

## 論文

### セラミックス二次電子増倍管へのトリチウムの吸着とその影響

市村 憲司・松山 政夫・渡辺 国昭  
西沢 嘉寿成\*・藤田 順治\*\*

富山大学トリチウム科学センター 富山市五福3190

\*大阪大学工学部原子力工学科

\*\*名古屋大学プラズマ研究所

### Tritium Adsorption and its Effect on Ceramic Secondary Electron Multiplier

K. Ichimura, M. Matsuyama, K. Watanabe, K. Nishizawa and J. Fujita  
Tritium Research Center, Toyama University, Gofuku 3190, Toyama 930, Japan.

\*Faculty of Engineering, Osaka University

\*\*Institute of Plasma Physics, Nagoya University

(Received December 24, 1983)

#### Abstract

To find a means to avoid tritium contamination which affects secondary electron multipliers (SEM), the material used in a marketed ceramic multiplier and the SEM itself were studied with respect to adsorption-desorption behavior and tritium removal.

The tritium adsorbed on the material was desorbed to a large degree as tritiated water and to small extent as tritiated hydrocarbons. The desorption took place at two distinct adsorption/desorption sites. Effective removal from the material was achieved by heating in an inert gas flow at 500°C for 6 hours. However, heating in vacuo and/or in the presence of reactive gases (below  $5 \times 10^{-6}$  Torr) showed insufficient decontamination when Ceratron was used in the ultrahigh vacuum system. This is ascribed to re-adsorption of tritium accumulating on the cold parts of the vacuum system. On the other hand, the photon irradiation showed a substantial decrease in the noise level to its own background. The decontamination was not due to thermal effects, possibly arising from photodesorption and/or photocatalysis. The partial pressure of tritium could be measured with the Ceratron, while reducing the noise level by photon irradiation, with good reproducibility.

## 1 結 言

核融合反応装置には真空計測およびプラズマ診断などのために、多数の二次電子増倍管が取り付けられている。この種の反応装置では現在軽水素あるいは重水素が使われているが、将来はトリチウムを用いた実験が行われる。多量のトリチウムを装置内に導入した場合、吸着トリチウムの $\beta$ 線により二次電子増倍管のノイズレベルが増加し、各種計測に著しい障害となる。したがって、二次電子増倍管および容器壁へのトリチウム吸着の防止技術あるいは吸着トリチウムの除去方法を確立しておく必要がある。

他方、二次電子増倍管により気相のトリチウム圧のみならず固体表面上の吸着トリチウムを測定し得ることが報告されている<sup>1,2)</sup>。したがって、上述の技術が確立できれば、プラズマ診断及び真空計測の障害の克服のみならず、固体表面でのトリチウムの吸着-脱離等の測定に有効な手法となる。

この観点より本研究では、二次電子増倍管として国産（村田製作所）のセラミックス製二次電子増倍管（セラトロン）を取り挙げ、トリチウムガス ( $T_2$ ) 及びトリチウム水 (HTO) の吸着-脱離に伴うバックグラウンドノイズのレベル変動を調べるとともに、吸着トリチウムの除去方法をも検討した<sup>3,4)</sup>。また、得られた除去方法を併用して、セラトロンにより気相トリチウムの分圧測定を行った。

## 2 実 験

### 2-1 原材料ペレットでのトリチウムの吸着-脱離

〔試料〕：セラトロン表面におけるトリチウムの吸着-脱離挙動を原材料ペレットを用いて調べた。試料の大きさは  $10\phi \times 2\text{mm}$  であった。この試料は、原材料をセラトロン作製条件（空气中、 $1350^\circ\text{C}$ ）で焼成したものである。これらは実験に先立ち、走査型電子顕微鏡-EPMA（堀場製作所、EMAX-8700）により表面観察及び元素分析を行い、XPS-SIMS 装置<sup>5)</sup>により表面分析を行った。

〔トリチウムの吸着〕：ペレット試料をパイレックスガラス管に各々一個入れ、パイレックスガラス製真空系に接続した。この真空系は油拡散ポンプにより通常  $1 \times 10^{-6}\text{Torr}$  以下まで排気できる。試料管内を室温で12時間真空排気したのち、ヘリウム希釈したトリチウムガス ( $17\text{Ci/mol He}$ ) を各試料管に  $47\text{ Torr}$  導入した。このときのトリチウム ( $T_2$ ) の分圧は、約  $8 \times 10^{-4}\text{Torr}$  である。試料管を封じ切り、室温で10時間から20日間接触・放置し、使用時にグローブボックス内で窒素ガス雰囲気として開封し用いた。

〔昇温脱離スペクトル〕：トリチウムと接触させた試料を、Fig. 1 の昇温装置の試料セル内に入れ、昇温脱離スペクトルを測定した。昇温速度は  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  とし、脱離トリチウムは比例計数管により測定した。この際、キャリアガスとしてヘリウムを  $40\text{cm}^3/\text{min}$ 、比

例計数管の消滅ガスとしてメタンを  $160\text{cm}^3/\text{min}$  の流量で導入した。昇温前後における試料表面のトリチウム量は、 $2\pi$ -ガスフローカウンターにより測定した。

脱離トリチウムの化学形を同定するために、試料セルと比例計数管の間に液体窒素トラップあるいはモレキュラーシーブカラムを置いて昇温脱離スペクトルを測定した。加えて、真空排気下における質量分析昇温脱離スペクトル測定も行った。この測定にはオイルフリーの超高真空装置に取り付けた磁場偏向型質量分析計を用いた。

