

## 論文

### TFTR炭素材プローブ中のトリチウム測定

原 正憲<sup>1</sup>, 芦田 完<sup>1</sup>, 松山 政夫<sup>1</sup>, 渡辺 国昭<sup>1</sup>  
広岡 慶彦<sup>2</sup>

<sup>1</sup>富山大学水素同位体機能研究センター  
〒930-8555 富山市五福3190番地

<sup>2</sup>カリフォルニア大学サンディエゴ校  
92093-0417 カリフォルニア州ラホヤ市

### Analysis of Tritium Implanted in an Edge Probe in TFTR

Masanori HARA<sup>1</sup>, Kan ASHIDA<sup>1</sup>, Masao MATSUYAMA<sup>1</sup>, Kuniaki WATANABE<sup>1</sup>  
Yoshi HIROOKA<sup>2</sup>

\*1 Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University  
Gofuku 3190, Toyama 930-8555, JAPAN

\*2 Fusion Energy Research Program and  
Department of Applied Mechanics and Engineering Sciences,  
University of California, San Diego  
La Jolla, California 92093-0417

(Received January 5, 1998; accepted March 9, 1998)

### Abstract

Tritium analysis has carried out for the 4D C-C composite deposition probe exposed to the edge of D-D plasma several times in Tokamak Fusion Test Reactor (TFTR) at Princeton University. It is expected that a non-negligible amount of tritium would be captured in it. The samples for the tritium measurement were small thin slices taken from different parts of the probe and powder yielded. The amount of tritium was measured in two different ways. One was the conventional combustion and scintillation counting of trapped water for the sliced samples, and the other a direct counting method of the powder suspended in the scintillator. The burning method gave 87 to 398 kBq/g, depending on the part of probe areas. The data indicate that the ion drift side contains more tritium than the electron drift side, which is consistent with earlier surface measurements for deuterium and lithium. On the other hand, the direct counting method resulted in 61 kBq/g. The smaller activity by the direct method indicates that tritium was distributed beyond the escape depth of the beta rays

from the surface. Nevertheless, the direct counting appears to be applicable to for the estimation of tritium inventory in the carbon first wall as a rapid technique and should be convenient for carbon debris of considerably small particle sizes.

## 1. 緒 言

放射性同位元素管理においては核種並びにその物理的及び化学的存在状態の把握に加えて、放射能の正確で迅速な評価が重要である。しかしながら、トリチウムは低エネルギーβ線核種であるため、固体中に溶解あるいは捕獲されたトリチウム量を正確に測定するには、その材料の加熱脱ガスあるいは、溶解により固体から分離させる必要があるため、一般に煩雑な操作と長時間を要する。

一方、精度を多少犠牲にしても迅速な測定が必要である場合がある。大型プラズマ実験装置ではプラズマ対向壁として炭素系材料が広く使用されており、重水素( ${}^2\text{D}+{}^2\text{D}\rightarrow{}^3\text{T}+{}^1\text{H}$ )及びトリチウム放電に関与したトリチウムはこの材料中に注入、捕獲される。加えて、この炭素材の一部はトリチウムを含んだ炭素デブリあるいは再堆積層中に蓄積することが知られている<sup>1,2)</sup>。これらの炭素材中に取り込まれたトリチウムは保守点検作業時の作業者の被爆管理と環境保全において重要課題である。このため放射能の高精度かつ作業が容易なトリチウム定量手段の開発が必要である。

本稿において、米国Tokamak Fusion Test Reactor (TFTR)での重水素放電実験時に用いられた炭素プローブ中に捕獲されたトリチウムを、一般に高精度とされる燃焼法と比較的作業の容易な粉体からのβ線の直接測定法(粉末法)により測定し、直接測定法の有効性と限界について考察した結果を報告する。

