での耐食性劣化防止 の為の上限値の設定(Li<2.2 ppmなど) (c)定検 中の作業者被曝量の低減(現在:燃料表面でのクラ ッド付着・放射化抑制の為の水質pHの下限値設定(pH 300 ℃> 6.9 など)

以上の背景から,将来1次系ケミカルシムの最適 化を実施するにあたり,構成材料健全性確保の観点 から,1次系の代表的構成材料の一つであるオース テナイト系ステンレス鋼について,IGSCC感受性に 対する1次系環境(ほう酸,水素,Li濃度)の影響 に関するデータベースを整備し,まず(a)の目的につ いてのケミカルシムへの要求事項を整備することを 目的に研究を開始した.またIASCC対策として1次 系水質の変更の意義の有無を判断するデータベース の蓄積を目的に,得られたIGSCC試験結果を同種材 料のIASCC感受性の傾向と比較検討することにより, PWSCCとIASCCの発生・進展メカニズムの類似性と 相違を検討した.

2. 実験と計算方法

2.1 試験材料

試験材料は溶体化SUS 316 であり,化学組成の分 析結果は0.049 C, 17.1 Cr, 2.1 Mo, 12.0 Ni, 1.5 Mn, 0.45 Si, 0.027 P, 0.005 S (wt%)である.材料の熱 処理は1150 ℃で 10 min溶体化処理後鋭敏化を避け るために水冷された. 材料の平均粒径は約 100 µm であり,粒界での炭化物析出は観察されなかった.

2.2 SSRT 試験

試験は再循環ループを有する低歪速度試験装置 (Slow strain rate technique: SSRT) を用いて実施した. 試験片には平板の引っ張り試験片を用いた. 試験片 の平行部長さは20mm, 厚さ2mm.および幅4mmで ある. また試験片中央部で金具を用いて冷間変形さ せ予歪を付与した試験片を用いて試験に供した.⁽¹⁹⁾²⁰ 試験片の表面状態を均一に保つため、予歪を与える 前の段階で試験部は1200-grit SiC 紙で研磨した.引 っ張り速度は試験期間中一定に管理され360℃での 試験 $(0.6 \,\mu \,\text{m/min} (\sim 5 \,\text{X} \, 10^{-7}/\text{sec}))$ を除いて 0.12 μ m/min (~1 X 10⁻⁷/sec)で実施した.SSRT試験後の破 壊形態およびIGSCC深さはSEM観察により行った. 実施した試験環境条件はPWRプラントの起動初期 (H₃BO₃ (2300 ppm as B) + LiOH (2 ppm as Li))と燃 料サイクルの中間状態を模擬した条件(H3BO3(500 ppm as B)+ LiOH (2 ppm as Li))で実施した. 試験溶 液の室温での電気伝導度は~22 μ S/cmであった. 試 験液中の水素濃度は調整タンクの圧力および混合ガ ス濃度で調整し、試験装置入り口濃度は(株)東亜電 波製の水素計を用い連続的に監視された. 試験した 水素濃度範囲はPWRプラントの水質管理範囲をカバ ーする条件(15,30 および45 cc STP / kgH2O)に 加え、より広い範囲で水素濃度の影響を検討する事 を目的に1cc STP / kgH2Oでも実施した. また試験温 度は実機運転条件を中心に実施しIGSCC感受性の温 度依存性を検討する事を目的に310, 320, 330, 340 および360 ℃で実施した.

2.3 PWR1次系環境でのFe₃O₄溶解度計 算

水素添加した脱気高温水中でステンレス鋼表面で 熱力学的に安定であり,且つ実験的にその存在が確 認されている酸化物は Fe3O4および FeCr2O4 などのス ピネル酸化物である.そこでIGSCC感受性と割れ先 端で形成されるこれら酸化物の溶解挙動との関連を 検討する一環として代表的スピネル酸化物であり, かつ高温での溶解度の測定データが充実している Fe3O4の溶解度とIGSCC感受性との相関関係を検討し た.溶解度の計算は(1)式に記した様に2荷と3荷の 鉄イオン濃度の総和として算出した.