〔除染〕：ヘリウムガス流通下における吸着トリチウムの加熱除去を検討した。室温から  $500^\circ\text{C}$  まで  $100^\circ\text{C}$  ごとに6時間あるいは12時間ヘリウムガス流通下におき、各処理後のトリチウム吸着量を  $2\pi$ -ガスフローカウンターにより測定した。

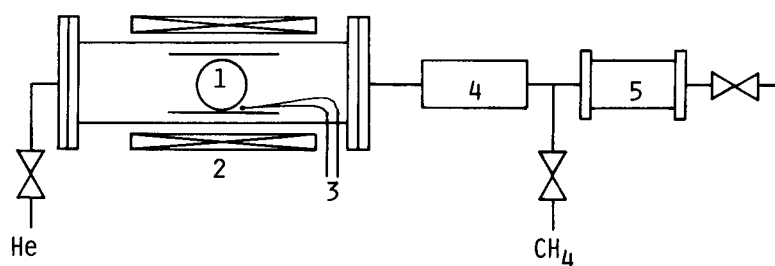


Fig. 1. Schematic diagram of the thermal desorption apparatus  
 1. Sample disc 2. Electric furnace 3. CA thermocouple  
 4. Liq.  $\text{N}_2$  trap or molecular seive column  
 5. Proportional counter

## 2-2 トリチウム水吸着による計数率変化と除染

初めに、セラトロン表面及び装置容器壁に吸着したトリチウムの影響を、比較的吸着し易いトリチウム水について調べた。

〔試料〕：試料としてセラトロン(村田製作所, EMS-1081B 及び EMS-6081B)を用いた。これらをステンレス製超高真空装置に Fig. 2 のように取り付けた。この超高真空装置はオイルフリーで、クライオポンプ及びターボ分子ポンプにより通常  $1 \times 10^{-9}$  Torr 以下に排気できる。EMS-1081B (セラトロンA) は通常の方法で装着し、EMS-6081B (セラトロンB) は壁の見込み角を小さくする目的でコーン部を Au 板 (0.1mm 厚) で覆った。ただし、両セラトロンのパルス計数性能、利得-印加電圧特性は全く等しい。

〔トリチウム水の吸着〕：バリアブルリークバルブからトリチウム水 (HTO) 濃度が  $5 \sim 20 \text{ pci}/\text{cm}^3$  の空気を導入し、室温で12時間接触・放置した。なお、このときのトリチウム水の分圧は、 $2.5 \times 10^{-9} \sim 1 \times 10^{-8}$  Torr に相当する。

〔計数率測定及び除染〕：室温における真空排気、加熱排気及び反応性気体流通下での加熱排気後におけるセラトロンのノイズレベル変動を測定した。なお、この測定は各々の処理後室温で  $+3.5\text{KV}$  の印加電圧下で行った。

次に、非熱的な光照射によるトリチウム除去を検討した。この測定には Fig. 3 に示すような装置を用い、光源としてのハロゲンランプ (OSRAM, HALOGEN-BELLAPHOTO 64663, 400W) 及びセラトロン (EMS-1081B) を取り付け、光照射によるセラトロンのノイズレベル変動を+3.5KV の印加電圧下で調べた。セラトロン温度は、コーン部支柱絶縁子に取り付けた W-W/Re 熱電対により測定した。また、このときの容器内壁は、蒸着法により Au コーティングを施した。

なお、光照射除染の検討に際しては、接触方法は上述と同様であるが、トリチウム水濃度を  $8\text{PCi/cm}^3$  (HTO 分圧 $\sim 3\times 10^{-9}\text{Torr}$ ) とした。

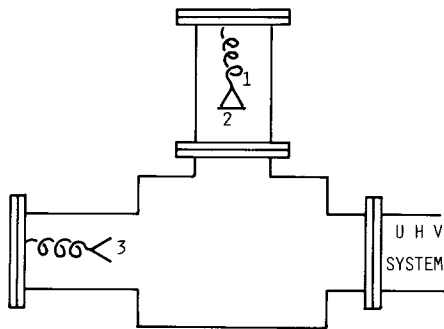


Fig. 2. Schematic diagram of the apparatus for thermal decontamination

1. Ceratron B(EMS-6081B)
2. Au sheet
3. Ceratron A(EMS-1081B)

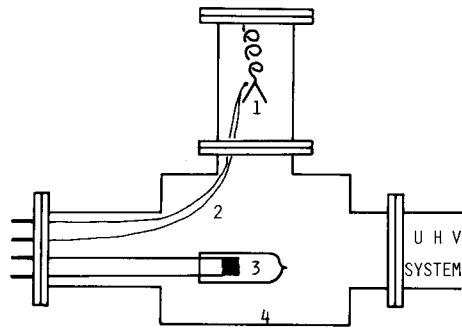


Fig. 3. Schematic diagram of the apparatus for photon-induced decontamination

1. Ceratron (EMS-1081B)
2. W-W/Re thermocouple
3. Halogen lamp
4. Au evaporated film

### 2-3 トリチウム分圧の測定

光照射による除染方法を併用したトリチウム分圧測定用のセラトロンを、Fig. 4 のように超高真空装置内に取り付けた。使用したセラトロンは EMS-1081B であり、温度はコーン部支柱絶縁子に取り付けた CA 熱電対により測定した。

