

JAERI-M

9407

液体ヘリウム温度で中性子照射した
試料の長さ変化の測定

1981年3月

渡辺 光男・前田 裕司

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、複製などのお問い合わせは、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.

液体ヘリウム温度で中性子照射した試料の長さ変化の測定

日本原子力研究所東海研究所物理部

渡辺 光男・前田 裕司

(1981年2月10日受理)

液体ヘリウム温度で中性子照射した試料の長さ変化を測定する装置を開発した。長さ変化の測定は試料と電極板で構成される電気容量の変化を検出することによって測定する。本報告は、液体ヘリウム温度で長さ変化の測定装置およびその方法について詳細に述べる。

5 Kで中性子照射した純Al の長さ変化の回復の測定を10～100 Kの温度領域で行なった。結果は別に測定した格子定数の回復の結果と良く対応した。

またこの測定方法を利用して、Al-Ge合金の熱膨張の測定を試みた。

Measurement of Length Changes in Neutron-Irradiated Specimen
at Liquid Helium Temperature

Mitsuo WATANABE and Hiroshi MAETA

Division of Physics, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received February 10, 1981)

The apparatus described was developed to measure length changes in neutron-irradiated specimen at liquid helium temperature and following each isochronal annealing. This is based on the measurement of change in capacity of a condenser due to the change in length of the specimen. In this report we described in detail a method of length-change measurement at liquid helium temperature.

Recovery of length changes in pure aluminum after fast neutron irradiation at 5 K was measured in the range of 10~100 K. It was similar to the recovery of lattice parameter changes in aluminum. Possible explanations for this result are discussed.

This technique was also applied to measurements of linear thermal expansion in Al-Ge alloy.

Keywords;

Neutrons, Expansion, Measurement, Capacitors, Low Temperature, Radiation Effects, Aluminum, Aluminum Alloy, Lattice Parameter, Thermal Expansion, Cryostats, LHTL, JRR-3, Length Change

目 次

1. 序論	1
2. 長さ変化の測定方法	2
2.1 電気容量を利用した長さ変化の測定原理	2
2.2 微小なコンデンサ容量の測定法	3
3. 測定装置	5
3.1 検出部	5
3.1.1 平行板バネ型検出器	5
3.1.2 カプセル型検出器	6
3.2 低温用同軸ケーブル	9
3.3 電気容量測定器	9
3.4 長さ測定用ガラス製クライオスタット	10
4. 測定結果	13
4.1 液体ヘリウム中での電気容量の測定	13
4.2 昇温後の検出器の再現性	14
4.3 LHTLで中性子照射したAlの長さ変化の測定	15
4.4 Al-Ge合金の熱膨張の測定	17
5. 考察	18
5.1 液体ヘリウム温度での電気容量の測定	18
5.2 5 Kで中性子照射したAlの長さ変化の回復	18
5.3 Al-Ge合金の熱膨張の測定	19
6. 結論	20
謝 辞	20
参考文献	21

Contents

1.	Introduction	1
2.	A method to measure length changes	2
2.1	Principle of measurements of length changes by means of a capacitor technique	2
2.2	A method to measure small capacitances	3
3.	Apparatus for length-change measurements	5
3.1	Detector	
3.1.1	Parallel-spring-type detector	5
3.1.2	Capsule-type detector	5
3.2	Coaxial cable used at low temperature	6
3.3	Apparatus for capacitance measurements	9
3.4	A cryostat to measure length changes	10
4.	Results	13
4.1	Measurements of capacitances at liquid helium temperature	13
4.2	Reproducibility of length changes in dummy specimen after isochronal annealings	14
4.3	Measurements of length changes in neutron-irradiated aluminum at liquid helium temperature	15
4.4	Measurements of thermal expansion in Al-Ge alloy	17
5.	Discussion	18
5.1	Measurements of capacitances at liquid helium temperature	18
5.2	Recovery of length changes in neutron-irradiated aluminum at liquid helium temperature	18
5.3	Measurements of thermal expansion in Al-Ge alloy	19
6.	Conclusions	20
	Acknowledgement	20
	References	21

1. 序 論

結晶中に放射線を照射すると格子欠陥（以下、照射欠陥 radiation-induced defects と呼ぶ）が生成される。最も単純な欠陥は格子間原子と空孔であり、その対をフレンケル欠陥と呼んでいる。実際の原子炉の中の温度では、これらの照射欠陥は結晶中を動いて、消滅したりまた種々の複合欠陥、たとえば転位ループやボイド（void）等を作る。ボイドが形成されるとそれだけ結晶は膨張し（void swelling）、材料の寸法変化や形状変化を引き起す。また空孔の集まる場所によっては材料が著しく脆くなる。したがって新しい原子炉材料の開発や材料の照射損傷を予見するためには、これら照射欠陥の基本的性質やその集合過程を調べることが重要である。

これらの照射欠陥の基本的性質や集合の素過程は、照射欠陥が動きまわらない温度（たとえば、液体ヘリウム温度、4.2 K）で照射を行ない欠陥を凍結したり、その後温度を上げて欠陥を回復させること等により調べることが必要である。

照射欠陥が結晶中に導入されると、結晶の物理的性質、たとえば、電気抵抗、格子定数、長さ等が変化する。電気抵抗（ $\Delta\rho/\rho$ ）は導入された格子間原子と空孔によって増加する。一方格子定数の変化（ $\Delta a/a$ ）は主に格子間原子から、長さ変化（ $\Delta\ell/\ell$ ）は空孔からの寄与が大きいと定性的に考えられる。

したがって $\Delta\rho/\rho$, $\Delta a/a$, $\Delta\ell/\ell$ の物理量を測定することにより、欠陥の基本的性質や欠陥の同定、更に集合過程の機構が解明できる。

低温で導入した照射欠陥の研究の多くは電気抵抗の測定によって行なわれてきた¹⁾。最近X線による格子定数の測定も行なわれているが²⁻⁸⁾、長さ変化の測定は少ない⁹⁻¹³⁾。

長さ変化の測定は三端子法による電気容量の測定から精度よく求めることが出来る¹⁴⁾。その方法によって0.1 Åの変位が検出されたことが報告されている¹⁵⁾。この方法で低温で電子線照射した長さ変化の測定はGe (North と Buschert, 1966¹¹⁾) およびCu と Al (花田 et al., 1969¹²⁾) について報告されている。しかし、この方法を利用して低温で中性子照射した試料の長さ変化の測定は報告されていない。

加速器を利用した照射実験では、試料は固定して、低温に冷却した状態で照射と測定ができる。一方原子炉を利用した低温での中性子照射では、試料を検出器より取り外して照射を行ない、照射後は温度を上げることなく試料を測定装置に移しかえる。その場合、試料は液体ヘリウム中に浸して移しかえを行なう¹⁶⁾。一方電気容量の測定では試料および検出器の雰囲気は真空が望ましい。しかし中性子照射の場合移しかえの後、低温の状態で試料の雰囲気を真空にすることは技術的に困難をとまなう。したがって、電気容量の測定が液体ヘリウム中で行なえる方法を開発する必要がある。

我々は液体ヘリウム中で電気容量が精度よく測定できる検出器およびクライオスタットを開発した。それにより、低温で真空に引くことなく中性子照射した試料の長さ変化の測定が可能となった。

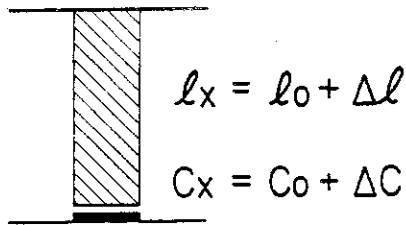
本論文は、液体ヘリウム温度で長さ変化を測定するための検出器、クライオスタットおよびその装置について述べる。