Fe3O4 溶解度

= { Fe^{2t} + $Fe(OH)^{+}+Fe(OH)_{2}+Fe(OH)_{3}$ } + { Fe^{3t} + $Fe(OH)^{2+}+Fe(OH)_{2}^{+}$ } (1) 各イオンの平衡濃度は,定圧比熱データを用い標準 自由エネルギーを算出して決定した.イオン種につ いての高温でのエントロピー計算はCriss-Cobbleの corresponding理論⁽²¹⁾を用いて計算した.また各イオン 反応の平衡解離定数については MacDonald^{(22)~(25)}らの 報告した値を用いた.また計算結果の信頼性を確認 するために高温での溶解度測定結果^{(26)~(28)}と我々の計 算コードを用いて計算した結果を比較した結果,図 1に示す様に 300 ℃までの条件ではほぼ十分な計算 精度を確認した.



図 1 Correlation between calculated and measured Fe3O4 solubility

3. 試験結果と考察

3.1 溶体化316SSの脱気ほう酸水中での IGSCC感受性

PWRの1次系水質管理基準を満足する環境条件での非鋭敏化ステンレス鋼のIGSCC 感受性の有無を調

べる事を目的に 320 ℃の低歪速度 (~1 X 10⁻⁷/sec) で実機運転サイクルの平均的水質条件((500 ppm as B + 2 ppm as Li + 30 cc STP/kgH2O)でのSSRT試験を 実施した. 試験後の破面観察結果を図2に示す. 亀裂は予歪を付与した加工面底部より発生し, 破面 形態はIGSCCで始まり貫粒型SCC(Transgranular Stress Corrosion Cracking: TGSCC) へ変化し最終的に 延性的に破壊している. この事からIGSCCはTGSCC に比べ、より低い歪速度で発生する事が理解され、 それぞれの破壊形態の歪速度依存性が示唆される. 類似のSCC破面の破壊形態変化はBWR模擬環境での 試験結果でも報告されている(7).また,破面観察から 得られるもう一つの特徴として、スピネルタイプの 溶解析出物が破面表面に線上に析出しているのが観 察される.この観察結果はあたかも破面上で金属の 溶解が発生する事により亀裂が進展し、その過飽和 溶解分が亀裂先端の破面表面にスピネルタイプの化 合物として線上に析出したものとも解釈される. この観察結果から, 溶存水素を含む低電位での IGSCC発生・進展メカニズムにも亀裂先端での金属 の溶解が何らかの形で関与している事を示唆してい る.この観察結果の重要な工学的な意味としては、 今回の試験片の様な強加工を受け且つ大きな残留応 力が存在する様な場合には,酸素を含む高温水中に 比べ感受性は低いものの、従来報告されている IGSCCの発生臨界電位より十分低い溶存水素を含む 高温水環境でも鋭敏化していないSUS 316 はIGSCC 感受性を有するということである.



図 2 Fracture surface morphology and characteristics (320℃, 500 ppm B+2 ppm Li +30 cc STP DH2/kg H2O)

3.2 溶体化SUS316のIGSCC感受性に及 ぼす温度の影響

PWRプラントのMOC (middle of the fuel cycle)の平 均的な水質条件 (500 ppmB-2 ppmLi-30 cc STP.DH2 /kgH2O) で, 320-360 ℃の温度範囲で非鋭 敏化SUS 316 のIGSCC感受性に及ぼす温度の影響を 検討した.