トリチウム (HT) を吸蔵させた Zr-V-Fe ゲッター管を所定温度に加熱し、系内に  $1\times 10^{-8}\sim 1\times 10^{-5}$  Torr のトリチウムをパルス状に導入した。トリチウム分圧を磁場偏向型質量分析器 (VG-Gas Analysis, MM 6) で測定し、その時のセラトロン計数率を Malinovski<sup>1)</sup> と同様の条件、-3.5KV、で測定した。このとき、トリチウム分圧に対する計数率及び接触に伴うノイズレベルの各変化を調べた。

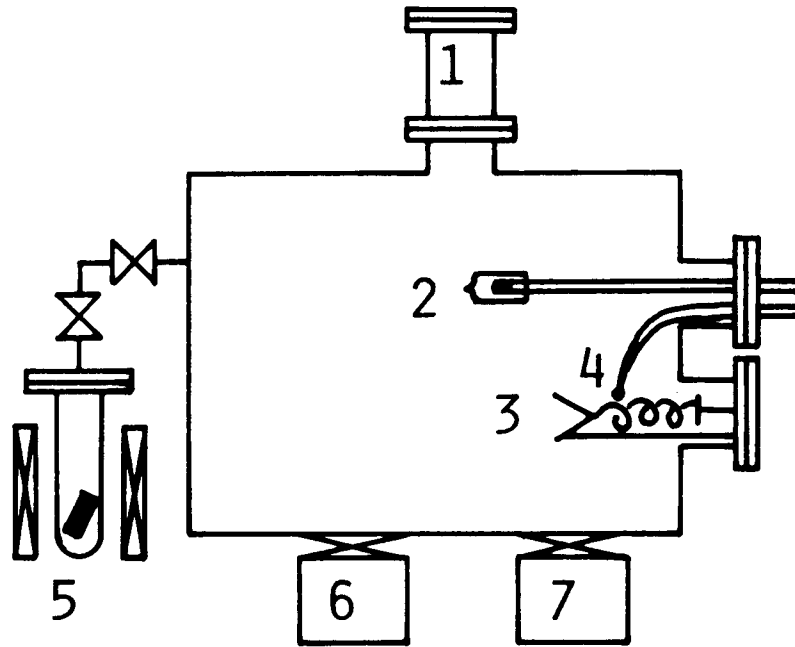


Fig. 4. Schematic diagram of the apparatus for tritium partial pressure measurement

1. MM6 Mass analyzer
2. Halogen lamp
3. Ceratron
4. CA thermocouple
5. Zr-V-Fe getter
6. Cryogenic pump
7. Turbomolecular pump

### 3 結果と考察

#### 3-1 原材料ペレットでのトリチウムの吸着-脱離

〔表面測定〕：走査型電子顕微鏡-EPMAにより、セラトロン原材料ペレットの表面は比較的平滑で稠密な構造であること、及びZnとTiが主成分であることが知られた。

次にXPS-SIMSにより表面分析を行った。Fig. 5はXPSの広領域スペクトルを示しており、ZnとTiが主成分であることが確認された。しかし、入手状態のペレット表面には、C1sのピーク強度が大きいことから多量の炭素が吸着していることが見出された。さらに、O1sの狭領域スペクトルを測定して、酸素の状態分析を行なった結果を、Fig. 6に示す。530eV付近に主ピークが存在し、532eV付近にショルダーが現われている。O1sスペクトルのCu<sub>2</sub>O、CuO及びNiOに関する研究<sup>9</sup>から、530eV付近のピークは酸化物格子酸素O<sup>2-</sup>、532eV付近は吸着酸素種と帰属されている。したがって、試料表面は酸化物格子酸素の他に、O<sub>2</sub>、CO及びCO<sub>2</sub>のような吸着酸素種が存在することが知られた。

