

γ線測定 of 核燃料検査への応用

Applications of Gamma Scintillation Spectrometry for Inspection of Fuels

八 卷 秀 雄* 福 島 稔*
Hideo Yamaki Yutaka Fukushima

内 容 梗 概

シンチレーション・カウンタによるγ線測定技術を利用してU²³⁵濃縮度測定法および燃料体中のウラン分布測定法の検討を行なった。本方法は非破壊、簡易および迅速が特長である。

二酸化ウラン粉末による濃縮度測定はU²³⁵より生ずる184 keVのピークとU²³⁸の娘核から生ずる90 keVのピークとの強度を比較する方法で二種類の濃縮度標準試料より関係式を導くことにより約1%の誤差で濃縮度の測定ができる。

燃料体中のウラン分布の測定については棒状試料と板状試料とで実験を行ない、Cs¹³⁷またはTm¹⁷⁰を線源としたγ線透過法により測定速度1~4 cm/minで約1%の誤差内で測定できる。また、ウラン自身の放出するγ線を測定する方法は天然または低濃縮ウランによる燃料体には不適當である。

1. 緒 言

原子炉の燃料体はできるだけ高出力密度を得たいという物理的ならびに機械的な条件のほかに、安全性の立場からも高度の精度と十分な品質管理が必要であり、その製造途中および完成後に各種の厳重な検査を行なっている。これら検査法の一部としてシンチレーション・カウンタによるγ線測定技術を応用した燃料の非破壊検査法がいくつか試みられ、実施されている。ここではウラン自身の放出するγ線からU²³⁵の濃縮度を測定する方法および燃料体中のウラン分布を測定する方法、またγ線の透過法による減衰から密度差によるウラン分布を測定する方法について検討した結果を報告する。これらの方法の一部は従来の方法とおきかわるべきものであり、一部は新たに加える検査方法である。

2. γ線スペクトルによる濃縮度の測定⁽¹⁾

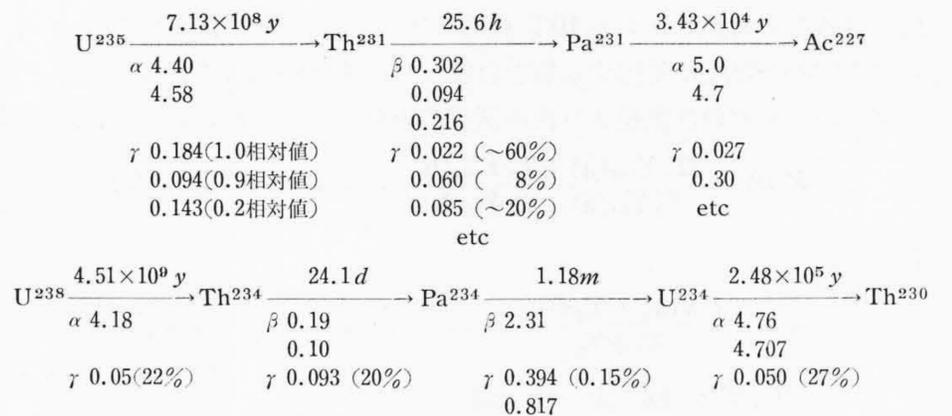
ウラン濃縮度の測定法では質量分析法⁽²⁾⁽³⁾が広く行なわれ、かなりよい精度の測定が可能であるがその装置および技術が複雑である。また、他に放射化法として核分裂計数管を用いて核分裂の割合より求める方法⁽⁴⁾とか、分裂生成物中のBa¹⁴⁰の量から求める方法⁽⁵⁾などがある。これらのほかにウランの放出するγ線スペクトルを測定して濃縮度を求める方法⁽⁶⁻⁹⁾も試みられ、精度よりも簡易および非破壊性を特長としている。

この方法は標準試料を用いる比較法の形で行なわれているが、著者らはこの測定法を改良するため天然および10%濃縮ウランを標準試料としてγ線スペクトルと濃縮度との間の関係式を導き、これを用いて二種の試料の濃縮度を測定した。この結果、本法は従来の同種の方法よりもすぐれていることを確認した。

2.1 原 理

ウランは天然放射性同位元素であり、絶えず核崩壊が行なわれている。U²³⁵とU²³⁸とは同位元素でその核的性質が異なり、それぞれ異なった様相の崩壊(ほうかい)をする。したがって崩壊に伴って放出される放射線を測定すればU²³⁵とU²³⁸との崩壊の割り合いがわかり、それからウラン中のU²³⁵とU²³⁸との存在比(濃縮度)がわかる。U²³⁵とU²³⁸の崩壊過程のうち、初期の段階で放射平衡になるまでに放出されるおもな放射線を第1図⁽¹⁰⁾に示す。これらのうちU²³⁵はTh²³¹の崩壊まで、U²³⁸はPa²³⁴の崩壊までが問題になり、それ以降のものは半減期が極端に長いので精製されたウランの中には存在しないものとみてよい。

* 日立製作所日立研究所



第1図 U²³⁵ および U²³⁸ の崩壊 (放射平衡になるまで)

ウラン試料をγ線スペクトロメータで測定すると第1図の中で比較的容易に検出できるのはU²³⁵の94 keVと184 keVおよびU²³⁸の50 keVとその娘核Th²³⁴の93 keVである。したがって、これらのピークはそれぞれU²³⁵とU²³⁸とを示すものであるが、このうち50 keVは試料による自己吸収が大で測定しにくいのでこれを除き、また、93 keVと94 keVのピークは実際上区別して測定することは困難なので、これらの二つの合成されたピークと184 keVのピークを比較するのが便利である。なお、低エネルギーγ線の絶対測定はかなり困難であり、試料の状態にも制限が加わるので標準試料を用いる相対測定法を選んだ。

