

JAERI-M
92-046

高温ガス炉用燃料コンパクトの
ウラン定量精度の検討

1992年4月

小林 紀昭・伊藤 光雄・鈴木 修一^{*}
福田 幸朔・星野 昭^{**}

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1992

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 株原子力資料サービス

高温ガス炉用燃料コンパクトのウラン定量精度の検討

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

小林 紀昭・伊藤 光雄[†]・鈴木 修一^{*}

福田 幸朔・星野 昭^{**}

(1992年2月25日受理)

高温ガス炉の燃料として使用される被覆粒子燃料コンパクトに含まれるウラン量を同一製造バッチの燃料コンパクトについて3研究室で定量し、各研究室の結果について統計的に処理して有意差の検定を行った。また、ウランの定量法として破壊検査法及び非破壊検査法を適用して、両者の比較及び測定精度の検討を行った。破壊検査法としては空気中で850°Cで酸化してU₃O₈とする酸化重量法を、非破壊検査法としては燃料コンパクトに含まれる²³⁵Uから放出されるγ線の強度を測定するγ線法を適用した。

測定研究室及び測定方法の違いによる測定結果に有意な差は認められなかった。酸化重量法及びγ線法で求めた燃料コンパクトあたりのウラン量の違いは1%以下であり、非破壊検査法であるγ線法で燃料コンパクトのウラン量を精度良く測定できることがわかった。また、燃料製造仕様で規定した燃料コンパクト中のウラン量と、測定した44個の平均値との比は0.99であり、目標値に近い燃料が製造できることがわかった。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

+ 化学部

* 原子燃料工業（株）

** (財)環境科学技術研究所

An Examination on the Determination Precision of
Uranium Content in the HTGR Fuel Compacts

Fumiaki KOBAYASHI, Mitsuo ITO⁺, Shuichi SUZUKI^{*}
Kousaku FUKUDA and Akira HOSHINO^{**}

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 25, 1992)

Uranium content in the HTGR fuel compacts was measured by the oxidization method at three laboratories and difference of the results were examined. Also, two methods were applied for investigation of precision on the uranium determination. One is the oxidization method as a destructive inspection, and the other is the γ -ray method as a nondestructive inspection.

It was found that the difference in results obtained at the three laboratories were less than 1%. The difference in the results for the oxidization and the γ -ray methods was less than 0.6%.

Finally, the ratio of the specification of the uranium content in the manufactured fuel compacts to the measured content were found to be 0.99 for 44 fuel compacts tested.

Keywords: HTGR, Fuel, Compact, Uranium, Precision, γ -ray, Inspection,
Oxidization, Coated Fuel Particle

+ Department of Chemistry

* Nuclear Fuel Industries, Ltd.

** Institute for Environment Sciences Technology

目 次

1.はじめに	1
2.実験方法	1
2.1 試料	1
2.2 ウランの定量	2
3.実験結果及び考察	3
3.1 3研究室の結果	3
3.2 燃料コンパクトのウラン定量精度の検討	3
3.3 酸化重量法と γ 線法の比較	5
3.4 製造目標値との比較	5
4.結論	6
謝辞	6
文献	7
付録 研究室間の実験結果の差の検定 (Bartlett の方法)	18

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Methods	1
2.1 Specimens	1
2.2 Determination of Uranium Content	2
3. Results and Discussion	3
3.1 Results at Three Laboratories	3
3.2 Examination on Precision of Uranium Determination	3
3.3 Comparison of Oxidization and γ -ray Method	5
3.4 Comparison with Production Specification	5
4. Conclusion	6
Acknowledgments	6
References	7
Appendix	18

1. はじめに

日本原子力研究所（原研）が開発を進めている高温工学試験研究炉（H T T R）は、高温ガス炉であり、燃料として被覆粒子燃料が用いられる⁽¹⁾。この燃料中に含まれるウラン量を正確に知ることは燃料の品質管理、核燃料物質の管理及び原子炉の運転管理の上で重要なことである。

燃料コンパクトのウランを定量する方法としては燃料コンパクトを機械的または化学的に破壊して被覆燃料粒子の被覆層を除去した後、硝酸でウランを溶出させて化学的に定量するか⁽²⁾または炭化ケイ素被覆層を持たない被覆燃料粒子を含む燃料コンパクトをそのまま酸化する酸化重量法等がある。これに対して、X線を燃料コンパクトに照射して透過の程度により定量する方法⁽³⁾、ウランからのγ線を利用する方法^{(4) (5)}、中性子を照射してウランとの核反応で生成する中性子を測定する方法等⁽⁶⁾の非破壊検査法がある。

本研究では、研究室間のデータの有意差を検討するために同じ測定法を適用して同一製造バッチの燃料コンパクトのウラン定量を行い、結果の比較検討を行った。さらに非破壊法のウラン定量法として一般的なγ線法の精度を調べた。本方法については倉田らの詳しい報告⁽⁴⁾がある。ただし、彼らの報告では測定手順中の標準燃料コンパクトのウラン量を化学分析で求める際の誤差が不明なので、γ線法のみの誤差は、不明である。本報告では、γ線法の誤差を求めるために燃料コンパクト全てについて精度の高い酸化重量法でウランを定量し、γ線法で求めた値と比較・検討を行った。得られた結果をもとに、燃料コンパクトを製造する際に目標としたウラン量と製造した燃料コンパクトの値との比較を行った。

2. 実験方法

2. 1 試料

実験に使用した試料は、原研の高温ガス炉臨界実験装置（V H T R C）の燃料仕様⁽⁷⁾のうち²³⁵U同位体比を6%から約0.2%の劣化ウランとした燃料コンパクトである。この燃料コンパクトは、多目的高温ガス炉第1次概念設計^{(8) (9)}仕様に基づいているが、被覆層については熱分解炭素と炭化ケイ素からなる四重被覆層の代わりに熱分解炭素のみを二重に被覆した燃料粒子（B I S O）を用いている。Fig. 1にB I S O粒子の断面を示す。燃料コンパクトの組成及び寸法をFig. 2に示す。燃料コンパクト内の被覆燃料粒子は、オーバーコート法⁽¹⁰⁾で製造しているので均一に分散している。燃料コンパクト1個あたりのウラン量の製造仕様の規定値は20.97gである。本実験で使用した燃料コンパクトは、原子燃料工業（株）（以下、原燃工）で製造したもので、1製造バッチが69個の燃料コンパクトからなる。この製造バッチからランダムに15個ずつ計45個抜き取って燃料コンパクトのウラン量の比較測定のために日本原子力研究所分析センター、燃料照射研究室及び製造元である原燃工の3研究室に配布した。配布に先

