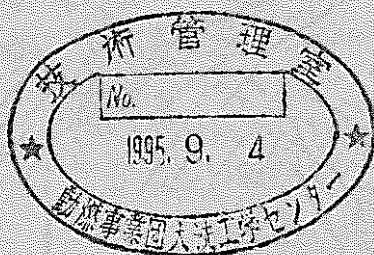


ヘリウム蓄積法による中性子照射量の 測定精度に関する研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1995年3月



九州大学大学院総合理工学研究科

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

ヘリウム蓄積法による中性子照射量の 測定精度に関する研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1995年3月

九州大学大学院総合理工学研究科

ヘリウム蓄積法による中性子照射試料の測定精度に関する研究

神田 幸則、鷹尾 良行

要旨

中性子照射量評価の高精度化のために、動力炉・核燃料開発事業団において開発中の中性子フルエンスモニタ（HAFM）測定装置を、九州大学の微量He原子測定装置（HAMS）と相互比較することにより測定精度の評価を行った。また同時に、将来の中性子モニタ物質としてのステンレス鋼（SUS316）の適用性の評価を行った。

装置の相互比較は、He含有標準試料を両装置で測定し、測定結果を比較することにより行った。He含有標準試料は、イオン注入装置を用いて、同一条件（イオン電流、照射量、照射体系）で一对の試料にHeイオンを注入することにより作製した。試料には、Al, Cu, V, SUS316を用い、注入量は、 $1 \times 10^{13} \sim 3 \times 10^{15}$ atoms/sampleであり、異なる条件下におけるHe含有量の測定及び比較を行うことが出来た。また、本測定に関連して、平成2年度に作製したHe含有標準試料（Cu, V）の測定を実施し、He注入試料のHe保持能力の検証を行った。

ステンレス鋼の中性子モニタ物質への適用性の評価は、ステンレス鋼のHeガスの放出条件の確認を重点研究課題とした。既知量のHe（ 1×10^{14} atoms）を注入したステンレス試料を複数個作製し、ステンレス鋼の融点近傍で加熱し、加熱温度に対するHe放出量を測定した。本測定結果より、ステンレス試料から含有Heを放出させるために必要な加熱条件を決定することが出来た。

本報告書は、九州大学大学院総合理工学研究科が動力炉・核燃料開発事業団との契約により実施した研究の成果である。

契約番号：060D0263

事業団担当部課室及び担当者：大洗工学センター 実験炉部 技術課
青山 卓史

ヘリウム蓄積法による中性子照射量の測定精度に関する研究

目次

第1章 序論	1
第2章 微量 He 原子測定装置 (HAMS)	3
2-1 微量 He 原子測定装置	3
2-1-1 標準ガス作製装置	3
2-1-2 電気炉	5
2-1-3 試料導入装置	6
2-1-4 トラップ	7
2-1-5 四重極質量分析計部	8
2-2 微量 He 原子測定装置による試料の測定手順	10
第3章 He 含有標準試料	11
3-1 イオン注入装置	11
3-2 He 含有標準試料の作製	13
第4章 He 含有標準試料の測定	15
4-1 HAMS による He 含有標準試料の測定結果	15
4-2 HAFM測定装置による He 含有標準試料の測定結果	16
4-3 相互比較	16
第5章 He 含有標準試料のヘリウム保持特性	18
第6章 ステンレス鋼のモニター物質としての評価	19
第7章 まとめ	21
表	22
図	27

第1章 序論

本研究は、「常陽」での中性子照射実験において被照射試料への中性子照射量を高精度に評価するために、動力炉・核燃料開発事業団において開発された中性子フルエンスモニタ（HAFM）測定装置を九州大学の微量He原子測定装置（HAMS）と相互比較し、測定された絶対値の評価を行うことを目的とした。

HAFM測定装置及びHAMSは、原理としてHe集積法を用いる装置で、前者は、He生成断面積既知の試料内に生成蓄積されたHe量を測定することにより、試料への中性子照射量を決定する装置で、後者は、同様な目的の研究を実施しているが、これまで主に各種元素のHe生成断面積の測定に使用してきた。両装置の使用目的は異なっているが、各々の測定精度を決定するのは測定He量の絶対値である。そこで、装置の較正を厳密に行う必要があるが現在、両装置共に各々の装置の標準ガス作製装置で生成した標準ガスをその目的に使用している。しかしながら、このような方法だけでは、He測定値には、検出不可能な標準ガスに起因する系統誤差が含まれる可能性がある。そこで、両装置を比較し、相互両立性が検証できれば、He量の絶対値の確認を行うことが可能である。

具体的には、九州大学でイオン注入を行った試料(He含有標準試料)を作製し、その試料を両装置で測定し、測定結果を比較することにより両装置の測定における差を明確にすることが本研究の内容である。He含有標準試料は、イオン注入装置を用いて、同一条件（イオン電流，照射量，照射体系）で一對の試料にHeイオンを注入することにより作製した。試料には、Al, Cu, V, SUS316を用い、注入量は、 $1 \times 10^{13} \sim 3 \times 10^{15}$ atoms/sample を目標とした。また、本測定に関連して、平成2年度に作製したHe含有標準試料（Cu, V）の測定を実施し、He含有標準試料のHe保持能力の検証を行った。

さらに、本研究では、高速炉用構造材の He 脆化評価用として使用するステンレス鋼の He 集積法への適用性を評価した。具体的には、ステンレス鋼の He ガスの放出条件の確認を目的とし、既知量の He (1×10^{14} atoms) を注入したステンレス試料を 6 個作製し、ステンレス鋼の融点近傍で加熱し、加熱温度に対する He 放出量を測定した。

本報告書では、第 2 章において、九州大学の微量 He 原子測定装置の説明を行い、第 3 章において、用いた He 含有標準試料の作製方法を記載する。第 4 章では、He 含有標準試料の九大、動燃での測定結果を記し、両者の測定結果を評価する。第 5 章では、平成 2 年度に作製された He 含有標準試料の He 保持力について述べる。第 6 章には、SUS316 より全 He 量を放出させるための加熱条件について記す。第 7 章は、本報告書のまとめである。

第2章 微量ヘリウム原子測定装置 (HAMS)

He 集積法では、試料内に生成集積した He 原子の絶対量を高感度及び高精度に測定することが必要不可欠である。本章では、HAMS の概要、装置各部の詳細及び測定方法について述べる。

2-1 微量 He 原子測定装置

微量 He 原子測定装置のブロック図を図 2-1 に示す。本装置は、標準 He ガス作製装置、電気炉、四重極質量分析計(Quadrupole Mass Spectrometer 以下 QMS)、及び電気炉部に付随した試料導入装置により構成されており、それぞれ独立したターボ分子ポンプにより超高真空(10^{-6} ~ 10^{-7} Pa)に保持されている。また電気炉及び QMS には、測定時のバックグラウンドとなる水素系ガス除去を目的とし、トラップ(チタンゲッタポンプ)を設置している。

試料に含有された He ガスの測定は、電気炉内での試料の熔融蒸発、放出ガスの純化、QMS での He 分圧の測定を通して行われる。以下に装置各部の詳細な説明及び測定手順の概要を記す。

2-1-1 標準ガス作製装置

試料の通電加熱により試料内から放出された He 原子の数は、QMS の出力として微少電流値で得られ、この値は相対的な意味を持つのみである。そこで、当研究室ではこの微量 He 原子測定装置の感度の較正のために、標準ガス法を用いている。標準ガス法は、既知量の He ガス(標準ガス)を装置に導入、測定することにより較正を行う方法で、その標準ガスを作製する装置が標準ガス作製装置である。標準ガス作製装置のブロック図を図 2-2 に示し、その原理を以下に述べる。

標準ガス作製装置は図 2-2 に示すように、標準体積容器(V1)、補助標準容器(V2)、電気炉導入用容器(V3)、希釈用容器(V4)、絶対圧力計および He ボンベから構成される。また、最終的に標準ガスが作製される電気炉を容器 V5 としている。標準体積容器は、各容器の体積決定の基準として使用するもので、パイレックスガラス製の標準体積を使用しており、体積誤差は±0.003%以下である。各容器の体積は、一定ガスを被測定体積に導入し、さらに標準体積内へそのガスを拡散させ、圧力変化を絶対圧力計で測定することによって、ボイルの法則より標準体積を基準として決定される。

標準ガスの作製の手順を以下に述べる。まず補助標準容器に He ボンベから高純度(99.999%)の He ガスを導入し、温度および導入圧力を測定する。状態方程式によりその個数を求めた後、電気炉導入用容器と希釈用容器の体積比により希釈を繰り返し、目的とする個数の He ガスを作製する。この装置における作製 He 数とは、電気炉に導入された He 数であり、最終的な電気炉内における個数は、式(2-1)で与えられる。目的の He 数作製に必要な導入圧力、希釈回数及び作製手順は、パーソナルコンピュータにより計算され表示される。また、希釈に要する時間は拡散時間 1 分、排気時間 3 分である。

$$N_{\text{He0}} = \frac{P_0 V_2}{kT},$$

$$N_{\text{He}} = \frac{V_3^{n+1} V_4^n V_5 N_{\text{He0}}}{(V_2 + V_3)(V_3 + V_4)^{2n} (V_3 + V_5)}, \quad (2-1)$$

- N_{He0} : V2 への導入 He 数
- N_{He} : 電気炉内に生成される目的の He 数
- k : ボルツマン定数
- T : V2 の容器温度
- P_0 : V2 への He 導入圧力
- n : 希釈回数
- V_2 : 補助標準容器体積
- V_3 : 電気炉導入用容器体積
- V_4 : 希釈用容器体積
- V_5 : 電気炉体積

標準ガスの誤差は、それぞれ絶対圧力計の精度（読み値の $\pm 0.1\%$ ）および各容器の体積による誤差の伝播を考慮にいて評価され、希釈回数が増加するほど誤差が大きくなるが、 $1 \times 10^{13} \sim 10^{15}$ (He atoms) オーダーの標準ガス作製に要する希釈回数は1～3回で、誤差は $\pm 2\%$ 以下である。

本標準ガス作製装置では $10^9 \sim 10^{15}$ (atoms) の He ガスの作製が可能であり、測定電流値から He 数に換算する際に使用する校正曲線は、標準ガスを各オーダーごとに数点作製し、測定値を最小二乗法で直線近似することにより決定する。また、QMS 分析管内の二次電子増倍管の増倍率は使用履歴（使用時間、使用真空度、ベーク回数等）により減衰するため、標準ガス法による装置の校正は目的とする試料測定と同時期（例えば、一連の試料測定の前後）に行なう必要がある。