測定されたγ線スペクトルより求まる90 keV(93 keVと94 keVの和を以後90 keVで示す)と184 keVのピーク比は核崩壊の原理上濃縮度とは一定の関係にある。(1)式はこの関係を示したもので崩壊定数、崩壊あたりのγ線数⁽¹⁰⁾、バックグラウンドおよび検出効率を考慮したものである。

$$R(n) = \frac{[n \lambda^{235} N \eta_{184}^{235} + (1-n) \lambda^{238} N \eta_{184}^{238} + C] K_1}{[n \lambda^{235} N \eta_{90}^{235} + (1-n) \lambda^{238} N \eta_{90}^{238} + D] K_2} \dots (1)$$

ただし、R(n): 濃縮度nのスペクトルにおける90 keVと184 keVのピーク比

n: U²³⁵の濃縮度(存在比)

λ: ウランの崩壊定数

$$\lambda^{235} = 9.72 \times 10^{-10}, \lambda^{238} = 1.54 \times 10^{-10}$$

N: 試料中のウラン原子数

η: 崩壊に伴う注目放射線発生確率

$$\eta_{184}^{235} = 1, \eta_{90}^{235} = 0.9, \eta_{184}^{238} = 0, \eta_{90}^{238} = 0.2$$

C, D: 各ピークに加わっているバックグラウンド

K_1, K_2 : 自己吸収も考慮した検出効率

なお、 U^{238} を示す 90 keV のピークは実際は Th^{234} の崩壊によるものであるが放射平衡になっているため便宜上 U^{238} として示してある。また、 η_{184}^{235} と η_{90}^{235} は正確には相対値であるが、これは実験値を代入して求める K によって補正されるので最後の結果には影響を与えない。

(1)式における未知の定数は C, D, K_1 および K_2 であるが後の二つは K_1/K_2 の形ではいっているから未知数の数は三つになる。したがって 3 種類の濃縮度をもつ標準試料のピーク比を(1)式に代入すれば三元一次連立方程式として解くことができ、濃縮度とスペクトルとの関係式が得られる。

本実験に際して濃縮度のわかった試料は天然ウランを含めて 4 種類しかなく、また、入手の時期がそれぞれ異なっており、同時に実験できなかつたため 2 種類の標準試料により(1)式を解くことを考えた。すなわち、天然ウランと第 1 回目に入手できた 10% 濃縮ウランを標準試料とし、第 2, 3 回目に入手した濃縮ウラン試料を未知試料としてあつかうことにした。2 種類の試料から三つのピーク比を得るため天然ウランと 10% 濃縮ウランとのピーク比からこれらの中間の濃縮度に対応する値を合成した。すなわち、これら二つの試料のピークの計数値より次の関係が成り立つとした。

$$R(n) = \frac{T_1 Y_{184}(a) + T_2 Y_{184}(b)}{T_1 Y_{90}(a) + T_2 Y_{90}(b)} \dots\dots\dots (2)$$

ただし、

$$n = \frac{T_1 n(a) + T_2 n(b)}{T_1 + T_2} \dots\dots\dots (3)$$

T_1, T_2 : 測定時間

$Y(a), Y(b)$: 試料 a, b の実験により求めた単位時間当たりのピーク計数値

(2)式では濃縮度の異なる試料 a および b をそれぞれ T_1 および T_2 時間測定し、それらの結果を合成すれば(3)式の関係で示される濃縮度 $n\%$ の試料を測定したのと同じ結果になるという考え方である。すなわち、たとえば 100% U^{235} を 5 分間測定し、さらに 100% U^{238} を 5 分間測定した結果を合成すれば 50% 濃縮ウランを 10 分間測定したのと同じ結果になるという考え方である。この考えは測定されたスペクトルの各ピークが濃縮度に比例していれば成り立つのであるから測定に際し不感時間の差やその他の測定条件を注意してやればよい。このようにして第 3 の標準データとして 5.378% 濃縮ウランに相当するピーク比を得た。次にこれら三つのデータを示す。

$$\left. \begin{array}{l} n_1 = 0.7150 (\%) \quad R(n_1) = 0.3512 \text{ (測定値)} \\ n_2 = 5.378 (\%) \quad R(n_2) = 0.9239 \text{ (計算値)} \\ n_3 = 10.040 (\%) \quad R(n_3) = 1.153 \text{ (測定値)} \end{array} \right\} \dots (4)$$

(4)式のデータで(1)式を解くと次の結果が得られる。

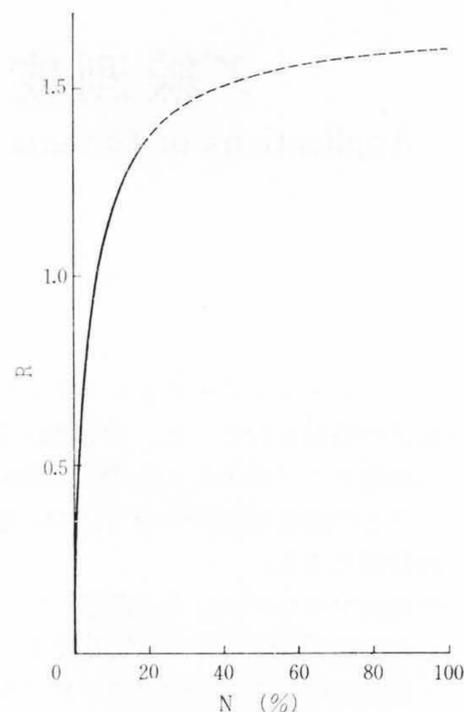
$$\left. \begin{array}{l} \frac{C}{N} = 5.612 \times 10^{-12} \\ \frac{D}{N} = 15.446 \times 10^{-12} \\ \frac{K_1}{K_2} = 1.464 \end{array} \right\} \dots\dots\dots (5)$$

