

He 集積法による中性子照射量測定のための He 絶対 量測定装置

深堀, 智生
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

中村, 武彦
日本原子力研究所 | 九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

森, 喜久馬
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

飛松, 浩樹
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

他

<https://doi.org/10.15017/17593>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 6 (1), pp.31-37, 1984-06-01. 九州大学大学院総合理工学
研究科
バージョン :
権利関係 :

He 集積法による中性子照射量測定のための He 絶対量測定装置

深掘 智生* ・ 中村 武彦**,† ・ 森 喜久馬**
飛松 浩樹** ・ 井尻 秀信 ・ 神田 幸則

A Helium Atom Measurement System using for the Helium Accumulation Method in Neutron Dosimetry

Tokio FUKAHORI, Takehiko NAKAMURA, Kikuma MORI,
Hiroki TOBIMATSU, Hidenobu IZIRI
and Yukinori KANDA

(昭和59年3月31日 受理)

In the helium accumulation method for neutron dosimetry, it is applied that the number of helium atoms produced through (n, α) reaction is proportional to neutron fluence in fast neutron irradiation fields. Besides, activities measuring in the activation method saturate to the value depending on their half-lives. A helium atom measurement system for detecting of helium atoms accumulated in neutron-irradiated samples has been constructed and tested. The samples are vaporized in a furnace to release helium contained in them. The number of helium atoms is measured with a quadrupole mass spectrometer calibrated by a standard helium gas supply which is consist of a known-volume vessel, a pressure gauge and a thermometer.

It has been proposed in this work that helium-ion implanted aluminum disks are applied to calibrate the helium atom measurement system. This method has succeeded to obtain results agreed with the standard helium gas supply system.

1. 緒 論

中性子照射量の測定には、従来、放射化法が最もよく使用されてきた。しかし、放射化法で測定対象となる中性子反応の放射性残留核の数は、その半減期と中性子照射量の時間変化に依存するために、補正をするか、時間変化を無視出来る永い半減期の残留核を選択する必要がある。これに対して、He 集積法は、 (n, α) 反応で生成し試料中に集積されている He を測定して中性子照射量を求める方法であり、He の量は中性子照射量に比例する。したがって、中性子の全照射量を測定する方法としては、He 集積法の方が直接的である。

放射化法では、放射化断面積、生成核の半減期、測定対象としている γ 線のエネルギーおよびその崩壊当りの放出割合等の各種核データが必要である。これに対して、He 集積法では核データとして必要なものは He 生成断面積のみである。核データの値は各々相当量の誤差を伴うので、各方法で求められる中性子照射量の誤差は使用する核データが少ない方が原理的に小さくなる。特に、放射性核種の数の照射時間、冷却時間、測定時間に対する補正は指数関数であるから、半減期の誤差の寄与は大きい。

He 集積法は原理的には放射化法に優るが、実用的にはいくつかの問題がある。中性子照射試料中に集積された He の測定感度が低いこと、利用出来る反応は (n, α) に限られる上にその断面積の測定値が少なく精度が良くなく、断面積の値は大きくない。これに対して放射化法は、高度に発達している γ 線測定手段を利用することが出来るので感度が高い。また、

エネルギー変換工学専攻

* 同上博士課程

** 同上修士課程

† 現在、日本原子力研究所

放射性核種を生成する反応の種類は多く、それらの断面積の測定は豊富であり、選択の自由度が大きい等の利点がある。この様な実用上の欠点があるにもかかわらず He 集積法の開発を進める意義は、核融合炉材料の中性子照射量測定に極めて適していることにある。核融合炉材料は高速中性子の重照射を受け、He の集積量が大きい。また、照射中性子源の状態には多種多様な時間変化を想定する必要がある。14 MeV 中性子に対する $(n, x\alpha)$ 反応の断面積は比較的大きいが、現時点では研究用 14 MeV 中性子源は核融合炉第一壁の照射量の 10^{-4} 倍程度であるため、核融合炉における中性子照射量測定よりも遥かに高い感度が要求される。本研究は、この必要感度を実現する He 量測定装置の開発を目的として行った。

