

## 論文

### スピニングローターゲージによるトリチウムガス及び 水素同位体混合気体の絶対圧測定

三宅 均・松山 政夫・渡辺 国昭

富山大学トリチウム科学センター  
〒930 富山市五福3190

### Pressure Measurement of Tritium Gas and Gas Mixtures of Hydrogen Isotopes by the Spinning Rotor Gauge

Hitoshi MIYAKE, Masao MATSUYAMA,  
and Kuniaki WATANABE

Tritium Research Center, Toyama University,  
Gofuku 3190, Toyama 930, Japan.

(Received December 25, 1987)

#### Abstract

To understand the compatibility of the spinning rotor gauge with tritium handling during fusion experiments, tritium gas and/or gas mixtures of hydrogen isotopes were measured with the spinning rotor gauge in pressure ranges of  $10^{-5}$  to 10Pa.

It was observed that it is possible to determine the absolute pressure of tritium gas and/or gas mixtures of hydrogen isotopes within several percent error as well as determining the absolute pressure of pure gas by using the mole fraction of the component gases in the mixture. Additionally, it was found that the sensitivity and the offset value do not change with a tritium exposure amounting to  $1.9 \times 10^5$  Pa·s. Therefore, we concluded that the spinning rotor gauge is free from any tritium  $\beta$ -ray effects. From this result, it was concluded that a spinning rotor gauge is quite useful to tritium handling systems, including thermonuclear fusion devices, as a transfer standard and/or absolute pressure gauge.

## 1. 緒 言

核融合反応装置をはじめとするトリチウム取扱用真空装置ではトリチウム圧の測定のために多くの真空計が必要とされる<sup>1)</sup>。高真空領域における全圧計としては従来より電離真空計が用いられてきたが、電離真空計は気体の種類により感度が異なるため、あらかじめ校正用真空計を用いて使用気体の感度を求めておく必要がある。そのための校正用真空計として一般的に隔膜真空計が利用されているが、隔膜真空計は  $10^{-3}$  Pa 以下では  $\pm 20\%$  以上の誤差を生じるため、これ以下の圧力領域での利用は困難である。また、ある種の隔膜真空計ではトリチウムによる汚染の影響が報告されており<sup>2)</sup>、圧力測定精度の長期安定製にも問題がある。これらのことから、トリチウム取扱用真空装置においては隔膜真空計に代わる校正用真空計を得る必要がある。

スピニングローターゲージ（以後 SRG と略）は鋼鉄球（ローター）を磁気浮上させた状態で回転させ、その自由回転時の速度の減衰率から圧力を計測する粘性真空計である<sup>3-5)</sup>。この真空計は  $10^{-5}$  Pa から  $10^5$  Pa までの広い圧力範囲で使用できる<sup>5)</sup>、感度が理論的に計算できるため絶対圧を測定できる<sup>7,8)</sup>、感度の長期安定性にすぐれている<sup>6)</sup>、構造が簡単でセンサー部はメンテナンスフリーである、センサー部の容積が 5 cc と小さくトリチウムの使用量の限られた装置では有利であることなどの特長を有している。これらのことから、SRG はトリチウム圧測定用真空計及びその校正用真空計として有効であると考えられる。しかし、実際に SRG を用いてトリチウム圧を測定した例はなく、トリチウムによる  $\beta$  線の影響の有無を実験的に検討した例はない。また、核融合燃料としては重水素及びトリチウムの混合気体を用いられるが、理論的にはこれらの混合気体の絶対圧も SRG で測定可能であるとされている<sup>6)</sup>。しかしながら、SRG を用いて実際に混合気体の圧力を測定した報告例はない。以上の観点から筆者らは、トリチウム及び数種の混合気体について SRG の特性を評価し、その有用性を検討した。

## 2. SRG の原理

分子流領域では分子量  $M$  の気体の圧力  $P$  は SRG のローターの自由回転速度の減衰率  $(-\dot{\omega}/\omega)$  と以下の関係にある<sup>4,11)</sup>。

$$P = D\sigma\sqrt{2\pi R_0 T/M}(-\dot{\omega}/\omega)/10\sigma - [\text{OFS}] \dots\dots\dots(1)$$

$$[\text{OFS}] = D\rho\sqrt{2\pi R_0 T/M}(-\dot{\omega}/\omega)_0/10\sigma \dots\dots\dots(2)$$