更に、JRR-3に設置したLHTL（極低温照射装置）を使用して5Kで中性子照射した純Alの長さ変化の10～100Kの温度領域での回復の測定例について述べる。また新しく開発した検出器を使用して、Al-Ge合金の熱膨張を10～280Kの温度領域で測定した例についても報告する。

2. 長さ変化の測定方法

2.1 電気容量を利用した長さ変化の測定原理¹⁴⁾

長さ変化の測定法で現在最も感度良く行なえる方法は、長さ変化を電気容量の変化として測定する方法である。その原理を第1図に示す。試料の一端を固定し、他の一端をコンデンサ電



第1図 長さ変化測定原理図
長さ変化 (Δl) を電気容量変化 (ΔC) に変換

極面とする。その面に対応して固定したコンデンサ電極をおくことにより、試料の長さの変化を電気容量変化として測定する。その関係式を(1)式に示す。

$$C = A \cdot K \cdot \epsilon \cdot \frac{1}{d} \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで、

- C ; 電気容量 (p F)
- A ; 電極板の面積 (cm²)
- K ; 定数 (8.85 × 10⁻² p F/cm²)
- ε ; 比誘電率 (電極間に介在する物質, 真空中 : 1, 液体ヘリウム : 1.047)
- d ; 二つの電極の間隔 (cm)

(1)式より、電気容量の変化 ΔC と、コンデンサ電極の間隔の変化 Δd は(2)式で表わされる。

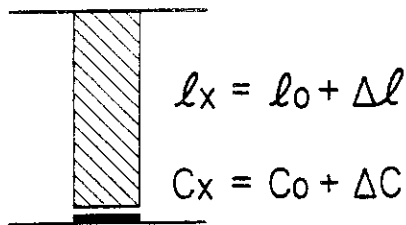
本論文は、液体ヘリウム温度で長さ変化を測定するための検出器、クライオスタットおよびその装置について述べる。

更に、JRR-3に設置したLHTL（極低温照射装置）を使用して5Kで中性子照射した純Alの長さ変化の10～100Kの温度領域での回復の測定例について述べる。また新しく開発した検出器を使用して、Al-Ge合金の熱膨張を10～280Kの温度領域で測定した例についても報告する。

2. 長さ変化の測定方法

2.1 電気容量を利用した長さ変化の測定原理¹⁴⁾

長さ変化の測定法で現在最も感度良く行なえる方法は、長さ変化を電気容量の変化として測定する方法である。その原理を第1図に示す。試料の一端を固定し、他の一端をコンデンサ電



第1図 長さ変化測定原理図
長さ変化(Δl)を電気容量変化(ΔC)に変換

極面とする。その面に対応して固定したコンデンサ電極をおくことにより、試料の長さの変化を電気容量変化として測定する。その関係式を(1)式に示す。

$$C = A \cdot K \cdot \epsilon \cdot \frac{1}{d} \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで、

C；電気容量（pF）

A；電極板の面積（cm²）

K；定数（8.85 × 10⁻² pF/cm²）

ε；比誘電率（電極間に介在する物質，真空中：1，液体ヘリウム：1.047）

d；二つの電極の間隔（cm）

(1)式より、電気容量の変化ΔCと、コンデンサ電極の間隔の変化Δdは(2)式で表わされる。

$$\Delta d = -A \cdot K \cdot \epsilon \cdot \frac{\Delta C}{C^2} \dots\dots\dots (2)$$

したがって電気容量の変化 ΔC を測定することにより、長さの変化を測定することができる。
 長さ変化を精度よく測定するには、電気容量値を大きくすることが望ましい。実際に長さ変化の測定で電気容量を形成する場合、面積 A には制限があり、間隔 d を 0.01 mm 以下にすることは難しい。たとえば、 $A = 2.0 \text{ cm}^2$ (直径 1.6 cm)、 $d = 0.02 \text{ mm}$ とすれば、電気容量 C は $\sim 10 \text{ pF}$ となる。一方照射実験では、格子定数、電気抵抗の相対精度は $\sim 10^{-6}$ であり、これらと長さ変化の測定結果と比較するためには、相対精度を $\sim 10^{-6}$ とする必要がある。したがって、電気容量は、 10 pF の 10^{-6} の相対精度の測定が要求される。これらは微小容量の測定であり、測定回路や検出器等に誘起する漂遊容量が測定する時、重大な問題となってくる。次節でこれらの漂遊容量の影響を少なくして精度良く測定する方法について述べる。

2.2 微小なコンデンサ容量の測定法¹⁷⁾

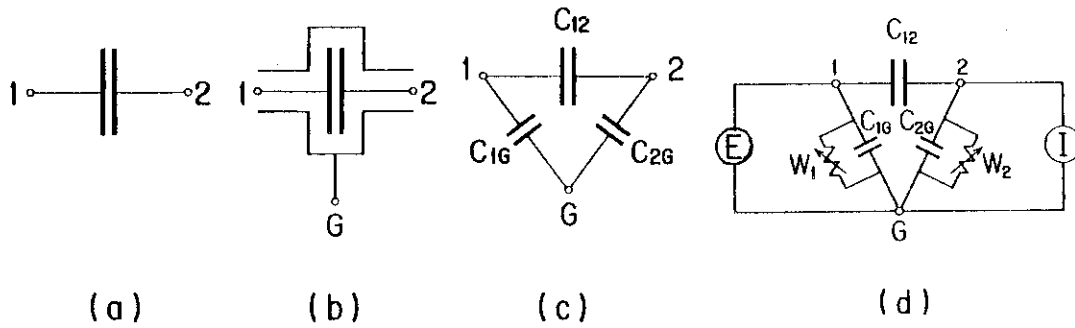
第2図(a)に示す2端子コンデンサは真のコンデンサ容量の他に線間容量、対地容量、対物容量(接地された)などの原因による漂遊容量が同時に計測される。したがって、コンデンサ容量が漂遊容量にくらべて十分大きい場合には問題ないが、コンデンサ容量が 1000 pF 以下になると、漂遊容量の変動のため正確な測定が困難となる。

第2図(b)に示すコンデンサではその外側を導体で完全に静電遮蔽して第3の端子を設ける(3端子コンデンサ)。これにより上述の漂遊容量の影響を少なくすることができる。3端子コンデンサの等価回路を第2図(c)に示す。微小容量の測定では等価回路に示す C_{1G} 、 C_{2G} が大きな値として存在する。3端子等価回路に電源 E と電流計 I を加えた図を第2図(d)に示す。そして W_1 、 W_2 は同軸ケーブルの損失及び電極支持物の損失などを含んでいる抵抗である。その図において電源に定電圧電源を用いれば、 W_1 、 C_{1G} が存在しても1とGの間は電圧 E を保つ。また内部抵抗零の電流計を用いれば、電流計 I を通る2とGの間は電圧0となり、 C_{2G} と W_2 を通る2とGの間は電流0となる。そのような条件のもとでは、 C_{1G} 、 W_1 、 C_{2G} 、 W_2 の影響なしに $WC = I/E$ の式が成り立つ。すなわち、微小な電気容量が漂遊容量の影響なく測定できる。

