

照射欠陥挙動の基礎的解明と極低温中性子照射装置の開発

京大原子炉実験所 岡田 守民

1 はじめに

極低温中性子照射装置は、格子欠陥生成の初期過程の研究や、原子炉材料の照射損傷の基礎的理解に必要な不可欠の実験手段として、以前より先進各国の主要な研究炉において設けられてきた。しかしながら、現在この種の装置の多くは所期の目的を達したか、若しくは炉本体の停止に伴いほとんどが撤去されてしまっている。現在でも使用されている装置はミュンヘン工大炉 (FRM) と京大炉 (KUR-LTL) の2基のみとなっている。極く最近になって核融合炉開発が現実性を帯びてきて、核融合炉プラズマ閉じ込め用超伝導マグネット構成材の低温度下における照射効果の研究が俄かにクローズアップされてきて、この種の照射装置の必要性が再び高まってきている。しかしながら、KURの装置はFRMのそれと比べ中性子線量、照射温度とも大きく不足しており、性能向上が待望されている。

この小文では、現在のKUR-LTLの概要と、その改良案の概略を記し、次いでKUR-LTLで行なった我々の多くの研究成果¹⁾のうち、アルカリ土類フッ化物結晶の色中心生成に関する研究結果を紹介する。

2-1 KUR-LTLの概要

図-1は、KUR-LTLの概念断面図である。左側が原子炉の炉心部である。この装置の主な特長は、1) 冷媒としてヘリウムガス (He) を用いており、冷凍機で冷却されたHeは、水平の照射ループの最内管に入り先端の試料照射部から外管に戻る。この戻りガスは最内管の熱交換を兼ねて冷凍機に戻る。戻り外管の外側は断熱真空層であり3重管構造になっている。2) 水平に炉心部より後方へ複数個の照射カプセルを並べることで同一条件下で照射線量の異なるデータが得られる。

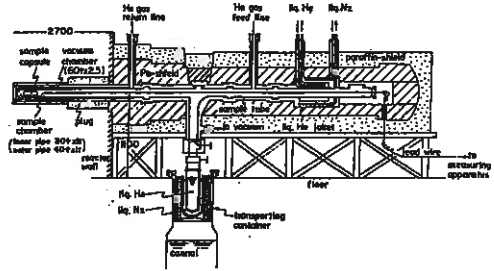


図-1 京大炉低温照射装置 (KUR-LTL) の概略断面図

図-2は、炉心側からの距離の関数として得られた高速中性子 (>0.1MeV) と熱中性子束分布である。照射損傷は主に高速中性子によって生じる。3) 照射試料の物性はリード線を直接炉外に取り出しリアルタイムで測定できる。4) 照射温度はHe流量の調節で15K~300Kの間で可能。5) 照射後試料は照射ループの中間に設けられた試料落とし口より温度を上げることなく取り出しできる等である。

2-2 改良型LTL案

現LTLの性能不足を改善する目的で考えている傾斜型の照射ループ計画の概略を紹介する。

先ず、前提として、KURのB-1実験孔を使用する。この場所は炉心燃料ケースの側板に対して垂直方向に向いており、45°方向にある現在の

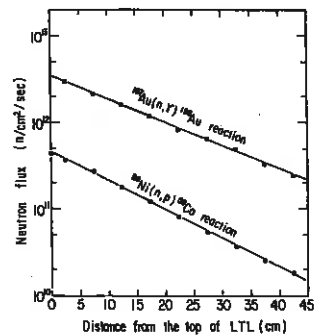


図-2 KUR-LTLにおける中性子束分布最先端部 (0 cm) からの距離の関数として示されている。

LTLに対してより炉心燃料に近づくことができ、従って、数倍高い中性子束が期待できる。また、B-1実験孔の内径は20cmあり、現在の照射ループが水平に設置されているのに対し、先端部を下に傾けて設置することが可能となる。この利点は液体ヘリウムを溜める事ができ、この沸点の温度で照射が可能となる事である。図-3にB-1実験孔に設置した改良型のLTL装置の概略図を示す。

これにより、1週間の照射で高速中性子線量として約 10^{18} n/cm²の照射がより低温で可能となり金属材料の一部の研究グループも利用可能となることが予想される。

3 アルカリ土類フッ化物の低温照射効果

螢石型結晶構造(図-4)を持つアルカリ土類フッ化物(CaF₂, SrF₂, BaF₂)の放射線照射による欠陥の生成効率は岩塩型のアルカリハライドに比べ極めて低い。普通室温照射では、放射線の

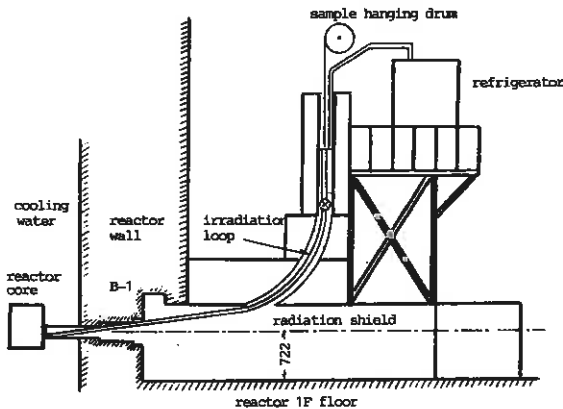


図-3 京大炉(KUR)のB-1実験孔に設置予定の改良型低温照射装置の概略図(案)

種類によらず基本的欠陥による着色はない。この原因を調べるために極低温中性子照射を試みた。

本報では、KUR-LTLで約20Kで照射した上記3種の結晶のF中心(フッ素イオン空格子点)に電子が1個捕獲されている欠陥の生成効率とその生成機構について研究した結果を概説する。