1. はじめに

日本原子力研究所（原研）が開発を進めている高温工学試験研究炉（H T T R）は、高温ガス炉であり、燃料として被覆粒子燃料が用いられる⁽¹⁾。この燃料中に含まれるウラン量を正確に知ることは燃料の品質管理、核燃料物質の管理及び原子炉の運転管理の上で重要なことである。

燃料コンパクトのウランを定量する方法としては燃料コンパクトを機械的または化学的に破壊して被覆燃料粒子の被覆層を除去した後、硝酸でウランを溶出させて化学的に定量するか⁽²⁾または炭化ケイ素被覆層を持たない被覆燃料粒子を含む燃料コンパクトをそのまま酸化する酸化重量法等がある。これに対して、X線を燃料コンパクトに照射して透過の程度により定量する方法⁽³⁾、ウランからのγ線を利用する方法^{(4) (5)}、中性子を照射してウランとの核反応で生成する中性子を測定する方法等⁽⁶⁾の非破壊検査法がある。

本研究では、研究室間のデータの有意差を検討するために同じ測定法を適用して同一製造バッチの燃料コンパクトのウラン定量を行い、結果の比較検討を行った。さらに非破壊法のウラン定量法として一般的なγ線法の精度を調べた。本方法については倉田らの詳しい報告⁽⁴⁾がある。ただし、彼らの報告では測定手順中の標準燃料コンパクトのウラン量を化学分析で求める際の誤差が不明なので、γ線法のみの誤差は、不明である。本報告では、γ線法の誤差を求めるために燃料コンパクト全てについて精度の高い酸化重量法でウランを定量し、γ線法で求めた値と比較・検討を行った。得られた結果をもとに、燃料コンパクトを製造する際に目標としたウラン量と製造した燃料コンパクトの値との比較を行った。

2. 実験方法

2. 1 試料

実験に使用した試料は、原研の高温ガス炉臨界実験装置（V H T R C）の燃料仕様⁽⁷⁾のうち²³⁵U同位体比を6%から約0.2%の劣化ウランとした燃料コンパクトである。この燃料コンパクトは、多目的高温ガス炉第1次概念設計^{(8) (9)}仕様に基づいているが、被覆層については熱分解炭素と炭化ケイ素からなる四重被覆層の代わりに熱分解炭素のみを二重に被覆した燃料粒子（B I S O）を用いている。Fig. 1にB I S O粒子の断面を示す。燃料コンパクトの組成及び寸法をFig. 2に示す。燃料コンパクト内の被覆燃料粒子は、オーバーコート法⁽¹⁰⁾で製造しているので均一に分散している。燃料コンパクト1個あたりのウラン量の製造仕様の規定値は20.97gである。本実験で使用した燃料コンパクトは、原子燃料工業（株）（以下、原燃工）で製造したもので、1製造バッチが69個の燃料コンパクトからなる。この製造バッチからランダムに15個ずつ計45個抜き取って燃料コンパクトのウラン量の比較測定のために日本原子力研究所分析センター、燃料照射研究室及び製造元である原燃工の3研究室に配布した。配布に先

立ち原燃工において全ての燃料コンパクトの含有ウラン量を γ 線法により測定した。

2. 2 ウランの定量

(1) 酸化重量法⁽¹¹⁾

研究室間の比較測定実験に酸化重量法を採用した。本方法は破壊検査法であり、ウランの定量法としては最も一般的な方法である。また試料の酸化温度において不揮発性となる不純物が混入しなければ測定精度も高い。本研究では、燃料コンパクトを白金ルツボまたは磁製ルツボに入れ、雰囲気を空気としたマッフル炉中で850°Cで酸化を行った。各研究室で異なる装置を用いたので酸化時間は、65時間から120時間まで異なっているが、いずれの研究室においても予備実験を行い、ウラン酸化物(U_3O_8)の重量が恒量になるまでの時間を確認して酸化時間を定めた。Fig. 3に燃料照射研究室で予備試験として実施した酸化実験の例を示す。試料としては、製造したままの未処理の燃料コンパクト及び酸化時間を短縮するように周方向に4分割して空気に触れる表面積を約30%増した燃料コンパクトの2種類を使用した。

Fig. 3からわかるように2種類の試料間で表面積の効果の差は認められなかった。この結果に基づき以後は全ての酸化実験に未処理の燃料コンパクトを使用した。この例では約70時間で完全に酸化しているが、余裕をみて90時間以上とした。他の2研究室でも同様な予備試験を行い、酸化条件を定めた。

(2) γ 線法

本方法は、製品の全数検査が可能である非破壊検査法である。測定対象の燃料コンパクトに含まれる ^{235}U から放出される186keVの γ 線強度を測定し、ウラン量既知の燃料コンパクトからの γ 線強度と比較することにより燃料コンパクト中のウラン量を求めるものである。Fig. 4に γ 線法によるウラン量測定の手順を示す。この測定法を適用する際には標準コンパクト中のウラン量(Fig. 4では化学分析用標準試料で W_0 g・Uと表示)を正確に求めることが重要である。本試験に用いた燃料コンパクトは、原燃工で製造した後、各研究室に配布する前に本方法によりウランの定量を行った。

本実験で使用した燃料コンパクトは、炭素と UO_2 のみで構成されているので化学分析用標準試料のウラン量は前記の酸化重量法で求めた。 γ 線検出器としては、測定試料を収納できる井戸型の5インチのNaI(Tl)を使用し、波高分析器としては、CANBERRA-35型を使用した。燃料コンパクトあたりの計数値としては、測定誤差を考慮してバックグラウンドを差し引いた値が 10^5 カウント以上になるようにした。

3. 実験結果及び考察

3.1 3研究室の結果

同一製造バッチの燃料コンパクトのウランを原研分析センター及び原研燃料照射研究室ならびに原子燃料工業（株）で酸化重量法により定量した結果及び γ 線法の結果をTable 2, 3及びFig. 4に示す。この酸化重量法による結果から研究室間で有意差の検定を行う。この方法には母集団の分散と母集団から抜き取った各試料の分散の比較から検定を行うBartlettの方法⁽¹²⁾ ⁽¹³⁾を採用した。この方法は、同一製造バッチからランダムに抜き取った試料の分散は互いに近い値になり、かつ母集団の分散に近い値となると仮定して検定を行うものである。

