

論 文

小容積電離箱による高濃度トリチウム

の *in situ* 測定

松 山 政 夫・中 谷 秀 夫*

山 崎 登 志 成*・渡 辺 国 昭

富山大学トリチウム科学センター

*富山大学工学部

〒930 富山市五福3190

In Situ Measurement of High Level Tritium by Small Ionization Chamber

Masao MATSUYAMA, Hideo NAKATANI*

Toshinari YAMAZAKI*, and Kuniaki WATANABE

Tritium Research Center, Toyama University

*Faculty of Engineering, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received December 25, 1989)

Abstract

For the research and development of D-T thermonuclear fusion devices, *in situ* methods to measure high levels of tritium should be established. Thus, a small ionization chamber was made and examined for its applicability to *in situ* and *real time* measurements of high levels of tritium.

The ionization chamber was easily constructed, did not leak owing to VCR fitting and had a considerably small effective volume of 1.9cm³. Excellent saturation-current characteristics were observed at an applied voltage above +20V to the center electrode when the chamber was filled with tritium gas mixed with hydrogen isotopes at a pressure below 1 atm. No special power source or electric circuit was required. The present system showed excellent linearity in a wide concentration range from 1 × 10⁻⁶ to 3 × 10⁻¹ Ci/cm³, when the total pressure was kept constant at 1 atm.

Consequently, it was concluded that the small ionization chamber developed in the

present study was quite useful for *in situ* and *real time* measurements of high levels of tritium in tritium processing in magnetic fusion devices.

1. 緒 言

D-T 核融合反応実験装置におけるトリチウムプロセスはもとより、実験室規模でのトリチウムガスの取扱いに際して、高濃度トリチウム ($1 \times 10^{-3} \text{Ci}/\text{cm}^3$ 以上) を *in situ* かつ *real time* に計測できることが肝要である。この技術はまだ未完成で、様々な原理に基づく計測法の研究開発が必要不可欠である。被検気体の組成分析(分圧測定)用として、質量分析計¹⁾はガスクロマトグラフィ法²⁾などと共に、従来より広く用いられている。しかし、これをトリチウム濃度(トリチウム分圧)の測定に適用した場合、一定の分析時間を必要としかつ真空排気のために試料ガスの一部を消費するので、*in situ* かつ *real time* 測定が困難となる。但し、使用するトリチウムの化学形やその分圧を知る必要がある場合には、これらの測定法は非常に有効である。最近、制動X線計測法が、高濃度トリチウムの非破壊かつ *in situ* 測定法の有望な候補の一つになり得ることが示された³⁾。但し、トリチウム分圧の低い領域では、測定精度を上げようとする測定時間が長くなり、*real time* 測定が困難となる。また、レーザー分光法による水素同位体の *in situ* 測定⁴⁾も試みられているが、現状では感度の点でまだ問題が残されており、今後の研究開発が必要である。

一方、従来より広く使用されているトリチウム濃度測定装置の一つに電離箱がある。しかし、従来の電離箱は環境レベルの低濃度トリチウム ($\sim 10^{-12} \text{Ci}/\text{cm}^3$) をモニターするために開発されたものであり、これをそのまま高濃度トリチウムの *in situ* 測定に適用するには、幾つかの問題がある。特に、この種の電離箱は大気圧の状態で作動され、有効体積が $10 \sim 30 \text{ l}$ 程度と大きいために、測定に要するトリチウム量は極めて多くなり且つ気体の置換に長時間必要となり、*real time* 計測が困難となる。しかしながら、電離箱は本来トリチウムの *in situ* かつ *real time* 計測に対して有利な点も有している。例えば、質量分析計やガスクロマトグラフィなどのように分解能や感度の経時変化を考慮する必要がない。更に、電離箱で検出される電離電流はトリチウムの化学形にはほとんど依存しない。また、質量分析計のように真空排気の必要がないので測定に際してのトリチウム処理を考慮する必要もなく、被検気体中のトリチウム濃度の変化を連続的に測定することができる。従って、従来のような大きな体積ではなく、小型化することによって電離箱の特徴を最大限に生かした *in situ* 且つ *real time* 測定が可能である。

電離箱の小型化に対する試みとして Lässer⁵⁾ や Carstens⁶⁾ らは、従来の通気型電離箱よりも遙かに小さい電離箱検出器を無担体トリチウムの圧力測定用として製作し、その性能を調べている。しかし、Lässer らの製作した電離箱の構造は複雑であり、トリチウム圧に対する電離電流の比例性も良くない。また、Carstens らも同様の小型電離箱を製作し、そ

の性能を調べているが、電離電流のトリチウム濃度依存性に関して十分なデータを得ていない。

この様な観点より、単純な構造の小容積電離箱を設計・製作し、その基本的性能である電離電流に対する印加電圧依存性やトリチウム濃度依存性などを調べ、高濃度トリチウムの *in situ* かつ *real time* 測定に対する本電離箱の適用性を検討した。

