

JAERI-M

6 3 3 2

照射済み被覆粒子用X線マイクロラジオグラフィ
装置の試作と性能試験

1975年12月

鹿志村 悟・岩本 多実・飯田 省三・斉藤 光男

日 本 原 子 力 研 究 所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

照射済み被覆粒子用X線マイクロラジオグラフィ装置の試作と性能試験

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

鹿志村悟・岩本多実・飯田省三^{*}・斎藤光男^{*}

(1975年11月19日受理)

重照射した被覆燃料粒子の非破壊検査のために製作した微小焦点X線ラジオグラフィ装置の概要と性能試験についてのべた。装置は、 $5\mu \times 50\mu$ の微小焦点をもつX線を重照射して粒子の透過写真を撮る方式のもので、ホットラボのジュニア・セル内に設置され、操作は遠隔方式で行われる。設置後、まず照射しない粒子により撮影条件の選定試験を行い、この結果をもとにJMTRで約20,000MWD/Tまで燃焼した粒子を用いてホットの性能試験を行った。試験の結果、本装置は満足すべき性能をもつことが確認され、ルーチン作業に使用されている。

* 日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部

X-ray microradiography apparatus for irradiated
coated fuel particles

Satoru KASHIMURA and Kazumi IWAMOTO
Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI
Shozo IIDA and Mituo SAITO
Division of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

(Received November 19, 1975)

Micro-focusing X-ray radiography apparatus has been installed in a junior cave of the Tokai Hot Laboratory for nondestructive inspection of heavily irradiated coated fuel particles. Irradiated particles are placed in a X-ray beam of micro-focusing 5μ - 50μ , and the transmission image is taken on a photographic film. Operation is by remote control. Test of the apparatus was made first with unirradiated particles to examine the exposure conditions. Subsequently, highly radioactive particles irradiated in the JMTR (Japan Material Testing Reactor) to about 20,000 MWD/T were radiographed. The apparatus works effectively for nondestructive inspection of the heavily irradiated fuel particles.

目 次 な し

1. はじめに

高温ガス炉用燃料として使用される被覆燃料粒子は、軽水炉などの従来型燃料に比べ形状、材質等が特異なものであるため、これまでの試験ではみられない新しい方法や装置の開発が必要である。その一つにX線ラジオグラフィ試験があり、被覆粒子に対する数少ない非破壊検査法の一つとして照射前および照射後の健全性を調べる重要な試験項目とされている。この被覆粒子用X線ラジオグラフィとしては、ダイレクトマイクロラジオグラフィ^{1,2)}とプロジェクションマイクロラジオグラフィ³⁾とが開発されており、いずれも低エネルギーX線を用いている。

筆者らは、未照射粒子のための試験装置としてX線回折装置のX線発生器を利用したコンタクト型ラジオグラフィ装置を開発し⁴⁾、被覆粒子の製品検査および高温耐久性やアメーバ効果⁵⁾等の加熱試験において非破壊検査に広く活用されている。

一方、照射済み粒子に対する試験装置としては、東海研ホットラボにコンタクト型低エネルギーX線ラジオグラフィ装置が設置され、低燃焼度の照射済み粒子の検査に供されてきた。しかしながら、装置は粒子試料とフィルムを密着させるコンタクト型であるため、JMTR照射試料などのように照射量の大きい試料に対しては、試料からの放射線が強くなり、いわゆるフィルムのカブリが出て撮影像の識別が難しくなり、同装置による重照射済み粒子の試験は不可能となった。このため、これに代る新しい装置の開発が急がれていた。

フィルムのカブリを小さくするには、基本的には次の二つの方法がとられる。

- (1) 試料とフィルムが接触している時間を短くする、すなわち露出時間を短縮させること。
- (2) 試料とフィルムの間隔を離し、フィルムへの試料からの放射線の影響を少なくすること。

コンタクト型装置では(1)の方法しか採れないが、露出時間を短縮させるためにはX線強度を大きくしなければならないほか、試料とフィルムの接触を短くするには遠隔操作上にも限界がある。(2)の方法は、いわゆるプロジェクション法と呼ばれる方法である。極微小焦点($< 1 \mu$)のX線源を用いることにより、分解能を低下することなくX線源と試料間距離に対して試料とフィルム間距離を大きくとることができ、カブリの少ない拡大された像を得ることができる。被覆粒子のスエリング等の微細な構造の変化⁶⁾の測定観察にすぐれた方法である。しかし、拡大像を得るため撮影視野が狭く品質管理のような多量の粒子の検査には適さず、また装置が高価になるほか遠隔操作の適応性にも問題を有している。

以上のような背景から、重照射粒子の非破壊検査を効率的に実施することを目的に、コンタクト型装置とプロジェクション型装置のいわば中間的な装置を製作することとした。したがって、X線焦点のサイズも、X線源と試料間距離と試料とフィルム間距離の比も共に両装置の中間的な値を採用した。これら三種のラジオグラフィの幾何学的条件の比較を付録(I)に示した。装置をジュニアセル内に設置した後、照射済み粒子用試験装置としての適応性を確認する性能試験を行った。本報告は、装置の概要とコールドおよびホット性能試験の結果を述べたものである。

2. 装置の概要

本装置は、多量の照射済み被覆粒子の非破壊照射後試験を目的に製作したもので、製作にあたっては、(1)フィルムのカブリを小さくすること、および(2)装置の取扱い、保守が容易であること、に特に注意を払った。分解能は高いこと（識別できる寸法が小さいこと）が望ましいが、試料粒子の放射能との関連でフィルムのカブリを小さくすることを優先し、分解能低下もある程度は止むを得ないことにした。

2.1 装置の構成と配置

Fig. 1 に装置の概略図を示す。装置はX線発生部と写真撮影部とから構成される。さらに、X線発生部は管球部、真空排気系および制御盤から成り、また写真撮影部は試料台およびカセット台とその上下駆動装置、フィルムカセット出入装置および操作盤から構成される。これらのうちX線管球部、試料台およびカセット台上下駆動装置をジュニアセルNo.7内に設置し、カセット出入装置をセル前面より鉛遮蔽を貫通して上下駆動装置まで達せしめている。真空排気系は管球部に直結されセル背面に固定されている。X線発生部の制御盤、上下機構の操作盤はセル前面の操作室に置かれている。

2.2 装置の概要

X線発生部は、理学電機㈱製の微小焦点X線発生装置（マイクロフレックス）を改造した。微小焦点X線は、電子銃から発生した電子線を可変型電磁レンズの位置調整により微細電子線に集束した後、管球先端の反射型Cuターゲットに入射することにより発生させ、ターゲットの下方方向に向けて照射される。本装置では、可能なかぎり微小焦点X線を得るため、ターゲットに電磁レンズを最大限に近づけて使用している。このため、電子線の大きさは $50\mu\phi$ まで絞ることができ、試料に対するX線の実効焦点の大きさは長径 50μ 短径 5μ のだ円形である。高圧電源系では、X線出力はターゲットの耐負荷によって決まり、耐負荷はターゲットの種類と集束された電子線の大きさに依存するものでMillerの式より求めることができる（付録Ⅱ参照）。本装置におけるCuターゲットを用い電子線の大きさを $50\mu\phi$ とした場合の耐負荷は、付録Ⅲに示されるように約37Wである。しかし、本装置の定常時の試験における出力は、管球部のフィラメントやターゲットの耐用時間を長く保つため、耐負荷の約 $\frac{1}{2}$ 以下、すなわち20W以下での使用が望ましい。また加速電圧は5kV間隔で60kVまで変えることができるが、通常被覆粒子の試験では15kV～25kVの範囲で使用されるものと思われる。したがって、加速電圧を20kVとした場合、電流は1mAまで流せることになる。

試料台、カセット台はX線ビームの真下に位置し、上下駆動装置の別々の回転軸に取付けられていてモーターの回転により各々独立に上下できる構造である。試料の放射能の強さと希望する分解能とによりX線源と試料粒子間の距離Rおよびフィルムと試料粒子間距離rを任意に選ぶことができる。Rは180mm～600mmの範囲で、rは16mm以上600mmまでの範囲で各々変化させることができるが、rは50mm以上では分解能の低下が大きく実用的でない。

試料台とカセット台の間には電磁式シャッター（鉛製8mm厚）が取付けられており、試料の放射線による不必要なカブリを防ぐためと、同時に、ラジオグラフ撮影時のX線を入断するいわゆるシャッターの役目を兼っている。試料粒子は直径10mmの試料ホルダーに重ならないように並べられ試料台

にセットされる。ホルダーへ並べられる最大粒子数は約 150 粒である。カセット台へのフィルムカセットの挿入、取出し操作は、カセット台を最下部まで降した状態で、カセット取出棒の先端にカセットを取付け、これをセル前面のカセット取出口より出入することにより行われる。カセット台に挿入されたカセットはカセット取出棒と共に上下する。カセット台からカセット取出口までの部分は、ポリエチレンシートカバーによってセル内の雰囲気と完全に遮断されており、カセット取出口より操作室への放射能汚染を防止している。また、カセット取出口には鉛の蓋が取付けられておりセル内部からの放射線漏洩を防止している。

以上のほか、断水リレー、過負荷リレー、X線発生表示ランプ他の各種保安回路が組込まれている。

本装置の操作性については十分考慮を払っており、セル内に立入る必要のある作業は、ホット試験開始前のX線焦点の調整のみである。その後の操作、すなわち、真空排気系の運転、X線の入断、試料台およびカセット台の上下駆動、鉛シャッターの開閉はすべて操作室から遠隔操作で行うことができ、被覆粒子の取扱いはマニプレーターとトングにより行われる。

3. 試験および結果の検討

3.1 コールド性能試験

(1) X線源の条件選定

本装置におけるX線出力は、前述のようにX線焦点の大きさを $50\mu \times 5\mu$ とした場合20W以下で使用されなければならない。これは、ホット試験が開始されれば、出入が容易にできないホットセル内に設置されている管球部のフィラメントやターゲットに対し長時間の寿命を保たせ、これらの交換の頻度を少なくするために装置の耐負荷の値よりかなり低く抑えたためである。一方、被覆粒子の検査においては使用するX線の適正な線質は、加速電圧15～25kVの範囲であることが判明している⁴⁾。

15kV以下ではエネルギーが低すぎてSiC層を透過しにくく、また25kV以上では逆にエネルギーが高すぎて最外層炭素の検出が難しいからである。したがって、本装置の出力条件としてはFig. 2に示した範囲の電圧、電流となる。すなわち、15kVで1.3mA、20kVで1mA、25kVでは0.8mAとなる。