付録に検定の計算手順を示す。この計算から各研究室の結果は、危険率0.05で有意差がないことがわかる。共同研究で採用した酸化重量法は、前記で検討したようにすでに確立した検査法であるのでこの結論の意味していることは、共同実験で各研究室に配布した試料の母集団からの抜き取りがランダムに行われたことを確認したことに相当する。

3.2 燃料コンパクトのウラン定量精度の検討

燃料コンパクトのウラン定量法は燃料コンパクトを破壊した後、化学分析等により測定する破壊検査法（本報告の共同研究で採用した酸化重量法を含む）及び γ 線法等の非破壊検査がある。核燃料物質の管理上または原子炉運転管理上からは非破壊検査で全数検査の可能な γ 線法の方が望ましい。本実験に用いた燃料コンパクトは、BISO粒子を黒鉛マトリックスに分散したものであり構成元素はウラン、炭素及び酸素である。

(1) 酸化重量法

酸化重量法によりウランを定量する際の精度について考える。

(i) 化学量論性の影響

酸化重量法による誤差の原因としてウランの酸化物が化学量論的に正しい値を示さないこと、すなわち U_3O_8 からのズレが問題となる。本研究で採用した実験条件の空気雰囲気において酸化温度を850°Cとした場合のO/Uは、Rodriguet等によると2.6632となる⁽¹⁴⁾。この値は、化学量論的な値である U_3O_8 と比較するとウラン量を過小評価する側に働き、 U_3O_8 として評価すると0.02%小さくなる。

(ii) 不純物の影響

別の誤差の原因として酸化温度850°Cにおいて不揮発性となる不純物がある。燃料コンパクト中の被覆燃料粒子の燃料核に含まれる不純物及びマトリックスの不純物測定結果をTable 1に示す。Table 1から燃料核には100 ppm程度の不揮発性不純物が含まれていることがわかる。本試料以外の燃料コンパクトでも同程度の値が得られている⁽¹⁵⁾。ウラン分析の際にはこの不純

物は酸化物として重量が増加するのでさらに数十 ppm 大きくなる。被覆燃料粒子の被覆層に含まれる不純物は、その製造プロセス、すなわち気相からの熱分解による蒸着から考えられるように不純物は極めて少ないので⁽¹⁵⁾、ウラン定量の誤差としては無視できる。最後に燃料コンパクト黒鉛マトリックスに含まれる不純物について考える。不純物分析のために原材料及び製造条件を同じにした模擬燃料コンパクトを製造した。この模擬燃料コンパクトは、本試験に用いた燃料コンパクトのマトリックスそのものである。不純物の測定結果をTable 1に示す。不揮発性の不純物は黒鉛マトリックスを空気雰囲気で850°Cで酸化した場合の灰分として求めたもので、240 ppm であることがわかる。燃料コンパクトに含まれる不純物は、ウラン量を過大評価する側に働き、大きめに評価すると約0.03%となる。

以上の結論として酸化重量法によるウラン定量の誤差は、主としてウラン酸化物の化学量論からのズレの効果に不純物の効果を加えたもので本研究の場合は互いに相殺してウラン重量で0.01%と非常に小さい値になる。従って本研究の条件ではウラン酸化物の化学量論からのズレや不純物は、ウラン定量の誤差の因子として無視できることがわかる。酸化重量法をウラン定量に適用する際は、上記の諸因子を考慮する必要があるが、通常は原子炉で使用する燃料を対象とするので不純物は少なく、また、酸化温度も800°C前後なので本実験の結果と同じく誤差の因子として考慮しなくてもよい。

(2) γ 線法

一方、 γ 線法の定量精度に関する因子としては、①幾何学的な効果すなわち γ 線検出器内での燃料コンパクトの位置の変動、② γ 線強度の測定値の変動、③燃料コンパクト内でのウランの分布、④基準となる標準燃料コンパクトのウラン量の誤差があげられる。以上の因子のうち、①幾何学的効果については燃料コンパクトが挿入できる井戸型の γ 線検出器を用いていること、及び燃料コンパクトの寸法が精度よく仕上がっていることから無視できる。また、③ウランの分布は、オーバーコート法で製造しているので均一である。本実験で用いた燃料コンパクトは、二酸化ウランと炭素しか含んでいないので、④の標準燃料コンパクトのウラン量は酸化重量法で精度良く求めることができる。従って、 γ 線法の定量精度は、主に上記②測定試料及び標準燃料コンパクトの γ 線強度の測定値、すなわち両者の計数率の変動によって定まると考えて良い。通常、測定値の標準偏差は、近似的に計数率の平方根で表される⁽¹⁴⁾ので、標準偏差を考慮して適当な計数値になるように測定を行えば良い。

(3) 四重被覆燃料粒子を含む燃料コンパクトへの適用

次に本実験で実施した二重被覆燃料粒子を含む燃料コンパクトについての結果を、HTTR燃料や諸外国で開発を進めている高温ガス炉用燃料で用いられている炭化ケイ素層を含む四重被覆粒子燃料に適用できるか否かを検討する。このことは、本研究で使用した被覆燃料粒子の炭素被覆層の一部を炭化ケイ素に置き換えた燃料コンパクトについて検討すること、すなわち、置き換えた被覆層の主成分であるケイ素または炭素と γ -線との相互作用を考えることに相当す

る。炭素やケイ素による γ 線の遮へいは測定する γ 線のエネルギーではコンプトン散乱が主となる⁽¹⁶⁾。この効果は、燃料コンパクトに含まれている元素の核外電子の数に比例するとみなしてよい⁽¹⁶⁾。被覆燃料粒子で炭素被覆層とケイ素被覆層を置き換えた場合の核外電子の比を求めるとき0.99985となり、さらに燃料コンパクトについては燃料黒鉛マトリックスの炭素も含まれるので上記の値は1に近くなる。従って炭化ケイ素層を含まない燃料コンパクトと、炭化ケイ素層の代わり炭素層に置き換えた燃料コンパクトとの γ 線の遮蔽効果の差は非常に小さい。以上の考察から二重被覆燃料粒子の実験及び検討結果は、一般の高温ガス炉用燃料粒子である四重被覆燃料粒子を含む燃料コンパクトの測定に適用できることがわかる。

