

JAERI-M

8322

プルトニウム燃料用しゃへい型X線  
マイクロアナライザ

1979年7月

半田 宗男・大道 敏彦・塩沢 憲一  
福島 奨・荒井 康夫・平居 暉士\*

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

プルトニウム燃料用しゃへい型X線マイクロアナライザ

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部（大洗駐在）

半田 宗男・大道 敏彦・塩沢 憲一・

福島 奨・荒井 康夫・平居 暉士\*

（1979年6月13日受理）

プルトニウム燃料を安全に取扱うことができ、かつ、照射した燃料についても試験できるプルトニウム燃料用しゃへい型X線マイクロアナライザの設計、製作ならびに性能試験についてのべる。島津製作所製のASM-SX型EPMAを基本機種に選び次にのべる改造を加えた。(1)試料とX線検出器の間に厚さ20mmのタングステン合金製のしゃへい壁を設置した。(2)燃料からのβ線のシールドを電子線検出器に設けた。(3)試料導入用グローブボックスを製作してEPMAの試料室と結合し試料はすべて同グローブボックスから直接装填した。(4)このグローブボックスに試料表面処理装置を収納したグローブボックスを連結し、試料の表面処理、EPMAへの導入ならびに分析を一連の作業として実施できるように各装置を配列した。(5)プルトニウムで汚染したEPMAの保守ならびに修理作業をビニールバックで囲ったクローズド法で実施できるように約30項目にわたって改造した。このように大幅な改造を加えたにもかかわらず非放射性物質を用いた性能試験で基本機種のすぐれた性能がすべて保持されていることを確認した。さらに、照射燃料を模擬して $^{226}\text{Ra}$  10mCiを試料室に導入して特性X線の信号/ノイズ比を測定した結果、X線検出器に波高選別の機能を働かせれば $^{226}\text{Ra}$ のない場合と同程度の信号/ノイズ比を得ることができた。

\* 島津製作所第2科学計画事業部技術部

JAERI-M 8322

## Shielded Electron Microprobe Analyzer for Plutonium Fuel

Muneo HANDA, Toshihiko OHMACHI, Ken-ichi SHIOZAWA, Susumu FUKUSHIMA, Yasuo ARAI and Teruji HIRAI\*

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received June 13, 1979)

Design, construction and performance test of a shielded electron microprobe analyzer for plutonium fuel are described. In the analyzer, the following modifications were made to Shimadzu ASM-SX (analyzer): (1) a shield of tungsten alloy is incorporated between the sample and the X-ray detector to examine highly radioactive fuel, (2) a magnetic shield against  $\beta$ -rays from the fuel is fitted to the electron detector, (3) a small sample-loading glove box is installed to transfer plutonium fuel safely to the analyzer, (4) a glove box containing a sample-surface treatment apparatus and a balance is connected to the sample-loading glove box, (5) for maintenance and repair of the analyzer by means of closed method, about thirty modifications are made.

The performance test with nonradioactive materials showed that despite the above modifications, abilities of the original analyzer are all retained. And furthermore, the simulation test for irradiated fuel with  $^{226}\text{Ra}$  of dose rate 40 mR/hr at 30 cm showed that the X-ray peaks to noise ratios are unchanged by using a pulse height selector of the X-ray detector.

Keywords: Electron Microprobe Analyzer, Shielding X-Ray Detector, Sample-Loading Glove box, Surface Treating Apparatus, Signal-to-Noise Ratio, Irradiated Fuel, Performance Test

---

\*) Scientific Instrument Plant, Shimadzu Seisakusho Ltd.

## 目 次

1. はしがき .....	1
2. 概念設計 .....	3
2.1 照射燃料の EPMA .....	4
2.2 特性 X 線検出器および生体のしゃへい .....	7
2.2.1 EPMA に導入する照射済燃料の重量 .....	7
2.2.2 EPMA に導入する放射性物質質量 .....	7
2.2.3 しゃへい壁の材質および厚さ .....	7
2.3 EPMA 内部のプルトニウム汚染 .....	8
2.4 装置の配置 .....	8
2.5 基本機種の選定 .....	8
2.6 ASM-SX 型 EPMA の改造 .....	9
3. 装置の製作 .....	10
3.1 電子光学系 .....	10
3.2 光学観察系 .....	17
3.3 試料装置系 .....	17
3.4 X 線分光系および二次電子検出器 .....	20
3.5 制御系 .....	26
3.6 試料導入用グローブボックス .....	28
3.7 真空排気系 .....	29
4. 性能試験 .....	29
4.1 操作性および排気特性 .....	32
4.1.1 試料導入およびミラーの交換 .....	32
4.1.2 排気系 .....	32
4.2 非放射性物質を用いた試験 .....	32
4.2.1 X 線分光器 .....	32
4.2.2 試料電流の安定性 .....	32
4.2.3 分解能 .....	34
4.3 照射燃料を模擬したラジウム-226 による試験 .....	34
4.3.1 ラジウム-226 線源 .....	34
4.3.2 特性 X 線の S/N 比および X 線像 .....	34
4.3.3 $\beta$ 線のしゃへい .....	39
5. あとがき .....	39
付 録 .....	42

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Conceptual design .....	3
2.1 EPMA for irradiated fuel .....	4
2.2 Shielding for X-ray detector and operator .....	7
2.2.1 Weight of irradiated fuel .....	7
2.2.2 Radioactivity of irradiated fuel .....	7
2.2.3 Material and depth of shielding .....	7
2.3 Plutonium contamination in EPMA .....	8
2.4 Layout of apparatus .....	8
2.5 Selection of basic apparatus .....	8
2.6 Modification of ASM-SX-type EPMA .....	9
3. Construction of apparatus .....	10
3.1 Electronic optical system .....	10
3.2 Microscope system .....	17
3.3 Specimen drive system .....	17
3.4 X-ray spectrometer and electron detector .....	20
3.5 Electron and X-ray control system .....	26
3.6 Sample loading glove box .....	28
3.7 Vacuum exhausting system .....	29
4. Performance tests .....	29
4.1 Operation and exhausting characteristic .....	32
4.1.1 Sample loading and mirror exchange .....	32
4.1.2 Vacuum exhausting system .....	32
4.2 Performance tests used nonradioactive sample .....	32
4.2.1 X-ray spectrometer .....	32
4.2.2 Stability of sample current .....	32
4.2.3 Resolving power .....	34
4.3 Performance tests simulated irradiated fuel with $^{226}\text{Ra}$ .....	34
4.3.1 $^{226}\text{Ra}$ source .....	34
4.3.2 Signal to noise ratios of X-ray intensity and electron and X-ray images .....	34
4.3.3 Discrimination of $\beta$ -ray .....	39
5. Summary .....	39
Appendix .....	42

## 図表および写真一覧表

- Fig.1 燃料研究棟107号室の配置
- Fig.2 装置の組立図
- Fig.3 電子光学系のクリーニング法
- Fig.4 対物鏡およびミラーの交換法
- Fig.5 試料装填法
- Fig.6 シャへの配置
- Fig.7 X線分光器および2次電子検出器の配置
- Fig.8 コリメータの交換法
- Fig.9 排気系概略図
- Fig.10 新機構 ガスラインフィルタ
- Fig.11 試料電流の安定性
- Fig.12 ラジウムを導入したとき、およびしないときのLiF分光結晶のS/N比
- Fig.13 ラジウムを導入したとき、およびしないときのPbSD分光結晶のS/N比
- Table 1 照射燃料用のEPMA
- Table 2 照射燃料の放射能およびγ線エネルギー
- Table 3 X線分光器の性能試験
- Photo.1 装置の全景
- Photo.2 EPMA本体と試料導入用GBの連結
- Photo.3 6試料交換装置
- Photo.4 分解能
- Photo.5 ラジウムを導入したときの電子線および特性X線像

Lists of figures, tables and photographs

- Fig. 1 Microprobe laboratory layout
- Fig. 2 Configuration of shielded EPMA for plutonium fuel
- Fig. 3 Cleaning of electronic optical system
- Fig. 4 Exchange method of objective aperture and mirror
- Fig. 5-1 Sample loading schematic
- Fig. 5-2 Section of the connection between sample loading glove box and EPMA proper
- Fig. 6 Shielding in the microprobe column and in X-ray detector
- Fig. 7 Distribution of spectrometers and electron detector
- Fig. 8 Collimator exchanging schematic
- Fig. 9 Vacuum exhausting system
- Fig. 10 Gas line filter with new exchange mechanics
- Fig. 11 Stability of sample current
- Fig. 12 Signal to noise ratios of X-ray for LiF diffraction crystal with or without  $^{226}\text{Ra}$
- Fig. 13 Signal to noise ratios of X-rays for PbSD diffraction crystal with or without  $^{226}\text{Ra}$
- 
- Table 1 Electron microprobe analyzer for irradiated fuel
- Table 2 Radioactivity and  $\gamma$ -ray dose of irradiated fuel
- Table 3 Performance tests of X-ray spectrometers
- 
- Photo. 1 Complete view of shielded EPMA for plutonium fuel
- Photo. 2 Connection between EPMA proper and sample loading glove box
- Photo. 3 Six samples selecting device
- Photo. 4 Resolving power
- Photo. 5 Electron and X-ray scanning images with  $^{226}\text{Ra}$



## 1. は し が き

X線マイクロアナライザ(またはマイクロ分析)(Electron Probe Microanalyzer or Microanalysis: 以下EPMAと省略)を燃料の照射後試験にはじめて使用したのは、英国ハウエル研究所のBradberyらである<sup>1)</sup>。照射済燃料など放射性物質を含んだ試料についてEPMAを行う場合、試料から放出される強い $\gamma$ 線で特性X線検出器のバックグランドが高くなり特性X線の測定が妨害される。この問題を解決するためにBradberyらは、燃焼率4.6%の二酸化ウラン燃料をホットラボラトリで厚さ0.5mmまで研磨しEPMAに導入する放射性物質量を最小限に抑える「小試験片法」(Small Sample Method)を考案して、市販のEPMAを用いて試験した。この結果、燃料中心部に数 $\mu$ の球状析出物を多数観測し、この析出物がモリブデン、ルテニウム、セリウム、バリウムなどの固体状核分裂生成物から構成されていることを明らかにした。この研究は、それまで燃料中のガス状核分裂生成物の挙動に限定されていた原子炉燃料化学の研究を固体状核分裂生成物の挙動の解析まで拡大した画期的な成果であった。

その後Jefferyらは、高放射性物質についてEPMAを行う場合、特性X線検出器にしゃへいを取付けて(このしゃへいはX線検出器とともに動くので移動型しゃへいと呼ばれている)試料からの強い $\gamma$ 線を阻止することにより検出器のバックグランドを約百分の1に抑えることができることを報告した<sup>2)</sup>。このX線検出器にしゃへいを有した装置をしゃへい型EPMAと呼んでいる。

最初の商用しゃへい型EPMAは、Materials Analysis Corporationで設計製作されたMAC-450型である<sup>3)</sup>。この装置には上述の移動型しゃへいに代えて試料とX線検出器の間にしゃへい壁(固定型しゃへい)が設置された。しゃへいの効率という点では移動型がすぐれている。しかし、移動型ではしゃへいをX線検出器とともに動かす必要があり、その移動機構の強化には限界がある。初期のMAC-450型では、ホットケープで表面を研磨した燃料をタングステン製のキャスクに入れて運搬し、このキャスクをEPMAの試料室に結合して試料を装置に導入する方法が採用されている。MAC-450型EPMAの特長はホットケープ内での照射燃料の加工をあまり行わなくて良いことである。反面、X線検出器および装置の運転者の生体しゃへいとしてそれぞれタングステン合金で約80mmおよび110mmの厚い壁が必要である。この110mmの厚いしゃへいの設置に伴って光学顕微鏡の経路が長くなって視野が暗くかつ制限された。また、試料の微動機構も傾いた面でのX軸と回転のみに妥協するなど装置の操作性は大きく限定された。さらに照射試料をキャスクに入れて移動するため多大の労力が必要であるほかキャスクを取りはずした面の除染作業が大変であった。このキャスクの使用に関しては、EPMAをホットラボラトリの近くに設置して試料をセルから直接EPMAに導入する方法がとられるようになった<sup>4,5)</sup>。

さて、Bradberyらによって考案された「小試験法」では試料とX線検出器の間に鉛50mm程度の簡単なしゃへいを設けてバックグランドを下げるほか<sup>6,7)</sup>、必要な場合には

運転者の生体しゃへいとして試料室を同様に50mm程度の鉛で取り囲む方法がとられている<sup>8)</sup>。その後試料の切断ならびに研磨を不活性ガス雰囲気中で行い化学的に活性な核分裂生成物の変質を防止した条件でEPMAが行われるようになった<sup>9)</sup>。

しゃへい型EPMAの技術が向上するにつれて、EPMAは燃料の健全性の研究開発に威力を発揮するようになった。現在、液体金属冷却高速増殖炉(LMFBR)用燃料として、ウラン・プルトニウム混合酸化物をステンレス鋼で被覆した燃料ピンが使用されている。この燃料ピンを高燃焼率まで照射したとき、ステンレス鋼被覆材の内壁に10~100 $\mu$ mの粒界腐食が観測された<sup>10,11)</sup>。この燃料と被覆材の化学的相互作用(FCCI)は、照射後のEPMAで、腐食された部分にセシウム、テルル、ヨウ素、モリブデンなどの核分裂生成物に加えて大量の酸素が検出された。したがって、FCCIは燃料の燃焼に伴って生じた余剰酸素に核分裂生成物が関与して生じた被覆材の酸化反応であることが判明した<sup>12)</sup>。さらに照射開始直後、燃料の半径方向に生じる温度こう配(約2000 $^{\circ}$ C/3mm)によって、燃料中心部の酸素が周辺部に移動する「酸素の再分配現象」(Oxygen Redistribution)が起る。このため、FCCIに関係する燃料表面近くの酸素ポテンシャル( $4G_{O_2} = RT \ln P_{O_2}$ ; R=ガス定数, T=温度,  $P_{O_2}$ =酸素分圧)が高くなることが熱力学的に予測されている。Johnsonらは、この半径方向の酸素ポテンシャルを、核分裂生成物の金属モリブデンと二酸化モリブデンの存在比を測定することにより測定した。その結果照射によって燃料母材のみでは酸素ポテンシャルは大きくなるが、実際の燃料ピン中では燃料被覆材のステンレス鋼が酸素のシンクとして作用するために酸素ポテンシャルは照射によって小さくなることを見出した<sup>13)</sup>。このように、しゃへい型X線マイクロアナライザは、燃料健全性の確立にとって必須の装置となっている。

さて、我国においては、動力炉核燃料開発事業団が昭和46年MAC-450型EPMAを輸入して、大洗工学センタの $\alpha$ - $\gamma$ 燃料試験施設において使用してきたが現在照射燃料試験施設に移設中である。プルトニウム燃料用のEPMAは、同じく動力炉核燃料開発事業団において、島津製作所製のEMX-SX型EPMAが使用されている。

燃料研究棟は、LMFBR用の新型燃料であるウラン・プルトニウム混合炭化物、窒化物、炭窒化物などの研究を促進するために昭和49年に大洗研究所に建設された。新型燃料は、現在使用されている酸化物燃料に比べて熱伝導率が3~5倍大きいことおよび核分裂性物質密度が約30%高いために、酸化物燃料の倍增時間約30年に比べて、約10年の短い倍增時間を有している<sup>14)</sup>。燃料研究棟には、これまでに燃料調製ライン、X線分析装置、化学分析ライン、金相試験ライン、高温物性測定装置などが整備され、すでにウラン・プルトニウム混合燃料を用いた実験が行われている。これらの諸装置の整備に続いて現在照射燃料ピン製作ラインの設計、製作が進められている。当初の計画では、燃料研究棟にEPMAを設置することは予定されていなかったが、同研究棟に既設の諸装置とEPMAを組合せて使用することが同燃料の開発に有力な手段であることが認識され透過型電子顕微鏡に代えてプルトニウム燃料用しゃへい型EPMAを整備することになった。

さて、これまでのべてきたように我国においてはしゃへい型EPMAの運転経験はあるが設計、製作については経験が少ない。したがって、しゃへい型EPMAの整備にあたって、はじ

めに諸外国で使用されているしゃへい型EPMAについて調査した。続いて、動力炉核燃料開発事業団のMAC-450型EPMAを見学し、装置内部のプルトニウム汚染度など貴重な情報の提供を受けた。これらの調査に基づいて燃料研究棟に整備するEPMAは、市販装置の一つを選んでこれを基本機種とし、プルトニウム試料を安全に取扱うことができ、かつプルトニウムで汚染した装置の保守ならびに修理を原研のプルトニウム実験施設の床表面汚染の管理基準 $20\text{ dpm}/100\text{ cm}^2$ <sup>15)</sup>をじゅん守して実施できるように大巾に改造を加えることにした。照射済燃料のEPMA法としては「小試験片法」を採用し、試料と特性X線検出器に移動および固定の両しゃへいを設置した。外観上基本機種の原形をとどめないほどの改造を加えたにもかかわらず、完成したしゃへい型EPMAは、基本機種のすぐれた諸性能をほぼ保持していることを確認した。さらに、照射燃料を模擬して、ラジウム-226 10 mCiを試料室に導入して、特性X線の信号/ノイズ(以下S/Nと省略)比を測定した結果、X線検出器の波高分析の機能を作動させれば、非放射性物質についてのS/N比とほぼ同程度の値を得ることができることがわかった。

本装置の仕様検討は、昭和52年4月に開始され、燃料研究棟への据付は予定どおり昭和53年3月末に終了した。その後同年7月原子力安全局の施設検査を受けて合格し、同年8月53安(核規)第194号をもってプルトニウムの取扱いが認可された。なお、本装置と平行して整備を進めた表面処理装置および同装置を収納したグローブボックスについては別報にて報告する。

## 2. 概 念 設 計

燃料研究棟のEPMAについて仕様の検討を進める過程で次にのべる基本設計を決定した。

(1) 本装置は、EPMA自体を新たに設計製作するのではなくて、市販の1機種を選んでこれを基本機種として必要な改造を加える。

(2) プルトニウムを安全に取扱うために、小型の試料導入専用のグローブボックス(以下GBと省略する)を製作し、EPMAの試料導入口をこのGBに結合して、試料を直接GBからEPMAに装填できるように改造する。

(3) エッチング、スパッタリングおよび蒸着の機能を備えた表面処理装置を製作しGBに収納する。この試料表面処理GBと上述した試料導入用GBを連結し、試料の表面処理、EPMAへの導入、およびEPMAを一連の作業として実施できるように各装置を配列する。

(4) 原研におけるプルトニウム実験施設の床表面 $\alpha$ 汚染の管理基準は、 $20\text{ dpm}/100\text{ cm}^2$ である。これは天然に存在するラドン、トロンなどの $\alpha$ 放射性物質から考えて「零汚染管理」と呼ばれている<sup>15)</sup>。この汚染管理基準をじゅん守して装置の保守ならびに修理作業を行うことができるように、装置の保守ならびに修理作業をすべてビニールバックで囲った中で行う「クローズド法」で実施できるように改造する。

