

連載講座



中性子イメージング技術の基礎と応用 (応用編第7回)

中性子イメージングの原子力工学への応用[†]

竹中信幸, 安田 良*, 齊藤泰司**, 呉田昌俊***

神戸大学大学院工学研究科機械工学専攻

657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台町 1-1

*独立行政法人 日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門中性子イメージング分析研究グループ

***独立行政法人 日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門

機構論的熱設計手法開発グループ

319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

**京都大学原子炉実験所

590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2

Key Words : neutron, neutron imaging, neutron radiography, industrial application, nuclear engineering, nuclear fuel, fuel rod, two-phase flow, liquid metal, rod bundle

1. はじめに

2005年に閣議決定された原子力政策大綱の中で、加速器や研究炉等を用いた中性子利用技術を包む先端科学技術「量子ビームテクノロジー」の着実な推進が国の基本方針として策定され、量子ビーム技術の応用が奨励されている。中性子ビームを用いたイメージングは、原子力

分野では比較的古くから応用されてきた技術で、主に照射済原子炉燃料・材料の照射後試験における非破壊検査と原子炉の安全性や新型炉開発のための熱水力研究が行われており、本講座ではそれらの例を紹介する。

2. 核燃料・材料試験

非破壊試験としての原子力分野における中性子イメージングの位置づけ、既存の装置、撮影手法、最近の成果について述べる。

長さ4mにもなる燃料棒等の健全性評価のために照射後試験を行う場合、巨視的かつ全体的な評価・検査を非破壊試験で実施した後、切り出し、加工等の試料調製を経て、電子顕微鏡観察や組成分析などの詳細試験を行う。そのため、照射後試験における非破壊試験は、加工処理等の工程を可能な限り省略し、試料作製の時間短縮、安全性の向上及び作業の効率化を図るためのものである。

中性子に対する元素の質量減衰係数は、X線の場合とは異なり、H, Li, Bのような軽元素に対して大きく、Gd, Sm, Cd, Eu, Dyなど幾つかの元素を除く、U等の重金属で小さい。

[†]Fundamentals and Applications of Neutron Imaging (Applications Part 7).

Application of Neutron Imaging to Nuclear Engineering.

Nobuyuki TAKENAKA, Ryo YASUDA*, Yasushi SAITO** and Masatoshi KURETA***: Thermo-Fluid Dynamics, Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, Kobe University, 1-1, Rokkodai-machi, Nada-ku, Kobe-shi, Hyogo Pref. 657-8501, Japan, *Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki Pref. 319-1195, Japan, **Institute of Nuclear Reactor, Kyoto University, 2 Asashironishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka Pref. 590-0494, Japan, ***Nuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirane, Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki Pref. 319-1195, Japan.

そのため、ジルコニウムや UO_2 ペレット (^{235}U 濃縮度: 3 ~ 4%) で構成されている軽水炉燃料棒に強い透過力を有することから、 UO_2 ペレット内部の画像を X 線に比べて良好な解像度で得ることが可能である。また、中性子は、H に対して感度が良いことから、燃料被覆管の脆化の原因である水素濃度分布評価も行うことが可能である。

現在、国内で核燃料を取り扱うことが可能な中性子イメージング装置は、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 (JRR-3: Japan Research Reactor-3) に設置している熱中性子ラジオグラフィ装置 (TNRF: Thermal Neutron Radiography Facility) のみである。TNRF は、照射済燃料などを扱うことが可能である第 1 撮影室 (TNRF 1) と一般機器の試験に用いられる第 2 撮影室 (TNRF 2) で構成されており、TNRF 1 の撮影システムについて述べる¹⁾。

TNRF 1 は、高放射性物質 (使用制限量: 370 TBq) の使用が可能であり、試料の搬入は、専用の輸送キャスクにより実施され、試料の装脱着、保持、上下動、回転等は、撮影室外から遠隔操作により行うことができる。また、撮像システムとしては、転写法が採用されており、試料の後部に金属コンバータを装着したカセットが設置される。転写法とは、中性子ビームにより生じた金属コンバータ上の誘導放射能により、X 線フィルム等に感光させる手法で、画像に及ぼす原子炉及び試料からの γ 線の影響を低減する長所がある。しかし、撮影時間が比較