## 2. 実 験

試料として、TFTRで重水素放電にさらされた不純物捕獲用プローブから切り出した小片を用いた。このプローブの表面分析等の測定は広岡らにより報告されている<sup>3,4)</sup>。プローブはFig.1に示した様に円筒形であり、4Dカーボンコンポジット製である。プローブを設置した位置は

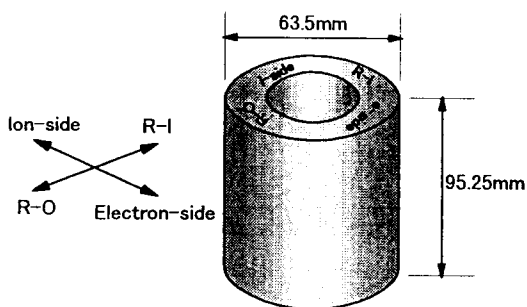


Fig.1. A schematic drawing of the TFTR deposition probe.

TFTRの真空容器(Bay-D)下側であり、プローブの上端が最外かく磁気面から約1 cmの位置に設置された。図中のR-IはTFTRの主半径の内側、R-Oは外側に位置することを示す。TFTRでの放電は、プラズマ内へのリチウムペレット入射を含む4回の重水素放電が行われた。最後の1回はディスラプションをおこした<sup>3)</sup>。トリチウム測定試料は2つの方法により作成した。1つは燃焼法

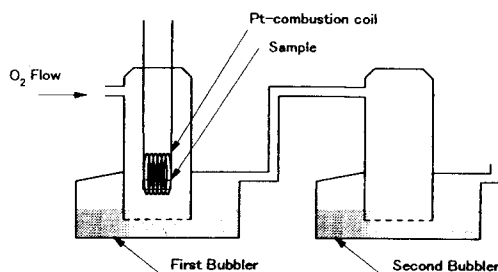


Fig.2. A schematic diagram of the combustion method apparatus.

に用いる試料であり、i-side, e-side, R-I及びR-Oから約0.03 g程度の小片を切り出した。また、切り出した際にでた粉末を直接測定法(粉末法)に用いた。

燃焼法は試料中の全トリチウム量を測定する方法であり、Fig. 2に示す燃焼装置を用いた。燃焼方法は燃焼装置の2つのバブラーに蒸留水をそれぞれに100 ml入れ、酸素気流中で白金線に通電を行い、切り出した小片を赤熱させ完全に燃焼させた。試料中のトリチウムは燃焼されトリチウム水の化学形となり、蒸留水中に捕集された。その後、バブラーより1 mlサンプリングし15 mlの液体シンチレーター(Amersham社製 ACS II)と攪拌し測定試料を調製した。粉末法の試料は燃焼法の試料を切り出す際に出た粉末を所定量(0.05 g, 0.11 g, 0.13 g)計り、そのまま液体シンチレーター(15ml)と攪拌し試料とした。トリチウムの測定には液体シンチレーションカウンター(アロカ社製LSC-STD-16 RW-0080L-7)を用いた。試料が多数あるため、シンチレーションカウンターに装備されている自動試料交換機構を利用した。これはターンテーブルに試料を載せることにより試料を順次測定し、全試料の測定が終了すると最初の試料から測定を再びはじめる機構である。本報では自動試料交換機構を利用していることから試料毎の測定回数ではなく、シンチレーションカウンターの測定順に全て番号をつけ測定回数とした。なお、測定回数に測定時間を掛けた値はほぼ経過時間に対応する。燃焼法の測定条件は5回の10分間測定を1サイクルとして3サイクル行った。サイクル内の最大値、最小値を除いた値の平均をそのサイクル平均とし、さらにサイクル平均の平均をとり1分間の計数をもとめた。粉末法は1分間測定を2回行いその平均から1分間の計数を求めた。それぞれの計数よりトリチウムの比放射能を求めた。

