

## He 集積法による中性子照射量測定のための Ti カプセル使用に関する研究

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

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

前田, 義文  
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/10.15017/17624>

---

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 7 (1), pp. 41-46, 1985-08-01. 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 Ti カプセル使用に関する研究

深堀 智生\*・森 喜久馬\*\*・飛松 浩樹\*\*

前田 義文\*\*・神田 幸則

(昭和60年3月27日 受理)

### The Study on a Ti-capsule for He Accumulation Method of Neutron Dosimetry

Tokio FUKAHORI, Kikuma MORI, Hiroki TOBIMATSU  
Yoshifumi MAEDA and Yukinori KANDA

Neutron dosimetry with He accumulation method is conducted by measuring He atoms produced in dosimeters by  $(n, x\alpha)$  reactions. A He atom measurement system for this method has been developed in our laboratory. Capsules enclosing the neutron dosimeters are evaporated in the furnace simultaneously with the dosimeters which contain He atoms. If Ti is used as a capsule material, it is expected by getter effect to reduce background gases which are released in the furnace at the evaporation. In the present work, availability of the Ti capsule has been studied on the reduction of the background, diffuseness of He in Ti and induced activities by 14 MeV neutrons. The last item seems to be the most serious problem, although it can be solved by using the small capsule.

#### 1. 緒 論

He 集積法は、 $(n, x\alpha)$  反応によって生成され、試料中に集積されていた He を直接測定することによって中性子照射量を求める方法である。He 集積法の利点は、従来中性子照射量測定によく用いられてきた放射化法と違って、反応生成物の減衰がなく、中性子照射量と He 生成量の間には比例関係があることである。照射中性子の時間変化に対する補正も必要ない。特に高エネルギー強中性子場の測定に有用である。He 集積法による中性子照射量測定のためには He 原子測定装置が必要であり、われわれはその開発を進めてきた<sup>1)</sup>。核融合炉材料は、高エネルギー中性子の多量の照射を受けるため、He の集積量は大きい。しかし、現時点では、研究用 14 MeV 中性子源による中性子照射量は核融合炉第一壁における大きさに比べると  $10^{-4}$  倍程度であるため、核融合炉第一壁における中性子照射量測定よりも遙かに高い感度が要求される。前回の報

告<sup>1)</sup>で He 原子測定装置の感度に関する問題点をいくつか指摘した。その後、装置の改良によってその一部は解決されたが、まだ残された問題がある。その一つにバックグラウンドの逓減があげられる。バックグラウンドとは、He 原子測定装置での測定において  $^3\text{He}$ 、 $^4\text{He}$  をそれぞれ標準ガス、試料ガスとして質量分析器で測定するので、それに相当する質量数 3、4 のガスであり、これらは水素系のガスであると考えられる。問題解決の一つの方法として試料をカプセルに封入することが考えられる。試料を高融点のカプセルに封入することが可能であれば、真空ポンプ作動下での予備加熱により試料から  $^4\text{He}$  ガスを放出させずに真空槽を脱ガスでき、上記のバックグラウンドの逓減が期待できる。また、現在中性子照射量測定に用いている Al は融点が  $660^\circ\text{C}$  と低いため、高速炉や核融合炉等の高温になる部分の中性子照射量を測定する場合、試料が融解する恐れがあるが、試料を高融点のカプセルに封入することによりこのことが解決される。

試料封入カプセルの材料を選択する際の条件として、以下のような条件が考えられる。第一に、中性子照射場が高温である場合試料が融解しないため、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

予備加熱を可能にするために融点が高いことである。ただし、後述する He 原子測定装置の電気炉の能力を超えない範囲の融点を持つ物質である必要がある。この融点の範囲は 1500~2000°C である。第二に、試料中の He を測定するのであるから、カプセル物質中での He 生成はバックグラウンドとなるため、He 生成断面積が小さくしなければならない。Al の (n,  $\alpha$ ) 反応断面積は 14.8 MeV の中性子に対して 112 mb<sup>2)</sup> であるので、これよりも可能な限り He 生成断面積の小さな物質が望ましい。第三に、He 集積法による試料の取り扱い上、誘導放射能が小さいことが要求される。第四に、試料中に生成された He が、高温の中性子照射場および試料の長時間保管中にカプセルを透過し外部に漏洩することがないように、He が拡散し難い物質である必要がある。