同様の目的で、Rockwell International の Farrar IV らのダループ¹⁾ が研究を行っており、Lawrence Livermor National Laboratory の強力 14 MeV 中性子源 RTNS-I, -II (Rotating Target Neutron Source -I, -II) の照射場測定を行っている。また、 $(n, x\alpha)$ 反応断面積も測定している²⁾。

本報告では、He 集積法に必要な中性子照射試料中の He の絶対量を測定する装置を開発し、その特性を

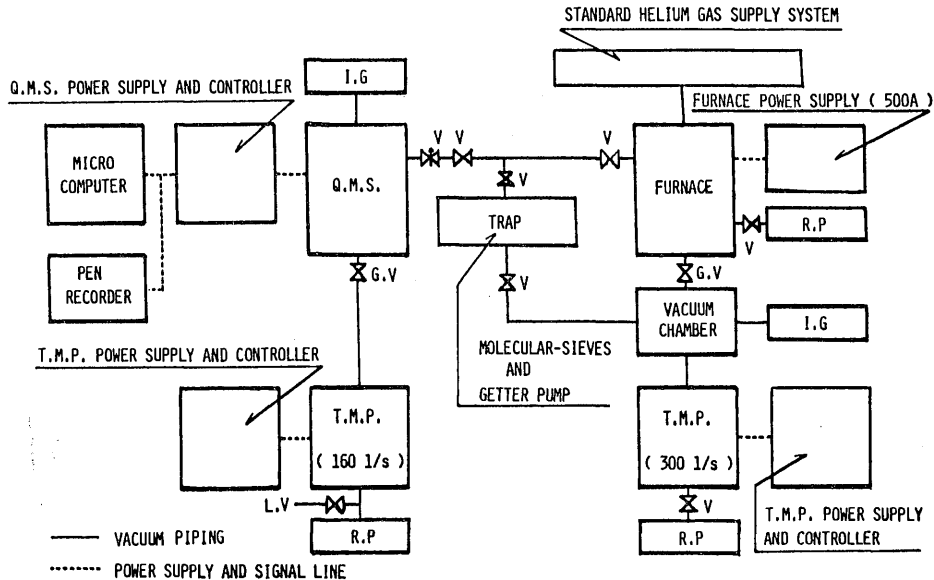
調べた。特に、He の絶対量較正法の一つとして、He イオン打ち込み法を新しく開発し、その結果について述べる。この方法は、中性子照射試料と同じ金属に He イオンを打ち込み、He 標準試料とすることが出来る。この方法と、Farrar IV らの採用したスパイク法³⁾ とを比較した。

また、中性子照射試料中の He 集積は、核融合炉材料として最も重要な照射損傷である。本研究で開発した測定装置は、この方面の研究にも応用できる。

2. 測定装置

2.1. 装置の概略

Fig. 1 に測定装置全体の配置図を示す。全体は電気炉、四重極質量分析器、データ処理・制御系、トラップ、スパイク装置、真空系の6つの部分に分けることができる。測定は次の手順で実施する。試料を電気炉で蒸発させ、試料内に集積されている He を完全に放出させる。本報告での試料は3節で述べる He イオンを打ち込んだ Al 板である。放出ガスの大部分は水素系物質であり、これは質量数 3, 4 のバックグラウンドとなるので、トラップで吸着し取り除く。純化された試料ガスを四重極質量分析器に導き、その出力



Q.M.S.: Quadrupole Mass Spectrometer T.M.P.: Turbo Molecular Pump R.P.: Rotary Pump I.G.: Ionization Gauge G.V.: Gate Valve L.V.: Leak Valve V: Valve

Fig. 1 Block diagram of He atom measurement system.