これら加速電圧に対する3つの条件について、さらに、露出時間および各被覆層の識別の差を比較するためRおよびrの幾何学的条件を一定にして、未照射粒子を用いて各々露出時間を変化させてラジオグラフィ試験を行った。このコールド試験には、Fig. 3に断面を示したUO₂燃料核でTRISO被覆粒子の他、1層から3層までの各層まで被覆された粒子を用いた。Fig. 4に加速電圧15、20および25kVとした場合の結果を示している。この結果から、①被覆層の識別の程度には3つの条件ともほとんど差はみられない。しかし、②露出時間は管電圧に関係し、出力を20W一定としても管電圧の低下と共に長時間の露出を必要とすることがわかった。おおよその管電圧と露出時間との比は、15kV:20kV:25kV=5:2:1となり、X線強度は管電圧に大きく依存することを示している。以上から、“露出時間を短縮しフィルムカブリを小さくする”という本装置の目的から加速電圧15kVの条件は適正と云えず、少なくとも20kV以上でなければならないことがわかった。今後の定常の試験においては、特に低エネルギーのX線を必要とする試料の場合を除き25kV、0.8mAの条件を採用することが望ましい。

(2) フィルムの選定

試験に使用するフィルム、乾板としては、①これまでの照射前および照射後試験において用いてきたKodak H.R.P.、および、②①とはほぼ同等の仕様を持つよう富士フィルム(株)が開発したFuji U.M.P.、の二種類の乾板が適用できると考えられる。Kodak H.R.P.については十分な使用実績を有しているが、Fuji U.M.P.の使用は始めてなので、X線に対する乳剤の特性を比較するため未照射粒子によりラジオグラフィ試験を行った。結果をFig. 5に示す。この図には露出時間の短縮が期待される高感度フィルムFuji F.G.(電顕用)に対する結果も含まれている。この結果、Kodak H.R.P.とFuji U.M.P.とは識別の程度、露出時間においてまったく差異は認められず、また後述する照射済み粒子によるフィルムカブリの試験においても両者で同等の結果が得られている。Fuji F.G.は、露出時間は他の二種の $\frac{1}{10}$ 以下であるが乳剤粒子が粗く見かけ上の分解能の低下を招き試験には適していないことがわかった。したがって、今後の試験には入手が容易で比較的安価なFuji U.M.P.、またはこれと同等の国産品(SAKUR H.R.P.など)の使用が望ましい。

(3) 高分解能を得る適正条件の選定

分解能は、コンタクト型装置のように幾何学的配置が固定されている場合は選択の余地はなく、その時の適正露出条件をみつけるだけである。しかし、本装置においてはRおよびrの関係を変え、種々の幾何学的条件を選ぶことができるので分解能も種々に変化させることができる。しかし、幾何学的条件により露出条件も変化するので、分解能にも限界がある。そこで種々の幾何学的条件のもとで、露出条件を種々に変化させたX線ラジオグラフを撮り、分解能との関係を求めた。

Fig. 6には、Rおよびrを変化させた場合の幾何学的分解能を計算により求めた結果を示している。この図に示した各幾何学的条件下で、露出時間を最低5分から最高100分までの間で段階的に変化させ、X線条件として20 kV, 1.0 mA および 25 kV, 0.8 mA についてラジオグラフィ試験を行った。これらの結果から、各幾何学的条件に対して適正と考えられる露出条件を選んだ。Fig. 7にR+rに対する適正露出時間を示し、Fig. 8にはX線条件が25 kV, 0.8 mA におけるほぼ適正露出条件で撮影されたと思われる結果を示している。

以上から、適正露出時間は加速電圧が25 kVでは20 kVの約1/2となり、いずれもR+rの2乗に比例していることがわかる。また加速電圧が25 kVの場合、R+rを最も近づけた場合(約200 mm)では約5分となり、最も離れた場合(約600 mm)でも45分であり、本装置においてはいかなる幾何学的条件でも45分以内での試験が可能であることを示している。

一方、被覆各層に対する識別を鮮明にするにはFig. 8からわかるように、分解能が4 μ 以下となる条件下が好ましいことがわかる。分解能が4 μ となる幾何学条件では、Fig. 6から、たとえば、R+rを200 mmとした場合rは約16 mmとなり、同じくR+rを最大600 mmとした場合にはrは約47 mmまで離すことができ、コンタクト型装置にみられなかった点である。

分解能との関連において、微小部分の解像力についてもかなり優れていることがわかった。Fig. 9に第1層から第4層まで各々に被覆を施した粒子の試験結果を示している。この試験は幾何学的分解能が1.9 μ となる条件(R=400 mm, r=16 mm)でなされた。Fig. 9には、第3層まで被覆された粒子であっても第1層と第2層の差が明瞭に示されている。また各層には円周方向に縞状の模様のみられており、これは、粒子の被覆時の状態や被覆構造を調べるために行った被覆層の研磨断面の腐蝕組織と良く似ていることがわかった。これらは、X線焦点の大きなコンタクト型装置による試験ではみられない結果で、本装置の照射後試験以外の検査法としての利用も考えられる。

Fig. 10にはRおよびrの幾何学的条件に対する分解能と露出時間の関係を示しており、これによりラジオグラフィ試験における幾何学的条件や露出条件を簡便に決めることができる。たとえば、Fig. 10から分解能が4 μ となる条件で試験をした場合、粒子の放射能に応じてrを16 mmとすればその時のR+rは約200 mm、露出時間は約5.5分、rを35 mmとすればR+rは約430 mm、露出時間は25分という条件が各々得られる。また逆に露出時間を10分と限定した場合にはR+rも約280 mmと決まり、その条件でのrと分解能との関係は、rが16 mmでは分解能は2.9 μ 、同じく35 mmでは6.3 μ となることを示している。

なお、幾何学的分解能の値はすべてX線焦点が50 μ として計算しているが、先に述べたように実効焦点は50 μ × 5 μ のだ円型をしているため、透過像は部分的に計算値よりはるかに小さい分解能を有していることになる。