この結果を(1)式に代入すると濃縮度とピーク比との関係の最終結果として次が得られる。

$$n = \frac{5.4879 R(n) - 0.9731}{1.6857 - R(n)} \dots\dots\dots (6)$$

なお、(6)式は実験条件の影響を含んだ関係式であるので本実験条件固有のものである。

(6)式の関係を図にしたのが第 2 図である。濃縮度が約 20% より以下の低濃縮領域においては濃縮度とピーク比との関係は変化



第 2 図 スペクトルのピーク比 (R) と濃縮度 (n) との関係 (I)

率が大きい。20% 以上の高濃縮範囲を点線で示しているのは試料が 10% 濃縮までで、それ以上の点を実験で確認することができなかつたからであるが、100% U^{235} の場合のピーク比について濃縮度とピークの計数値が比例するとした(2)式より外そうして計算した値と比較すると約 0.1% 差で一致していることから(6)式の精度が点線の部分についてもかなりよいと考えてよい。

2.2 実験およびその結果

γ 線スペクトルの測定には 256 チャンネル波高分析器を使用した。NaI(Tl)シンチレータは 3" ϕ \times 3" のもので鉛で作った遮へい体の内に入れてバックグラウンドを少なくした。

試料は二酸化ウランの粉末(粒径約 0.1~0.3 μ 以下)である。厚さ 1.6 mm のベークライト板に 20 mm ϕ の穴をあけ、そこに 1 g の試料を入れ、両面をセロハンテープで封じて使用した。これは試料による自己吸収を少なくし、かつ、試料の諸条件の再現性をよくするために行なったものである。

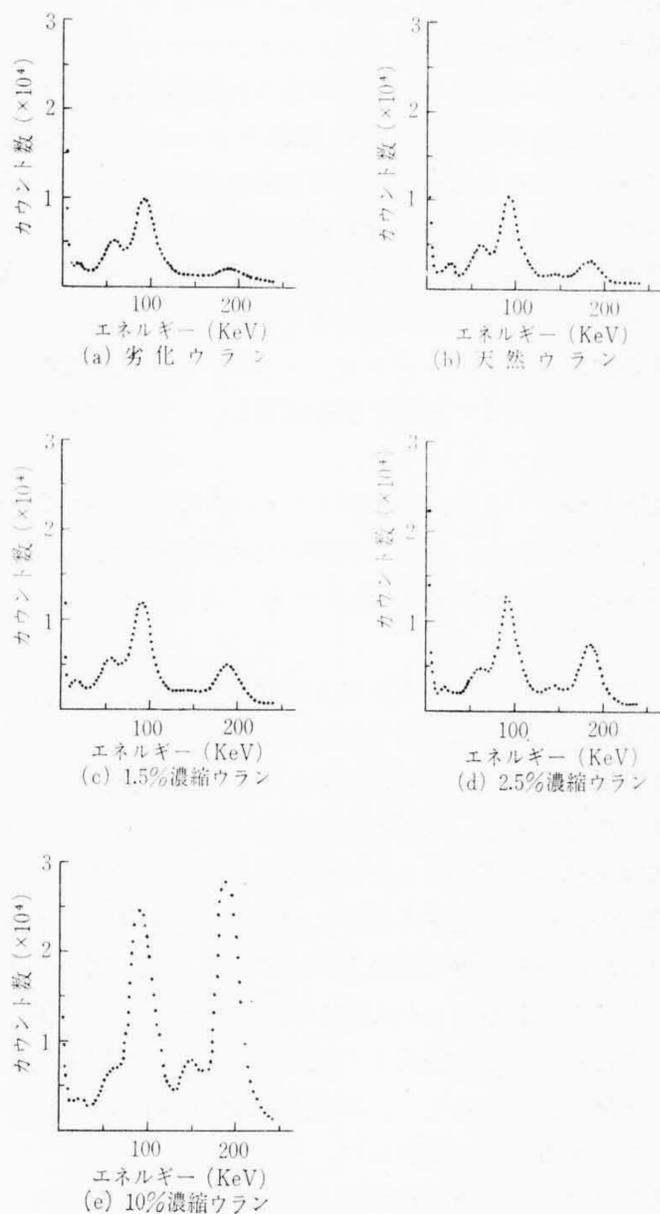
スペクトルの各ピークの計数値はデジタルプリンタの記録における最大値とその前後各 4 チャンネルの合計 9 チャンネルの和をとった。計数時間は 300 秒で各 10 回測定し、その平均値をとった。90 keV のピークの計数値は天然ウランで約 5.4×10^4 , 10% 濃縮ウランで約 1.4×10^5 カウントであった。

第 3 図に濃縮度が異なる 5 種類のウランの γ 線スペクトルを示す。スペクトルには 50, 90, 143 および 184 keV のピークが確認できる。濃縮度が変化するにしたがって U^{235} を示すピークがかわり、90 keV と 184 keV のピーク比が著しくかわることがよくわかる。なお、劣化ウランは質量分析法で測定されたデータはなかったが参考として他の試料とともに測定したものである。