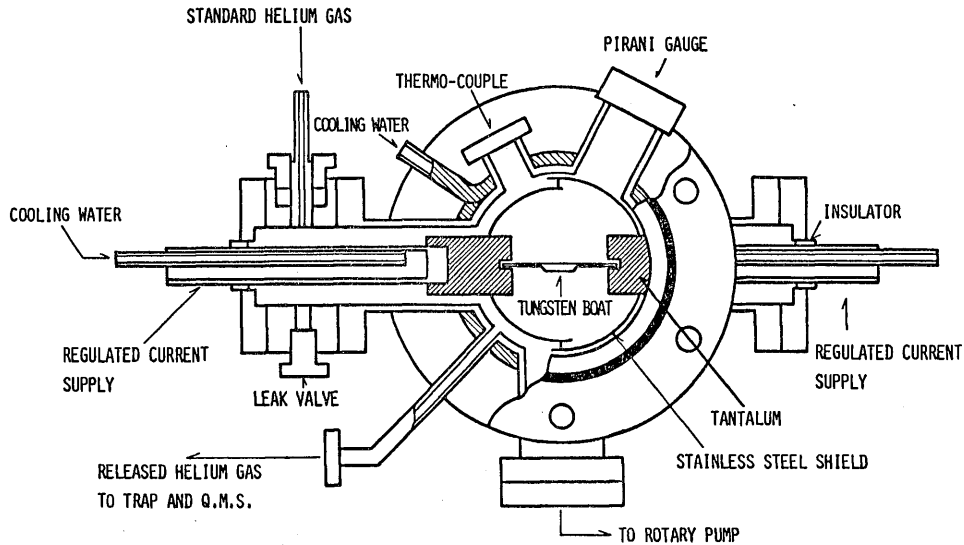


Fig. 2 Furnace, cut-away view.

をパーソナル・コンピュータに入力する。He 絶対量測定のための標準ガスをスパイク装置を用いて電気炉へ供給し、試料ガスと同様に測定する。標準ガス測定により校正曲線を作製する。試料ガス測定の出力を校正曲線を使って試料ガスの中の He 絶対量に換算する。

2.2. 電気炉

電気炉の断面図を Fig. 2 に示す。電気炉は通電型で試料をタングステン・ボートに載せる。タングステン・ボートの両端は高融点のタンタル電極を介して銅製の真空・電流導入端子に接続し、これらに電流を流す。電流導入端子および電気炉チェンバの外壁には銅管を巻き冷却水で冷却されている。電気炉の内壁を加熱時の輻射や試料蒸気から保護するために、ステンレス・スチール製のしゃへい板をタングステン・ボートを囲む形で設置している。その他に、標準ガスの導入管、試料ガスの導出管がある。

タングステン・ボートへの通電電流は、電流導入端子の定格 400 A まで流すことができる。電流と温度の関係を調べるために、Al (融点 660°C)、Ag (融点 962°C)、Cu (融点 1085°C)、Si (融点 1414°C) を用い、電流を 80 A から 20 A 間隔で 240 A まで上昇し、各試料が融解する電流値を調べた。各融点を y (°C)、電流値を x (A) として、発熱量は電流の 2 乗に比例することを用いて、2 次式、 $y=ax^2+bx+c$ の

式を実験結果に最小二乗法で当てはめると、 $y=0.11x^2+4.11x-85.0$ を得た。この式から、本実験で通電した 250 A では、試料は 1640°C まで温度が上昇していると推定され Al 試料は十分に蒸発しうる温度であると推定され、350 A を通電すれば 2160°C までの温度上昇が期待され、高融点金属試料の使用が可能である。

2.3. 四重極質量分析器

四重極質量分析器 (Quadrupole Mass Spectrometer, 以下 Q.M.S. と呼ぶ) は、イオン源、四重極質量フィルタ、2 次電子増倍管、直流増幅器およびこれらの制御回路から構成されている。

Q.M.S. に導入された試料ガスは、イオン源でイオン化され、四重極質量のフィルタへ移動する。四重極質量フィルタは 4 本の電極ロッドより成っており、向い合った 2 組の対電極ロッドに等しい電圧の直流成分と電圧は等しいが位相が 180° 違う高周波成分を重ね合わせた電圧を印加し、四重極電界 (双曲電界) を形成する。この電界内をイオンが通過する際、特定の質量電荷比 m/e 以外の質量電荷比を持つイオンは、軌道が発散して、四重極質量フィルタを通過することができない。こうして、目的の質量数のイオンのみが 2 次電子増倍管に導かれ、電流増幅される。2 次電子増倍管の増幅率は $10^4 \sim 10^6$ である。増幅されたイオン電流は、電流-電圧変換された後、直流増幅器で増幅され 0~10 V の信号となって出力される。この出力信

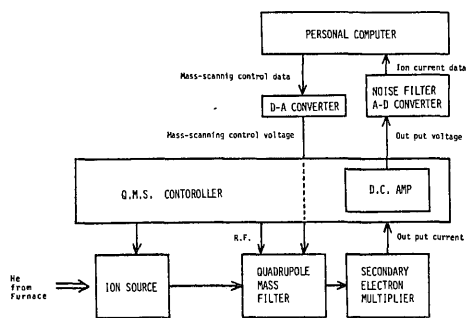


Fig. 3 Block diagram of the gas analysis system (Q.M.S. and the controller).