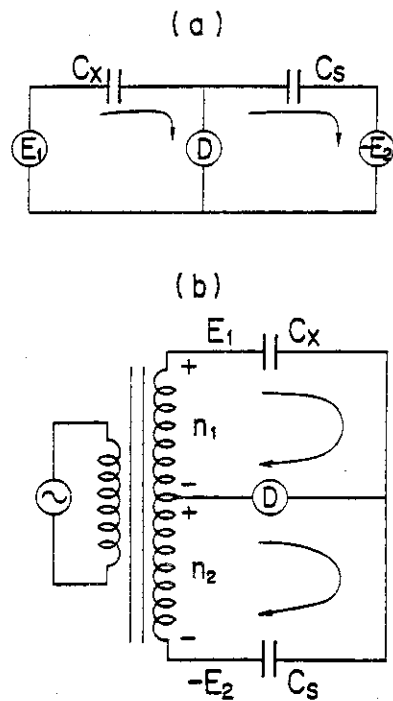
上の原理を応用し、未知の電気容量 C_X 、標準電気容量 C_S を漂遊容量を除いて比較できる半ブリッジを第3図(a)に示す。この方法は交流ブリッジ法とよばれ最も高精度に微小容量が測定できる。第3図(b)にこのブリッジの電源に変成器を用いた変成器ブリッジの回路を示す。このブリッジが平衡状態になったとき、つまり電流検出器に電流が流れなくなる状態では次の関係式が成り立つ。

$$\frac{C_X}{C_S} = \frac{E_2}{E_1} = \frac{n_2}{n_1} \dots\dots\dots (3)$$

ここで n_1 , n_2 は変成器各部の巻数である。したがって、変成器の巻数タップを変えることにより、ブリッジ回路を平衡に保ち、未知の電気容量 C_x が C_s と比較して測定できる。



第2図 2端子コンデンサと3端子コンデンサ
 (a) 2端子コンデンサ
 (b) 3端子コンデンサ
 (c) 3端子コンデンサ等価回路
 (d) 3端子コンデンサ測定等価回路



第3図 コンデンサブリッジ
 (a) 半ブリッジ
 (b) 変成器ブリッジ

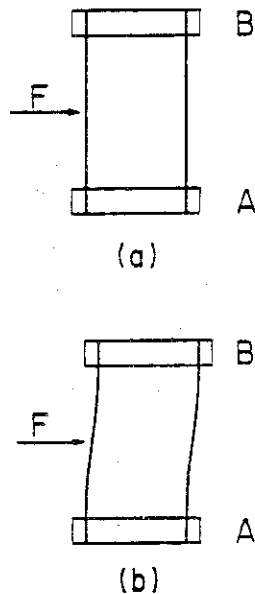
3. 測定装置

3.1 検出部

2つのタイプの長さ変化測定用検出器を製作した。1つは平行な2枚の板バネを利用し、試料の長さ変化を板バネ固定端と平行に移動させ、移動端の先端にコンデンサ電極板を設けて長さ変化を電気容量変化として検出する方法である(第5図参照)。他はカプセルタイプである。試料とコンデンサ検出部を一体化したもので、照射前、照射後の測定において試料の取り付け状態を変えることなく測定ができる(第6図参照)。以下、その2つの検出器について述べる。

3.1.1 平行板バネ型検出器

平行板バネ型検出器の原理図を第4図に示す。図において平行におかれた2本棒A、Bの両端に、それと垂直に2枚の板バネを図のように平行に取り付ける。その状態でAを固定し、図

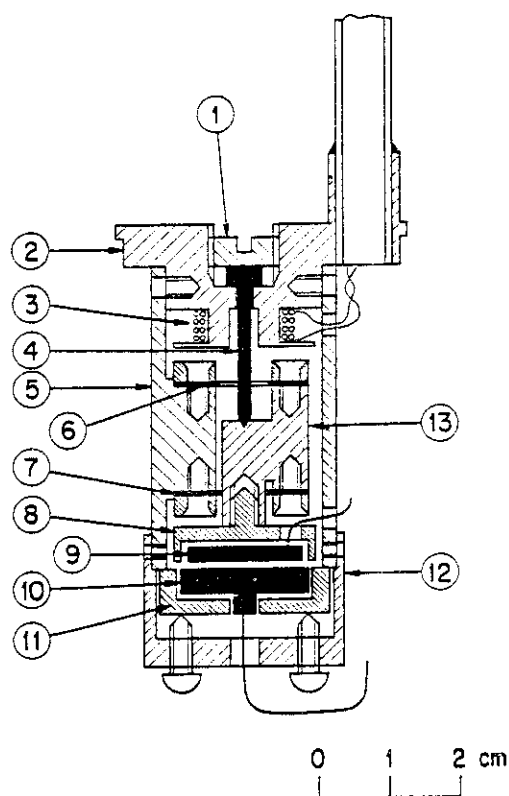


第4図 平行板バネの原理

板バネ中心に力Fを加えると、固定端Aに
平行に自由端Bが動く。

のようにABの中間に力Fを加えると、自由端であるBの棒がAと平行に動く。この原理を応用して製作したのが、第5図に示す平行板バネ型検出器である。試料¹⁹⁾④を上部より入れ、検出器台座②に固定ネジ①でしっかり押える。試料がネジで固定した状態では、²⁰⁾⑥、⑦の円形板バネの力で試料受け⑬は常に上に押し上げられ試料先端と密着している。この状態で試料の長さが変化すると、試料受け台下部に設置した上部電極板⑨が試料の長さ変化に追隨して上下し、下部電極板⑩とで構成された電気容量が変化する。

上部電極板面⑨と下部電極板面⑩とを平行面にするために以下の方法を行なった。⑩⑪⑫の下部電極部をはずした状態で、上部電極をダミー試料で検出器外筒⑤の下部面まで押し出す。ダミーを固定ネジ①で固定した後、検出器外筒⑤の下部面、上部電極板ホルダー⑧、上部電極板⑨を#1500のサンドペーパーで平面に研磨する。次に下部電極板⑩、および下部電極板ホルダー⑪を同様に#1500のサンドペーパーで平面に研磨する。このようにしたものを下部電極板押え⑫の中に入れ検出器外筒にビスで固定する。その後、下部電極板押えのビスで上部電極板ホルダー⑧を上部に押し上げ検出器外筒下部面に密着させる。それによりコンデンサの上下の電極面が平行面に保持できた。



- ①固定ネジ ②検出器台座 ③ヒーター
 ④試料 ⑤検出器外筒 ⑥⑦円形板バネ
 ⑧上部電極板ホルダー ⑨上部電極板
 ⑩下部電極板 ⑪下部電極板ホルダー
 ⑫下部電極板押え ⑬試料受け

第5図 平行板バネ型検出器

3.1.2 カプセル型検出器²¹⁾

このカプセル型検出器は試料とコンデンサ検出部を一体化したものである。そのようにすることで照射前、照射後測定において試料の取り付けの状態を変えずに測定ができる。

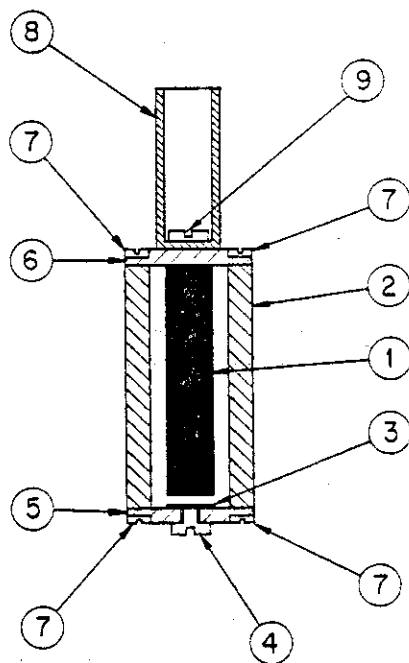
その長さ測定用カプセルの構造を第6図に示す。上部電極部は絶縁体(ラバイト)で作った試料支持板⑥を間にはさんで、試料①と上部電極端子⑧とを導体ビス⑨で固定する。その試料支持板⑥を金属製の円筒ホルダー②上部にビス⑦で取り付ける。下部電極部は絶縁体(ラバイト)で作った下部電極支持板⑤の中心に下部電極端子④のビスをねじ込み貫通させ、その反対面に金属(Au)を蒸着して下部電極蒸着膜③を作る。その下部電極支持板⑤を円筒ホルダー②の下部にビス⑦で取り付け、試料先端面と下部電極蒸着膜③とでコンデンサを形成した。