2. 実験

2-1. 電離箱容積の決定

先に述べたように、高濃度トリチウムガスの測定を対象とする際には、測定に要するトリチウム量をできる限り少なくするために電離箱の容積を極力小さくする必要がある。電離箱の小型化は、先に述べた利点の他に、トリチウム取扱い装置への取り付けに際しても有利となる。しかしながら、電離電流の容易な測定という立場からは容積が大きい方が有利である。従って、これらの両者を満足するような容積の電離箱を設計・製作する必要がある。その際的设计指針を Fig. 1 に示した。この図は、種々の容積の電離箱における被検気体中のトリチウム濃度(分圧)とトリチウム量及び電離電流との関係を示している。なお、

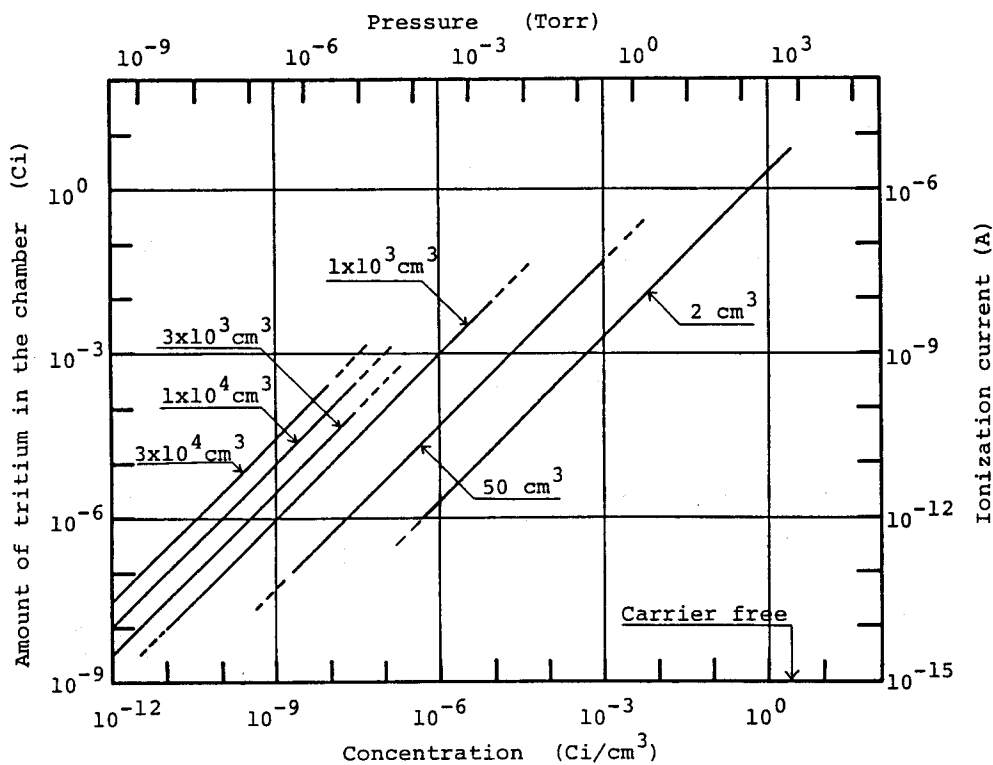


Fig. 1. Correlation among the amount of tritium in the chamber, ionization current and tritium concentration for ionization chambers having various volumes.

電離電流は後述の(1)式によって計算された値である。図より明らかなように、 2 cm^3 程度の小型の電離箱を製作すれば、1気圧の無担体トリチウムを計測する場合でも電離箱内のトリチウム量は約 5 Ci 程度となり、 10^{-6} から 2.6 Ci/cm^3 (無担体トリチウム)程度までの濃度範囲を市販の電流計で測定可能である。また、トリチウム取扱い装置への取り付け及びトリチウムインベントリーなどの問題も解消できる。

2-2. 電離箱の製作

製作した電離箱の詳細な断面図を Fig. 2 に示す。本電離箱の有効体積は 1.9 cm^3 であった。中心電極は対向電極との間をガラスで絶縁されている。また対向電極には、トリチウム取扱い装置との接続を考慮して、VCR 継ぎ手(NUPRO 社製)が使用されている。なお、このVCR 継ぎ手を装置側の継ぎ手と接続する際には銀メッキしたステンレス製ガスケットを用いた。更に、このガスケットには、電離箱の有効体積を限定するために、50メッシュの