号は質量数毎にピーク状になるので、出力の最大値を今後ピーク高さと呼ぶことにする。

2.4. データ処理・制御系

データ処理・制御系のブロック図を Fig. 3 に示す。パーソナル・コンピュータから出力された質量掃引制御用のデジタル信号は、デジタル・アナログ変換部によってアナログ信号に変換され、四重極質量フィルタの掃引電圧の直流成分を制御し、通過できるイオンの質量数を決定する。Q.M.S. からの出力信号は、アナログ・デジタル変換部によってデジタル信号に変換された後、パーソナル・コンピュータに入力され、解析・記憶などの処理を施される。

ハード・ウェアは、デジタル・アナログ変換部、アナログ・デジタル変換部、パーソナル・コンピュータで構成されている。デジタル・アナログ変換部では、パーソナル・コンピュータから入力された12ビットの信号をデジタル・アナログ変換器 (μ PC 648 D) を通じてアナログ信号に変換し、バッファを介して0~10 V の電圧を出力する。アナログ・デジタル変換部では、低周波フィルタを通して雑音を除去したQ.M.S. からの0~10 V の信号をアナログ・デジタル変換器 (AD 571) で10ビットのデジタル信号に変換した後、パーソナル・コンピュータへの入力信号は記憶後、様々なデータ処理を施される。これらのハード・ウェアを用いることによってQ.M.S. の1つの質量数に対応するピークを約20点に分割して計測することができる。

以上のようなハード・ウェアを制御しデータを解析するためのシステム・プログラムはBASICと機械語で記述されており、24個の独立したサブプログラム

とこれらの中でデータのやり取りを行うためのランダム・アクセス・ファイルで構成されている。システム・プログラムの総量は約200 k バイトである。He 絶対量測定装置による測定方法、データ解析方法は、測定の目的により異なるため、これらに迅速に対応する必要がある。このため、システム・プログラム製作に際し特に留意した点は、汎用性、拡張性、操作性、高いデバッグ効率である。サブプログラム作成には特別なテクニックの使用は避け、プログラムの構造も簡単にした。また、システム・プログラムは実験の処理を実時間で行うことが多いため、誤操作により貴重な試料を無駄にしたり、測定データを失ったりすることがないように、対話型操作にし、誤入力によるエラー発生を極力少なくするように設計した。拡張性、操作性を向上させる手段として、サブプログラム・シーケンス・プロシジャ (SSP) と呼ばれる方法を導入した。SSP では多数のサブプログラムをあらかじめ定義した順序で実行の受け渡しを行う。新たに作成したサブプログラムをこのネットワークに組み込むことは極めて簡単にできる。したがって、測定および解析に新たな処理が必要となった場合は、そのためのサブプログラムを作成するだけでよい。サブプログラム間のデータの受け渡しは、ランダム・アクセス・ファイルを介して行われ、各シーケンス間のプログラムの呼び出しは接続用サブプログラムによって行われる。各シーケンス・プロシジャの設定、選択はメニュー選択用サブプログラムによって行われ、各プロシジャの先頭あるいは途中から実行することができる。

2.5. トラップ

電気炉で放出された試料ガスの大部分はバックグラウンド・ガスであり、その80%は水素系物質であることが質量分析で確かめられた。このうちDHやD₂が目的の物質であるHeを測定する際、質量数3および4のバックグラウンドとなり、測定の妨げとなる。これら水素系物質を取り除くために Fig. 4 のような2段階のトラップを設けた。