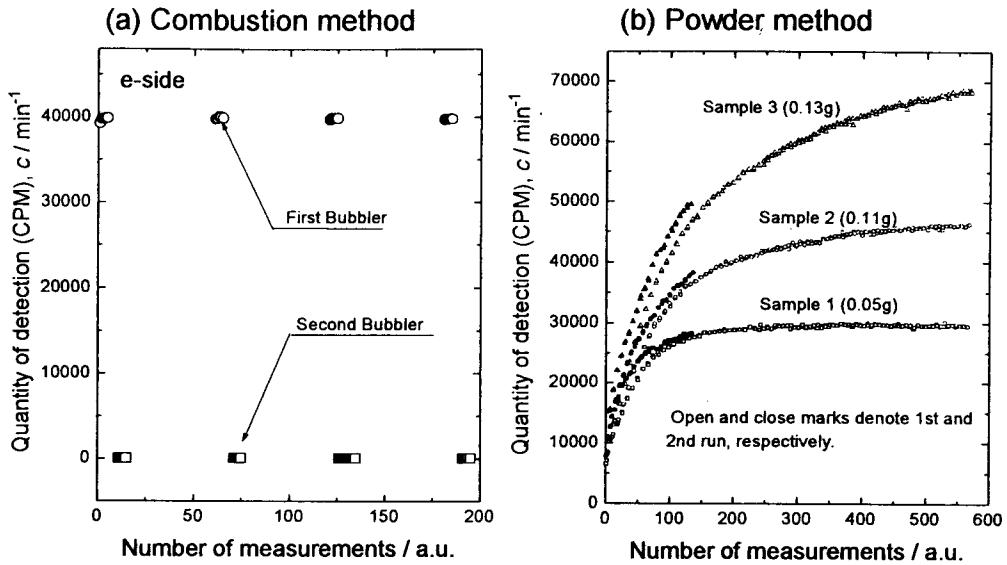


Fig.3. Scintillation counter measurements for e-side and powder samples.

### 3. 結果及び考察

燃焼法で測定したe-side試料の1分間の計数值(CPM)と測定回数との関係をFig. 3(a)に示す。測定点が切れているのは自動試料交換機構によりe-side以外の試料が測定されていたためである。上流側のバブラーは測定回数によらず約40000 CPMのカウンタ数で一定であった。また、下流側のバブラーのカウンタ数は7 CPMであった。よって、下流側のバブラーではバックグラウンド以上の計数は検出されなかった。この事から試料中のトリチウムは上流側のバブラーで完全に捕集されたと言える。トリチウム濃度の算出には上流側のバブラーの値を用いた。燃焼法により測定した結果をTable 1及びFig.4.に示す。最大の放射能を持つ試料はR-Oの試料で398 kBq/gであり、最小はe-sideで87 kBq/gであった。e-sideに比べi-sideに多くの重水素及びリチウムが存在していることが表面分析等の測定により明らかになっている<sup>3,4)</sup>。これはプラズマ材料相互作用の結果である。プラズマ中ではトリチウムも重水素と同様にイオンとして存在しており、e-sideに比べi-sideの放射能が

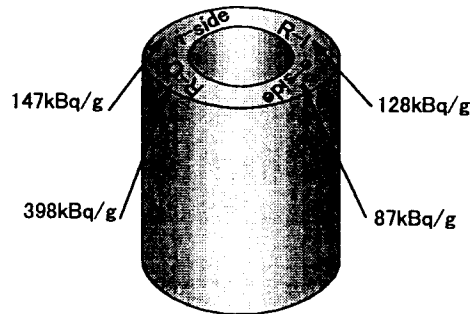


Fig. 4. Quantity of tritium activity in the TFTR deposit probe.

