九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

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 堀 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 $(n, x\alpha)$ 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*, *xa*)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.

* 現在, 日本原子力研究所

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 r 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*,*x*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. それ に対して放射化法は,高度に発達している *r* 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

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、Lowrence 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¹⁾.

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ⁿ 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 AI 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 により較正曲線を作製する. 試料ガス測定の出力を較 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・ボートへの通電々流は、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=0.11 $x^2+4.11x-85.0$ 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 AI 試料は充分に蒸発しうる温度であ る. 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10⁴~10⁶ である. 増幅されたイオン電 流は、電流一電圧変換された後、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・ウエアは、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 通し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 ・ウエ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 とこれらの間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の出力とほぼ 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・ ボリューム,スパイク・ボリュームを 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±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%~10¹⁸ 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 mmø×0.2 mmt, 公称純度 99.99 %の A1 板を用い た. Al は融点が 660℃ 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 mb¹⁾ 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, r線のエネルギーが1.369 MeV, 2.754 MeV, r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 AI 板 に 20 keV に加速した He イオンを 0.5~1µA, ビーム 直径 2 mmø 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 5×1013~3×1015 He atoms とした. A1 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は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 6×1016 He atoms3) 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 A1 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・シーブス・ト ラップを5分間,その後チタン・ゲッタ・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,

 $y = (0.993 \pm 0.029)x + (1.033 \pm 0.394) \times 10^{13}$ (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 点に対する較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±0.394)×10¹³ 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 ためで、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、較 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.較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

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