的長いことやコンバータの交換作業を必要とすることから、多数回の試験が困難であることが短所として挙げられる。

イメージングプレート法及び中性子 CT 法は、照射後試験において有効に適用できる手法である。イメージングプレート法は、撮影プロセスの簡略化と広いダイナミックレンジで被覆管中の水素濃度の定量評価等が期待される。中性子 CT 法では、非破壊で燃料ペレットと燃料被覆管の断面像を取得できることにより、核燃料・材料の照射後試験の工程を大幅に短縮できる。

このような撮影システムを TNRF 1 に導入することを検討する目的として、TNRF 2 を用いて、未照射の燃料ピン及び水素を吸収させた被覆管の試験を行った。

試料として、未照射の中性子ラジオグラフィ校正用燃料ピン (RISΦ-National laboratory から譲渡) を用いた³⁾。燃料ピンには、2 個の天然 UO_2 ペレットと 7 個の濃縮中空 UO_2 ペレット (濃縮度: 2.28%) が、2 本のインコネル製のプレナムスプリングと呼ばれるバネでジルカロイ被覆管内に装荷してある。

図 1 に、未照射燃料ロッドのイメージングプレート像と X 線ラジオグラフィ像を示す。イメージングプレート像では、X 線ラジオグラフィでは確認できない燃料ペレットの中空部及びギャップが明瞭に写し出されている。また、濃縮ペレットにおける中空部及びギャップの寸法の違いも確認できる。この試験は、ほぼ 4 秒で撮影が行われており、中性子イメージングプレート