試料の測定は前述のようにウラン加工上、その他の原因により同一時に全種類を測定することができず、16 個月間にわたり 3 回に分けて各濃縮度ごとに別個に行なった。このことが結果の精度に与える影響は大きい。データは毎回測定することができた天然ウランの値で次のように規格化して使用した。第 1 表に各濃縮試料の測定の際に得られた天然ウランのピーク比を示す。

第 1 表 各試料測定の際の天然ウランのピーク比

測定試料	天然ウランのピーク比 180 keV / 90 keV
10%濃縮, 劣化, 天然	0.3512 \pm 0.0010
2.5%濃縮, 天然	0.3578 \pm 0.0003
1.5%濃縮, 天然	0.3492 \pm 0.0017



第3図 二酸化ウラン粉末のγ線スペクトル (測定時間 300秒)

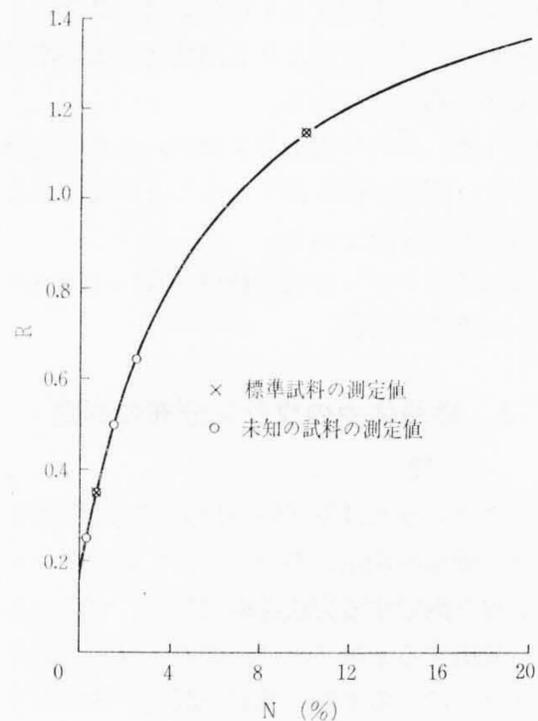
これらピーク比の不一致の原因はピークの計数値に対してほぼ定数と考えてよい値、すなわち、(1)式におけるC、DまたはKが変わったためと考えられる。したがって、濃縮度に関係しない係数により3回にわけ測定された個々のデータの規格化をすることができる。この係数としては未知試料と同時に測定した対比試料としての天然ウランのピーク比と標準試料としての天然ウランのピーク比との差をとり、その値を未知試料のピーク比に対してそのまま加減する方法をとった。この規格化によって生じた変化は各試料について1.88%と0.558%である。

上述のように規格化した測定結果を第2表に示し、第4図には(6)式によって与えられる曲線とともに測定値をプロットした。測定値と濃縮ウラン供給元のアメリカA. E. Cより示された値とは測定誤差の範囲内でよく一致している。

第2表に示した誤差は次のようにして導いたものである。誤差の生ずる原因は次の三つに分けられる。その1は未知試料である2.5%または1.5%濃縮ウランの計数値がもつ統計的な誤差である。その2は計数値の規格化に伴うもので対比試料として用いた天然ウランの計数値の誤差をとった。その3は(6)式の誤差、すなわち、(1)式から(6)式を導くのに使用した標準試料の計数値の誤差で

第2表 濃縮度の測定結果

試料ウラン	測定値 (%)	アメリカA. E. Cより示された値 (%)
2.5% 濃縮	2.46 ± 0.03	2.49014
1.5% 濃縮	1.48 ± 0.02	1.49028
劣化	0.298 ± 0.006	—
標準10%濃縮	—	10.040
標準天然	—	(0.7150) ⁽⁸⁾



第4図 スペクトルのピーク比(R)と濃縮度(n)との関係(II)

0.3~0.5%である。なお、これら3種類の誤差はほぼ同じ大きさを持っている。

2.3 考察

以上のように約1.2%以内の誤差で濃縮度を測定することができたが、本方法には、いっそうの高精度が期待できるものである。この実験に用いた濃縮ウラン試料は日立製作所が加工した日立教育訓練用原子炉(HTR)燃料の10%濃縮ウランおよび王禅寺臨界集合体(OCF)燃料の2.5%ならびに1.5%濃縮ウランの原料としてアメリカより貸与されたものであり、濃縮ウランの加工上の問題から前述のように約1年半にわたって各濃縮度ごとに測定し、同時に測定した天然ウランの計数値で規格化したこれは全く余分の操作であり、標準試料と未知試料とを同時に測定すれば誤差は約2/3の0.8%に減少するものである。さらに、本実験では各試料につき300秒ずつ10回の計数を行なったが計数時間をもっと長くすれば誤差をいっそう小さくできるものと期待できる。

本法をこれまでに報告された同種の方法と比較してみる。(2)式は濃縮度とピークの計数値とは比例関係にあることを示したものであるが、このことからU²³⁵のみから放出する184 keVのピークの計算値だけを使って濃縮度を求めた例⁽⁷⁾がある。この方法は単純ではあるが一種の絶対測定であるから試料と検出器との幾何条件や測定時間の誤差および検出器の不感時間の影響などが直接誤差と結びつくのが欠点である。

一方、ピーク比を用いた実験例もあるが、これらは濃縮度とピーク比との関係に対して核崩壊特性などを考慮した関係式による解法を試みてない⁽⁵⁾⁽⁶⁾。関係式を一部使用したU-Al合金板状燃料体についての実験結果は報告⁽⁹⁾されているが標準試料の利用法および実験定数の決め方などが本法と異なっている。