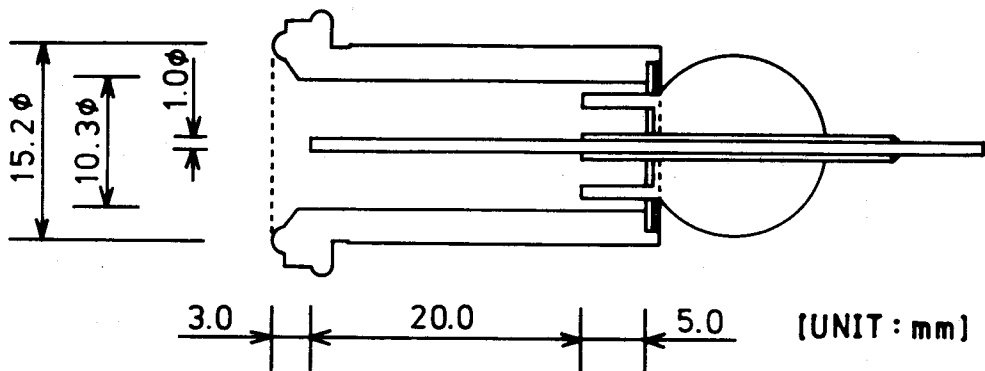


Fig. 2. Cross-sectional view of the small ionization chamber.

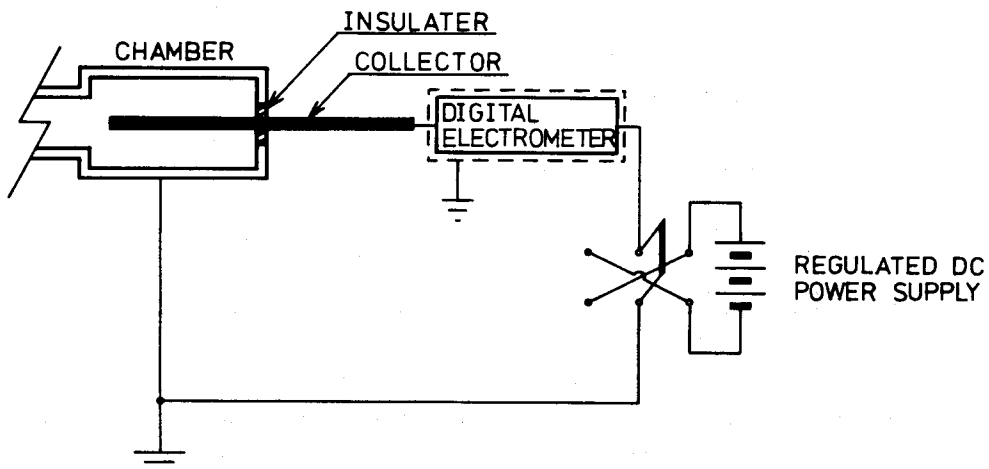


Fig. 3. Electrical circuit diagram of the ionization chamber.

銅製ネットがスポット溶接されている。

2-3. 電離箱の結線方法

Fig. 3 は電離電流の測定の際の結線図である。使用した電流計は、 1×10^{-14} A以上の電流を測定できる性能を有しているものである。また、用いた直流電源は、0~70Vの範囲で任意に電圧を印加でき、かつ極性も変更できる。なお、結線の際、電離箱の対向電極(VCR継ぎ手側)が常にアースに接続できるように電流計及び直流電源をアースから浮かした状態にした。この様な結線方式を採用したのは、電離箱をトリチウム取扱い装置に接続する場合、対向電極と取扱い装置との接続の際に両者を絶縁する必要がなく、電離箱の取り付けが容易となるからである。

2-4. トリチウム貯蔵-供給-回収装置

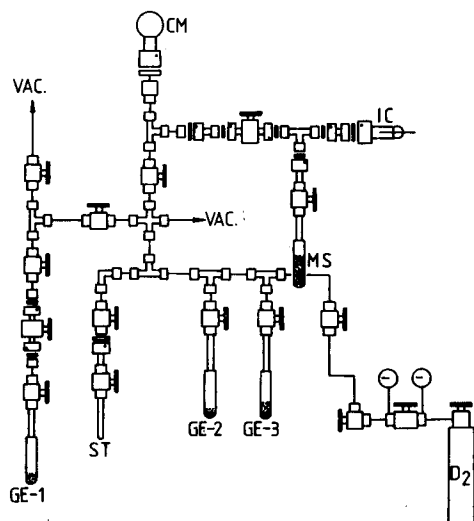


Fig. 4. Schematic diagram of experimental apparatus used in the present study: IC, ionization chamber; CM, capacitance manometer; MS, molecular sieves; GE-1~3, getter; ST, sampling tube; D₂, deuterium gas cylinder.

