

JAERI-M  
7406

燃料コンパクトのウラン量検査法

1977年11月

倉田 有司・菊池 輝男・井川 勝市  
岩本 多実

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、お申しこしてください。

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.

燃料コンパクトのウラン量検査法

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

倉田 有司・菊池 輝男・井川 勝市・岩本 多実

(1977年10月31日受理)

燃料コンパクト中のウラン量を $\gamma$ 線スペクトロメトリーを応用して非破壊的に求める実験を行なった。ウラン量は、U-235の発する185keV光電ピークの $\gamma$ 線放出率を計数用標準コンパクトと比較して求めた。この際、計数用標準コンパクトとしては、X線ラジオグラフィーおよび $\gamma$ 線スペクトロメトリーを利用して、燃料コンパクト中のウラン分布が均一であると判明したものを選んだ。燃料コンパクトには軸方向のウラン分布が不均一なものもあるため、コンパクトの側面に検出器を置いて $\gamma$ 線を測定する方が端面から測定するよりも誤差が少ないことが判明した。また、この方法による測定精度は $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ より良好であると推定された。

Inspection Method of Uranium Content of the Fuel Compact

Yuuzi KURATA, Teruo KIKUCHI, Katsuichi IKAWA

and Kazumi IWAMOTO

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 31, 1977)

An experiment of the non-destructive measurement of uranium content in the fuel compact has been made by gamma-ray spectrometry. Uranium content was determined by comparing gamma-ray emissions at the 185 keV U-235 photopeak between a sample and a counting standard compact. A compact shown to have uniform uranium distribution by X-ray radiography and gamma-ray spectrometry was used as the standard. Uranium distribution in axial direction of the fuel compact was often not uniform, so gamma-rays were measured with a detector along the side of the fuel compact in order to minimize error of the counting. Uranium content of the fuel compact can be measured by gamma-ray spectrometry with accuracy of  $\pm 3\%$  at  $3\sigma$ -level.

Keywords: fuel compact, uranium content, gamma-ray spectrometry, counting standard, X-ray radiography, accuracy

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 海外における測定法 .....	1
3. 実験方法 .....	2
3.1 基本原理 .....	2
3.2 実験装置 .....	3
3.3 ウラン量の測定法 .....	4
4. 結果および考察 .....	4
4.1 実験結果 .....	4
4.2 測定の精度 .....	5
5. 結 論 .....	6
6. 参考文献 .....	6

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Methods of measurement in foreign countries .....	1
3. Experimental procedure .....	2
3.1 Basic principle .....	2
3.2 Experimental apparatus .....	3
3.3 Method of measurement of uranium content .....	4
4. Results and discussion .....	4
4.1 Experimental results .....	4
4.2 Accuracy of measurement .....	5
5. Conclusion .....	6
6. References .....	6

## 1. はじめに

被覆粒子型燃料を用いる高温ガス炉用燃料の品質管理技術の開発に寄与することを目的として、燃料コンパクトのウラン量検査法についての実験を行なった。高温ガス炉用燃料には、低濃縮ウランを用いる場合と高濃縮ウランとトリウムを用いる場合とがあるが、現在の原研の設計では低濃縮ウランを用いた $UO_2$ 被覆粒子を黒鉛-炭素マトリックス中に均一に分散した燃料コンパクトを用いている。直径数百ミクロンの $UO_2$ 核は内側から低密度PyC層(緩衝層)、高密度等方性PyC層、SiC層、さらに高密度等方性PyC層で被覆されている。この被覆燃料粒子は、黒鉛粉、フェノール樹脂バインダーでオーバーコートされ、温間成形により黒鉛-炭素マトリックス中に分散される。

燃料の製造検査を実施する上で、燃料コンパクト中のウラン量を非破壊で検査することが必要となる。燃料コンパクトのウラン量検査法としては、化学分析法、 $\gamma$ 線スペクトロメトリー、 $\gamma$ (X)線の吸収測定、X線ラジオグラフィなどが考えられる。化学分析法では燃料コンパクトを破壊しなければならず、したがって、本法は主として非破壊法による定量結果の確認に使用される。他の三法はいずれも非破壊法である。 $\gamma$ 線スペクトロメトリーは試料の放出する $\gamma$ 線スペクトルからウランの量を求める方法であり、 $\gamma$ (X)線吸収法は試料による $\gamma$ 線の減弱からウラン量を測定する方法であり、X線ラジオグラフィは、試料のX線写真を取り、その濃淡からウラン量を求める方法である。本実験では、測定が簡単迅速で精度の高い $\gamma$ 線スペクトロメトリーを採用した。また、燃料中にウランだけでなくトリウムが入った場合でも、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、他の $\gamma$ (X)線の吸収測定やX線ラジオグラフィに比べて、ウランとトリウムのそれぞれを測定できるという利点をもっている。

本報では、実験に先立って行なったウラン量検査法および燃料分布の測定法に関する文献調査の結果を概説したあと、ウラン量検査法の実験と結果について述べる。

## 2. 海外における測定法

ドラゴン炉では、炉物理上の要求から、燃料中のU-235量の誤差範囲を仕様値の $\pm 5\%$ 以内に制限している。このため燃料コンパクトのU-235量を $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって検査している。<sup>1)2)3)</sup>ここでは、コンパクトの端面からの185keV $\gamma$ 線の放出をNaI(Tl)検出器を使って、試料コンパクトとスタンダードコンパクトの間で比較して、U-235量を定量している。この際、ウランとトリウムが混在しても、トリウムの量がウランに対して10倍以下(原子比)であれば、U-235の光電ピークに著しい妨害はなく、U-235の定量に対し問題がないと述べられている。試料と標準試料の $\gamma$ 線計数値の比が3 $\sigma$ レベルで $\pm 1.5\%$ より小さい相対誤差となるような計数時間がとられた。このとき、化学分析によるスタンダード

## 1. はじめに

被覆粒子型燃料を用いる高温ガス炉用燃料の品質管理技術の開発に寄与することを目的として、燃料コンパクトのウラン量検査法についての実験を行なった。高温ガス炉用燃料には、低濃縮ウランを用いる場合と高濃縮ウランとトリウムを用いる場合とがあるが、現在の原研の設計では低濃縮ウランを用いた $UO_2$ 被覆粒子を黒鉛-炭素マトリックス中に均一に分散した燃料コンパクトを用いている。直径数百ミクロンの $UO_2$ 核は内側から低密度PyC層(緩衝層)、高密度等方性PyC層、SiC層、さらに高密度等方性PyC層で被覆されている。この被覆燃料粒子は、黒鉛粉、フェノール樹脂バインダーでオーバーコートされ、混間成形により黒鉛-炭素マトリックス中に分散される。