(5) 照射済燃料のEPMA法として「小試験片法」を採用する。試料と特性X線検出器の間にしゃへい壁をまた特性X線検出器にも必要なしゃへいを増設する。

めに諸外国で使用されているしゃへい型EPMAについて調査した。続いて、動力炉核燃料開発事業団のMAC-450型EPMAを見学し、装置内部のプルトニウム汚染度など貴重な情報の提供を受けた。これらの調査に基づいて燃料研究棟に整備するEPMAは、市販装置の一つを選んでこれを基本機種とし、プルトニウム試料を安全に取扱うことができ、かつプルトニウムで汚染した装置の保守ならびに修理を原研のプルトニウム実験施設の床表面汚染の管理基準 $20 \text{ dpm}/100 \text{ cm}^2$ <sup>15)</sup>をじゅん守して実施できるように大巾に改造を加えることにした。照射済燃料のEPMA法としては「小試験片法」を採用し、試料と特性X線検出器に移動および固定の両しゃへいを設置した。外観上基本機種の原形をとどめないほどの改造を加えたにもかかわらず、完成したしゃへい型EPMAは、基本機種のすぐれた諸性能をほぼ保持していることを確認した。さらに、照射燃料を模擬して、ラジウム-226  $10 \text{ mCi}$ を試料室に導入して、特性X線の信号/ノイズ(以下S/Nと省略)比を測定した結果、X線検出器の波高分析の機能を作動させれば、非放射性物質についてのS/N比とほぼ同程度の値を得ることができることがわかった。

本装置の仕様検討は、昭和52年4月に開始され、燃料研究棟への据付は予定どおり昭和53年3月末に終了した。その後同年7月原子力安全局の施設検査を受けて合格し、同年8月53安(核規)第194号をもってプルトニウムの取扱いが認可された。なお、本装置と平行して整備を進めた表面処理装置および同装置を収納したグローブボックスについては別報にて報告する。

## 2. 概 念 設 計

燃料研究棟のEPMAについて仕様の検討を進める過程で次にのべる基本設計を決定した。

(1) 本装置は、EPMA自体を新たに設計製作するのではなくて、市販の1機種を選んでこれを基本機種として必要な改造を加える。

(2) プルトニウムを安全に取扱うために、小型の試料導入専用のグローブボックス(以下GBと省略する)を製作し、EPMAの試料導入口をこのGBに結合して、試料を直接GBからEPMAに装填できるように改造する。

(3) エッチング、スパッタリングおよび蒸着の機能を備えた表面処理装置を製作しGBに収納する。この試料表面処理GBと上述した試料導入用GBを連結し、試料の表面処理、EPMAへの導入、およびEPMAを一連の作業として実施できるように各装置を配列する。

(4) 原研におけるプルトニウム実験施設の床表面 $\alpha$ 汚染の管理基準は、 $20 \text{ dpm}/100 \text{ cm}^2$ である。これは天然に存在するラドン、トロンなどの $\alpha$ 放射性物質から考えて「零汚染管理」と呼ばれている<sup>15)</sup>。この汚染管理基準をじゅん守して装置の保守ならびに修理作業を行うことができるように、装置の保守ならびに修理作業をすべてビニールバックで囲った中で行う「クロズド法」で実施できるように改造する。

(5) 照射済燃料のEPMA法として「小試験片法」を採用する。試料と特性X線検出器の間にしゃへい壁をまた特性X線検出器にも必要なしゃへいを増設する。

(6) 市販品に大巾な改造を加えるが、その性能はすべて保持するように努める。

さてこのような設計の基本方針を選んだ総括的な理由を以下にのべる。

(1) ホットラボラトリで照射済燃料を 0.1 ~ 0.2 mm 厚さの薄片試料の加工技術が確立されれば「小試験片法」で高燃焼率の燃料についても十分試験できる。

(2) 特性 X 線の S/N 比を考慮した場合、少量の放射性物質を取扱う「小試験片法」が有利である。

(3) MAC-450 型方式を採用するためには、ローランド円を大きくする (MAC-450 のローランド円は 11 インチ) など EPMA を新たに設計製作する必要がある。

(4) ホットセルから直接試料を EPMA に導入する方法は燃料研究棟にはホットセルがなく採用できない。

(5) シャへい壁の設置およびプルトニウムの安全取扱いに重点をおいて製作し、この経験を基にして将来必要と判断したとき装置全体に生体シャへいを増設するか、または新たに生体シャへい付の装置を製作することが望ましい。

## 2.1 照射燃料の EPMA

シャへい型 EPMA の設計に着手するにあたり、まず、世界各国における照射燃料用の EPMA の現状について調査した。特に、X 線検出器および生体シャへい壁の厚さ、ホットラボラトリで調製した照射燃料の厚さと放射線強度、試料の EPMA への導入方法などに着目してまとめた結果を Table 1 に示す。Table 1 のうち MAC-450, Norelco AMR-3, AEI-SEM-2, Micro Scan 5 は X 線検出器および生体シャへいの両方を備えている。初期の MAC-450 および Norelco AMR-3 では、試料を特製のキャスクに入れて運搬する方式を採用しており、放射性物質としては 100 R/hr 程度まで取扱うことができる。AEI-SEM-2, および Micro Scan-5 では、試料をセルから直接装置に導入する方法がとられている。MAC-450 および Norelco AMR-3 以外はすべて「小試験片法」を採用している。この「小試験片法」は次のように分類できる。

(1) X 線検出器のシャへいに加えて鉛で 50 mm 以下の簡単な生体シャへいを設け、試料はホットラボラトリのセルから直接装填する。試料の放射能としては 60 cm 離れた場所で 4 R/hr 程度まで取扱う。

(2) X 線検出器のみにシャへいを設置する。試料の放射能は 30 cm 離れた場所で 1 R/hr 以下を基準とする。

(3) X 線検出器および生体シャへいとも設けない。試料の線量は 30 cm 離れた場所で 100 mR/hr 以下とする。

燃料研究棟に整備する EPMA は、同棟における研究計画を考慮した結果、第 2 の方法が最適であると判断した。

Table 1 Electron microprobe analyzer for irradiated fuel

Laboratory	Apparatus	Shielding(cm)		Sample Burnup (%)	Depth (mm)	Dose (mR/hr)		Sample loading method	Cell atmosphere	Literatures
		Sample	Operator			Sample	Apparatus			
Harwell	Cameca	0	0	4.6	0.5	12 at 30 cm	---	---	Air	1
Harwell	Micro Scan-5	Lead 2.5	Lead	10 100 d Cooled	0.125	40-1000 at 30 cm	---	Directly from cell	Air	4
Dounrey	AEI-SEM-2	Dep. Uranium 2.5	Dep. Uranium 2.5	---	0.2-0.3	4000 at 60 cm	0.1 at Opr. desk	Directly from cell	Air	8
Euratom Joint Res. Center	Cameca	Lead 3	0	2-20	Particle dia. 0.2	1000-2000 at 5 cm	---	Cask	Air	16
Vallecitos Nucl. Center	MAC-450	Tungsten 8	Tungsten 11	10 60 d cooled	1.5	Max. 100,000	25	Cask	Air	17
Oak Ridge Nat. Lab.	MAC-450	Tungsten 8	Tungsten 11	---	0.25-0.75	Max. 100,000	25	Directly from cell	Air	5
Power Reactor & Nucl. Fuel Develop. Co.	MAC-450	Tungsten 8	Tungsten 11	8.9	3.0	Max. 100,000	25	Cask	Air	18
Westinghouse Hanford Lab.	MAC-450	Tungsten 8	Tungsten 11	---	---	Max. 100,000	10	Cask	Air	19
Argonne Nat. Lab.	MAC-450	Tungsten 8	Tungsten 11	10	---	Max. 100 Ci	25	Directly from cell	Air	20
Pratt & Whitney Aircraft	Norelco AMR-3	Lead 5	Lead 3.7-7.5	---	---	Max. 100,000	10	Cask	Air	21

Table 1 Continued

Argonne Nat. Lab. (CEN)	ARL-EMX	Lead or Platinum 5	0	---	---	40-1000 at 30 cm	---	Helium	6,9
Argonne Nat. (MSD)	ARL-EMX	0	0	2.7 80 d cooled	0.15	140 at 30 cm	---	Nitrogen	22
Bettis Atomic Power Lab.	ARL-EMX	0	0	0.65	0.025 -0.125	1-6 at 30 cm	---	Air	24
Karlsruhe Establ.	Gamma MS-46	0	0	---	---	---	---	---	25

\* No description in the literature

Table 2 Radioactivity and  $\gamma$  Ray dose of irradiated fuel

( $U_{0.8}Pu_{0.2}$ )C fuel: dia. 8mm depth 0.15mm, BU 10%, cooled for 1 year

Nuclides	Radioactivity (Ci)	Energy (MeV)	$\gamma$ Ray dose (mR/hr)		
			at 30 cm	at 100 cm	at 30 cm with W shielding
$^{95}Zr$	$6.4 \times 10^{-3}$	0.75	29	2.6	3.0
$^{95}Nb$	$3.7 \times 10^{-3}$	0.77	17	1.5	1.8
$^{106}Ru$	$1.0 \times 10^{-1}$	0.36	180	16.2	0.5
$^{137}Cs$	$7.8 \times 10^{-3}$	0.66	28	2.5	0.9
$^{144}Ce$	$5.7 \times 10^{-2}$	0.13	11	1.0	$\sim 0$
Total	$1.75 \times 10^{-1}$		265	23.8	6.2

## 2.2 シャーヘイ

はじめに、EPMAに導入する照射燃料の重量、放射性物質質量、主要核分裂生成物、放出される $\gamma$ 線エネルギーについて推測する。得られた結果に基づいてX線検出器のシャーヘイ厚さおよび生体シャーヘイを設置するか否かについて考察する。

### 2.2.1 EPMAに導入する照射済燃料の重量

高速増殖炉用の新型燃料を対象とするため、試験する燃料の直径は、現在使用されている酸化物燃料(約6mm)よりも太い8mmとした。燃料の研磨は0.15mm厚さまでできると仮定した。重元素密度は( $U_{0.8}Pu_{0.2}$ )Cの理論値 $12.96\text{g/cm}^3$ に、実際に使用される燃料の理論密度に対する比率0.8を乗じて $10\text{g/cm}^3$ を用いた。これらの仮定からEPMAに導入する重元素重量は約75mgと計算される。

### 2.2.2 EPMAに導入する放射性物質および生体シャーヘイ

重元素75mg中 $^{239}\text{Pu}$ の重量は15mgである。 $^{235}\text{U}$ 重量は濃縮度25%のものを使用すると仮定して同じく15mgである。ここでは厳密な計算は必要ないので75mg中核分裂性物質質量は $^{239}\text{Pu}$ 30mgと仮定した。

1年間で燃焼率10%まで照射し、その後1年間冷却した試料に含まれている放射性物質質量を、Hunter-Ballow Tableで1年冷却後全放射能にしめる割合が1%以上の核種( $\beta$ 線放出核は除く)について、ANL-5742のTable 13を利用して計算した。続いて、 $\gamma$ 線放射定数を乗じて、30cm離れた場所(特性X線検出器の設置されている場所と仮定)および100cm離れた場所(EPMAを操作する運転者がいる場所と仮定)における線量率を計算した結果をTable 2に示す。Table 2に示したように30cm離れた場所の $\gamma$ 線量は $265\text{mR/hr}$ でありこのうち約70%は $^{106}\text{Ru}$ によるものである。100cmの場所では $23.8\text{mR/hr}$ でありこの程度の線量であればシャーヘイなしで十分EPMAを操作できると考えられる。このため今回整備するEPMAには生体シャーヘイを設けないことにした。

### 2.2.3 X線検出器のシャーヘイ壁の材質および厚さ

シャーヘイ壁を設置できる空間は、非常に限定されていることおよび加工を行う必要があるなどの理由からシャーヘイ材として鉛よりもシャーヘイ能が高くかつ加工性もすぐれたタングステン合金を採用した。EPMAを加速電圧20kV、試料電流100nAと一般的に使用する条件で運転したとき、特性X線検出器のある場所(試料から30cm)の特性X線の線量率は約 $10\text{mR/hr}$ である<sup>4)</sup>。Table 2に示したように厚さ20mmのタングステン合金製のシャーヘイ壁を設ければ、試料から受けるX線検出器の $\gamma$ 線量を特性X線のそれとほぼ同程度に抑えることができる。このシャーヘイ壁を通過する $\gamma$ 線の約70%は $^{95}\text{Zr}$ および $^{95}\text{Nb}$ から放出されるもので、そのエネルギーは約0.8MeVである。EPMAの特性X線検出器としては、一般に比例計数管が使用されている。この比例計数管は、 $\gamma$ 線を波高選別する機能を備えているので照射試料について実際にEPMAを行うさいは、このシャーヘイ壁を通過した高いエネルギーの $\gamma$



線と数10 keV以下のエネルギーの特性X線は容易に選別して測定できる。したがって、波高選別の機能を働かせたとき問題となるX線検出器のノイズは、照射試料から放出された $\gamma$ 線が、特性X線を分光器に取入れるためにしゃへい壁のない部分を通して分光器に入り、分光器を構成している種々の物質によってコンプトン散乱されたものおよび吸収されて特性X線と同程度のエネルギーを持った蛍光X線として放出されるものである。これらのX線量を推定または計算することはむずかしいので、Table 2に示した諸外国での小試験片法で用いられているしゃへい壁の実例をもとにX線検出器に厚さ20 mmのタングステン合金製のしゃへい壁を設置することにした。

### 2.3 EPMA内部のプルトニウム汚染

我国における照射済燃料のEPMAは、動力炉核燃料開発事業団におけるMAC-450型によるものが唯一の経験である。このため、同装置の各部の汚染レベルについて情報を提供を受けた<sup>25)</sup>。その結果、試料室内壁、対物絞りなどのプルトニウムのルーズ汚染は、 $10^5 \sim 10^6$  dpm/100 cm<sup>2</sup>、核分裂生成物による $\gamma$ 汚染は試料室で1-2 mR/hrであることがわかった。これに対して、電子銃室、X線分光器キット、分光結晶、X線検出器などはほとんど汚染されていないが、これらの部分に排気口がないことが必要条件であった。

これらのデータから、試料室は一般に使用されているGBと同程度にプルトニウムで汚染されると判断した。また、X線分光器キットなどが汚染されないのは、80 mmのタングステンしゃへい壁に設けられた小さな穴を経由して常時排気されているためであると考えられる。従って、これらの部分もある程度プルトニウムで汚染されると考えて設計を進めた。

### 2.4 装置の配置

試料の樹脂押込みおよび表面の研磨は、燃料研究棟101号室に設置された金相ラインGBを用いて行う。この試料を107号室に運び試料表面処理GBにバッグインする。同GBには、試料表面処理装置のほかに核燃料の計量管理および試料を秤量するために化学天秤が設置されている。表面処理を行った試料は隣の試料導入用GBに移し、このGBから直接EPMAに装てんする。107号室の各装置は、建屋壁面から100 cm以内には、移動のむずかしい装置の設置をさけて、室内が万一プルトニウムで汚染したときハウエル型加圧服などを着用して除染作業を行えるように配置した。

### 2.5 基本機種を選定

国内で市販されている代表的なEPMA4機種を選んで、これまでにのべた改造ならびに保守作業の難易について調べた。また、標準試料数種について定性ならびに定量分析を実施してその性能についても検討した。調査した4機種は、日本電子のJXA-50A型、日立製作所のX-560型、島津製作所のEMX-SX型およびASM-SX型EPMAである。得られた結果から

島津製作所製のASM-SX型EPMAを基本機種に選定したがその理由について以下にのべる。

- (1) ASM-SX型EPMAには、電子光学系の光軸部分に薄肉パイプが設置されている。この薄肉パイプを交換すれば、電子光学系全体を解体してクリーニングする必要はなく、プルトリウムで汚染される電子光学系の保守を容易に行うことができる。
- (2) EPMAへの試料導入口が、装置の側面に設けられている。このため試料導入用GBを結合しても、試料ステージの操作が妨害されない。
- (3) X線分光器キットおよび電子光学系のプルトリウム汚染レベルを低く保つためには、2、3節でのべたようにこれらの場所に排気口がないことが必要条件である。ASM-SX型EPMAはこの条件を満している。
- (4) 試料を試料導入用GBを経由して試料ステージにセットする操作を確実に行うことができるように、セット時の状況を観察できる窓が設けられている。
- (5) 対物絞りが光学顕微鏡用の反射ミラー内に取付けられている。この対物絞りはプルトリウムで汚染した部品のうちで最もひん繁に交換を要するものである。試料交換機構と同一方法を用いればミラーとともに試料導入用GB内から交換することが可能である。
- (6) 高速度鋼を用いた定性分析、磁気テープによる分解能試験および酸化ジルコニウムおよびカルシウムセラミック中のジルコニウムおよびカルシウムの定量分析などの性能試験を行った。その結果、定量試験結果に各社でかなりの差異が見られたが、装置の操作性、データの表示法など各社それぞれに特長があり、性能は大差ないと判断した。

付録にASM-SX型EPMAの基本仕様を示す。

## 2.6 ASM-SX型EPMAの改造

改造は、照射試料のEPMAを行うことができるように装置の性能上付加したものおよび装置がプルトリウムで汚染されたのち装置の保守ならびに修理を行うために加わられたものとに区別される。本節では重要な改造の項目を列挙するとどめ、詳しくは次章でのべる。

〔性能上の改造〕

- (1) 試料とX線検出器の間に20mm厚さのタンガステン合金のしゃへいを設置する。
- (2) X線検出器前に三段に切換えられるコリメータを設ける。
- (3) 反射および2次電子検出器に、試料から放出される $\beta$ 線を阻止できる機能を付加する。

〔保守ならびに修理のための改造〕

- (4) 試料導入用GB設け、試料の導入はすべてグローブボックスから直接行う。
- (5) 試料導入GBからの振動伝達を防止するために金属溶接ベローズを設置する。
- (6) 対物絞りの交換を試料導入用GB内から行えるようにする。
- (7) 電子光学系の薄肉パイプをクローズド法で交換できるように改造する。
- (8) X線分光結晶および検出器をクローズド法で交換できるように交換口を増設する。
- (9) 反射および2次電子検出器をクローズド法で交換できるように約50mm後退した場所  
に取付ける。
- (10) ガスフロー型のX線検出器へのガス給排気パイプをすべて金属製に改める。

(11) 真空排気系配管をすべて金属製にする。この工事に伴って振動の伝達を防止するために金属フレキシブル管を増設する。回転ポンプ油のプルトニウム汚染を防止するために新機種ガスラインフィルタを設置する。電磁弁なども汚染しないようにガスラインフィルタを必要な場所に設ける。拡散ポンプ油を試料導入用GB内から交換できる配管を設置する。

(12) 真空計の測定子を試料導入用GB内に設置して容易に交換できるように改造する。

(13) 試料ステージなどの照明用ランプをすべて真空系外に設置する。

(14) 冷却水配管をすべて金属製に改め、防震のため溶接ベローズを設ける。また冷却水断水警報を増設する。

### 3. 装置の製作

2.4では装置の配置の概念について述べたが、完成した装置の実験室内における配置はFig. 1の様である。装置の組立概念はFig. 2に示すが、これらのうちEPMAのための排気系のうち荒引系である油回転ポンプは試料表面処理グローブボックスの架台内空間に収納した。Photo. 1に装置の全体を示す。