本法で注意を要する点は試料の粉末の粒径である。測定するγ線エネルギーが低いため試料による自己吸収の効果がきわめて大きい。そのため標準試料と未知試料の粒径は同じにすることがのぞましい。しかし、実験によれば粒径0.1~100μmの範囲においては前述の方法で試料を作成するならばその粒径の影響を無視しうることが確認できた。また、同じ理由により、本法による二酸化ウラン粉末焼結ペレットについての濃縮度測定結果はペレットの密度および寸法のわずかな差の効果が大きく影響し、粉末の場合に比べて数倍の誤差を生じた。

以上述べてきたことを要約すると次のようになる。

- (1) 関係式(1)を使用すると標準試料は2ないし3種類でよく、従来の同種の方法よりも高精度で広い濃縮度の範囲に適用できる測定法である。
- (2) 誤差 ±1.2% 以内で測定できたが、これは規格化の手順を省略でき、測定時間を長くとることができるなら数分の一にすることも可能である。
- (3) 試料の二酸化ウラン粉末の粒径は0.1~100 μ の範囲ではその違いの影響はない。

3. 燃料体中のウラン分布の測定

3.1 原理

核燃料体中のウラン分布は原子炉の出力密度に影響する重要な問題である。ウラン分布の測定法の一つとしてシンチレーション・カウンタによりγ線を測定する方法を検討した。すなわち、燃料体のウラン自身から放出するγ線または、他のγ線源を使用し、燃料体を透過させ、ウランによるγ線の減衰を測定するもので、シンチレーション・カウンタによるオートラジオグラフィならびにラジオグラフィといえるものである。この種の測定法は外国においても検討されており、すでに一部実用もされているようである⁽¹¹⁻¹³⁾。

ウラン自身のγ線を測定する方法は前述の第1図に示すウランから放出される50~200 keVのγ線を測定するもので原理的には、ウラン量に比例した計数値を示す。しかし実際上はγ線エネルギーが低いため自己吸収が大きく棒状試料の場合はその中心部の状態はほとんど測定不能である。U-Al合金板状燃料の場合は自己吸収が少なく測定に適しているが天然ウランまたは低濃縮ウランの場合は計数率が小さく、計数値の精度をよくするのはむずかしい。しかし、計数率がウラン量に比例することから板状燃料体にとっては考慮されるべき方法の一つである。

他のγ線源による透過減衰の測定は従来よく使用されているγ線密度計⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾と全く同じ原理によるもので、よく知られた(7)式の関係に基づくものである。

$$I = I_0 \exp(-\mu_m \rho l) \dots\dots\dots (7)$$

- I: 透過γ線強度
- I₀: 吸収物質がない場合のγ線強度
- μ_m: 質量吸収係数 (cm²/g)
- ρ: 吸収物質の密度 (g/cm³)
- l: 吸収物質層の厚さ (cm)

試料物質のγ線吸収係数がわかっている場合に、物質中での透過によるγ線の減衰を求めればその物質の密度または厚さを知ることができる。γ線の減衰率は試料物質を構成する元素と密度および厚さならびに入射γ線エネルギーによって定まるものである。したがって、使用するγ線源を試料条件を考慮して適当に選ぶことにより測定感度をよくすることができる。また、この方法は板状試料および棒状試料に対し同じように適用できる。

一方、この方法の欠点はウラン量の変化に対し測定される計数値の変化量が計数値全体と比べ少ないことである。したがって、結果を記録計のチャートに表わす場合など読み取りに不自由な場合がある。しかし、測定精度をあげることによりかなり解決はできる。

3.2 棒状燃料体のウラン分布の測定⁽¹⁶⁾

3.2.1 実験およびその結果

二酸化ウラン粉末振動充てん燃料棒の充てん密度測定を例として説明する。

この方法は従来工業計器として使用されているγ線密度計に比べ測定に高精度が要求されるのでシンチレーション・カウンタが使用され、また、試料のγ線吸収が非常に大きい点および燃料棒の直径が約10mmで測定の際に曲率が影響するため測定装置の

幾何条件の再現性が重要となる点などが異なっている。

振動充てん燃料棒とはステンレス・スチールまたはジルコニウム製の被覆管に二酸化ウラン粉末を入れ振動を加えて充てん密度を高くしたものであり、従来の焼結ペレットに代わる方法である。燃料棒全体の平均密度は使用材料の重量測定から容易に知ることができるが、その各部分の密度を非破壊的に測定する方法ではγ線の透過法が迅速であり、定量測定の精度がよく、検出感度が高い点から最も適していると考えられる。

γ線の検出はシンチレーション・カウンタの比例増幅器のディスタクリミネータにより散乱γ線を区別し、一次γ線のみを計数した。

γ線源はCs¹³⁷ 15mcで鉛のコリメータにより直径3mmのビームとして使用した。ビームが細いため試料中でγ線の透過する部分が少ないので試料を回転させることによりその影響を補った。