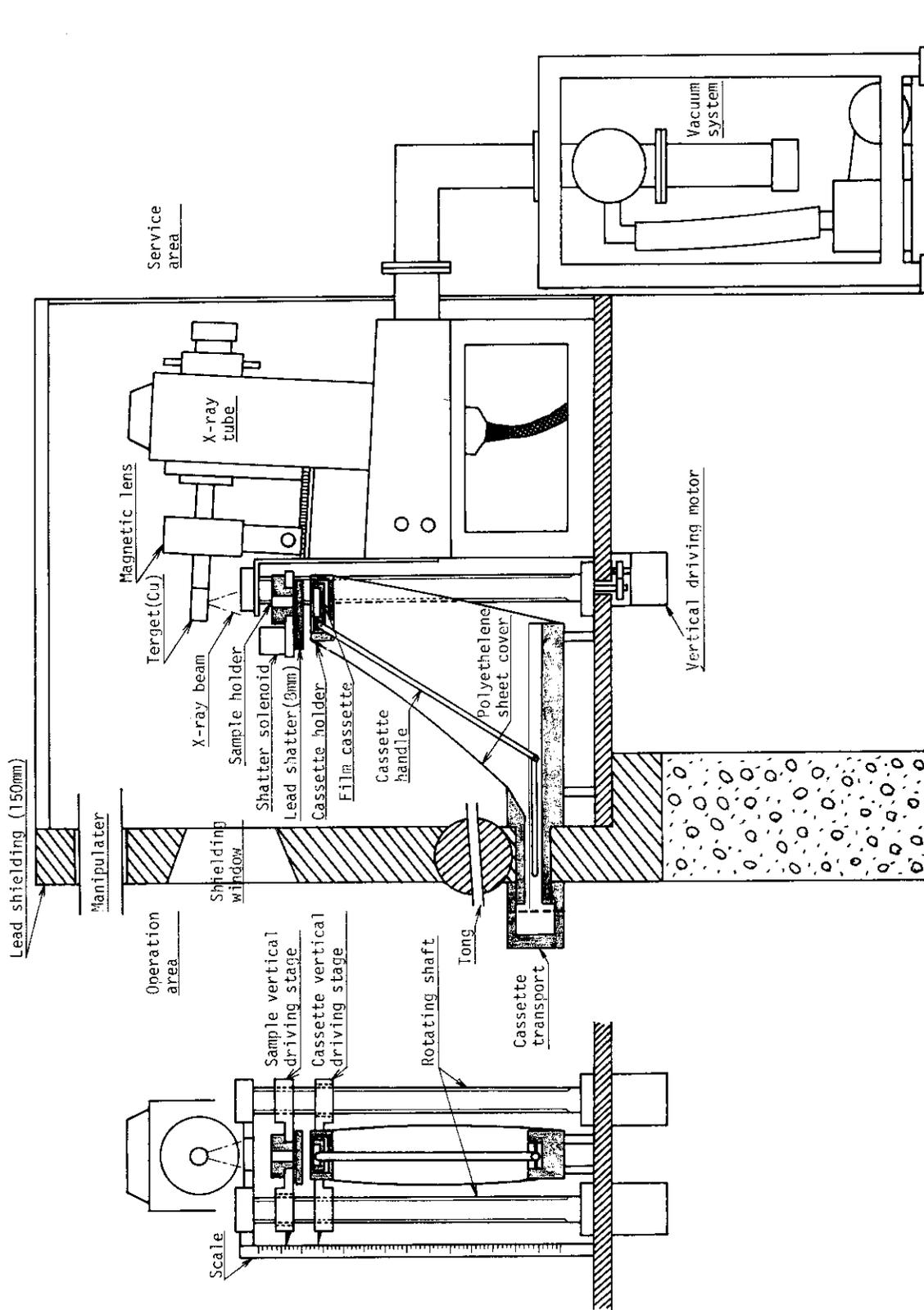


Fig.1 Arrangement of the X-ray radiography apparatus in the junior cell

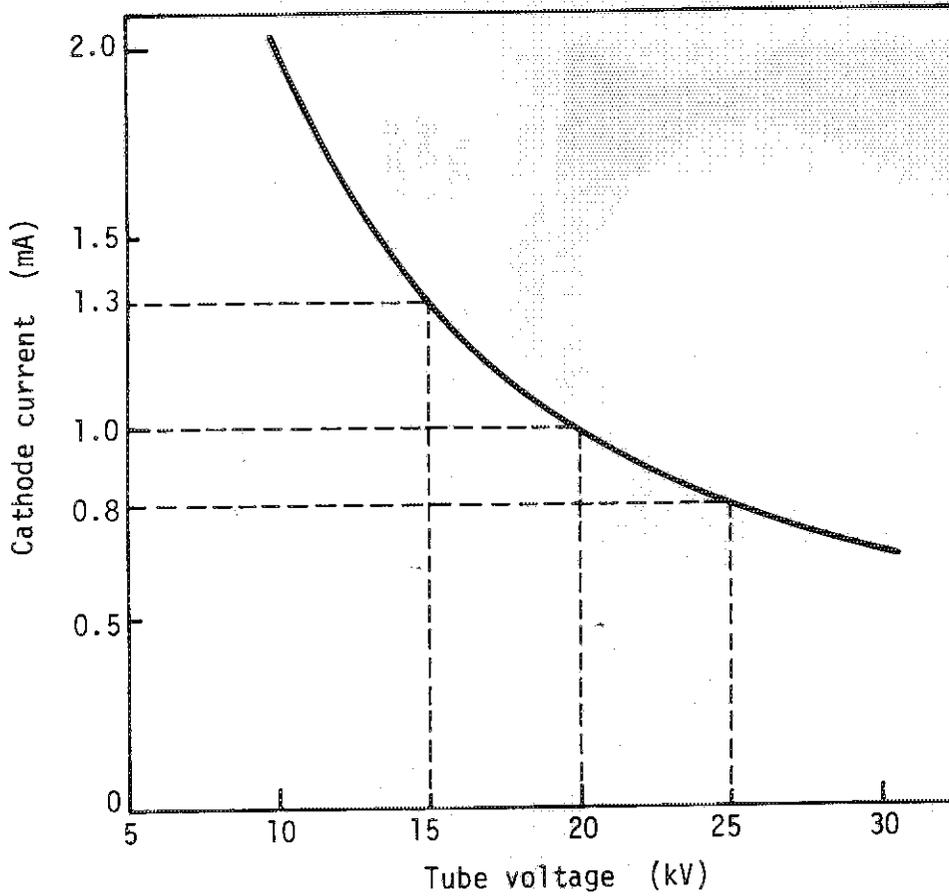


Fig.2 Recommendable condition for tube voltage and current of X-ray tube

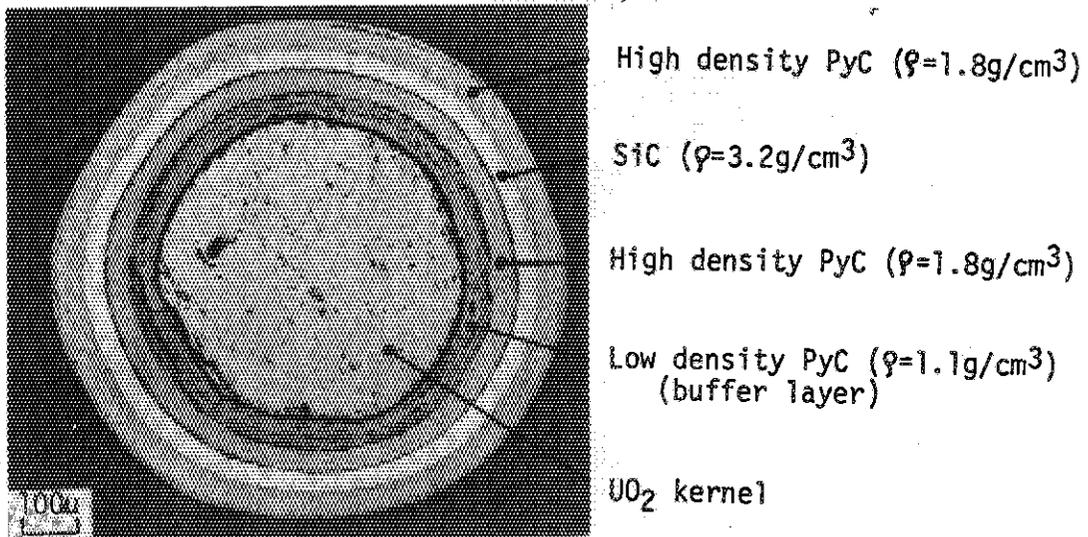
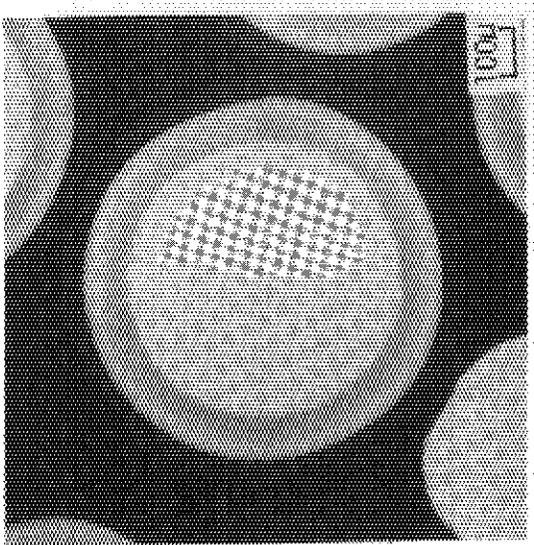
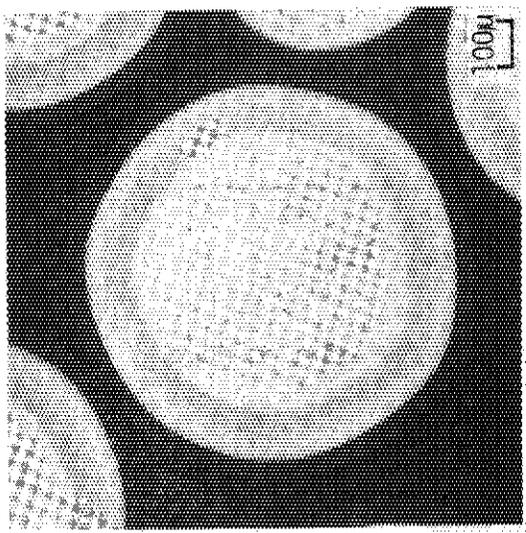


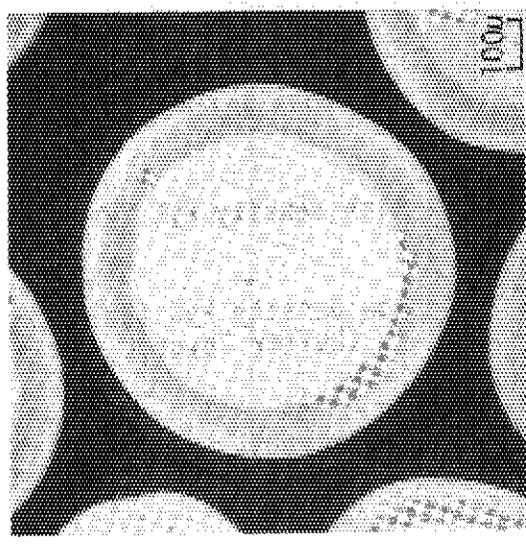
Fig.3 Micrograph of coated fuel particle



(c) Tube voltage :25kV
Current :0.8mA
Exposure time:20min

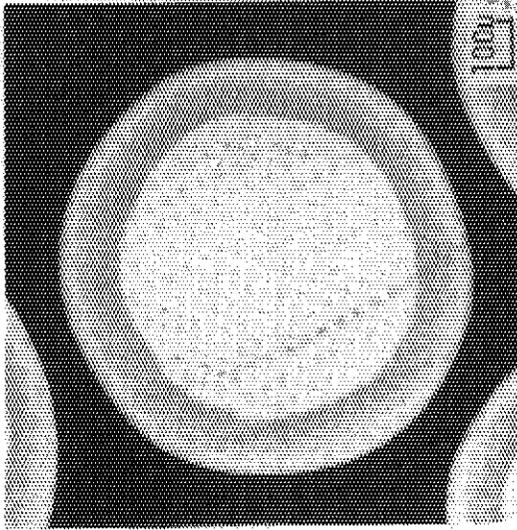


(b) Tube voltage :20kV
Current :1.0mA
Exposure time:40min

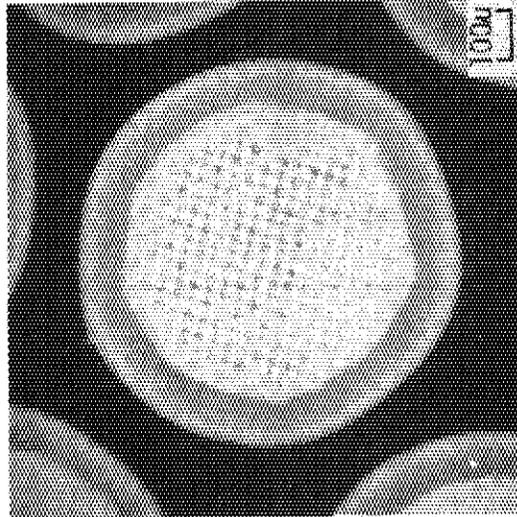


(a) Tube voltage :15kV
Current :1.3mA
Exposure time:100min

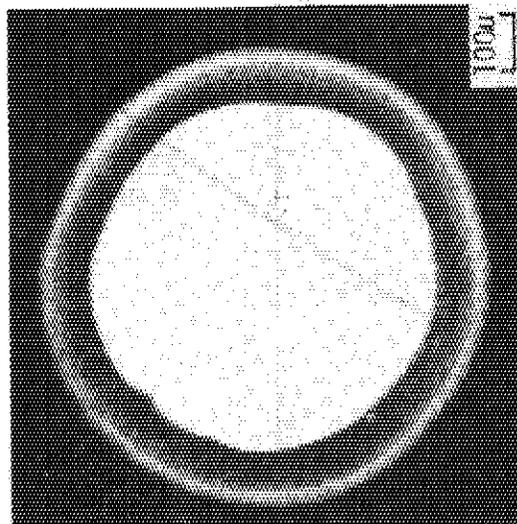
Fig.4 Dependence of image quality on tube voltage



(c) Film :Fuji U.M.P.
Tube voltage :25kV
Current :0.8mA
R :300mm
r :16mm
Exposure time:13min



(b) Film :Kodak H.R.P.
Tube voltage :25kV
Current :0.8mA
R :300mm
r :16mm
Exposure time:13min



(a) Film :Fuji F.G.
Tube voltage :20kV
Current :1.0mA
R :180mm
r :16mm
Exposure time:20sec