試験後の破面のSEM観察の結果全ての破面で IGSCCが観察された. 340℃では平均IGSCC深さは 0.31 mm(破断までの時間:275.6 hrs)であり,一 方320℃では0.2 mm(破断までの時間:500.7 hrs) であり顕著な温度依存性が認められた.そこで IGSCC感受性を(2)式で定義し温度依存性を整理した. 平均IGSCC進展速度(mm/sec)

= IGSCC平均深さ(mm) / 破断時間(sec) (2)結果を図3に示す.図には今回得られた試験結果に 加えて Andresen⁽¹⁸⁾ らが報告している水素注入した BWR環境を模擬した純水中での試験結果を同じ図に 記した. Andresenらの試験は 0.5 インチのCT試験片 を用いて一定の応力拡大係数(25 ksi/√in)条件で試 験された結果である.得られた結果は単調なアレニ ウス型の傾向を示し,酸素を含む高温水中での IGSCC感受性の温度依存性とは明らかに異なる傾向 を示した.⁽¹⁵⁾⁽²⁰⁾⁽²⁹⁾ またIGSCC感受性の温度依存性は PWR1次系模擬水中と水素注入したBWR模擬水では 殆ど同じ温度依存性を示し、少なくとも水素注入の 条件では両者の亀裂進展反応速度を決めている律速 課程は類似の反応であることが示唆される.この律 速反応が何であるかは今後の詳細な検討を要するが、 考えられる現象としては亀裂先端での溶解、粒界す べりおよび破壊面である結晶粒界への水素・酸素の 拡散または吸着・反応などの反応が考えられる.ま た実験結果から計算した活性化エネルギーは21.6 kcal/molであり水素添加した高温純水中での結果とし て報告されている結果(15.3 kcal/mol)と類似したも のであった.

さらに大きな関心の一つである照射されて脆化し たステンレス鋼の粒界破壊進展挙動との類似性の有 無を検討する一つとして,照射されたCW 316 SS (3x10²⁵n/m²)のPWR模擬環境でのSSRT試験結果³⁰⁾ を(2)式を用いて同じ指標を算出して同じ図に整理 した.限られたデータであることからこの結果のみ から結論つけることは無理があることは言うまでも 無いが,この類似した温度依存性は非照射材の IGSCCとIASCCは同じ律速課程で亀裂が進展している可能性を示唆しているものと考えられる.



☑ 3 Temperature dependence on IGSCC susceptibility under hydrogenated water

3.3 溶体化SUS316のIGSCC感受性に及 ぼす水素,ほう酸濃度の影響

PWR模擬環境でのIGSCC感受性におよぼす水素濃 度依存性については、Alloy 600のついては多くの報 告があり、またそのメカニズムについても全体とし てのコンセンサスが依然として得られていないもの の多くの報告例がある.^{(31)~(33)}.

しかし、水素が添加されたPWR模擬環境でのオー ステナイト系ステンレス鋼のIGSCC挙動に関しては、 実機での不都合事象が報告されていないこともあり 水素およびほう酸濃度などの環境因子についての系 統的な検討報告例は無い. そこでPWRプラントでの MOC & BOC (Beginning of Fuel Cycle, 2300 ppm B + 2 ppm Li + DH2) を模擬した環境条件でPWRプラン トの1次系水質管理基準範囲をカバーする水素濃度 範囲(15, 30, 45 cc STP /kgH2O) での試験を実 施し、IGSCC感受性に及ぼす水素濃度およびほう酸 濃度の影響を検討した.なお,一部水素濃度の影響 をより広範囲で検討することを目的に低濃度条件 (1 cc STP/kgH2O) での試験も実施した. 図4は得ら れた結果を水素濃度の関数として整理したものであ る. 高温では顕著な水素濃度依存性は観察されない が試験温度の低下と共にその依存性が観察され、実 機高温側温度に近い320℃では水質管理範囲内(15 ~ 45 cc STP/kgH2O) では,水素濃度の上昇と共に IGSCC感受性が加速されていく傾向が観察される. 一方低濃度条件では再びIGSCC感受性が上昇する傾 向という複雑な傾向が認められる.この傾向の再現 性とほう酸濃度の影響を検討することを目的にBOC 条件での実験を実施した結果図5に示すようにMOC 条件での傾向と類似の傾向が観察された.