ここで、 $\sigma$  は気体の運動量の適応係数、 $D$  及び  $\rho$  はローターの直径と密度、 $R_0$  は気体定数、 $T$  は温度を示す。[OFS] はオフセット値であり、ここでは渦電流などの気体衝突以外の現象に起因するローターの回転速度の減衰率と真空装置の残留気体によるローターの回転速度の減衰率を合わせたものを示す。一方、混合気体では各々の気体に化学反応などの相互

作用がなければ、SRG のローターの回転速度の減衰率は

$$(-\dot{\omega}/\omega) = \sum^i (-\dot{\omega}/\omega)_i \dots\dots\dots(3)$$

と示される。ここで、 $(-\dot{\omega}/\omega)_i$  は気体  $i$  によるローターの回転速度の減衰率である。(1)式を用いて、(3)式を表すと、

$$\sigma^* \sqrt{M^*} = \sum^i X_i \sigma_i \sqrt{M_i} \dots\dots\dots(4)$$

となる。ここで、 $\sigma^*$  及び  $M^*$  は混合気体のみかけの適応係数及びみかけの分子量を示し、 $\sigma_i$  及び  $M_i$  は気体  $i$  の適応係数および分子量を示す。また  $X_i$  は気体  $i$  のモル分率を示す。分子流領域における気体の適応係数は気体の種類に関係なく、ほぼ一定である ( $\sigma^* = \sigma_i$ ) ことが知られている<sup>7)</sup> ので、

$$\sqrt{M^*} = \sum^i X_i \sqrt{M_i} \dots\dots\dots(5)$$

となる。したがって、混合気体成分のモル分率から混合気体のみかけの分子量  $M^*$  を求めることができ、この  $M^*$  を用いることにより混合気体の絶対圧を SRG で測定することが可能となる。

### 3. 実 験

#### 3-1

用いた装置の概略を Fig. 1 に示す。本装置はステンレス製で、排気系は水銀拡散ポンプ

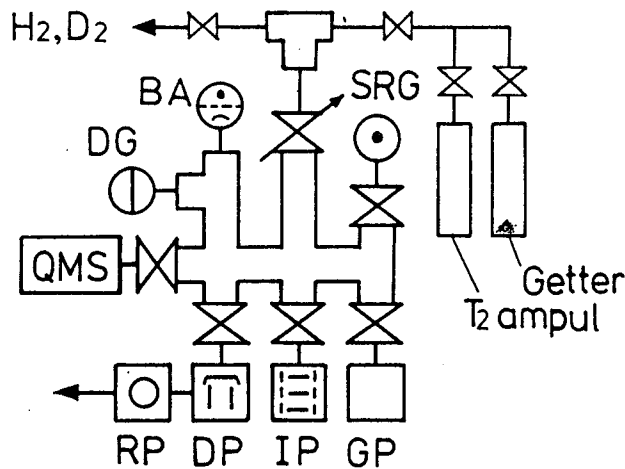


Fig. 1. Experimental apparatus: SRG: spinning rotor gauge, BA: Bayard-Alpert gauge, DG: diaphragm gauge, QMS: quadrupole mass spectrometer, GP: bulk getter pump, IP: sputter ion pump, DP: mercury diffusion pump and RP: oil-sealed rotary pump.