Fig.5 Comparison of films for radiography

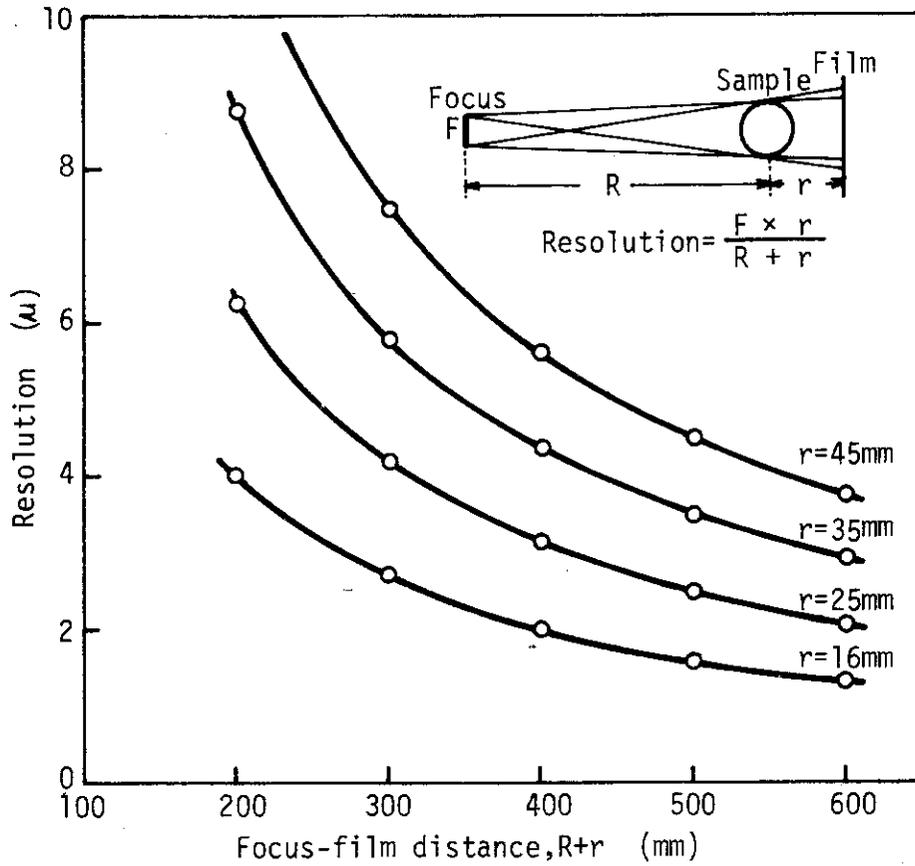


Fig.6 Geometric resolution curve

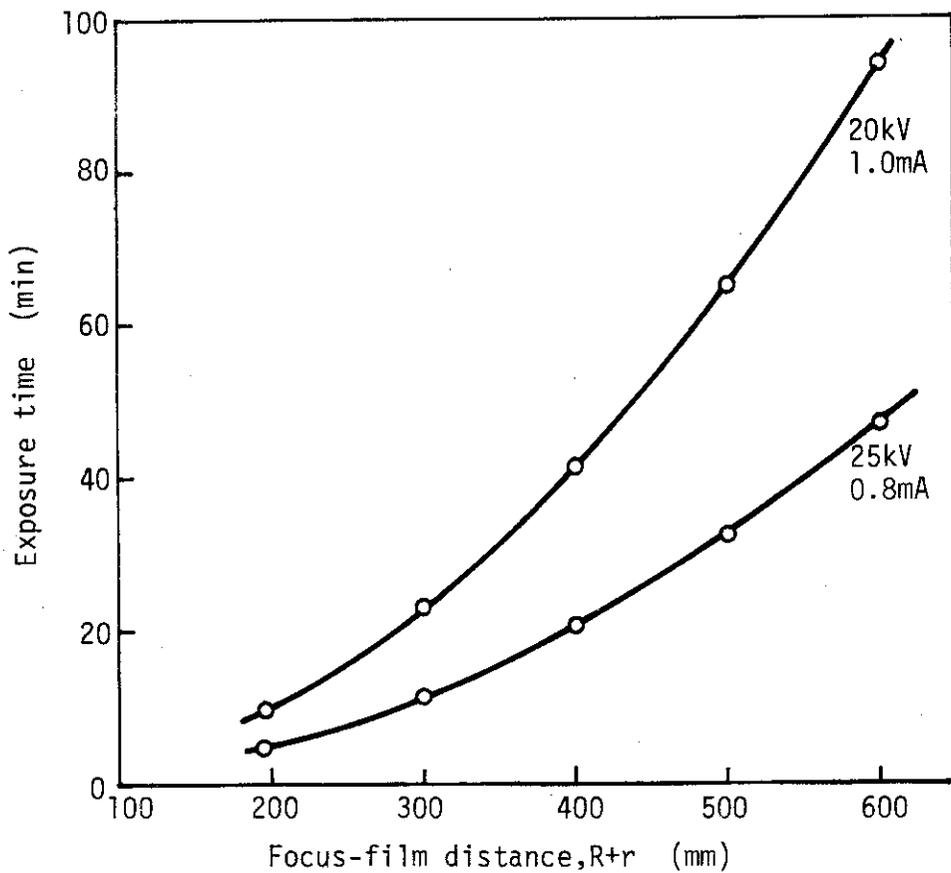
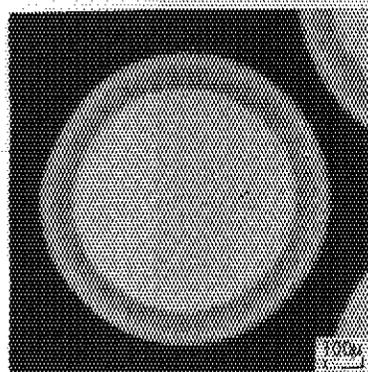
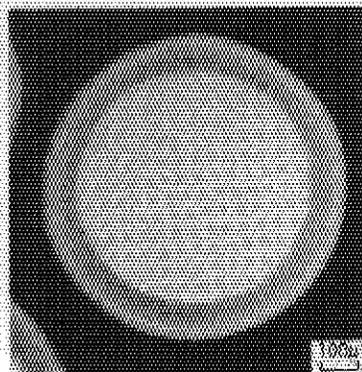


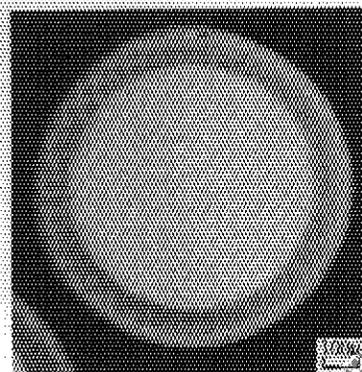
Fig.7 Relation between focus-film distance and exposure time



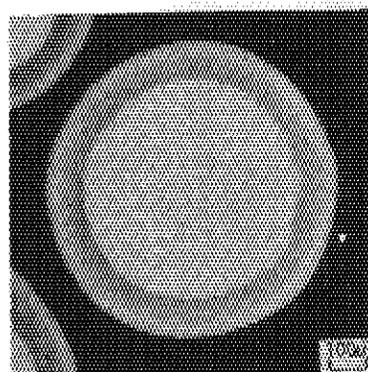
(a) R :180mm
r :16mm
Resolution :4.1 μ
Exposure time:5min



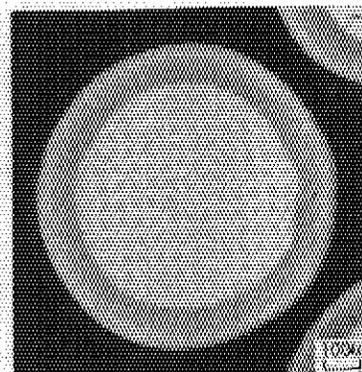
(b) R :180mm
r :25mm
Resolution :6.1 μ
Exposure time:5.5min



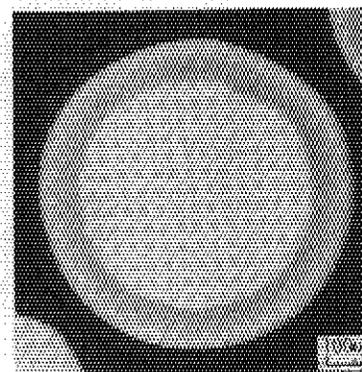
(c) R :180mm
r :35mm
Resolution :8.1 μ
Exposure time:6min



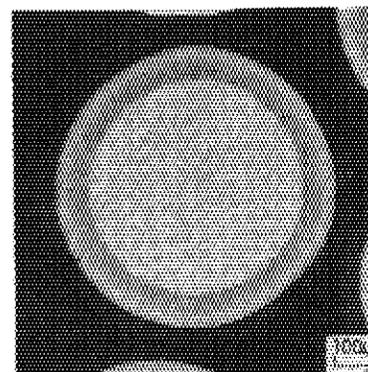
(d) R :300mm
r :16mm
Resolution :2.5 μ
Exposure time:12.9min



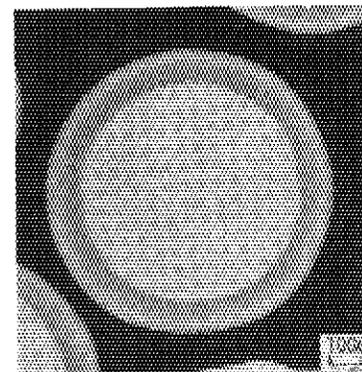
(e) R :300mm
r :25mm
Resolution :3.9 μ
Exposure time:13.7min



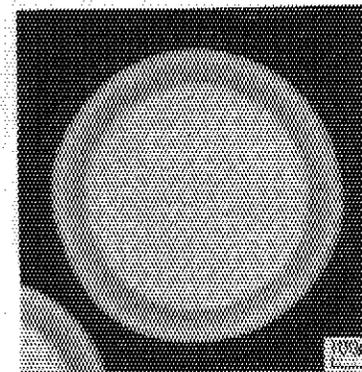
(f) R :300mm
r :35mm
Resolution :6.2 μ
Exposure time:14.6min



(g) R :400mm
r :16mm
Resolution :1.9 μ
Exposure time:22.5min

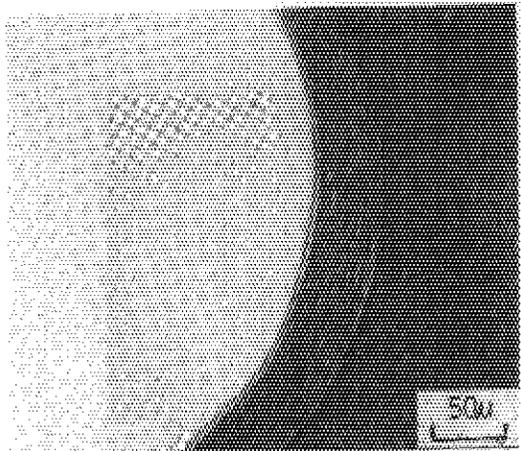


(h) R :400mm
r :25mm
Resolution :2.9 μ
Exposure time:23.5min

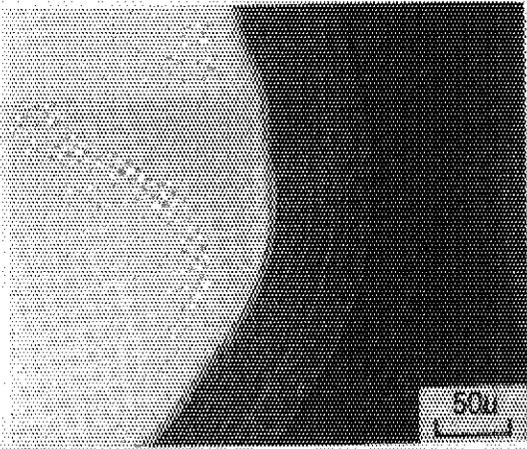


(i) R :400mm
r :35mm
Resolution :4.0 μ
Exposure time:24.6min

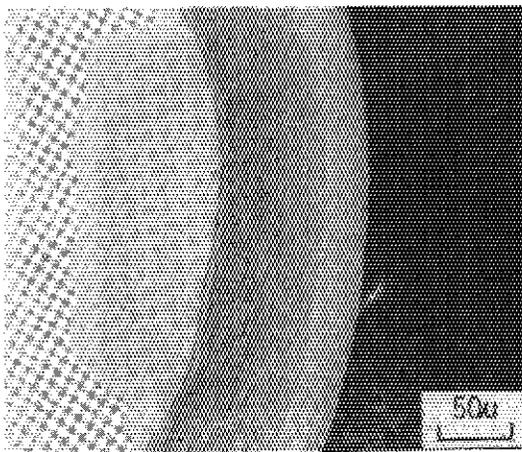
Fig.8 Radiographs and correct exposure time under various geometric conditions