試料先端面と下部電極蒸着膜との間隙の製作は以下の方法で行なった。試料支持板⑥と試料①との間に0.1 mm程度の金属箔のスペーサーを入れて、導体ビス⑨で試料①を固定する。それを円筒ホルダー②に取り付けた後、円筒ホルダー下部面と試料先端面とを#1500のサンドペーパーで研磨し円滑にした。次にスペーサーを取りはずし、試料を再び組立てると、円筒ホルダー②下部面と試料①の先端面がスペーサーの厚さ(0.1 mm)程度のギャップを生じる。そこへ蒸着した下部電極支持板⑤を取り付けると、上下電極面に0.1 mm程度の間隙ができた。

下部電極支持板⑤に下部電極端子④のビスをねじ込み貫通させた後の蒸着面は、ネジの部分にくぼみができる。そのまま下部電極蒸着膜③を形成すると電極面にくぼみができ測定誤差の原因になる。そこでそのくぼみを埋める方法として次のように行なった。GE701の接着剤をシンナーで50倍にうすめた液を、細い棒でネジのくぼみに滴下し、すばやく#1500のサンドペーパーで研磨する。削られたラバイトの粉がくぼみに入り、入った粉が接着剤とよく結合して円滑な平面ができた。この平面に下部電極蒸着膜を形成し、液体ヘリウム中で測定を行なった結果は良好である。

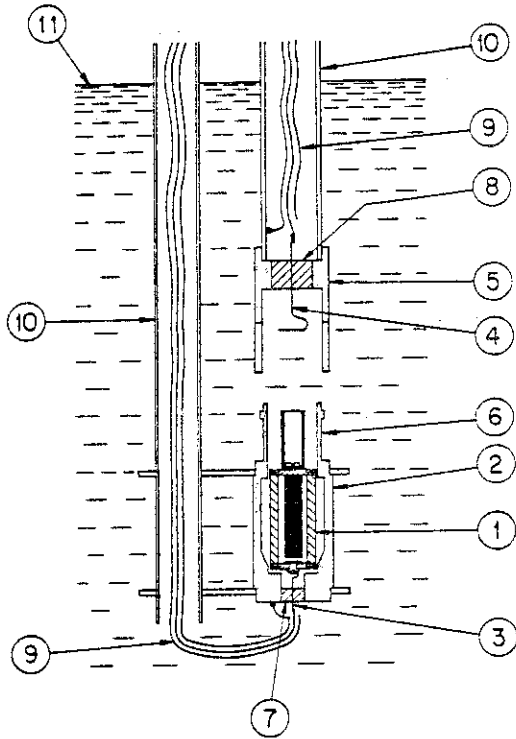
カプセル型検出器の電気容量の測定の方法は、試料部を第6図のように長さ測定用カプセルに組み立てた後、第7図に示す検出器ホルダー②に入れ、上部コネクター⑤を下部コネクター⑥に差し込む。そのようにすることで上部電極バネ④と下部電極バネ③とで試料部の上下電極端子とが接続される。⑤と⑥のコネクターは同軸コネクターの接合部をそのまま使用し、シールド部が完全に接合して3端子コンデンサを形成するようにした。

ここで平行板バネ型検出器とカプセル型検出器の特長を比較した表を第1表に示す。



- ①試料 ②円筒ホルダー ③下部電極蒸着膜
 ④下部電極端子 ⑤下部電極支持板(絶縁体)
 ⑥試料支持板(絶縁体) ⑦ビス
 ⑧上部電極端子 ⑨導体ビス

第6図 長さ測定用カプセル



- ①長さ測定用カプセル ②検出器ホルダー
- ③下部電極導体バネ ④上部電極導体バネ
- ⑤上部コネクタ ⑥下部コネクタ
- ⑦⑧絶縁体 ⑨同軸線 ⑩SUSパイプ
- ⑪液体ヘリウム

第7図 カプセル型検出器の使用状態を示す図

第1表 検出器の比較表

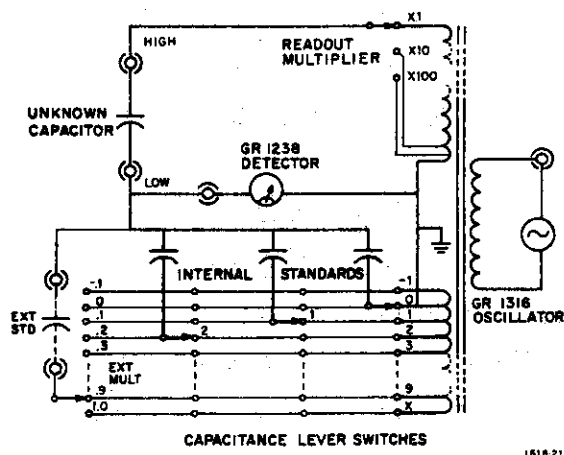
	平行板バネ型検出器	カプセル型検出器
感 度	大 (電極面が大きい)	小 (電極面が試料の先端面であるため小さい)
LHTLでの照射	試料のみ	試料と試料ホルダーおよびコンデンサ検出部
測 定 対 象	試料のみの照射効果が測定できる。	試料ホルダーを純金属、試料をその合金とすることで、純金属との比較測定ができる。
試料のセッティング	照射する時、試料のみを検出部より外すため、照射前と照射後とでは取り付けの誤差が生じる。	試料とコンデンサ検出部とが一体化になっているため、照射前と照射後で変らない。
照射試料の検出部への取り付け操作	試料を検出器の小さい穴に差し込むためセットしにくい。	大きい穴の検出器ホルダーに試料カプセルを入れるためセットしやすい。
試料の形状	複雑である。	単純である。
照射前準備	試料のみでよい。	カプセル型に組立てるため手間がかかる。

3.2 低温用同軸ケーブル

本実験では測定温度は 4.2 K の液体ヘリウム中で測定を行なう必要がある。電気容量を 3 端子コンデンサ方式で測定するには、低温用同軸ケーブルが必要であり、低温用ケーブルとして次の点を考慮しなければならない。冷媒の気化を少なくするために熱伝導率の小さな材料を用いる、また低温でケーブルの構成材料が破損しないこと。以上の理由から 2 種類の手作りの同軸ケーブルを製作した。1 つは外径 6 φ mm、肉厚 0.3 mm の SUS パイプの中にテフロンでサポートした 1 φ mm SUS 棒を入れた同軸ケーブルである。もう 1 つはサポートした部分を全部アラルダイト接着剤で充てんした同軸ケーブルである。その同軸ケーブルを検出器に接続し電気容量を測定した結果、いずれの場合も測定値が安定しない。また同軸ケーブルに触れたり、あるいは力を加えると検出用メーター（位相差検出器）が振り切れ測定が不可能であった。そこで、規格 5 C 2 V（75 Ω、外径 7.7 φ mm）と 1.5 C-QEV（75 Ω、外径 3 φ mm）の高周波同軸ケーブル 2 種類を液体窒素に入れ割れないことを確認した後、検出器に接続して液体ヘリウム中で使用した結果は良好であった。本実験は径の細い 1.5 C-QEV を使用した。

3.3 電気容量測定器

電気容量測定は、Gen Rad 社製（USA）、GR 1621 型（Precision Capacitance Measurement System）を使用した。この精密容量測定装置の略図を第 8 図に示す。この装置は、発振器、変成器ブリッジ、位相差検出器（ロックイン・アンプ）、標準コンデンサ



第 8 図 GR 1621 型. Precision Capacitance Measurement System（仕様説明書より）

（ 10 pF ）およびプリンターより構成される。この装置は $10^{-7} \text{ pF} \sim 10 \mu\text{F}$ の領域の容量が測定できる。検出の最大感度は 10 pF で 10^{-8} である。測定に使用した周波数は 1 KHz であり、位相差検出器は 1 KHz のシグナルのみを検出するので、商業周波数や外部振動にともなう雑音を極力少なくすることができる。測定は全て 3 端子法で行なった。