2.6では本装置の市販品からの改造点についてふれたが、本章では実際に製作した個々について詳しく述べる。なお、本装置の基となった市販のASM-SXについては、原理、画像処理の方法などを含めて、別に詳しく述べられている<sup>26)</sup>。従って、ここでは市販品からの改造点を中心とした記述にとどめる。本装置の構成は市販品のものと同様に電子光学系、光学観察系、試料装置系、X線分光系およびこれらの制御系からなっており、各々の項目に従って以下に記述する。また、プルトニウム用であるが故に重要な部分をしめるGB系と排気系について別に項目をもうけて説明する。

#### 3.1 電子光学系

電子光学系は電子銃部と鏡筒部に別けられ、両者の間にはゲートバルブが設けられているが、2.3で述べたようにゲートバルブより上部の電子銃のプルトニウム汚染はほとんどないと考えられる。このため、フィラメントの交換は電子銃部の真空を破ることにより市販品の場合と同様に行うことができる。しかし、ゲートバルブの下鏡筒部の汚染は無視することはできない。従って、電子線通路のクリーニングならびに、電子光学系部品の交換は特別に配慮した。Fig. 3にこの部分のクリーニング、部品交換の方式を示す。まず、電子銃部を取り外したあと、ビニールバックを“O”-リング溝に取りつける。この後ゲートバルブを取りはずして、鏡筒部を開放する訳であるが、ゲートバルブは重量物であるためこれをビニールバック内で取りはずすことは簡単な作業でない。このため、本装置には特別にゲートバルブ移動機構を設け、バルブをレバーにより持ち上げ、昇りきった所で図の様に回転させ、この状態で保持する。ビームデフレクターの取りはずしは、カメラレンズの交換に用いられるバイオネット方式を採用して、この取りはずしを容易にしている。この後、特別に考慮した工具を用いて取束レンズポール

(1) 真空排気系配管をすべて金属製にする。この工事に伴って振動の伝達を防止するために金属フレキシブル管を増設する。回転ポンプ油のプルトニウム汚染を防止するために新機種ガスラインフィルタを設置する。電磁弁なども汚染しないようにガスラインフィルタを必要な場所に設ける。拡散ポンプ油を試料導入用GB内から交換できる配管を設置する。

(2) 真空計の測定子を試料導入用GB内に設置して容易に交換できるように改造する。

(3) 試料ステージなどの照明用ランプをすべて真空系外に設置する。

(4) 冷却水配管をすべて金属製に改め、防震のため溶接ベローズを設ける。また冷却水断水警報を増設する。

### 3. 装置の製作

2.4では装置の配置の概念について述べたが、完成した装置の実験室内における配置はFig. 1の様である。装置の組立概念はFig. 2に示すが、これらのうちEPMAのための排気系のうち荒引系である油回転ポンプは試料表面処理グローブボックスの架台内空間に収納した。Photo. 1に装置の全体を示す。

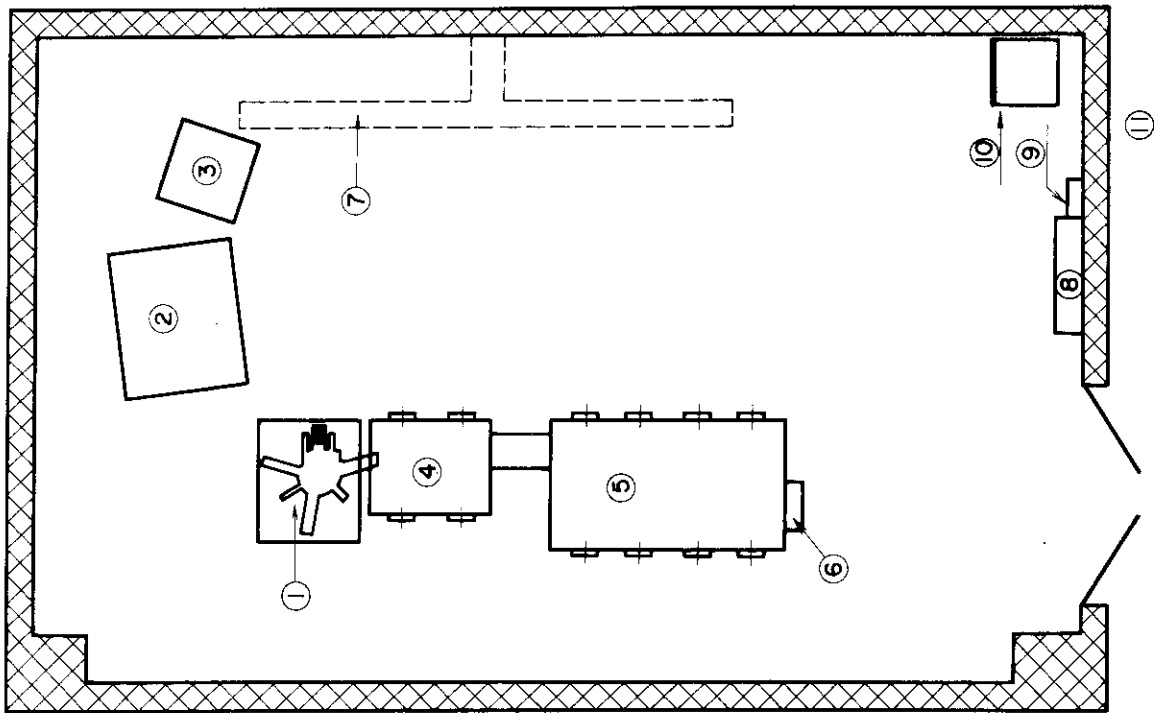
2.6では本装置の市販品からの改造点についてふれたが、本章では実際に製作した個々について詳しく述べる。なお、本装置の基となった市販のASM-SXについては、原理、画像処理の方法などを含めて、別に詳しく述べられている<sup>26)</sup>。従って、ここでは市販品からの改造点を中心にした記述にとどめる。本装置の構成は市販品のものと同様に電子光学系、光学観察系、試料装置系、X線分光系およびこれらの制御系からなっており、各々の項目に従って以下に記述する。また、プルトニウム用であるが故に重要な部分をしめるGB系と排気系について別に項目をもうけて説明する。

#### 3.1 電子光学系

電子光学系は電子銃部と鏡筒部に別けられ、両者の間にはゲートバルブが設けられているが、2.3で述べたようにゲートバルブより上部の電子銃のプルトニウム汚染はほとんどないと考えられる。このため、フィラメントの交換は電子銃部の真空を破ることにより市販品の場合と同様に行うことができる。しかし、ゲートバルブの下鏡筒部の汚染は無視することはできない。従って、電子線通路のクリーニングならびに、電子光学系部品の交換は特別に配慮した。Fig. 3にこの部分のクリーニング、部品交換の方式を示す。まず、電子銃部を取り外したあと、ビニールバックを“O”-リング溝に取りつける。この後ゲートバルブを取りはずして、鏡筒部を開放する訳であるが、ゲートバルブは重量物であるためこれをビニールバック内で取りはずすことは簡単な作業でない。このため、本装置には特別にゲートバルブ移動機構を設け、バルブをレバーにより持ち上げ、昇りきった所で図の様に回転させ、この状態で保持する。ビームデフレクターの取りはずしは、カメラレンズの交換に用いられるバイオネット方式を採用して、この取りはずしを容易にしている。この後、特別に考慮した工具を用いて取束レンズポール

Fig. 1 Microprobe laboratory layout

- 1 EPMA proper
- 2 Electron beam scanning console
- 3 Recorder
- 4 Sample loading glove box
- 5 Surface treating glove box
- 6 Bag port
- 7 Duct
- 8 Switch board
- 9 Alarm board
- 10 Exhaust grille
- 11 Passage



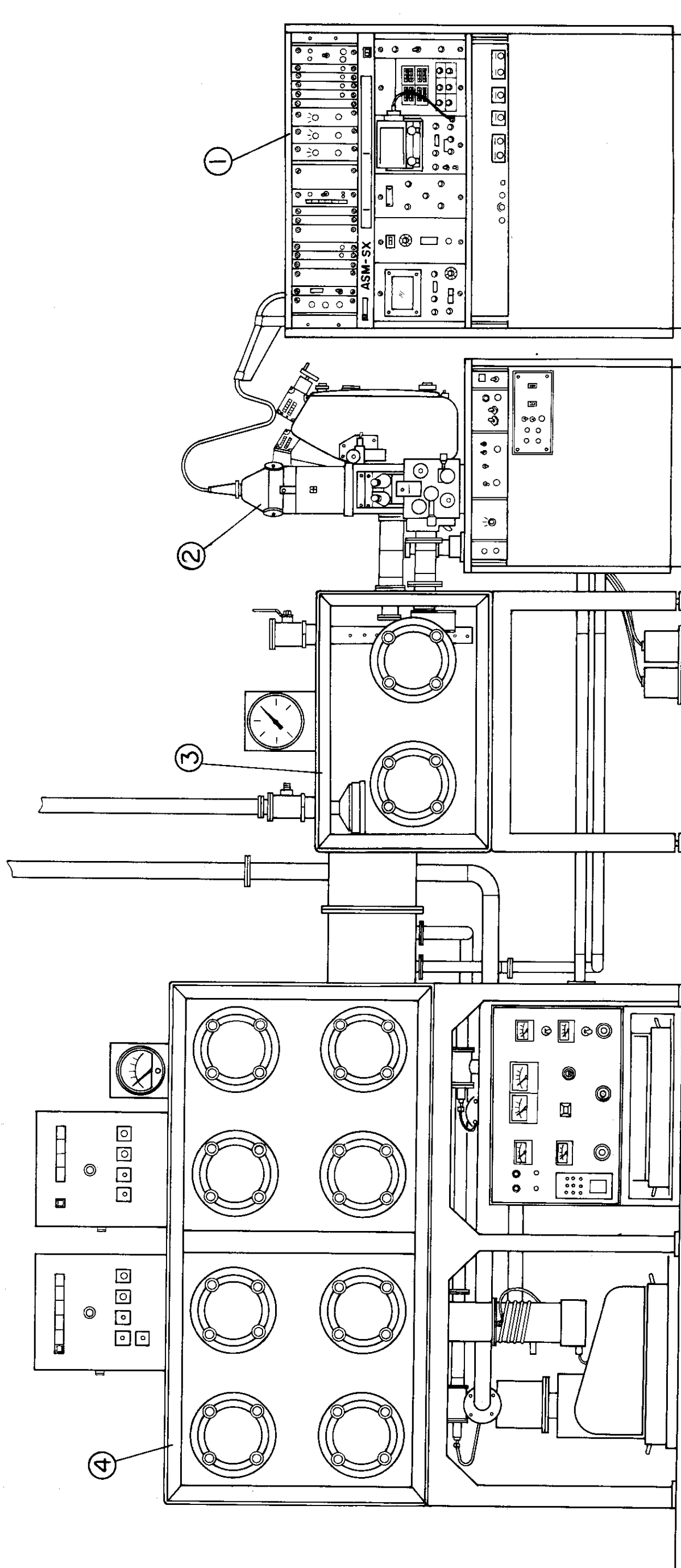


Fig. 2 Configuration of shielded electron microprobe analyzer  
for plutonium fuel

- 1 Electron beam scanning console
- 2 EPMA proper
- 3 Sample loading glove box
- 4 Surface treating glove box

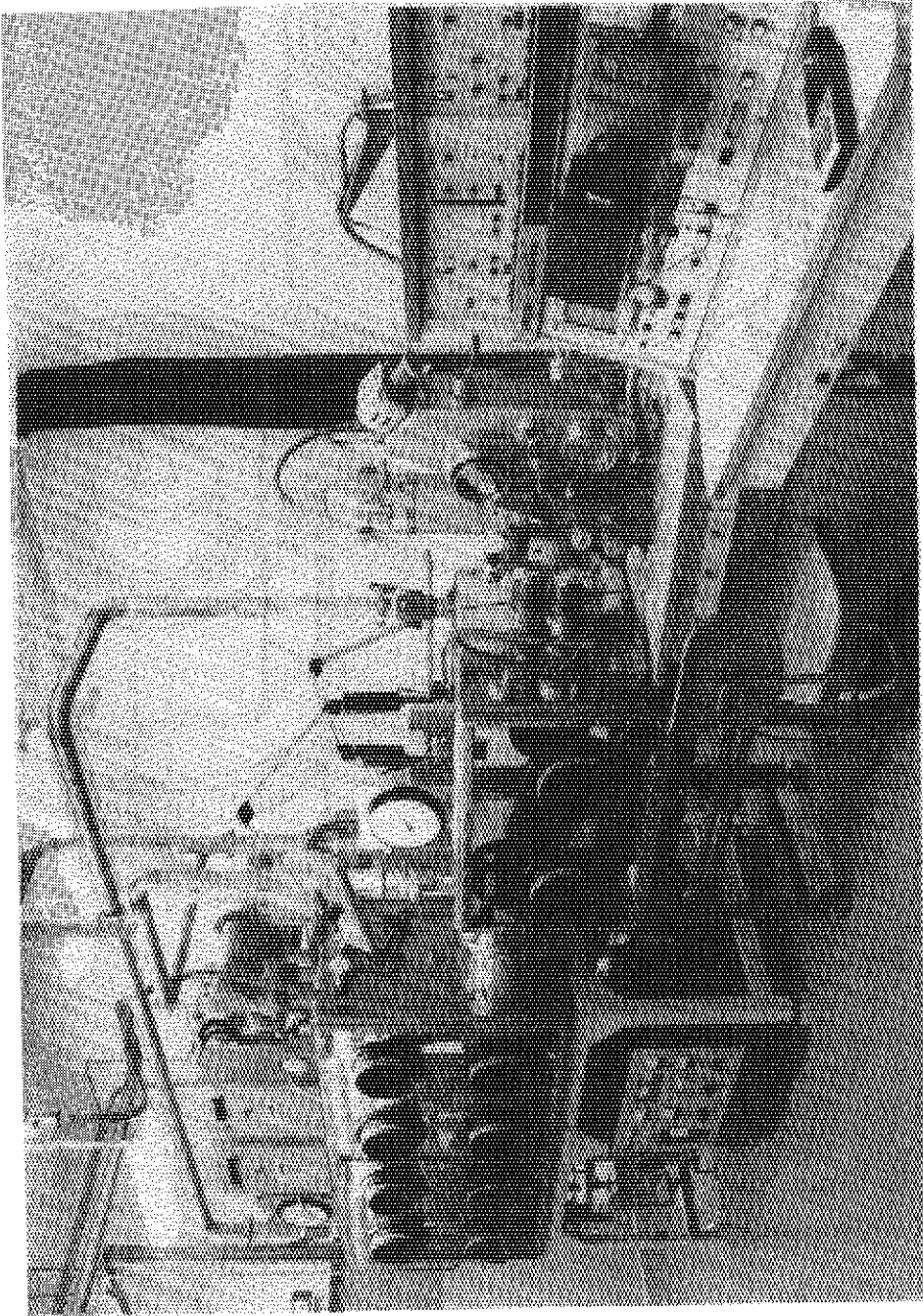


Photo. 1 Complete view of shielded EPMA for plutonium fuel

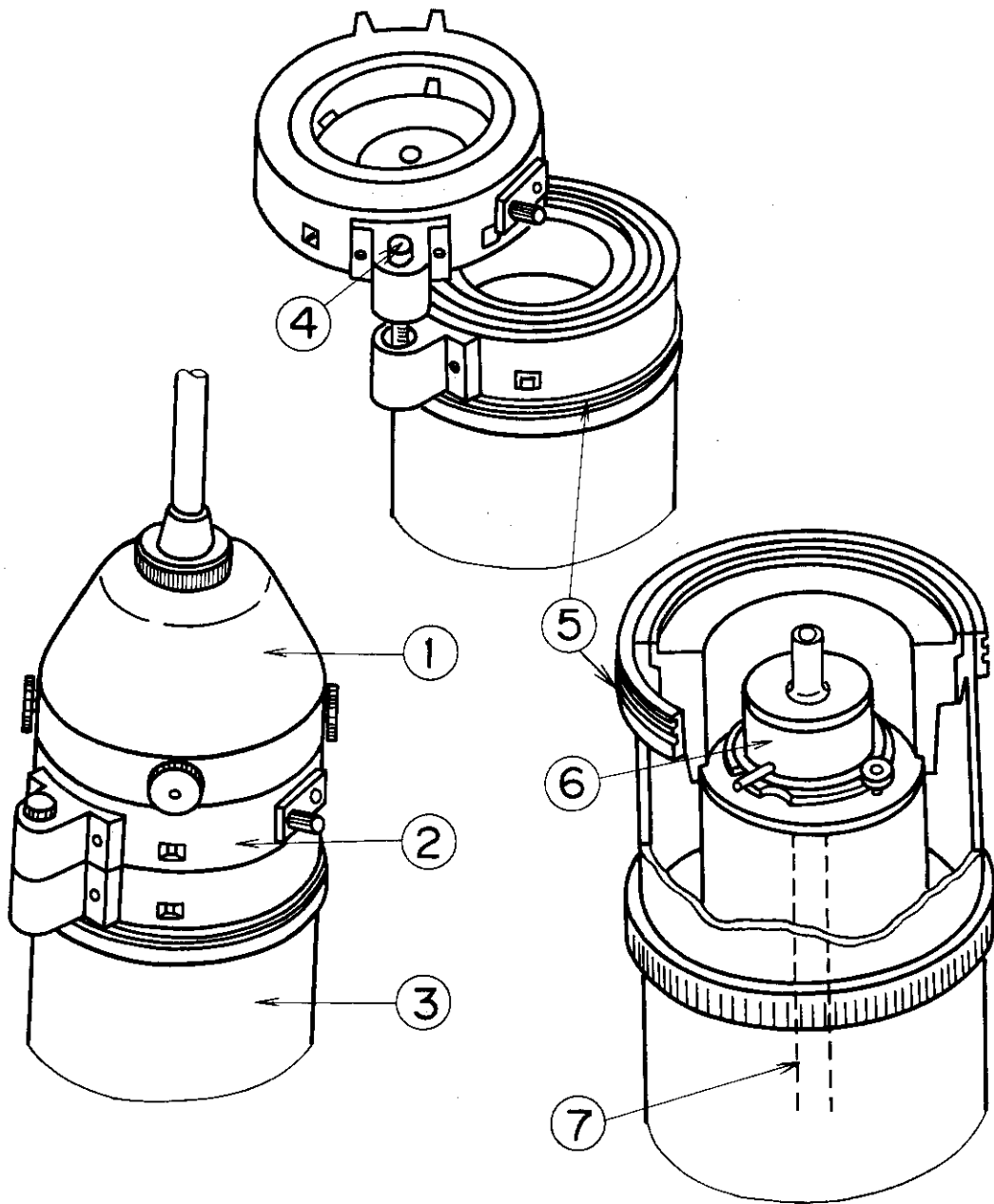


Fig. 3 Cleaning of electronic optical system

- 1 Electron gun chamber
- 2 Gate valve
- 3 Column
- 4 Knob
- 5 Vinyl bag port
- 6 Deflector coil
- 7 Protective tube



ピース、薄肉パイプをぬきとる。プルトニウムで汚染されない通常の場合には薄肉パイプのみを交換して、もとの様に再組立を行うが、本装置の場合、次回の作業時の鏡筒汚染量を少しでも下げるために、上部ビームデフレクターを除いて、全て新しいものと交換してしまう。すなわち、アパーチャー、各種絞り類など、電子光学系における交換可能な部品を全て交換してしまうことになる。但し、対物絞りは後に述べる様に他の方式で交換する。