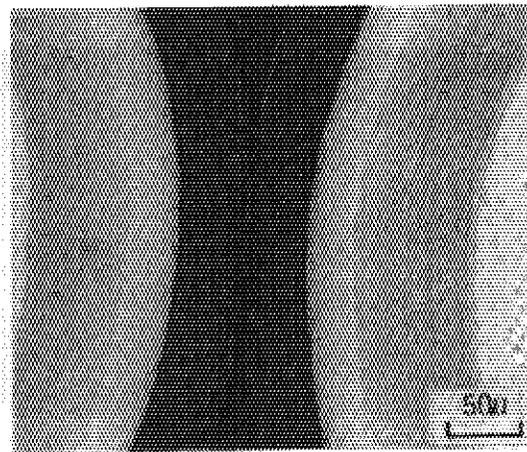
(a) LD PyC



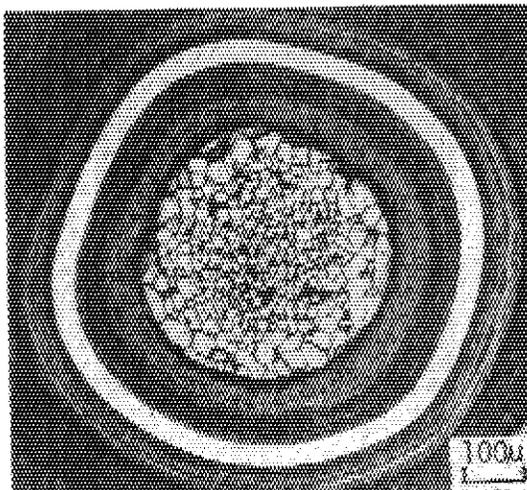
(b) LD PyC + HD PyC



(c) LD PyC + HD PyC + SiC



(d) Complete TRISO



(e) Etched

Fig.9 Comparison of coating microstructures observed by X-ray radiography and optical microscope

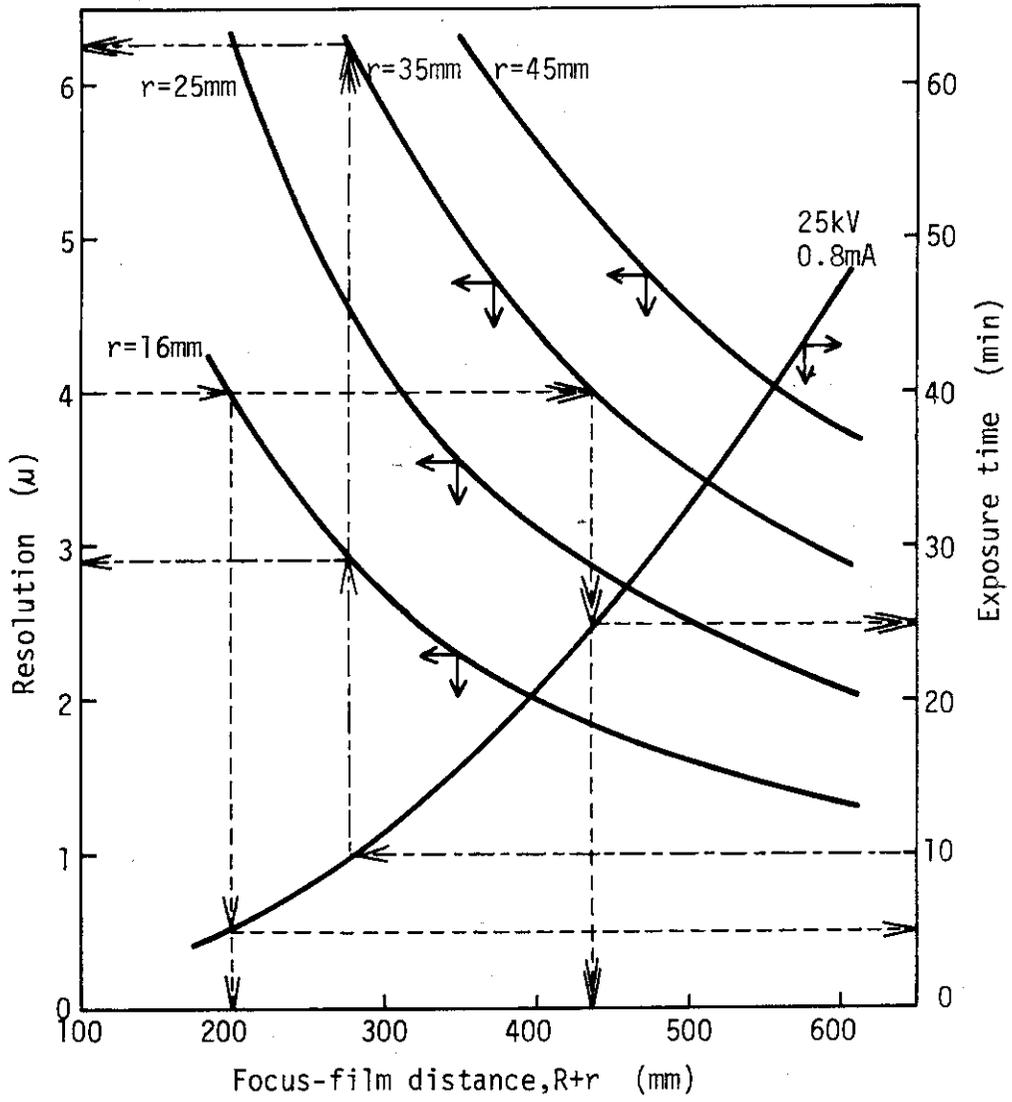


Fig.10 Exposure chart

3.2 ホット性能試験

実際の照射済み粒子による試験を行う場合には試料粒子の放射線によるフィルムカブリが問題となる。そこでコールド性能試験で得られた幾何学的条件とその分解能および適正露出条件の範囲内で、JMTRで照射した粒子を用いて、フィルムカブリの程度とそのカブリが粒子の核、被覆層の識別におよぼす影響を調べた。ホット性能試験には、JMTRで燃焼度約2%FIMAまで照射された UO_2 燃料核、TRISO被覆の照射済み粒子を使用した。付録IIIに放射能計算がされている。

(1) フィルムと試料粒子間距離 r とフィルムカブリの関係

照射済み粒子の放射線によるフィルムカブリは r に直接関係するので、この r に対するカブリの影響を調べるため次の試験を行った。

照射済み粒子100粒を試料ホルダーに入れ試料台にセットする。 r を16, 25, 35および45mmの4つの条件を選び、各々についてフィルムを5~60分の間で種々の時間放置し、粒子からの放射線を照射(X線は照射せず)させた。現像処理の後フィルムの黒化度を測定した。

各露出時間について、 r に対する黒化度をFig. 11に、各 r について露出時間に対する黒化度をFig. 12にそれぞれ示している。Fig. 11では、フィルムカブリは大体において r の2乗に逆比例する、いわゆる、減衰の法則(図中点線で示されている)に合う傾向を示しているが、 r が約20mm位から以下のところでは多少これからのずれがみられる。露出時間は60分および40分の場合には、減衰の法則より大きなカブリを示している。これは r が小さいため試料粒子の放射線の寄与が点線源として扱えないこと、散乱線による影響が効いていること、および β 線の影響によること等が考えられる。露出時間が20分の場合では逆の傾向を示しているが、黒化度が0.1以下と非常に小さいため黒化度の測定のパラッキによるものと思われる。時間に対しては、Fig. 12からはほぼ比例関係にあることがわかる。

これらの結果において、黒化度の絶対値については、試料粒子の燃料核の組成、照射条件や冷却時間によって各々の照射済み粒子の放射線強度が異なるので一様な比較はできない。しかし、以上の結果は、照射済み粒子によるカブリの傾向を知る上で重要である。Fig. 12の結果から、この試料においては、本装置で最もカブリが大きくなると思われる条件($R+r$ が600mm, r が最も小さい16mm, 露出時間が最も長い47分)でも黒化度は $D=0.31$ 以下であり、また分解能が 4μ 以下となる条件(Fig. 12中の点線で示した各点)では黒化度はすべて $D=0.04$ 以下であった。

Fig. 13にはコンタクト型装置による照射済み粒子(燃焼度約0.2%FIMA)の試験の結果を示しているが、カブリが大きく粒子被覆層の識別がまったくできない状態であることがわかる。これに比べると本装置による結果はカブリが非常に小さいことを示している。このような、コンタクト型装置にみられる大きなカブリは、 r が16mmより小さい特に密着に近い場合は、先に述べた β 線等の影響が大きく作用しカブリが急激に増大するためと思われる。したがって逆に言えば、 r を余り大きくとらずとも β 線等に影響される範囲から少し離すだけでかなりカブリを減少できることを示している。

r をより大きくすることがカブリを小さくするための最良の条件であることは当然であるが、分解能との関係からは r はできるだけ小さくすべきで、試料の放射能を考え合せて r は決定されなければならない。

(2) カブリが撮影像の識別に及ぼす影響

実際の粒子のラジオグラフィフィルムを観察する上では、被覆層を識別するため、どの程度の黒化度を有するカブリまで許されるかを知る必要がある。このためには種々の放射能を有する粒子につい

てラジオグラフを撮って比較するのが直接的で最善であるが、照射済み粒子としては1種類のみが使用できる状態であったので、以下の方法で代用した。すなわち、いくつかの異なる黒化度のカブリが得られるよう、あらかじめ、フィルムに時間を変えてX線を曝射しておいたフィルムを使って照射済み粒子のラジオグラフを撮った。現像処理後、フィルムの黒化度測定とラジオグラフ透過像の観察を行った。

試験の結果をFig. 14に示す。フィルム黒化度は $D=0.16 \sim 2.9$ にわたっているが、黒化度 $D=0.75$ までのフィルムでは、透過像を観察する上での支障はなく、被覆各層の識別度もカブリの影響はほとんどみられない。黒化度 $D=1.5$ からカブリの影響が出はじめ、乳剤の粒状性が悪くなり、同じく $D=2.9$ のフィルムでは、さらに表面の荒れがひどく1層と2層の被覆層の識別がむずかしくなり、フィルムを直接顕微鏡で観察しても視野が暗く識別しにくかった。しかしながら、この $D=2.9$ の場合でもその他の被覆層同志や燃料核との判別は可能であったので、照射後試験に適用しても差支えない範囲であると思われる。