法により、短時間に X 線で得ることが困難な鮮明な画像を得られることを示している。

図 2 に、天然及び濃縮 UO_2 ペレットの CT 像 (図 (A)、(B)) 並びに CT 値 (画像上の線級数係

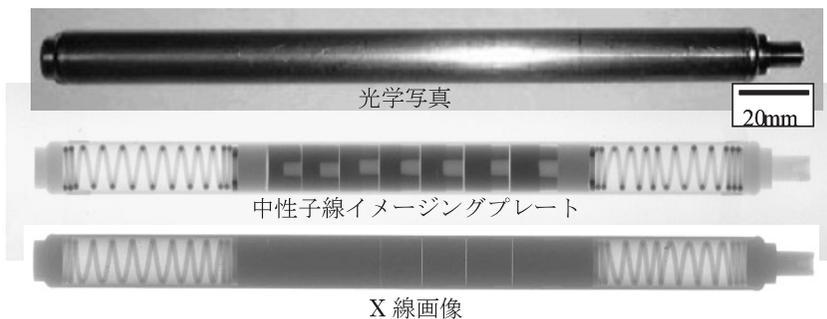


図 1 未照射燃料ピンの中性子線と X 線の画像

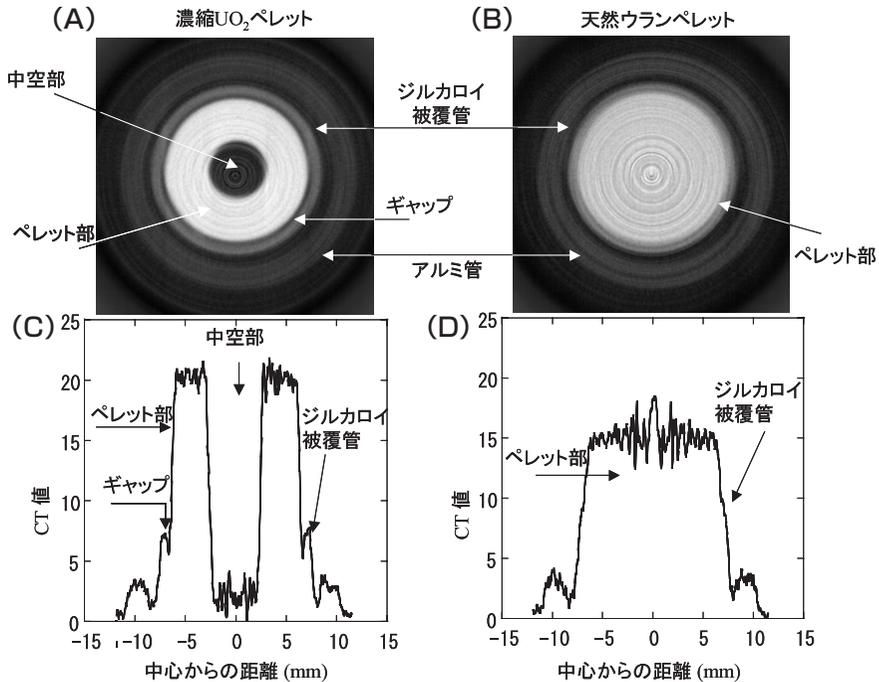


図2 濃縮・天然ウランペレットの中性子 CT 画像と CT 値の分布

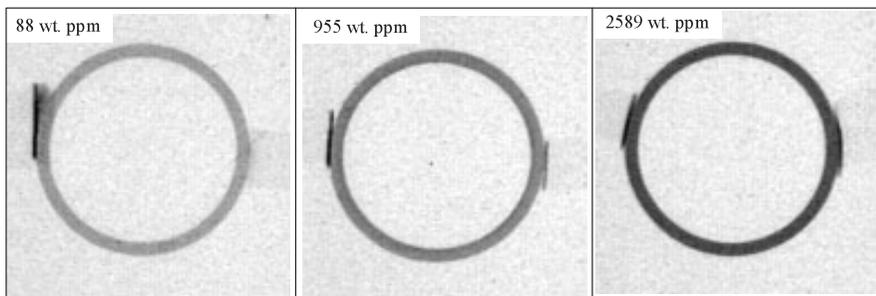


図3 水素を含んだジルカロイ鞘管の中性子断面画像

数に比例する数値データ)のプロファイル図(図(C), (D))を示す。図2(A)で、アルミニウム管、ペレット部及びジルカロイ被覆管部を明瞭に確認できる。また、濃縮ペレットは天然ペレットに比べて、画像の輝度が異なるが、図2(C), (D)において、天然 UO_2 ペレットと濃縮 UO_2 ペレットにおいて CT 値に顕著な差が見られる。この画像上の明るさ及び CT 値における差は、濃縮度の差に起因すると考えられる。上記の結果は、CT 法によって、燃料ペレットの形状だ

けなく、濃縮度の差も確認できる可能性を示している。しかし、照射済燃料においては、中性子断面積の大きい核分裂生成物及びスウェリング (swelling)^{*1} によるペレット密度の変化等も CT 値に寄与することが考えられるため、濃縮度評価に関しては更なる検討を要する。

図3に、水素を均一に吸収させたジルカロイ

^{*1} スウェリング: 放射線の照射により照射体の体積が増加する放射線損傷。

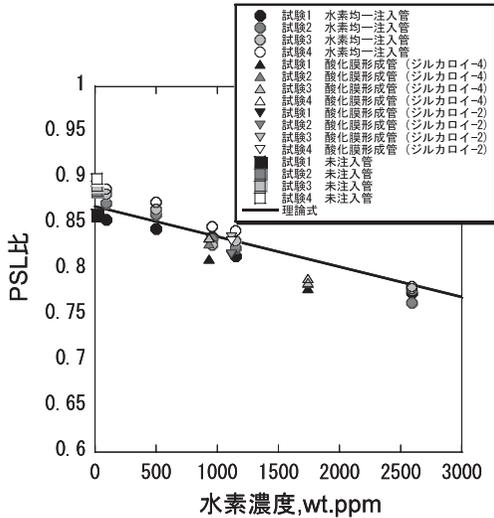


図4 ジルカロイ管の水素濃度とPSLの関係

燃料被覆管のイメージングプレート像を示す。水素濃度の増加とともに被覆管像の黒化度が強くなっていることがわかる。

図4に、上記試料を用いた試験により得られた画像数値データ（PSL: Photo-Stimulated Luminescence）と水素濃度との関係を示す。グラフ上の実線は、理論式からのプロット線である。各々の測定点は、水素濃度の増加とともに単調にPSLが減少している傾向があり、実線と比較的良く一致している。このことは、画像と水素濃度との相関を数値上で求めることが可能であることを示すものである^{4),5)}。