本装置ではプルトニウムで汚染した各種部品の交換のために多くの配慮がなされているが、電子光学系のクリーニング等は頻度も比較的多く、また作業として大がかりになる可能性がある。

### 3.2 光学観察系

試料の分析位置設定と光学観察のために、各々独立の光路をもつ双眼式の実体顕微鏡が用いられている。試料表面から顕微鏡軸に至る光路には有孔反射ミラーがおかれており、このため試料からの放射線が直接顕微鏡軸に入ることはなく、一種のシールドの役割をしている。顕微鏡以外に試料室全体を目視出来る観察窓を有しているが、ここには二重の鉛ガラス(20mmt)を用いており、放射性試料を観察する場合の観察者の眼を保護する役割をしている。

有孔反射ミラーは対物絞り保持具の下部傾斜面を利用しており、対物レンズポールピース中に設置され、試料表面から近い位置にあるため、長期の使用の間には鏡面のよごれが起る。非放射性物質しか扱わない場合の交換は、光学顕微鏡を本体より外して行うが、本装置の場合にはこれが不可能である。従って、本装置では次の様な対策を講じた。Fig.4は絞り、ミラー交換方式を示すものである。ミラーは走査コイルなどが収納されたビームデフレクタ下端に着脱自在に取付けられており、このビームデフレクタはワイヤによって上昇可能な機構となっている。交換の際には図示のハンドルを用いて所定の位置まで上昇させる。所定の位置までくればミラー交換棒をさしこみ、棒先端をミラー取付板にねじこみ、この後に交換棒を引き出す。新たなミラーを設置する場合は、交換棒にミラーを取りつけ、鏡体内部に挿入する。交換口には市販品本体鏡筒にとりつけられているエネルギー分散形X線分光器用の口を利用している。このため、本装置の設計段階において、将来においてエネルギー分散形X線分光器を設置する可能性を捨てている。すなわち、プルトニウムに伴う保守をこの装置の実験目的の可能性に優先させている。交換口はステンレス鋼製溶接ベローズを介して、GBに連結しており、ミラーならびに対物絞りの交換はGB内部から行なえる。従って、この交換に際しては実験室内へのプルトニウム汚染の心配はない。なお、交換口の上部にはのぞき窓があり、交換棒からのミラーの脱着の確認が可能である。Photo.2に試料導入用GBとEPMA本体の連結を示す。

### 3.3 試料装置系

試料装置は試料室、試料ステージ、試料交換装置からなり、各々がユニット的に独立している。試料ステージは、上下、X・Y方向、傾斜、回転の五つの微動可能なものを装置している。市販品においてはこの標準装備以外に、試料引張り、試料加熱などの装備をもつ特殊ステージ

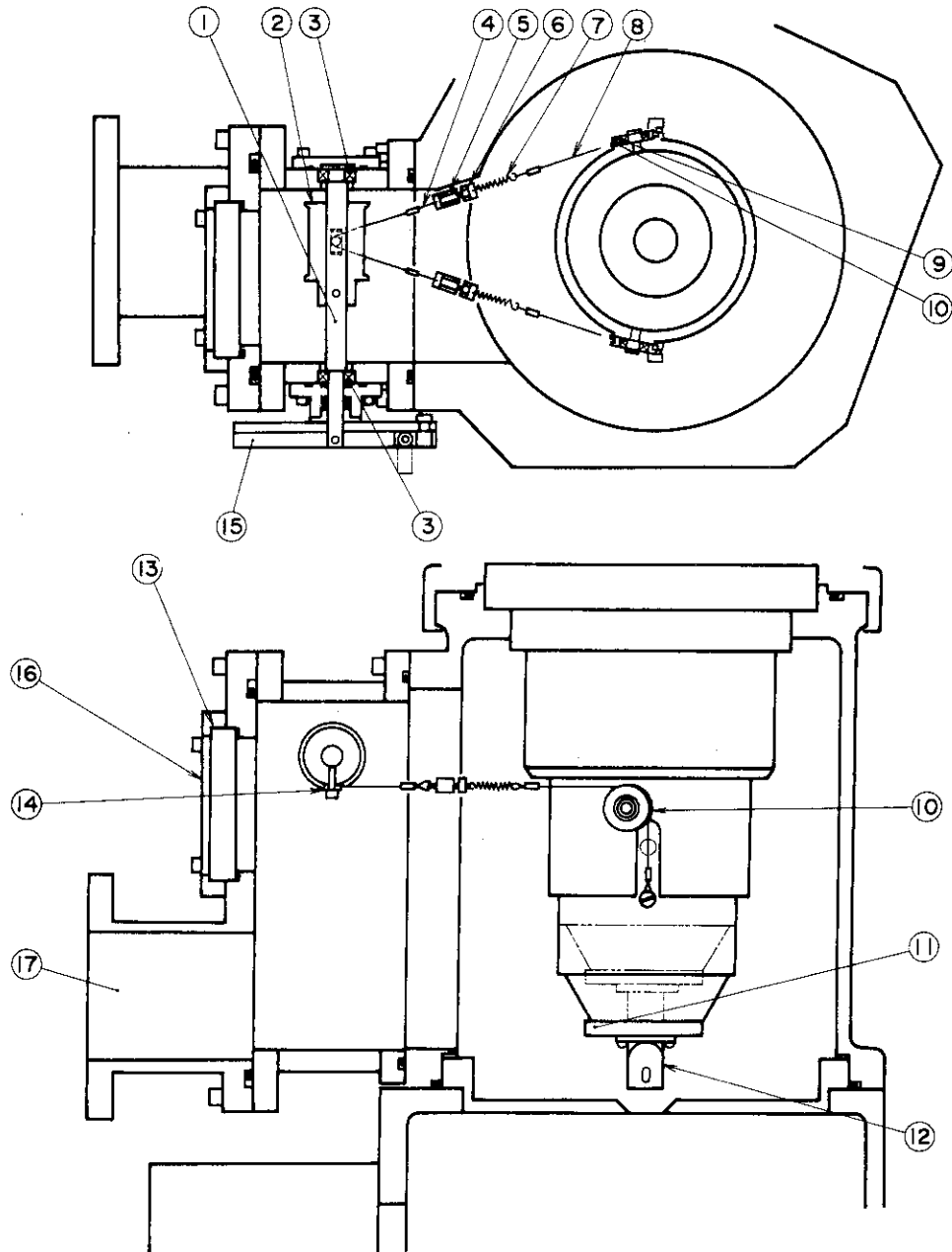


Fig. 4 Exchange method of objective aperture and mirror

- |                  |                           |
|------------------|---------------------------|
| 1 Shaft          | 10 Roller                 |
| 2 Drum           | 11 Mirror mounting plate  |
| 3 Bearing (1)    | 12 Mirror                 |
| 4 Wire (1)       | 13 Lead glass             |
| 5 Adjusting nut  | 14 Wire stopper           |
| 6 Adjusting bolt | 15 Handle                 |
| 7 Tension spring | 16 Viewing port           |
| 8 Wire (2)       | 17 Mirror exchanging hole |
| 9 Bearing (2)    |                           |

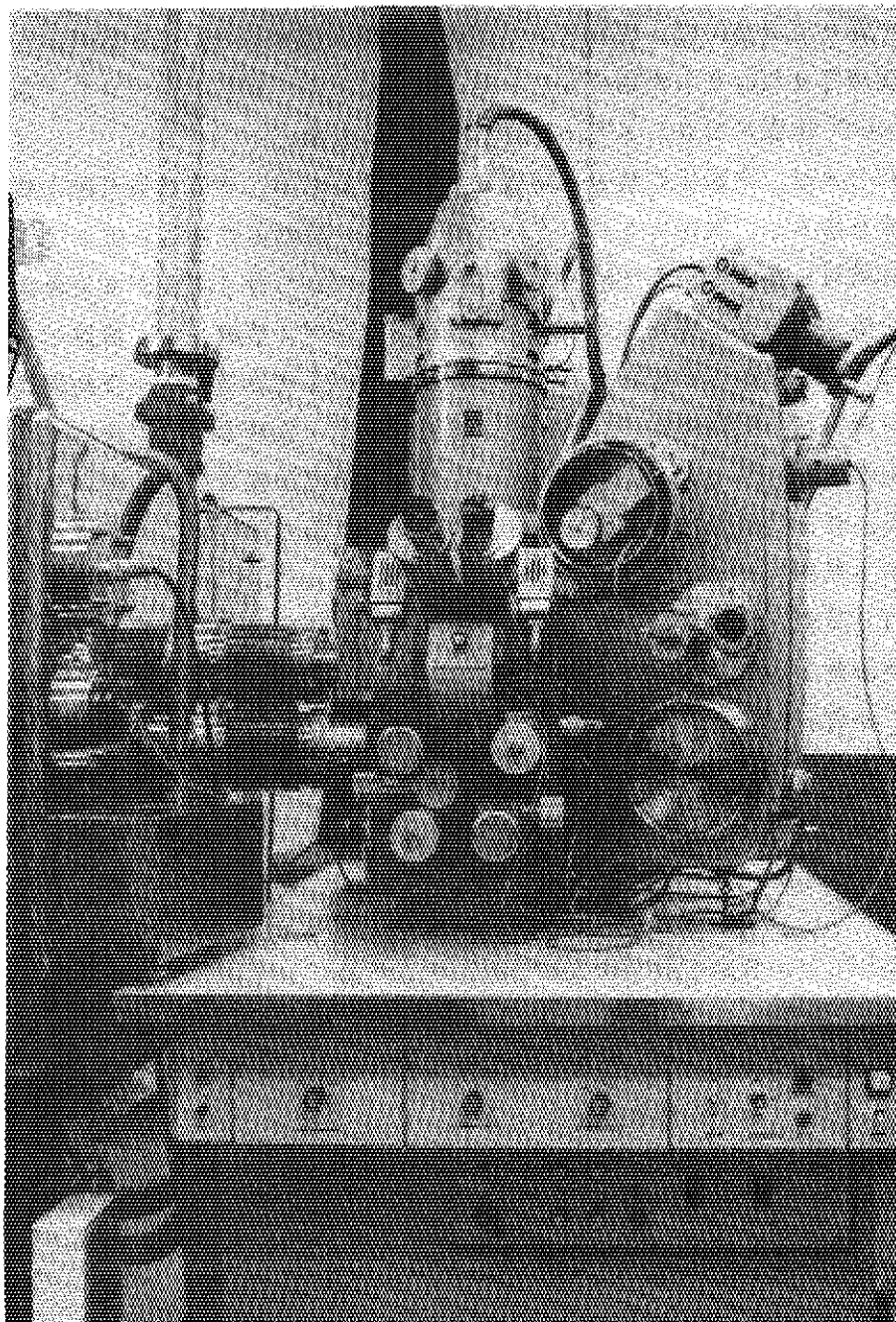


Photo. 2 Connection between EPMA proper and sample loading glove box

との交換が可能である。しかし、本装置においてはプルトニウム汚染のことを考慮すれば、この交換は困難さが伴うために、設計概念においては原則的にこの交換を考慮していない。しかし、例えば試料交換時の誤操作により、試料ホルダーが試料ステージから脱落して、以後の諸実験に支障を帰たす場合には、試料ステージを前面に引出すことにより試料室を開放して、もとの状態に復帰させねばならぬ場合もあり得る。このため、試料ステージの下端面をテーブル面より70 cmの位置におき、ステージ脱着を容易にした。

試料交換の方式は、市販品の場合と同様である。すなわち、予備排気可能な試料交換装置から試料交換棒を挿入し、試料ステージ上の試料ホルダーにねじこむことにより行う。しかし、プルトニウム試料を扱う本装置では、試料導入はGB内から行う必要があるため、Fig.5の様に、本体側交換室とGBの間はステンレス鋼溶接ベローズで接続した。溶接ベローズを用いた理由は、本体へのGBからの振動を逃げるためである。(前出のミラー交換機構の場合も同様である。)GB内部の試料交換口から試料室試料ホルダー位置までの距離は、これに相当する長さの試料交換棒を必要とする。試料交換時には、そのほぼ長さ分だけがGB内空間につき出ることになる。GB内諸操作を考慮すれば、この長さは極力短かいことが望ましい。しかし、試料交換口から試料ステージの位置までの距離は約60 cmにもおよばざるを得なかった。

GB内には6試料交換装置が設けられ、6個の試料の同時装てんを可能にした。Photo.3に6試料交換装置を示す。後述のようにGB内の圧力は実験室雰囲気圧力と比較して $-30 \pm 20$  mm Aqの負圧に保たれる。従って、試料交換時に誤って試料室側からの排気により、GB内負圧が超過する可能性がないではない。この防止のためエアロックバルブが設けられると共にバルブよりGB側空間の圧力指示を出力とする試料交換装置口に対してのインターロック回路を設けた。

前章で述べた様に、本装置は照射済燃料の分析にも使用する。試料からの $\gamma$ 線がX線検出器に到達してS/N比を低下するのを防止するため、シールドを設置した。このシールドには2種類あり、1個はX線検出器側面、1個は試料室側面のX線分光キット側に設けた。シールド材質はWベースNi-Cr合金で、厚みは2個のシールドを合せて20 mm相当になっている。Fig.6にシールド配置を示す。

試料室側面には、二次電子線検出器が取り付けられているが、これについては次節で述べる。

### 3.4 X線分光系および二次電子検出器

Fig.7にはX線分光器および二次電子検出器の配置を示す。二次電子検出器は2個のX線分光器キットの間にはさまれて位置している。二次電子検出器のシンチレータ蛍光板の損傷のため、これを交換することが、本装置の使用期間中に起り得る可能性がある。Fig.7には二次電子検出器の本体への取付けも示す。シンチレータ交換用のために“O”-リング溝が設けられているとともに、“O”-リング部の本体壁部との間の距離だけ市販品のものより長くなっている。二次電子検出器がX線分光器キットにはさまれていることはこれのビニールバックで囲ったクローズド法による交換操作性を悪くしているが、“O”-リング部を本体壁面より距離を置いて設けることにより、この点が緩和された。

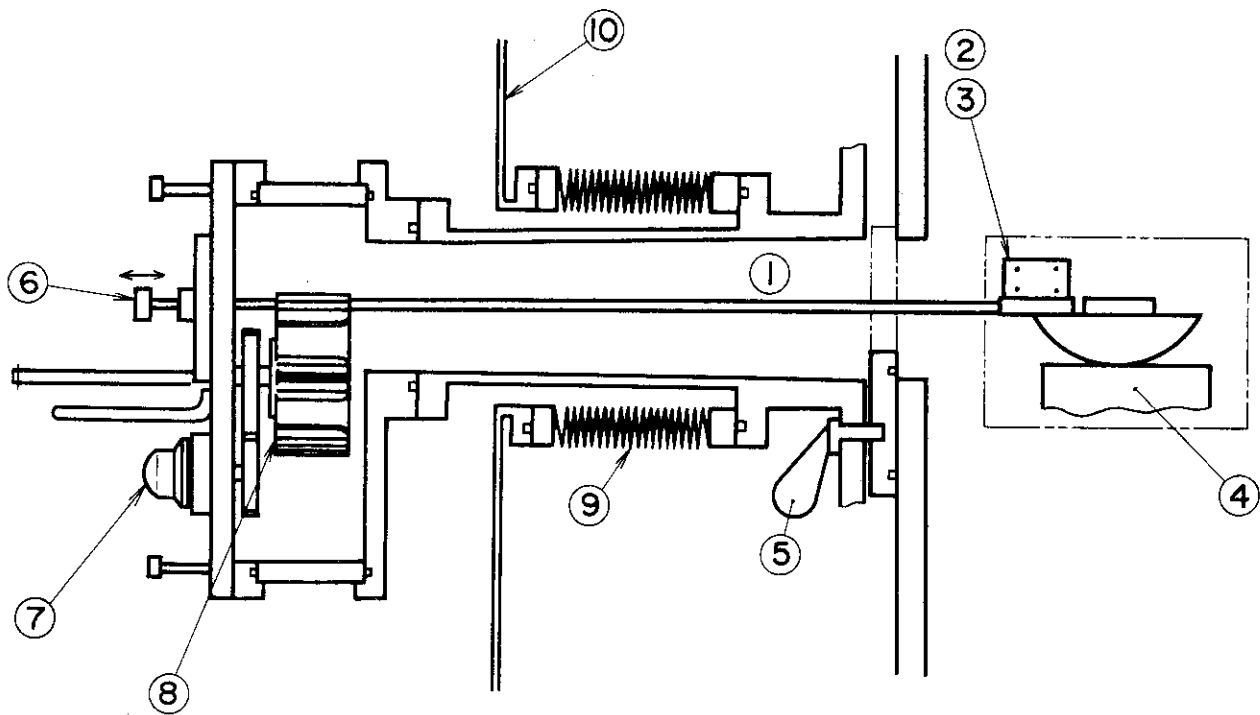


Fig. 5-1 Sample loading schematic

- 1 Sample exchanging chamber
- 2 Sample
- 3 Sample holder
- 4 Sample stage
- 5 Air locking handle
- 6 Sample exchanging bar
- 7 Sample selecting knob
- 8 Sample selector
- 9 Welded bellows
- 10 Glove box wall

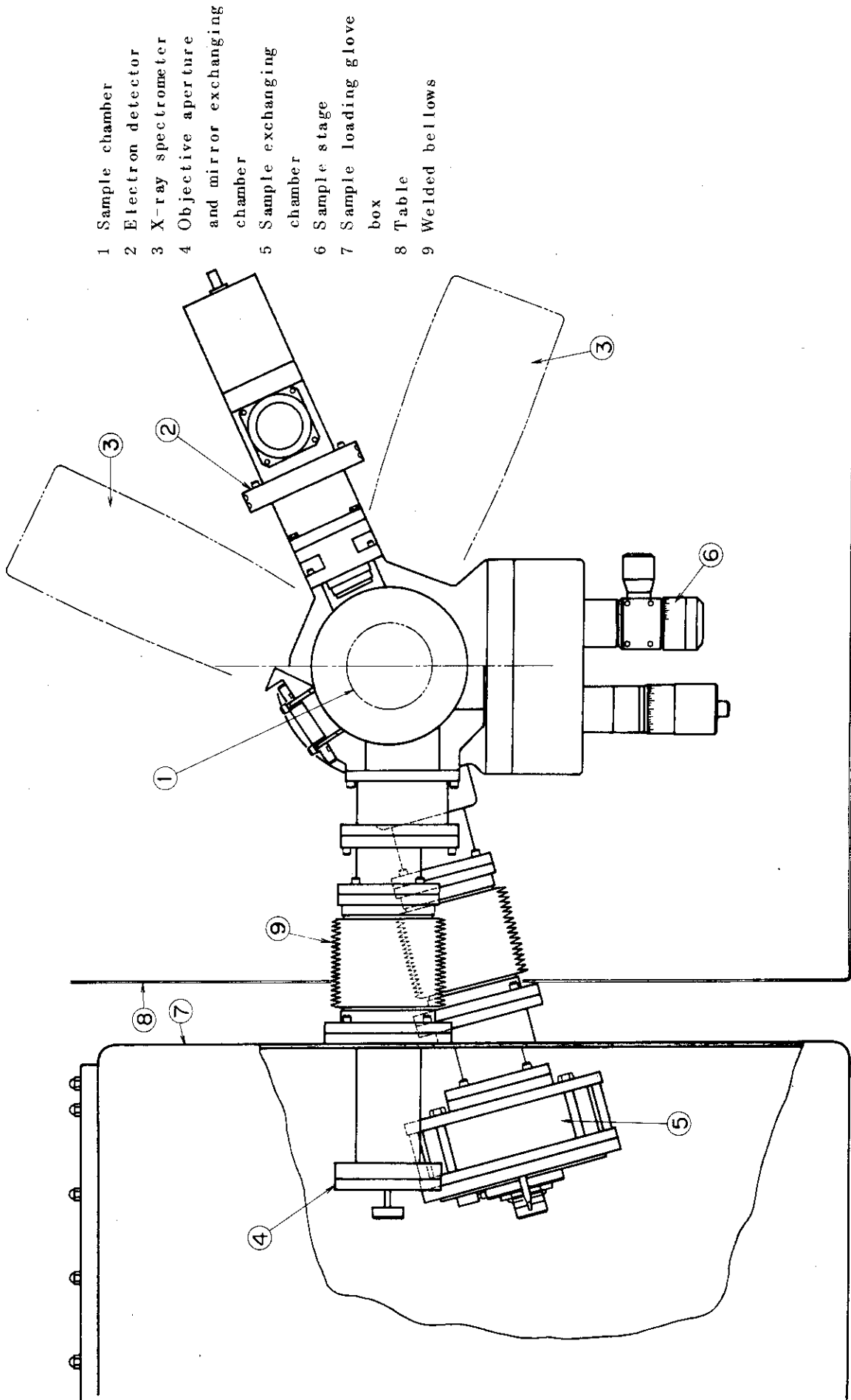


Fig. 5-2 Section of the connection between sample loading glove box and EPMA proper