(3) 照射済み粒子への適用範囲

以上に述べたように、かなり大きなカブリを受けたフィルムであっても粒子内の識別は可能であることがわかった。実際の照射済み粒子への適用にあたっては、以上の結果を参考にして試験を行い、燃焼度、冷却時間などの異なる試料に対する結果を蓄積して行く必要がある。また以上の結果と付録(III)に示した照射済み粒子の放射能の結果とから、本装置によって適用可能な照射済み粒子の範囲を推定しその結果を以下に示す。

ホット性能試験で使った粒子の放射能は付録(III)1に示されているように1粒子あたり1.7mCi, 100粒子あたり0.17Ciである。この装置をもとに本装置によって適用可能な照射済み粒子の放射能の範囲を検討する。上の粒子を用いた場合、各試料-フィルム間 r においてフィルムが受ける放射線線量率が求まり、一方Fig. 12のカブリ試験の結果から黒化度と線量の関係が得られているので、試験可能な放射能強度を推定することができる。以下には r が16mmの場合を例にして述べる。

① 0.17Ci/100粒から $r=16$ mmでの放射線線量率は次式で求まる。

$$R = \frac{0.525 \cdot E \cdot C}{r^2}$$

R: 線量率 (R/h)

r: 試料-フィルム間隔 (m)

E: 放射線のエネルギー (MeV)

C: 放射能 (Ci)

$$r = 0.016 \text{ m}, E = 1 \text{ MeV}, C = 0.17 \text{ Ci}$$

よって、 $R = (0.525 \times 1 \times 0.17) / 0.016^2 = 349$ (R/h) となる。

② Fig. 12の露出時間を線量におきかえ、これより349(R)での黒化度を求めると $D=0.39$ となる。

③ 黒化度は線量に比例するから、これより黒化度に対する線量を求める。黒化度 $D=0.2$ のときの線量は、

$$\frac{0.2 \times 349 \text{ (R)}}{0.39} = 179 \text{ (R)}$$

同様に $D=0.4$ のとき358(R), $D=1.0$ のとき895(R)となる。

- ④ 一方、 $r = 16$ mmのときの適正露出条件をFig. 10より求めると、分解能 4μ のとき5分となる。
- ⑤ $r = 16$ mm、露出時間5分のときフィルムが受ける線量を求めると①の 349 (R/h)より $(349(R) \times 5(分)) / 60(分) = 29(R)$ となる。
- ⑥ $D = 0.2$ までフィルムが黒化する線量は、この $29(R)$ の何倍になるかを調べる。③より $D = 0.2$ のときの線量は $179(R)$ であるから $179(R) / 29(R) = 6.2$ 倍となる。

同様に $D = 0.4$ のとき 12.3 倍、 $D = 1.0$ のとき 30.9 倍となる。 r が 25 、 35 および 45 mmの場合についても同種の計算ができる。これらの結果をTable 1に示す。この結果から、黒化度 $D = 0.2$ のカブリまで許した場合はホット性能試験で用いた粒子の $6 \sim 8$ 倍、同じく $D = 0.4$ および 1.0 のときは各々 $12 \sim 16$ 倍、 $30 \sim 40$ 倍程度の放射能を有する試料まで試験が可能であることを示している。この計算では1回の試験における粒子の数を 100 粒として計算しており、線量とフィルムカブリの比例関係から試料粒子 50 粒とすれば、さらにこの 2 倍の放射能の粒子の試験が可能であることは当然である。

次に付録Ⅲ2に示した高燃焼度の照射済み粒子（ 8% 濃縮ウラン粒子を、JMTRの燃料領域で 6 原子炉サイクル照射し 5 ヶ月冷却した場合）の試験の可能性について同じ方法により検討する。

- ① 1粒あたりの放射能 0.0496 Ci から $r = 16$ mmでの放射線線量率を求めると $(0.525 \times 1 \times 0.0496) / 0.0162 = 102$ (R/h)となる。
- ② 適正露出時間5分における線量を求めると $(102(R) \times 5(分)) / 60(分) = 8.5$ (R)となる。
- ③ 黒化度 $D = 0.2$ のときの線量（Table 1の $179(R)$ ）を適正露出時間での線量で割り、 $D = 0.2$ とした場合に可能な粒子数を求めると $179(R) / 8.5(R) = 21$ (粒)となる。

同様に $D = 0.4$ では 42 粒、 $D = 1.0$ では 105 粒となる。Table 2に $r = 16$ mmのほか、 25 、 35 および 45 mmの場合についても示している。以上の結果、付録Ⅲ2の照射済み粒子の試験可能な粒子数は、黒化度 $D = 0.2$ のカブリまで許すならば $20 \sim 30$ 粒、同じく $D = 0.4$ では $40 \sim 60$ 粒、 $D = 1.0$ では $100 \sim 140$ 粒となることを示している。なお、Table 1、Table 2からわかるように分解能を一定とした場合、試料-フィルム間隔を 16 mmから 45 mmと大きくしても、試験可能な試料粒子数にはあまり変化がないことがわかった。さらに、上の条件より分解能の低下を許せば、試験できる粒子数がさらに大きくできることは明白である。

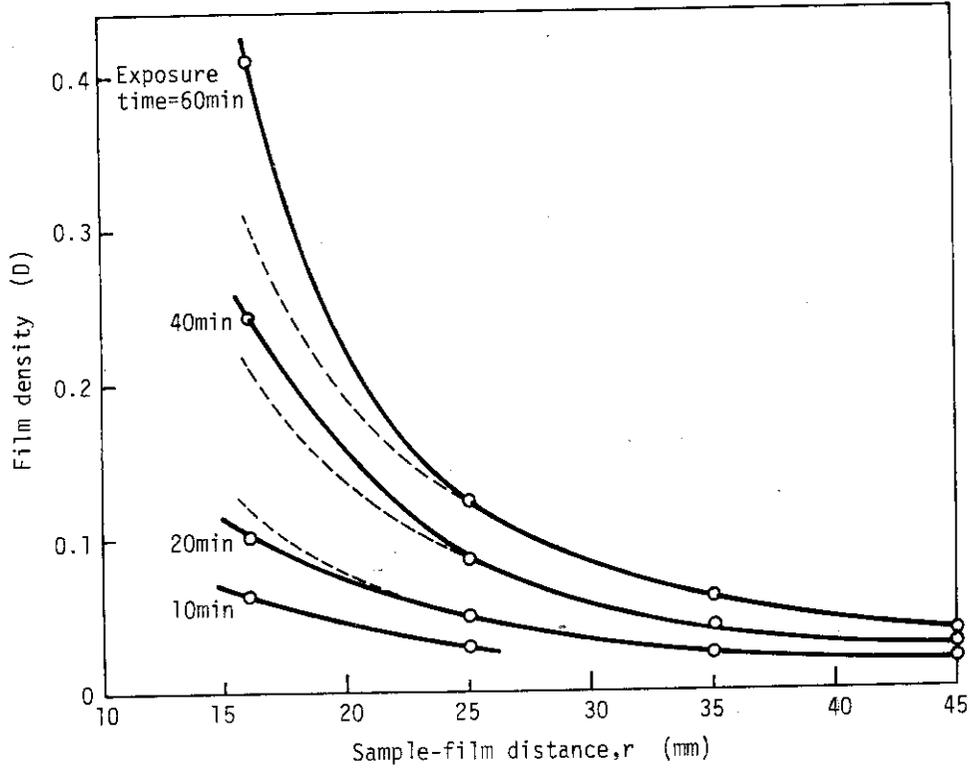


Fig.11 Film fog by irradiated particles
(dotted line:the inverse-square law)

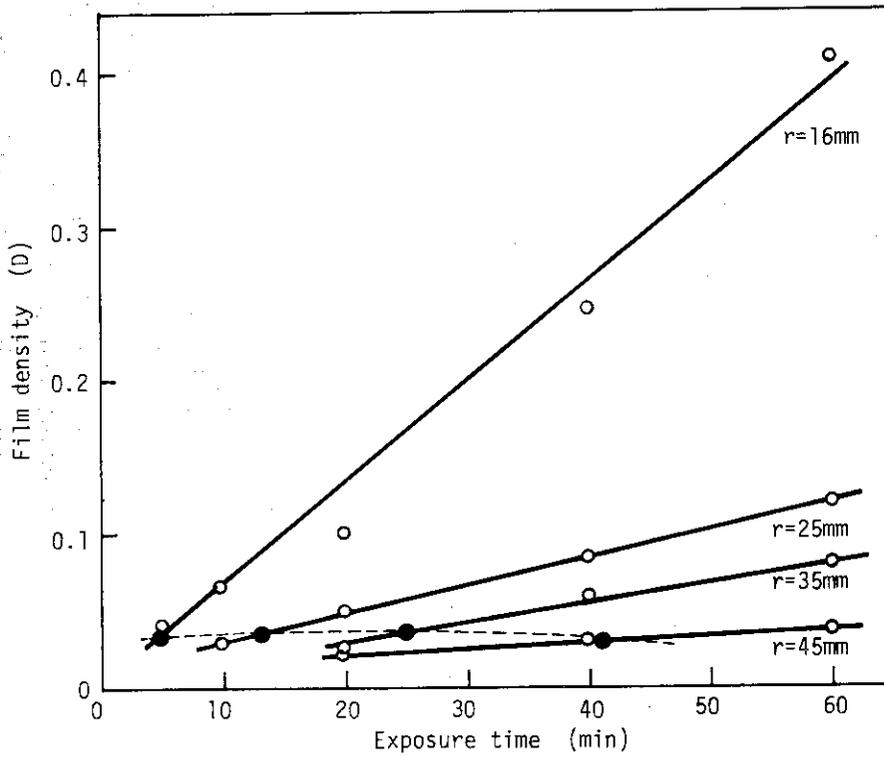
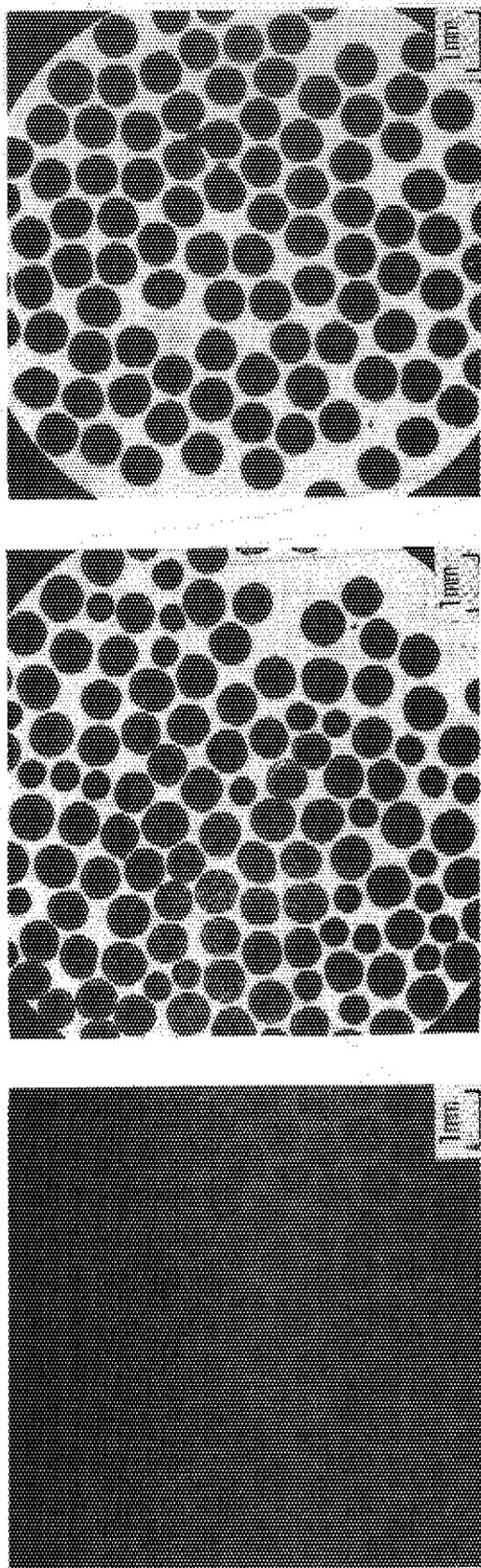