及びスパッターイオンポンプよりなり、残留ガス圧は  $2 \times 10^{-6} \text{Pa}$  である。使用した SRG は MKS 社製 SRG-2 である。この SRG のローターはメーカーにより既に校正されているもので、その直径は 4.5mm、密度は  $7.79 \text{g/cm}^3$  及びアルゴンに対する適応係数  $\sigma$  は 1.0243 である。SRG の指示値の比較用真空計として、B-A 型電離真空計（アネルバ社製 UGS-1A）及び隔膜真空計（MKS 社製バラトロン、315BA-00001）を用いた。隔膜真空計のセンサーヘッド部は室温変動の影響を避けるために  $46 \pm 0.1^\circ \text{C}$  に保たれている。したがって隔膜真空計の指示値には熱遷移の補正 ( $P_1/P_2 = \sqrt{T_1/T_2}$ ) を行った。混合気体のモル分率の測定にはあらかじめ感度校正された四重極質量分析計（ULVAC 社製 MSQ-150A）を用いた<sup>9)</sup>。なお、ここで用いた B-A 型電離真空計も別の方法で既に校正済みのものである<sup>9)</sup>。

### 3-2 試料気体

用いた気体は軽水素 ( $\text{H}_2$ )、重水素 ( $\text{D}_2$ )、トリチウム ( $\text{T}_2$ )、窒素 ( $\text{N}_2$ )、ヘリウム ( $\text{He}$ ) 及びアルゴン ( $\text{Ar}$ ) である。トリチウムは NEN 社製 5 Ci ガラスアンプル入りのものを、あらかじめ Zr-V-Fe ゲッターで精製した後に用いた<sup>10)</sup>。そのほかの気体は日本酸素(株)社製で、各々の純度は、99.999% ( $\text{H}_2$ )、99% ( $\text{D}_2$ )、99.99% ( $\text{N}_2$ ,  $\text{He}$ ,  $\text{Ar}$ ) である。なお、これらの気体を使用する際には液体窒素トラップを通し凝縮性不純物気体を取り除いた。

### 3-3 測定法

SRG、隔膜真空計及び四重極質量分析計は始動時の圧力指示の不安定性を避けるために原則として1日当り24時間の連続運転とした。何らかの理由により運転を中断した場合は4時間以上のウォーミングアップを行った。SRG の測定条件はサンプリング時間20秒、サンプリング回数5回とし、この平均値からあらかじめ同条件で測定したオフセット値を差し引いた値を SRG の指示値とした。なお、オフセット値の測定は残留圧力が十分安定するまで排気した後に行った。また、測定の際には SRG のプロセッサ一部に室温 ( $T$ ) 及び試料気体の分子量 ( $M$ ) を入力した。ただし、混合気体ではみかけの分子量 ( $M^*$ ) を用いた。みかけの分子量 ( $M^*$ ) はおよそ  $2 \times 10^{-3} \text{Pa}$  の混合気体のモル分率を四重極質量分析計を用いて測定することにより求めた。なお、本実験に使用した装置における1日のトリチウム使用量が5 Ci と限られていること及びこの装置では  $10^{-1} \text{Pa}$  以上の圧力における流通系での測定は圧力の保持が困難であることから測定は閉鎖系で行い、他方  $10^{-5} \text{Pa}$  から  $10^{-1} \text{Pa}$  の圧力範囲では、閉鎖系とした場合装置壁からの脱ガスの影響を無視できないため流通系で測定した。なお、閉鎖系における真空装置の残留圧上昇速度はおよそ  $1.6 \times 10^{-5} \text{Pa/s}$  であり、 $10^{-1} \text{Pa}$  以上の圧力での測定では残留気体の影響は無視できる。

#### 4. 結果と考察

Fig. 2 に窒素ガスを用いた測定結果の一例を示す。(a) は SRG の指示値 ( $P_{SRG}$ ) と B-A 型電離真空計の指示値 ( $I_{B-A}$ ) を  $10^{-5}$  Pa から  $10^{-2}$  Pa の範囲で比較した結果で、(b) は SRG の指示値と隔膜真空計の指示値 ( $P_{DG}$ ) を  $10^{-3}$  Pa から 10 Pa の範囲で比較した結果である。(a), (b) いずれの場合も、図中の直線の傾き  $d[\log Y]/d[\log X]$  は 1.00 となり、SRG が  $10^{-5}$  から 10 Pa の圧力範囲で非常によい直線性を持つことが確認された。また、(b) における SRG の指示値と隔膜真空計の指示値との比 (相対感度:  $R = P_{SRG}/P_{DG}$ ) は流通系では  $1.00 \pm 0.008$ 、閉鎖系では  $0.969 \pm 0.008$  であり、閉鎖系と流通系で若干の差はあるものの SRG の指示値は  $10^{-3}$  から 10 Pa の圧力範囲において数%の誤差で隔膜真空計の指示値と一致し、SRG によりきわめて精度よく絶対圧測定が行えることが確認された。