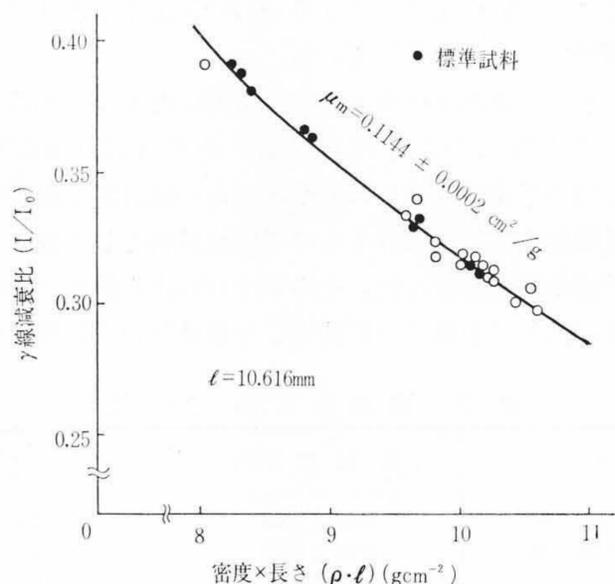
試料の送り装置はテーブルの上に試料を固定し、線源部と検出部の間をテーブルを移動さす方式である。

送り装置で最も重要なのは試料と線源および検出器との間の幾何条件の精度である。試料の密度測定は(7)式に示すように実際には密度と厚さの積(ρl)の形で測定されるものである。したがって、棒状の試料を測定する場合に測定位置が変化し、γ線の透過する位置が試料の断面の直径方向にずれると吸収層の厚さが変化したことになり測定値ρlは密度の変化にかかわらず値が変化することになる。密度を精度よく測定するにはそれ以上の精度で幾何条件を保たねばならない。本装置では試料のずれを±0.2mm以下におさえるように設計した。

二酸化ウランのγ線吸収係数は焼結ペレットを用いてμ_m=0.1144±0.0002 cm²/gを得た。ペレットを使用したのは試料の寸法および重量の計測が容易であるため粉体に比較してその密度を精度よく知ることができるからである。この実験値はウランと酸素に対する既知の値よりUO₂として計算で得られる値より約3%小さい。

第5図はペレットの測定値であって、吸収係数を示す曲線および粉末充てん燃料棒の測定例のデータを示してある。第5図の横軸に示した密度には充てんに使用した二酸化ウラン粉末の重量より求めたものをもってある。試料の燃料棒は次の仕様によるものである。

被覆管	材質	SUS 27
	外径	12±0.03 mmφ
	肉厚	0.6±0.03 mmt



第5図 二酸化ウラン充てん密度測定例 (ρ'=10.96 g・cm⁻³が充てん密度100%に相当する)

充てん密度 10.96 g/cm³を100%としてある

燃料棒の測定は送り速度 2 cm/min で試料を移動させ、試料全体について計数し、次いで燃料棒の軸を中心に 90 度回転させて再び計数し、その平均値をとったものである。計数率は約 5×10⁴ cpm で計数はカウント数の形で求めた。

第 5 図に示した燃料棒 17 本についての測定例は多くのものが 0.5% 以内の差で吸収係数の曲線と一致しており、本測定法の実用可能性を示している。不一致のものについてもほとんどのものが燃料体の仕様に基づく許容誤差として説明できる。

以上述べたのは燃料棒の平均充てん密度の測定精度のよいことを示したのであるが、このためにはむしろ重量法が容易である。本法のねらいは燃料棒の各部分の密度を非破壊的に測定し、二酸化ウラン充てん密度の一様性を検出できることである。

このためにはデータの表示を記録計のチャートに示すのが最も簡単である。しかし、チャートに示すためには計数率計をとおすため、その時定数と記録計の応答速度により生ずるチャート上の指示のずれを補正しなければ正しいデータを得ることができない。欠陥が検出部(コリメータ)に送られてくると燃料の密度が変化しているので(7)式の関係により計数率が変化する。この変化は計数率計を通り記録計に表わされる。この際に当然計数率計の時定数により実際の計数率の変化より時間的におくれたデータを記録計は示すことになる。データは徐々に入力の変化量に追いつくわけだがその間も試料が送られてゆくために、データが入力の変化を正確に示さない中に欠陥が検出部を通り過ぎ入力の変化が元に復する。したがって、記録のデータは計数率の変化をそのままには示していないことになる。このことは時定数、試料の送り速度、コリメータの大きさおよび欠陥の大きさにより定まる現象である。この現象を単純化するためにメータと欠陥の形をともに長方形と仮定し、それによって補正係数を求めた。