中性子イメージング技術の革新により、これまで破壊試験でしか得られなかった知見が、非破壊でも得られることを期待している。

3. 液体金属流れへの応用

液体金属は、核・熱流動特性に優れ、液体金属冷却高速炉に関連して、液体金属流れの研究が数多くなされており、電磁流体発電、核融合炉などへの応用技術、加速器駆動未臨界炉における液体金属ターゲット、鉛ビスマス冷却原子炉としても、重要な研究課題である。

液体金属は、電気伝導率が大きく、電気抵抗式点電極プローブによるボイド率計測⁶⁾や電磁

プローブ⁷⁾などを用いた流速計測が可能であるが、いずれも点計測法であるためにボイド率や速度の空間分布を同時に取得することは困難である。また、単相流や低いボイド率の二相流の場合には、超音波流速計⁸⁾により計測が可能であるが、流れ全体を同時に計測することは困難である。液体金属流れでは、可視光による観察ができないため、放射線透過法が有用な情報を与える。

中性子ラジオグラフィでは、動画像が観察できるため、直感的に二相流の挙動や液相内の流れの構造が把握できることが最大の利点である。また、現象観察にとどまらず、得られた動画像から定量的な物理量を算出することが可能であり、液体の鉛ビスマスにトレーサとして金カドミウム粒子を分散させ、毎秒30コマの動画像に粒子イメージング速度計測法（PIV法: Particle Imaging Velocimetry）^{*2}を適用して、2次元速度分布を計測した例が報告されている⁹⁾。

液体金属流れの計測例としては、リチウム、カドミウムなど少数の金属では、中性子吸収が大きくトレーサ粒子として利用でき、鉛やビスマスなど中性子が透過しやすい金属では、液体金属中の気泡やトレーサ粒子の観察などが可能となる。以下にそれぞれの応用例を示す。

ナトリウム冷却型高速炉の仮想事故における熔融炉心プールでは、高密度比の気液二相流を形成すると考えられ、基礎研究として中性子ラジオグラフィを用いた液体金属二相流の可視化実験が行われている¹⁰⁾。この実験ではアルミニウム製矩形容器に満たされた鉛ビスマスにノズルから窒素ガスを吹き込み、気液二相流を形成してボイド率と液相速度ベクトルを計測している。単相流と同様にトレーサ粒子には金カドミ

*2 PIV, PTV: とともに流体中に流体とほぼ密度の等しい粒子を混入させ、粒子の動きから流体の速度を計測する方法。PIVでは2時刻の2次元粒子分布画像の空間相関を取ることで、PTVでは個々の粒子の運動を時間的に追跡することにより2次元速度分布を算出する。

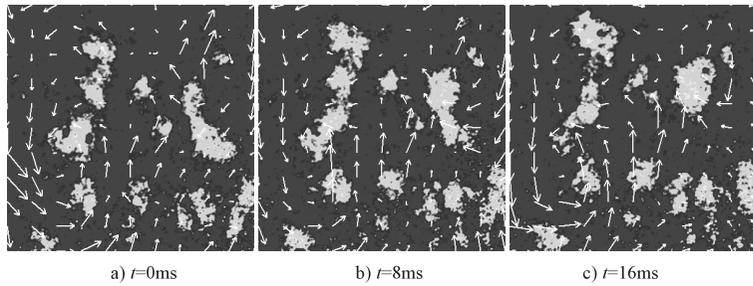


図5 トレーサ粒子法で計測した瞬時速度 ($j_g = 13.3 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$)