以上の点を考慮してカプセルに用いる物質を選択するが、同様の研究を行っている Rockwell International の H. Farrar IV らは、V をカプセル材として用いている<sup>3)</sup>。V は (n,  $\alpha$ ) 反応断面積が小さく、融点も高く、カプセルに適した材料である。しかし、われわれはこれに加えて前記の如き水素系ガスのバックグラウンドの逓減を画る観点から、広くゲッター材として用いられている Ti をカプセルとして使用することを検討した。試料と同時にカプセルの Ti を昇温・蒸発させた場合、このゲッター作用によって水素系のガスを吸着し、先にも述べたように質量数 3, 4 のバックグラウンド逓減に効果があると期待できる。なお、V もゲッター作用があるが水素に対する効果は Ti の方が遙かに勝り、安価でもある。その他、Ti は融点が 1675°C と適当であり、He 生成断面積が 37 mb<sup>4)</sup> と比較的小さい。したがって、前述のカプセルとしての条件の 2 つを満たしている。

本報告では、第一に He 原子測定装置を用いて測定した場合、Ti のゲッター作用がどれ程の効果を示すか実験的に調べた。更に、Ti カプセルに (n,  $\alpha$ ) 反応で集積された He の挙動を調べるために、Ti 板に加速 He を注入して He 原子測定装置の試料として用いた。また、誘導放射能の問題を実験および計算によって検討した。以上のことから、ゲッター作用の効果に加え、Ti のカプセルとしての使用の可能性を議論する。

## 2. He 原子測定装置による実験

### 2.1 He 原子測定装置<sup>1)</sup>

試料中に集積された He を測定するために開発した He 原子測定装置のブロック図を Fig. 1 に示す。詳細は文献 1) に報告したので概略を述べる。全体は電気炉、標準ガス作成装置、トラップ、四重極質量分析器、真空ポンプ、パーソナル・コンピュータの 6 つの部分から成る。電気炉はタングステン・ボートを発熱部とした通電型で、発熱部はタンタル製のアダプタを介して銅製の電流導入端子に接続されている。電気炉は 300A の通電によって ~2200°C まで昇温する能力がある。標準ガス作成装置は、既知体積のガラス容器、絶対圧力計および温度センサーで構成されており、状態方程式により <sup>3</sup>He ガス原子数を決定し、これを標準ガスとして用いる。トラップは、モレキュラ・シーブスと Ti ゲッター・ポンプから成り、電気炉昇温時に発生する放出ガスを吸着し、試料および標準ガスである <sup>3</sup>He, <sup>4</sup>He を純化する。四重極質量分析器の掃引電圧の制御および出力される質量ピークや真空度・温度等のデータ処理解析をパーソナル・コンピュータで行う。また全体は水素系の残留ガスの少ないターボ分子ポンプによって真空排気される。

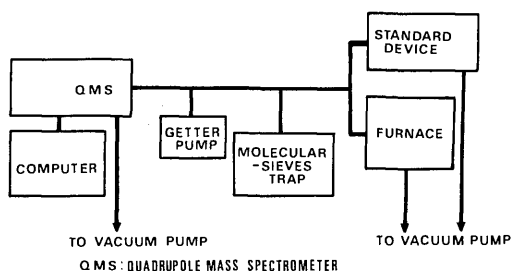


Fig. 1 The block diagram of a He atom measurement system.

測定は、次の手順で実施される。

- i) 試料を電気炉に装着し真空に排気する。
- ii) 電気炉を真空系から独立させた後に、標準ガス作成装置によって準備されていた絶対量が既知の <sup>3</sup>He を電気炉に導入する。
- iii) 電気炉に通電し、試料を蒸発させ、試料中に集積されていた <sup>4</sup>He を放出させる。

- iv) その際電気炉内壁より放出されたバックグラウンドとなるガス, 特に水素系のガスをトラップにより除去する.
- v) 純化された  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  ガスを四重極質量分析器を用いて質量分析し, 質量数 3, 4 に相当する出力ピークを得る.
- vi) パーソナル・コンピュータにこれらのデータを入力し, 質量数 3, 4 に相当する出力ピークの比および  $^3\text{He}$  の既知量より  $^4\text{He}$  絶対量を求める.