入力が係数 a で一次増加し、時間 t で平衡に達する場合の時定数 τ をもつ装置の出力(チャートへの表示)は次の関係で示される。

$$I(t) = aF(t) - aF(t - t_1) \dots \dots \dots (8)$$

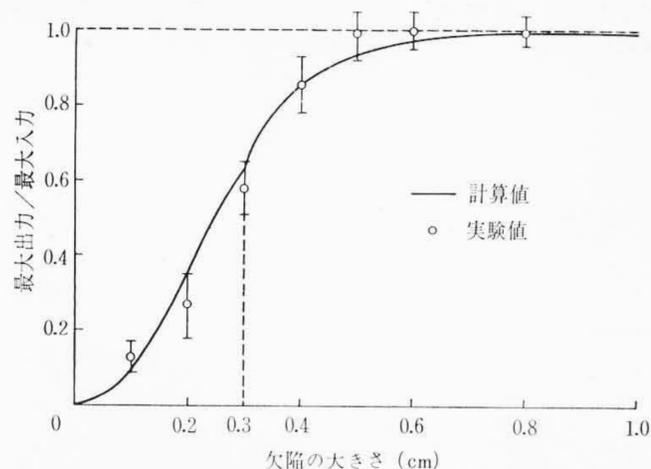
ただし、

$$aF(t) = a\{t - \tau(1 - e^{-\frac{t}{\tau}})\} \dots \dots \dots (9)$$

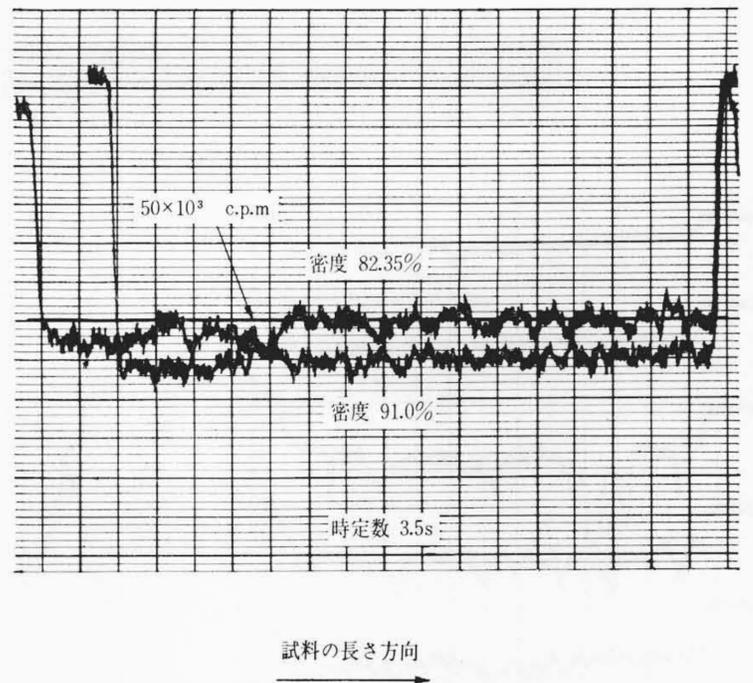
(8)式は入力が at なる増加関数の際の出力の大きさを示す関数である。

(8)式の t に出力が最大値になる時間、 t_1 に出力の大きさが平衡になる時間(コリメータの大きさ、または欠陥の大きさを時間で表わしたものを)を代入すれば出力の最大値が得られる。出力の最大値と入力との関係を第 6 図に示す。なお比較のため金属板に穴をあけた標準試料による実験結果もあわせて示す。

第 6 図の値とチャート上から求まる欠陥の大きさ(長さ)から欠



第 6 図 記録計の指示(出力)と欠陥の大きさとの関係



第 7 図 振動充てん燃料棒の密度測定例

陥による真の計数率の変化量が求められる。

次に試作の燃料棒についての測定例を記録計のチャートによって示す。

第 7 図は密度の異なる燃料棒について同一チャートに重ねて表示したものである。約 9% の密度の差はチャート上で約 5 目盛り(1 目盛りは 2.5 mm)の差となっている。また高密度に充てんされたものが低密度のものに比較して密度の部分的変化が少ないことがわかる。

3.2.2 考 察

以上棒状燃料体のウラン分布測定例として二酸化ウラン粉末の振動充てん燃料棒を取りあげ説明した。本法で誤差の原因は γ 線の計数値の統計誤差のほかに γ 線吸収係数の誤差と被覆管の内径の誤差が影響する。データをチャートに表示する場合に記録計の指示は(10)式で標準偏差が求まり、これより、本実験の場合は確率誤差が約 0.9% となる。部分的密度変化に対する応答おくれを考慮するならば約 1~1.5% の誤差で燃料棒のウラン分布(相対的密度変化)が測定できることになる。

$$\frac{\sigma_v}{V} = \frac{1}{\sqrt{2n\tau}} \dots \dots \dots (10)$$

ただし、 σ_v : 計数率計出力の標準偏差

V : 計数率計出力

n : 計 数 率

τ : 時 定 数

3.3 板状試料のウラン分布の測定⁽¹⁷⁾

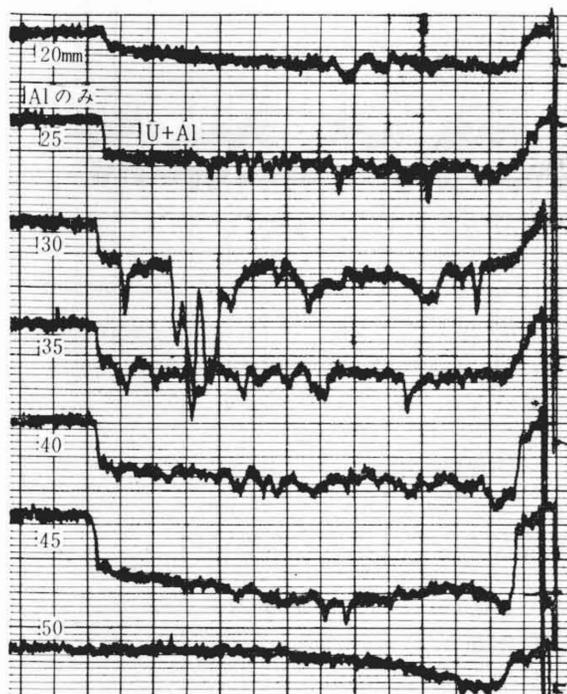
板状燃料体はおもに研究用原子炉に使用され、材料試験炉などでは高出力密度で使用されるため、ウラン分布の一様性は非常に重要な問題である。天然ウランを使用した U-Al 合金板状燃料体を使用して検討した結果を説明する。なお、原理および方法は前節で述べた棒状燃料体の場合と全く同じであるため測定例を一つ示し、棒状の場合との相異点を簡単に述べる。