2-1-2 電気炉

電気炉の断面図を図 2-3 に示す。加熱用ボートにタantal（融点 2996°C ）、タングステン（融点 3410°C ）、カーボン（融点 3700°C ）、及びモリブデン（融点 2610°C ）を使用することにより、高融点材料の溶融が可能である。また、材料を効率良く溶融するために、図 2-4 の様な標準型と V 字型の加熱用ボートを使用する。標準型は、比較的融点の低い試料を連続して測定する場合に使用し、V 字型は、高融点の試料を溶融するために利用する。

更に、高融点材料の溶融を可能とするため、電気炉には次のような熱対策を施している。

- (1) 電気炉外壁、電流導入端子の昇温防止のため電気炉周囲に冷却用水パイプを設置
- (2) 試料蒸発時の輻射熱及び溶融試料の蒸着による電気炉内壁の汚染を防ぐためステンレス製の保護用シールドの設置

また、電気炉部上蓋をビューイングポートに交換することにより、試料装着

の状態および試料溶融の確認が可能である。

一連の実験において電気炉内は、加熱用ボートの寿命による交換作業のため内部を大気にさらさなければならない。この作業により電気炉内部には、多量のガスが付着する。このガスは測定時のバックグラウンド上昇の主な原因となり、測定精度を悪化させる。従って、これらの付着ガスによる測定時の影響を最小限に抑えるため電気炉内壁、保護用シールド、加熱用ボート及び電極の各部に対してベーキングを行う。ベーキング時のシールドの温度は約 300℃である。特に測定においてもっとも高温になることから多量のアウトガスの放出が考えられる加熱用ボート及び電極に対しては、予備加熱として測定時の加熱条件より厳しい条件で加熱を行うことによって、十分にアウトガスを行う。試料測定の直前に加熱用ボートを昇温した場合のバックグラウンドを測定し、アウトガスが十分になされていることを確認する。

試料溶融用の供給電源には定電流源を使用し、最大 400A までの通電が可能である。加熱条件としては供給電流値及び通電時間を設定する。

2-1-3 試料導入装置

試料導入装置及び電気炉断面図を図 2-5 に示す。試料導入装置は、サンプルホルダー、ストレートバルブ、導入用ステンレス製ロッド、試料一時格納部、排気系(ロータリーポンプ)から構成される。本装置により真空下での試料装着が可能となり、試料装着時の付着ガスを最小限にし、試料測定時のバックグラウンドの変動を抑えることにより、He 生成断面積の測定誤差を低減している。この装置は以下の点を考慮に入れ設計されている。

(1) 試料導入時の真空対策

試料導入時、電気炉はターボ分子ポンプにより排気されている。試料導入において導入用ステンレスロッドの巻き込みによるガスリークは、ロッドのサポート部をロータリーポンプによって排気することにより抑える。試料導

入時の電気炉部真空度は、 1×10^{-3} (Pa)以上である。

(2)測定系との独立

測定時にサンプルホルダー等の試料導入装置構成部が、電気炉内に留まることはアウトガス放出の問題上好ましくない。本装置では超高真空用メタルシールバルブにより、試料一時格納部と超高真空部を分離することが可能で、測定時には試料導入装置のサンプルホルダーを試料一時格納部に置き、バルブで仕切ることにより測定系との完全な独立が得られる。測定時の電気炉部真空度は、 1×10^{-6} (Pa)以上である。

試料装着は以下の手順で行う。まず、試料をサンプルホルダー内に装着する。続いて、ロータリーポンプにより試料一時格納部およびサポート部を十分に排気し、ストレートバルブを開く。その後、サンプルホルダーを加熱用ボートの位置まで挿入し、試料を加熱用ボート上に装着する。

2-1-4 トラップ

測定は測定系と排気系(ターボ分子ポンプ)を切り離した状態(Static mode)で行う。しかし、測定中には常に容器内壁等からのアウトガスの放出によるバックグラウンドの上昇が生じる。特に試料溶融時には、試料に含有されるバックグラウンドガスが測定値に与える影響は無視できない。トラップは、これらのバックグラウンドガス(主に水素系ガス)の排気を行い、He ガスの純化を目的とする。トラップとして本装置には、液体窒素冷却型チタンゲッターポンプを用い、それぞれ QMS 部および電気炉部に設置している。電気炉部のチタンゲッターポンプは試料からの放出ガスの純化を目的とし、QMS 部のチタンゲッターポンプは測定時の QMS 内部の真空の保持を目的としている。チタンゲッターポンプ有効排気速度は、11.5(1/sec)である。チタンゲッターポンプは表面吸着を利用した化学ポンプの一種で、排気はチタンフィラメントによりポンプ内壁に形成したチタン蒸着膜と、活性ガスとの化学吸着によって行

うため、不活性である He ガスの排気は行わない。排気速度はチタン蒸着膜の表面積によって決まる固有排気速度とポンプまでのコンダクタンスによって決定される。

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_0} + \frac{1}{C} \quad (2-3)$$

S : 有効排気速度[1/sec]

S₀ : ポンプの固有排気速度[1/sec]

C : ポンプまでのコンダクタンス[1/sec]

従って、均一なチタン蒸着膜を形成することであれば、排気速度を一定に保つことが可能であり、バックグラウンドガスの低減とともに、バックグラウンドの変動を抑えるという面からも有効である。

本研究では、チタンゲッターポンプを Dynamic mode で使用した。すなわち、試料溶融時に試料内から放出される多量のガスの排気において、排気速度を一定に維持するためにチタンフィラメントに連続通電を行い、常に新鮮なチタン蒸着膜を形成させながら測定を行なうモードである。しかし、この動作モードは安定した排気速度が得られる反面、高温になったチタンフィラメントからの He ガス放出によりバックグラウンド上昇を引き起こす場合があるので注意が必要である。

2-1-5 四重極質量分析計部

QMS の概略図を図 2-6 に示す。QMS はマス・フィルター型の質量分析器であり大きく分けると、対象となる分子・原子のイオン化（イオン源）、生成イオンの質量分離（四重極電極）および分離されたイオンの検出（イオンコレクター・二次電子増倍管）の 3 つの機能を持つ。QMS に導入され、イオン源によってイオン化されたガス分子は、引き出し電圧によって加速およびフォーカス電極で収束され、細いイオンビームとなり四重極電極の中心軸に沿って

入射する。四重極電極は、精度良く平行・対称に配置された4本の円柱ロッド電極より構成され、相対向するロッド電極を一組としてそれぞれに直流電圧と重畳した交流電圧が印加されている。この印加電圧により電極内に四重極電場が形成される。イオン源において生成したイオンが四重極電極の中心軸(z軸方向とする)に沿って入射されると、四重極電場によってx軸方向及びy軸方向の力を受け進む。設定された印加電圧、四重極電極間距離、周波数の条件のもとで、特定の質量電荷比(m/e m :質量, e :電荷)を持つイオンのみが四重極電極部を通過し、検出部へ達することができる。その他の m/e を有するイオンは振幅が増大し、四重極電極に捕らえられるか、四重極電極間のすき間を通り抜けて、イオン検出部に到達できない。掃引電圧 $\pm(U+V\cos \omega t)$ は、RF/DC電源により四重極電極に供給され、通過するイオンの質量電荷比は、この掃引電圧の U/V 比を一定に保った場合の U または V の絶対値により決定される。これらの電圧をパーソナルコンピュータから制御し、目的のイオンの測定を実施する。四重極電極を通過したイオンの電流値は、二次電子増倍管(Secondary Electron Multiplier 以後 SEM と略す)によって $10^4 \sim 10^6$ 倍に増幅され出力される。最終的にこの電流はデジタルエレクトロメータで計測され、A/D変換された後、GP-IBインターフェースを通してパーソナルコンピュータに取り込まれ、測定時間等とともにバイナリーデータとして保存される。

SEMの利用に関しては、使用履歴および地磁気等の外部からの磁界の変動によって利得が変化し、出力電流値がある一定値以上になると飽和するので注意を要する。HAMSでは、 1×10^{16} (He atoms)の測定でSEMの飽和が顕著となる。本研究では、最大 3×10^{15} (He atoms)のHe測定を実施することからSEMを使用せずに測定を行うこととした。SEMを使用しない場合には、電流測定における暗電流によるバックグラウンドの問題を考慮する必要があり、その変動値は、 1×10^{13} (He atoms)の測定において、測定値の2%以下であった。

2-2 微量 He 原子測定装置による試料の測定手順

(1)脱ガス処理

試料測定時のバックグラウンドを最少に抑えるために、装置の中でも特に電気炉の脱ガスを十分に行う必要がある。各部に対して行う脱ガス処理は、以下の通り。従って、測定は、脱ガス開始から約 15 時間後に行うことになる(装置の冷却時間を含む)。

①加熱用ボート：加熱用ボートに対する予備加熱(2 分)

②電気炉内各部：電気炉内壁及び保護用シールドのベーキング(約 12 時間)

(2)トラップの活性化

(1)を行った後、トラップとして用いているチタンゲッターポンプのフラッシングを 20 分間行い、新鮮なチタン蒸着膜をポンプ内壁に形成させ、トラップの排気速度を安定させる。

(3)試料からの放出 He ガス測定

試料導入前に、試料測定時と同一の条件で加熱用ボートを昇温したときのバックグラウンド測定を行い装置の状態を確認する(ボートバックグラウンド)。バックグラウンドが十分に低ければ、試料導入装置を用いて加熱用ボート上に試料を装着し、加熱用ボートを通電加熱することによって試料内の He ガスを電気炉内に放出させる。トラップで放出ガスを 5 分間純化 (Dynamic Mode) した後、QMS へ導入し質量数 4 について測定を行う。測定値は、パーソナルコンピュータに取り込まれ保存される。

第3章 ヘリウム含有標準試料

He 含有標準試料とは、イオン注入装置を用いて既知量の He イオンを金属試料中に打ち込んだ試料である。本試料を用いて微量 He 原子測定装置の較正を行う方法を He 含有標準試料法と言う。標準ガス法と比較した場合、He 含有標準試料を被測定試料と同材料とすることにより、試料測定の際の加熱条件およびトラップ時間等のパラメータ決定が可能となる。試料は小型可搬であるから、同種の微量 He 原子測定装置の相互両立性の確認に利用できる等の利点を有する。また、原理の異なる較正法を用いることは較正方法の相互検証という点で重要である。