2.2 Ti のゲッター効果

前述の如く, 試料を電気炉で蒸発させる際に電気炉内壁等よりガスが放出され, その内水素系ガスは質量数 3, 4 のバックグラウンドとなり, 測定限界の悪化を招く. Ti はゲッター材としてよく知られており, このゲッター作用により水素系ガスを除去し, バックグラウンドの低下が期待できる.

Ti のゲッター効果によるバックグラウンドの低下の度合を測定するために, 次のような実験を行った. 先ず, He の集積していない  $8 \times 8 \times 0.2$  mm の Al 板を加熱・蒸発し, トラップを 5 分間作動させ, 質量数 3 の出力ピークを測定し, 次に,  $8 \times 4 \times 0.2$  mm の Ti 板を付加する以外は全く同じ条件で質量数 3 の出力ピークを測定して, これらを比較した. また, Ti によるゲッター効果が十分でかつ飽和しているかどうか確認するために, トラップの動作時間を 1 ~ 5 分間と変化させて Ti 板を付加した場合と同様の実験を行った.

Table 1 The decrease of mass 3 peak height by using Ti.

Sample	Trap running time (min.)	Mass 3 peak height ( $\times 10^{-8}$ A)
Al+Ti	1	3.21 $\pm$ 0.63
Al+Ti	2	1.22 $\pm$ 0.02
Al+Ti	3	0.79 $\pm$ 0.36
Al+Ti	4	0.49 $\pm$ 0.28
Al+Ti	5	0.28 $\pm$ 0.12
Al	5	0.43 $\pm$ 0.10

測定条件および結果を Table 1 に示す. トラップの動作時間を 1 ~ 5 分と増加させることによって, 質量数 3 のピーク高さが低下しているものの, Ti 板

のゲッター効果だけではバックグラウンドの低下が十分でないことがわかった. しかし, トラップの動作時間が 5 分間の同一条件で比較すると, Al 板のみの場合に比べ Ti 板を付加した場合の方が約 35% 程度質量数 3 のピーク高さが小さくなっていることがわかる. また, 他の放出ガスも総合して考えると, 試料を蒸発させた際に Al 板のみであると電気炉内の真空度が 0.5 Torr 程度になるのに対し, Ti 板を付加した場合 0.003 ~ 0.005 Torr であったので, Ti のゲッター作用によりトラップの負担が軽減されることがわかった.

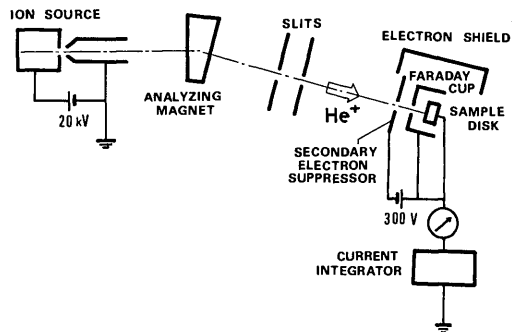
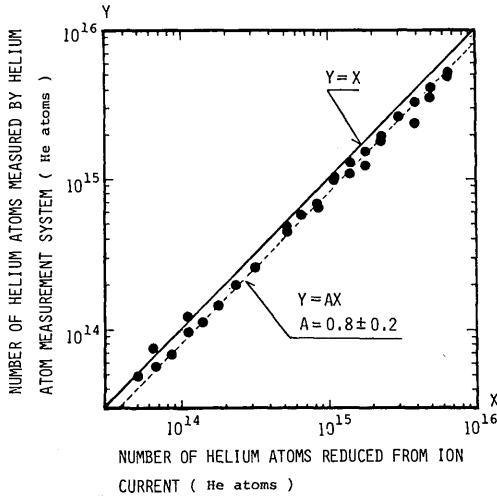


Fig. 2 Schematic diagram of ion source and target chamber for  $^4\text{He}^+$  implantation.