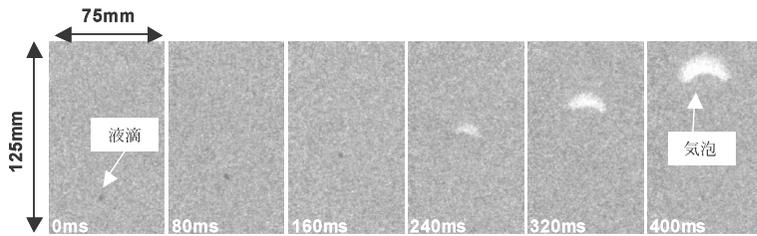


図6 ニュートン合金内の水滴の蒸発

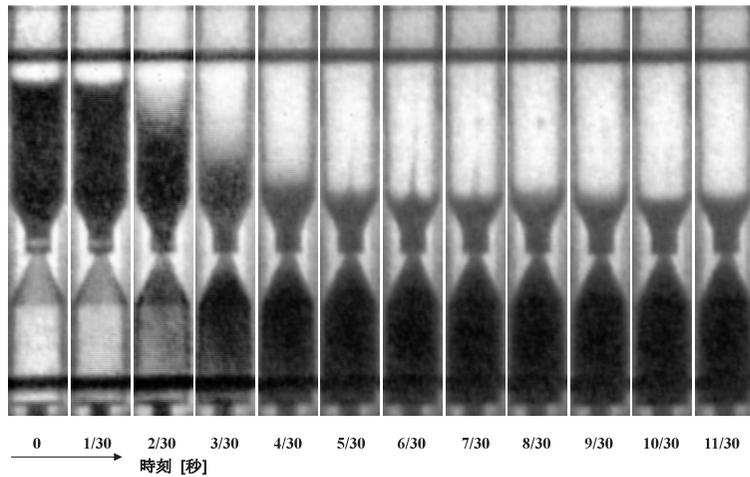


図7 LIMの可視化 (30 駒/秒)

ウム粒子を用い、速度ベクトルの計測には粒子追跡速度計測法 (PTV法: Particle Tracking Velocimetry)^{*2}を用いている。図5に示すように、瞬時における気泡の形状、気泡周りの速度ベクトルが良好に捉えられている。このような実験結果は、数値シミュレーションコードの検証に重要な役割を果たしている¹¹⁾。

鉛ビスマス冷却型原子炉では、冷却水を液体

金属中に噴射し、発生した蒸気泡の浮力により鉛ビスマスを循環させる方法が検討されている¹²⁾。このような原子炉の開発設計には、蒸気泡の上昇速度や界面熱伝達率を精度良く予測する必要がある。図6は、過熱したニュートン合金 (Newton Alloy)^{*3}中に噴射した水液滴の

^{*3} ニュートン合金: Pb, Bi, Snを成分とする低融点合金。

蒸発の様子を可視化したものであり、水液滴が合金中を上昇しながら蒸発する様子が鮮明に捉えられている¹²⁾。得られた画像から気泡径、気泡の上昇速度、及び界面熱伝達率を計測し、他の実験との比較検討が行われている。

将来の高速炉の高度な安全特性達成のため、受動的に作動する制御棒及び停止装置の研究が進められている¹³⁾。図7は、原子炉異常時に原子炉を緊急停止させるための停止装置 LIM (Lithium Injection Module) の作動の様子を中性子ラジオグラフィで可視化したものである。LIMでは、円筒状の密閉容器が危険温度で溶けるフリーズシールで上下に仕切られており、上部には不活性ガスで加圧された液体リチウムが封入され、下部は真空に保たれている。危険温度に達するとフリーズシールが溶け、中性子吸収の大きいリチウムが下部に噴射されることにより炉が停止する。観察より、LIM モジュールは危険温度でフリーズシールが溶け、リチウムが正常に噴射されることが確認され、移動

に要する時間も極めて早いことが確認された。この他にも原子炉制御装置 LEM (Lithium Expansion Module) も中性子ラジオグラフィを用いて可視化され、正常に動作することが確認されている。

中性子ラジオグラフィにより液体金属流れの動的な挙動が計測できることを示した。液体金属は可視光に不透明であり、中性子ラジオグラフィは有望な計測技術の一つと考えられ、原子力分野にとどまらず様々な応用に期待される。

4. 原子力機器内二相流の可視化と計測

中性子ラジオグラフィを原子力機器の研究開発に応用した事例を紹介する。国内のこのような研究開発の多くは、中性子源として日本原子力研究開発機構の研究炉 JRR-3 の TNRF 施設¹⁴⁾を用いて実施されている。