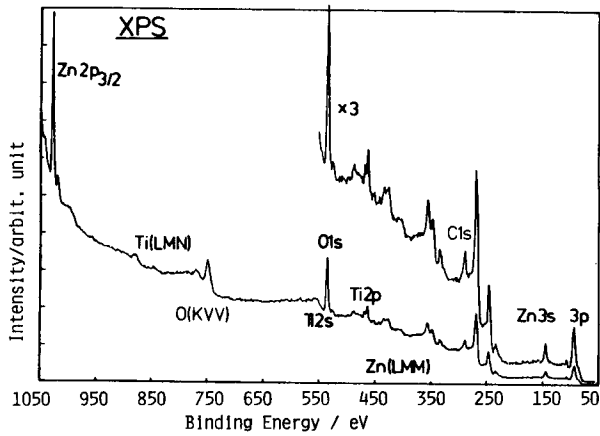


Fig. 5. XPS spectrum of the as-received Ceratron disc

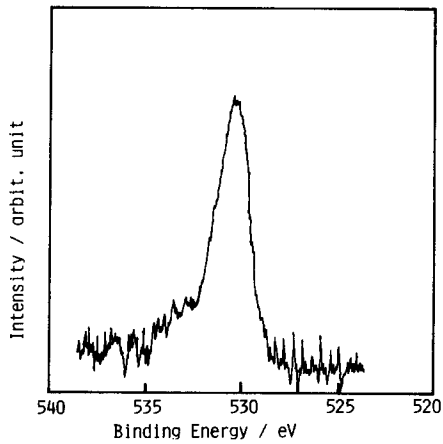


Fig. 6. O1s spectrum of the as-received Ceratron disc

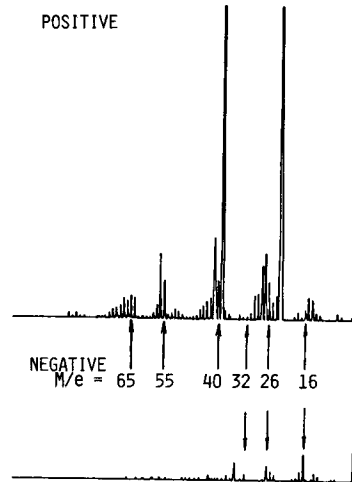


Fig. 7. Positive and negative SIMS spectra of the as-received Ceratron disc

表面の吸着炭素種の分析は、感度の高いSIMSにより調べた。 $1 \times 10^{-8}$  Torr で5KVに加速された $\text{Ar}^+$ をプローブとして、正負両イオンを分析した結果をFig. 7に示す。正イオンスペクトルは $M/e$ が12~15, 24~31, 41~46, 50~58, 及び65~70の領域に有機化合物と思われるスペクトルが見出されるとともに、負イオンスペクトルにおいては $\text{OH}^-$  ( $M/e=17$ ) 及び $\text{O}^-$  ( $M/e=16$ ) ピークが観測された。しかし、スペクトルが複雑なために有機化合物の同定は困難であった。

以上の表面分析測定の結果は、セラトロン表面は、入手したものを室温で真空排気した状態では、吸着酸素種及び有機化合物の被覆率が数十パーセント程度となっていることを示している。

〔昇温脱離スペクトル〕：このような表面状態にあるセラトロンペレットにトリチウムガスを接触させたときの昇温脱離スペクトルの一例を Fig. 8 に示す。このとき、脱離トリチウムは直接計数管へ導入している。吸着トリチウムは 100°C 付近から脱離し始め、約 430°C に主ピークを示し、次いで 900°C 付近にショルダーを形成して徐々に脱離速度が減少した。しかし、試料温度が室温となっても計数率はゆっくりと減少し続け、24 時間後にはじめて 40 count/6 sec の一定値となった。このテイリングは初期のバックグラウンド値が 10 count/6 sec であったことより、脱離トリチウムによる比例計数管の汚染に基づく現象といえる。

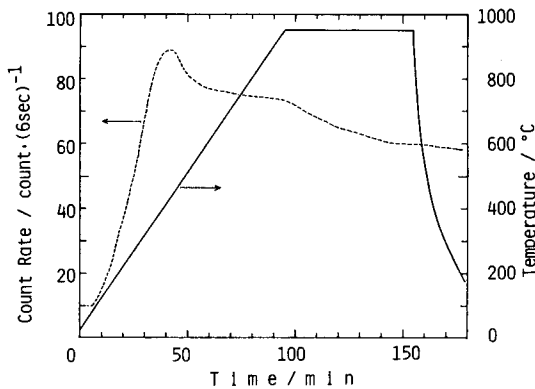


Fig. 8. Desorption spectrum of tritium adsorbed on the disc

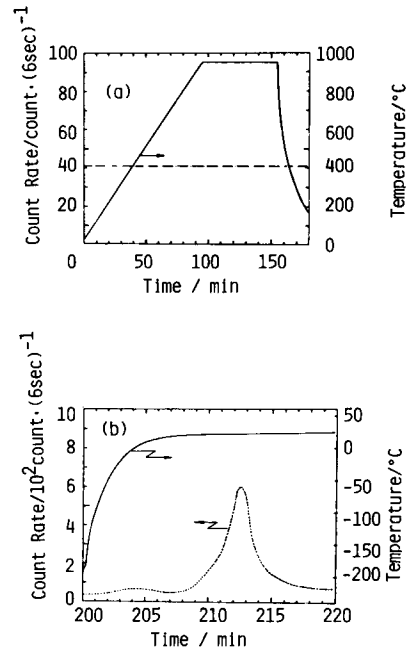


Fig. 9. (a) Desorption spectrum of tritium adsorbed on the disc  
(b) Evaporation spectrum of tritium condensed in the cold trap

次に、試料セルと比例計数管の間に液体窒素トラップを設け、同様のモードで試料を昇温した結果を Fig. 9(a) に示す。このときには、計数率は 40 count/6 sec と一定であり、吸着トリチウムの大部分は液体窒素温度で凝縮性の気体として脱離していることを示している。昇温後液体窒素デューワーを外し、トラップ温度を室温に戻したとき、トラップに凝縮していたトリチウム化合物は Fig. 9(b) のように脱離した。4°Cに相当する204~205分後に小さなピーク、213~215分後(22°C)に比較的鋭いピークが観測された。ピーク面積から、後者のピークが全脱離量の97%を占めていることがわかった。

液体窒素トラップに替えて、モレキュラーシーブカラムを室温で使用したときにも Fig. 9(a) と同じ結果が得られた。これらの結果は、セラトロンペレットから脱離するトリチウムの大部分がトリチウム水の化学形であることを示している。

Fig. 10 は入手状態の試料で得られた質量数(M/e) 18, 28, 30及び44についての質量分析昇温脱離スペクトルである。最も脱離量の多い吸着種は M/e=18 であり、主ピークは約350°Cに現われた。この図には示していないが、M/e=16, 17及び18のピーク高さ比が水のクラッキングパターン<sup>7)</sup>と一致していることから、脱離種は水であると結論できる。M/e=28 及び44は CO と CO<sub>2</sub> によるものである。M/e=30 は、質量分析スペクトル中に C<sub>1</sub>, C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub> グループが同時に現われていることより、有機化合物と考えられる。ただし、その化学種の同定は困難であった。Fig. 10 より、入手状態の試料表面からの脱離種の大部分が水であり、その他に少量の有機化合物の脱離があることが知られる。また、同図のスペクトル (M/e=18, 28, 30及び44) には350~450及び800~900°Cにピーク及びショルダーが見られ、概して Fig. 8 のスペクトルとよく似ている。したがって、Fig. 8 のショルダーはこれに相当するものと考えられる。