2.3 加速 He を注入した Ti 試料の測定

Ti をカプセルとして使用した場合の He 原子測定装置による測定を模擬するために, He を注入した Ti 板を用意した. Ti 板 ( $8 \times 8 \times 0.2$  mm, 公称化学純度 99.487%) をアルコールで超音波洗浄し, 20 keV に加速された  $^4\text{He}$  イオンを注入した試料を用いた.  $^4\text{He}$  注入量は,  $5 \times 10^{13} \sim 6 \times 10^{15}$  He atoms とした. Fig. 2 にイオン源およびターゲット・チェンバ内部の模式図を示す.  $^4\text{He}$  注入量は, 二次電子除去に充分な配慮をした Faraday-cup を用いて測定されたイオン電流を電流積分器によって積分した電荷量より求めた. 20 keV  $^4\text{He}$  の Ti 表面における捕獲効率およびスパッタリング収率は, それぞれ, 0.95<sup>5)</sup> および 0.058 atoms/ion<sup>6)</sup> であり, 投影飛程は約  $0.12 \mu\text{m}$ <sup>7)</sup> であるので, Ti 表面の浸食等による  $^4\text{He}$  の再放出は無視できる. また, 多量の  $^4\text{He}$  イオン注入により試料表面にプリスタリングやフレイキングが生じ,  $^4\text{He}$  の再放出が起る場合がある<sup>8)</sup>. 本実験での  $^4\text{He}$  注入量はこれらの現象が起ら

ない程度の範囲に限定したが、確認のため  $^4\text{He}$  注入後の Ti 板表面を走査型電子顕微鏡により観察した。試



**Fig. 3** Results of the number of He atoms implanted in Ti samples measured by the He atom measurement system. The solid line is a equation of  $y=x$  and means that the number of He atoms measured by the He atom measurement system is equal to the number of He ions calculated from the implanted ion current. The dashed line is fitted to the data by using the equation  $y = ax$  with the least square method.

料表面の変形は認められなかった。

He 原子測定装置での測定値とイオン電流からの測定値を比較した結果を **Fig. 3** に示す。横軸が注入された  $^4\text{He}$  量であり、縦軸が He 原子測定装置による測定値である。実線は  $y=x$  を表し、He 原子測定装置による測定値とイオン電流からの測定値が一致していることを意味する。破線はデータに  $y=ax$  の直線を最小二乗法で当てはめたものであり、 $a=0.8\pm 0.2$  となる。直線性は良いが、この様に誤差の範囲ではあるにしても、全体的に  $y=x$  より低く出ているように見える。 $a$  の 1.0 からのずれが何らかの原因で生じたと考えられる。原因として次の 4 つが考えられる。

- i) Ti 試料作成の段階での注入  $^4\text{He}$  量測定の偏り。
- ii) He 原子測定装置による測定値の偏り。
- iii) He 注入後 He 原子測定装置による測定まで

の期間における Ti 板からの  $^4\text{He}$  の拡散放出。

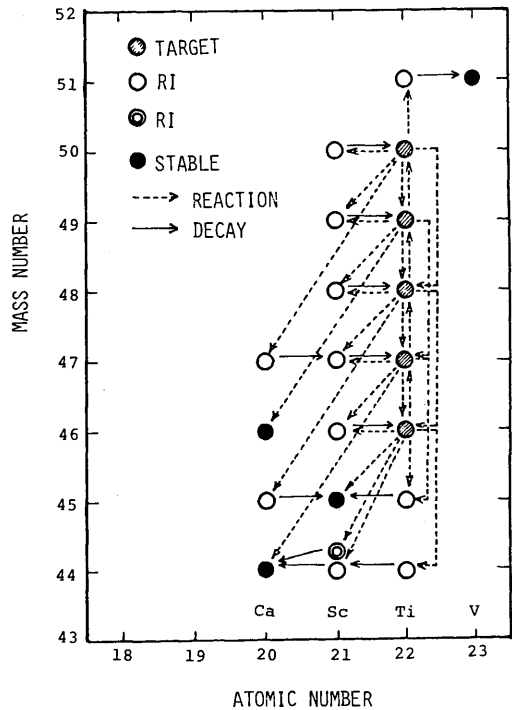
iv) Ti のゲッター効果による  $^4\text{He}$  の減少。

今迄の  $^4\text{He}$  注入 Al 試料の測定では、注入量の測定値と He 原子測定装置による測定値は一致していた<sup>1)</sup>ので、i) ii) は除外できる。 $^3\text{He}$  を標準ガスとして用いていたので、He の Ti による吸着があったと仮定しても  $^4\text{He}$  のみ選択的に吸着したとは考え難く、原因 iv) も除外できる。したがって、原因は iii) であろうと考えられるが、現時点ではこれを積極的に支持するデータはない。

### 3. Ti の誘導放射能

#### 3.1 Ti の誘導放射能の測定

( $n, \alpha$ ) 反応の断面積は一般的に小さいので、He 原



**Fig. 4** Related data in the calculation of induced activity in Ti. The hatched circles are target nuclei, the blank circles ground-state radioisotopes, the double circles isomers and the filled circles stable isotopes. The dashed arrows mean reaction processes and the solid arrows decay ones.