図8は、直接通電加熱した円管内に核燃料固定用スペーサ先端部を模擬した障害物を挿入し、沸騰二相流の2次元時間平均ボイド率分布を計

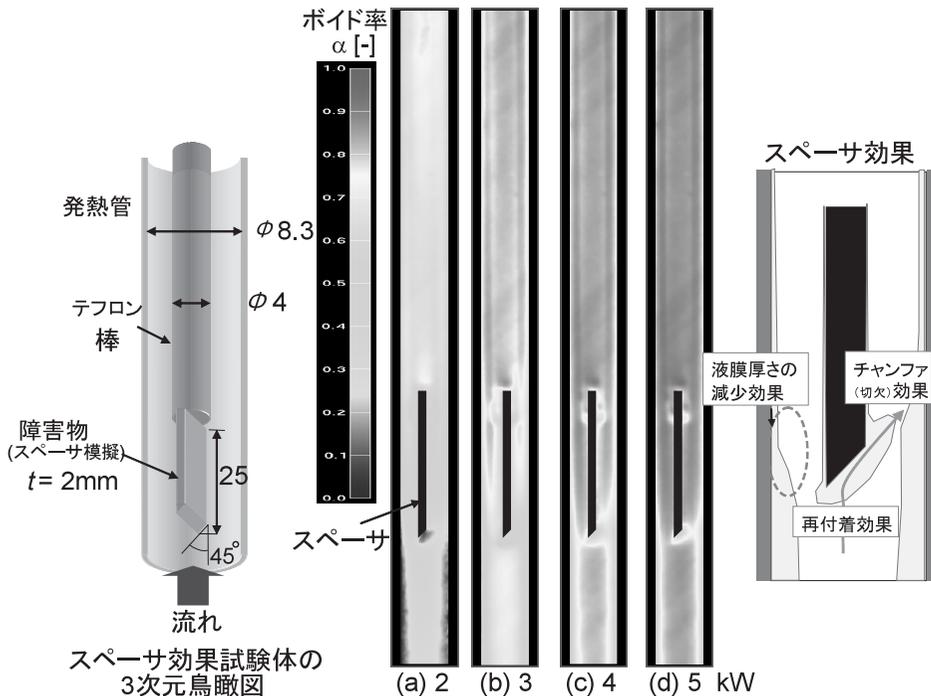


図8 障害物内包加熱円管内を流れる沸騰二相流の時間平均ボイド率分布

測した結果¹⁵⁾であり, 他の計測技術では計測困難なスーパーストリームの詳細な熱流動評価を可能とした一例である。

Takenaka らは, 原子炉燃料集合体模擬試験体内を流れる空気/水二相流を高速中性子及び熱中性子を利用して断面方向ボイド率分布を計測し, スーパーストリームの流動変化などを評価している^{16), 17)}。

呉田¹⁸⁾は, 稠密格子炉心内の詳細3次元ボイド率分布の計測を目的とした計測技術を開発

し, 7本¹⁹⁾及び14本²⁰⁾体系で計測し, 原子炉設計用詳細解析コードの検証²¹⁾に利用している。図9は稠密バンドル内沸騰流のボイド率の計測結果²⁰⁾であり, ボイド率の空間分布を空間解像度約0.2mm/画素で計測している。

原子炉や加速器ターゲット内の二相流現象を把握し, 熱流動モデル式や詳細解析コードの開発や検証を進める際, 瞬時のボイド率や速度の分布データが必要である。高速度ビデオカメラを用いることで高速に変化する現象を観察し,