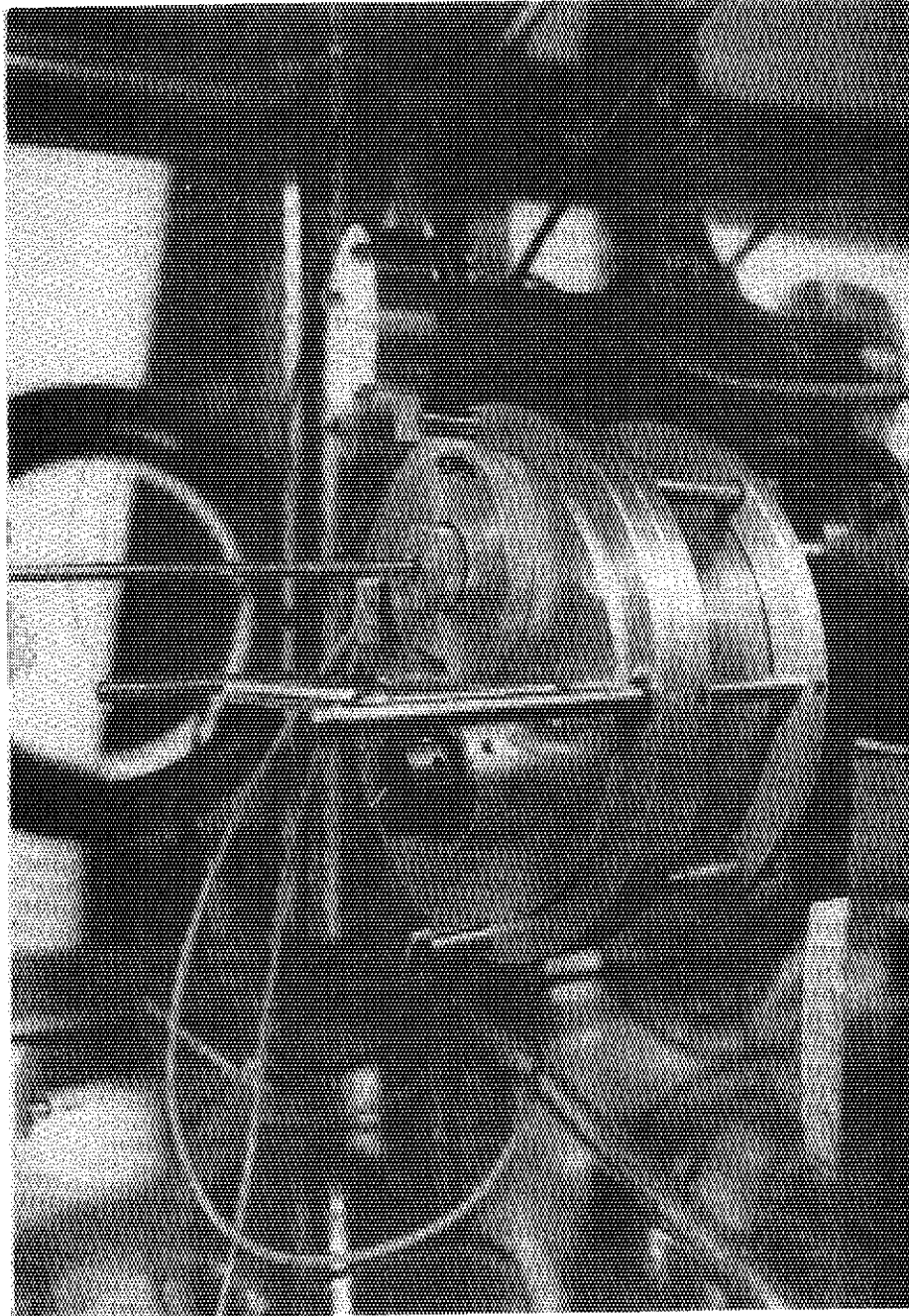


Photo. 3 Six samples selecting device

- 1 X-ray spectrometer
- 2 Crystal exchanging port
- 3 X-ray detector exchanging port
- 4 X-ray detector
- 5 Crystal
- 6 Sample
- 7 Objective lens
- 8 Shield
- 9 Collimator

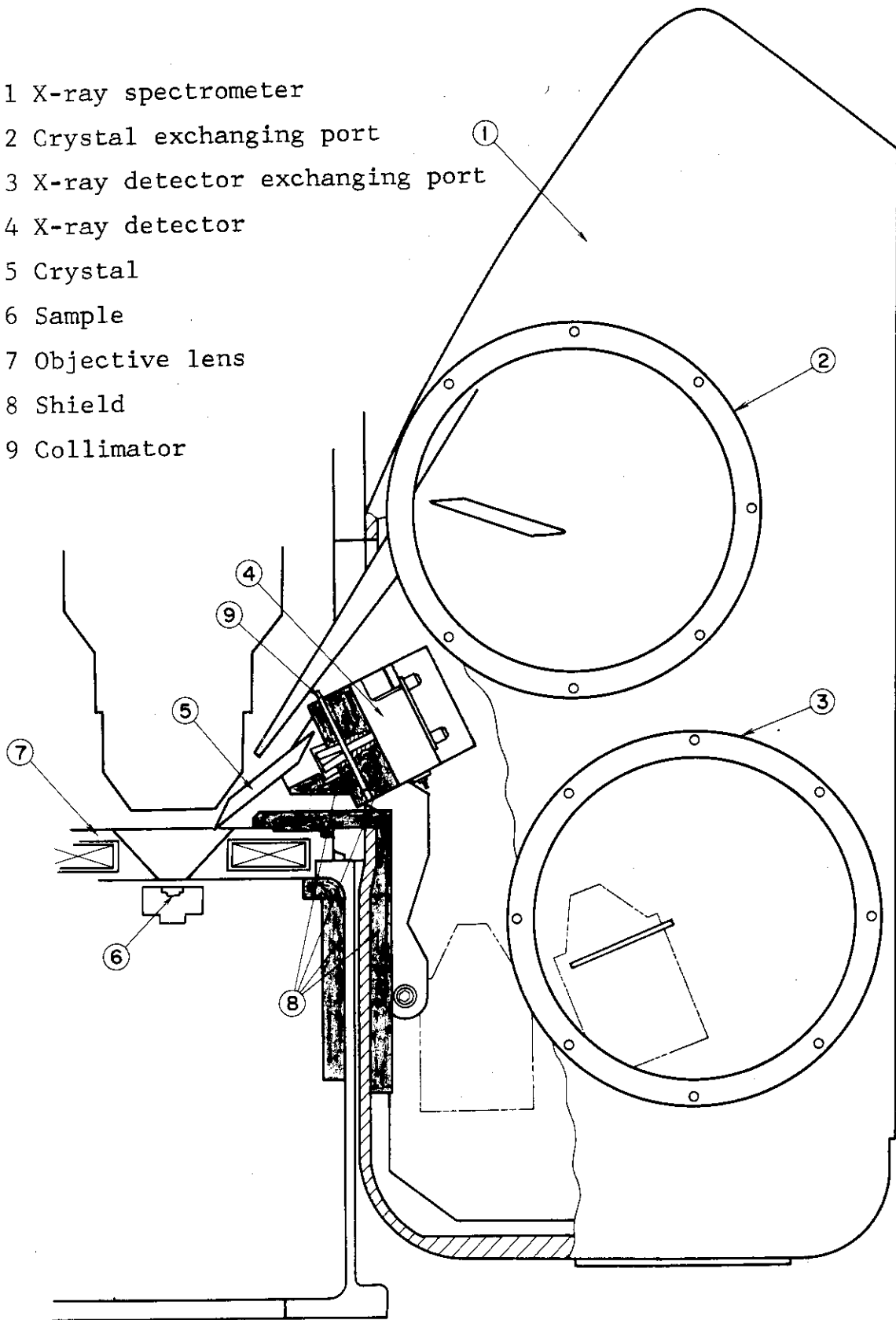


Fig. 6 Shielding in the microprobe column and in X-ray detector



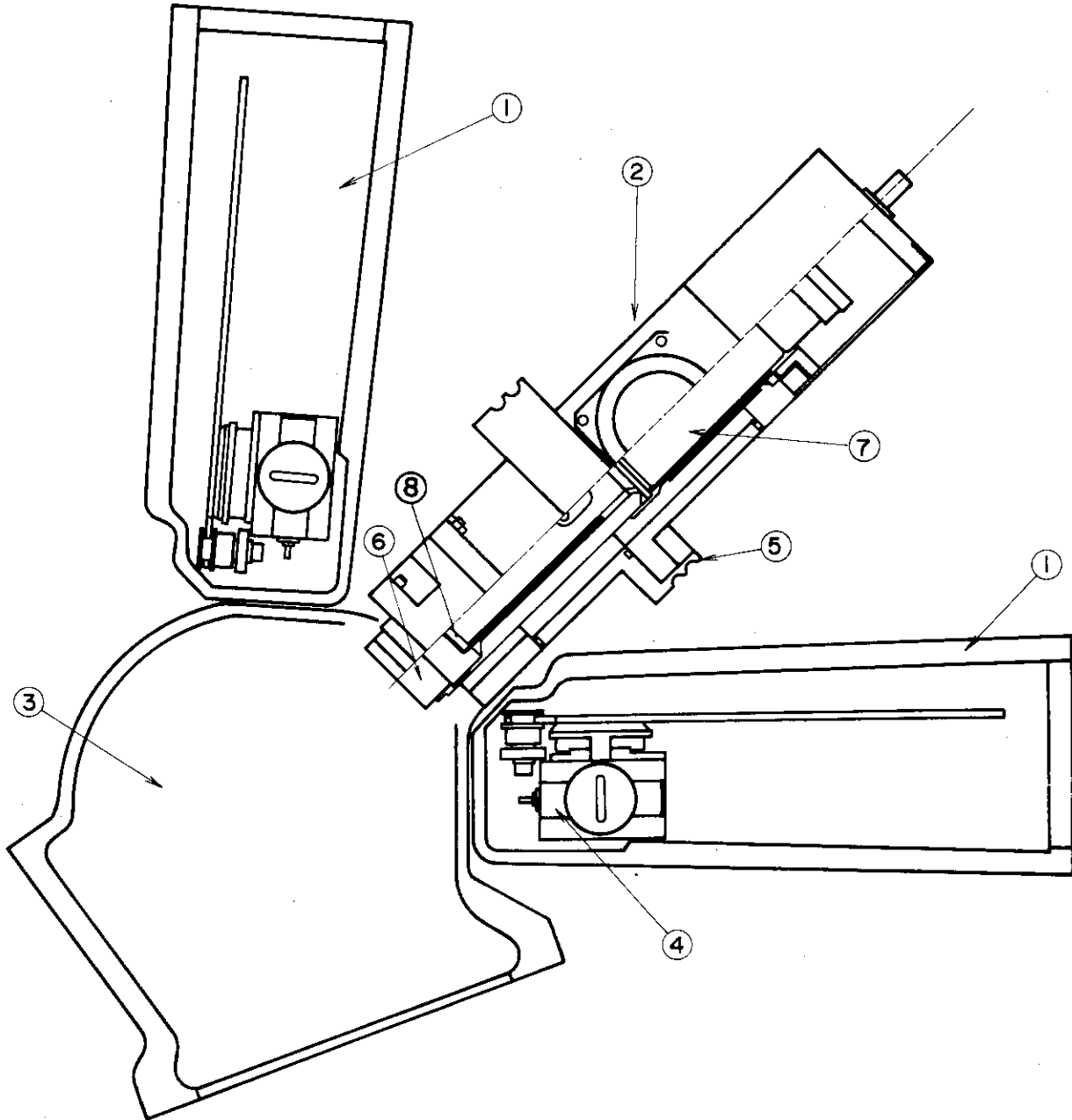


Fig. 7 Distribution of spectrometers and electron detector

- 1 X-ray spectrometer
- 2 Electron detector
- 3 Sample chamber
- 4 X-ray detector
- 5 Vinyl bag port
- 6 Probe
- 7 Photomultiplier
- 8 Zinc sulfide scintillator

本装置では試料からシンチレータが直接見えない位置についている。これは放射性試料から $\beta$ 線をシールドするためである。また、二次電子収集効率を低下させないために、バイアス電極を設けた。

2台のX線分光器によって ${}^5\text{B} \sim {}^{95}\text{Am}$ までの特性X線を検出することが出来る。試料室側から見て奥側にある第一分光器には2個の分光結晶LiF, PETとイグザトロンX線検出器が取り付けられて、重・重軽元素の分析に、試料室側に置かれている第二分光器はRAPとPb-SDの2個の結晶とFPC-X線検出器が取り付けられて、軽・超軽元素の分析に用いる。イグザトロン検出器の損傷の頻度は非常に小さいと考えて良いが、FPC検出器の方はポリプロピレン窓が使用経過時間とともに進む劣化のために、これの交換の確率は大きい。従って、FPC検出器をもつX線分光器キットを前面に設置することにより、後で述べる検出器交換用窓から交換が容易になるように配慮した。

市販品では検出器のスリット巾は固定であったが、本装置ではこれを可変にして、0.2 mm, 0.3 mm, 0.5 mmの3段切換を可能にした。これは試料から発生する $\gamma$ 線等の影響を少なくして、特性X線のS/N比の改善を目的としたものである。

Fig.8にはスリット巾の3段切換え概念を示す。スリットの切換えはレバーを動かすことによつて行われるが、このレバーの移動はX線分光器キット外面に設けたスリットのレバー操作部によつて行う。シャフトサポートを所定の位置まで回転させて、シャフトが自由回転できるようにしてから、のぞき窓から内部を見ながら、シャフトの先で検出器スリット交換レバーを引っかけてスリットの交換を行う。

検出器側面に試料からの $\gamma$ 線シールドを設けたことは前に述べた。試料室側面のそれは固定型であるに対して、検出器側面のそれは移動型である。理想的には、シールドは全て移動型とし、20 mm相当のW板を検出器側にもってこることが望ましい。また、本装置の移動型シールドは検出器の片側のみしかなされていないが、他側面にもシールドを講じることが望ましい。しかし、スリットの切換え機構の設置の所でも述べたように、機械的、空間的制約の結果、本装置の場合のようにならざるを得なかった。

$\gamma$ 線のシールドは上記の様であるが、このシールドの他に反射および二次電子検出器には $\beta$ 線のシールドも設けられている。検出器スリット前面に永久マグネットを置き、電氣的に $\beta$ 線を除去している。

分光結晶も検出器と同様、本装置の使用途中で交換の必要性にせまられる場合がある。このため、2個のX線分光器キットの各々に、分光結晶取り替え用ポート、検出器取り替え用ポートを設けた。(Photo.2参照のこと)。ビニールバック取付け用の“O”-リング溝を設けたので、各々の交換はビニールバック中での片手操作で可能である。交換方法の詳細は省略する。

### 3.5 制 御 系

制御系は大別して、真空制御装置、電子線制御装置、X線測定制御装置から構成される。真空制御装置については排気系の個所で記述する。

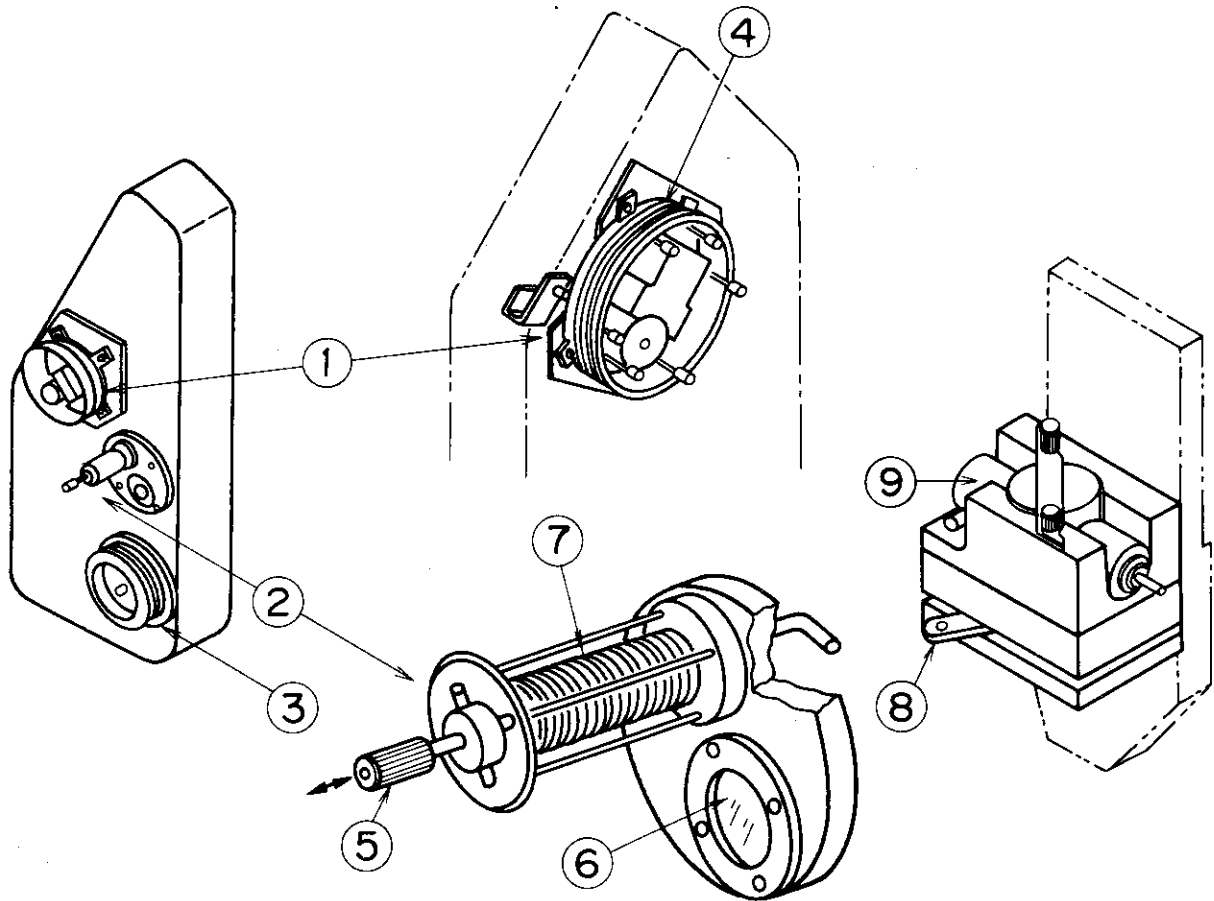


Fig. 8 Collimator exchanging schematic

- 1 Crystal exchanging port
- 2 Collimator exchanging port
- 3 Detector exchanging port
- 4 Vinyl bag port
- 5 Collimator exchanging shaft
- 6 Viewing port
- 7 Bellows
- 8 Collimator exchanging lever
- 9 X-ray detector