子測定装置を用いて<sup>4</sup>Heを測定する場合、中性子照射量に伴う他の反応による誘導放射能は大きくなる可能性があり、試料の取り扱いおよびHe集積法の測定装置の性質上、試料の放射能を十分に減衰させる冷却時間を設ける必要がある。したがって、事前にカプセル候補材の誘導放射能を測定し、適当な冷却時間を検討することが不可欠である。Tiに中性子を照射した場合に生成される放射性核種の関係をFig. 4に示す。

日本原子力研究所の核融合研究用中性子源(FNS)を用いて14 MeV中性子を照射したTi試料からのγ線を測定した。Ti試料は2, 3の実験と同様の8×8×0.2 mm, 公称化学純度99.487%のTi板を3枚用い、中性子束のモニタとして8×8×0.13 mm, 公称化学純度99.999%のNb板を3枚用いた。試料には、Ti-1~3, Nb-1~3と番号をつけ、重量はそれぞれ55.4, 56.2, 55.8, 76.6, 75.4, 77.5 mgであった。中性子源はD-T反応を用いた型のものであり、今回の測定における運転では、中性子照射時間が50時間、中性子総発生量が約 $4.2 \times 10^{17}$  n/4πであった。2週間の冷却時間の後、残留核のγ線測定により誘導放射能を求めた。Tiの残留核として<sup>46</sup>Sc (E<sub>γ</sub>=889, 1120 keV), <sup>47</sup>Sc (E<sub>γ</sub>=159 keV), <sup>48</sup>Sc (E<sub>γ</sub>=983, 1040, 1310 keV), Nbに対しては<sup>92m</sup>Nb (E<sub>γ</sub>=913, 934, 1850 keV)からのγ線が検出され、他の生成された放射性核種は、短寿命であるため検出されなかった。γ線の測定時間はすべて500 secであった。測定結果および<sup>93</sup>Nb (n, 2n) <sup>92m</sup>Nb反応断面積を用いて規格化された中性子束を用いて計算したTiの誘導放射能の計算結果をTable 2に示す。

### 3.2 Tiカプセルの誘導放射能の計算

以上の測定結果を誘導放射能計算の結果と比較した。Fig. 4中、破線の矢印は中性子反応を表わし反応

断面積のデータが、実線の矢印は崩壊を表わし半減期等の崩壊データが存在する。これらの核データを用いてTiの誘導放射能の計算を行う。計算は、<sup>92m</sup>Nbの放射能の測定値を再現するように中性子束を決定し、この中性子束および先に述べたと同様の中性子照射時間50時間、冷却時間2週間、重量は3枚の試料の平均を用いて行った。また、この結果を実験と比較するために、γ線によって測定した各試料の誘導放射能を重量を重みとして平均した。計算値(C)と測定値(E)の比C/Eは1.06~1.42である。

上と同様の計算方法と核データで、Tiをカプセルとして使用した場合の誘導放射能を評価した。He集積法の試料としてAl, カプセルとしてTiを用い、He原子測定装置による測定が可能なHe量をAlの(n, α)反応によって生成する場合のTiの誘導放射能を求めた。Al試料中に(n, α)反応によって生成され

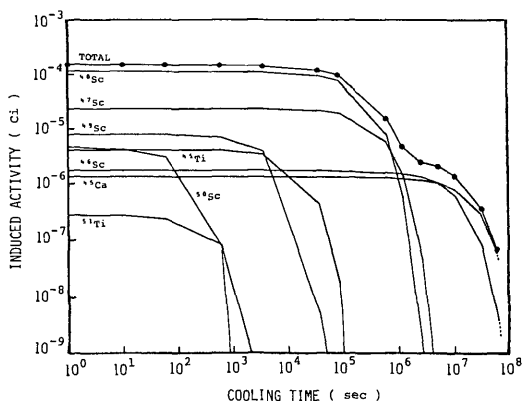


Fig. 5 Decay curves of induced activities in a Ti-capsule.

Table 2 Results of measured and calculated induced-activities by 14 MeV neutrons.