3-1 He イオン注入装置

本研究で使用したイオン注入装置の概念図を図 3-1 に示す。イオン注入装置は、イオンチャンバー、質量分析磁石、ターゲットチャンバーおよび真空排気系より構成される。イオンチャンバーは、イオン源、引き出し電極、静電集束レンズよりなり、イオン源には熱陰極ホローカソード型イオン源を使用している。He ガスは、イオン源でイオン化された後、イオン源と引き出し電極の電位差により 28.5keV に加速され、静電収束レンズで絞り込まれる。その後、質量分析磁石によって約 10° 偏向され、他のバックグラウンドイオンと分離後、ターゲットチャンバー内に設置されたイオン注入ユニット内の試料へ注入される。イオンチャンバーおよびターゲットチャンバーは、それぞれターボ分子ポンプにより排気されており、到達真空度は、イオンチャンバーで $6 \times 10^{-5}(\text{Pa})$ 、ターゲットチャンバーで $8 \times 10^{-5}(\text{Pa})$ であった。また、He イオン注入時は、He ガスの流入により、それぞれ $3 \times 10^{-3}(\text{Pa})$ 、 $4 \times 10^{-4}(\text{Pa})$ 程度であった。

イオン注入ユニットを側面から見た構成図を図 3-2 に示す。試料ホルダーは、X、Y、Z 移動および回転可能な高精度マニピュレーター（最小移動量 X、Y、Z:0.05mm、回転 0.5 度）上に設置されており、イオン注入装置のファラデーカップ内で照射試料の交換が可能で、He の連続注入が出来る。試料ホルダーの概略図を図 3-3 に示す。試料の取り付け面は、隣り合う 2 面で、各面に 4 個の試料を取り付けることが可能である。試料ホルダーの一番上には He イオンビームを正確に試料に当てるためにビームスポット確認用のダミー試料を設置した。ダミー試料には、ガラスセラミクスを接着しており、イオン照射によりガラスセラミクスは良く発光するのでビーム形状および位置を確認できる。ここで、隣り合う試料ホルダーの面をそれぞれ A、B 面とすると、イオン照射は、A、B 面交互に同様のイオン照射条件（ビームスポット形状、イオン電流等）で行うことが可能であり、同じ高さの A、B 試料に同量のイオン注入を行うことにより、よくそろった一对の He 含有標準試料を作製することが出来る。従って、1 照射実験で、3 対の試料を作製することが出来る。本試料をそれぞれ九大、動燃で測定した。

イオン注入ユニットは、シャッター、スリット 1、2、ファラデーカップを有しており、照射イオンビームの整形、注入量の制御およびイオン照射によって試料及びスリット等の周辺部から放出される 2 次電子の補正を目的としている。シャッターは、通電されたコイルが磁性体を引き込むことを利用したもので、間隔を置いて設置した 2 個のコイルに磁性体の棒を渡し、交互に励磁することにより棒に付加したステンレス製のシャッター板を平行移動させイオンビームの試料への照射を制御する。スリット 1、2 は、それぞれ 3mm ϕ 、1mm ϕ で、入射イオンの試料上でのビームスポットは、ほぼ 1mm ϕ であった。ファラデーカップは、試料ホルダーを取り囲むように配置されており、試料へのビーム注入時には、-300V を印加し、試料からの二次電子放出による測定電流の見かけ上の増加を除去する。第 2 スリット後方に設置した磁石

は、スリットから試料へ入射する 2 次電子の除去のために設置した。

試料ホルダーは、電氣的にカレントインテグレータに接続されており、シャッター、スリット 1、2 は GND に接続されている。試料に注入された He イオン数は、カレントインテグレータにより He イオン電流を積分して電荷量として測定される。

3-2 He 含有標準試料の作製

イオン注入に使用した試料の詳細を表 3-1 に示す。

各試料には、He 注入面に対してエメリー紙 (#600, #1000, #1200, #1500) による湿式研磨とバフ研磨 (アルミナ粉 $0.3\ \mu\text{m}$, $0.05\ \mu\text{m}$) を行い、その後 $20\text{mm} \times 2\text{mm}$ に切り出し、アセトン浴にて 20 分間超音波洗浄し、真空中 (約 $5 \times 10^{-4}\text{Pa}$) で 1 時間の加熱による脱ガス処理 (各試料の加熱条件は、表 3-1 参照) を行った (照射前準備)。He イオン打ち込みは、試料ホルダーにビーム照射位置確認用のダミー試料 2 個、照射前準備を行った He 打ち込み用試料 6 個を装着し、3-1 で述べた当研究室のイオン照射装置を用いて 28.5keV に加速した He イオンを $1 \times 10^{13} \sim 3 \times 10^{15}$ (He atoms) 打ち込んだ。また、He イオンビーム電流値は約 $0.1 \sim 0.2\ \mu\text{A}$ であった。He イオンの加速電圧は、He イオン注入時の試料表面での He イオンの反射率が、十分に小さくなるように選択した。他の研究において、入射イオンの反射係数が、ターゲットを構成する原子の原子番号の減少と入射イオンの加速電圧の増加とともに減少することが報告されている。従って、He 打ち込み電圧は高い方が良いが、利用したイオン注入装置の安定動作電圧を考慮し、同時に前述のイオン反射量がイオン注入量に対して影響を与えないという観点より上記加速電圧を使用した。

本研究室は過去の研究において、Al 試料への He 打ち込み実験を実施しており、その打ち込み He 量により Al 試料表面にブリストリングやフレーキング

が発生することが分かっている。それらの発生の上きい値は 4×10^{21} (He atoms/m²) であった。これを 1mm ϕ のビームスポットに換算すると 3×10^{15} (He atoms) に相当する。これらの現象には、試料表面からの He ガス放出が伴い、試料内部に蓄積された He 数は減少する。そこで、 3×10^{15} (He atoms) の He イオン注入は、 1×10^{15} (He atoms) をビームスポットが重ならないように試料上に 3 点打ち込みを行った。また、照射後試料表面を顕微鏡観察し、ブリストリングやフレーキングがないことを確認した。

第4章 He 含有標準試料の測定

本章では、第3章に記した He 含有標準試料の測定結果について述べる。各試料の溶融条件を表 3-1 に併記する。また、4-2 節には、動燃の H A F M 測定装置で測定された結果を示す。

4-1 H A M S による He 含有標準試料の測定結果

表 4-1～4-4 及び図 4-1～4-4 に各々 Cu, Al, V, SUS316 の測定結果を示す。表及び図の通り、各測定値は良い線形性を示している。しかしながら、打ち込み量 (He イオンの電荷測定量) に対して、12～16%程度高い値を示す結果となった。H A M S の測定値に対する誤差は、(1) 標準ガス作製における誤差 $\pm 2\%$ 以下、(2) Q M S の安定性による誤差 $\pm 1\%$ 、(3) バックグラウンドの変動による誤差 である。(3) のバックグラウンドの変動幅は、先に述べたように Q M S を S E M 無しで使用したことによる電氣的なノイズが原因であり、その変動幅は、He 数換算で、 $2 \times 10^{11}(\text{atoms})$ 程度で、 $1 \times 10^{13}(\text{atoms})$ の He 含有標準試料では、 $\pm 2\%$ の誤差となる。従って、H A M S による測定の全体の誤差は、 $\pm 3 \sim 2.4\%$ である。また、He 含有標準試料への He 注入量の持つ誤差は、(1) カレントインテグレータの測定誤差 $\pm 1\%$ 、(2) 2 次電子の補償における誤差 $\pm 2\%$ 、(3) イオン照射時の電氣的ノイズによる誤差 $\pm 2\%$ 、全体誤差として、 $\pm 3\%$ 程度である。

本測定結果と He 打ち込み量の比の偏差は、4%程度であるからこの変動については、上記のそれぞれの誤差で説明可能である。しかしながら、互いに最大の誤差を含んだとしても 10%程度 He 測定量が高い値を示している。

4-2 HAFM測定装置によるHe含有標準試料の測定結果

表 4-5～4-8 及び図 4-5～4-8 に動燃の測定結果を示す。測定は、各試料測定毎に被測定試料の打ち込み量の 0.5、1.0、1.5 倍の 3 点の標準ガス測定を実施し、3 点の直線補間による較正曲線により、測定値の較正を行っている。

表 4-5～4-8 には、全ての測定結果を記してある。しかしながら、HAFM 測定装置が本来測定対象としている $1 \times 10^{15} \sim 1 \times 10^{18}$ He atoms に対して、 10^{13} オーダーの He 量測定は、最低検出可能電圧が 1×10^{13} He atoms の測定において約 4%に相当する。また、これに伴い測定のバックグラウンドの変動量が最大で 8%程度見込まれるので、本オーダーの測定値は、次節の測定値比較の対象から除くこととした。また、表の備考覧に“*”を付した測定値は、試料測定に偶発的な不具合の発生が報告されたもので、この値も除外する。

4-3 相互比較

本比較実験において、九大は、He 含有標準試料の測定において打ち込み量に対して平均値で 16%程度高い値を表示している。一方、動燃の測定値は、打ち込み量に対して、11%程度高い値を示しており、簡単には、両者の測定には、5%の差があることが分かる。先に記したように九大の測定値には、 $\pm 3\%$ 、He 含有標準試料には $\pm 3\%$ の打ち込み誤差があり、動燃の測定値の誤差は、現在の測定からでは正確には推定できないので、測定値の偏差を誤差として考え He 含有標準試料の誤差を差し引けば $\pm 2.6\%$ の誤差を有していることになる。また、試料 A グループと B グループの誤差については、同時期に作製した同様の試料を九大で測定した結果、測定結果及び測定値の標準偏差は、前記の測定値をほぼ再現する結果となった。従って、動燃と九大の測定は、誤差 $\pm 3\%$ の打ち込み量を持つ He 含有標準試料の同じ母集団中の試料を測定したと考

えられる。従って、HAMSとHAFM測定装置の測定効率の比較のためには、試料のばらつきは考慮する必要はなく、両者の測定効率の差は～10.6%の間にあり、5%が最も確からしいと考えられる。図 4-9, 10 にそれぞれ、九大、動燃での各 He 含有標準試料の測定値の He 注入量に対する比を示す。これらの図は、明らかに前述の測定効率の差を示している。

この差の原因調査が今後の課題である。その原因としては、両者の有する He 標準ガス作製装置により作製される標準 He ガスの誤差が第一の候補であり、第2番目としては、その測定の手順に起因すると考えられる。

また、九大の課題としては、He 含有標準試料の打ち込み量の誤差の原因解明がある。現在、誤差の原因として、考えられるのは、イオン打ち込みに時に発生する反射イオンに起因する誤差である。金属材料にイオンを照射するとその1部が反射されることが報告されており（30KeV の He に対して、Cu で～3%）、そのイオンは今回の打ち込みの体系において全数がファラデーカップに衝突することになり、ファラデーカップの表面から2次電子の放出が予測される。2次電子の放出量は、入射イオン数に対して増幅率を持ち、放出2次電子は、ファラデーカップに印加した電圧により試料ホルダーに集中する。この効果によれば測定電流値は、実際の電流値よりも小さくなるので実際の He 含有量は、電荷測定値よりも大きくなる事が予測される。現在本研究室では、この様な観点から原因追究を行っている。