3-1 照射結晶の吸収スペクトル

図-4に見られるように、F中心近傍のアルカリ金属に対する対称性はアルカリハライドの八面体対称と異なって四面体対称である。このためフッ

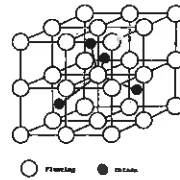


図-4 螢石型結晶構造

素イオンは大変動きやすく不安定である。

図-5は、18Kで照射され、液体窒素中に取り出された、CaF₂, SrF₂, BaF₂、結晶の照射直後及び燃焼鈍過程で観測された吸収スペクトルで、全て77Kで測定された。CaF₂, SrF₂, BaF₂中におけるF中心の吸収極大の位置は、各々375、435及び611nmである。各々のF中心の短波長側に見られる幅の広い吸収帯はH中心(<111>或は<100>方向に隣接した3個のフッ素イオン格子点を占有する4個のフッ素から成り1個の正孔(ホール)を自己捕獲して[X₄]³⁻分子状態にある。この余分のフッ素は格子間に入っている)である。長波長側のものはF₂中心である。この図の内挿図に見られるように、F及びH帯はほぼ平行して回復している。この回復過程で熱ルミネッセンスが見られる。これは、熱的に不安定なH中心中のホールがF中心中の電子と再結合する際に発光するものとされた。²⁾

これらの結晶のF中心は必ずホールトラップ型のH中心を伴っている。このH中心は高温では不安定なため、F中心も低温照射下でなければ安定に存在しないのであろう。

3-2 F中心生成効率

図-6は、中性子線量の関数として示されたF中心の生成曲線で、実線は18K、点線は85K照射されたものである。この図から、より低温照射の方が生成効率が高い事、また、F中心の生成効率がCaF₂, SrF₂, BF₂の順に高くなる事が分かる。この結果は、以前Call等³⁾によるCaF₂, BaF₂, SrF₂の順に高くなるという報告と異なっ

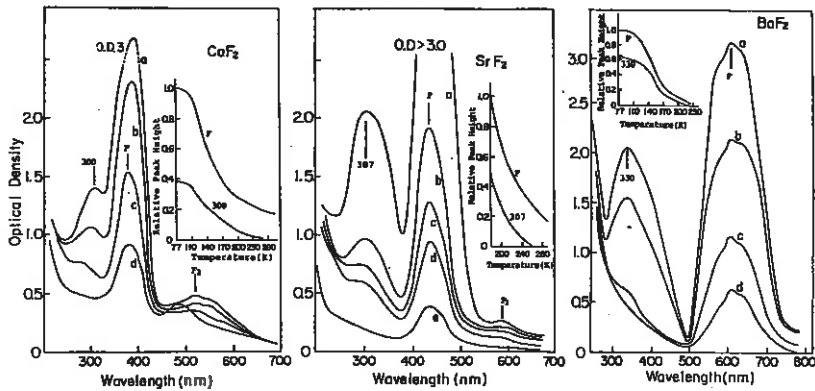


図-5 低温原子炉照射したCaF₂、SrF₂、BaF₂の照射直後(a)及び熱焼鈍中(b~d、e)の吸収スペクトル

ている。

一方、アルカリハライドにおけるF中心生成効率が最隣接ハロゲン間の間隙Sと、ハロゲンの原子半径Dとの比S/Dの関数として表せることが知られている。⁴⁾

表-1はこれらの物質について格子パラメータをまとめたものである。S/DはCaF₂ < SrF₂ < BaF₂であり、我々の観測結果を合理的にうまく説明できる。

あとがき

この仕事の多くは、以前同僚であった現香川大学中川益夫教授、鳴門教育大学跡部紘三教授、そして先年定年退官された川久保鐵哉先生との共同で行ったものである。また、京大原子炉の故吉田博行先生には低温照射装置の円滑な運営に多大のご協力を頂いた。そして、研究の推進や照射装置の運営に京大原子炉実験所の所長を始め多くの方々にお世話になった。この紙上を借りて厚く御礼申し上げます。

最後に、この度思い掛けずも、私の地味で目立たない仕事に対して大きな評価を頂いた大阪ニュークリアサイエンス協会の方々に厚く御礼申し上げます。

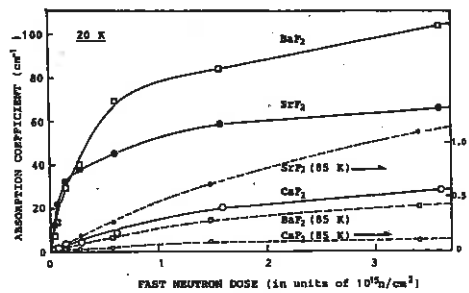
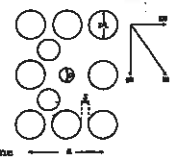


図-6 アルカリ土類フッ化物結晶のF中心生成効率高速中中性線量の関数として示されている。

表-1 アルカリ土類フッ化物結晶の格子パラメータと参考図

Crystal	a (Å)	S (=a/2-2R)	S/D
CaF ₂	5.45	0.065	0.048
SrF ₂	5.78	0.23	0.169
BaF ₂	6.10	0.43	0.316



a: lattice constant, S: space between adjacent anions along <100> direction, R: radius of fluorine ion, 1.32Å, D: diameter of fluorine atom, 1.36 Å.

参考文献

- 1) M. Okada, Engin. Dr. Thesis, Osaka Univ., (1990). の本文及び業績一覧表参照
- 2) K. Atobe, J. Chem. Phys. c7 (1979) 2588.
- 3) P. J. Call et al., J. Phys. c7 (1974) 2417.
- 4) H. Rabin and C.C. Klick, Phys. Rev. 111 (1960) 1005.