図5から見られるもう一つの大きな結果はIGSCC 感受性が水素濃度のみならずほう酸濃度の影響を受 けることであり、この環境依存性を示す実験事実は 水素添加した高温水中でのIGSCC亀裂進展には明ら かに亀裂先端での溶解反応が何らかの形で関与して いることを示唆している.メカニズム考察の一環と して、水素添加した環境条件下で発生する亀裂の先 端で形成される溶解析出物の代表例として高温での データが充実しているFe3O4を取り上げ、その高温で の溶解度に及ぼす環境因子の影響を計算した結果を 同じ図に示した.今後詳細なメカニズム検討を実施 する予定であるが、この結果からも亀裂先端での溶 解反応の何らかの関与が示唆される.

一方もう一つの大きな関心であるIASCC進展メカ ニズムとの類似性を検討する一環としてPWR模擬環 境条件での古谷ら⁽³⁴⁾³⁵の照射材についてのSSRT試験 結果を(2)式で平均IGSCC進展速度を算出して非照射 材の水素濃度依存性と併せて比較した結果を図6に 示す.少なくともPWRの1次系水質管理範囲では類 似の水素濃度依存性を示しており,両者の進展メカ ニズムに類似の律速反応が関与していることがここ でも示唆される.両者の類似性を他の観点から検討 することを目的に照射のIGSCC破面に及ぼす水素濃 度依存性を比較した.図7に示すように破面にはス ピネル型の析出物が観察され、その存在密度は水素 濃度の上昇と共に多くなる傾向が観察される. 析出 物の密度が高いことは亀裂内での環境が同じであれ ば, 亀裂先端での溶解量が多かったことを示してい ると考えられることから、水素濃度が高いほど亀裂 先端での溶解が加速されたことを示していると考え られる。またこの析出物の存在密度が多いほど、言 い換えれば亀裂先端での溶解が激しいほどIGSCC感 受性が高い傾向を示している.この観察事実は亀裂 の進展に亀裂先端での溶解が関与していることを示 唆するもう一つの結果と考えられる.



☑ 4 Influence of dissolved hydrogen on IGSCC susceptibility under PWR primary water environments



☑ 5 Influence of dissolved hydrogen and boric acid concentration on IGSCC susceptibility under PWR primary water environments



☑ 6 Influence of dissolved hydrogen on IGSCC and IASCC susceptibility under PWR primary water environments



 D411012 10 kV x5.00K 6.00µm

 D411012 10 kV x5.00K 6.00µm

 D4110012 10 kV x5.00K 6.00µm

 D4110012 10 kV x5.00K 6.00µm

 Irradiated 316SS (Furutani et'al)

 図 7
 Influence of dissolved hydrogen on fracture surface characteristics of IGSCC and IASCC under PWR primary water environments

PDH2/k

4. 結論

cc STPDH2/kg

1. 強加工により高い残留予歪を与えた溶体化SUS 3 16 は 320 ℃の脱気高温ほう酸水中(500 ppmB-2 ppmLi-30 ccSTP.DH2 /kgH2O)でIGSCC感受性 を示した. 試験環境は従来報告されている熱鋭敏 化ステンレス鋼のIGSCC臨界電位を遙かに下回る 条件である. このことはIGSCC感受性の電位閾値 の存在を意味する臨界電位の存在を否定するもの である. この理由として,材料に付与した強加工 に伴う残留歪と高応力の影響と考えられる.

5 cc STPDH2/kc

- 2. SCC破面の形態はIGSCCが起点として発生した後 TGSCCへ変化し,最終的に延性破壊するモードを 示した.この破壊形態の変化はIGSCCとTGSCCの 歪速度および応力依存性を示すものと考えられ TGSCCがIGSCCに比べより高歪速度,高応力条件 で発生する破壊モードであることを示しているも のと考えられる.
- 3. IGSCC感受性に及ぼす温度の依存性を検討した結果、単調なアレニウス型の温度依存性を示した. この事はIGSCC亀裂の進展が単一の反応によって 律速されている事を示している.想定される反応 としては、亀裂先端での溶解、発生水素の粒界で の吸着、酸素の粒界拡散および粒界スベリなどが 考えられるが今後の検討が必要である.温度依存 性の大きさを示す活性化エネルギーは21.6 kcal/molであり水素を添加した純水中でAndresen らが報告している値(15.3 kcal/mol)に近い値を