第5章 He 含有標準試料のヘリウム保持特性

本測定は、1991 年 3 月より動燃で保管されていた He 含有標準試料の He 含有量を測定することにより、その He 保持力を評価したものである。測定した He 含有標準試料は、Cu 6 点及び V 4 点である。これらの試料は、動燃において、常温の大気中で保管されたものである。試料の外観は、V については、通常の金属表面であった。Cu に関しては、表面が若干酸化しておりイオン照射痕が顕著であった。Cu 及び V の測定結果をそれぞれ図 5-1 及び図 5-2 に示す。

図 5-1, 2 の測定値は、良い直線性を示した。しかしながら、測定値の絶対値は、He 注入量より約 17～30%高い値を示しており、今年度に作製した He 含有標準試料の測定結果と同じ傾向である。また、動燃において Cu, V 各 1 点を測定した結果では、He 注入量に対してそれぞれ 10%と 12%高い測定結果となっている。したがって、本年度の He 含有標準試料測定結果を考慮すると保存期間中に、あまり大きなガスの放出はないと考えられる。しかしながら、定量的な He 含有標準試料の He 保持能力の評価は、現時点のデータのみでは難しく、更なる長期保存後の He 含有標準試料の測定、He 含有標準試料への He 注入量の誤差の原因究明及び評価が必要である。

第6章 ステンレス鋼のモニター物質としての評価

本測定は、中性子照射されたステンレス鋼が将来のフルエンスモニターの候補となりうることもまた、構造材等に使用されるステンレス鋼中に生成された He 量を測定することを想定し、イオン注入された SUS316 の He 含有標準試料から完全に He を放出させるために必要な温度条件の決定を目的とした。具体的には、HAMS の電気炉の昇温特性を測定し、各温度条件により He 含有標準試料から放出された He 量を測定することにより、He 全量を放出させるために必要な最低限の昇温条件を決定した。試料には、 1×10^{14} He atoms の He 含有標準試料を 6 点使用し、電気炉の温度特性の決定は、Al, Cu, Ni, V 試料の融点により行った。昇温条件としては、過去の測定との関係より時間を 20 秒一定とし、電気炉に通電する電流値をパラメータとして、測定を実施した。図 6-1 に得られた電気炉の特性を示す。図 6-2, 3 に He ガス放出の特性を示す。測定には、Mo ボートを使用しており、各試料に対して 3 回の昇温を行った。1 回目が特性測定のための昇温である。2 回目の昇温は、電流 240A, 30S の条件で行い、残留 He 量を測定した。2 回目の昇温により試料は、ほぼ全量が蒸発し、シールド上に蒸着膜を形成する。3 回目は、2 回目の昇温により全量が放出されたことを確認するためであり、昇温条件は 2 回目と同じである。3 回目の測定は、バックグラウンドの値と一致した。

図 6-2, 3 より昇温条件 200A, 20s(加熱温度 1500℃程度)以降は、He ガス放出率が一定値を示していることが分かる。しかしながら、2 回目の測定では、2%程度の He が検出されており、240A, 20S すなわち加熱温度 1850℃で 1 回目の測定を実施した場合、2 回目の測定において He は検出されなくなった。また、本測定結果は、電気炉の通電電流値に最大で $\pm 5A$ の誤差を含むと考えられるので、図 6-2, 3 には、それに対応する誤差線を記した。

得られた測定結果は、ステンレス鋼の融点(1371~1398℃)に対して約 1.32

倍程度である。過去の九大の実験値では、ガス放出の為の条件として、その融点の 1.3 倍を指摘しており、今回の測定は、その結果に近い値となった。しかしながら、このガス放出の経験値は、試料の形状に依存すると考えられるので、今回使用した He 含有標準試料と形状が極めて異なる場合には、各試料における再測定が必要である。また、今回行った試料の 3 回連続測定は、有効な方法である。

第7章 まとめ

本研究の結果以下の事が明らかとなった。

1. He 含有標準試料を九州大学および動力炉・核燃料開発事業団で各々測定した結果、HAMS の測定値と HAFM 測定装置の測定値には、5%程度の差が有ることが分かった。
2. 平成2年度に作製した He 含有標準試料の測定を行った結果、測定 He 量は、今回作製した He 含有標準試料の測定結果と同様に、注入量より高い値を示した。本年度の He 含有標準試料測定結果を考慮すると保存期間中に、あまり大きなガスの放出はないと考えられる。しかし、放出量の定量的な把握のためには、さらなる長期保存後の He 含有標準試料の測定、He 含有標準試料への He 注入量の誤差の原因究明及び評価が必要である。
3. SUS316(寸法 $2 \times 10 \times 0.5 \text{mm}^3$) の He 含有標準試料から全 He 量を放出させるためには、 1850°C で 20 秒程度の加熱が必要である。

表 3-1 イオン注入用試料および溶融条件

試料	寸法 (mm)	純度 (%)	融点 (°C)	焼鈍条件	加熱条件	ボート形状(材質)
Cu	2×10×0.5	99.96	1084.5	800°C, 1hr	230A, 20S	標準型(Mo)
Al	2×10×0.5	99.999	660.4	400°C, 1hr	220A, 20S	標準型(Mo)
V	2×10×0.5	99.8	1890	1000°C, 1hr	220A, 20S	V字型(Ta)
SUS316	2×10×0.5	—	1371~1398	1000°C, 1hr	240A, 20S	V字型(Mo)

表 4 - 1 Cu の He 含有標準試料測定結果 (九大)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.18E+13	1.18
4.02E+13	4.77E+13	1.19
7.00E+13	7.86E+13	1.12
1.00E+14	1.19E+14	1.19
9.98E+13	1.15E+14	1.15
3.99E+14	4.64E+14	1.16
7.00E+14	7.97E+14	1.14
1.00E+15	1.14E+15	1.14
3.00E+15	3.58E+15	1.19
	平均	1.16
	標準偏差	0.03

表 4 - 2 Al の He 含有標準試料測定結果 (九大)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.11E+13	1.11
1.01E+13	1.16E+13	1.15
1.00E+14	1.11E+14	1.11
9.99E+13	1.14E+14	1.15
1.00E+15	1.10E+15	1.10
1.00E+15	1.13E+15	1.13
	平均	1.12
	標準偏差	0.02

表 4 - 3 V の He 含有標準試料測定結果 (九大)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.13E+13	1.13
1.00E+13	1.21E+13	1.21
1.00E+14	1.14E+14	1.14
1.00E+14	1.16E+14	1.16
1.00E+15	1.15E+15	1.15
1.00E+15	1.17E+15	1.17
	平均	1.16
	標準偏差	0.03

表 4 - 4 SUS316 の He 含有標準試料測定結果 (九大)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.17E+13	1.17
1.00E+13	1.20E+13	1.20
1.00E+14	1.17E+14	1.17
1.00E+14	1.14E+14	1.14
1.00E+15	1.08E+15	1.08
1.00E+15	1.17E+15	1.17
	平均	1.15
	標準偏差	0.04

表 4 - 5 Cu の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A	備考
1.03E+13	1.12E+13	1.09	*
4.02E+13	3.71E+13	0.92	
7.00E+13	7.16E+13	1.02	
9.98E+13	8.80E+13	0.88	
1.00E+14	1.07E+14	1.07	
4.00E+14	4.22E+14	1.06	*
7.00E+14	7.96E+14	1.14	
1.00E+15	1.05E+15	1.05	
3.00E+15	3.64E+15	1.21	
	平均	1.07	
	標準偏差	0.09	

表 4 - 6 Al の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.17E+13	1.17
1.00E+14	1.09E+14	1.09
1.00E+15	1.10E+15	1.10
	平均	1.12
	標準偏差	0.04

表 4 - 7 V の He 含有標準試料測定結果（動燃）

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	9.97E+12	1.00
1.00E+14	1.08E+14	1.08
1.00E+15	1.14E+15	1.14
	平均	1.07
	標準偏差	0.07

表 4 - 8 SUS316 の He 含有標準試料測定結果（動燃）

He注入量:A (He atoms)	測定He数:B (He atoms)	B / A
1.00E+13	1.00E+13	1.00
1.00E+14	1.14E+14	1.14
1.00E+15	1.11E+15	1.11
	平均	1.09
	標準偏差	0.07