高い結果は表面分析等の結果と一致する。よってプラズマ材料相互作用がトリチウム分布を反映していると考えられる。

粉末法でのCPMと測定回数との関係をFig.3(b)に示す。縦軸は1分間当たりのカウント数、横軸は測定回数を示す。白印は1回目、黒印は1回目測定後、シンチレーターを再攪拌し測定した値である(2回目)。1回目、2回目ともに測定回数が増えるに従いカウント数が上昇し一定の値に近づく傾向が見られた。また、カウント数が一定に達するのに要する測定回数は試料が多いほど必要であった。カウント数の増加の要因としていくつか考えられる。一つは試料よりトリチウムがシンチレーターに溶出することにより検出効率が増加した。あるいは粉末試料である為、当初は攪拌によりシンチレーター光の透過性が失われていたのが、次第に試料の沈殿により回復するため検出効率が上がった事が考えられる。溶出があった場合には1回目の測定に比べ2回目の測定でより多くのカウント数が期待される。これはトリチウムがシンチレーターに溶出することにより燃焼法と同様な均一測定となる為である。よって、試料からシンチレーターへのトリチウムの溶出はほとんどないと結論される。シンチレーションカウンターはβ線によるシンチレーター光を検出し測定する方法であるため、シンチレーター光の透過性が計数効率に大きく影響する。今回、カウンターに試料をいれる直前に攪拌しているため測定初期ではシンチレーター内に均一に粉末が分布しており光の透過性がほとんどなかったと考えられ、測定回数が増えるに従い粉末が沈殿し光の透過性が回復し計数値が上昇したと考えられる。さらに、試料の量が多いほど光の透過性が回復するのに長い時間が必要となると考えられ、試料が多いほどカウント数が定常に達するのに長い時間が必要あり、実験事実と一致する。カウント数の増加の原因は粉末による光の透過性の影響が支配的であると結論される。この事は、試料の量を大量に使用することは望ましくないことを示唆している。このため、沈殿の影響が少なくなったと考えられる測定値がほぼ一定になった後の値を放射能の計算に使用した。その結果をTable 1に示す。比放

Table 1. Tritium activity of TFTR probe.

Method	Combustion Method				Powder method		
	e-side	i-side	R-I	R-O	1	2	3
Name							
Weight (g)	0.0294	0.0255	0.0375	0.027	0.05	0.11	0.13
Activity (kBq/g)	87	147	128	398	65	51	65
Average (kBq/g)	190				61		

射能は65 kBq/gから51 kBq/gの間であった。このばらつきは試料の大きさの不均一性を反映していると考えられる。即ち、粉末の粒子径がβ線の飛程に比べ小さければ内部のトリチウムも測定できるが、粒子径が大きい場合には内部のトリチウムを測ることは出来ないためである。

Table 1及びFig.4.に挙げたように、燃焼法により測定されたトリチウム量は採取位置により5倍程度の違いが見られた。これは先にも述べたように「e-side」と「i-side」のプラズマ材料相互作用の差異によるものと考えられる。粉末法では試料を切り出す際に粉末を用いているために試料全体の平均放射能としてトリチウム量が測定される。燃焼法と粉末法により得られた結果の比較を行うために、燃焼法で求められた比放射能の平均を求め比較を行った。燃焼法により求められた平均の比放射能は190 kBq/gとなる。前に述べたようにトリチウム分布はプローブの場所により違うが粉末法との比較のための平均値である。粉末法により求められた平均の比放射能は61 kBq/gであり、燃焼法により測定を行った方が、約3倍高い事が分かった。燃焼法、粉末法のカウント数の差異の原因としていくつか考えられる。一つはシンチレーター内の試料の分布、またはβ線の飛程と試料径によるものが考えられる。シンチレーターと試料の分布においては、燃焼法ではシンチレーター内に均一に試料が分布しているが、粉末法では固体として底に沈殿している。この違いがカウント数の違いとして表れたと考えられる。他方、β線の飛程と試料径による影響は、粉末内部のトリチウムβ線が試料表面まで透過できず試料により吸収された為、シンチレーション光が発生しないと考えられる。黒鉛中の電子の飛程をFeldmanの式により計算した<sup>6)</sup>。計算式は

$$R = 250 \left( \frac{A}{\rho Z^2} \right) E^n \quad (1)$$

$$n = \frac{1.2}{1 - 0.29 \log Z}$$

R:電子の飛程 (10<sup>-10</sup>m) E:電子のエネルギー (keV) A:原子量 (g・mol<sup>-1</sup>)