第1段は、液体窒素で冷却したモレキュラ・シーブス・トラップであり、これを通すことにより質量数3のピーク高さはトラップを使用しないときの1/10~1/50になる。この質量数3の減少の様子を表したものを Fig. 5 に示す。図中、白丸がモレキュラ・シーブス・トラップを使用しない場合、黒丸がモレキュラ・シーブス・トラップを使用した場合の質量数3のピ

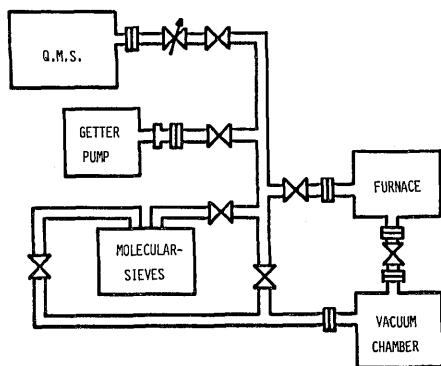


Fig. 4 Block diagram of traps.

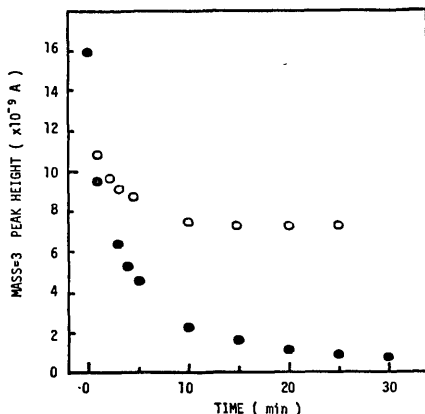


Fig. 5 Effects of mass=3 gas peak by using a molecular-sieves trap. Opened circles are without using the trap. Solid circles show effects by using the trap.

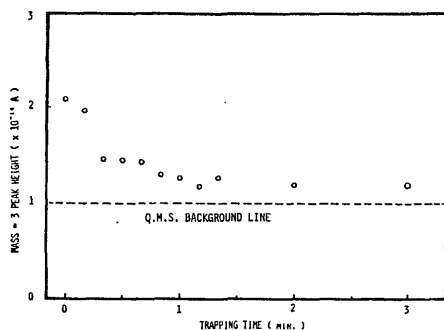


Fig. 6 Effects of mass=3 gas peak by using a Ti getter pump.

ーク高さの変化を表す。モレキュラ・シーブス・トラップを使用すると、5～15分でピーク高さの低下が飽和する。

モレキュラ・シーブス・トラップは飽和点が比較的高く、ある濃度以下のガスを吸着することができないので、第2段にチタン・ゲッタ・ポンプを設けた。これにより質量数3のピーク高さは、モレキュラ・シーブス・トラップを動作させ飽和した場合の1/2～1/10になる。この様子を表したのが Fig. 6 である。モレキュラ・シーブス・トラップと同様に1～2分で飽和するが、Q.M.S.ハウジング内の雰囲気出力とほぼ同じ程度まで低下していることがわかる。このことより、放出ガスによる質量数3の上昇分はほとんど除去できたと考えられる。

2.6. スパイク装置

Fig. 7 にスパイク装置の配置図を示す。スパイク装置は、内容積が精度よく求まっている標準容器、絶対圧力計、 ^4He のボンベから成っている。 ^4He のボンベから1～10 Torrのガスを標準容器に導き、その際の圧力を絶対圧力計で測定し、加えて温度も測定する。圧力、体積、温度から気体の状態方程式によりHe数を求め、やはり内容積が既知のストレージ・ポリリューム、スパイク・ポリリュームを適宜使用してHeガスを希釈する。試料ガス中のHe数と同程度まで希釈したHeガスを標準ガスとして電気炉に導く。この際の標準ガス中のHe数は $\pm 2\%$ 程度の精度で求めることができる。

スパイク装置によって供給することのできる標準ガス中のHe数は、 $10^9 \sim 10^{18}$ He atomsであり、これは標準容器に導入するHeガスの初期圧力や、希釈に使用する他の既知容積の使用方法などによって、上記の範囲内で任意に選択することができる。これら一連

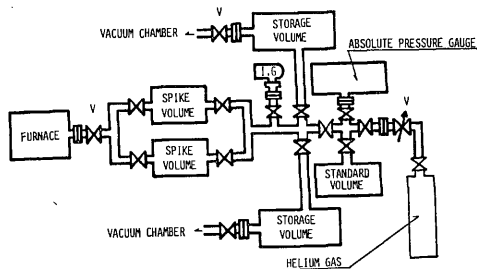


Fig. 7 Schematic diagram of a standard helium gas supply system.