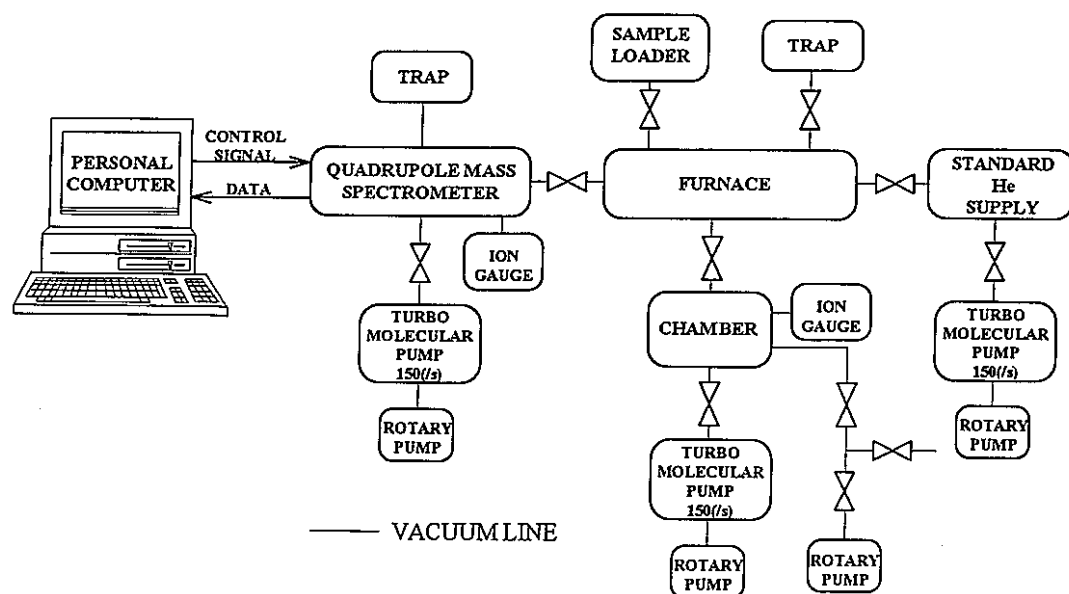


図 2-1 微量He原子測定装置 (HAMS) ブロック図

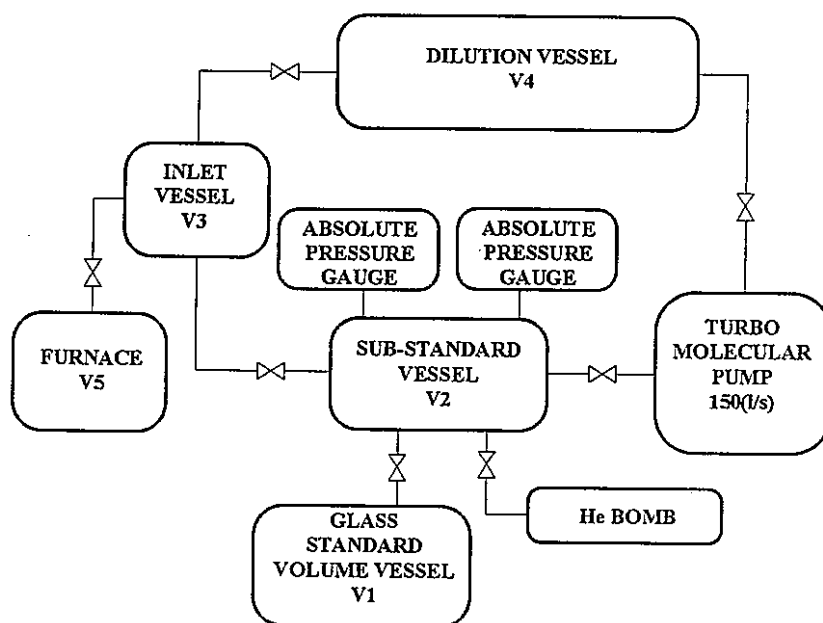


図 2-2 標準ガス作製装置ブロック図

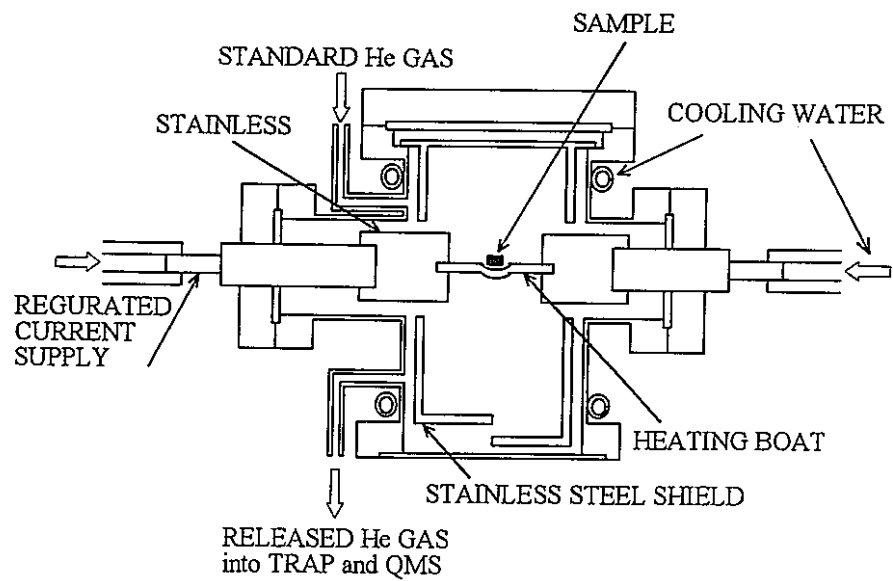


図 2-3 電気炉断面図

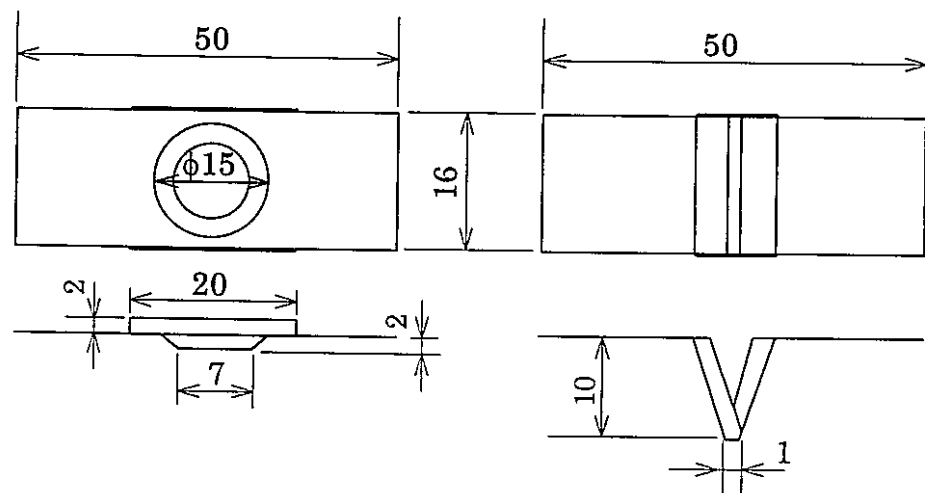


図 2-4 標準型蒸発用ボートとV字型蒸発用ボート

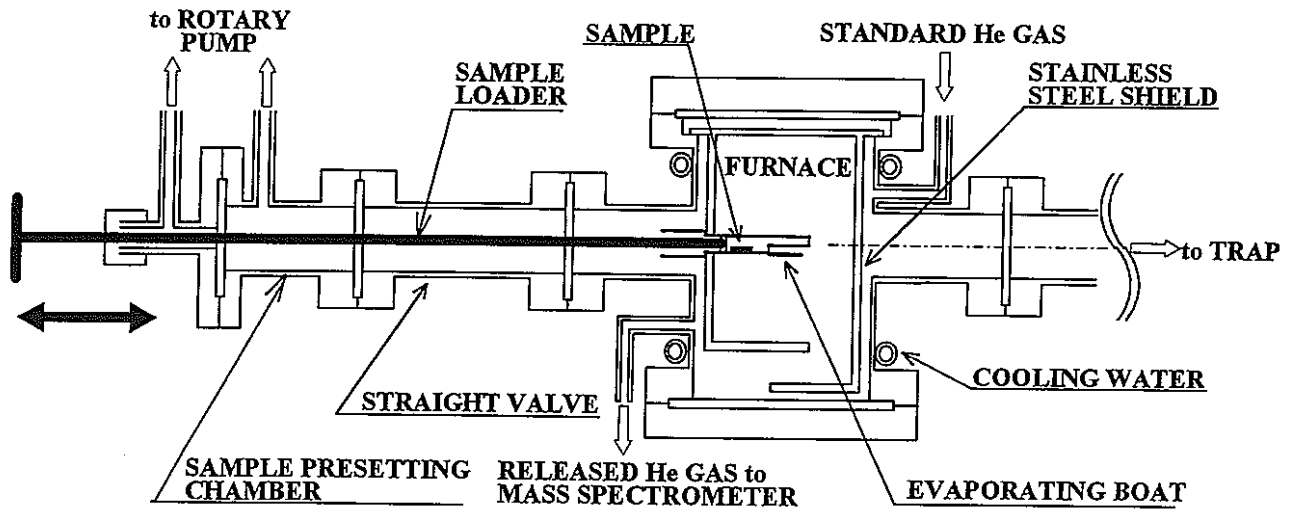


図 2-5 電気炉及び試料導入器

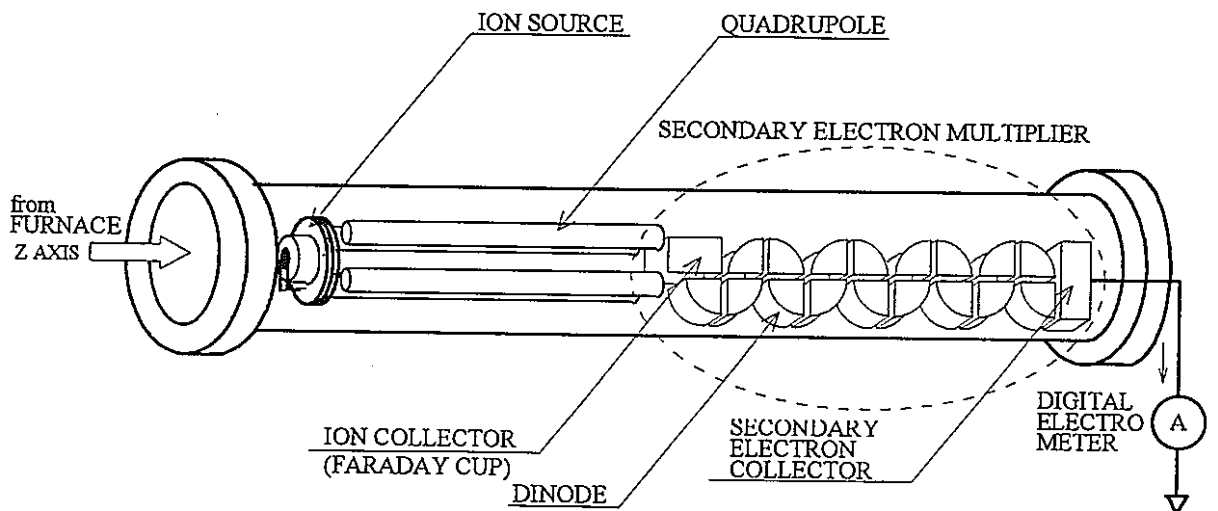


図 2-6 四重極質量分析計概念図

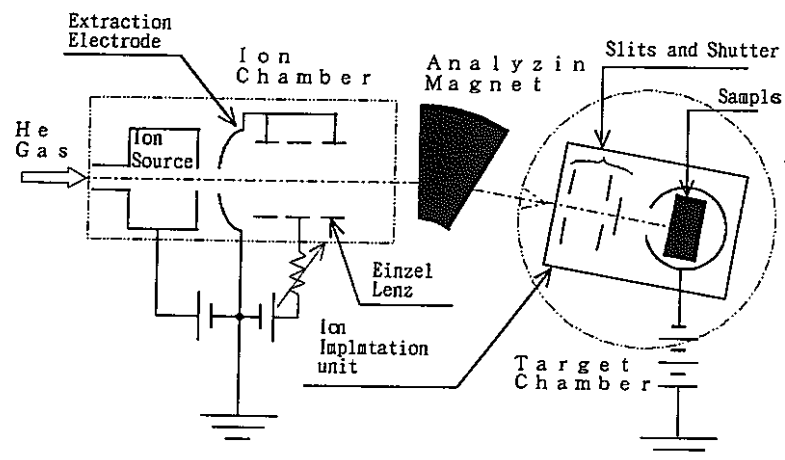