3.4 長さ測定用ガラス製クライオスタット²⁴⁾

LHTLにより5Kで中性子照射した試料を温度を上げることなく測定用検出器に取り付け、更に等時焼鈍を5~300Kの温度領域で行ない、照射欠陥の回復の様子を調べる。このクライオスタットは昇温、降温において機械的振動をさける目的のために製作した温度可変用クライオスタットである。

構造

クライオスタットの構造を第9図に示す。このクライオスタットは液体窒素デュワーびんと液体ヘリウムデュワーびんから成り、更に液体ヘリウムデュワーびんの内側に、底に穴をあけたデュワーびん²²⁾以下“底穴あきデュワーびん”、第10図)を取り付けたものである。この“底穴あきデュワーびん”の底穴の外側には“ひだ”をつけた²³⁾。この“ひだ”はデュワーびんの内側と外側との熱膨張による歪みを吸収させる。

使用方法

このクライオスタットへの液体ヘリウムの注入は、まず、外側デュワーびんの口よりトランスファチューブを入れ、外側デュワーびんに液体ヘリウムを注入する。内側の“底穴あきデュワーびん”には底穴より液体ヘリウムが徐々に入る。液体ヘリウムを注入し終わった時点では、外側と内側の液体ヘリウム液面が同じ高さとなった。

等時焼鈍の操作手順は、最初に“底穴あきデュワーびん”のガス逃し口を閉じて内圧をあげ、液体ヘリウムを底の穴より外側デュワーびんに押し出す。液体ヘリウム液面が試料部より下がってからヒーターを加熱して所定の温度に昇温する。所定の温度での等時焼鈍時には内側の“底穴あきデュワーびん”には液体ヘリウムがまったくない状態である。等時焼鈍を行なった後の降温は、ヒーターの電流を止め、内側デュワーびんの“ガス逃しニードル弁”を徐々に開けて液体ヘリウムを底穴より“底穴あきデュワーびん”の中に入れる。等時焼鈍後の測定は、試料部を液体ヘリウムに浸して4.2Kになった後に測定を行なった。

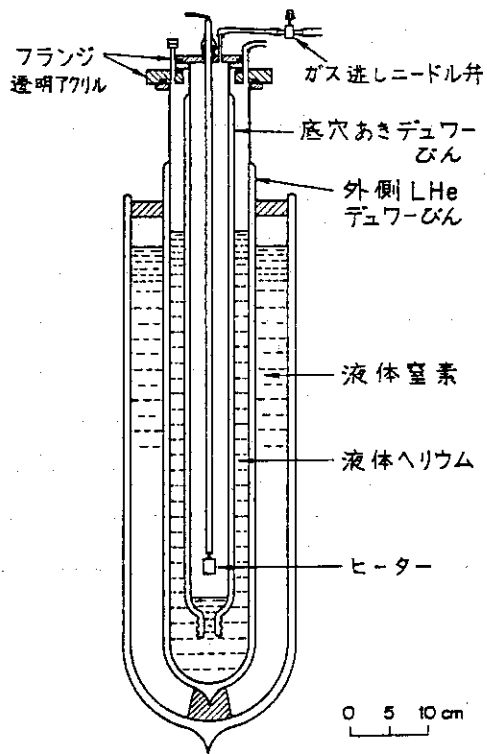
性能テスト

このクライオスタットに5gの銅パイプに40Ωのコンスタンタン線をヒーターとして巻きつけたものを使用し、第8図に示すように“底穴あきデュワーびん”にセットして性能テストを行なった。昇温は273Kまで8点の温度で行ない、等温時間は2分30秒から7分間行なった。各温度の昇温、降温時間を第2表に示す。液体ヘリウムの消費量は各温度の等時焼鈍を行ない、約2時間の実験で0.9ℓであった(デュワーびんに液体ヘリウムを溜めるまでのロス含まない)。

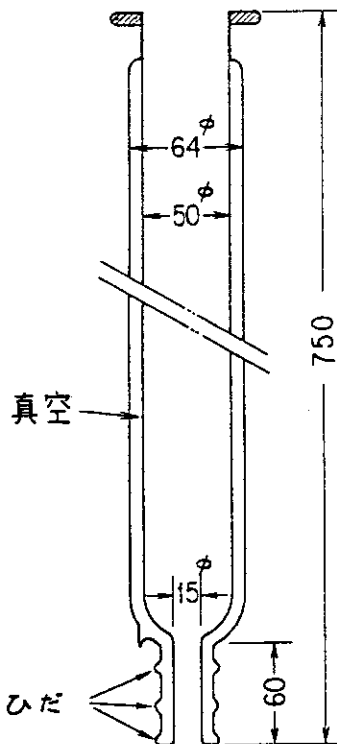
40K以下の温度制御の場合、温度が上がる一方で温度制御ができなかった。そのため、ガス逃しニードル弁を少しあけて、試料部を冷やしながらか温度制御を行なった。

試料部を100K以上に昇温した後の降温のときは、内側のガス逃し口にニードル弁を使用し、ガス逃し口を徐々に開放して行なう。それは内側に急に液体ヘリウムを入れると、内側に入った液体ヘリウムが急に気化して内圧があがり、また暖まったガスが逆流して外側の液体ヘリウムも気化させて危険になるのを防ぐためである。

全体図



第9図 長さ測定用ガラス製クライオスタット
 ガス逃しニードル弁を閉じ、液体ヘリウムを外側デュワー
 びんに押し出している状態を示す。



第10図 “底穴あきデュワーびん”

第2表 昇温，降温に要する時間
降温時間は“ガス逃しニードル弁”の開け
具合で多少変化する。

	昇 温 時 間	降 温 時 間
20 K	～3 秒	～3 秒
40 K	10 秒	30 秒
60 K	35 秒	30 秒
80 K	45 秒	40 秒
100 K	50 秒	1分40 秒
160 K	1分00 秒	3分30 秒
200 K	1分30 秒	3分30 秒
273 K	4分30 秒	6分30 秒

4. 測定結果

4.1 液体ヘリウム中での電気容量の測定

前述のクライオスタットに平行板バネ型検出器およびカプセル型検出器を設置し、液体ヘリウム中で電気容量を測定した。その時の検出器および試料のデメンジョンを第3表に示す。また表には測定した電気容量を示した。通常の一重液体ヘリウムデュワーびん（“底穴あきデュワーびん”を使用しない場合）では、液体ヘリウム中での電気容量の値がドリフトして測定が不可能であった。このクライオスタットでは液体ヘリウム中でも電気容量の測定が安定して測定できた。

第3表 液体ヘリウム中での検出器の比較表

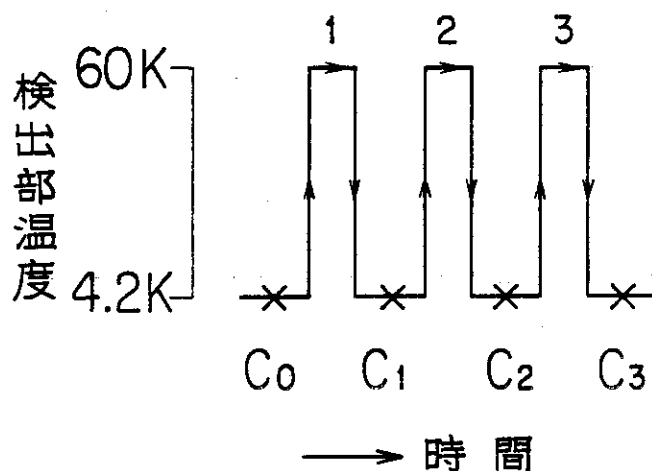
	平行板バネ型検出器	カプセル型検出器
試料の長さ	1.955 cm	1.493 cm
実測値	7.63073 pF	1.36240 pF
コンデンサ電極の面積	2.009 cm ² (1.6 ϕ cm)	0.071 cm ² (0.3 ϕ cm)
液体ヘリウムの比誘電率 [*]	1.047	1.047
実測した電気容量の検出感度	1×10^{-5} pF	5×10^{-5} pF
検出感度あたりの長さ量	3.2×10^{-8} cm	1.76×10^{-8} cm