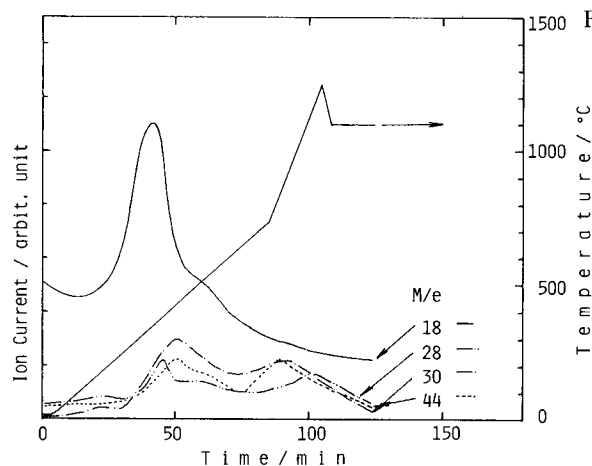


Fig. 10. Mass analyzed desorption spectra of the as-received disc



さらに、室温でトリチウム水と接触させたペレットからのトリチウム水は室温付近で脱離したので、上記で観測された脱離種は物理吸着水ではないといえる。

EPMA, XPS-SIMS 測定によれば、主成分は Zn O 及び TiO<sub>2</sub> あるいはそれらの複合酸化物であり、入手状態の試料表面には過剰酸素及び有機化合物が存在していた。これらの表面吸着種は室温において格子金属イオン及び酸素イオンと同様に水素の結合サイトとなる。酸化物表面に吸着した水素が昇温時に水として脱離すること<sup>8)</sup>、酸化物触媒が比較的低温で水素と炭化水素との間の水素交換反応を進行させること<sup>9)</sup>が報告されている。また、炭化水素は昇温時にそれ自身あるいは分解反応の後脱離する<sup>10)</sup>。

以上のことを考慮すると、吸着トリチウムは大部分表面過剰酸素と結合してトリチウム水として、また、その内の少量が炭化水素種との間で水素交換反応の進行に伴い脱離するものと考えられる。さらに、Fig. 8 及び10に主ピークとショルダーが現われるのは、Ti イオン及び Zn イオンあるいは複合酸化物に基づき試料表面に二種類の吸着-サイトが存在することを示唆している。

〔除染〕: Fig. 11 は、室温で 47 Torr のヘリウム希釈トリチウムと10日間接触させたペレットを He 流通下で熱処理したのちの表面に残存するトリチウム量を 2 $\pi$ -ガスフローカウンターにより測定した結果の一例である。図の横軸は He 流通下で6時間の熱処理を行った温度を表わしている。接触直後の計数率は  $1 \times 10^4$  cps ( $6 \times 10^5$  cpm) であったが、処理温度を上げるに伴い計数率が急激に減少し、500°C においては 2 $\pi$ -ガスフローカウンターのバックグラウンド値 (2 cps) と同程度の値となりほぼ完全に吸着トリチウムが脱離したことが知られた。

この結果は、より長時間の熱処理により、さらに低温で除染できることを示唆している。

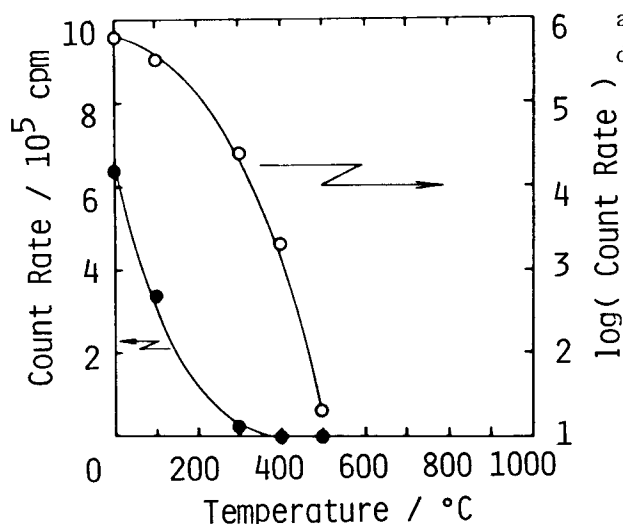


Fig. 11. Decrease in the amount of adsorbed tritium with heating of the disc in He flow

## 3-2 トリチウム水吸着による計数率変化と除染

Table 1 はセラトロン (EMS-1081B 及び EMS-6081B) を  $20 \text{ PCi/cm}^3$  のトリチウム水と12時間接触させ、排気あるいは種々の条件で加熱排気したのちの計数率をまとめたものである。なお、計数率はいずれも室温で測定した。室温排気直後の計数率は約  $10^5 \text{ cps}$  と計数限界に近い著しく大きい値を示した。真空加熱排気あるいは反応性気体導入下での加熱排気でも同程度の値であった。しかし、CO存在下での  $300^\circ\text{C}$  の加熱排気中に測定した計数率は、EMS-1081B 及び EMS-6081B で各々初期値の百分の一及び千分の一に減少した。このことは、処理中に増倍管及び容器壁で部分的除染が進行していることを示している。事実、気相の質量分析を行ったところ、 $300^\circ\text{C}$  でCOとの接触時に、トリチウム水 (HTO) が減少し、他方 HT が生成・増加したが、30分後には両ピークは測定限界 ( $10^{-11} \text{ Torr}$ ) 以下の分圧となり消失した (Fig. 12)。この結果から、昇温に伴う脱離の他に水性ガス反応 ( $\text{CO} + \text{HTO} \rightarrow \text{HT} + \text{CO}_2$ ) が進行することにより、セラトロンの計数率が減少し、部分的に吸着トリチウムが除去されていることが知られる。この部分除去は、 $\text{D}_2$  あるいは  $\text{C}_2\text{H}_4$  のような反応性気体存在下での加熱排気によっても進行した。