図 3-1 イオン注入装置

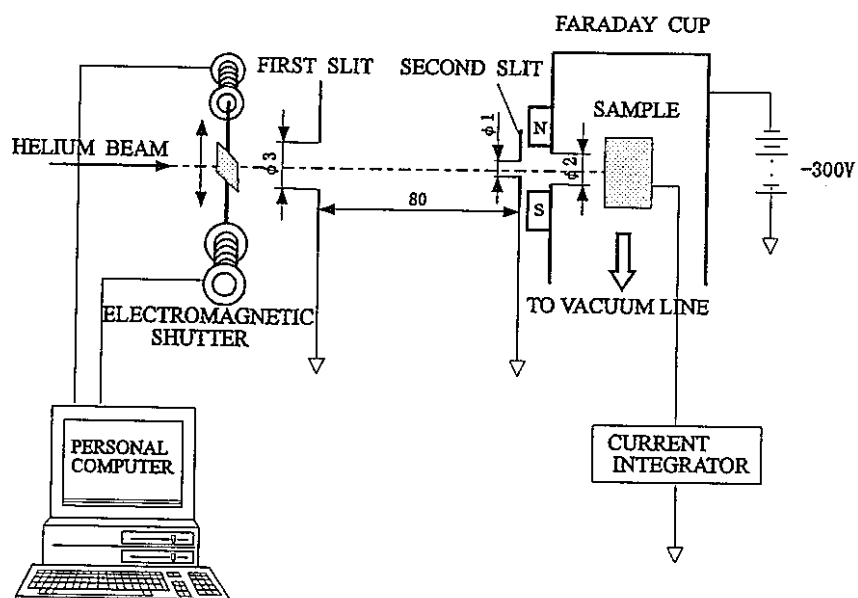


図 3-2 イオン注入ユニットおよび各部の接続

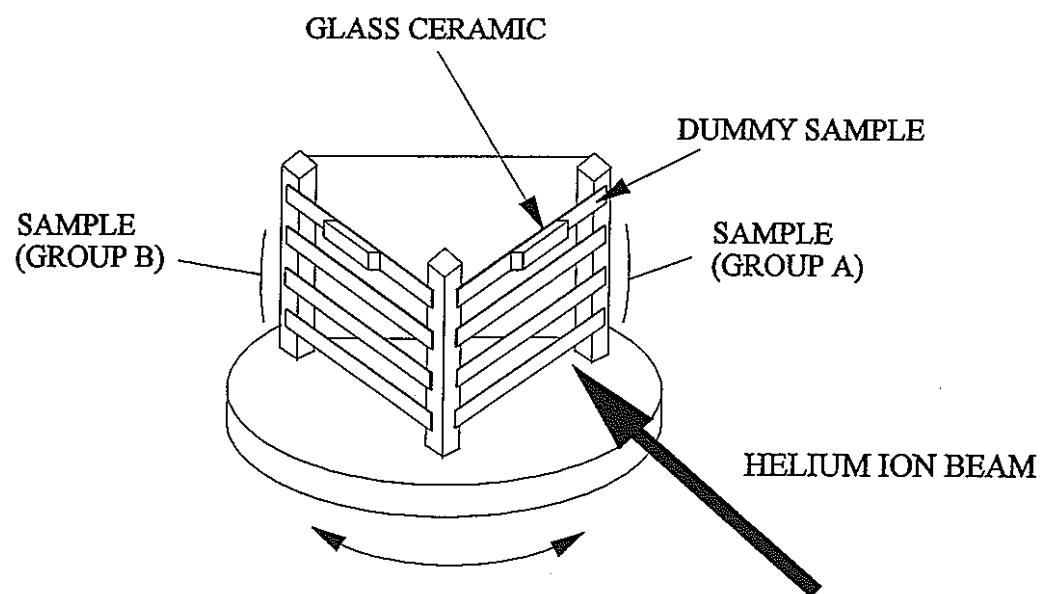


図 3-3 試料ホルダー概略図

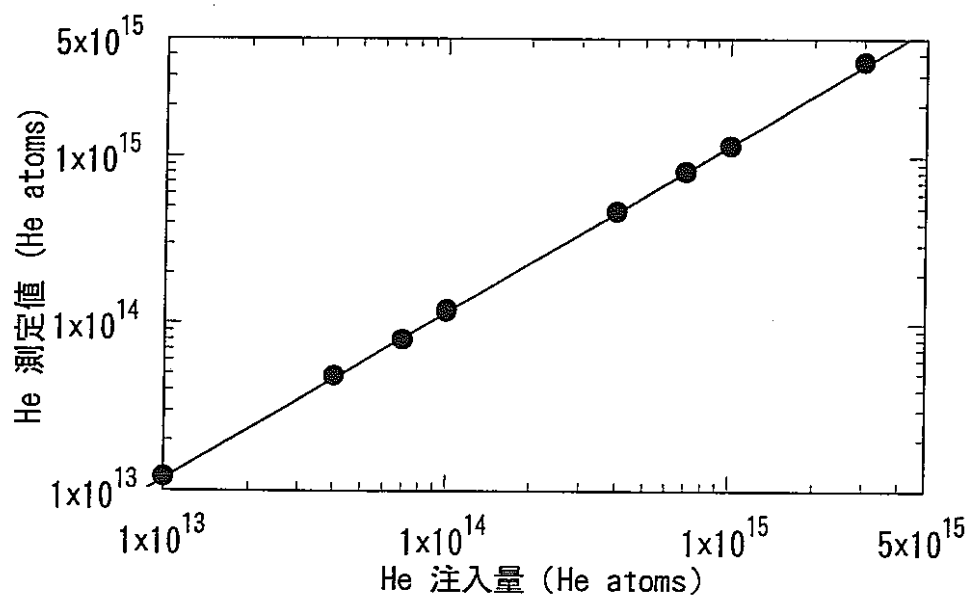


図 4 - 1 Cu の He 含有標準試料測定結果 (九大)

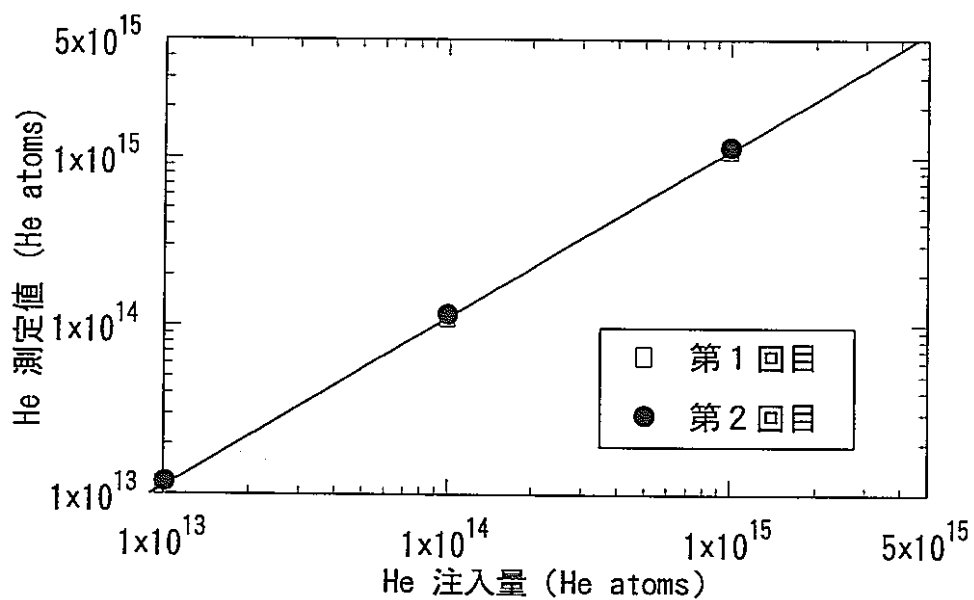


図 4 - 2 Al の He 含有標準試料測定結果 (九大)

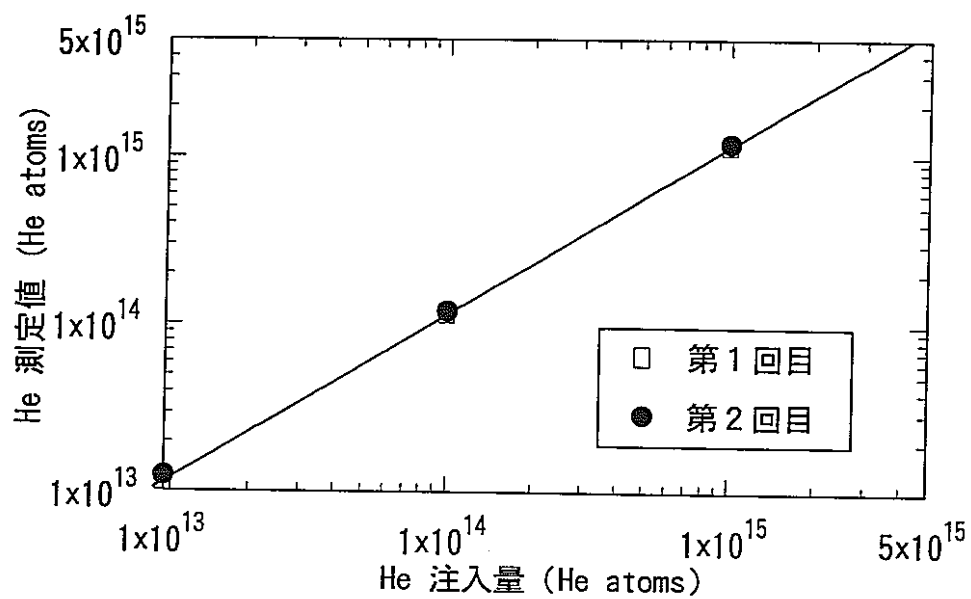


図4-3 VのHe含有標準試料測定結果(九大)

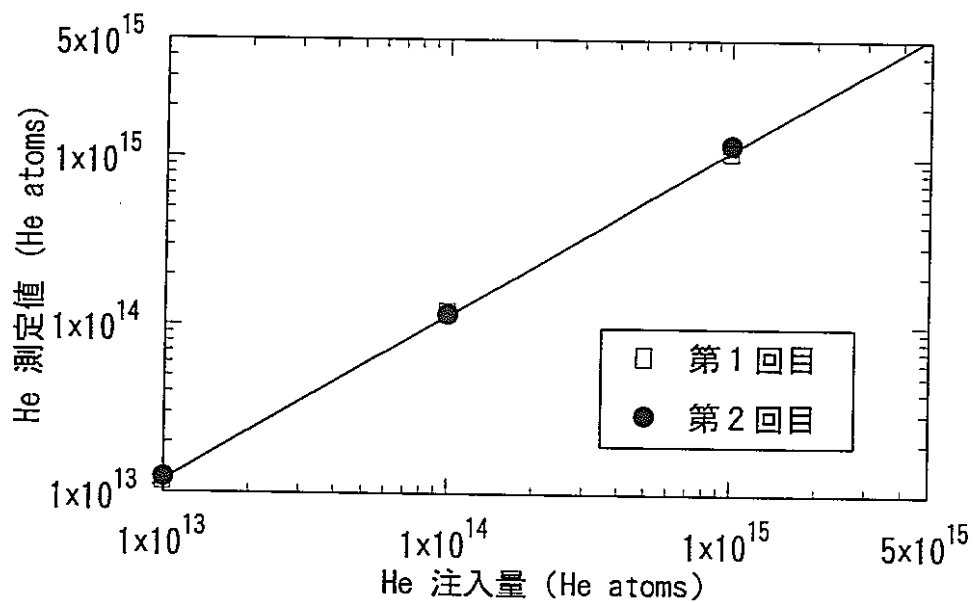


図4-4 SUS316のHe含有標準試料測定結果(九大)