燃料の製造検査を実施する上で、燃料コンパクト中のウラン量を非破壊で検査することが必要となる。燃料コンパクトのウラン量検査法としては、化学分析法、 $\gamma$ 線スペクトロメトリー、 $\gamma$ (X)線の吸収測定、X線ラジオグラフィなどが考えられる。化学分析法では燃料コンパクトを破壊しなければならず、したがって、本法は主として非破壊法による定量結果の確認に使用される。他の三法はいずれも非破壊法である。 $\gamma$ 線スペクトロメトリーは試料の放出する $\gamma$ 線スペクトルからウランの量を求める方法であり、 $\gamma$ (X)線吸収法は試料による $\gamma$ 線の減弱からウラン量を測定する方法であり、X線ラジオグラフィは、試料のX線写真を取り、その濃淡からウラン量を求める方法である。本実験では、測定が簡単迅速で精度の高い $\gamma$ 線スペクトロメトリーを採用した。また、燃料中にウランだけでなくトリウムが入った場合でも、 $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、他の $\gamma$ (X)線の吸収測定やX線ラジオグラフィに比べて、ウランとトリウムのそれぞれを測定できるという利点をもっている。

本報では、実験に先立って行なったウラン量検査法および燃料分布の測定法に関する文献調査の結果を概説したあと、ウラン量検査法の実験と結果について述べる。

## 2. 海外における測定法

ドラゴン炉では、炉物理上の要求から、燃料中のU-235量の誤差範囲を仕様値の $\pm 5\%$ 以内に制限している。このため燃料コンパクトのU-235量を $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって検査している。<sup>1)2)3)</sup>ここでは、コンパクトの端面からの185keV $\gamma$ 線の放出をNaI(Tl)デテクターを使って、試料コンパクトとスタンダードコンパクトの間で比較して、U-235量を定量している。この際、ウランとトリウムが混在しても、トリウムの量がウランに対して10倍以下(原子比)であれば、U-235の光電ピークに著しい妨害はなく、U-235の定量に対し問題がないと述べられている。試料と標準試料の $\gamma$ 線計数値の比が3 $\sigma$ レベルで $\pm 1.5\%$ より小さい相対誤差となるような計数時間がとられた。このとき、化学分析によるスタンダード



中のU-235量測定の影響を考慮すると、試料中のU-235量は $3\sigma$ レベルで $\pm 3.2\%$ の相対誤差で測定されていることになるが、実際の精度は $\pm 2.5\%$ よりよいようであった。また、この方法はコンパクトの上下端面からのU-235  $\gamma$ 線の強度を比較することによって、コンパクト中のU-235の分散度を評価するのにも使われている。

燃料ロッド(直径16mm,長さ64mm)中のU-235とTh-232の分布を $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより測定した結果が報告されている。<sup>4)5)</sup>燃料ロッドの側面に十字型に配置された4個のGe(Li)デテクターとマルチチャンネルアナライザーにより、ウランおよびトリウム分布が測定されている。バックグラウンド関数を決めて、ピーク面積が求められ、さらに自己吸収の変化による誤差が補正されている。この方法による測定値については、ウランに対して $\pm 1\%$ 、トリウムに対して $\pm 3\%$ の再現性が得られている。

$\gamma$ 線透過と井戸型シンチレーターを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーおよび縦方向の $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって、同様のウランとトリウム分布の測定が行なわれている。<sup>6)7)</sup> $\gamma$ 線透過は重金属(UとTh)全体の分布曲線を与える。ここでは、ウランとトリウムの細粒を含んだ物質中の透過 $\gamma$ 線の計算が行なわれている。井戸型シンチレーターを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、コンパクトの半分の部分でのウランとトリウム各々の計数の割合を迅速に与える。縦方向の $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、十字型に配置された4個のシンチレーターとマルチチャンネルアナライザーにより、ウランとトリウムの軸方向の分布曲線を与える。

また、長い燃料棒に対しては、ウラン-黒鉛燃料エレメント(直径17mm,長さ1300mm)で、やはり $\gamma$ 線スペクトロメトリーによってウラン充填量が測定された。<sup>8)</sup>必要なウラン充填量の範囲をカバーする一連の計数スタンダードを準備して、 $\gamma$ 線計数率とウラン充填密度の校正曲線を描いておく。燃料エレメントがゆっくりデテクター部を通るとき、燃料エレメントの側面からの $\gamma$ 線がコリメーターを通してNaI(Tl)デテクターにより計数される。 $\gamma$ 線計数率から校正曲線によって、ウラン充填量を求めることができる。

なお、リサイクルU-233燃料に対しては、その $\gamma$ 線バックグラウンドが高いため、U-235やPu-239で使われている $\gamma$ 線スペクトルによる分析法は適用できない。リサイクルU-233燃料では、微量に含まれるU-232の娘核種からの強い放射能(Tl-208の2.6MeV  $\gamma$ 線など)が、U-233の317keV  $\gamma$ 線の検出を妨害する。もし同位体組成に対する適当な補正がなされれば、崩壊 $\alpha$ 線によるカロリメトリーが有望である。また、今までの自然崩壊の放射線を検出するパッシブ分析法に比べ、中性子照射による遅発中性子あるいは即発中性子を検出するアクティブ分析法も有望とされている。<sup>9)10)</sup>

### 3. 実験方法

#### 3.1 基本原理

8%濃縮ウランを用いた燃料コンパクトのNaI(Tl)デテクターによる $\gamma$ 線スペクトルを

中のU-235量測定の影響を考慮すると、試料中のU-235量は $3\sigma$ レベルで $\pm 3.2\%$ の相対誤差で測定されていることになるが、実際の精度は $\pm 2.5\%$ よりよいようであった。また、この方法はコンパクトの上下端面からのU-235  $\gamma$ 線の強度を比較することによって、コンパクト中のU-235の分散度を評価するのにも使われている。

燃料ロッド(直径16mm,長さ64mm)中のU-235とTh-232の分布を $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより測定した結果が報告されている。<sup>4)5)</sup>燃料ロッドの側面に十字型に配置された4個のGe(Li)デテクターとマルチチャンネルアナライザーにより、ウランおよびトリウムの分布が測定されている。バックグラウンド関数を決めて、ピーク面積が求められ、さらに自己吸収の変化による誤差が補正されている。この方法による測定値については、ウランに対して $\pm 1\%$ 、トリウムに対して $\pm 3\%$ の再現性が得られている。

$\gamma$ 線透過と井戸型シンチレーターを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーおよび縦方向の $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって、同様のウランとトリウム分布の測定が行なわれている。<sup>6)7)</sup> $\gamma$ 線透過は重金属(UとTh)全体の分布曲線を与える。ここでは、ウランとトリウムの細粒を含んだ物質中の透過 $\gamma$ 線の計算が行なわれている。井戸型シンチレーターを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、コンパクトの半分の部分でのウランとトリウム各々の計数の割合を迅速に与える。縦方向の $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、十字型に配置された4個のシンチレーターとマルチチャンネルアナライザーにより、ウランとトリウムの軸方向の分布曲線を与える。

また、長い燃料棒に対しては、ウラン-黒鉛燃料エレメント(直径17mm,長さ1300mm)で、やはり $\gamma$ 線スペクトロメトリーによってウラン充填量が測定された。<sup>8)</sup>必要なウラン充填量の範囲をカバーする一連の計数スタンダードを準備して、 $\gamma$ 線計数率とウラン充填密度の校正曲線を描いておく。燃料エレメントがゆっくりデテクター部を通るとき、燃料エレメントの側面からの $\gamma$ 線がコリメーターを通してNaI(Tl)デテクターにより計数される。 $\gamma$ 線計数率から校正曲線によって、ウラン充填量を求めることができる。