Fig. 3. に水素同位体を用いた測定結果の一例を示す。(a) は軽水素と重水素の混合気体を用いた結果である。この混合気体のモル分率は  $H_2:HD:D_2=30:51:19$  であり、みかけの分子量  $M^*$  は 2.87 であった。(b) はトリチウムガスの結果である。市販のトリチウムからは Zr-V-Fe ゲッターを用いた精製により 3-ヘリウム及びトリチウム化メタンは取り除くことが可能であるが、 $H_2$  などの水素同位体の不純物を取り除くことは困難である<sup>10)</sup>。したがって、このトリチウムガスには十数%の水素同位体が含まれており、そのモル分率は  $T_2:DT:HT:HD=89:9:1:1$  でみかけの  $M^*$  は 5.87 であった。(c) はトリチウムガスにさらに軽水素を添加した混合気体の結果である。この混合気体のモル分率は  $T_2:DT:HT:HD:H_2=25:7:44:7:17$  であり、みかけの分子量  $M^*$  は 4.07 であった。(a), (b), (c) いずれにおいても窒素ガスの場合と同様に図中の直線の傾きは 1.0 となり、水素同位体の混合気体においても  $10^{-3}$  Pa から 10 Pa の圧力範囲でよい直線性が得られた。また、相対感度は (a), (b), (c) それぞれ流通系においては、 $0.970 \pm 0.010$ ,  $0.974 \pm 0.010$ ,  $0.98 \pm 0.010$  であった。得られた相対感度より、水

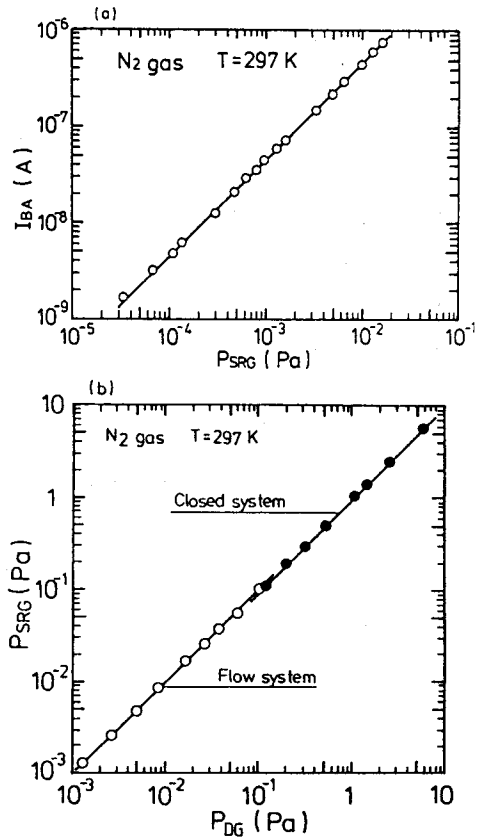


Fig. 2. Plots of the pressure readout of the spinning rotor gauge for  $N_2$ : (a) against the pressure measured by the B-A gauge, (b) against the pressure measured by the diaphragm gauge.