示している.またPWR模擬環境での照射材の IASCC感受性も類似の温度依存性を示す事から, 照射CW 316 SSのIASCCと非鋭敏化SUS 316 の IGSCCは類似のメカニズムで発生・進展している 事が考えられる.またこの律速反応はほう酸の添 加の有無と関係なく類似の活性化エネルギーを示 すことから,何れの環境条件でもほぼ同一のメカ ニズムで発生・進展しているものと考えられる.

- 4. IGSCC感受性に及ぼす水素濃度の依存性を検討した結果,PWR1次系水の管理範囲内(15~45 cc/kg H2O)では,感受性は単調に水素濃度の上昇と共に大きくなる結果が得られた.得られた水素濃度依存性は照射CW316SSのそれと類似している。一方破面上に存在するスピネル状腐食生成物量の水素濃度依存性を検討した結果,何れも水素濃度の上昇と共に多くなる傾向が認められ亀裂の進展に亀裂先端での金属の溶解反応が関与している事を示唆している。この観察事実は照射CW316 SSのIASCCと非鋭敏化SUS316のIGSCCの発生・進展は同じメカニズムで溶存水素が関与している事を示唆している。
- 5. IGSCC感受性に及ぼすほう酸濃度の依存性を検討 した結果,明確なほう酸濃度依存性が認められた.
- 6. IGSCC感受性に及ぼす環境因子の影響が確認され ると共にIGSCC発生・進展メカニズムと亀裂先端 での溶解の関与を示唆する結果が得られた.そこ で高温水環境での亀裂先端で形成される代表的反 応生成物の一種であるFe3O4の温度,水素濃度お

よびほう酸濃度依存性を計算した.溶解度の計算 結果とIGSCC感受性との環境依存性を比較した結 果,低水素濃度条件(1 cc/kg H2O)を除いて類似 の水素濃度およびほう酸濃度などの環境因子依存 性が認めれた.

謝辞

この研究は関西電力(株)の委託研究の一環として 実施したものである.ここに記して謝意を表します. また実験の遂行に当たっては関電興業(株)の村上公 治,辻井克実 および平尾充司各氏の全面的な協力 を得ました.ここに記して感謝を表します.

文献

- [1] C. M. Pezze and I.L.W. Wilson, Proceedings of the Fourth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Jekyll Island, GA, (1989) p. 4 - 164
- [2] G.V. Rao, D.E. Boyle and R. Phillips, Proceedings of International Symposium on Fontevraud IV, SFDN, (1998)
- [3] R. Cauvin, O. Goltrant, Y. Rouillon, E. Cazus, P. Dubuisson, P. Poitrenaud and S. Bellet, Proceedings of International Symposium on Fontevraud III, SFDN, (1994), p. 54
- [4] G. Pironet, A. Heuze, O. Goltrant and R. Cauvin, Proceedings of International Symposium on Fontevraud IV, SFDN, (1998), p. 195
- [5] P.M. Scott, M.C. Meunier, D. Deydier, S. Silvestre and A. Trenty, Predictive methods for risk assessment and evaluation of materials, equipment and structures, ASTM1401, West Conshohocken, PA (2000) p. 91
- [6] M.E. Indig and A.R. McIlree, Corrosion, 35 (1979)
 p. 288
- [7] F.P. Ford and M.J. Povich, Corrosion, 35 (1979)
 p. 569
- [8] M.E. Indig and J.L. Nelson, Corrosion, 47 (1991)
 p. 202
- [9] G. Cragnolino, L. Lin and Z. Szklarska-Smialowska, Corrosion, 37 (1981) p. 312
- [10] D.D. MacDonald and G. Cragnolino, Proceedings of the Second International Symposium on

Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems, Monterey, CA (1985) p. 211