3.3 酸化重量法と γ 線法の比較

各研究室で測定した燃料コンパクトについてのウラン量を酸化重量法及び γ 線法により求めた結果をまとめてTable 5及びFig. 6に示す。ここで分析センターで定量した値のうち1個の結果は異常値として結果の取扱いから除いた(Fig. 6で矢印で示したデータ)。その根拠は、アメリカ機械学会性能試験規約(A S M E)では不確かさの中の偶然誤差に基づく成分の上限の推定値として95%の信頼度に対する上限値を用いており⁽¹⁷⁾、同じ考え方がこの場合に適用できるからである。本実験で得られた各データのサンプリング誤差の上限の推定値を信頼度95%で評価を行った結果、このデータは上限の推定値を超えていた。従って、両者の測定法による結果の相関関係や γ 線法の測定精度は、残りの44個のデータから求めた。

Table 6及びFig. 6に各研究室及び全体をまとめた結果を示す。各研究室の酸化重量法及び γ 線法により求めたウラン量の平均値は、 γ 線法の方が酸化重量法の平均値より0.6%大きい。測定値のバラツキを示す変動係数は、0.006から0.010の範囲にある。また両者の相関を一次回帰分析により調べた。結果をTable 7に示す。3研究室の結果をまとめた場合の相関係数は、0.91と高い相関が認められる。以上の結果から、いずれの方法で定量しても同じような結果が得られることがわかる。また、 γ 線法による測定値の標準偏差は小さく、含有ウラン量に対する比は0.008であり、ウラン量の検査法として十分な精度を有していることが確認できた。

3.4 製造目標値との比較

本研究に用いた燃料コンパクトは、ウラン量20.97 gを目標として製造したものである。酸化重量法で測定した44個のウラン量の平均値はTable 6の平均値からわかるように20.70 gであり、目標値に対する比は0.99と得られた。すなわち、燃料コンパクトの製造仕様に対して十分高い精度で製造されていることが確認できた。

4. 結論

(1) 被覆粒子燃料コンパクト中のウランの定量を、同一製造バッチの燃料コンパクトについて3研究室で酸化重量法で測定した結果について研究室間の差の検定を行った結果、差はないことが確認できた。(2) ウランの定量法として酸化重量法と γ 線法の測定精度について検討を行った結果、酸化重量法の測定精度は高く、また、 γ 線測定法の測定精度は主として γ 線の計数率によって定まることがわかった。 γ 線法及び酸化重量法で求めたウラン量の平均値を比較すると γ 線法の方がわずかに大きかったが有意な差では無かった。以上の結果から、いずれの方法でも変動係数0.01以下で定量できることがわかった。(3) γ 線法による測定値の標準偏差は小さくウラン量に対する比は0.008であった。この変動の原因は主として γ 線計測値の変動に伴うものである。また、 γ -線法においては、燃料コンパクトの γ 線遮へいに関する検討から本実験に用いた二重被覆燃料粒子と、HTTR燃料として使用される四重被覆燃料粒子とは差が小さく、いずれの燃料コンパクトを γ 線法の標準コンパクトとしても差し支えないことがわかった。(4) 製造仕様の基準値と、酸化重量法で測定したウラン量の平均値との比は0.99であり、目的とするウラン量の燃料コンパクトが精度良くで製造できることが確認できた。

謝意

本報告をまとめるにあたって有益な助言を頂きました燃料・材料工学部燃料照射研究室林君夫氏に感謝します。また、本報告書の作成にあたって激励下さった燃料・材料工学部近藤部長ならびに半田次長に感謝します。

4. 結論

(1) 被覆粒子燃料コンパクト中のウランの定量を、同一製造バッチの燃料コンパクトについて3研究室で酸化重量法で測定した結果について研究室間の差の検定を行った結果、差はないことが確認できた。(2) ウランの定量法として酸化重量法と γ 線法の測定精度について検討を行った結果、酸化重量法の測定精度は高く、また、 γ 線測定法の測定精度は主として γ 線の計数率によって定まることがわかった。 γ 線法及び酸化重量法で求めたウラン量の平均値を比較すると γ 線法の方がわずかに大きかったが有意な差では無かった。以上の結果から、いずれの方法でも変動係数0.01以下で定量できることがわかった。(3) γ 線法による測定値の標準偏差は小さくウラン量に対する比は0.008であった。この変動の原因は主として γ 線計測値の変動に伴うものである。また、 γ -線法においては、燃料コンパクトの γ 線遮へいに関する検討から本実験に用いた二重被覆燃料粒子と、HTTR燃料として使用される四重被覆燃料粒子とは差が小さく、いずれの燃料コンパクトを γ 線法の標準コンパクトとしても差し支えないことがわかった。(4) 製造仕様の基準値と、酸化重量法で測定したウラン量の平均値との比は0.99であり、目的とするウラン量の燃料コンパクトが精度良くで製造できることが確認できた。

謝　　舌辛

本報告をまとめるにあたって有益な助言を頂きました燃料・材料工学部燃料照射研究室林君夫氏に感謝します。また、本報告書の作成にあたって激励下さった燃料・材料工学部近藤部長ならびに半田次長に感謝します。

文 南犬

- (1) 斎藤 伸三、他、“高温工学試験研究炉の設計と研究開発”、日本原子力学会誌、Vol.32, No. 9, p.847 (1990).
- (2) 伊藤 光雄、磯 修一、星野 昭、“フッ化カリウム融解-酸化重量法による燃料コンパクト中のウランの定量”、JAERI-M 92-040 (1992)
- (3) 岩本 多実、後藤 雅和、“核燃料コンパクト中の燃料粒子分布の測定法”、日本特許昭53-115494
- (4) 倉田 有司、他、“燃料コンパクトのウラン量検査法”、JAERI-M 7406 (1977).
- (5) H. Ottmar, P. Matussek, “In-process control of ^{235}U enrichment in an LWR fuel fabrication plant”、IAEA-SR-7/29 (1980).
- (6) Menlove, H.O., et al., “Implementation of the active neutron coincidence collar for the verification of unirradiated PWR and BWR fuel assemblies”, IAEA-SM--260/104 (1982).
- (7) 安田 秀志、秋濃 藤義、他、“V H T R C (高温ガス炉臨界実験装置) の建設”、JAERI 1305 (1987).
- (8) 青地 哲男、他、“多目的高温ガス実験炉の第1次概念設計”、JAERI-M 6845 (1977).
- (9) 青地 哲男、他、“多目的高温ガス実験炉の炉心参考設計Mark-III”、JAERI-M 6895 (1987).
- (10) 岩本 多実、飛田 勉、他、“ラバープレス法による燃料コンパクトの調整”、JAERI-M 5992 (1975).
- (11) 日本原子力研究所 核燃料・炉材料等分析委員会、“二酸化ウランの分析”、JAERI 4053, (1971).
- (12) 佐和 隆光、“回帰分析”、朝倉書店 (1979).
- (13) R. S. Burington and AD. C. May , “HANDBOOK OF PROBABILITY AND STATISTICS WITH TABLES”、McGraw-Hill Book Company Inc., New York(1970).
- (14) M. S. Rodrignet de Sastre et al “Sur La Stoechiometrie de L'oxide $\text{U}_3\text{O}_{8+\delta}$: Influence de La Température et de la Pression”、CEA-R3218 (1967).
- (15) 福田 幸朔、他、“高温ガス炉用燃料に関する試験研究”、JAERI-M 89-007 (1989).
- (16) 日本放射性同位元素協会、“アイソトープ便覧”，丸善、(1972).
- (17) The American Society of Mechanical Engineers、“ASME Performance Test Codes Supplement on Instruments and Apparatus, Part 1, Measurement Uncertainty”、(1985).