RI	Ti-1	Ti-2	Ti-3	Averaged Activity	Calculated Activity	C/E
<sup>46</sup> Sc	9.03±0.26	8.66±0.28	7.97±0.84	8.82±0.18	9.30	1.06
<sup>47</sup> Sc	6.01±0.39	6.56±0.41	5.89±0.40	6.15±0.15	8.73	1.42
<sup>48</sup> Sc	2.14±0.54	2.76±0.08	2.25±0.36	2.72±0.06	3.38	1.24

RI	Nb-1	Nb-2	Nb-3	Averaged Activity	Calculated Activity	C/E
<sup>92m</sup> Nb	386.9±4.1	388.9±1.0	405.4±3.5	394.6*±1.5	394.6	1.00

\* Neutron flux normalization by using this value

(unit : nCi)

る He 量を  $2 \times 10^{12}$  He atoms, Al 試料の重量を 40 mg, Al の  $(n, \alpha)$  反応断面積を 120 mb とすると, 中性子フルエンスは  $2 \times 10^{16}$  n/cm<sup>2</sup> 程度となる. 現在強力中性子源といわれる核融合研究用 14 MeV 中性子源での中性子束は  $\sim 1 \times 10^{11}$  n/cm<sup>2</sup> sec が限界であるので, 中性子照射時間を 50 時間とした. 円柱状になった Al 試料を厚さ 0.5mm の Ti 管と厚さ 1 mm の Ti の栓で封入すると仮定すると, Ti カプセルの総重量は 147.8 mg となった. このように試料に上記のような条件で中性子を照射した場合, 冷却時間を変化させて誘導放射能の減衰を計算した. 冷却時間と放射能の関係を Fig. 5 に示す. <sup>46</sup>Sc, <sup>48</sup>Ca がそれぞれ 83.80 日, 165 日の半減期を持つため, 1  $\mu$ Ci 以下になるためには約 5 ヶ月の冷却時間が必要である. これは冷却時間として長く, He 集積法により結果を出すまでの期間が長くなる. 前述の計算条件すなわちカプセルの大きさや中性子照射条件では, Ti をカプセル材として使用することは困難である. Ti カプセルの厚さを薄くし総重量を軽減するかもしくは, He 原子測定装置の測定限界を更に引き下げ, 中性子照射量を減らすことが可能になれば, 誘導放射能が低下し, 冷却時間を短縮できるので, Ti をカプセル材として用いることができる.

#### 4. 結 論

Ti のゲッター効果については, そのゲッター作用によって水素系のバックグラウンドを減減でき, トラップの負担を軽減できることがわかった. また, He 原子測定装置によって測定された He 量がイオン電流より計算された He 量と誤差の範囲で一致している. しかし, 傾向として He 原子測定装置による測定の方が小さめである原因として He の拡散放出が考え

られたが, これは消去法による議論に基づくもので, 更に実験によって確認すべき点である. 誘導放射能の計算により, 現時点での Ti カプセルのモデルでは実用的でない長期間の冷却時間が必要であることがわかった.

以下に, Ti カプセル使用の可能性について総合的に考察すると, ゲッター作用は有効であると共に, 条件に対応して, Ti カプセルにつき次の結論を得る.

- i) 融点が 1500~2000°C 程度と適当である.
- ii) He 生成断面積は 37 mb と小さい.
- iii) 誘導放射能は冷却時間をやや長くとする必要があるが, Ti の量の削減と測定限界を下げることで対応できる程度である.
- iv) He の Ti カプセル中での拡散透過は十分な確認は得られなかったが, その量は多くない.

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) 深堀智生他, 総合理工学研究科報告, 第 6 卷 1 号 (1984) 31.
- 2) H. Vonach; "Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements", INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, (1983, VIENNA) p. 59.
- 3) H. Farrar IV et al., Nucl. Tech. **25** (1975) 305.
- 4) D. W. Kneff et al., J. Nucl. Mater. **103&104** (1981) 1451.
- 5) W. Eckstein and H. Verbeek, J. Nucl. Mater. **76 & 77** (1978) 365.
- 6) N. Matsuzawa et al., Atomic Data and Nuclear Data Table **31** (1984) 1.
- 7) H. E. Shiott, Rad. Eff. **6** (1970) 107.
- 8) T. Fukahori et al. in: Proc. 1st Int. Conf. on Fusion Reactor Materials, 3-6 DEC. 1984 Tokyo (in printing).