- [11] K. Arioka, T. Nojima, T. Kanechiku, C.G. Schmidt,
 D.D. MacDonald, and T. Mager, The 3rd
 JSME/ASME Joint International Conference on Nuclear Engineering, Kyoto, Japan (1995) S 112 -1
- [12] A. Bertuch, D.D. MacDonald, J. Pang, L. Kriksunov and K. Arioka, Proceedings of International Conference of Chemistry in Water Reactors, Nice, France (1994)
- [13] D.S. Morton, S.A. Attanaio, J.S. Fish and M.K. Schurman, Corrosion '99, paper No. 447 (1999)
- [14] A. Molander and B. Rosborg, Fourth International Conference of Water Chemistry for Nuclear Reactor Systems, BNES, paper 17, London (1986)
- [15] K. Arioka, M. Hourai, S. Okamoto and K. Onimura, Corrosion '83, paper No. 135, Anaheim (1983)
- [16] T. Yonezawa, K. Arioka, H. Kanasaki, K. Fujimoto,
 K. Ajiki, T. Matsuoka, S. Urata, H. Mizuta, J. At. Energy Soc. Japan, 42 (2000) p. 212
- [17] T.M. Angeliu, P.L. Andresen, E. Hall, J.A. Sutliff, S. Sitzman, R.M. Horn, Proceedings of the Ninth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems
 Water Reactor, Newport Beach, CA, (1999) p. 311
- [18] P.L. Andresen, M.T. Angeliu and L.M. Young, Corrosion 2001, paper No. 01228 (2001)
- [19] N. Totsuka and Z. Szklarska-Smialowska, Corrosion, 44 (1988) p. 124
- [20] Z. S-Smialowska, Z. Xia and S.W. Sharkawy, Corrosion, 48 (1992) p. 455
- [21] C.M. Criss, and J.M. Cobble, J. Amer. Chem. Soc., 86 (1964)5390
- [22] D.D. MacDonald, G.R. Shierman and P. Butler, Atomic Energy of Canada Limited, Report AECL-4136 (1972)
- [23] D.D. MacDonald, G.R. Shierman and P. Butler, Atomic Energy of Canada Limited, Report AECL-4137 (1972)
- [24] D.D. MacDonald, G.R. Shierman and P. Butler, Atomic Energy of Canada Limited, Report AECL-4138 (1972)
- [25] D.D. MacDonald, G.R. Shierman and P. Butler, Atomic Energy of Canada Limited, Report AECL-

4139 (1972)

- [26] F.H. Sweeton and C.F. Baes. Jr, J. Chem. Thermodynamics, 2 (1970) p. 479
- [27] P. Tremaine and J.C. LeBlanc, J. Solution Chemistry, 9 (1980) p. 415
- [28] K.A. Dinov, Doctoral Dissertation, Tokyo University (1993)
- [29] W.E. Ruther, W.K. Soppet, T.F. Kassner, Corrosion, 44 (1988) p. 791
- [30] I. Suzuki, M. Koyama, H. Kanasaki, H. Mimaki, M. Akiyama, T. Okubo, Y. Mishima and T.R. Mager, Proceedings of the Fifth International Conference on Nuclear Engineering, vol. 5 (1996) p. 205
- [31] T. Cassagne, A. Gelpi, Proceedings of the Sixth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems
 Water Reactor, San Diego, CA (1993) p. 679
- [32] T. Cassagne, B. Fleury, F. Vaillant, O. DeBouvior,
 P. Combrade, Proceedings of the Eighth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems
 Water Reactor, Amelia Island, FL (1997), Vol. 1,
 p. 307
- [33] C. Soustelle, M. Foucault, P. Combrade, Proceedings of the Ninth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactor, Newport Beach, CA(1999) p. 105
- [34] G. Furutani, N. Nakajima, T. Konishi, M. Kodama, J. Nucl. Mater., 288 (2001), p. 279
- [35] K. Fukuya, K. Fujii, M. Nakano, N. Nakajima, Proceedings of the Tenth International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactor, Lake Tahoe, CA (2001)