Table 1 Impurities in fuel compact sample specimen

不純物	燃料核	黒鉛マトリックス
A l	<1 4	<1 0
A g	<0.1	<1 0
B	0.3	0.1 7
C a	...	<1 0
C d	<0.1	<0.2
C r	<1 4	...
C u	<1.4	<1 0
D y	<0.5	<0.5
E u	<0.1	<0.1
F e	<2 2	<1 0
G d	<0.1	<0.1
M g	<1 0	<1 0
M n	...	<1 0
M o	...	<1 0
N i	<4	<1 0
S i	4 0	3 5
S m	<0.5	<0.5
T i	...	<1 0
A s h	...	2 4 0
水分		3 1 0

Table 2 Results of uranium determination at the Analytical Chemistry Laboratory

C 番号	C 重量(g)	酸化重量ウラン量(g)	γ 線ウラン量 (g)	酸化重量/ γ 線	備 考
3	65.339	20.697	20.861	0.9921	C: コンパクト コンパクト酸化条件: 空気中 850 ℃ 90 時間燃焼
8	65.353	20.494	20.613	0.9942	
13	64.904	20.701	20.820	0.9943	
17	63.416	20.212	20.505	0.9857	
19	65.374	20.835	20.972	0.9935	
26	65.383	20.779	20.784	0.9998	
31	65.278	20.545	20.651	0.9949	
39	65.368	20.725	20.859	0.9936	
44	65.379	20.648	20.815	0.9920	
49	65.385	20.809	20.873	0.9969	
50	65.331	20.639	20.746	0.9948	
51	65.310	20.565	20.643	0.9962	
55	65.278	20.665	20.860	0.9907	
57	65.374	20.798	20.935	0.9935	
59	64.896	20.702	20.881	0.9914	
平均 値	65.1578	20.6542	20.7879	0.9936	
標準偏差	0.4904	0.1519	0.1267	0.0031	
変動係数	0.0075	0.0074	0.0061	0.0031	

Table 3 Results of uranium determination at the NFI Laboratory

C 番号	酸化重量ウラン	γ 線ウラン量(g)	酸化重量/ γ 線	備 考
6	20.71	20.92	0.9900	C: コンパクト コンパクト酸化 条件: 空気中 850 °Cで 65 時間燃焼
7	20.59	20.71	0.9942	
11	20.88	21.09	0.9900	
21	20.78	20.92	0.9933	
28	20.88	20.92	0.9981	
29	20.88	20.97	0.9957	
33	20.48	20.64	0.9922	
36	20.53	20.72	0.9908	
38	20.65	20.85	0.9904	
40	20.82	20.93	0.9947	
43	20.69	20.84	0.9928	
46	20.55	20.67	0.9942	
56	20.85	20.89	0.9981	
63	20.83	20.94	0.9947	
64	20.93	21.33	0.9812	
平均 値	20.7367	20.8893	0.9927	
標準偏差	0.1425	0.1679	0.0040	
変動係数	0.0069	0.0080	0.0040	

Table 4 Results of uranium determination at the Fuel Irradiation and Analysis Laboratory

C 番 号	C 重 量(g)	酸化重量ウラン量(g)	γ 線ウラン量(g)	酸化重量／ γ 線	備 考
4	65.3141	20.5909	20.702	0.9946	112 時間酸化
12	65.3687	20.7726	20.944	0.9918	同 上
15	65.3753	20.7397	20.957	0.9896	同 上
18	65.3881	20.7183	20.764	0.9978	113 時間酸化
22	65.3801	20.9300	21.061	0.9938	同 上
25	65.2822	20.5988	20.674	0.9964	同 上
32	65.3054	20.8286	20.893	0.9969	85 時間酸化
42	65.2619	20.3228	20.465	0.9931	同 上
45	65.3383	20.8110	20.885	0.9964	同 上
47	65.3147	20.5143	20.539	0.9988	106 時間酸化
52	65.3701	20.7937	20.802	0.9996	同 上
53	65.2282	20.2940	20.308	0.9993	同 上
60	65.3611	20.7622	20.887	0.9940	同 上
61	64.8959	20.6584	20.709	0.9976	同 上
66	65.3888	20.7898	21.065	0.9869	同 上
平均 値	65.3049	20.6749	20.777	0.9951	
標準偏差	0.1191	0.1762	0.2092	0.0035	
変動係数	0.0018	0.0085	0.0101	0.0035	

Table 5 Results of uranium determination at three Laboratories
(except outlier)