電子線制御装置とX線測定制御装置はコンソールとしてEPMA本体右側に置かれる。コンソール関係では、市販品のものから改造を加えた点はなく、強いて言えば通常は床に固定のコンソールに、キャスターを設置して移動容易にし、万が一にプルトニウムがGB外に洩漏した時の実験室の除染の便宜を計った程度である。

X線測定制御装置はコンソールの上部に一括して置かれ、X線分光器の駆動はこの中に取りつけられている操作部によって遠隔操作する。また分析操作を容易にするために元素名表示装置が設置されている。

電子線制御装置は、観察用オッシロスコープ、タイムベース、写真用オッシロスコープ、メインスイッチパネルおよび画像処理関係の付属装置が設置されている。観察用オッシロスコープに組込まれている制御回路は、CRT制御回路のほかに自動画像コントロール回路、フォーカスコントロール回路、非点取差コントロール回路およびコントラストメータなどである。写真用カメラには、35mmカメラと、フォト番号表示付6×9カメラを具えた。画像処理関係ではイメージコンポーザー、トーンコントローラ、イメージローテーション、チルトコレクションなどの機能をもつ装置を付加した。

### 3.6 試料導入用グローブボックス

本GBは、プルトニウム試料をEPMA試料室への導入を主たる目的としたもので試料表面処理GBと連結して設置した。GBの寸法は巾900mm、高さ600mm、奥行700mmであり、両面操作型である。表裏2面の透明アクリル窓(10mm厚)面には各々一対のグローブポートが設置されている。その他の面は4mm厚のステンレス鋼材で構成されている。アクリル面と金属面の接合はネオプレンガスケットによって行い、0.05%Box·vol/hr以下のリーク率に押えている。GBを支える架台は鋼材でできており、脚部は耐震性を考慮した強度なもつアンカーボルトを床に打込んだ。

GBの定常運転時には、試料表面処理GBと通気状態とし、本GB側から給気し、試料表面処理GB側から排気するが、試料表面処理GBと分離して本GBのみで給排気することも可能なようにGB天井部には、給気ならびに排気用口を取りつけた。(Fig.1参照)このようにして、GB内圧力は $-30 \pm 20 \text{ mmHg}$ に保たれ、その指示は微圧計で与えられるとともに負圧破壊の設定値で警報が発信する。

試料導入用GBの側壁面には試料交換装置用ポートならびにミラー交換用ポートが設置されている。また、ミラー交換用ポートには、EPMA鏡体中の圧力測定のためにピラニ真空計、ベニング真空計用のヌード型ゲージが取り付けられている。このように真空計ゲージをGB内に取り付けることによって、ゲージ交換時のプルトニウム飛散をGB内にとどめることができる。この真空計用の電極端子は、GB側壁面に設けたフランジから取り出す。

上記GB側面以外では、床部にEPMA用油拡散ポンプの油ぬき用配管口を設けた。油拡散ポンプはEPMA本体下に設置した。この場所は種々の配管、バルブ等が密集しており、プルトニウムで汚染された油の交換には困難が予想される。従って、油をポンプからぬく際には、GB側からサクションポンプで油をぬき、油を入れる際にはGB床と油拡散ポンプとの落差を

利用してGB側から油を挿入するべく配慮した。また、床面には新機構ガスラインフィルタを設置した。

### 3.7 真空排気系

EPMA本体内部がプルトニウムで汚染されるので、排気系についても大巾に改造した。まず、経年劣化が起る真空ゴム管の使用を止めて、すべて金属配管に改めた。これに伴って、回転ポンプなどからの振動伝達を防止するために多数の金属フレキシブル管または溶接ベローズを増設した。また、プルトニウムで汚染される機器を最小限に抑えるため多数のフィルタを設置した。本装置の排気系の概略をFig.9に示す。

EPMA本体の排気系には、拡散ポンプと回転ポンプの間に燃料研究棟で開発した新機構ガスラインフィルタを設置して回転ポンプ油のプルトニウム汚染を防止した<sup>27)</sup>。本フィルタは表面処理GBの側壁面に取付けられており容易にかつ確実に交換することが可能であるほか使用済のフィルタをGB内で生じた廃棄物と同様に処理できるという特長を有している。前節でのべたように試料室の排気系にも同種のフィルタを増設したがスペースの都合で試料導入用GBの底面に取付けた。この場合、フィルタ本体が垂直に設置されているため、フィルタを交換するとき使用済みフィルタが本体から脱落することが考えられる。このためFig.10に示したようにGB内側のフランジから延びたフィルタ固定筒の先端にバネを利用した爪でフィルタ上端を保持できるように改造した。この試料室排気用の回転ポンプは、表面処理装置の排気ポンプと兼用されており両者の切替えは手動バルブの開閉によって行う。回転ポンプには、すべてヘリウム回収用ポンプを使用し、ポンプの排気口はHEPAフィルタを経由して建屋の排気第1系統(GB排気用)に連結した。

EPMA本体、試料室および電子銃室の給排気をボタン操作で自動的に行えるように、市販品には本体の架台下に7個の電磁弁が設けられている。この基本性能を保持しかつ保守作業を行うことができるように市販のガスラインフィルタ(耐圧 $1.5 \text{ kg/cm}^2$ )3個を設置することにより電磁弁群のプルトニウム汚染を防止した。

EPMA本体への振動伝達を防止するため試料およびミラー交換用の二つを含めて溶接ベローズ4個および金属フレキシブル管8個を設置した。

## 4. 性能試験

本章では、はじめに試料導入用GBからの試料の導入、ミラーの交換、排気特性など基本機種を大巾に改造した点についてその操作性および性能についてのべる。続いて、特性X線のS/N比、電子線像の分解能、試料電流の安定性など基本機種種の諸性能の試験結果をのべる。最後に、照射燃料を模擬して試料室にラジウム-226  $10 \text{ mCi}$ を搬入して、タングステン合金のしゃへい性能、電子線検出器に設けた高エネルギーの $\beta$ 線の阻止能についてのべる。

利用してGB側から油を挿入するべく配慮した。また、床面には新機構ガスラインフィルタを設置した。

### 3.7 真空排気系

EPMA本体内部がプルトニウムで汚染されるので、排気系についても大巾に改造した。まず、経年劣化が起る真空ゴム管の使用を止めて、すべて金属配管に改めた。これに伴って、回転ポンプなどからの振動伝達を防止するために多数の金属フレキシブル管または溶接ベローズを増設した。また、プルトニウムで汚染される機器を最小限に抑えるため多数のフィルタを設置した。本装置の排気系の概略をFig.9に示す。

EPMA本体の排気系には、拡散ポンプと回転ポンプの間に燃料研究棟で開発した新機構ガスラインフィルタを設置して回転ポンプ油のプルトニウム汚染を防止した<sup>27)</sup>。本フィルタは表面処理GBの側壁面に取付けられており容易にかつ確実に交換することが可能であるほか使用済のフィルタをGB内で生じた廃棄物と同様に処理できるという特長を有している。前節でのべたように試料室の排気系にも同種のフィルタを増設したがスペースの都合で試料導入用GBの底面に取付けた。この場合、フィルタ本体が垂直に設置されているため、フィルタを交換するとき使用済みフィルタが本体から脱落することが考えられる。このためFig.10に示したようにGB内側のフランジから延びたフィルタ固定筒の先端にバネを利用した爪でフィルタ上端を保持できるように改造した。この試料室排気用の回転ポンプは、表面処理装置の排気ポンプと兼用されており両者の切替えは手動バルブの開閉によって行う。回転ポンプには、すべてヘリウム回収用ポンプを使用し、ポンプの排気口はHEPAフィルタを経由して建屋の排気第1系統（GB排気用）に連結した。

EPMA本体、試料室および電子銃室の給排気をボタン操作で自動的に行えるように、市販品には本体の架台下に7個の電磁弁が設けられている。この基本性能を保持しかつ保守作業を行うことができるように市販のガスラインフィルタ（耐圧 $1.5 \text{ kg/cm}^2$ ）3個を設置することにより電磁弁群のプルトニウム汚染を防止した。

EPMA本体への振動伝達を防止するため試料およびミラー交換用の二つを含めて溶接ベローズ4個および金属フレキシブル管8個を設置した。

## 4. 性能試験

本章では、はじめに試料導入用GBからの試料の導入、ミラーの交換、排気特性など基本機種を大巾に改造した点についてその操作性および性能についてのべる。続いて、特性X線のS/N比、電子線像の分解能、試料電流の安定性など基本機種の諸性能の試験結果をのべる。最後に、照射燃料を模擬して試料室にラジウム-226  $10 \text{ mCi}$ を搬入して、タングステン合金のしゃへい性能、電子線検出器に設けた高エネルギーの $\beta$ 線の阻止能についてのべる。

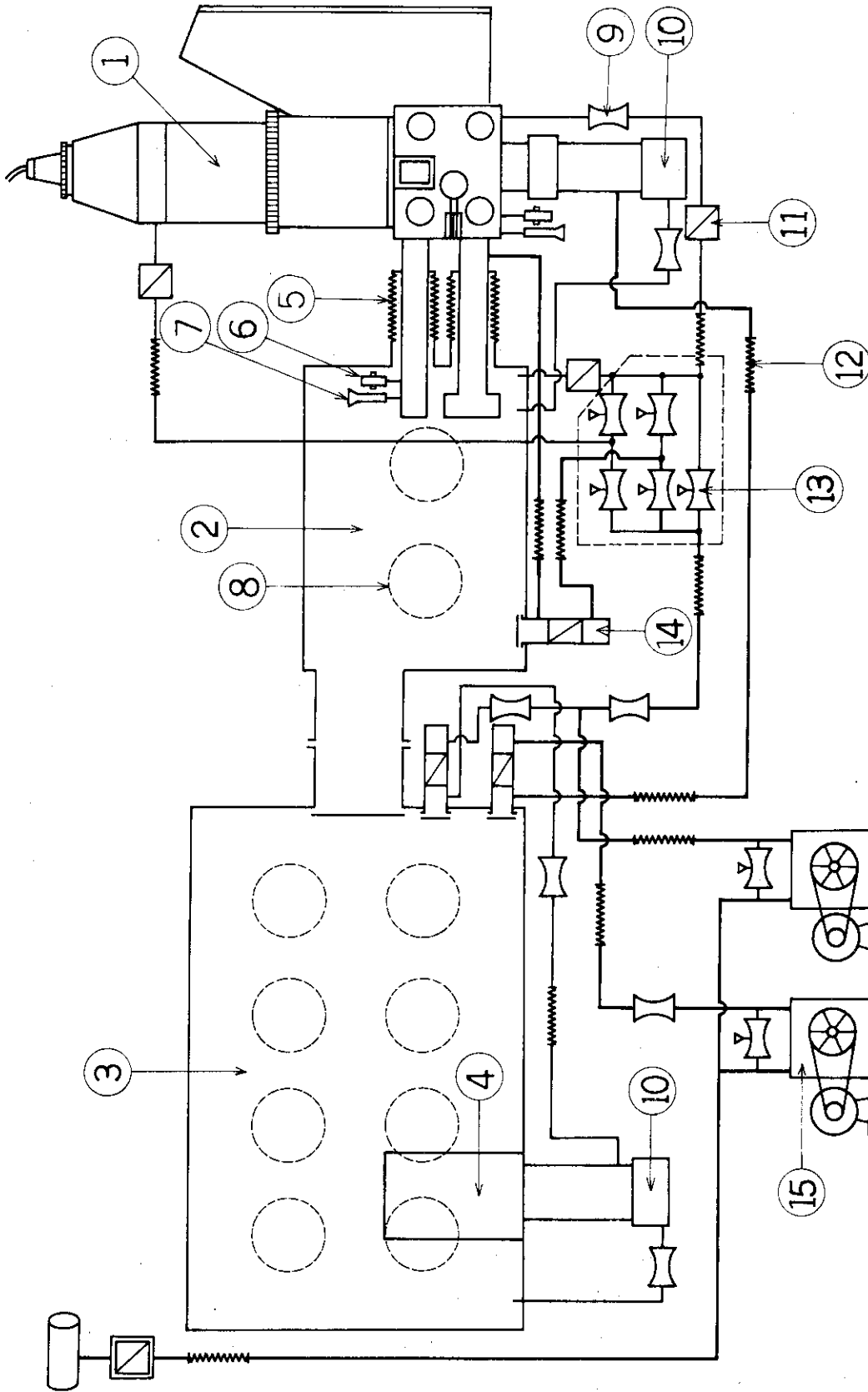


Fig. 9 Vacuum exhausting system

- |                              |                   |                                                  |
|------------------------------|-------------------|--------------------------------------------------|
| 1 EPMA proper                | 6 Penning's gauge | 11 Gas line filter                               |
| 2 Sample loading glove box   | 7 Pirani gauge    | 12 Metal flexible tube                           |
| 3 Surface treating glove box | 8 Glove port      | 13 Solenoid valve                                |
| 4 Surface treating apparatus | 9 Valve           | 14 Gas line filter with new exchanging mechanics |
| 5 Welded bellows             | 10 Diffusion pump | 15 Rotary pump                                   |

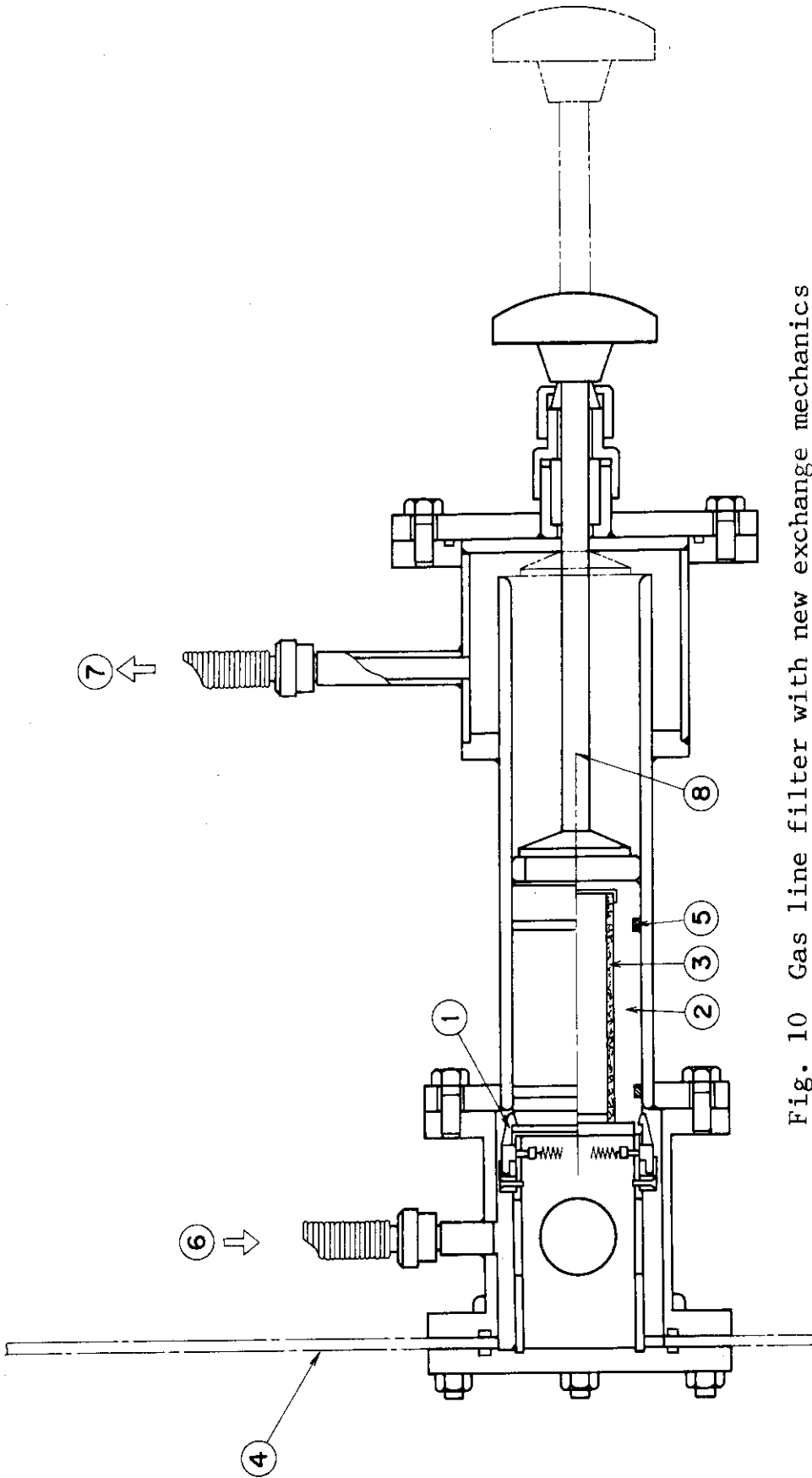


Fig. 10 Gas line filter with new exchange mechanics

- 1 Filter element hook
- 2 Filter element
- 3 Filter matrix
- 4 Glove box wall
- 5 "O"-ring
- 6 from sample exchanging chamber
- 7 to rotary pump
- 8 Filter element fixing bar



## 4.1 操作性および排気特性

### 4.1.1 試料導入およびミラーの交換

プルトニウム燃料を安全に取扱うために、本装置では試料の導入はすべて試料導入用GB内で行う。3.3でのべたように市販品に比べて長く試料交換棒が約60 cm になっているが、左手を試料導入用GBに入れて、試料室の観察窓から覗きながら操作すれば、5分もあれば確実に交換作業を行うことができることを確認した。ミラーの交換は、試料導入用GBの裏側から行うが、試料交換と同様支障なく実施できることがわかった。

### 4.1.2 排気系

E P M A本体の到達真空度は、多数のフィルタを増設したにもかかわらず、試料室下部（市販品の標準位置）に設置したフィリップス真空計で $2 \times 10^{-5}$  torrであり何ら問題はない。本装置の場合、3.6でのべたようにもう一つの真空計を試料導入用GB内に設けている。標準位置で $2 \times 10^{-5}$  torrのときGB内の測定場所の真空度は $6 \times 10^{-4}$  torrであった。このため、高圧印加が可能なオペイトランプの点灯はGB内の真空計で $6 \times 10^{-4}$  torrで作動するように改めた。