Fig. 4 は、トリチウムガスの貯蔵-供給-回収装置に小容積電離箱(IC)を取り付けた実験装置の概略図である。本装置は、 2×10^{-6} Torrまで排気できる真空装置に接続されている。Zr-V-Feゲッター(GE-1~GE-3)はトリチウムガスの貯蔵-供給-回収操作の際に用いた。このゲッターにおけるトリチウムの解離圧に対する温度依存性は既に報告されている⁷⁾。隔膜型真空計(CM)はゲッターを加熱した際に放出されるトリチウムガスの圧力測定のために用いた。また、電離箱の近くに取り付けたモレキュラーシーブス(MS)は電離箱へのトリチウムガスの供給圧力を15 Torr以上に昇圧しなければならない場合に用い、液体窒素温度でのトリチウムガスの吸着及び室温での脱離作用を利用した。更に、電離箱へ供給したトリチウムガスの濃度及び組成を調べるために、感度校正された四重極

質量分析計⁸⁾及び制動X線測定装置³⁾を用いた。なお、質量分析時の試料ガスは分取管(ST)で採取した。

2-5. 使用気体及び実験手順

本実験で使用したトリチウムガスは3種類である：①購入した無担体トリチウムガス

(T_2 : 純度は85T-atom%で、不純物としては軽水素及び重水素が含まれていた。), ②軽水素で希釈したトリチウムガス(以下「H-T 混合ガス」と記す: トリチウム濃度は4.6 T-atom%)及び③重水素で希釈したトリチウムガス(以下「D-T 混合ガス」と記す: トリチウム濃度は9.6T-atom%)である。なお, Fig. 5 はこれらの3種のトリチウムガスを質量分析計で測定したスペクトルの一例である。これらのスペクトルは, いずれのトリチウムガスでも水素同位体以外の不純物が含まれていないことを示している。

電離箱検出器の基本特性である電離電流の印加電圧依存性を調べる場合には, 先のトリチウムガスを含むそれぞれのゲッターを650°C程度まで加熱し, 脱離してくるトリチウムガスの一定量を電離箱に導入した。なお, 導入量は数 Torr から1気圧付近まで変化させた。次に, トリチウム濃度依存性を調べる場合には, 一定量のD-T 混合ガスまたは無担体トリチウムガスを予め液体窒素温度に冷却したMSに吸着させ, 引き続いて電離箱内の全圧が1気圧になるように計算された圧力まで, 重水素シリンダーから重水素を電離箱に添加した。その後, MSを室温まで昇温してD-T 混合ガスまたは無担体トリチウムガスと重水素を混合し, 電離電流を測定した。この測定の際, 最初に導入するD-T 混合ガスと重水素との比率を変化させて種々のトリチウム濃度の混合ガスを調製した。

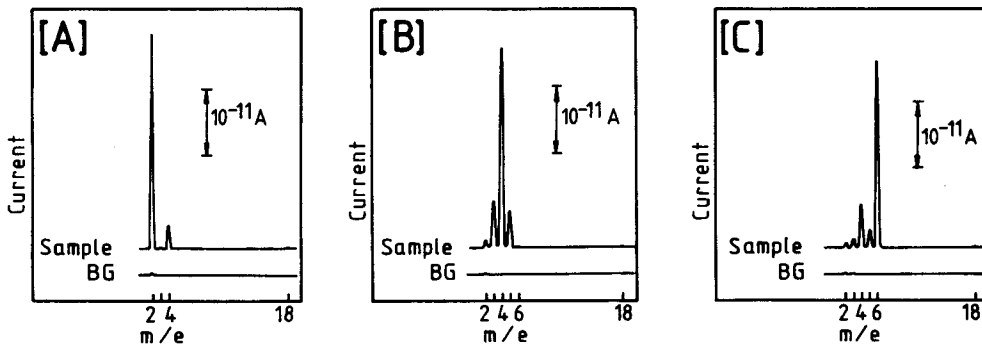


Fig. 5. Mass spectra of tritium gases used in the present study:

- [A], Tritium gas diluted with hydrogen (denoted as H-T mixture: concentration was 4.6 T-atom %)
- [B], Tritium gas diluted with deuterium (denoted as D-T mixture: concentration was 9.6 T-atom%)
- [C], As-received tritium gas (denoted as T_2 : concentration was 85 T-atom%)

3. 結果

Fig. 6 (a), (b)及び(c)は, 3種類のトリチウムガスを用いて, 種々の圧力における電離電流の印加電圧依存性を調べた結果である。なお, これらの測定の際には, 中心電極を陽極とした。無担体トリチウムガスを用いた場合(Fig. 6(c))には, 最高145Torrまでしか測定できなかったが, これは本実験を行った実験室でのトリチウムの使用量が, 1日当たり5Ci

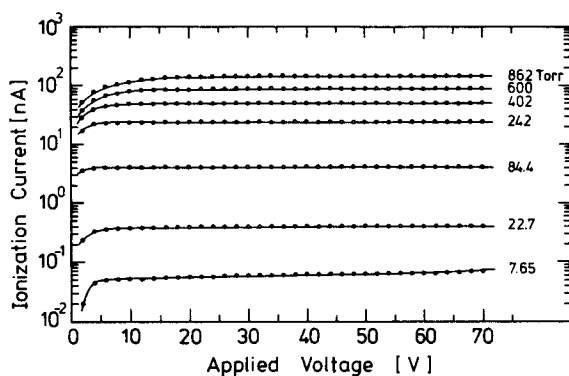


Fig. 6 (a). The dependence of ionization current on the applied voltage to the ionization chamber filled with the H-T mixture of various pressures: the center electrode was positive.