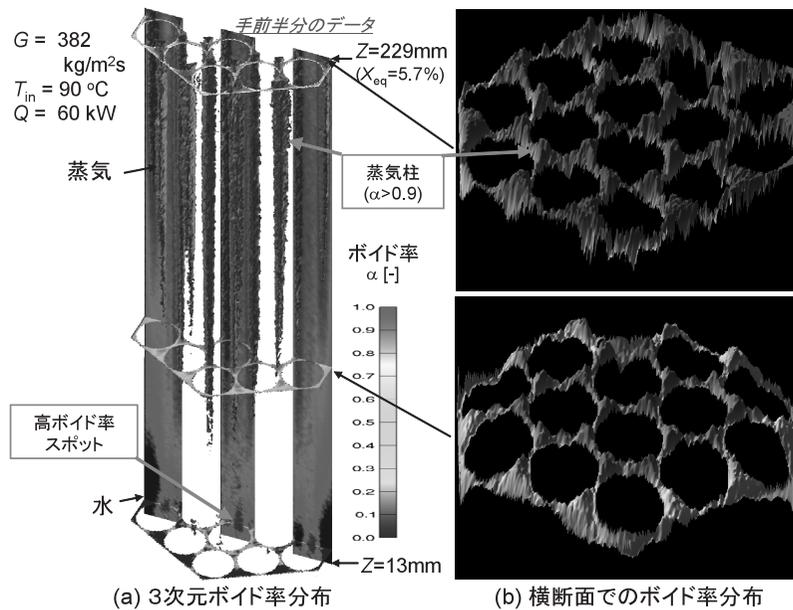


図9 稠密14本発熱バンドル内を流れる沸騰二相流の3次元ボイド率分布

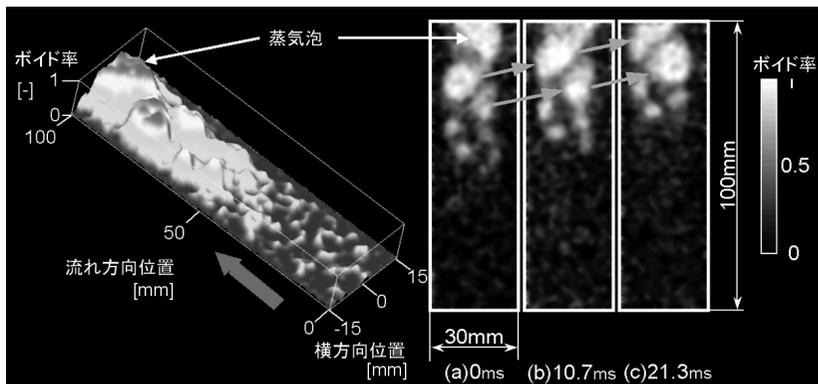


図10 片面発熱矩形流路内を流れるサブクール沸騰流の瞬時ボイド率分布

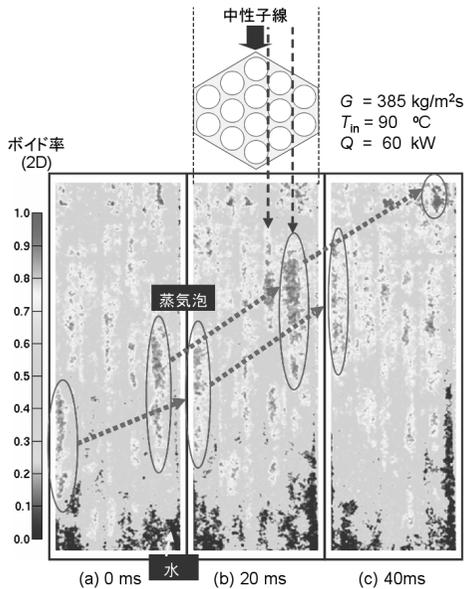


図11 稠密14本発熱バンドル内を流れる沸騰二相流の瞬時ボイド率分布の時間変化

瞬時ボイド率や速度分布の時間変化が計測できる。瞬時ボイド率の定量化法は、Mishimaら²²⁾により提案され、その後、Kureta²³⁾、Saito²⁴⁾ら、Umekawa²⁵⁾らにより技術開発が進められ、時間分解能が1～100ms程度で応用研究がなされている。加速器ターゲット内サブクール沸騰流(subcooled boiling flow)^{*4 26)}と、稠密流路内沸騰流の瞬時ボイド率分布の時間変化を1msの時間分解能で計測した結果²⁰⁾を図10、図11に示す。高速度撮像法により、ボイド率の時間変動幅、空間変動量が明らかとなり、沸騰開始点や冷却限界モデルの開発²⁷⁾、設計解析コード²¹⁾の検証に寄与している。

原子力分野では、水や液体金属二相流のボイド率の可視化・計測や液体金属单相流の速度計測を目的として中性子ラジオグラフィが応用され、特に原子力機器の熱流動設計に不可欠な計測技術として研究開発及び利用がなされている。