C 番 号	酸化重量ウラン	γ 線ウラン量(g)	酸化重量／ γ 線
3	20.697	20.861	0.9921
4	20.591	20.702	0.9946
6	20.710	20.920	0.9900
7	20.590	20.710	0.9942
8	20.494	20.613	0.9942
11	20.880	21.090	0.9900
12	20.773	20.944	0.9918
13	20.701	20.820	0.9943
15	20.740	20.957	0.9896
18	20.718	20.764	0.9978
19	20.835	20.972	0.9935
21	20.780	20.920	0.9933
22	20.930	21.061	0.9938
25	20.599	20.674	0.9964
26	20.779	20.784	0.9998
28	20.880	20.920	0.9981
29	20.880	20.970	0.9957
31	20.545	20.651	0.9949
32	20.829	20.893	0.9969
33	20.480	20.640	0.9922
36	20.530	20.720	0.9908
38	20.650	20.850	0.9904
39	20.725	20.859	0.9936
40	20.820	20.930	0.9947
42	20.323	20.465	0.9931
43	20.690	20.840	0.9928
44	20.648	20.815	0.9920
45	20.810	20.885	0.9964
46	20.550	20.670	0.9942
47	20.514	20.539	0.9988
49	20.809	20.873	0.9969
50	20.639	20.746	0.9948
51	20.565	20.643	0.9962
52	20.794	20.802	0.9996
53	20.294	20.308	0.9993
55	20.665	20.860	0.9907
56	20.850	20.890	0.9981
57	20.798	20.935	0.9935
59	20.702	20.881	0.9914
60	20.762	20.887	0.9940
61	20.658	20.709	0.9976
63	20.880	20.940	0.9947
64	20.930	21.330	0.9812
66	20.790	21.065	0.9869
平均 値	20.6994	20.8252	0.9940
標準偏差	0.1461	0.1742	0.0035
変動係数	0.0071	0.0084	0.0035

Table 6 Results of mean standard deviation and coefficient of variation

項目		分析センター	原子燃料工業	燃料照射研究室	全 体
測定個数(個)		14	15	15	44
酸化重量法	平均値(Ug)	20.686	20.737	20.675	20.699
	標準偏差	0.099	0.148	0.175	0.146
	変動係数	0.005	0.007	0.009	0.007
γ 線法	平均値(Ug)	20.808	20.889	20.777	20.825
	標準偏差	0.105	0.168	0.209	0.174
	変動係数	0.006	0.008	0.010	0.008
γ 線法	平均値(Ug)	1.006	1.007	1.005	1.006
	標準偏差	1.067	1.178	1.196	1.192
	変動係数	1.148	1.159	1.188	1.183

Table 7 Results of regression analysis at three Laboratories

測定箇所	相関係数	母回帰係数	定数
分析センター	0.891	0.951	1.161
原子燃料工業	0.865	1.019	-0.244
燃料照射研究室	0.941	1.117	-2.316
全 体	0.908	1.088	-1.589