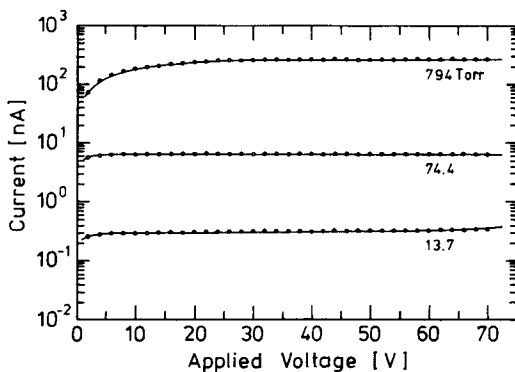


Fig. 6 (b). The dependence of ionization current on the applied voltage to the ionization chamber filled with the D-T mixture of various pressures: the applied potential was the same as Fig. 6 (a).

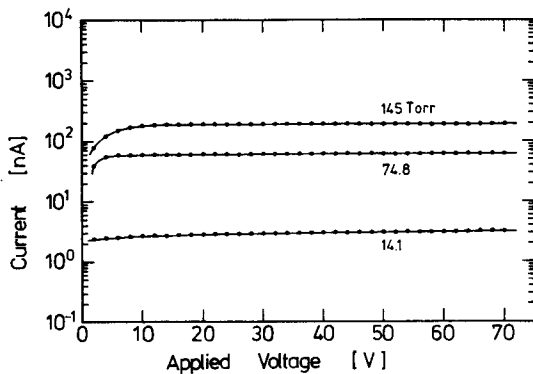


Fig. 6 (c). The dependence of ionization current on the applied voltage to the ionization chamber filled with T_2 of various pressures: the applied potential was the same as Fig. 6 (a).

以下に制限されているためである。これらの図より明らかなように、電離箱への導入圧の増大と共に電離電流は増加し、いずれのトリチウムガスでも、またいずれの圧力でも20V以上の印加電圧でほぼ飽和電流値に達していることが知られる。ただし、Fig. 6の(a)より明らかなように、圧力の増大と共に飽和電流値に達する印加電圧は僅かに高電圧側に移動している。この傾向は1気圧付近で特に顕著である。更に、この様な高電圧側への移動傾向はH-T混合ガス、D-T混合ガス及び無担体トリチウムの順に顕著となった。

Fig. 7は、Fig. 6(b)でのD-T混合ガスを用いた測定の際に、中心電極を陰極とした時の電離電流の測定結果である。図のように中心電極を陰極とした場合には、陽極とした場合(Fig. 6(b))に較べて、圧力が高くなると低電圧領域の飽和電流特性が悪くなり、飽和電流値を得るにはより高い電圧を印加する必要がある。他のトリチウムガスでも同様の傾向を示した。

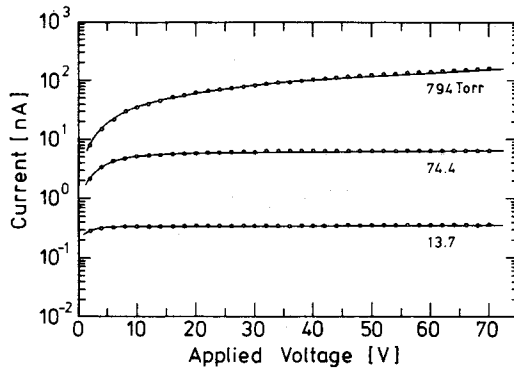


Fig. 7. The dependence of ionization current on the applied voltage to the ionization chamber filled with the D-T mixture: the center electrode was negative.