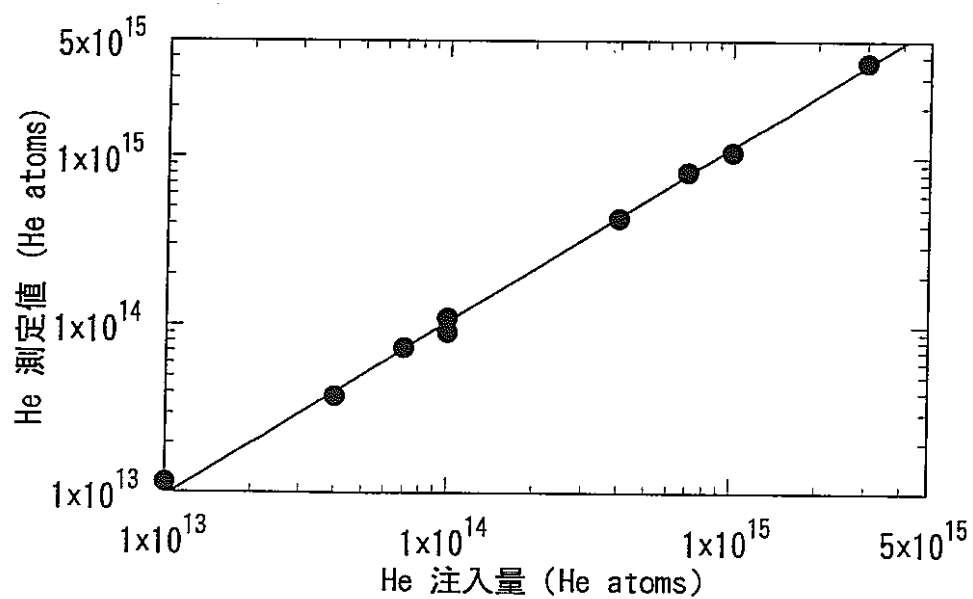


図 4 - 5 Cu の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

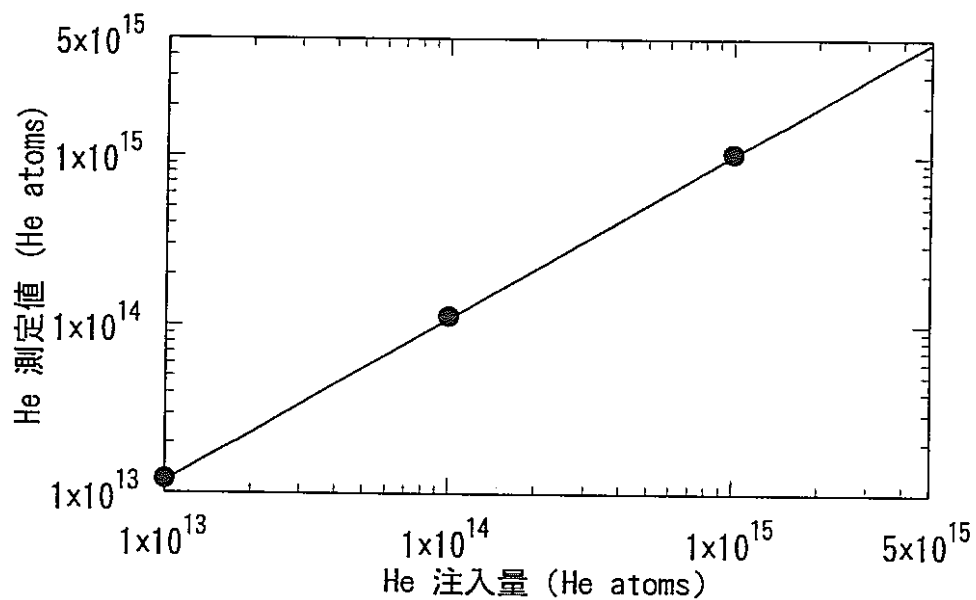


図 4 - 6 Al の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

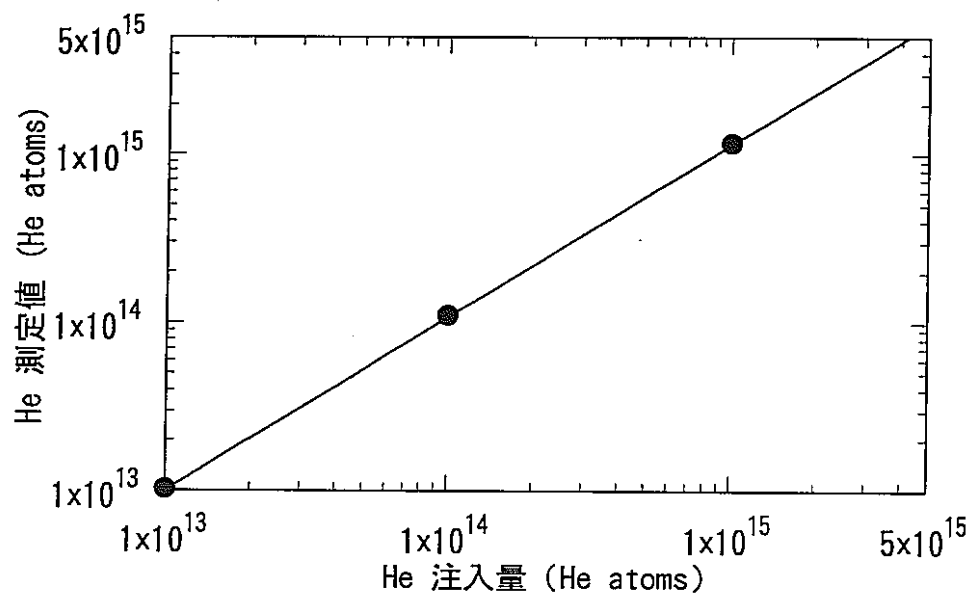


図 4 - 7 V の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

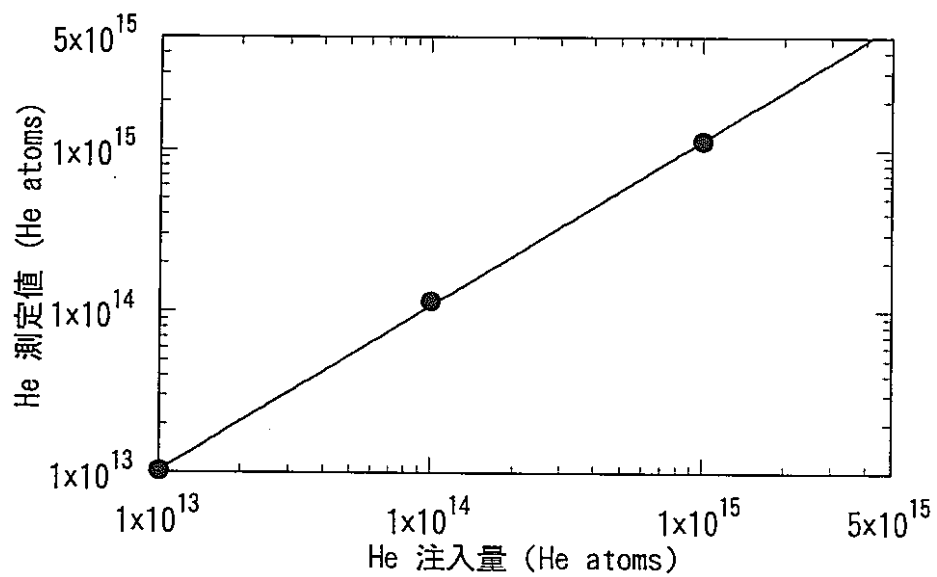


図 4 - 8 SUS316 の He 含有標準試料測定結果 (動燃)

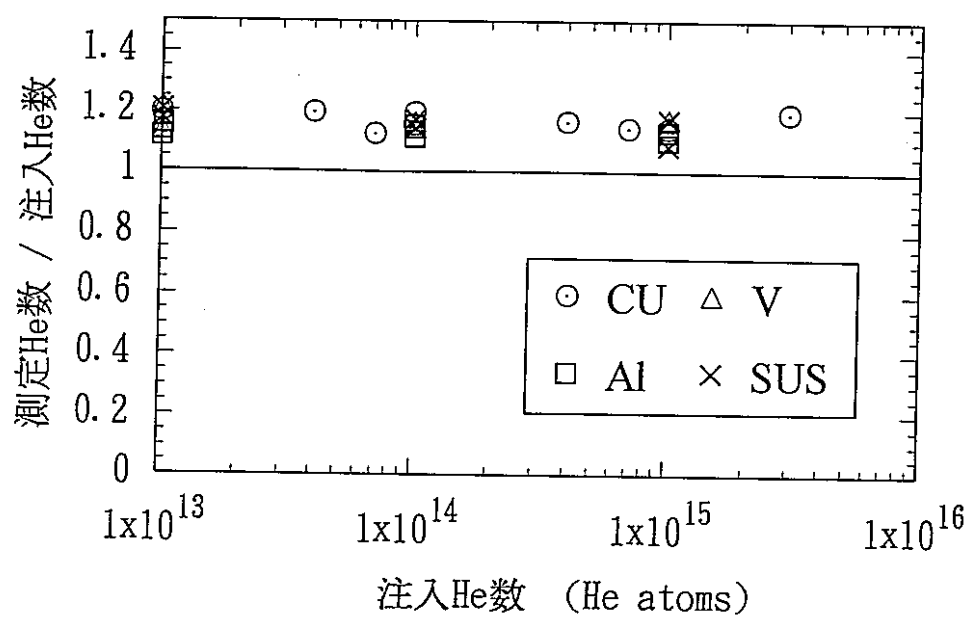


図 4-9 He 含有標準試料測定値と He 注入量の関係 (九大)