ρ:密度 (g・cm<sup>-3</sup>) Z:1原子当たりの電子数

である。電子のエネルギーとしてトリチウムβ線の平均エネルギーである5.6 keV、黒鉛の密度として2 g・cm<sup>-3</sup>を用いた。計算より黒鉛中の飛程は約0.6 μmと求められた。試料粉末を球と仮定し、β線の飛程から計算される測定できる体積と測定できない体積を計算した。直径6 μmの粒径の黒鉛では総量の約50%のトリチウムが測定できると計算される。本結果において粉末法の値は燃焼法の約30%となっており、

試料の直径は約10  $\mu\text{m}$ と予想される。試料粒径が1  $\mu\text{m}$ 程度であれば燃焼法と大きな測定値の違いが出ることはないと予想される。

粉末法に使用した試料は燃焼法試料を切り出した際に生じた粉末を使用しているため、試料自体に比放射能の違いはない。しかし、計数より求めた比放射能には違いが見られた。0.11 gの粉末を用いた測定では他の試料に比べ平均粒径が大きかったと考えられる。0.11 gの測定値は51 kBq/gであり、他の2つの試料の78%の値である。他の2つの試料粒径を10  $\mu\text{m}$ と仮定するなら、0.11 gの平均試料粒径は約13  $\mu\text{m}$ と計算される。

#### 4. まとめ

簡便な黒鉛中のトリチウム測定法として、粉末からのトリチウム $\beta$ 線を液体シンチレーションカウンターにより測定を行い、その結果以下の知見が得られた。

燃焼法に比べ粉末法では計数が小さく出る。この原因はトリチウムの $\beta$ 線の飛程が固体中で短いため、試料内部のトリチウムが計測できないことによる。試料粒径が $\beta$ 線の飛程より十分小さいならば燃焼法と一致すると考えられる。一般に $\beta$ 線の飛程は原子番号の増加とともに短くなるため、原子番号の大きな元素中のトリチウムを粉末法で測定することは難しくなる。

粉末法はシンチレーターと試料粉末を直接混ぜるため、シンチレーター光の透過性が測定に大きく影響する。本法の特徴である、簡便、迅速な測定のためには、沈殿の影響を受ける大量試料の測定は望ましくない。

約10倍の安全係数を考えるならば簡便な放射能管理法として粉末試料をそのまま液体シンチレーションカウンターにより測定する方法は価値があると考えられる。

#### 参考文献

- 1) 宮直之, 正木圭, 富山大学水素同位体機能研究センター研究報告, 16(1996)1.
- 2) Y. Hirooka, A. Pospieszczyk, R. W. Conn, B. Mills, R. E. Nygren, and Y. Ra, J. Vac. Sci. Technol., A7(1989)1070.
- 3) Y. Hirooka, K. Ashida, H. Kugel, M. Bell, M. Hara, S. Luckharbt, M. Matsuyama, D. Mueller, C. Skinner, D. Walsh, W. Wampler, K. Watanabe, "Deposition of lithium on an edge probe in TFTR" presented at the US-Japan Workshop on Plasma-Material Interaction and High-Heat Flux Components, San Francisco, Dec. 8-12th, 1997.

- 4) K. Ashida, Y. Hirooka, K. Watanabe, Ann. Rept. Hydrogen Isot, Res. Center, Toyama Univ., appearing on this volume.
- 5) TFTRでの放電番号, 103067-103070.
- 6) C. Feldman, Phys. Rev., 117(1960)455.