なお、リサイクルU-233燃料に対しては、その $\gamma$ 線バックグラウンドが高いために、U-235やPu-239で使われている $\gamma$ 線スペクトルによる分析法は適用できない。リサイクルU-233燃料では、微量に含まれるU-232の娘核種からの強い放射能(Tl-208の2.6MeV  $\gamma$ 線など)が、U-233の317keV  $\gamma$ 線の検出を妨害する。もし同位体組成に対する適当な補正がなされれば、崩壊 $\alpha$ 線によるカロリメトリーが有望である。また、今までの自然崩壊の放射線を検出するバンプ分析法に比べ、中性子照射による遅発中性子あるいは即発中性子を検出するアクティブ分析法も有望とされている。<sup>9)10)</sup>

### 3. 実験方法

#### 3.1 基本原理

8%濃縮ウランを用いた燃料コンパクトのNaI(Tl)デテクターによる $\gamma$ 線スペクトルを

Fig. 1に示す。この $\gamma$ 線スペクトルのなかで185keVのピークは、U-235がTh-231へ壊変する際放出される $\gamma$ 線の光電ピークである。また、95keV付近にみられるピークは、U-238の娘核種であるTh-234やPa-234などから発せられる93keVの $\gamma$ 線、UのX線、100keVの $\gamma$ 線、U-235から発せられるThのX線などの複合したピークであると考えられる。燃料コンパクトのウラン量は、濃縮度が一定のとき、このU-235からの185keVの光電ピークを計数することによって求められる。

185keVの $\gamma$ 線の吸収を、簡単な計算によって求めてみることにする。燃料コンパクトは、外径24mm、内径8mm、高さ40mmで、 $UO_2$ 核の直径を500 $\mu$ m、被覆粒子の直径を780 $\mu$ m、被覆粒子充填率を22%とする。被覆層は黒鉛マトリックスとし、 $UO_2$ が黒鉛と均一に混じり合っているとして、コンパクトの185keV $\gamma$ 線の吸収係数、半価層を計算した結果がTable 1である。<sup>11)</sup> このように $\gamma$ 線のエネルギーが低く $\gamma$ 線が吸収されやすいため、 $\gamma$ 線の計数効率のよいジオメトリー、デテクターを選ぶことが必要である。

### 3.2 実験装置

$\gamma$ 線スペクトロメトリーに使用したシングルチャンネルガンマ線スペクトロメーターのブロックダイヤグラムをFig. 2に示す。その構成は、デテクター、プリアンプ、スペクトロスコープアンプ、シングルチャンネルディスクリ、スケーラなどからなり、デテクターとしては、直径2インチのNaI(Tl)シンチレーションデテクターを使用した。シングルチャンネルスペクトロメーターは、Fig. 1に示すように、185keVの光電ピークを計数するように、160keVから210keVにセットされた。これはバックグラウンド部分を除けば、光電ピークの約98%を含んでいる。Fig. 3(a), (b)に示すようにコンパクトとデテクターを配置し、コンパクトの端面と側面から $\gamma$ 線を計数し、ウラン量を測定した。Fig. 3(c)はスタンダードを決める際に、燃料コンパクト中のウラン分布を求めたときの配置である。スタンダードはウラン量の基準となり、また測定系の較正に使用するため、ウラン分布の均一なコンパクトを選ぶ必要がある。スリットを通して試料からの $\gamma$ 線を計数し、軸方向のウランの分布が求められる。2個の鉛シールドの間のギャップを変えることによって、スリットの中が変えられる。ギャップを5mmとして、コンパクトの軸方向の各位置で $\gamma$ 線を測定し、ウラン分布を求めた。なお、コンパクトの端部分では $\gamma$ 線強度が低くなるため、平均的なウラン量で均一なウラン分布を持ったコンパクトを横に並べることによって、この効果を補正した。

このように得られたコンパクト中のウラン分布は、さらにX線ラジオグラフィにより確認された。燃料コンパクトをX線フィルム上に置き、X線を照射してX線ラジオグラフを得る。また、このフィルムを濃度計により測定して、軸方向の濃度分布曲線を求めた。この場合も $\gamma$ 線測定の場合と同様に、コンパクトの両端部ではX線の散乱によりフィルムにカブリが出るため、両側にコンパクトを並べてこれを防止した。X線の照射条件は10mA、35kV<sub>p</sub>、2分であり、濃度曲線はコンパクトの中心部分を巾2mmのスリットで軸方向に濃度を測定することにより得られた。

### 3.3 ウラン量の測定法

燃料コンパクト中のウラン量は、Fig. 4に示した方法に従って測定した。まず、燃料コンパクトの中から、平均的なウラン量を持ち、ウラン分布の均一な2個のコンパクトを選び出し、それぞれ化学分析スタンダードおよび計数スタンダードとする。この両標準試料について、185keVの $\gamma$ 線計数値を正確に測定する。そのあと、化学分析スタンダードは粉碎し、化学分析によりその中に含まれるウランの量を決定する。両スタンダードの $\gamma$ 線計数値と化学分析値から、次式に従って計数スタンダード中に含まれるウラン量 $K$ を求める。

$$K = \frac{C'_B}{C'_C} \cdot W_0$$

ここで、 $C'_B$ は計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値、 $C'_C$ は化学分析スタンダードの $\gamma$ 線計数値、 $W_0$ は化学分析によって求めた化学分析スタンダード中のウラン量である。これから試料コンパクト中のウラン量 $W$ は次式によって求められる。

$$W = \frac{C_A}{C_B} \cdot K$$

ここで、 $C_A$ は試料コンパクトの $\gamma$ 線計数値、 $C_B$ は計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値である。なお、スペクトロメーターは、電圧、ゲインの変動や温度変化などによってピークがドリフトするため、計数スタンダードにより測定系を常時較正した。

## 4. 結果および考察

### 4.1 実験結果

#### 1) スタンダードの選定

Fig. 5, 6, 7および8は、コンパクトの軸方向におけるウラン分布の測定例である。それぞれ、上からX線ラジオグラフ、X線ラジオグラフィームの濃度曲線、スリットからの $\gamma$ 線計数によるウラン分布の測定結果である。Fig. 5はウラン分布の不均一な燃料コンパクトの例であり、一方の端面側でウラン密度が高く、他方の端面側でウラン密度が低くなっている。このように、ウラン密度に勾配のある燃料コンパクトは、測定した試料ではかなり多く、これは燃料コンパクトの成形が片押しプレスだったためと考えられる。ウラン密度の高い部分では、X線ラジオグラフは暗くなり、反対にフィルム濃度曲線は濃度が低く、 $\gamma$ 線の強度は高くなる。ウラン密度の低い場合には、これと逆になる。X線ラジオグラフとフィルム濃度曲線、スリットからの $\gamma$ 線測定の結果はよい一致を示している。Fig. 6は比較的均一なウラン分布を持った燃料コンパクトの例であり、このような均質なコンパクトをスタンダードに選んだ。

なお、燃料コンパクトの円周方向のウラン分布は、燃料コンパクトの側面からの $\gamma$ 線を測定することによって得られる。燃料コンパクトを90°ずつ回転して側面からの $\gamma$ 線を測定し、平