*) M. Wofke and W.H. Keesom; Leiden Comm 190a (1927),
192a (1928)

平行板バネ型検出器では長さ変化の検出感度は数オングストロングのオーダーであった。カプセル型検出器ではその十分の一（ $\sim 20 \text{ \AA}$ ）であった。

4.2 昇温後の検出器の再現性

照射後、試料を等時焼鈍して照射欠陥の回復を調べたい。したがって等時焼鈍における昇温後の検出器の再現性を未照射試料Nb を使用して行なった。この場合、検出器は平行板バネ型検出器を使用し、60Kに6分間保持した後、液体ヘリウム中で電気容量を測定した。この昇温、降温の操作を3回繰り返した。その操作の模式図を第11図に示す。昇温後の平行板バネ型検出器の再現性テスト結果を第4表に示す。



第11図 検出器の昇温後の再現性テスト模式図

×印は4.2Kでの測定を示す。

C_0, C_1, C_2, C_3 はその時の電気容量である。

第4表 60K昇温後の平行板バネ型検出器の再現性テスト結果

	電気容量測定値	昇温による電気容量の変化		昇温による長さの変化
	P F	P F		cm
C_0	6.84573			
C_1	6.84592	ΔC_1 $= C_1 - C_0$	0.00019	0.75×10^{-6}
C_2	6.84607	ΔC_2 $= C_2 - C_0$	0.00034	1.35×10^{-6}
C_3	6.84606	ΔC_3 $= C_3 - C_0$	0.00033	1.31×10^{-6}

この結果より平行板バネ型検出器を使用したときの長さ変化の測定誤差は 2×10^{-6} cm 以下である。したがって相対測定精度は (試料の長さが 2 cm であるので 2×10^{-6} cm / 2 cm) ~ 1

$\times 10^{-6}$ である。

4.3 LHTLで中性子照射したAlの長さ変化の測定

平行板バネ型検出器のAl試料をLHTL(極低温照射装置)で照射し、長さ変化測定を行った。その手順と測定結果は以下の通りである。

Al試料を照射する前に液体ヘリウム中で測定した後、試料を保護管(照射後に試料をトン
グでつまんだとき試料部を保護するため)に入れLHTLで照射した。照射後、温度を上げる
ことなく移し変えバケツ¹⁵⁾により測定用クライオスタット²³⁾に移した。次に液体ヘリウム中でトン
グを使って保護管より試料を引きぬいて、平行板バネ型検出器に試料を差し込み固定用ネジで
押えた。その状態で照射後の長さ変化を測定し、“底穴あきデュワーびん”と検出部ヒーター
で等時焼鈍を行ないAl試料の長さ変化の回復を測定した。

第12図にLHTLで30時間($1.24 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$)照射したAl(5 nine)試料を、
平行板バネ型検出器で測定した結果をグラフに示す。また、比較のためにLHTLで29時間
($1.20 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$)照射したAl(6 nine)の格子定数を測定した結果も記載してあ
る。横軸は等時焼鈍の温度を示す。縦軸は未照射試料の4.2 Kの長さ(l_0)に対する回復率
 $\Delta l/l_0$ 。

すなわち、

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \frac{l(T) - l(4.2 \text{ K})}{l_0} \dots\dots\dots(4)$$