素同位体の混合気体においても窒素ガスの結果と同様に流通系と閉鎖系の値に若干の差はあるものの数%の誤差でSRGの指示値と隔膜真空計の指示値が一致した。

Table 1 (a) に純粋な気体, (b) にトリチウムガス及び水素同位体の混合気体の相対感度 ( $R = P_{SRG}/P_{DG}$ ) 及び流通系の相対感度と閉鎖系の相対感度の比 ( $R_{Flow}/R_{Closed}$ ) をまとめた。純粋な気体及び水素同位体の混合気体では表に示したように流通系と閉鎖系の相対感度に若干の差がみられた。この原因としては, SRG と隔膜真空計との間の接続配管のコンダクタンスによる圧力の相違が考えられる。そこで, 隔膜真空計の取り付け位置における排気速度  $S$  を測定し, 隔膜真空計の取り付け位置と SRG の取り付け位置との間の圧力差を次式より求めた。

$$SP_{DG} = C(P_{SRG} - P_{DG}) \dots\dots\dots(6)$$

ここで,  $C$  は SRG と隔膜真空計との間の配管のコンダクタンスを示す。排気速度  $S$  は  $H_2$ ,  $He$  及び  $Ar$  について測定したが, いずれの場合も排気速度とコンダクタンスの比は  $0.04$  であり, この値から流通系の相対感度と閉鎖系の相対感度の比を求めると  $1.04$  となる。この結果は表に示された測定結果と非常によく一致しており, 閉鎖系の相対感度と流通系の相対感度の相違は SRG と隔膜真空計の間の配管のコンダクタンスに起因するものと結論される。以上のことから SRG の指示値が隔膜真空計の指示値に比べ, およそ  $3\%$  小さくなることが知られた。平田らも同様に SRG の指示値が隔膜真空計に比べ  $3.5\%$  小さいことを報告している<sup>11)</sup>。これは気体の適応係数を決定する際に生じる誤差などにより SRG が常に

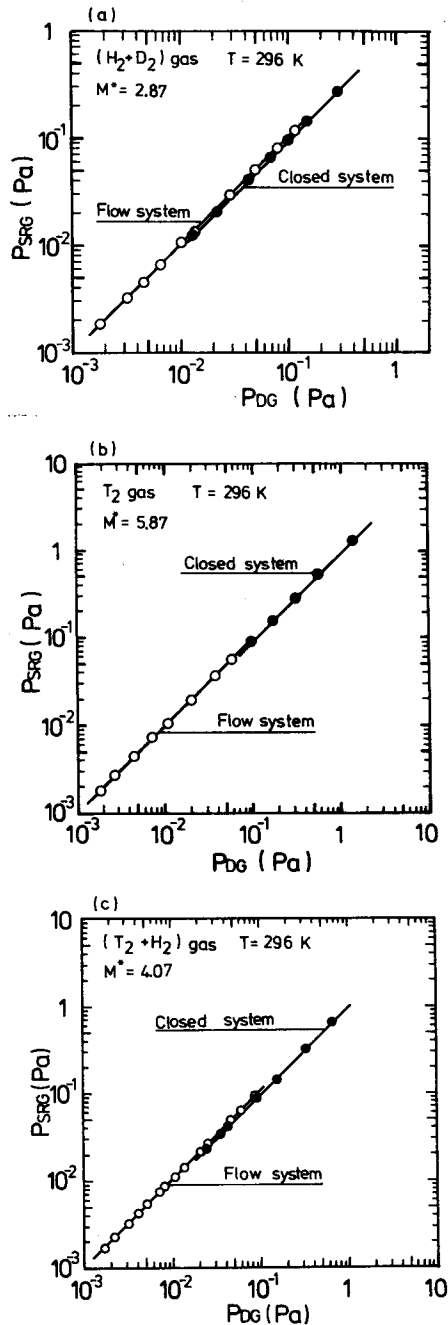


Fig. 3. Plots of the pressure readout of the spinning rotor gauge against the pressure measured by the diaphragm gauge: (a) for  $(H_2+D_2)$  mixture ( $H_2$ :  $HD$ :  $D_2$ =30:51:19), (b) for  $T_2$  ( $T_2$ :  $DT$ :  $HT(D_2)$ :  $HD$ =89:9:1:1) and (c) for  $(H_2+T_2)$  mixture ( $T_2$ :  $DT$ :  $HT(D_2)$ :  $HD$ :  $H_2$ =25:7:44:7:17).

Table 1. Comparison of the pressure readout of the spinning rotor gauge with the pressure measured by the diaphragm gauge: (a) for pure gases, (b) for the mixtures of hydrogen isotopes.