上記の真空度に到着するまでの所要時間は、拡散ポンプを作動させた後約20分であり市販品と同等である。これに対して試料室の排気所要時間は、市販品に比べて試料室の体積が数倍大きくなったことおよび回転ポンプまでの配管が約3 mと長くなったため、市販品の30秒に比べて5～10分と長くなった。この点については6試料交換装置を採用したことによりある程度償われている。電子銃室の排気所要時間は基本装置と変わらず約1分であった。

## 4.2 非放射性物質を用いた試験

基本機種に採用した島津製作所ASM-SX型X線マイクロアナライザの仕様については付録に示したが、本装置はX線検出器にしゃへい壁を設けるなど大巾に改造した。本節では特性X線のS/N比、試料電流の安定性など本装置の基本特性についてのべる。

### 4.2.1 X線分光器

Table 3にX線分光器の性能試験結果をまとめて示す。文献26の表1に標準のASM-SX型マイクロアナライザについて同種の試験結果が示されている。両表の比較から本装置は、大巾な改造を加えたにもかかわらず基本機種のすぐれた性能をほとんど保持していることがわかる。

### 4.2.2 試料電流の安定性

試料電流の精度は定量値の精度を決定するので重要である。ファラデゲージを試料に用いて測定した試料電流の安定性をFig. 11に示す。基本機種の仕様によれば試料電流の精度はフルスケール( $2 \times 10^{-8}$  A)の±2.5%である。本装置の場合、Fig. 11に示したように±

Table 3 Performance tests of X-ray spectrometers

Crystal	Charact. X-ray	Wave length (Å)	Error of wave length (Å)	Volt. (kV)- current (A)	FWHM	Intensity of peak (cpm)	S/N	Detector
LiF	Zn K $\alpha$	1.438	+0.002	25-0.01	0.009	12000	197	Krypton
	Fe K $\alpha$	1.940	+0.003	25-0.01	0.008	13600	469	exatron
	Ti K $\alpha$	2.748	-0.002	25-0.01	0.006	8280	690	
PET	Ti K $\alpha$	2.768	+0.010	25-0.01	0.013	15200	203	Krypton
	Ag L $\alpha$	4.163	+0.009	25-0.01	0.013	14300	325	exatron
	Si K $\alpha$	7.114	-0.012	25-0.01	0.008	7890	717	
RAP	Mg K $\alpha$	9.93	+0.04	10-0.02	0.045	880	894	
	Zn L $\alpha$	12.29	+0.04	10-0.1	0.06	20200	348	FPC
	Mn L $\alpha$	19.47	-0.02	10-0.1	0.11	16100	68	
PbSD	N K $\alpha$ *	31.46	+0.18	10-0.1	0.96	1590	62	
	C K $\alpha$	44.53	+0.14	10-0.1	1.84	9900	1100	FPC
	B K $\alpha$	67.14	-0.50	10-0.1	1.73	3010	273	

\* Bron nitride was used as a standard material

0.5%の範囲にあり十分標準仕様を満足している。

#### 4.2.3 分解能

本装置の場合、EPMA本体と試料導入GBを連結したほか真空排気系の配管をすべて金属製に改めるなど振動防止という点できびしい条件下にあり、高分解能を保持できるか否か危惧されていた。Photo.4に磁気テープの50,000倍の電子線像を示す。写真から本装置が $100\text{Å}$ の分解能を有していることが確認された。

### 4.3 照射燃料を模擬したラジウム-226による試験

照射試料の模擬試料としてラジウム-226を試料室に搬入して、特性X線のS/N比を測定した。続いて、2次および反射電子検出器に設けた試料からの高エネルギーβ線のしゃへい性能について調べた。

#### 4.3.1 ラジウム-226線源

使用したラジウム-226線源は10mCiで白金カプセル中に気密封入されている。分離精製後10年以上が経過しており多数の壊変生成物が蓄積されている。このため、α線に加えて壊変生成物から強いγ線が放出されている。このγ線を電離箱で測定したところ、30cm離れた場所で40mR/hrであり、厚さ50mmの鉛コンテナに入れたときその表面の線量率は30mR/hrであった。放出されるγ線のエネルギーをγ線スペクトロメータで測定した結果292, 348, 608, 1119, 1763keVに強いピークが観測された。Table 3に示したようにEPMAに導入する照射燃料の30cm離れた場所での線量率265mR/hrに比べてラジウムのそれは約7分の1である。しかし、期待したS/N比が得られない場合には、燃料断面の一部を用いるとか、燃焼率を10%よりも少し低いものを使用するなど種々な対策が考えられる。したがって、照射燃料をラジウム10mCiで模擬することで大きく誤った結論を得ることはないと考えられる。

#### 4.3.2 特性X線のS/N比およびX線像

標準試料のすぐ脇にラジウムを置いて特性X線のS/N比を測定した。第一X線分光器を代表してLiF分光器、第二を代表してPbSD分光結晶について得た結果をFig.12および13に示す。図にはラジウムを導入しないときの値も合せて示す。ラジウムを導入したときX線検出器(比例計数管)の波高(≡エネルギー)選別機能を動かさず、すなわちウインド巾を無限大で測定した場合S/N比はLiF結晶では約1桁、PbSD結晶では約2桁ほど悪くなっている。しかし、ラジウムを試料室に導入した場合でもX線検出器で波高選別を行えばS/N比は大巾に改善される。LiF結晶ではウインド巾を $10\text{Å}$ 以下に設定すればラジウムのない場合と同程度のS/N比を得ることができる。PbSD結晶でも波高選別を行えばS/N比として十分実用に耐える $10^2$ 程度の値を維持できることがわかった。PETおよびRAP分光結晶についてもLiF分光結晶とほぼ同様な結果を得ている。

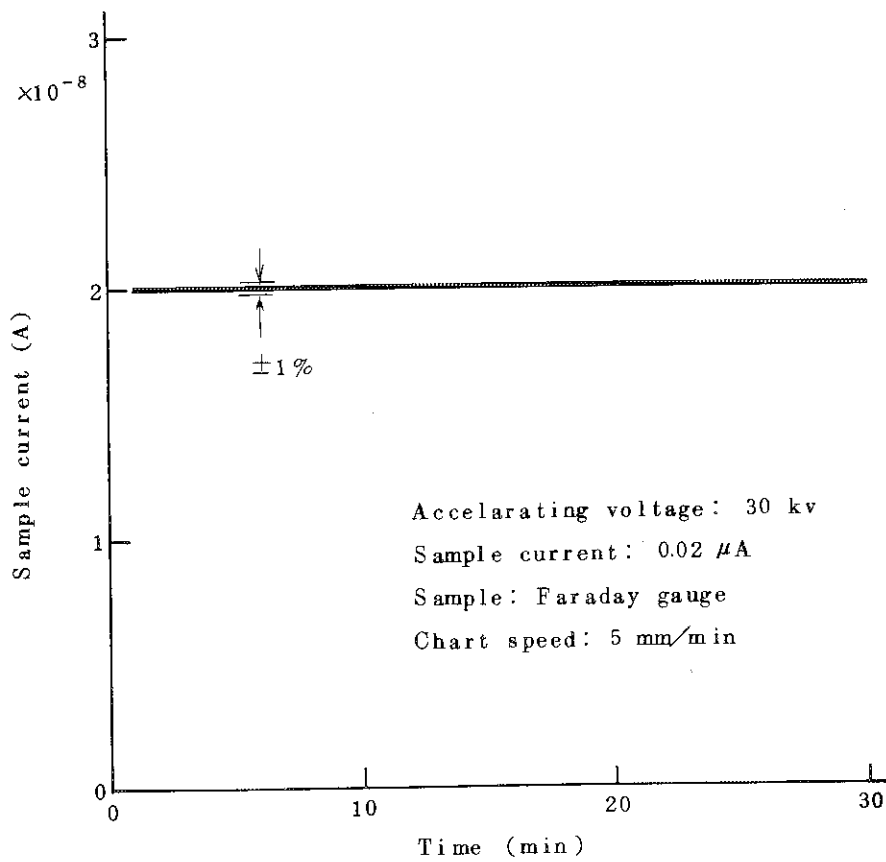
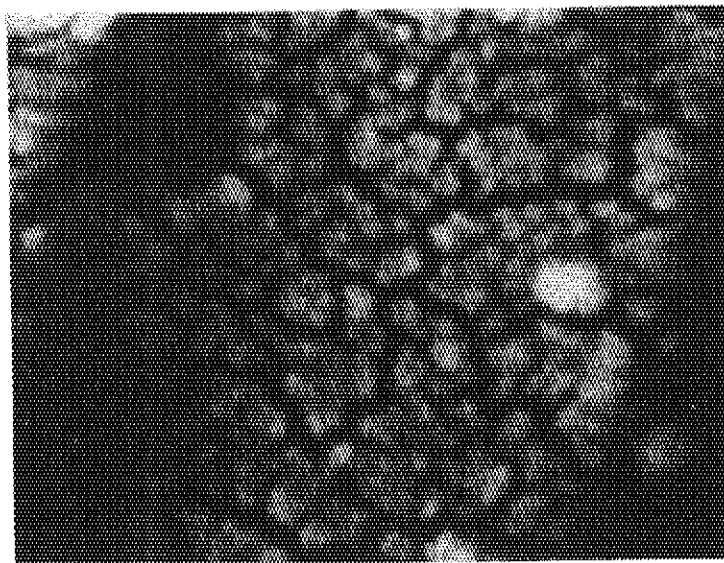


Fig.11. Stability test of sample current



200 Å

Photo. 4 Performance test on resolving power (secondary electron image)

Sample: Latex on the grating ; 6001/mm

Accelerating voltage : 25 kv

Sample current : 0.02 nA

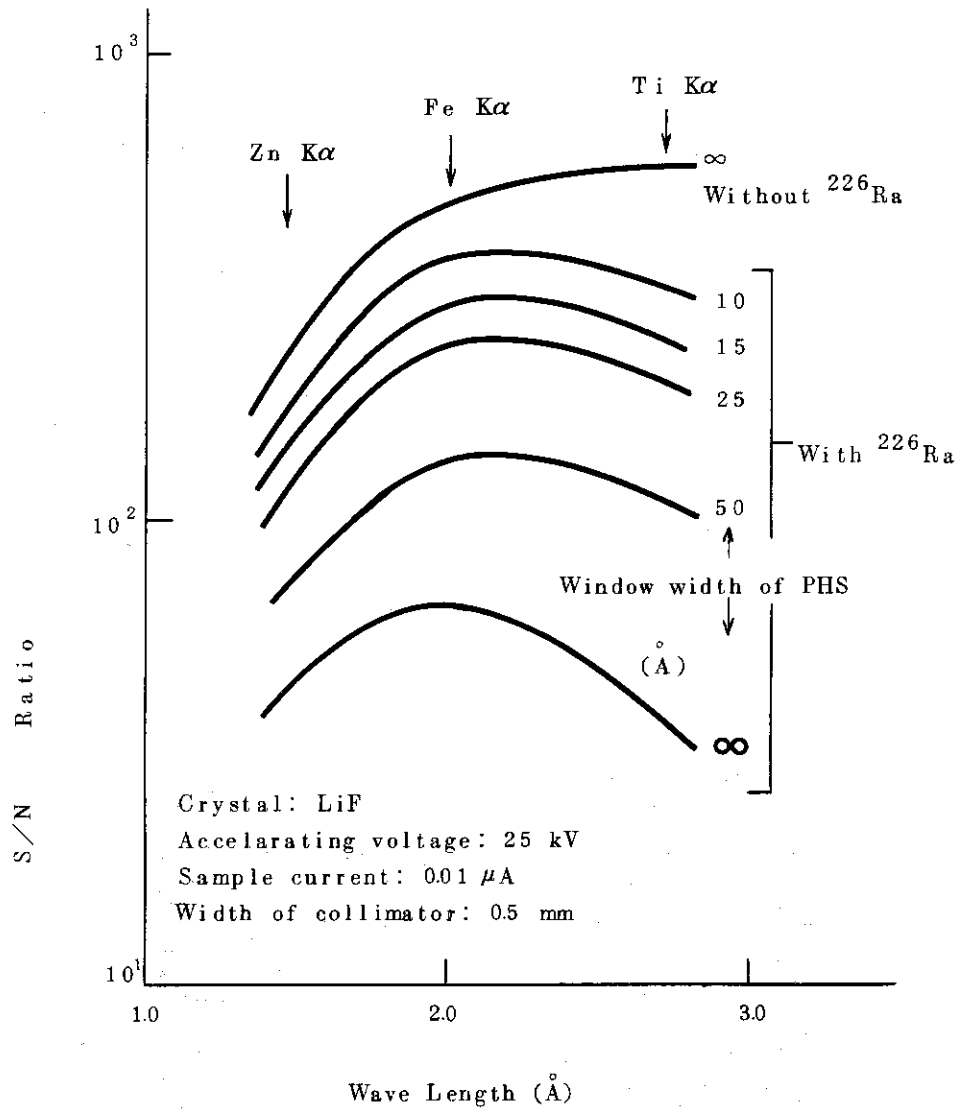


Fig. 12 Signal to noise ratios of X-rays for LiF diffraction crystal with or without  $^{226}\text{Ra}$

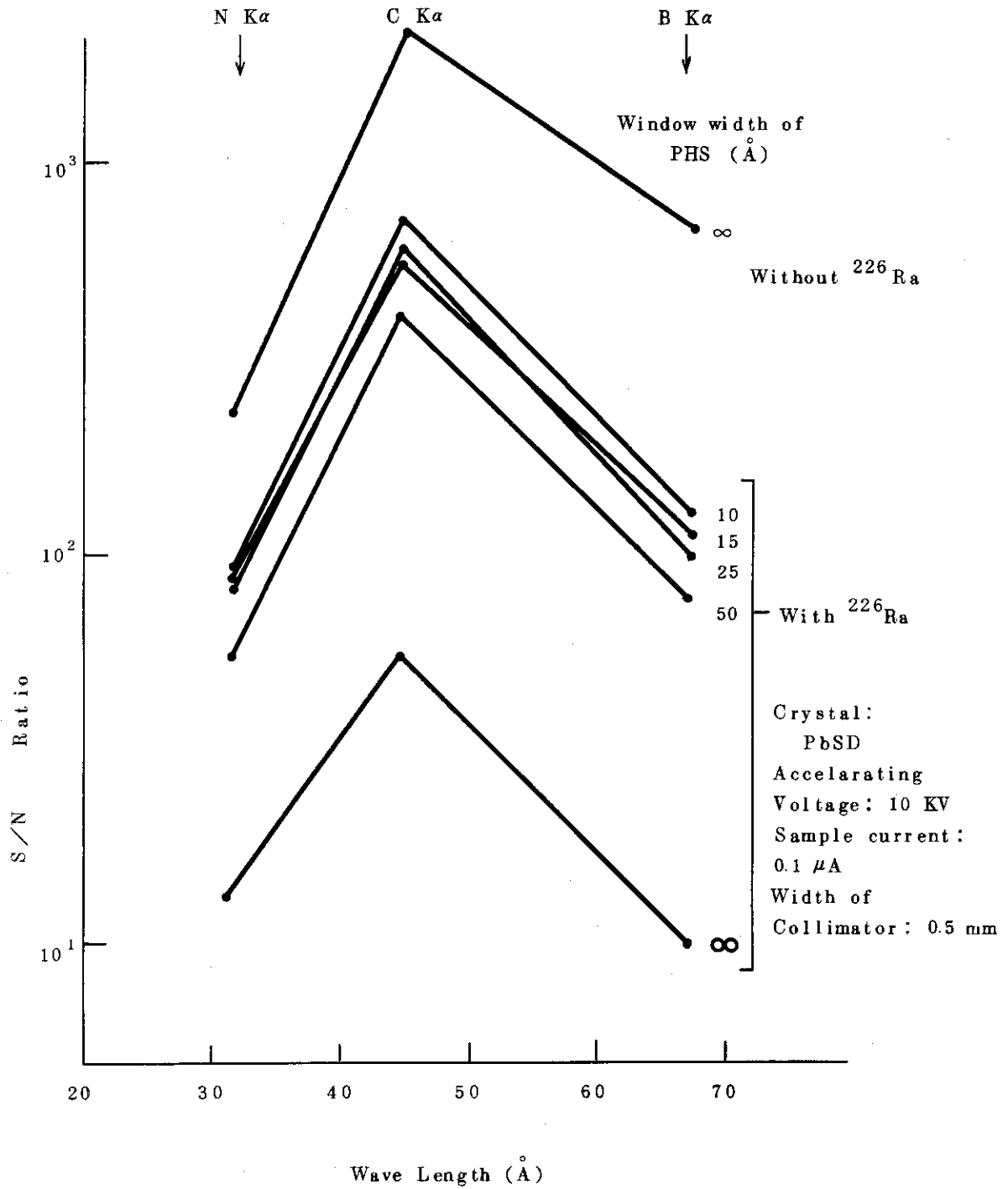
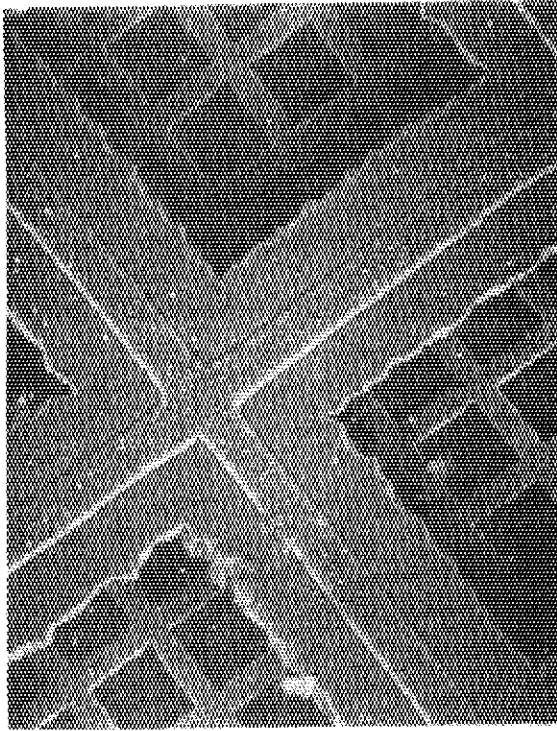
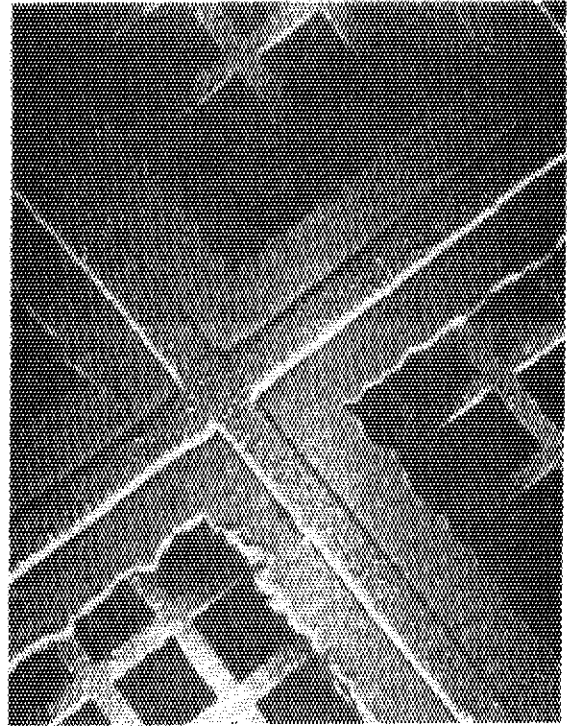