### 3.3 ウラン量の測定法

燃料コンパクト中のウラン量は、Fig. 4に示した方法に従って測定した。まず、燃料コンパクトの中から、平均的なウラン量を持ち、ウラン分布の均一な2個のコンパクトを選び出し、それぞれ化学分析スタンダードおよび計数スタンダードとする。この両標準試料について、185keVの $\gamma$ 線計数値を正確に測定する。そのあと、化学分析スタンダードは粉碎し、化学分析によりその中に含まれるウランの量を決定する。両スタンダードの $\gamma$ 線計数値と化学分析値から、次式に従って計数スタンダード中に含まれるウラン量 $K$ を求める。

$$K = \frac{C'_B}{C'_C} \cdot W_0$$

ここで、 $C'_B$ は計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値、 $C'_C$ は化学分析スタンダードの $\gamma$ 線計数値、 $W_0$ は化学分析によって求めた化学分析スタンダード中のウラン量である。これから試料コンパクト中のウラン量 $W$ は次式によって求められる。

$$W = \frac{C_A}{C_B} \cdot K$$

ここで、 $C_A$ は試料コンパクトの $\gamma$ 線計数値、 $C_B$ は計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値である。なお、スペクトロメーターは、電圧、ゲインの変動や温度変化などによってピークがドリフトするため、計数スタンダードにより測定系を常時較正した。

## 4. 結果および考察

### 4.1 実験結果

#### 1) スタンダードの選定

Fig. 5, 6, 7および8は、コンパクトの軸方向におけるウラン分布の測定例である。それぞれ、上からX線ラジオグラフ、X線ラジオグラフフィルムの濃度曲線、スリットからの $\gamma$ 線計数によるウラン分布の測定結果である。Fig. 5はウラン分布の不均一な燃料コンパクトの例であり、一方の端面側でウラン密度が高く、他方の端面側でウラン密度が低くなっている。このように、ウラン密度に勾配のある燃料コンパクトは、測定した試料ではかなり多く、これは燃料コンパクトの成形が片押しプレスだったためと考えられる。ウラン密度の高い部分では、X線ラジオグラフは暗くなり、反対にフィルムの濃度曲線は濃度が低く、 $\gamma$ 線の強度は高くなる。ウラン密度の低い場合には、これと逆になる。X線ラジオグラフとフィルムの濃度曲線、スリットからの $\gamma$ 線測定の結果はよい一致を示している。Fig. 6は比較的均一なウラン分布を持った燃料コンパクトの例であり、このような均質なコンパクトをスタンダードに選んだ。

なお、燃料コンパクトの円周方向のウラン分布は、燃料コンパクトの側面からの $\gamma$ 線を測定することによって得られる。燃料コンパクトを90°ずつ回転して側面からの $\gamma$ 線を測定し、平

均の計数値と比較した結果をTable 2に示す。この結果から、燃料コンパクトの円周方向におけるウラン分布は比較的均一であることがわかった。

## II) ウラン量の測定

燃料コンパクトのウラン量測定に先立って、同一形状でウラン量の異なるコンパクトを用いて、ウラン量と185 keVの $\gamma$ 線計数値の関係を調べた。その結果をFig. 9に示す。(A)はコンパクトの端面からの $\gamma$ 線計数結果、(B)はコンパクトの側面からの $\gamma$ 線計数結果であり、ウラン量と $\gamma$ 線計数値は比例関係にあることがわかる。コンパクトの端面からの $\gamma$ 線計数では、軸方向におけるウラン分布の不均一から、上下の端面で計数値に差がみられる。これはTable 3に示したように、個々の端面からの計数値およびこれから求めたウラン分布の不均質性を表わす不均質度H. F. (Heterogeneity Factor) の値からもわかる。<sup>12)</sup> コンパクトの軸方向におけるウラン分布の不均一さと側面からの計数の方が計数値が高いことにより、ウラン量測定には、側面からの計数が適当であることがわかった。(B)のコンパクト側面から $\gamma$ 線を計数した場合、直線の傾きは、 $1.6 \times 10^4$  counts/gUであり、この値はウランの単位重量変化当りの $\gamma$ 線計数値の変化を与える。また、計数値 $2.5 \times 10^5$ に対する標準偏差は500である。従って、統計的誤差だけを考慮した場合、 $3\sigma$ レベルで $1500 / 1.6 \times 10^4$ つまり約0.1 gのウラン量の変化を検出できることになる。<sup>13)</sup> これは約1%のウラン量変化に対応する。ただし、この実験に用いた燃料コンパクトのウラン濃縮度は12%である。

燃料コンパクトのウラン量を、コンパクトの側面から $\gamma$ 線を計数して求めた測定結果をTable 4に示す。72FP1A1および72FP2A1の各シリーズで、それぞれ別々に化学分析スタンダードと計数スタンダードを決めてウラン量を求めた。各シリーズから、化学分析スタンダードとは別にさらに1個のコンパクトを破壊し、化学分析によってウラン量を求めた結果、その値は $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって求めた値とよく一致していた。

## 4.2 測定の精度

測定結果に影響を与える主な誤差は、 $\gamma$ 線計数の誤差と化学分析の誤差である。後者では、精度の高い化学分析法を使用すれば、その誤差を小さくおさえることができる。前者では計数値の統計的変動とピークのドリフトによる誤差が考えられる。 $\gamma$ 線計数の統計的な誤差については、各々の燃料コンパクトの $\gamma$ 線計数値が $1.8 \times 10^5$ より大きくなるような計数時間をとることにより、試料と計数スタンダードとの $\gamma$ 線計数値の比の相対誤差を $3\sigma$ レベルで1%より小さくなるようにした。ピークのドリフトは電圧の変動やゲインの変動、温度変化などによって起り、その結果 $\gamma$ 線計数値が変動する。Fig. 10はこの状態を示したもので、同じ燃料コンパクトの $\gamma$ 線計数値が変動する様子を示す。このように、統計的誤差以上の $\gamma$ 線計数値の変動が起るため、ウラン量検査においては、計数スタンダードと試料コンパクトを交互に計数して、前後の計数スタンダードの計数値の平均をとることにより、補正を行なった。燃料コンパクトの端面からの計数、側面からの計数、補正を行なった側面からの計数結果の比較をFig. 11に示す。端面からの測定結果と比較して側面からの測定結果はバラツキが少なく、これに

対して補正を行えば、さらに誤差は小さくなり、コンパクト中の実際のウランの含有量に近づいて、統計的誤差の範囲内に入ることがわかる。なお、スペクトロメーターの安定性がよい場合には、計数スタンダードの測定頻度をもっと少なくすることができる。

この方法の測定精度は、さらに多数回の測定を行なって決められるが、試料コンパクトと計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値の比の相対誤差 $\pm 1\%$ 、さらに計数スタンダード中のウラン量測定値の相対誤差を考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと考えられる。

## 5. 結 論

燃料コンパクトのウラン量検査法として、 $\gamma$ 線スペクトロメトリー法が適用できることが示された。

試料コンパクト中から、化学分析スタンダードと計数スタンダードを選び、この2つのスタンダードについて $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比を測定する。化学分析スタンダードは化学分析によってそこに含まれるウラン量を正確に求める。計数スタンダード中のウラン量は、化学分析スタンダード中のウラン量と両標準試料の $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比から求める。通常の検査作業では、計数スタンダードと試料コンパクトの $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度を測定し、これと先に求めた計数スタンダード中のウランの量から試料コンパクト中のウラン量が求められる。なお、計数スタンダードは測定系の較正にも使用する。