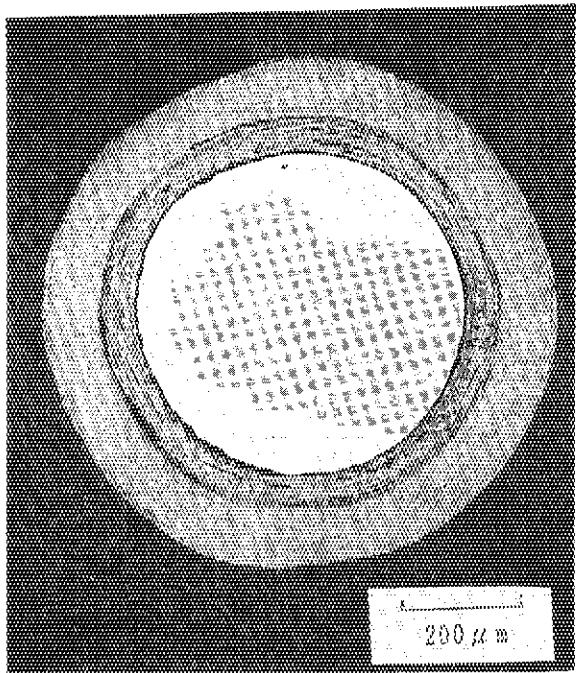


Fig. 1 Cross section of BISO
coated particle

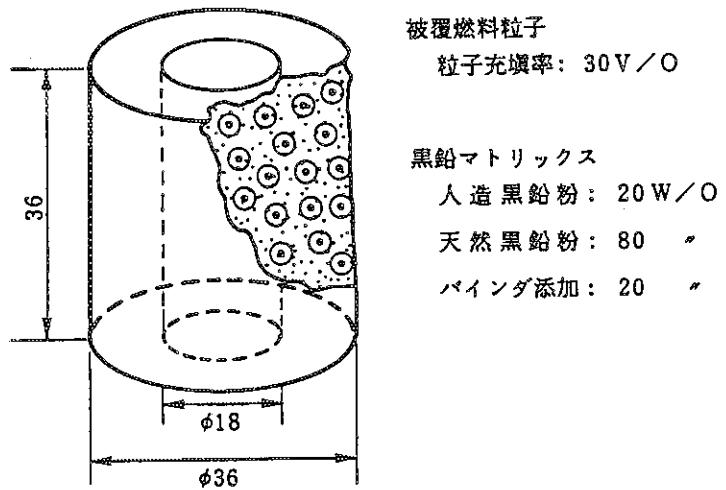


Fig. 2 Composition and demension of
VHTRC fuel compacts

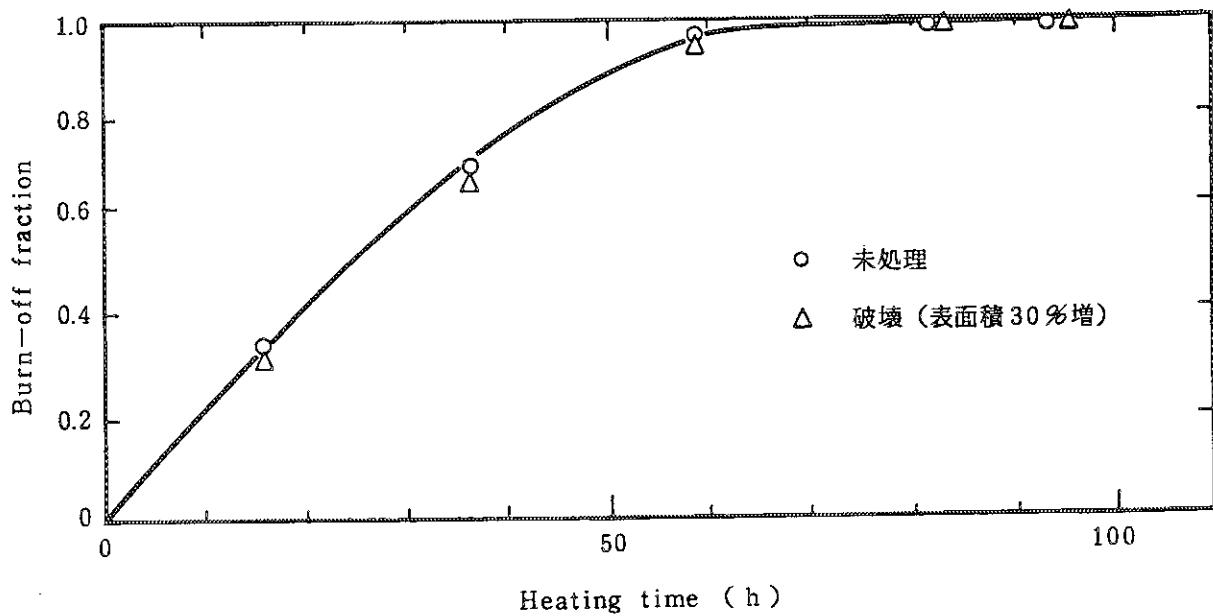
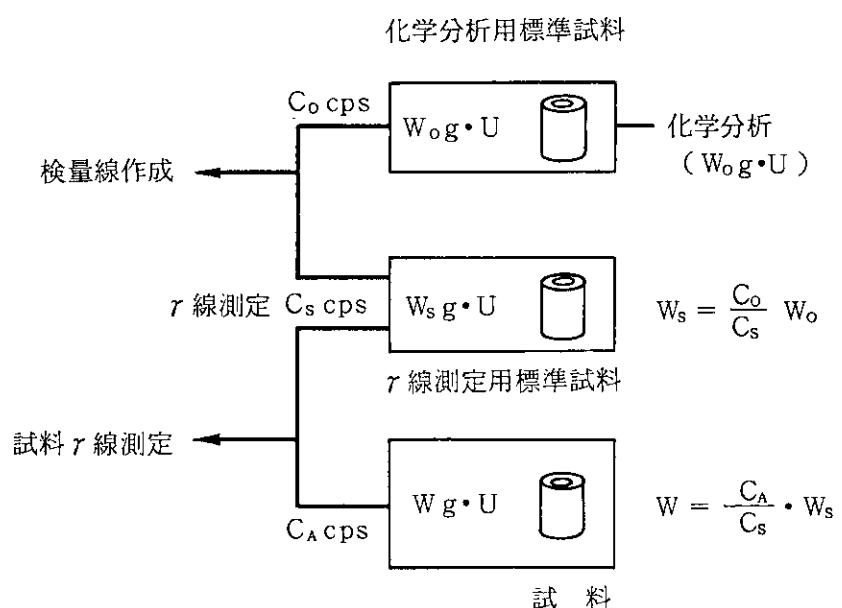


Fig. 3 Preliminary results of burning of VHTRC fuel compacts

Fig. 4 Uranium determination by the γ -ray method

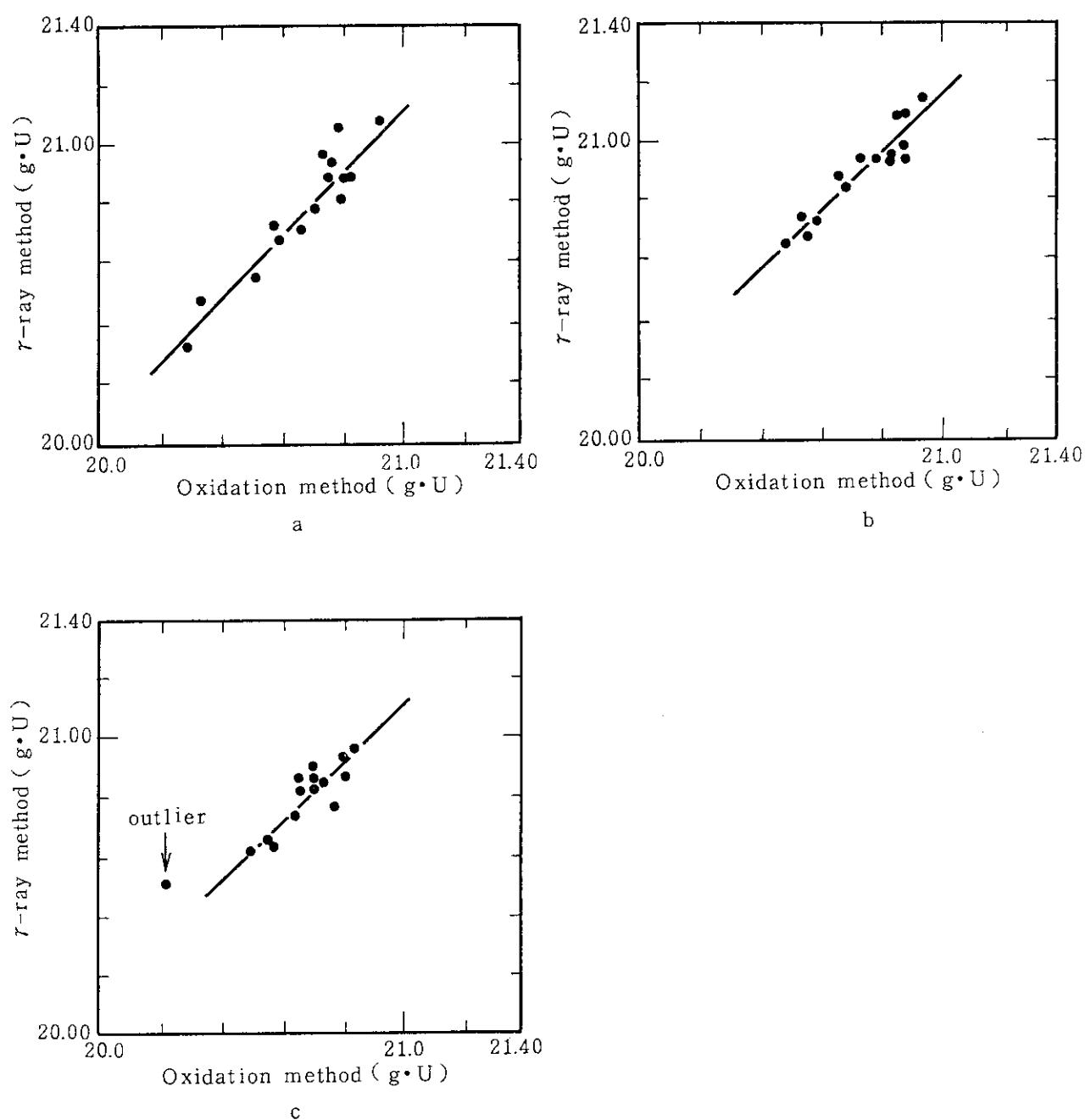


Fig. 5 Results of uranium determination at three Laboratories
 a: Fuel irradiation and analysis lab.
 b: NFI lab.
 c: Analytical chemistry lab.