Fig. 8は、中心電極への印加電圧を+50Vに固定し、更に電離箱内へ導入する混合ガスの全圧を毎回760Torrとし、トリチウム濃度と電離電流との関係を調べた結果である。なお、図中に示した電流値は電離箱の内壁への吸着トリチウムによって発生する電流の値(約0.3nA)を差し引いた値である。図より明らかなように、両対数で示されたトリチウム濃度と電離電流との間には広い範囲にわたって良い直線関係があることが知られた。更に、この直線の傾きは1となった。即ち、 1×10^{-6} から $3 \times 10^{-1} \text{Ci/cm}^3$ までの広い濃度範囲で電離電流はトリチウム濃度に比例することが分かった。この直線の傾きより、比例定数はおよそ $1 \times 10^{-6} \text{A/Ci/cm}^3$ であることが知られた。なお、破線部分は $3 \times 10^{-1} \text{Ci/cm}^3$ 以下での直線関係が無担体トリチウムの濃度である 2.59Ci/cm^3 (STP)まで外挿できるとした場合の電流値を示している。

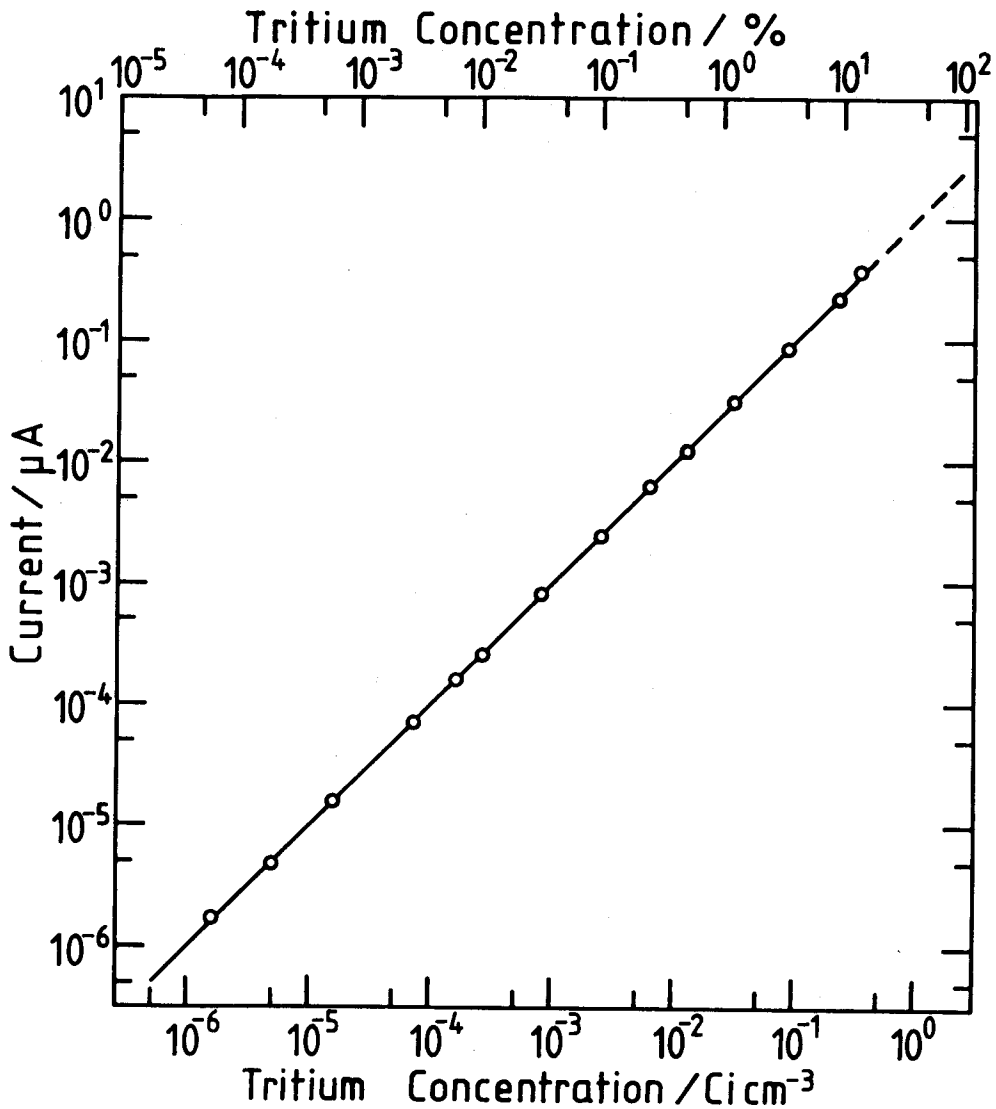


Fig. 8. The correlation between tritium concentration and ionization current observed under the constant pressure at 760 Torr.