ウラン量測定に先立って、X線ラジオグラフィーおよびスリットを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって、燃料コンパクト中のウラン分布を測定した。その結果、コンパクトの軸方向でウラン分布が不均一であったため、ウラン量検査はコンパクトの側面を測定した方がよいことがわかった。

この方法によるウラン量の測定誤差は、 $\gamma$ 線計数の誤差、化学分析の誤差などを考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと推定された。

## 6. 参 考 文 献

- 1) J. F. G. Conde' et al : "Non-destructive testing in nuclear technology" vol II, IAEA, Vienna, 1965, 169
- 2) J. Holliday, M. S. T. Price : PL-4771  
"Non-destructive testing of coated particle fuels" IAEA Panel on Non-Destructive Testing of Reactor Core Components and Pressure Vessels, Vienna, Nov. 29-Dec. 3 (1971)
- 3) J. F. G. Conde' et al : D. P. Report 577

対して補正を行えば、さらに誤差は小さくなり、コンパクト中の実際のウランの含有量に近づいて、統計的誤差の範囲内に入ることがわかる。なお、スペクトロメーターの安定性がよい場合には、計数スタンダードの測定頻度をもっと少なくすることができる。

この方法の測定精度は、さらに多数回の測定を行なって決められるが、試料コンパクトと計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値の比の相対誤差 $\pm 1\%$ 、さらに計数スタンダード中のウラン量測定値の相対誤差を考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと考えられる。

## 5. 結 論

燃料コンパクトのウラン量検査法として、 $\gamma$ 線スペクトロメトリー法が適用できることが示された。

試料コンパクト中から、化学分析スタンダードと計数スタンダードを選び、この2つのスタンダードについて $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比を測定する。化学分析スタンダードは化学分析によってそこに含まれるウラン量を正確に求める。計数スタンダード中のウラン量は、化学分析スタンダード中のウラン量と両標準試料の $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比から求める。通常の検査作業では、計数スタンダードと試料コンパクトの $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度を測定し、これと先に求めた計数スタンダード中のウランの量から試料コンパクト中のウラン量が求められる。なお、計数スタンダードは測定系の較正にも使用する。

ウラン量測定に先立って、X線ラジオグラフィーおよびスリットを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって、燃料コンパクト中のウラン分布を測定した。その結果、コンパクトの軸方向でウラン分布が不均一であったため、ウラン量検査はコンパクトの側面を測定した方がよいことがわかった。

この方法によるウラン量の測定誤差は、 $\gamma$ 線計数の誤差、化学分析の誤差などを考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと推定された。

## 6. 参 考 文 献

- 1) J. F. G. Conde' et al : "Non-destructive testing in nuclear technology" vol II, IAEA, Vienna, 1965, 169
- 2) J. Holliday, M. S. T. Price : PL-4771  
"Non-destructive testing of coated particle fuels" IAEA Panel on Non-Destructive Testing of Reactor Core Components and Pressure Vessels, Vienna, Nov. 29-Dec. 3 (1971)
- 3) J. F. G. Conde' et al : D. P. Report 577



対して補正を行えば、さらに誤差は小さくなり、コンパクト中の実際のウランの含有量に近づいて、統計的誤差の範囲内に入ることがわかる。なお、スペクトロメーターの安定性がよい場合には、計数スタンダードの測定頻度をもっと少なくすることができる。

この方法の測定精度は、さらに多数回の測定を行なって決められるが、試料コンパクトと計数スタンダードの $\gamma$ 線計数値の比の相対誤差 $\pm 1\%$ 、さらに計数スタンダード中のウラン量測定値の相対誤差を考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと考えられる。

## 5. 結 論

燃料コンパクトのウラン量検査法として、 $\gamma$ 線スペクトロメトリー法が適用できることが示された。

試料コンパクト中から、化学分析スタンダードと計数スタンダードを選び、この2つのスタンダードについて $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比を測定する。化学分析スタンダードは化学分析によってそこに含まれるウラン量を正確に求める。計数スタンダード中のウラン量は、化学分析スタンダード中のウラン量と両標準試料の $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度比から求める。通常の検査作業では、計数スタンダードと試料コンパクトの $185\text{ keV}$   $\gamma$ 線の強度を測定し、これと先に求めた計数スタンダード中のウランの量から試料コンパクト中のウラン量が求められる。なお、計数スタンダードは測定系の較正にも使用する。

ウラン量測定に先立って、X線ラジオグラフィーおよびスリットを用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリーによって、燃料コンパクト中のウラン分布を測定した。その結果、コンパクトの軸方向でウラン分布が不均一であったため、ウラン量検査はコンパクトの側面を測定した方がよいことがわかった。

この方法によるウラン量の測定誤差は、 $\gamma$ 線計数の誤差、化学分析の誤差などを考慮しても、 $3\sigma$ レベルで $\pm 3\%$ よりよいと推定された。

## 6. 参 考 文 献

- 1) J. F. G. Conde' et al : "Non-destructive testing in nuclear technology" vol II, IAEA, Vienna, 1965, 169
- 2) J. Holliday, M. S. T. Price : PL-4771  
"Non-destructive testing of coated particle fuels" IAEA Panel on Non-Destructive Testing of Reactor Core Components and Pressure Vessels, Vienna, Nov. 29-Dec. 3 (1971)
- 3) J. F. G. Conde' et al : D. P. Report 577

- 4) H. Lang, Ch. Meixner : Bericht JÜL-1067-BB (1974)
- 5) H. Lang, Ch. Meixner : Kerntechnik 17. Jahrgang (1975) №8,  
359
- 6) P. Mottet et al : "Control de L'homogeneite des compacts  
combustibles pour reacteurs a haute temperature" IAEA-SR-7/10  
Seminaire international sur l'assurance de la qualite du combustible  
nucleaire. Oslo, 24-27 mai (1976)
- 7) P. Mottet et al : ORNL-TR-4189
- 8) B. L. Blanks et al : LA-2672
- 9) J. E. Rushton et al : "Nuclear Materials Management" vol. IV, №1,  
Spring, (1975)
- 10) 松田 泰彦, 他 : 「日本原子力学会誌」 vol. 19, №1, P 24
- 11) 木村 健二郎 「放射線データブック」
- 12) J. Holliday, M. S. T. Price : PL-4771  
"Non-destructive testing of coated particle fuels" IAEA Panel on  
Non-Destructive Testing of Reactor Core Components and Pressure  
Vesseles, Vienna, Nov. 29-Dec. 3 (1971)
- 13) J. E. Ayer, D. R. Schmitt : "Nuclear Technology " vol. 27  
November, (1975) 442

Table 1 Absorption coefficient and half value layer of Carbon,  $UO_2$  and fuel compact

Material	Total absorption coefficient (cm <sup>2</sup> /g)	Density (g/cm <sup>3</sup> )	Linear absorption coefficient (cm <sup>-1</sup> )	Half value layer (cm)
Carbon	0.127	1.65	0.21	3.3
$UO_2$	1.415	10.54	14.91	0.047
Fuel compact	0.49	2.17	1.06	0.65