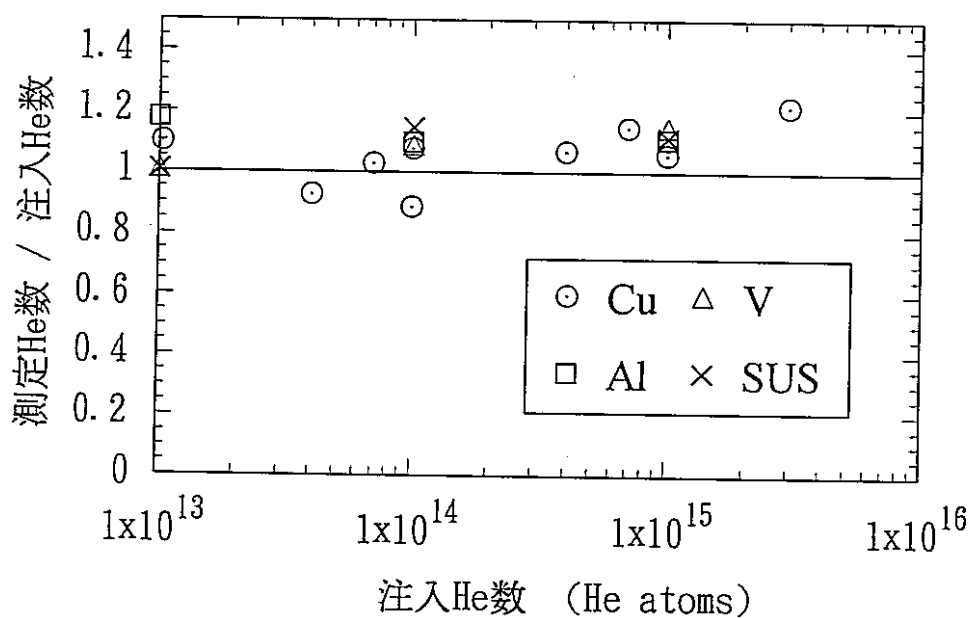


図 4-10 He 含有標準試料測定値と He 注入量の関係 (動燃)

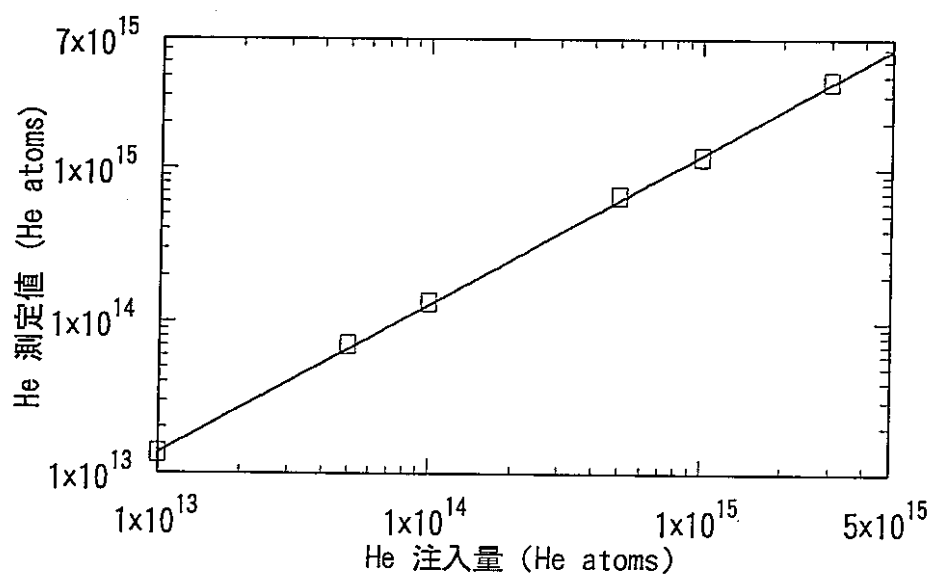


図 5-1 平成2年度作製の He 含有標準試料 Cu の測定結果

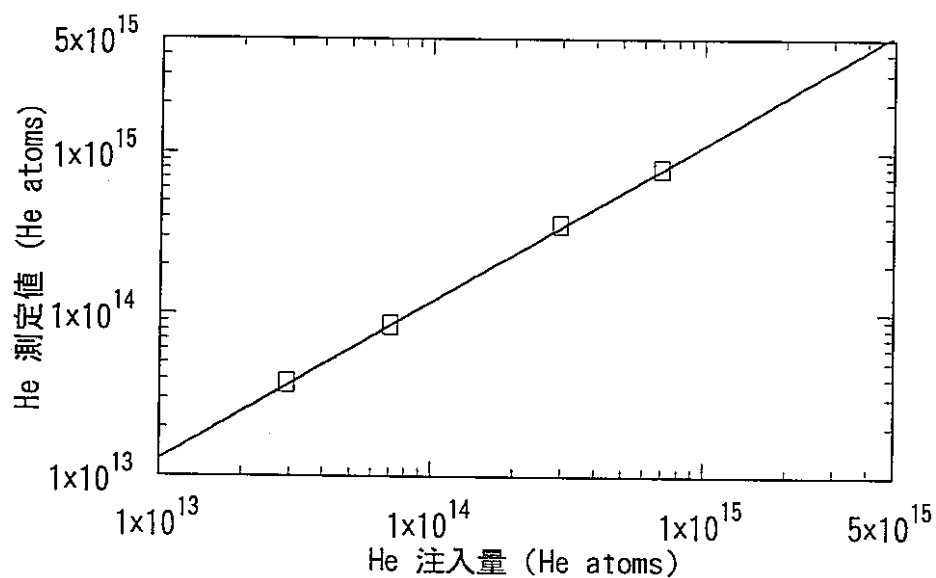


図 5-2 平成2年度作製の He 含有標準試料 V の測定結果

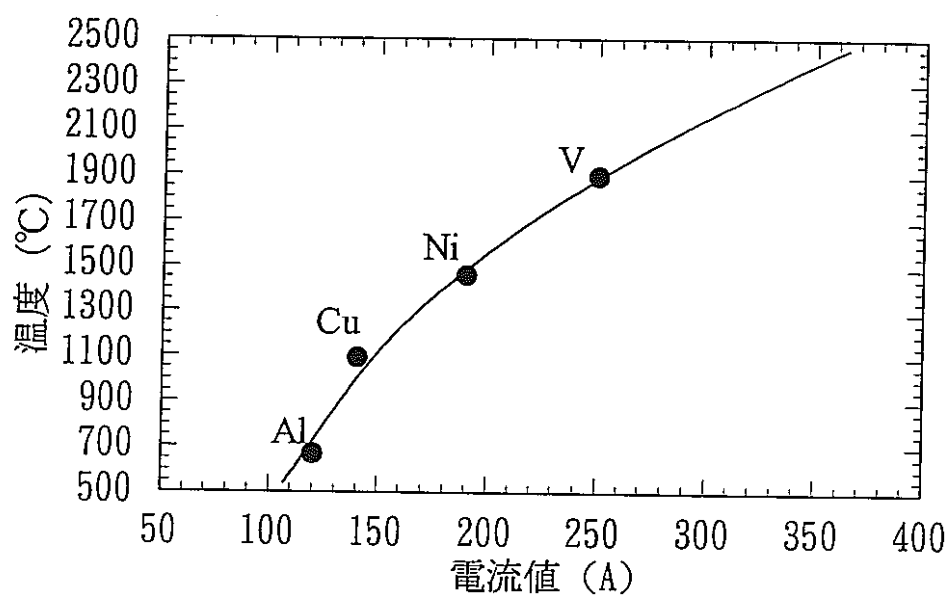


図 6-1 電気炉通電電流と蒸発皿温度の関係

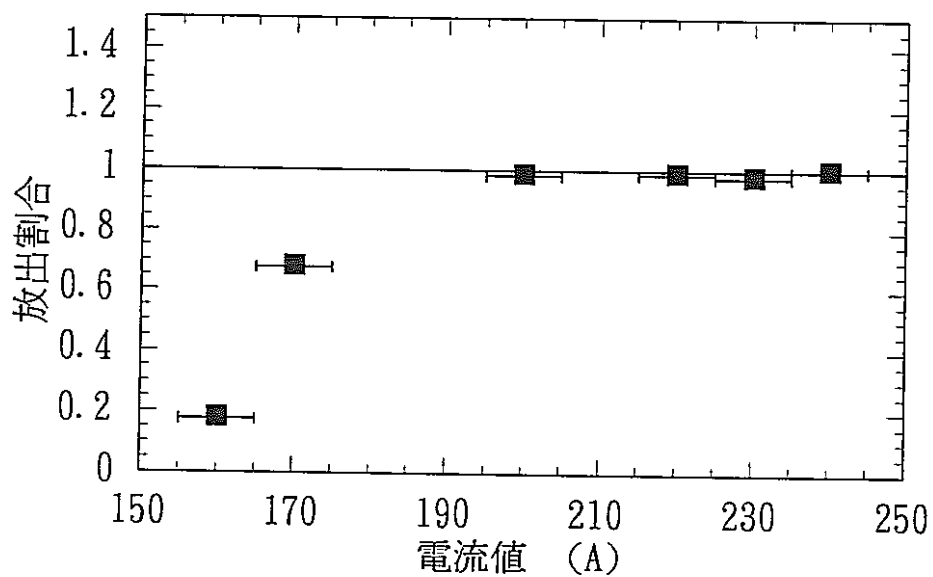


図 6-2 電気炉通電電流とステンレス試料のガス放出率

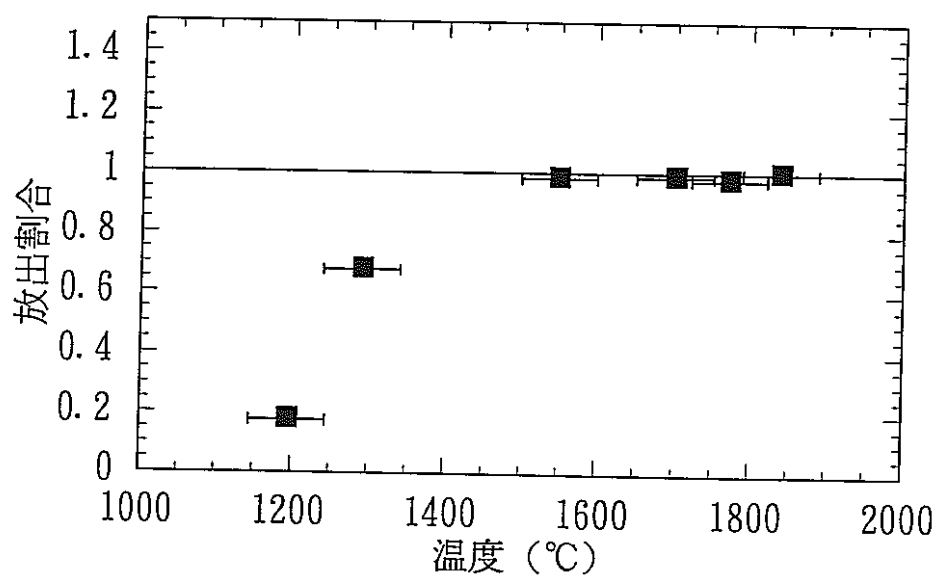


図 6 - 3 電気炉温度とステンレス試料のガス放出率