棒状燃料体の測定は密度計として γ 線を使用した。板状燃料の場合の原理は同様であるが密度計というよりもむしろラジオグラフィの一種である。フィルムの黒化度の代わりにシンチレーション・カウンタの計数率を測定し、一時に広い範囲(面積)の測定ができないためカウンタを試料の表面にそってスキャンさせるわけである。

スキャンに際して、検出器および線源部のコリメータの大きさにより測定時間と検出感度とが相反する関係を持っている。すなわち、小さな欠陥に対し高感度を求めるならコリメータの直径は小さ



(a) 試料の X 線写真

(b) γ 線透過法(c) ウランの γ 線測定法第 8 図 U-Al 合金板状燃料体のウラン分布測定例
(ウランの偏在の多い試料の例)

くせねばならず、その場合は一回のスキャンで測定される範囲(面積)が狭くなりスキャン回数を多くせねばならない。したがって、はじめに大きなコリメータ(直径 10 mm 以上)で測定し、問題のあるところを見つけ、そこだけ小さなコリメータ(直径 5 mm 以下)で再測定するのがよい。

実験に使用した試料条件は下記のとおりである。

試料の大きさ 70×350 mm

試料の厚さ $d=1.5$ mm

心材の大きさ 約 32×280 mm

心材の厚さ 約 $d/3$

心材の成分 U(20 W%)-Al 合金

U-Al 合金は γ 線の自己吸収が少ないのでウラン自身の γ 線を測定してウラン分布を求めることを試みた結果、感度は比較的良好であるが天然ウランであるため計数率が小さく、コリメータなしの状態では約 4×10^3 cpm しか得られず、精度の点ではかなりわるかった。

ウラン含有量の測定では約 2.5% の差で分析値と一致したがウラン含有範囲の測定では誤差が約 ± 1.3 cm であり、5 mm 以下の欠陥に対しては検出が非常に困難であった。

第 8 図(c)に欠陥(ウランの偏在)の多い試料の測定例を示す。 γ 線の透過による方法は吸収層が薄いので線源としてエネルギーの低い Tm^{170} (52.2 keV, 84 keV) を約 10 mc 使用し、直径 5 mm のコリメータの場合に計数率約 5×10^4 cpm を得た。エネルギーの実効値は約 63 keV で、金属ウランの吸収係数は $1.019 \times 10^2 \text{ cm}^{-1}$ である。ウラン含有量の測定では約 0.7% の差で分析値と一致し、ウラン含有範囲の測定ではコリメータ直径が 5 mm の場合は誤差 1 mm

以下で、また 15 mm の場合は誤差 2.5 mm 以下で測定できた。第 8 図(c)と同じ試料について、5 mm の間隔で 7 回スキャンした測定例を X 線写真とともに第 8 図(a)(b)に示す。図の左側の「Alのみ」と記した線が、被覆材のみの部分で、同一チャートに示すため零点はそれぞれずらしてある。「U+Al」と記した部分は心材のある部分でウランのため γ 線吸収が大きくなり計数率が小さくなっている。X 線写真で特に黒くみえるところはウランの偏在を示すので、 γ 線透過法においてもそれに対応する点の計数率の減少が大きい。

以上の結果から板状燃料体のウラン含有量およびその一様性の測定は高濃縮ウランを使用したもの以外は γ 線透過法がよく、X 線法にくらべて簡易であることならびに定量測定の精度がよいことなどに特長をもっているといえる。

4. 結 言

核燃料検査の一部に γ 線測定技術を利用して検査方法を簡単化することおよび、精度を向上することを検討し、ウラン濃縮度の測定ならびに燃料体中のウラン分布の測定に好結果が得られた。 γ 線を利用する方法の特長は非破壊、簡易および迅速である。この特長により高価な燃料体原料を全然無駄にすることなく、製造過程の品質管理や全完成品の検査が可能となった。

終わりに本研究に対しご指導いただいた日立研究所西堀、葛岡両博士に感謝する。

参 考 文 献

- (1) 八巻, 福島: 第 3 回原子力研究総合発表会要旨集 (1962)
- (2) Nier, A. O.: Phys. Rev., 55, 150 (1939)
- (3) Nier, A. O., Inghram, M. G., Ney, E. P.: US AEC Rept. A 313 (1942)
- (4) Kennedy, J. W., Segre, E.: US AEC Rept. A 158 (1942)
- (5) Seyfang, A. P., Smales, A. A.: Analyst, 78, 394 (1953)
- (6) Miller, D. C.: US AEC Rept. HW 39969 (1955)
- (7) Morrison, C. H., Cosgrove, J. F.: Anal. Chem., 29, 1770 (1957)
- (8) Rider, B. F.: US AEC Rept. TID 7560, 73 (1958)
- (9) Juliano, J. O., Meneses, P.: 第 5 回日本アイソトープ会議報文集, 3, 291 (1963)
- (10) Kinsman, S.: Radiological Health Handbook, US Department of Health, Education and Welfare (1957)
- (11) Tingey, F. H.: Nucleonics, 20 (7) 76 (1962)
- (12) Hauth, J. J.: Nucleonics, 20 (9) 50 (1962)
- (13) Nelson Jr., L. C.: Nucleonics, 21 (6) 88 (1963)
- (14) 米沢, 梅沢, 深見, 鷺見, 諏訪, 近藤: 日立評論 41, 10 (1959)
- (15) 鷺見: 応用物理 31, 387 (1962)
- (16) 八巻, 福島: 日本原子力学会第 3 回核燃料分科発表会要旨集 (1963)
- (17) 八巻, 福島: 日本原子力学会第 2 回核燃料分科発表会要旨集 (1962)