4. 考 察

所定の電圧が印加された電離箱で検出される電離電流は、電離箱内で単位時間当りに生成する電子-イオン対の数に比例する。生成する電子-イオン対の数は、電離箱に入射する放射線の数及びエネルギーに依存するが、電離箱内に充填された気体の圧力及び種類にも影響される。これは気体の圧力によって放射線に対する気体の見かけの阻止能が変わり、気体の種類によってW値(一組のイオンと電子との対を作るのに要するエネルギー)が若干異なるためである。更に、生成した電子-イオン対を電離電流として検出するには、電離

箱に一定の電圧を印加する必要がある。これは生成した電子-イオン対の再結合による電離電流の減少を防ぐためである。即ち、電離箱内に充填された気体の圧力及び種類が同じ場合、再結合がほとんど起こらないような電圧を電離箱に印加すれば、検出される電離電流は、放射線の強度のみに依存し、印加電圧とは無関係に一定値を示すようになる。

Fig. 6(a)~(c)はこの様な電離電流に対する印加電圧依存性を示しているが、いずれの場合も約20V以上の印加電圧でほぼ一定の電流値となった。即ち、本電離箱に水素同位体を充填した場合には、従来より大気中のトリチウム濃度を測定するために使用されている電離箱に対する印加電圧(約1000V)に比べ、非常に低い印加電圧で再結合の影響を除去でき、良好な飽和電流特性が得られることが明かとなった。この様な低い印加電圧特性は、電離箱の小型化及び電離箱内で生成するイオン種が通常の電離箱での窒素及び酸素イオン等に比べ質量が小さいこと等による。更にこの結果より、水素同位体中のトリチウム濃度を測定する際に使用する電源としては小型のもので十分であり、電源系に特別な配慮は必要ないことを示している。更に、飽和電流曲線から明らかなように、飽和電流領域でのプラトーの傾きは非常に小さく、飽和電流値の再現性も極めて良好であった。即ち、微弱な電離電流の測定に対する特別な配慮は必要とせず、本実験で採用した結線方法で充分である。

電離箱内の圧力が高くなると共に飽和電流値に達する電圧が僅かに高くなる傾向(以後「圧力効果」と記す)が見られた。これは充填気体の圧力増加が電子とイオンとの衝突頻度を増大させ、電子-イオン対の再結合が起こり易くなったことによるものと考えられる。また、大気圧付近での充填気体の質量の増大($M_H < M_D < M_T$)も圧力効果と同様な影響を及ぼした(Fig. 6)。一般に、イオンの易動度は質量の平方根の逆数にほぼ比例する。従って、質量の増大に伴いイオンの易動度が小さくなり、電子-イオン対の再結合が起こり易くなることに起因するとして説明できる(以後「質量効果」と記す)。即ち、飽和電流を得るための印加電圧は、電離箱内の充填気体の圧力効果と質量効果によって決定されると言える。例えば、本電離箱で空気中のトリチウム濃度を測定しようとする場合、窒素や酸素の易動度が水素に比べて約1/3となるので、再結合の影響を取り除くためには本実験で適用した20Vよりも高い電圧の印加が要求されることを示唆している。但し、電離箱の両極間の距離が当該電離箱より著しく大きくなれば必要な印加電圧も更に高くなる。

トリチウムと重水素との混合ガスを電離箱に充填し、その際の全圧を760Torrとした場合(Fig. 8)、電離電流とトリチウム濃度との間には、6桁にも及ぶ広い濃度範囲できわめて良好な比例関係が見いだされ、高濃度トリチウムの *in situ* 且つ *real time* 測定に対して、本電離箱が極めて有効であることが示された。先に述べたように、プラトー領域での電離電流は、 β 線照射によって電離箱内で生成した電子-イオン対の数に比例する。圧力及びトリチウム濃度が一定の場合、電子-イオン対の生成量は充填気体のW値によって決まる。1日当り使用できるトリチウム量の制限があるために、調製可能な1気圧のトリチウム濃度の最大値は、無担体トリチウムガスを用いても13%と低くなった。もしも重水素と

トリチウムのW値が大きく異なるならば、トリチウム濃度が上昇すると共に、電流値は Fig. 8 の直線関係からずれてくるであろう。しかし、本実験ではこのような傾向がみられず、両気体のW値に大きな相違がないと考えられる。このことは、Fig. 8 の破線部分の外挿が妥当であることを示唆するものである。

通気型電離箱の場合には電離箱内で発生した β 線のエネルギーが気相中で全て消費されるわけではない。特に、本研究で製作した円筒型電離箱の電極間距離は0.46cmであり、1気圧の水素中における β 線の飛程が約2cmであるのと較べると、電離箱の電極間距離の方が小さい。即ち、電離箱内でトリチウムから放出された β 線は気相中で初期の運動エネルギーの一部を失い、電離箱の壁に衝突する。この衝突の際、気相の方へ再び反射する β 線もあるが、一部は反射せずに壁材に捕獲される。即ち、気体の電離には β 線のエネルギーの一部が消費されるのみである。他方、 β 線のエネルギーが気相中で全て消費されかつ電子-イオン対の再結合が無いとすると、一般に得られる電離電流は次式の様に表される。