Table 2 Gamma-spectrometric analysis of uranium distribution in the direction of circumference of fuel compacts

Sample	①	②	③	④
72FPIA1-1	0.99 <sub>8</sub>	0.99 <sub>6</sub>	1.00 <sub>2</sub>	1.00 <sub>5</sub>
-3	0.99 <sub>7</sub>	1.00 <sub>1</sub>	1.00 <sub>1</sub>	1.00 <sub>0</sub>
-6	1.00 <sub>4</sub>	0.99 <sub>5</sub>	1.00 <sub>0</sub>	1.00 <sub>1</sub>
-8	0.99 <sub>7</sub>	1.00 <sub>5</sub>	1.00 <sub>5</sub>	0.99 <sub>4</sub>
72FP2A1-2	1.01 <sub>1</sub>	1.00 <sub>1</sub>	0.99 <sub>1</sub>	0.99 <sub>8</sub>
-4	0.99 <sub>8</sub>	1.00 <sub>3</sub>	1.00 <sub>2</sub>	0.99 <sub>7</sub>
-6	1.00 <sub>3</sub>	1.00 <sub>5</sub>	0.99 <sub>8</sub>	0.99 <sub>4</sub>
-10	1.00 <sub>2</sub>	1.00 <sub>4</sub>	0.99 <sub>4</sub>	1.00 <sub>0</sub>

Table 3 Gamma-ray counts from the top and bottom of the compact and heterogeneity factor H.F.

Sample	A	B	H.F. (%)
72FP1A1-1	128240	135450	2.7
-3	133423	128537	1.9
-4	130404	123110	2.8
-5	118406	122044	1.5
-6	120404	130437	4.0
-8	129720	115793	5.7
-9	123188	142472	7.3
-10	137518	123486	5.4
72FP2A1-1	133636	136173	0.9
-2	136649	126027	4.0
-3	131595	133417	0.7
-4	134696	134053	0.2
-5	131400	134490	1.2
-6	132966	131455	0.6
-7	131880	133419	0.6
-8	128560	129272	0.3
-9	137173	129976	2.7
-10	128606	137629	3.4

$$H.F. = \frac{|A-B|}{A+B} \cdot 100 (\%)$$

A,B: The counts from the top and bottom of the compact respectively

Table 4 Gamma-spectrometric analysis of uranium content in a fuel compact

Fuel compact No.	Gamma activities compared to counting standard	U content by gamma-ray spectrometry	U content by chemical analysis
72FP1A1-1	0.98 <sub>6</sub>	8.49 <sub>3</sub> g	
Δ -3	1.00 <sub>0</sub>	8.61 <sub>1</sub>	
-4	0.98 <sub>7</sub>	8.50 <sub>3</sub>	8.5069 g
-5	0.96 <sub>0</sub>	8.27 <sub>0</sub>	
-6	0.96 <sub>9</sub>	8.34 <sub>5</sub>	
-8	0.98 <sub>0</sub>	8.44 <sub>3</sub>	
-9	1.01 <sub>4</sub>	8.73 <sub>6</sub>	
○ -10	0.99 <sub>7</sub>		8.5894
72FP2A1-1	1.00 <sub>8</sub>	8.30 <sub>7</sub>	
-2	0.98 <sub>7</sub>	8.13 <sub>2</sub>	
-3	0.99 <sub>7</sub>	8.21 <sub>5</sub>	
-4	1.01 <sub>2</sub>	8.34 <sub>2</sub>	
○ -5	0.99 <sub>5</sub>		8.1989
Δ -6	1.00 <sub>0</sub>	8.23 <sub>9</sub>	
-7	1.01 <sub>3</sub>	8.35 <sub>3</sub>	
-8	0.99 <sub>5</sub>	8.20 <sub>0</sub>	8.1122
-9	1.00 <sub>7</sub>	8.29 <sub>8</sub>	
-10	0.99 <sub>0</sub>	8.15 <sub>8</sub>	