*4 サブクール沸騰流：飽和温度以下の液体が加熱され加熱面のみで沸騰が生じる沸騰流れ。高熱負荷機器の冷却で生じる。

今後も技術革新とともに、熱流動分野以外や他産業への応用も強く期待されている。

文 献

- 1) 古平恒夫, 鶴野 晃, 松林政仁, 原子力工業, **41** (2), 29-36(1995)
- 2) Niimura, N., Karasawa, Y., Tanaka, I., Miyahara, J., Takahashi, K., Saito, H., Koizumi, S. and Hidaka, M., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A349**, 521(1994)
- 3) Yasuda, R., Matsubayashi, M., Nakata, M., Harada, K., Amano, H., Sasajima, F., Nishi, M. and Horiguchi, Y., *IEEE Trans. Nucl. Sci.*, **52**(1), 313-316(2005)
- 4) Yasuda, R., Matsubayashi, M., Nakata, M. and Harada, H., *J. Nucl. Mater.*, **302**, 156-164(2002)
- 5) Yasuda, R., Nakata, M., Matsubayashi, M., Harada, M., Hatakeyama, Y. and Amano, H., *J. Nucl. Mater.*, **320**, 223-230(2003)
- 6) Neal, L. G., ANL-6625(1963)
- 7) Ricou, R. and Vives, C., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **25**, 1579-1588(1982)
- 8) Takeda, Y., *Nucl. Technol.*, **79**, 120-124(1987)
- 9) Takenaka, N., Fujii, T., Ono, A., Sonoda, K., Tazawa, S. and Nakanii, N., *Neutron Radiography 4* (ed. Barton, J.P.), pp.355-362, Gordon and Breach(1993)
- 10) Saito, Y., Mishima, K., Tobita, Y., Suzuki, T., Matsubayashi, M., Lim, I. C. and Cha, J. E., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A542**, 168-174(2005)
- 11) Suzuki, T., Tobita, Y., Kondo, S., Saito, Y. and Mishima, K., *Nucl. Eng. Des.*, **220**, 207-223(2003)
- 12) Saito, Y., Mishima, K. and Matsubayashi, M., Proc. 13th Int. Heat Transf. Conf., Sydney, Australia (2006)
- 13) Kambe, M., Tsunoda, H., Mishima, K. and Iwamura, H., *Nucl. Technol.*, **143**(1), 11-21(2003)
- 14) Matsubayashi, M., Kobayashi, H., Hibiki, T. and Mishima, K., *Nucl. Technol.*, **132**, 309-324(2000)
- 15) Kureta, M., Tamai, H., Sato, T., Shibata, M., Ohnuki, A. and Akimoto, H., Proc. ICONE-15, 10116, Nagoya, Japan(2007)
- 16) Takenaka, N., Asano, H., Fujii, T., Mizubata, M. and Yoshii, K., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A 424**, 73-76(1999)

- 17) Takenaka N. and Asano, H., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A542**, 387-391 (2005)
 - 18) 呉田昌俊, 噴流工学, **20**(2), 24-31 (2003)
 - 19) Kureta, M. and Tamai, H., Proc. ICMF-2004, 226, Yokohama, Japan (2004)
 - 20) Kureta, M. and Akimoto, H., Proc. NUTHOS-6, N6P200, Nara, Japan (2004)
 - 21) 吉田啓之, 小瀬裕男, 呉田昌俊, 永吉拓至, 高瀬和之, 秋本 肇, 日本原子力学会和文論文誌, **4**(2), 106-114 (2005)
 - 22) Mishima, K., Hibiki, T. and Nishihara, H., *Nucl. Eng. Des.*, **175**, 25-35 (1997)
 - 23) Kureta, M., Akimoto, H., Hibiki, T. and Mishima, K., *Nucl. Technol.*, **136**, 241-254 (2001)
 - 24) Saito, Y., Mishima, K., Tobita, Y., Suzuki, T., Matsubayashi, M., Lim, I. C. and Cha, J. E., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **A542**, 168-174 (2005)
 - 25) Umekawa, H., Ozawa, M., Takenaka, N. and Matsubayashi, M., *Nucl. Instru. Methods Phys. Res. A* **424**, 77-83 (1996)
 - 26) 呉田昌俊, 可視化情報学会誌, **23**(89), 21-26 (2003)
 - 27) Kureta, M., Hibiki, T., Mishima, K. and Akimoto, H., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **46**, 1171-1181 (2003)
-