Fig.12 Film fog by irradiated particles
(The positions of black circles show the correct exposure condition and the film fog below 0.04)



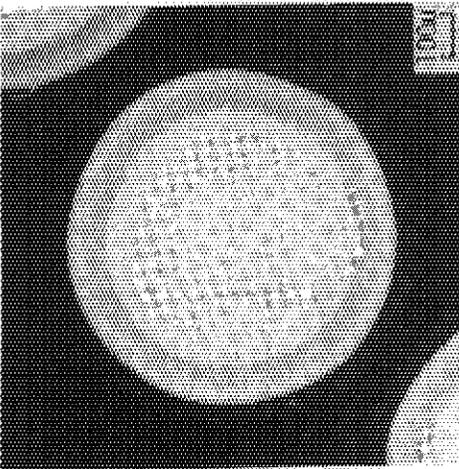
(a)

(b)

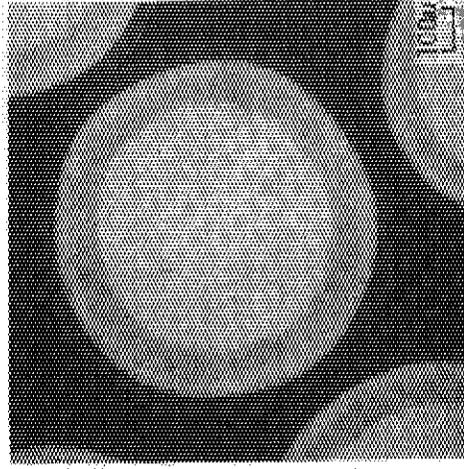
(c)

Fig.13 Comparison of the radiographs by the contact-type and the present apparatuses

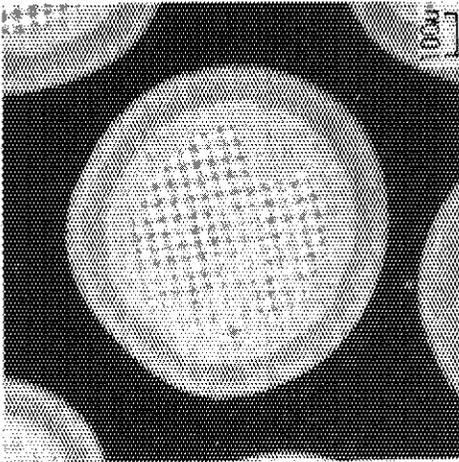
- (a) Radiograph by the contact-type apparatus
Irradiated particles
Burn-up: about 0.2%FIMA
Estimated activity of the particles at the time of exposure: 0.23mCi/particle
- (b) Radiograph by the present apparatus
Unirradiated particles
- (c) Radiograph by the present apparatus
Irradiated particles
Burn-up: about 2%FIMA
Estimated activity of the particles at the time of exposure: 1.7mCi/particle



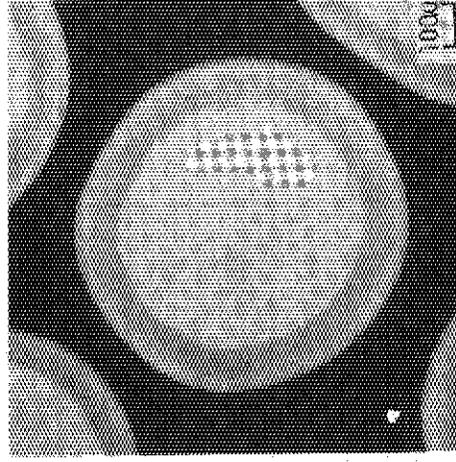
(c) $D = 0.44$



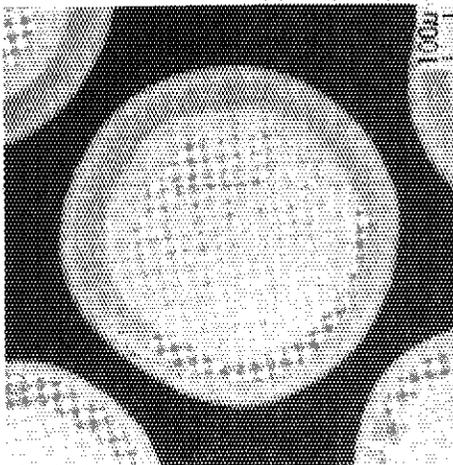
(f) $D = 2.9$



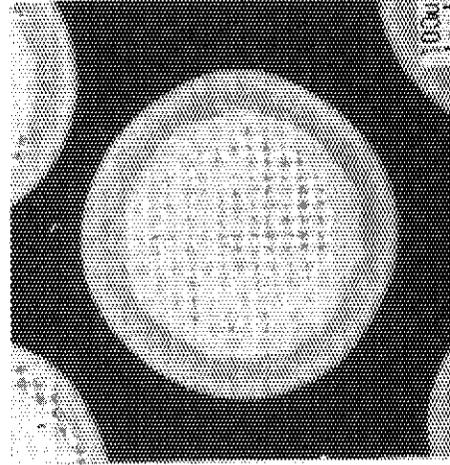
(b) $D = 0.28$



(e) $D = 1.5$



(a) $D = 0.16$



(d) $D = 0.75$

Fig.14 Dependence of image quality on film fog in case of irradiated particles

Table 1 Radiation and magnification under various conditions

(a) Sample-film distance (mm)	(b) Sample activity (Ci/100p)	(c) Radiation at film position (R/h)	(d) Film density at (c) (D)	(e) Correct exposure at resolution of 4μ (min)	(f) Radiation in correct exposure time (R)	(g)		(h)		(i)		(j)		(k)		(l) Magnification at correct exposure time (-)
						D=0.2 Radiation for D=0.2 at correct exposure time (R)	D=0.2 Magnification at correct exposure time (-)	D=0.2 Radiation for D=0.2 at correct exposure time (R)	D=0.2 Magnification at correct exposure time (-)	D=0.4 Radiation for D=0.4 at correct exposure time (R)	D=0.4 Magnification at correct exposure time (-)	D=0.4 Radiation for D=0.4 at correct exposure time (R)	D=0.4 Magnification at correct exposure time (-)	D=1.0 Radiation for D=1.0 at correct exposure time (R)	D=1.0 Magnification at correct exposure time (-)	
16	0.17	349	0.39	5	29	179	6.2	358	12.3	895	30.9					
25		143	0.12	13	30	238	7.9	477	15.9	1191	39.7					
35		73	0.081	25	30	182	6.1	364	12.1	913	30.4					
45		44	0.036	41	30	244	8.1	488	16.3	1222	40.7					

Table 2 Recommendable limit of the number of particles

(a) Sample-film distance (mm)	(b) Sample activity (Ci/p)	(c) Radiation in correct exposure time (R)	(d)		(e)		(f)
			Limit of the number of particles for D=0.2 (p)	Limit of the number of particles for D=0.4 (p)	Limit of the number of particles for D=1.0 (p)		
16	0.05	8.50	21	42	105		
25		8.75	27	55	136		
35		8.75	21	42	104		
45		8.88	27	55	138		

4. ま と め

重照射した照射済み被覆燃料粒子の照射後X線ラジオグラフィ試験のため、微小焦点X線ラジオグラフィ装置を製作し、ホットラボのジュニアセル内に設置した。設置後、本装置が上記の試験目的を達成できるかどうかを調べるため各種の性能試験を行い、次の結果を得た。

- (1) 本装置では、微小焦点（最小 $50\mu \times 5\mu$ ）のX線源を用い、コンタクト型装置とプロジェクション型装置の中間的方法を採用し、試料とフィルム間に距離をとり、フィルムのカブリを減少させることとした。
- (2) X線出力はターゲット、フィラメントの耐久性の点から20W以下の使用が望ましく、また出力が一定であっても加速電圧が露出時間に大きく影響することがわかった。本装置における定常の試験では出力20W一定とし、粒子被覆層の識別度を低下させずに露出時間を短かくする最適の条件として加速電圧25kV、電流0.8mAを選んだ。

- (3) 適正条件の選定は、コンタクト型装置の場合と異なり、試料粒子の放射線の強さに応じて幾何学的条件が変えられるため各々の条件での分解能と露出条件を選ぶことになる。

被覆各層の識別ができるに必要な分解能は 4μ で、実際には分解能をさらに高めた条件で撮影できる。分解能 4μ の場合、X線源と試料粒子の距離Rを最大の600mmとしたときフィルムと試料粒子の距離rは約45mmまで離すことができる。また、露出時間はほぼ $R+r$ の2乗に比例しており、本装置においては5分から最高45分までの範囲で試験が可能となる。Fig. 10には、適正条件を決めるのに便利な露出線図を示した。