○: Chemical standard      Δ: Counting standard

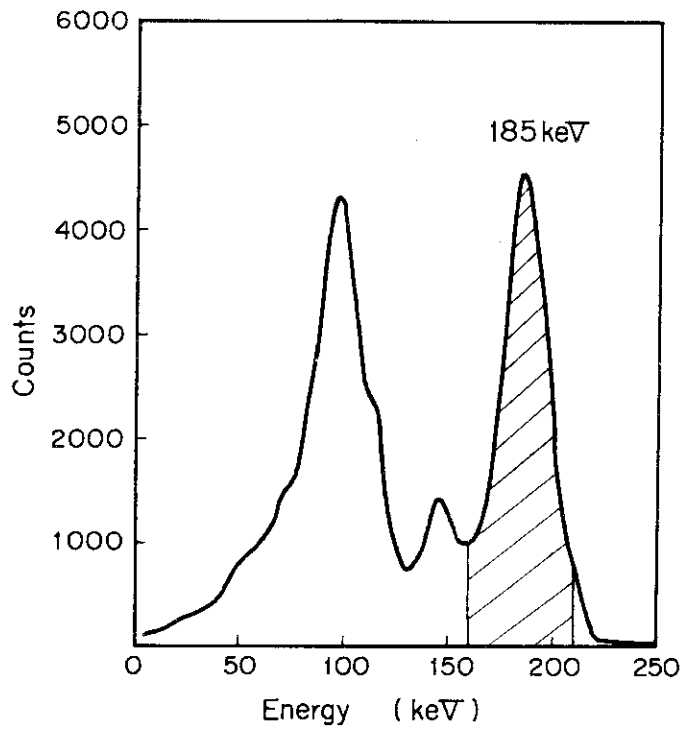


Fig.1 Gamma-ray spectrum of the fuel compact

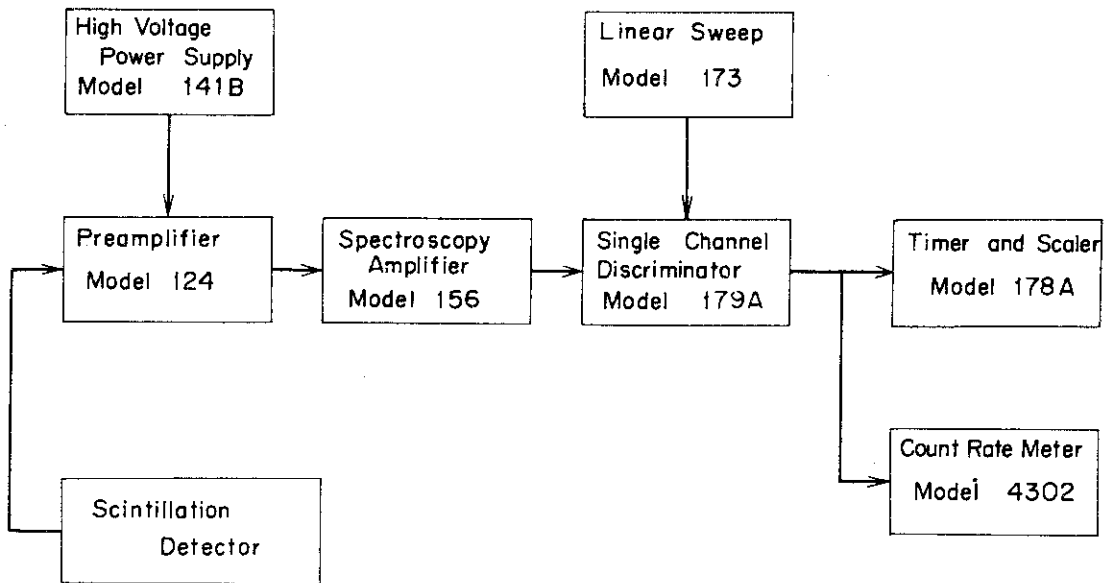


Fig. 2 Block diagram of the single channel gamma-spectrometer

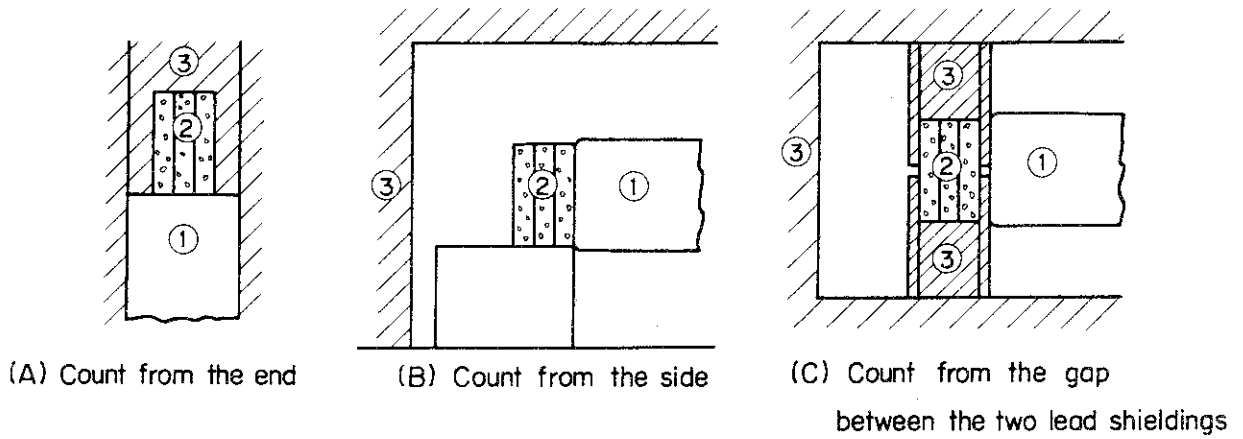


Fig. 3 Measuring arrangements

① NaI(Tl) detector    ② Fuel compact    ③ Lead shielding

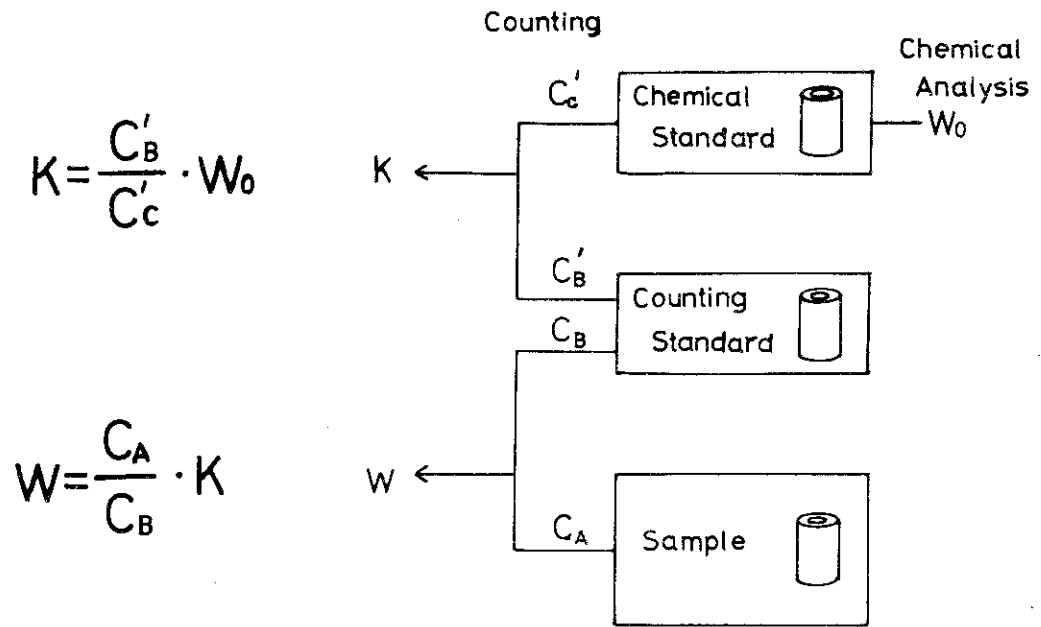


Fig. 4 Calculation method of uranium content of a fuel compact

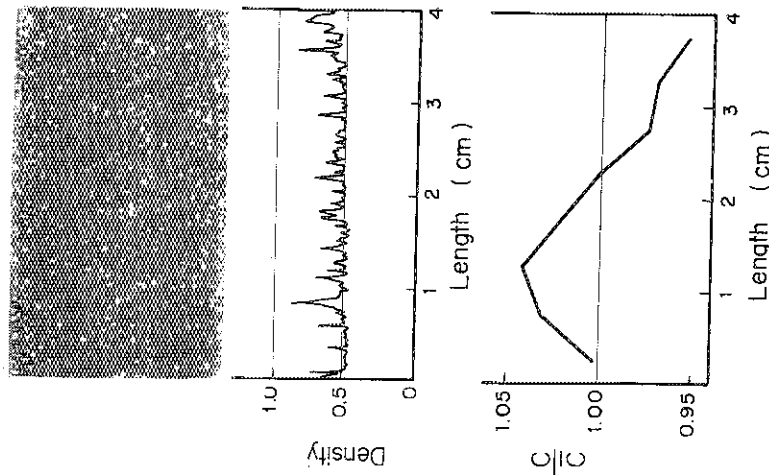


Fig. 5 Uranium distribution in a fuel compact (72FP2A1-2)  
 Top : X-ray radiograph , Middle : Density curve of X-ray radiograph film, Bottom : Gamma-ray spectrometry

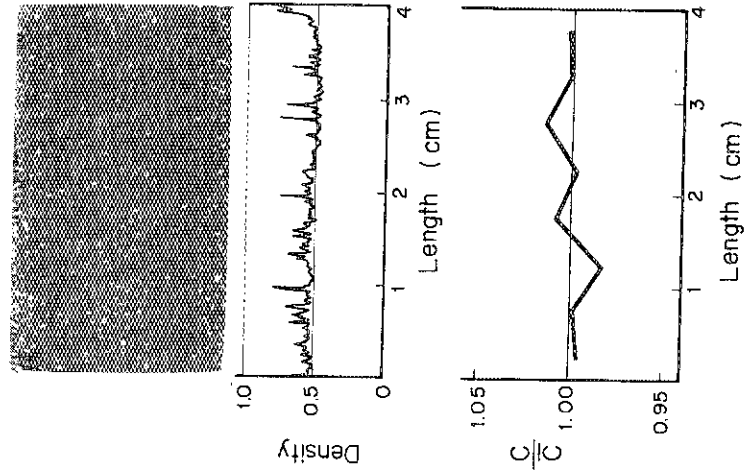


Fig. 6 Uranium distribution in a fuel compact (72FP2A1-6)  
 Top : X-ray radiograph , Middle : Density curve of X-ray radiograph film, Bottom : Gamma-ray spectrometry