(a) Pure Gases

Gas		N <sub>2</sub>	Ar	H <sub>2</sub>
Molecular weight		28.013	39.948	2.016
R=P <sub>SRG</sub> /P <sub>DG</sub>	Flow system	1.00±0.01	1.01±0.01	1.02±0.01
	Closed system	0.969±0.008	0.973±0.004	0.993±0.002
R <sub>Flow</sub> /R <sub>Closed</sub>		1.03	1.04	1.03

(b) Mixture gases

Gas		H <sub>2</sub> +D <sub>2</sub>	T <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> +T <sub>2</sub>	
H <sub>2</sub> :HD:HT(D <sub>2</sub> ):DT:T <sub>2</sub>		30:51:19:0:0	0:1:1:9:89	17:7:44:7:25	71:3:23:0:3
Relative molecular weight		2.87	5.87	4.07	2.54
R=(P <sub>SRG</sub> /P <sub>DG</sub> )	Flow system	1.02±0.02	1.00±0.02	1.04±0.02	1.04±0.01
	Closed system	0.970±0.010	0.974±0.010	0.981±0.010	0.978±0.005
R <sub>Flow</sub> /R <sub>Closed</sub>		1.05	1.03	1.06	1.06

数%の誤差を持つことを意味している。以上の結果より、SRGはトリチウム及びトリチウムを含む水素同位体の絶対圧を数%の誤差で測定できることが知られた。

次に、水素同位体以外の混合気体についてSRGによる絶対圧の測定を試みた。Fig. 4はアルゴンとヘリウムの混合気体の測定結果の一例である。この混合気体のモル分率は $2 \times 10^{-5}$  Paの圧力における四重極質量分析計の測定ではAr:He=49:51でみかけの分子量( $M^*$ )は17.7であった。この図からアルゴンとヘリウムの混合気体では流通系と閉鎖系の測定値の差が純粋な気体の場合に比べ大きくなること及び図中の直線の傾き $d[\log P_{SRG}]/d[\log P_{DG}]$ が1.06となることが知られた。流通系と閉鎖系で測定値に大きな差が生じた原因は、アルゴンに比較してヘリウムの排気速度

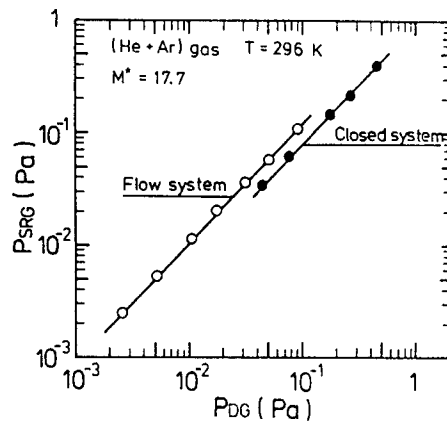


Fig. 4. Plots of the pressure readout of the spinning rotor gauge against the pressure measured by the diaphragm gauge for (He+Ar) mixture (He:Ar=51:49).

がおよそ3倍大きいために、流通系で測定される混合気体と閉鎖系で測定される混合気体のモル分率が異なるためと考えられる。また、図中の直線の傾きが1.06となることはSRGの指示値と隔膜真空計の指示値の間に直線性が成立しないことを意味している。この原因は明らかではないが、混合気体の導入圧力の増加にともない何らかの要因で四重極質量分析計で決定された分子量よりもみかけじょう分子量が小さくなるものと考えられる。ちなみに全圧を  $2 \times 10^{-3} \text{ Pa}$  と一定にして混合気体のモル分率を0~100%の間の広い範囲で変化させその都度求めた  $M^*$  を入力した場合には  $P_{\text{SRG}}/P_{\text{DC}}$  は常に1.00となり、何ら異常な現象はみられない。

Fig. 5にトリチウムの接触によるSRGのオフセット値への効果を示した。この図から明らかのように、 $10^5 \text{ Pa} \cdot \text{sec}$  以上の大量のトリチウムに接触したにもかかわらず、その前後のオフセット値には何ら影響は見られなかった。更に、このSRGは1年以上トリチウム専用装置で作動しているがトリチウムの $\beta$ 線による影響は見られなかった。これらのことか