- (4) 照射済み粒子によるフィルムカブリは、大体rの2乗に逆比例する傾向を示すが、rが16mm近辺ではこれよりカブリが大きくなる。これは、 β 線や散乱線の影響が大きくなるため、rがさらに小さく特に密着した場合は急激にカブリが増大すると思われる。コンタクト法においてカブリが大きいのはこのためである。
- (5) フィルムのカブリが撮影像の識別に影響を及ぼす程度は、黒化度 $D=0.75$ のカブリまでは何等の障害にもならないことがわかり、また $D=2.9$ と大きなカブリであっても視野が暗く検鏡しにくくなっているが、試験法としては十分採用可能な範囲であると思われる。
- (6) コンタクト型装置では検査不能であった照射済み粒子について、本装置による試験ではカブリの少ない未照射粒子と変らぬ結果が得られた。本装置の照射済み粒子への適用範囲については、ホット性能試験で用いた粒子の数十倍の放射能を有する粒子まで可能であり、また将来の照射試験において予想される最高の燃焼度の照射済み粒子の試験も十分可能であることがわかった。
- (7) 本装置では、被覆層中の被覆の状態を示す組織をもみられており、コンタクト型装置に比べ優れていることを示している。
- (8) 装置の操作性および保守については、以上の性能試験の間でその取扱い操作が容易であることが認められた。またX線出力も安定しており規定の出力以内での使用には、ターゲット、フィラメントと共に長時間の寿命を保つものと思われる。
- (9) 以上の結果、本装置はコンタクト型装置に比べ非常にカブリが小さく、操作性に優れていることが確認され、高燃焼度の照射済み粒子に対しても非破壊照射後試験装置として適用できる見通しを得た。

なお、本装置は、昭和48年度に装置本体、49年度にセル内の設置に対しそれぞれ燃料照射研究室に認可された予算をもって製作、設置したものであり、今後はホットラボ管理室により被覆粒子の照射後試験実施に利用される。

本装置の製作、設置および性能試験の実施について協力を賜った燃料照射研究室の各位およびホットラボ管理室の各位に謝意を表す。

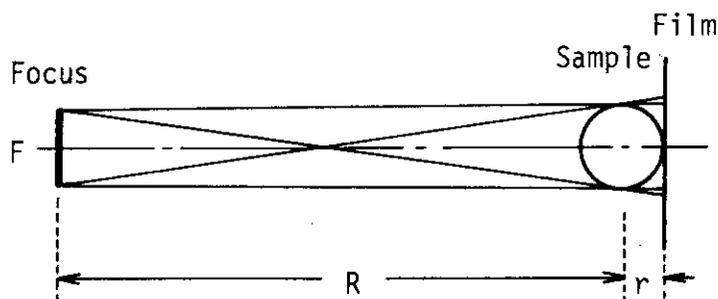
参 考 文 献

- 1) McClung R.W., et al.: OLNL - 3577, (1964)
- 2) Rooney, J.: TRG - Report - 2059(S), (1970)
- 3) Conde J.F.G.: EUR - 1819. e (1964) p. 105
- 4) 鹿志村悟ほか: JAERI-M 4749 (1972)
- 5) K.Iwamoto et al.: J.Nucl. Sci. Technol. 9 465-472 (1972)
- 6) R.H.Keep: AERE - M 1977 (1967)

付 録 (I)

X線ラジオグラフィにおける基本的光学系とその特徴

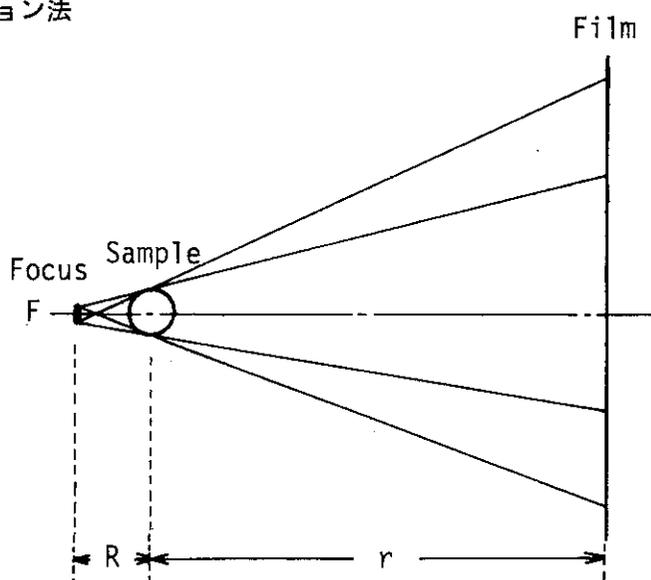
1. コンタクト法



$$\text{Resolution} = \frac{F \times r}{R + r} = \frac{F \times r}{R} \quad (r \ll R)$$

- 特 徴
1. X線源が比較的大きくても高い分解能が得られる。
 2. X線源が比較的小さい時はRが小さくても高い分解能が得られ、露出時間の短縮が可能である。
 3. 試料から放射線によるカブリが大きい。
 4. 試料の像は拡大されず1対1でフィルム上に投影される。
 5. 軟X線の発生が可能なX線発生装置があれば簡便に利用できる。

2. プロジェクション法



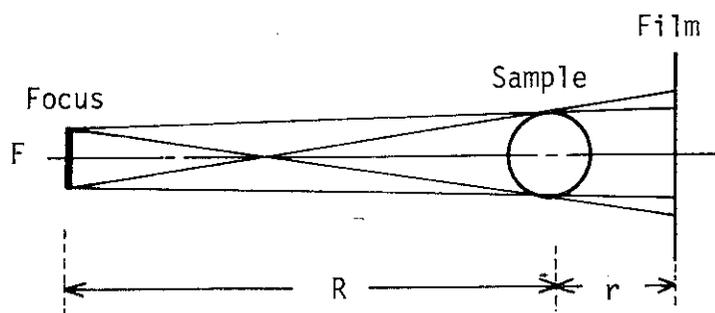
$$\text{Resolution} = \frac{F \times r}{R + r} = F \quad (r \gg R)$$

- 特 徴
1. X線源の大きさがそのまま分解能として近似される為極微小X線源（1～2 μ）が必要

である。

2. 試料からの放射線によるフィルムカブリをかなり防ぐことができる。
3. 極微小X線源のターゲット電流は一般的に微小電流となる為、比較的露出時間がかかる。
4. 試料の像が拡大されてフィルム上に投影される。
5. 装置製作には国産の場合、技術開発を要する。

3. コンタクト法とプロジェクション法の中間的な方法（本報告に採用した方法）



$$\text{Resolution} = \frac{F}{R + r} \frac{r}{r}$$

- 特 徴
1. 微小X線源により高分解能が得られる。
 2. 比較的大きなX線源でもRを大きくすることで高分解能が得られる。
 3. Rを大きくすると露出時間の増大を伴う。
 4. 試料からの放射線によるフィルムカブリをある程度防ぐことができる。
 5. 試料の像はわずかに拡大される。
 6. X線源としては国産品に転用できるものがあり、特別の技術開発は不要である。

付 録 (II)

X線ターゲットの耐負荷（最大負荷）の計算

X線管球の反射型ターゲットの耐負荷は、次のMullerの式により求められる。

$$W_{\max} = 17.8 \times (T_m - T_o) \times \kappa \times \delta$$

ここで W_{\max} : 耐負荷

T_m : ターゲット材の融点 (W)

T_o : 冷却材 (水) の温度 (°C)

κ : ターゲット材の融点での熱伝導度 (gr-cal/sec·cm·°C)

δ : X線焦点の半径 (cm)

また、加速電圧を V (volt) とすると

$$W_{\max} = V \cdot I$$

より、最大許容電流 I_{\max} (A) を求めることができる。

本装置における Cu ターゲット (焦点サイズ 50μ のとき) の耐負荷は

$$T_m = 1083 \text{ (°C)}$$

$$T_o = 25 \text{ (°C)}$$

$$\kappa = 0.79 \text{ (gr-cal/sec·cm·°C)}$$

$$\delta = 0.0025 \text{ (cm)}$$

$$\begin{aligned} W_{\max} &= 17.8 \times (1083 - 25) \times 0.79 \times 0.0025 \\ &= 37.2 \text{ (W)} \end{aligned}$$

となる。

付 録 (III)

照射済み粒子の放射能推定

1. 71F-7A キャプセルで照射された 71FC 4 粒子の放射能の推定

(1) 71FC 4 粒子のウラン量

燃料核組成	UO ₂ (96% T.D.)
濃縮度	20%
燃料核直径	500 μ
燃料核体積	$\frac{4}{3} \pi \times 0.025^3 = 6.54 \times 10^{-5} \text{ cm}^3$
UO ₂ 重量	$6.54 \times 10^{-5} \times 10.54 = 6.9 \times 10^{-4} \text{ g/粒}$
U 重量	$6.9 \times 10^{-4} \times \frac{238}{270} = 6.08 \times 10^{-4} \text{ g/粒}$
U ²³⁵ 重量	$6.08 \times 10^{-4} \times 0.2 = 1.22 \times 10^{-4} \text{ g/粒}$
U ²³⁵ の原子数	$1.22 \times 10^{-4} \times 6.02 \times 10^{23}/235 = 3.12 \times 10^{17} \text{ ケ/粒}$

(2) 照射条件

原子炉	JMTR
熱中性子束	$1.24 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$
照射時間	$46.7 \text{ d} = 4.04 \times 10^6 \text{ sec}$
冷却時間	$928 \text{ d} = 8.02 \times 10^7 \text{ sec}$

(3) 放射能

U ²³⁵ 1 ケ当りの放射能 (ORNL-2127 より)	$5.4 \times 10^{21} \text{ Ci}$
粒子 1 ケ当りの放射能	$5.4 \times 10^{21} \times 3.12 \times 10^{17} = 1.7 \times 10^{-3} \text{ Ci} = 1.7 \text{ mCi}$
粒子 100 ケの放射能	$1.7 \times 10^{-3} \times 100 = 0.17 \text{ Ci}$

2. 試験試料として予想される照射済み粒子の最大放射能の推定

(1) 試料粒子の U 量

燃料核組成	UO ₂ (96% T.D.)
濃縮度	8%
燃料核直径	500 μ
燃料核体積	$\frac{4}{3} \pi \times 0.025^3 = 6.54 \times 10^{-5} \text{ cm}^3$
UO ₂ 重量	$6.54 \times 10^{-5} \times 10.54 = 6.9 \times 10^{-4} \text{ g/粒}$
U 重量	$6.9 \times 10^{-4} \times \frac{238}{270} = 6.08 \times 10^{-4} \text{ g/粒}$
U ²³⁵ 重量	$6.08 \times 10^{-4} \times 0.08 = 4.86 \times 10^{-5} \text{ g/粒}$
U ²³⁵ 原子数	$4.86 \times 10^{-5} \times 6.02 \times 10^{23}/235 = 1.24 \times 10^{17} \text{ ケ/粒}$

(2) 照射条件

原子炉	JMTR	
熱中性子束	$3 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$	
照射時間	$28 \text{ d/c} \times 6 \text{ c} = 168 \text{ d}$	$1.4 \times 10^7 \text{ sec}$
冷却時間	150 日	$1.3 \times 10^7 \text{ sec}$

(3) 放射能

U^{235} 1ヶ当りの放射能 (ORNL-2127 より)

$$4.0 \times 10^{-19} \text{ Ci}$$

粒子 1ヶ当りの放射能 $4.0 \times 10^{-19} \times 1.24 \times 10^{17} = 4.96 \times 10^{-2} \text{ Ci}$