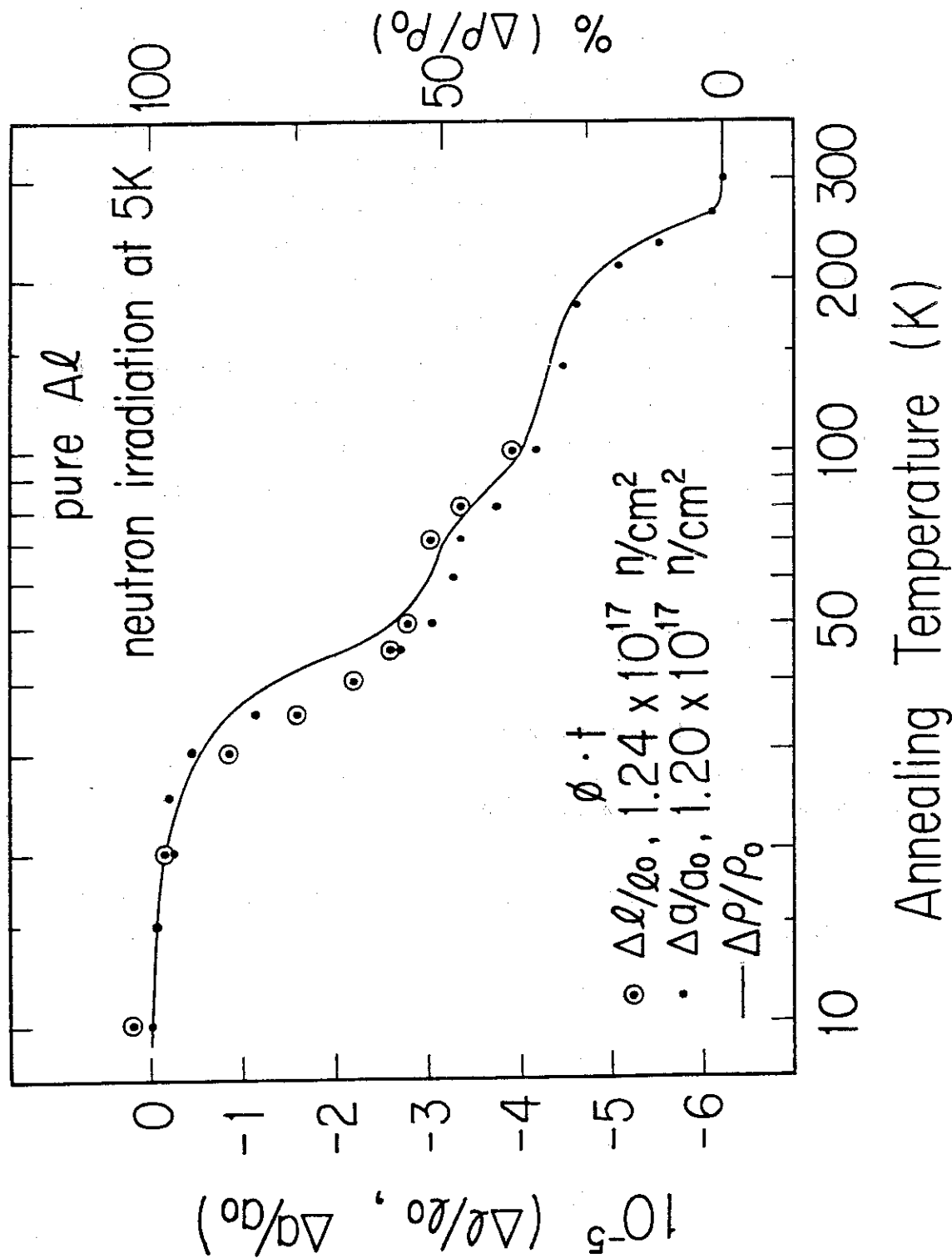
$l(T)$; 照射した試料の等時焼鈍温度(TK)後の長さ

$l(4.2 \text{ K})$; 照射した試料の等時焼鈍前の長さ

l_0 ; 照射前の試料の長さを4.2 Kに外挿した値

である。

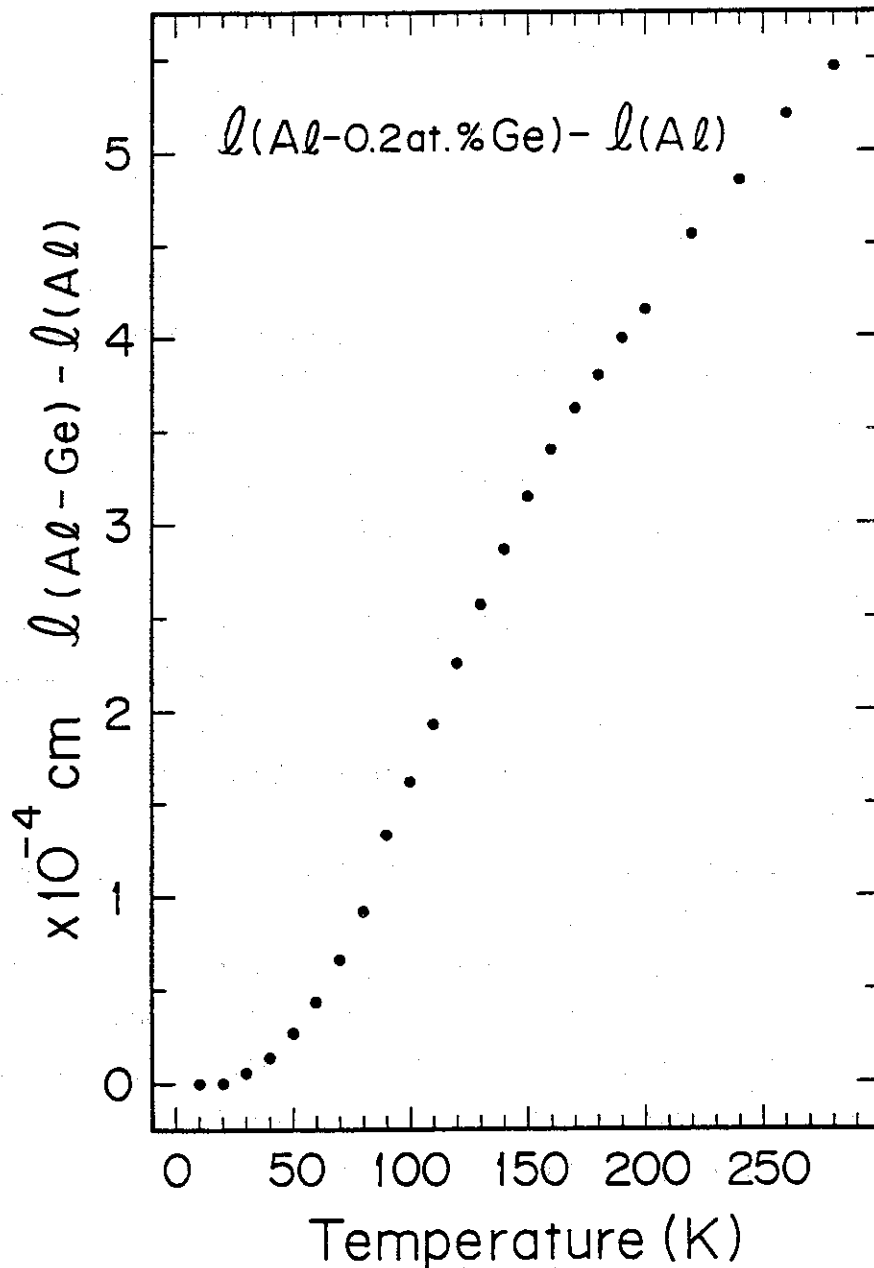
また格子定数の回復率を示す。長さ変化の測定は100 Kまでであるが、グラフで格子定数の
回復と非常に良く対応している。



第12図 LHTLで照射したAlの長さ変化の測定と格子定数の測定
 LHTLで照射したAlの電気抵抗の測定を比較のため実線(—)で図示した。

4.4 Al-Ge合金の熱膨張の測定

カプセル型検出器を使って、Al-0.2 at.% Ge合金の熱膨張測定を行なった。円筒ホルダー（第6図参照）を純Al(5nine)で製作し、試料をAl-0.2 at.% Ge合金として長さ測定用カプセルに組立てた。その試料を10~280 Kまで10 Kおきに測定した結果を第13図に示す。



第13図 カプセル型検出器によるAl-0.2 at.% Ge合金の熱膨張測定，試料の長さ1.498 cm (R.T)

5. 考 察

5.1 液体ヘリウム温度での電気容量の測定

低温で加速器による照射実験で、電気容量を利用した長さ変化の測定では試料および電気容量検出部は高真空中にある。液体ヘリウム温度で中性子照射した試料は途中温度を上げないために、液体ヘリウム中に浸して測定装置に移しかえを行なう¹⁶⁾。したがって容量測定検出部も液体ヘリウムに浸されているので、試料をセットした後、液体ヘリウム温度で、容量検出部および試料の雰囲気を高真空にするには、O-リング、あるいは金属パッキングの使用やネジの締付け等を、低温の環境下で作業しなければならない、技術的に容易ではない。我々は電気容量検出部および試料を液体ヘリウム中に浸して測定を行なうことを考えた。最初は液体ヘリウム用ガラスデュワーを使用し、液体ヘリウム中に検出部を浸して測定を行なった。これは通常液体ヘリウム実験で行なう方法である。しかし容量の値は時間の経過とともにドリフトを生じ、数10分の周期で鋸刃状の変動が現われて測定が不可能であった。これはコンデンサー電極の間隙に入っている液体ヘリウムが、周囲からの熱の輻射や電極よりの流入で気化し、その気泡が生長し、大きくなって、ガスは間隙よりぬけ出て、そこへ液体が入り、またガスを生じる。この現象の繰り返しで、誘電率が変化し、電気容量値は時間に対する鋸刃状の変動を生じたものと考えられる。

次に我々は液体ヘリウムデュワーびんの内側に、“底穴あきデュワー”をセットし、その中に検出器を入れ液体ヘリウム中で電気容量の測定を行なった。その結果、電気容量値は非常に安定した状態で測定できた。その理由は“底穴あきデュワーびん”の液体ヘリウムは外側にも液体ヘリウムでおおわれているため、外部からの熱の輻射や流入が少なく、電極間隙に気泡が生じないと考えられる。

液体ヘリウム中での電気容量の測定は、液体ヘリウムデュワーびんの内側に“底穴あきデュワーびん”を組み込むことによって可能となった。

液体ヘリウム中で電気容量を測定しているため、測定値には液体ヘリウムの誘電率 ($\epsilon = 1.047$) が関係してくる。しかし、ここで述べている照射実験では、照射によって変化した量、照射後、焼鈍によって変化した量等の相対変化を測定すること目的としている。したがって、液体ヘリウム中での測定が安定であること、すなわち電気容量の誘電率が一定である状態で測定することが必要である。本実験ではこれが可能となった。

5.2 5 Kで中性子照射したAlの長さ変化の回復

Alの長さ変化の10-100 Kの温度領域での回復の様子は、格子定数の回復とよく一致した。この現象を考察する。

今、有限な結晶中に点欠陥を導入し、その欠陥による体積変化はEshelby²⁵⁾によって、

$$\left(\frac{\Delta V}{V}\right)_{\text{dist}} = \frac{4\pi\gamma S}{\Omega} C = \nu C \quad (4)$$