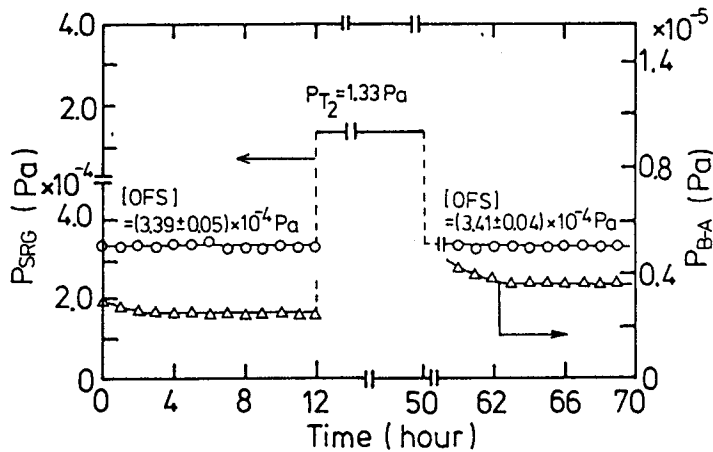


Fig. 5. Effect of tritium exposure at room temperature on the [OFS] value:  
 ○=[OFS] value and △=residual pressure ( $\text{N}_2$  equivalent) measured by the B-A gauge.

らSRGは核融合反応装置などのトリチウム取扱用真空装置で十分使用できることが確認された。

## 5. ま と め

SRGを用いてトリチウムガスの絶対圧測定を行い、放射性のトリチウムに関する特性及び核融合燃料気体の全圧測定への可能性を検討した。その結果、以下のことが知られた。

- (1) 混合気体中の各成分のモル分率を何らかの方法で評価できればSRGによりトリチウムを含む水素同位体の混合気体の絶対圧を、数%以内の誤差で測定可能である。
- (2) SRGの特性は  $10^5 \text{ Pa} \cdot \text{sec}$  及び1年にわたる長期のトリチウム接触においても何ら影響



をうけない。

- (3) 即ち, SRG は核融合反応実験装置などのトリチウム取扱用真空装置のトリチウム測定用真空計およびその校正用真空計として十分利用できる。

## 謝 辞

本研究を行うにあたり, ご指導及びご協力をいただいた東京大学原子核研究所金子衆太郎及び日本 MKS (株) 小林洋一の両氏に感射致します。

## 文 献

- 1) H. F. Dylla, J. Vac. Sci. Technol., **20**(1982)119.
- 2) R. Lässer and K. -H. Klatt, Phys. Rev. B, **28**, 2(1983)748.
- 3) J. W. Beams, D. M. Spitzer, Jr. and J. P. Wade, Jr., Rev. Sci. Instrum., **33**(1962)151.
- 4) J. K. Fremerey, Vacuum, **32**(1982)685.
- 5) J. K. Fremerey, J. Vac. Sci. Technol., **A3**(1985)1715.
- 6) G. Reich, J. Vac. Sci. Technol., **20**(1982)1148.
- 7) G. Comsa, J. K. Fremerey, B. Lindenau, G. Messer and P. Pöhl, J. Vac. Sci. Technol., **17**(1980)642; J. K. Fremerey. in Proceedings of the 4th ICSS and ECOSS, Cannes, 1980, Vol. II, p.869.
- 8) K. E. McCulloh, J. Vac. Sci. Technol., **A1**(1983)168.
- 9) K. Watanabe, H. Miyake and M. Matsuyama, J. Vac. Sci. Technol., **A5**(1987)237.
- 10) M. Matsuyama, H. Miyake, K. Ichimura, K. Ashida and K. Watanabe, Ann. Rept. Tritium Res. Center. Toyama Univ., **6**(1986)39.
- 11) M. Hirata, H. Isogai, K. Kokubum and M. Ono, J. Vac. Soc. Jpn., **28**(1985)898.