の操作手順は、必要な He 数を入力すれば、パーソナル・コンピュータが指示し、それに従うことで簡単に標準 He 数を得ることができ、最終的に供給された標準ガス中の He 数もパーソナル・コンピュータにより計算され、質量数とともにデータとして記憶される。

2.7. 真空系

Fig. 1 に示すように、全体は 2 台のターボ分子ポンプ (以下 T.M.P. と呼ぶ) によって真空排気されている。ガスの質量分析という測定の性格上、測定系全体は清浄な真空でなければならない。このため、電気炉、スパイク装置、トラップを 300 l/s の T.M.P., Q.M.S. を 160 l/s の T.M.P. で真空排気する。これらの T.M.P. により、Q.M.S. 側で 2×10^{-7} Torr, 電気炉側で 8×10^{-8} Torr の到達真空度を得ることができた。

3. 測定

3.1. 測定の概略

以上述べてきた装置を用いた測定例として、He イオン打ち込み試料の測定を示す。試料として 10 mm ϕ \times 0.2 mm t, 公称純度 99.99% の Al 板を用いた。Al は融点が 660 $^{\circ}$ C と比較的低く、中性子場ドジメトリ用の物質として (n, α) 反応断面積が 144 mb²¹ と比較的大きく、反応の結果生成された ²⁴Na の半減期が 15.02 時間、 γ 線のエネルギーが 1.369 MeV, 2.754 MeV, γ 線の分岐比が 100% など放射化法の測定に適している。本実験では、この Al 板に 20 keV に加速した He イオンを 0.5~1 μ A, ビーム直径 2 mm ϕ で照射したものを試料として用いた。照射量は電流積分器により測定し、He 数に換算して 5×10^{13} ~ 3×10^{15} He atoms とした。Al 試料表面での He イオンの反射²⁾ は小さいので無視できるが、過度の He イオン打ち込みによって Al 試料表面にブリスタリングやフレーキングが起り、注入された He が放出されることがないように試料を作成する必要がある。これらの現象は比較的是っきりしたしきい値が存在する。He イオンと Al ターゲットの組み合わせでは約 6×10^{16} He atoms²⁾ である。この値で He イオン照射量の上限が決定され、電流積分器の測定限界により下限が決定された。He イオン照射後、走査型電子顕微鏡により Al 試料の表面観察を行ったが、ブリスタリングやフレーキングなどの現象は認められなかった。

以上のように He イオンを打ち込まれ、内部に He が集積した Al 試料を He 絶対量測定装置で測定した。電気炉に Al 試料を装着し、250 A, 15 秒の通電を行い Al 試料を完全に蒸発させて、内部に集積されていた He を放出させる。モレキュラ・シーブ・トラップを 5 分間、その後チタン・ゲッター・ポンプを 2 分間動作させ、バックグラウンド成分特に水素系物質を取り除き、試料ガスを Q.M.S. に導き、出力ピーク高さをパーソナル・コンピュータで処理・記憶した。次に、スパイク装置を用いて Al 試料に含まれていた He 数と同程度の濃度の He 標準ガス 3~5 点を作り、ピーク高さと He 絶対量間の関係を表す較正曲線を作成する。これはパーソナル・コンピュータに記憶されているデータに最小二乗法で直線を当てはめることにより求めた。この較正曲線を用いて試料ガスの He 絶対量を求めた。標準ガス測定時には電気炉を昇温しないので測定条件が異なる。したがって、あらかじめ電気炉を昇温した場合と未昇温の場合の出力ピーク高さの比を求めておき、これを補正係数として使用した。その値は約 0.8 である。

3.2. 測定結果および考察

Fig. 8 に測定結果を示す。横軸は試料に打ち込んだ He イオンの電流を積分した量より換算した He 数で、縦軸は He 絶対量測定装置で測定した He 数である。He イオン打ち込み試料は 2 組あるので、それぞれの α 試料、 β 試料と呼ぶ。これらの He イオン