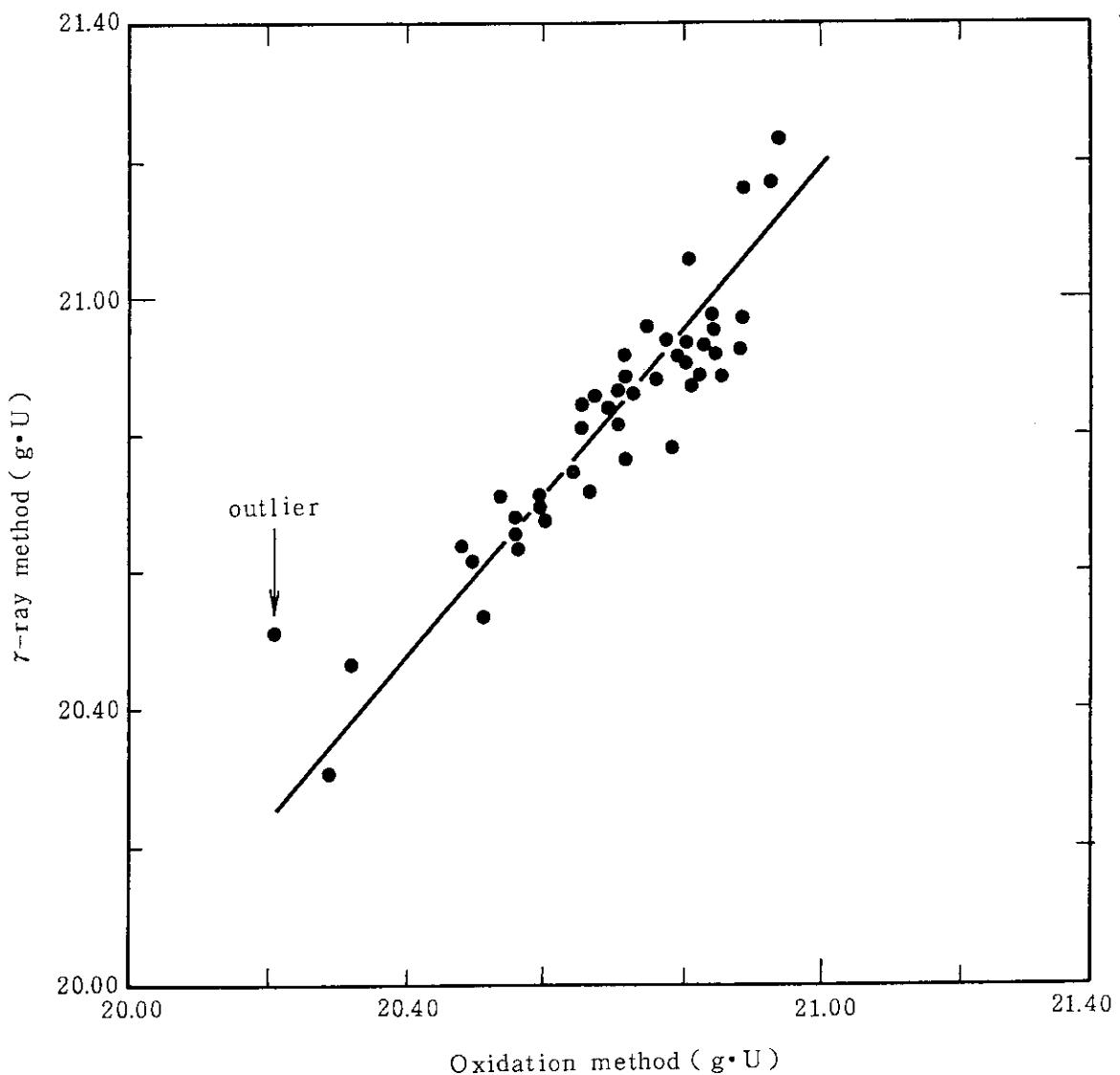


Fig. 6 Comparision of the uranium contents in fuel compacts determined by the oxidation method and the r -ray method
(Data from three laboratories have been collected)

付録

研究室間の実験結果の差の検定 (Bartlettの方法)

3研究室に配布した燃料コンパクトのウラン含有量の分布をそれぞれ $N_1(\mu_1, \sigma_1^2)$ 、 $N_2(\mu_2, \sigma_2^2)$ 及び $N_3(\mu_3, \sigma_3^2)$ とし、全体の集団の分布を $N(\mu, \sigma^2)$ とおく。また、自由度をそれぞれ ϕ_1, ϕ_2, ϕ_3 及び ϕ とする。不偏分散を V_1, V_2, V_3 及び V とする。

ここで各集団の不偏分散について $\sigma_1^2 = \sigma_2^2 = \sigma_3^2 = \sigma^2$ であることを仮定して検定を行う。

3研究室の試料分散から平均的な分散 V は次式で表される。

$$V = \frac{\sum \phi_i V_i}{\sum \phi_i} \quad \text{--- (1)}$$

また、M. S. Bartlettの提案した検定統計量 B は、

$$B = \frac{1}{c} (\phi \ln V - \sum \phi_i \ln V_i) \quad \text{--- (2)}$$

この統計量は、近似的に自由度 $(K-1)$ の χ^2 分布になる⁽¹²⁾⁽¹³⁾。

ここで、上式の ϕ および c は次式で表される。

$$\phi = \sum \phi_i \quad \text{--- (3)}$$

$$c = 1 + \frac{1}{3(K-1)} \left(\sum \frac{1}{\phi_i} - \frac{1}{\phi} \right) \quad \text{--- (4)}$$

本実験の結果から B を計算する。

K は、検定を行う組数でここでは3。

ϕ は、本報告のTable 6 の各研究室における測定の自由度から41。

③及び④式より c は、1.03256。

①式において分散 V は、同じくTable 6 の各研究室の標準偏差と自由度から0.020551。

②式において B は以上の値を代入して1.72となる。

一方、危険率 α を0.05とし、自由度 $(K-1)$ と上側確率(0.05)から $\chi^2(K-1, \alpha)$ を求める5.99であり、上で仮定して得た値1.72より大きいから各集団の不偏分散についての仮定は成り立つ。従って3研究室の実験結果は危険率0.05で差がないと結論付けられる。