で示される。

ここで C は欠陥の濃度, $\gamma = 3(1-\sigma)/(1+\sigma)$, σ はポアソン比, Ω は atomic volume, S は distortion strength と呼ばれているものである。この体積変化は濃度 C の欠陥によって結晶が歪んで生ずるもので, 格子定数の測定によって求められる。一方マクロスコピックな体積変化 ($\Delta V/V$) は(4)式で与えられる体積変化 ($\Delta V/V$)_{dist} と格子点の数の変化の和で与えられる。照射された試料の如く, 格子間原子と空孔を含む結晶の全体積変化 ($\Delta V/V$) は

$$(\Delta V/V) = C_v - C_i + \nu_i \cdot C_i + \nu_v \cdot C_v \quad (5)$$

で表わされる。ここで C は濃度で添字 i, v は格子間原子および空孔を表わす。(5)式の第3項と第4項が格子定数の変化を与えるので, 立方結晶において, また欠陥の濃度が少ない場合, $(\Delta V/V)_{\text{dist}} \doteq 3 \Delta a/a$, $\Delta V/V \doteq 3 \Delta \ell/\ell$ で近似して,

$$3(\Delta \ell/\ell - \Delta a/a) = C_v - C_i \quad (6)$$

となる。

この式は格子点が新しく生成されたり, 消滅したりするときは, (6)式における差 $3(\Delta \ell/\ell - \Delta a/a)$ はそのような格子欠陥の濃度差を与えることを示す。フレンケル欠陥が生成あるいは消滅する過程では, $C_v = C_i$ であるので, $\Delta a/a = \Delta \ell/\ell$ となる。²⁶⁾ したがって長さ変化の回復が, 格子定数のそれと一致するのは, フレンケル欠陥が消滅していることを示す。尚, LHTL で中性子照射した Al の電気抵抗の測定結果を比較のため図示する。²⁷⁾ これらの結果, 50 K 以下 (回復ステージ I といわれている温度領域, 文献 25 を参照) の温度では $\Delta \ell/\ell$ と $\Delta a/a$ が良く一致している。この stage ではフレンケル欠陥が消滅したことを示す。この種の測定は重陽子照射した銅⁹⁾ および中性子照射した Al ¹²⁾ で行なわれ, 長さ変化と格子定数の回復がこの stage I で一致することが確かめられている。

5.3 Al-Ge 合金の熱膨張の測定

カプセル型検出器 (第 6 図) を使用して, $Al-0.2 \text{ at. } \% \text{ Ge}$ 合金の 10-280 K の温度領域で熱膨張を測定した結果を第 13 図に示す。これはカプセル型検出器の構造を第 6 図に示す如く, 固定用ホルダー②は純 Al を使用した。したがって第 13 図に示す測定値は, 純 Al と合金との膨張の差異である。それ故この値に, 純 Al の熱膨張を加算すれば, 合金の熱膨張が求まる。結果は 150 K 以上で直線からのずれが生じた。この原因は不明であるが, 更に実験を重ねて検討する必要がある。

尚, この検出器で, 円筒ホルダー②の材質を純金属とし, 試料①を合金で製作を行えば, 合金の照射効果の実験が可能である。

6. 結 論

1. 低温で中性子照射した試料の照射欠陥を調べるため、電気容量を利用した長さ変化を測定する装置を開発した。
2. 新しく開発した検出器およびクライオスタットにより、電気容量は液体ヘリウム中で安定に測定でき、その結果、長さ変化は $\sim 1 \times 10^{-6}$ の精度で測定できた。
3. 開発したクライオスタットは試料に機械的振動を与えることなく、容易にパルスアニーリングができた。
4. 5 Kで中性子照射した純Alの長さ変化の回復を10-100 Kの温度領域で測定した。結果は格子定数のそれと良く対応した。
5. カプセル型検出器を使用して、Al-Ge合金の熱膨張の測定を10~280 Kの温度領域で試みた。

謝 辞

この実験を行うにあたり、御支援や助言およびLHTLの照射実験で協力していただいた、岩田忠夫室長、高村三郎主任研究員、加藤輝雄氏、岩瀬彰宏氏、数又幸生主任研究員の諸氏、およびJRR-3の方々に心から感謝いたします。

6. 結 論

1. 低温で中性子照射した試料の照射欠陥を調べるため、電気容量を利用した長さ変化を測定する装置を開発した。
2. 新しく開発した検出器およびクライオスタットにより、電気容量は液体ヘリウム中で安定に測定でき、その結果、長さ変化は $\sim 1 \times 10^{-6}$ の精度で測定できた。
3. 開発したクライオスタットは試料に機械的振動を与えることなく、容易にパルスアニーリングができた。
4. 5 Kで中性子照射した純Alの長さ変化の回復を10-100 Kの温度領域で測定した。結果は格子定数のそれと良く対応した。
5. カプセル型検出器を使用して、Al-Ge合金の熱膨張の測定を10-280 Kの温度領域で試みた。

謝 辞

この実験を行うにあたり、御支援や助言およびLHTLの照射実験で協力していただいた、岩田忠夫室長、高村三郎主任研究員、加藤輝雄氏、岩瀬彰宏氏、数又幸生主任研究員の諸氏、およびJRR-3の方々に心から感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) たとえば, W. Schilling, G. Burger, K. Isebeck and H. Wenzel:
" Vacancies and Interstitials in Metals ", ed. A. Seeger et al.
p. 215, North Holland, Amsterdam (1970).
- 2) R.O. Simmons and R.W. Balluffi : Phys. Rev., 109, 1142 (1958).
- 3) U. Himmer, H. Peisl, A. Sepp, W. Waidelich and H. Wenzel : Z.
angew. Phys., 23, 8 (1967).
- 4) E.E. Gruber, J.A. Tesk, T.H. Blewitt and R.E. Black : Phys. Rev.,
B2, 2849 (1970).
- 5) H. Wagner, F. Dworschak and W. Schilling : Phys. Rev., B2, 3856
(1970).
- 6) F. Dworschak, H. Wagner and P. Wombacher : phys. stat. sol.,(b)
52, 103 (1972).
- 7) W. Hertz and H. Peisl : J. Phys. F ; Metal Phys., 5, 2241 (1975).
- 8) H. Maeta, T. Iwata and S. Okuda : J. Phys. Soc. Japan, 48, 447
(1975). .前田裕司 : 応用物理 . 48, 447 (1979).
- 9) R. Vook and C. Wert : Phys. Rev., 109, 1529 (1959).
- 10) T.H. Blewitt: Radiation Damage in Solids, D.S. Billington, ed.
(Italian Physical Society, Academic Press Inc., New York, 1962).
- 11) J.C. North and R.C. Bushert : Phys. Rev., 143, 609 (1966).
- 12) R. Hanada, C.L. Snead, Jr. and J.W. Kauffman : J. appl. Phys., 40
3694 (1969).
- 13) K. Isebeck, F. Rau, W. Schilling, K. Sonnenberg, P. Tischer and
H. Wenzel : phys. stat. sol., 17, 259 (1966).
- 14) G.K. White : Cryogenics, 1, 151 (1961).
- 15) J.C. North and R.C. Buschert : Rev. Sci. Inst., 37, 325 (1966).

- 16) H. Maeta, T. Katoh and S. Okuda : J. Phys. E, 8, 577 (1975).
- 17) 菅野允 : 「電気計測」, 西野治編, p. 215 (共立出版)
- 18) 菅野允 : 応用物理, 49, 905 (1980).
- 19) R.V. Jones : J. Sci. Instrum., 39, 193 (1962).
- 20) G. Brandli : Phys, Kondens. Materie, 11, 111 (1970).
- 21) 渡辺光男, 前田裕司 : 実用新案出願中
- 22) 渡辺光男, 前田裕司 : 実用新案出願中
- 23) 渡辺光男, 前田裕司 : 実用新案出願中
- 24) 渡辺光男, 前田裕司 : 固体物理, 15, 681 (1980).
- 25) J.D. Fshelby : J. appl. Phys., 24, 1249 (1953).
- 26) たとえば, 奥田重雄 : 転位論 — その金属への応用 —, p. 459, (丸善 : 1971)
- 27) S. Takamura, R. Hanada and S. Okuda : J. Phys. Soc. Japan, 30, 1360 (1971).