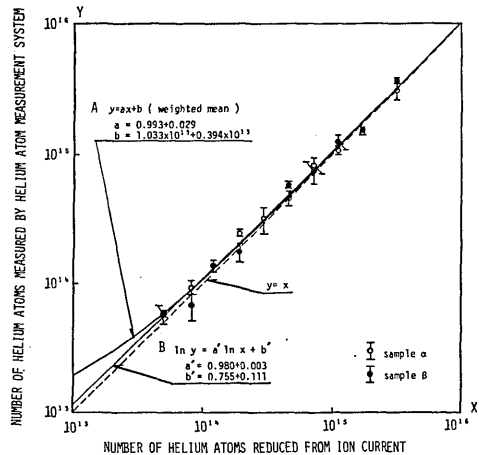


Fig. 8 The results of measurements by using the He atom measurement system.

打ち込み条件は全く同じである。図中の破線は $y=x$ の直線である。同図中実線Aは $y=ax+b$ の一次式を実験値に誤差を重みとして最小二乗法で当てはめた結果で、

$$y = (0.993 \pm 0.029)x + (1.033 \pm 0.394) \times 10^{13} \quad (1)$$

で示される。この結果は、Al 試料に打ち込んだ He の量を He 絶対量測定で再現出来たことを示す。Fig. 8 は両対数目盛であり、 $y=x$ の直線との比較のために、 $\ln y = a' \ln x + b'$ を実験値に当てはめた結果も実線Bに示した。

測定値の誤差の大きさに系統性がないのは、各測定点に対する校正曲線作製時の測定点のばらつきに原因がある。これは、測定値の再現性が悪いためであり、測定系に不安定な部分のあることを示す。更に精度を向上させ、測定限界を拡大するためには、この原因を明らかにして、改善する必要がある。

式(1)の切片の値 $(1.033 \pm 0.394) \times 10^{13}$ と測定におけるバックグラウンド 1.0×10^{12} との一致は良くない。これは測定点の誤差およびばらつきに偏りがあるため、上記の原因と同様のものと考えられる。

4. 結 論

5×10^{13} He atoms 以上集積した Al 試料中の He 量を 10% 以下の精度で測定することが出来た。He イオン打ち込み数と、測定結果は一致し、He イオン打ち込み試料を He の標準として使用することが可能であることを示した。

現在、核融合炉材料開発用の強力 14 MeV 中性子源にこの He 集積法を応用するためには、上で得られた測定下限を 2 桁程度減少させることおよび測定精度

を向上することが望ましい。このためには、本測定装置の改善が必要であるが、本研究でそのための問題点が明らかになった。その主な点は以下の通りである。

放出ガス中バックグラウンドとなる成分の除去には、モレキュラ・シーブスおよびチタン・ゲッタ・ポンプを使用している。これらの能力の向上で測定下限を下げ得るが、この処理には再現性は期待出来ず、校正曲線による He 絶対数換算では精度を向上することは困難である。標準に ^3He を使用することが望ましい。そのためには、質量数 3 のバックグラウンドの低減の必要がある。校正曲線を使用した他の理由は、He 数と Q.M.S. 出力の関係にオフセットが存在するためである。これは、Q.M.S. 測定回路に原因があり、今回使用した市販の回路を置き換える必要がある。試料蒸発時の加熱によるガス放出は避けられないが、真空ポンプ作動下での予備加熱による試料のベーキングが可能であればこの影響を低減できる。このためには、試料を高融点金属のカプセルに封入することが一つの解決法となる。

本研究の初期の段階で協力し、本装置開発の基礎的データの蓄積に貢献された杉内義明(現・住友重機)、堤正博(現・日本原子力研究所)、鷹尾良行(現・三菱電機)の各氏に感謝いたします。

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金を受けて行われた。

参 考 文 献

- 1) D. W. Kneff et al., J. Nucl. Mater., **103 & 104** (1981) 1415.
- 2) C. Filleux et al., Rad. Eff. **46** (1989) 1.
- 3) M. Braun et al., J. Nucl. Mater., **85 & 86** (1979) 1091.