Fig. 13 Signal to noise ratios of X-rays for PbSD diffraction crystal with or without  $^{226}\text{Ra}$

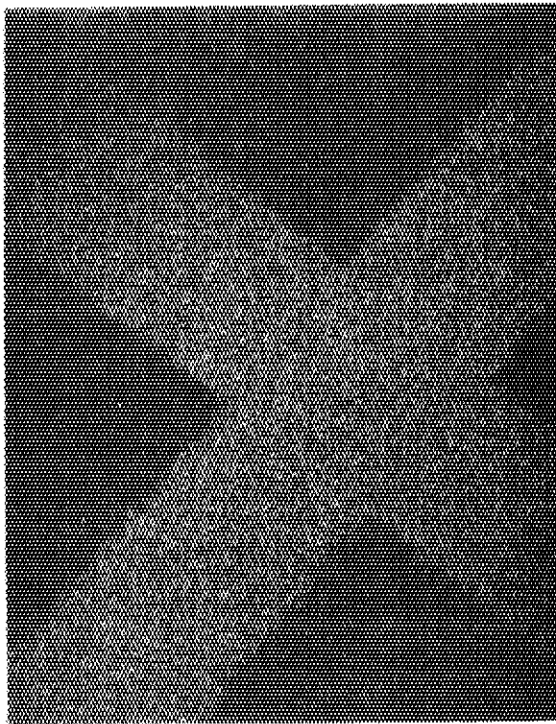


Secondary electron image

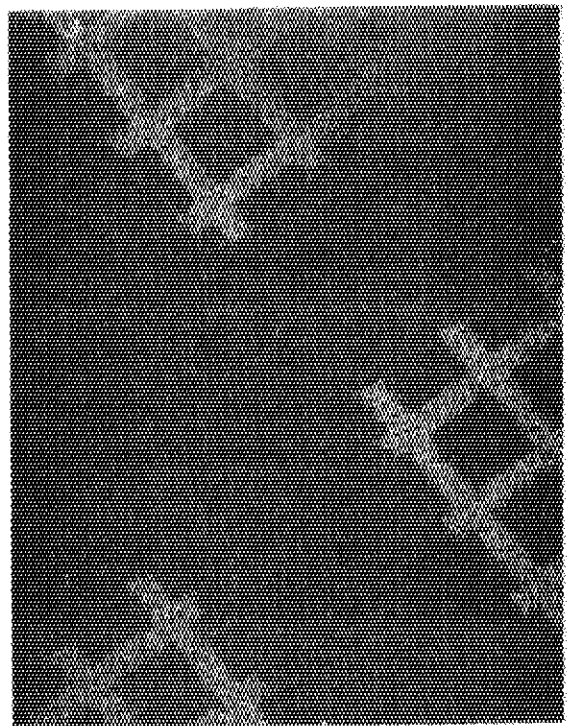


Back scattered electron image

50  $\mu$ m



Cu K $\alpha$  X-ray image



Ag L $\alpha$  X-ray image

Photo. 5 Electron and X-ray scanning images with  $^{226}\text{Ra}$

Photo.5 にラジウムを試料室に導入して撮影した銀および銅メッシュの標準試料の特性X線像を示す。非常に鮮明な画像が得られており所定の性能を有していることを確認した。

#### 4.3.3 $\beta$ 線のしゃへい

3.4でのべたように本装置の反射および2次電子検出器には放射性試料から放出させる強いエネルギーの $\beta$ 線を除去する機能を設けている。この $\beta$ 線のしゃへい試験として、ラジウム10 mCiを試料室に導入して前節でのべた銀および銅メッシュの標準試料の反射および2次電子線像を撮影した。得られた電子線像をPhoto.5に示す。写真から明らかなように $\beta$ 線のしゃへい機能も正常に作動することがわかった。

## 5. あとがき

このたび燃料研究棟に完成したEPMAは、しゃへい型EPMAの国産1号機である。基本機種に採用した島津製作所製のASM-SX型EPMAの性能は世界をリードするレベルにある。本装置の場合、外観上基本機種の原形をとどめないほどに大巾な改造を加えたが基本機種の性能をほぼ保持することができた。また、第4章でのべたように照射燃料を模擬したラジウム10 mCiを用いた試験でしゃへい型EPMAとしてもすぐれた性能を有していることを確認した。本装置は、これらの性能に加えてプルトニウムを安全に取扱えるように試料の表面処理、EPMAへの導入およびEPMAを一連の流れ作業として実施できるように各装置を配列されていること、および装置の保守ならびに修理作業を原研の表面 $\alpha$ 汚染の零管理をじゅん守して行えるよう製作されているなどの特長も備えている。燃料研究棟に既設の諸装置と本装置を組合せて使用することにより高速炉用炭化物系燃料の研究開発に大きく寄与できることを願っている。なお、2.6節でのべた特性X線検出器に設けたコリメータの効果については現在のところまだ十分解析されていないので今後さらに実験を進める予定である。

最後に本装置の詳細設計ならびに製作を担当していただいた島津製作所(株)の各位に厚く感謝いたします。また、本装置の設計製作にあたり有益な御助言をいただいた東海研究所燃料工学部の下川純一部長、プルトニウム燃料研究室の渡辺斉室長に深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) B.T. Bradbery, J.T. Demant, P.M. Martin and D.M. Poole, "Electron Probe Micro-analysis of Irradiated  $UO_2$ ", J. Nucl. Mater., 17, 227 (1965).
- 2) B.M. Jeffery and G.K. Williamson, "The Use of Electron Probe Microanalysers with Gamma-active Materials," J. Sci. Instrum., 41, 172 (1964).
- 3) V.A. Macres, O. Preston, N.C. Yew and R. Buchanan, 5th International



Photo.5 にラジウムを試料室に導入して撮影した銀および銅メッシュの標準試料の特性X線像を示す。非常に鮮明な画像が得られており所定の性能を有していることを確認した。

#### 4.3.3 $\beta$ 線のしゃへい

3.4でのべたように本装置の反射および2次電子検出器には放射性試料から放出させる強いエネルギーの $\beta$ 線を除去する機能を設けている。この $\beta$ 線のしゃへい試験として、ラジウム10 mCiを試料室に導入して前節でのべた銀および銅メッシュの標準試料の反射および2次電子線像を撮影した。得られた電子線像をPhoto.5に示す。写真から明らかなように $\beta$ 線のしゃへい機能も正常に作動することがわかった。

## 5. あとがき

このたび燃料研究棟に完成したEPMAは、しゃへい型EPMAの国産1号機である。基本機種に採用した島津製作所製のASM-SX型EPMAの性能は世界をリードするレベルにある。本装置の場合、外観上基本機種 of 原形をとどめないほどに大巾な改造を加えたが基本機種 of 性能をほぼ保持することができた。また、第4章でのべたように照射燃料を模擬したラジウム10 mCiを用いた試験でしゃへい型EPMAとしてもすぐれた性能を有していることを確認した。本装置は、これらの性能に加えてプルトニウムを安全に取扱えるように試料の表面処理、EPMAへの導入およびEPMAを一連の流れ作業として実施できるように各装置を配列されていること、および装置の保守ならびに修理作業を原研の表面 $\alpha$ 汚染の零管理をじゅん守して行えるよう製作されているなどの特長も備えている。燃料研究棟に既設の諸装置と本装置を組合せて使用することにより高速炉用炭化物系燃料の研究開発に大きく寄与できることを願っている。なお、2.6節でのべた特性X線検出器に設けたコリメータの効果については現在のところまだ十分解析されていないので今後さらに実験を進める予定である。

最後に本装置の詳細設計ならびに製作を担当していただいた島津製作所(株)の各位に厚く感謝いたします。また、本装置の設計製作にあたり有益な御助言をいただいた東海研究所燃料工学部の下川純一部長、プルトニウム燃料研究室の渡辺齊室長に深く感謝いたします。

## 文 献

- 1) B.T. Bradbery, J.T. Demant, P.M. Martin and D.M. Poole, "Electron Probe Micro-analysis of Irradiated  $UO_2$ ", J. Nucl. Mater., 17, 227 (1965).
- 2) B.M. Jeffery and G.K. Williamson, "The Use of Electron Probe Microanalysers with Gamma-active Materials," J. Sci. Instrum., 41, 172 (1964).
- 3) V.A. Macres, O. Preston, N.C. Yew and R. Buchanan, 5th International

- Congress on X-ray Optics and Microanalysis, Tubingen, Berlin, P248(1968).
- 4) J. Adam and F. T. Ewart, "Electron Probe Microanalysis of Irradiated Fuel Elements," Proc. of the European Conf. on Post Irradiation Examination Techniques, P195(1972).
  - 5) F. L. Long, Jr. and J. L. Miller, Jr., "Installation of the Shielded Electron Microprobe Analyzer at ORNL," Proc. 19th Conf. Remote Sys. Tech., P132(1971).
  - 6) N. R. Stalica and C. A. Seils, "Electron Microprobe Analysis of Irradiated Oxide Fuel Pins", ANL-7425 104(1968).
  - 7) D. Quataert and H. W. Schleicher, "The Study of Irradiated and Unirradiated Coated Fuel Particles by the Electron Microprobe", J. Nucl. Mater., 19, 221(1966).
  - 8) J. I. Brarmman, G. Yates and B. Hughs, "On Approach to Problems Encountered in the Electron-probe Analysis of Irradiated Fuel Section", Proc. of the European Conf. on Post Irradiation Examination Techniques, 195(1972).
  - 9) C. E. Johnson, "Electron and Ion Microprobe Analysis of Irradiated Fuels", Physical Aspects of Microscopy and Microanalysis, Ed. B. Siegel and D. R. Beaman, John Willey & Sons, 373(1975).
  - 10) W. Batey and K. Q. Bagley, "Fuel/Clad Reactions in Irradiated Oxide Fuel Pins", J. Nucl. Energy Soc., 13, 49(1974).
  - 11) C. E. Johnson and C. E. Crouthamel, "Cladding Interactions in Mixed Oxide Irradiated Fuels", J. Nucl. Mater., 34, 101(1970).
  - 12) C. E. Johnson, I. Johnson, P. E. Blackburn and C. E. Crouthamel, "Effects of Oxygen Concentration on Properties of Fast Reactor Mixed-Oxide Fuels", Reactor Technol., 15, 303(1972-1973).
  - 13) I. Johnson, C. E. Johnson, C. E. Crouthamel and C. A. Seils, "Oxygen Potential of Irradiated Uranium-Plutonium Fuel Pins", J. Nucl. Mater., 48, 21(1973).
  - 14) 半田宗男, "炭化物, 窒化物, 酸化物燃料 LMFBR および GCFR の増殖潜在力" JAERI-M 7374(1977).
  - 15) 大洗研究所放射線安全取扱手引.
  - 16) D. Quataert and H. W. Schleicher, "The Study of Irradiated and Unirradiated Coated Fuel Particles by the Electron Microprobe", J. Nucl. Mater., 19, 221(1966).
  - 17) W. V. Cummings, H. S. Rosenbaum and R. C. Nelson, "Analysis of Irradiated Materials Using a Shield Electron Probe Microana-

- lyzer", Proc. 18th Conf. on Remote Sys. Technol., 179, (1970).
- 18) 畔野一郎, 小松純浩, 石川 一, 中川英樹, "照射後 $UO_2-PuO_2$ 燃料中の金属塊生成物", 昭和53年日本原子力学会年会, E-24(1978).
  - 19) E.D. Jenson, "Shielded Electron Microprobe Analysis of Irradiated Mixed Oxide Fuels" HEDL-SA-434(1972).
  - 20) R. Natesh, "Shielded Microprobe for Analyzing Radioactive Samples", Midwest Probe Users Group at the University of Wisconsin, Madison, Wisconsin, on Sept. 19, (1968).
  - 21) V.G. Scott, J.M. Johnson and R.T. Cunningham, "Electron Microprobe Analysis of Highly Radioactive Samples", Advances in X-ray Analysis, 9, 314(1966).
  - 22) D.R. O'Boyle, F.L. Brown and J.E. Sanecki, "Solid Fission Product Behavior in Uranium Plutonium Oxide Fuel Irradiated in a Fast Neutron Flux", J. Nucl. Mater., 29, 27(1969).
  - 23) J.R. Padden, R. Burton and C.E. Campbell, "Electron Probe Microanalysis of Irradiated Materials Using a Small Sample Approach", WAPD-TM-644(1967).
  - 24) C.T. Walker, "Investigation of Irradiated Uranium-Plutonium Carbonitride Fuel by Microprobe Analysis", J. Nucl. Mater., 39, 289(1978)
  - 25) 石川紘一, 小松純治, 私信.
  - 26) 若林忠男, 伊達玄, 副島啓義, 石原諄三, 平居暉土, 正木俊行, 荒木武, 「島津走査電子顕微鏡ASM」, 島津評論, 32, 1, 35(1975).
  - 27) 半田宗男, 高橋一郎, 渡辺齊, 「ウラン・プルトニウム混合炭化物系燃料の汎用高温実験装置」JAERI-M 7924(1978).

付 録

島津製作所製ASM-SX型EPMA仕様一覧

- 1. 電子光学系
  - 分解能  $100 \text{ \AA}$
  - 電子プローブ電流  $10^{-6} \sim 10^{-12} \text{ A}$
  - 電子線加速電圧 1, 3, 5, 10, 15, 20, 25, 30
  - 電子レンズ 収束レンズおよび対物レンズ
  - 対物レンズ作動距離 6.5 ~ 35 mm
  - 対物レンズ絞り  $200 \mu$
  - 電子線偏向 電磁2段偏向
- 2. 試料微動系
  - 試料寸法  $24.5 \text{ mm} \phi \times 10 \text{ mm}$
  - 試料の移動  $X \pm 5 \text{ mm}, Y \pm 13 \text{ mm}, Z 40 \text{ mm}$
  - 試料の回転  $\pm 180^\circ$
  - 試料の傾斜  $\sim 5^\circ \sim +45^\circ$
  - 試料駆動装置  $10 \mu/\text{min}, 100 \mu/\text{min}$
  - 走査速度

走査線数	水 平	垂 直	用 途
250	4ms	1s	観察および調整
500	16ms	8s	観察
1000	40ms	40s	観察および撮影
2000	40ms	80s	撮影
1000	150ms	150s	撮影
1	80ms	—	プロフィール
1	30s	—	プロフィール
250	30ms	8s	電子線エアロビューウ
1000	60ms	60s	電子線エアロビューウ
15	30s	7.5min	X線エアロビューウ
30	30s	15min	X線エアロビューウ

- 電氣的視野移動 最大  $500 \mu$  直交2方向
- プローブスポット移動 すべての条件で画像内
- 単走査 写真撮影用
- 増幅器周波数帯域 DC ~ 200 KHz
- 画調コントロール 自動およびマニュアル
- 撮影の開始 電子線走査と連動

3. 検出器  
 2次電子および反射電子検出器 シンチレータフォトマルチプライヤ方式  
 試料吸収電子用端子 1個
4. 観察光学系  
 倍率 ×80  
 視野 3mmφ  
 方式 双眼, 立体視
5. 走査像表示装置  
 走査倍率 ×20~140,000(25kVの場合)ズーム式,  
 倍率の直読可能  
 試料走査面積 1×0.8μ~7×5.5mm連続可変  
 画像面積 140×110mm  
 ブラウン管 高分解能角形ブラウン管  
 (残光, 非残光各1個 計2個)
6. 排気装置  
 操作中の真空度 2~5×10<sup>-5</sup> Torr  
 真空計 ピラニゲージ1式  
 フィリップスゲージ1式  
 排気所要時間 全装置 20min  
 電子銃 1min  
 試料室 30sec
7. 排気速度  
 油回転ポンプ 100ℓ/min 2台  
 油拡散ポンプ 450ℓ/sec 1台  
 安全装置 停電, 断水, 真空低下, 電子線加速電源高圧など  
 に対して保護つき
8. X線分光器  
 X線取出し角度 52.5°  
 形式 結晶直進式波長比例方式  
 曲率半径 5in  
 個数 2  
 構成

チャンネル	検出器	分光結晶および分光範囲
# 1	イクザトロン	LiF(0.86~3.79Å)ADP(2.26~10.0Å)
# 2	F.P.C	RAP(5.76~24.6Å)PbSD(2.1~94.6Å)

分析対象元素 <sup>5</sup>B ~ <sup>92</sup>U

9. 分光器駆動部

駆動法	モータおよびマニュアル
駆動速度	LiFに対して 0.001, 0.01, 0.02, 0.1 Å/min RAPに対して 0.01, 0.1, 0.2, 1.0 Å/min
1.0. 前置増幅器	
分解能	0.5 μs
利得	×60
1.1. 比例増幅器	
分解能	1 μs
利得	×400
1.2. 波高選別器	
入力パルス幅	0.8 ~ 100 μs
基準レベル	800 mV
ウィンド幅	0 ~ ±60% および INT 測定X線波長に対する標準 セット位置の指示目盛つき
出力	-2.2 V以上 0.3 ~ 0.5 μs
1.3. 計数率計	
時定数	0.005, 0.1, 0.5, 2, 5, ∞ s
計数レンジ	100, 200, 500, 1K, 2K, 5K, 10K, 20K, 50K, CPS および TEST
1.4. スケーラ	
チャンネル数	2
分解能	1 MHz
表示けた数	6けた (オーバーフロー表示つき)
プリセットカウント	0.4, 1, 2, 4, 10, 20, 40, 100, 200, 400, 1000K カウント
表示	発光ダイオード
1.5. タイマ部	
表示けた数	6けた (最小 0.01 s, 最大 10 <sup>4</sup> s)
設定時間	0.4, 1, 2, 4, 10, 20, 40, 100, 200, 400, 1000 s
精度	1000 s で ±1 s 以内
1.6. 検出器電源	
出力	+1500 ~ +2300 VDC 35 段切換
安定度	5 × 10 <sup>-4</sup> 以下
1.7. レコーダ	

形式	自立形多ペン
ペン数	3入力3ペン
測定範囲	+2V~-50mVDC
応答測度	1s/フルスケール
チャート幅	250mm
チャート速度	1, 2, 3, 4, 5, 6, 10, 12, 15, 20, 30, 60cm/M&H
精度	±0.3%以内/フルスケール
その他	チャート送りのON, OFF. ペンリフトが外部信号で制御できる。

### 1.8. 付属装置

エネルギー分散形X線検出装置  
 高分解能アタッチメント  
 透過電子検出器 (STEMアタッチメント)  
 TV走査装置 TV-3形  
 イメージコンポーザ  
 トーンコントローラ  
 イメージローテーション  
 チルトコレクション  
 ダイナミックフォーカス・フォーカスアライメント装置  
 元素名自動指示装置  
 コンタミネーション防止装置  
 多試料選択装置  
 35mmカメラ撮影装置  
 高速定性分析装置  
 透過偏光観察装置