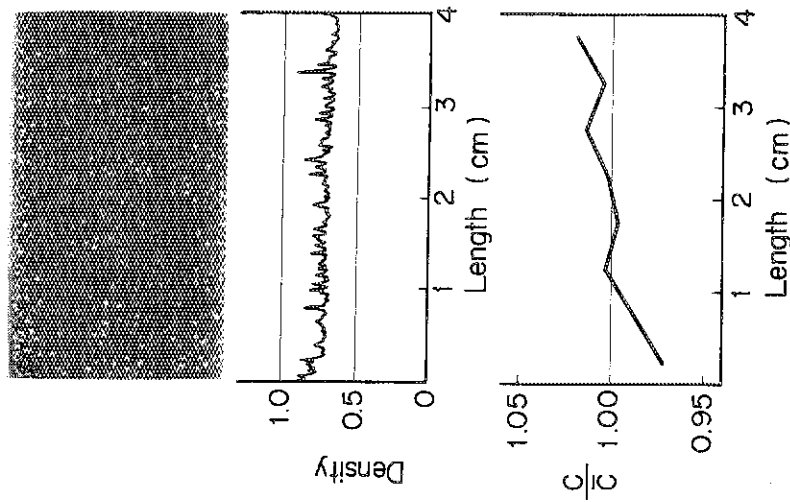


Fig. 7 Uranium distribution in a fuel compact (72FP2A1-8)  
 Top : X-ray radiograph, Middle : Density curve of X-ray radiograph film, Bottom : Gamma-ray spectrometry

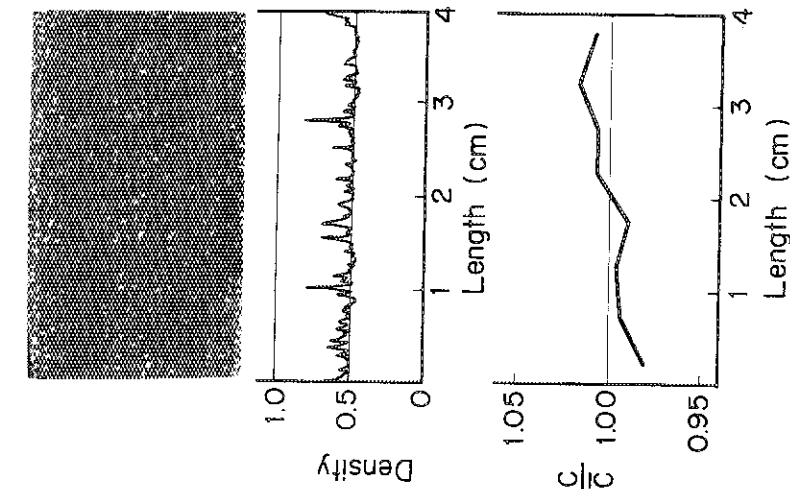


Fig. 8 Uranium distribution in a fuel compact (72FP2A1-10)  
 Top : X-ray radiograph, Middle : Density curve of X-ray radiograph film, Bottom : Gamma-ray spectrometry



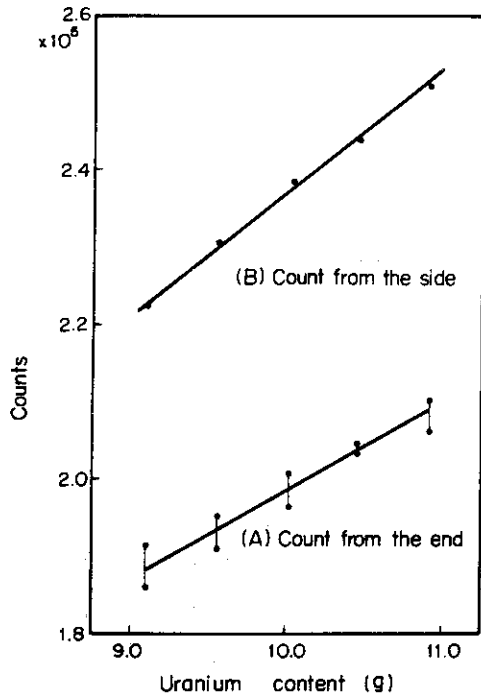


Fig. 9 Relationship between uranium content and gamma-ray counts

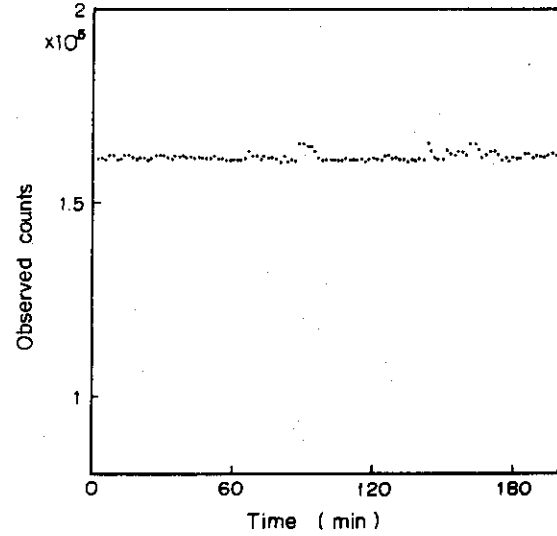


Fig. 10 Fluctuations of gamma-ray counts of the same fuel compact

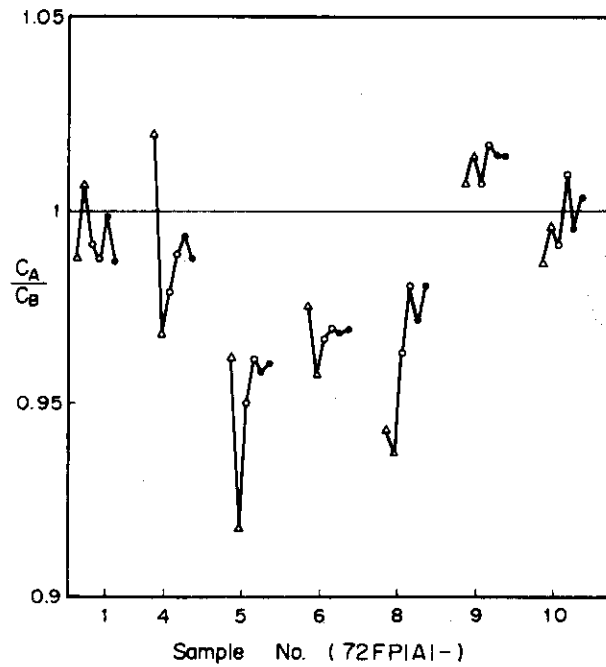


Fig. 11 Comparison of the gamma activities in a sample with that of a standard  
 Δ ; count from the end ○ ; count from the side  
 ● ; count from the side (with correction)