部分的な吸着トリチウムの除去が進行しているにもかかわらず各種の真空加熱排気後の室温での高い計数率は、加熱により脱離したトリチウムが真空容器の冷部位へ移動・吸着し、室温に放冷するとき再び脱離し、増倍管及び器壁表面へ再吸着することによると考えられる。

また、金板でコーン部を覆った EMS-6081B より開放型の EMS-1081B の計数率の方が約1桁大きい値を示したことから、容器壁表面の吸着トリチウムが増倍管の計数率に与える影響が非常に大きいことが知られる。これらの結果は、先の He 流通下の熱処理とは異なり、真空条件下での熱処理はセラトロン及び器壁表面の吸着トリチウム除去に有効な手段ではないことを示している。

	Count Rate / $10^5 \text{ cps}$	
	A(EMS-1081B)	B(EMS-6081B)
Evacuation ( $20^\circ\text{C}$ , 24h)	6.6	0.80
Heating in vacuo ( $300^\circ\text{C}$ , 24h)	6.6	0.37
$\text{D}_2$ exposure ( $4 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ ) ( $300^\circ\text{C}$ , 12h)	6.6	0.46
CO exposure ( $1 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ ) ( $300^\circ\text{C}$ , 12h)	6.2	0.30
*During the CO exposure	0.18	0.0019

Table 1. Changes in the count rates of Ceratron with various heat treatments

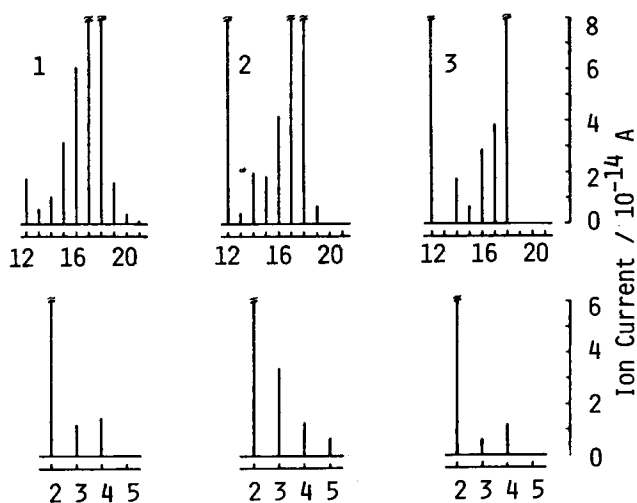


Fig. 12. Changes in mass spectra before and during heat treatment with CO  
1. before 2. 10 min after 3. 30 min after

上記の方法に代わるものとして、非熱的な光照射による除染を検討した。まず、Fig. 3 のように取り付けられたセラトロンに  $8 \text{ pCi/cm}^3$  のトリチウム水を12時間接触させた。これを室温排気した直後では、計数率は約  $10^4 \text{ cps}$  であったが、これに光照射すると計数率は急激に低下し、ついにはセラトロン自体のバックグラウンドレベル ( $10^{-2} \text{ cps}$ ) 近くまで減少することが見出された。

ハロゲンランプ光の光加熱に伴うパルス計数性能の変化の有無を調べるため、マルチチャンネルアナライザー (CANBERRA, SERIES 35) により光照射前後の波高分析 (PHD) を行った。結果を Fig. 13 に示す。PHD スペクトルは光照射前後でいずれも類似しており、パルス計数性能に変化がないことを示している。また、光照射前の計数率は  $1.4 \times 10^4 \text{ cps}$ 、照射後15分経過したのちには  $47 \text{ cps}$ 、さらに30分経過したのちでは  $5 \text{ cps}$  に減少していることがわかる。なお、50分以上あとでは、ノイズレベルは  $10^{-2} \text{ cps}$  程度となったが、計数率が小さく PHD 測定は困難であった。

なお、光照射下ではセラトロン温度は光照射後約5分間は室温、10分後には約  $90^\circ\text{C}$  の一定温度となったが、加熱のみでは有効なトリチウム除去ができなかったことを考慮すると、光照射による著しい計数率の減少は熱的效果によるものではないと考えられる。

Ternin と Solonitzin 等により金属及び金属酸化物表面での光脱離が  $\text{CO}$ 、 $\text{O}_2$  及び  $\text{H}_2\text{O}$  について認められており<sup>11)~13)</sup>、このときの照射光子エネルギーは数 eV である。本研究で使用したオスラムランプは  $2.5\sim 4\text{eV}$  の領域の光を放射することから、セラトロン及び Au コーティングを施した器壁表面上に吸着したトリチウム水を光脱離させ得るエネルギーを有している。