$$I = E \cdot N \cdot e / W \quad (1)$$

ここで、Iは検出される電離電流(A)、Eは β 線の平均エネルギー($5.7 \times 10^3 \text{eV}$)、Nは β 線の数、eは電子の素電価($1.6 \times 10^{-19} \text{C}$)及びWは充填気体のW値(eV)を表す。例えば、(1)式を用いて、トリチウム濃度が $1 \times 10^{-3} (\text{Ci}/\text{cm}^3)$ の場合に得られる電離電流を求めると、 $1.7 \times 10^{-3} \mu\text{A}$ となるが、実測値は $1.0 \times 10^{-3} \mu\text{A}$ であった。なお、この計算に際して、D-T混合ガスのW値は不明であるので H_2 に対するW値(36.6eV)を用いた。従って、観測された電流値は計算値の約60%と評価される。この値は、Souersらの計算値⁹⁾(トリチウムからの β 線が水素中0.46cmで消費するエネルギーの割合は61%)とよく一致する。これらの結果より、当該電離箱内で放出された β 線のエネルギーの約40%が電離箱の壁で消費され、その消費の際に放出される二次電子及び光電子などの電離電流に対する影響はほとんどないことが知られた。

なお、核融合反応実験装置の燃料サイクルにおけるトリチウム測定では、本実験のような一定圧の条件のみではなく、測定中に全圧が変動することも予想される。従って、全圧の変動に対する電離電流の依存性も検討する必要がある。更に、測定対象となる被検気体には水素同位体のみならず、Heやその他の気体が混入してくるので、これらの気体の影響を今後定量的に調べる必要がある。

5. ま と め

- 1) 製作した小容積電離箱は、真空継ぎ手の一種として知られている、NUPRO社製のVCR継ぎ手内に電極が組み込まれた構造で、 1.9cm^3 の有効体積を有するものである。即ち、小型でかつ簡単な構造の電離箱が製作できた。

- 2) この小容積電離箱とトリチウム取扱い装置との接続は、両者の VCR 継ぎ手の間にステンレス製ガスケットをはさみ、ナットで 1 / 4 回転絞めるだけの操作で済む。また、このようにして接続した電離箱内に約 3 Ci のトリチウムを導入しても漏洩は全く見いだされなかった。即ち、トリチウム取扱い装置への取り付け方も簡単であり、トリチウムの閉じ込め対策も充分であることが明かとなった。
- 3) 簡単な電気回路で結線された小容積電離箱内に一定量のトリチウムを導入して、電離電流の印加電圧依存性を調べた結果、飽和電流に達する電圧は電離箱内の圧力増加に伴ってわずかに高電圧側に移動したが、約 20 V 付近からの低い印加電圧でほぼ一定の飽和電流値が得られることが知られた。即ち、本電離箱は低電圧で作動し、電離電流の測定も単純な回路で充分であることが明かとなった。
- 4) 小容積電離箱内の水素同位体の全圧を 1 気圧とし、トリチウム濃度と電離電流との関係を調べた結果、電離電流はトリチウム濃度に比例し、その比例定数は $1 \mu\text{A}/\text{Ci}/\text{cm}^3$ となった。また、電離電流の比例性は 1×10^{-6} から $3 \times 10^{-1} \text{Ci}/\text{cm}^3$ までの 6 桁にも及ぶ広い濃度範囲で得られることが知られた。
- 5) 製作した小容積電離箱によって水素同位体中の高濃度トリチウムの *in situ* かつ *real time* 計測が可能であると結論された。

謝 辞

小容積電離箱の製作に当たり、アロカ株式会社の佐藤博夫博士に多大のご協力を頂いたことに感謝致します。なお、本研究は文部省科学研究費補助金(一般研究)の援助を受けて行われたものである。

文 献

- 1) R. E. Ellefson, W. E. Moddeman and H. F. Dylla, J. Vac. Sci. Technol., **18**(1981) 1062.
- 2) T. Schober and C. Dieker, Rev. Sci. Instrum., **58**(1987)1116.
- 3) M. Matsuyama, H. Nakatani and K. Watanabe, Fusion Engineering and Design, **10**(1989)405.
- 4) T. Okada, M. Maeda, Y. Kajiki, K. Muraoka and M. Akazaki, Appl. Phys., **B43**(1987)113.
- 5) R. Lässer, Nucl. Instrum. Methods, **215**(1983)467.
- 6) H. W. Carstens and W. R. David, Proc. Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, (Dayton, OHIO, 1980), p. 251.
- 7) 松山政夫, 三宅 均, 市村憲司, 芦田 完, 渡辺国昭, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, **6** (1986)39.

小容積電離箱による高濃度トリチウムの *in situ* 測定

- 8) K. Watanabe, H. Miyake and M. Matsuyama, J. Vac. Sci. Technol., **A 5** (1987) 237.
- 9) P. C. Souers, "Hydrogen Properties for Fusion Energy", (University of California Press, Los Angeles, 1986), P. 218.