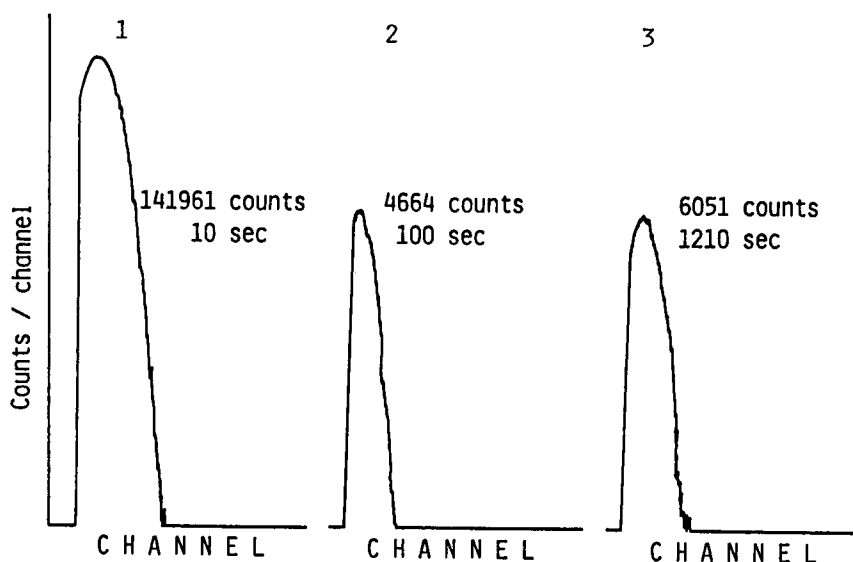


Fig. 13. Changes in the pulse height distributions with photon irradiation

1. after exposure
2. 15 min after lamp-ON
3. 30 min after lamp-ON

また、金属酸化物をはじめとした半導体の水分解反応への光触媒作用も多く報告されている<sup>14)</sup>。セラトロンは ZnO 及び TiO<sub>2</sub> あるいはそれらの複合酸化物であり、原子価帯と伝導帯間のバンドギャップは TiO<sub>2</sub> で 3.1 eV, ZnO で 3.2eV と見積られている<sup>14)</sup>。したがって、ハロゲンランプ光 (2.5~4.0eV) で水の分解触媒反応が充分進行し得る。以上のことから、光照射によるトリチウム水の除去は、光脱離あるいは光触媒作用に基づくものと結論される。

### 3-3 トリチウム分圧の測定

Fig. 4 の装置を使用したトリチウム分圧の測定結果の一例を、Fig. 14 及び Fig. 15 に示す。

Fig. 14 は、(A)ノイズレベルの変動、及び(B)Zr-V-Fe ゲッターより系内に HT をパルス状 (\*印) に導入したときのセラトロン計数率の変化を模式的に表わしている。図中(A)に示したように、装置系内の残留トリチウムによる初期のノイズレベルは  $1.3 \times 10^3$  cps であったが、30分間の光照射により  $1.2 \times 10^2$  cps となった。なお、6時間以上の光照射を行うことにより、1.3 cps が到達ノイズレベル値として得られた。図中(B)に示したように、ノイズレベルが  $1.2 \times 10^2$  cps, 54W の光照射という条件で HT をパルス状に導入したとき、後のレベルとパルス状高さとの差を正味の計数率とした。

このような測定方法で得られた結果を、Fig. 15 に示す。横軸は導入した HT の T<sub>2</sub> 換算

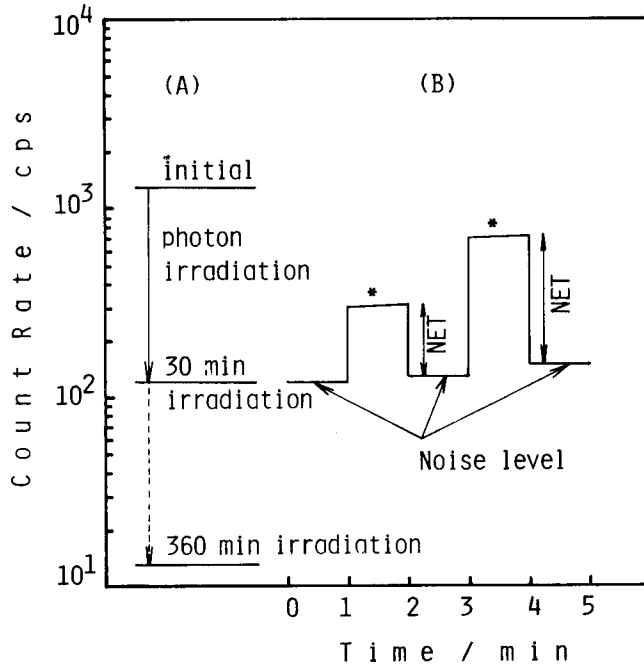


Fig. 14. Decrease in the noise level and schematic time-course of changes in count rate

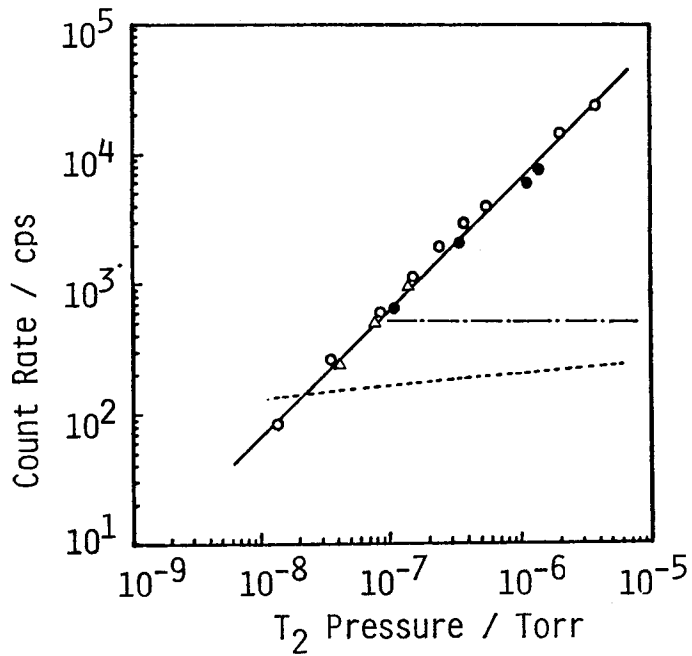


Fig. 15. Tritium partial pressure measurement by Ceratron

分圧、縦軸はそのときの正味の計数率をプロットしたものと及びノイズレベルの変動を表わしている。すなわち54Wの照射射下で、HTを導入したときの正味の計数率を○印で、ノイズレベルの変動を点線で示す。この後、照射射をやめ放置すると、一点又線の左端の値(500 cps)のノイズレベルとなった。これは、装置系内において、セラトロン表面及び器壁と気相間でトリチウムの吸着-脱離平衡が成立したことによる。このとき照射射なしで、再びHTを導入したときの正味の計数率を●印、ノイズレベル変動を一点又線で示している。その後、再度照射射を行いノイズレベルを120 cpsとして54Wの照射射下で得られた正味の計数率を△印で示す。図のように、再現性よくトリチウムの分圧測定ができることが知られた。また、このときの感度(計数率/ $T_2$ 分圧)は、Malinovski<sup>1)</sup>の結果とほぼ同程度であった。

この結果得られた分圧測定における感度は  $1 \times 10^{-6}$  Torr で  $6 \times 10^3$  cps であり、

$$R = 6.3 \times 10^9 P$$

の関係を得た。ここで、Rはセラトロンの正味の計数率、Pはトリチウム( $T_2$ )の分圧を示している。セラトロンのコーン部の見込み角と取り付け容器の大きさ及び形状から、計数空間は約6ℓである。この空間の  $1 \times 10^{-6}$  Torr のトリチウム崩壊数として約  $2 \times 10^6$  cpsの値を得る。したがって、ここでの実験条件下での計数効率、約  $3 \times 10^{-3}$  となる。この値は、この系でトリチウムがセラトロンより10cm離れた位置に点線源があるとした場合のセラトロン立体角を考慮したときの計数効率と同程度の値となっている。

また、気相のトリチウム分圧を+3.5KVの印加電圧下で行ったときも測定できることが知られたが、ノイズレベルも1桁大きく測定領域あるいは精度に障害となった。しかし、このことは器壁表面の影響を負の印加電圧とすることにより、セラトロンのバックグラウンドを下げるのが可能であることを示している。

ここでの実験条件下で照射射を行った際、バックグラウンドが120 cpsであり前述の照射射除去に比べて高いノイズレベルであった理由は、3-2で記述した実験系と異なり器壁表面がAuコーティングを施していないステンレスであること、及びセラトロンの見込む器壁表面積が増加したことによるとともに、照射射量が低下してトリチウム除去効率が減少したことによる。ちなみに、前述の照射射除去時では90°Cであったのに対し、ここでのセラトロン温度は50°Cであった。

以上のように、トリチウム( $T_2$ )はHe流通下で500°Cで6時間の熱処理によりほぼ完全に除去できるが、真空容器系では熱処理がトリチウム除去に有効な手段とならないこと、及びトリチウム水は照射射により効率よく除去できることが知られた。また、照射射によるトリチウム除去法を併用したセラトロンにより、再現性の良いトリチウム分圧の測定が広い圧力範囲において可能であることを示した。

セラトロンペレット試料を提供していただいた山本宏氏（村田製作所）にここに深く感謝致します。また、本研究は一部文部省科学研究費エネルギー特別（核融合）の補助を受けて行われた。

## References

- 1) M.E.Malinovski, J. Nucl. Mater., **93/94**, 96(1980).
- 2) M.E.Malinovski, Appl. Phys. Letters, **39**, 509(1980).
- 3) K.Ichimura, M.Matsuyama and K.Watanabe, J. Nucl. Sci. Technol., **21**, 56(1984).
- 4) K.Ichimura, K.Watanabe, K.Nishizawa, and J.Fujita, Nucl. Instruments and Methods, in press.
- 5) K.Ashida, K.Ichimura, M.Matsuyama, H.Miyake, and K.Watanabe, J. Nucl. Mater., **111/112**, 769(1982).
- 6) for example ; T.Robert, M.Bartel and G.Offergeld, Surface Sci., **23**, 123(1972).
- 7) E.Stenhagen, S.Abrahamsson and F.W.Maclafferty, "Atlas of Mass Spectral Data I.", Interscience Pub., (1969).
- 8) M.Iwamoto, Y.Yoda, N.Yamazoe, and T.Seiyama, Bull. Chem. Soc. Japan, **51**, 2765(1978).
- 9) T.Okuhara, T.Kondo and K.Tanaka, J. Phys. Chem., **81**, 808(1977).
- 10) H.H.Voge, "Catalysis" (P.H.Emmet, ed.), Reinhold, New York, **6**, 407(1958).
- 11) A.Ternin and Yu Solonitzin, Disc. Faraday Soc., **28**, 28(1959).
- 12) D.Menzel, "Topics in Applied Physics Vol.4" (R.Gomer,ed.), Springer-Verlag, Berlin, New York(1975), p. 135.
- 13) P.A.Ledhead, J.P.Hobson and E.V.Kornelson, "The Physical Basis of Ultrahigh Vacuum", Chapter 5.2.
- 14) for example ; H.P.Maruska and A.K.Ghosh, Solar Energy, **20**, 443(1978).