

7. トリチウム検出技術と定量評価

奥 野 健 二 (日本原子力研究所) (1996年11月11日受理)

Tritium Measurements in Plasma Facing Materials

OKUNO Kenji

Naka Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Ibaraki 319-11, Japan (Received 11 November 1996)

Abstract

Tritium measurement is important from both viewpoint of tritium accountanncy of fusion reactors and studies on tritium bahavior in plasma facing materials. From both point of views, various tritium measurement methods are reviewed briefly. The thermal desorption method, bremssstrahlung measurement method and tritium imaging method, which have a capability to measure in-situ tritium retention in the plasma facing materials, are reviewed in detail.

Keywords:

tritium measurement, plasma facing materials, thermal desorption, bremsstrahlung, tritium imaging

7.1 はじめに

炉壁材料中トリチウムの分析測定技術は,核融合炉シ ステム全体におけるトリチウムのトラッキング技術の確 立,およびプラズマ壁相互作用の研究の視点からも重要 である.

核融合炉システムにおけるトリチウムトラッキングと は核融合炉システム全体,すなわちプラズマ対抗機器, トリチウム循環システム,ブランケットシステム等にお けるトリチウムの分布および移動状況を把握することで あり,核融合炉の安全性を評価する上で不可欠である. このための最重要課題はトリチウムが分布する場所に最 も適した分析測定技術を開発することにあり,開発にあ たっては次のような点に留意する必要がある.

(1)純トリチウムガス(約100%)から低濃度(lppm)ま での広い測定範囲を有し、メモリー効果の少ないこと.

(2)トリチウムの化学形を分別測定できること.

(3) "その場"かつ実時間で測定できること.

(4)放射化生成物の影響を受けず、γ線および中性子の存

在する影響下でも測定できること.

上記の点を念頭において,測定する対象となるガス組 成, トリチウム濃度, トリチウムの存在状態等の測定環 境にあった分析測定技術が開発される必要がある.日本 原子力研究所では,燃料ガス精製・循環システム,ある いはブランケット・トリチウム回収システムにおける運 転監視・制御およびトリチウムインベントリーを管理す るためのトリチウム測定技術の開発を目的として、レー ザーラマン散乱分光法による in-situ および real time ガ ス分析法の開発を進めており,実用に向けての開発が進 められてる[1,2]. また, 貯蔵システムにおけるトリチ ウムトラッキングに関しても,熱量法によるトリチウム 計量システムの開発を進めており、ほぼ実規模のトリチ ウム計量貯蔵ベットの開発に成功している[3].しかし ながら、核融合炉の中でトリチウムが最も滞留する可能 性の高いプラズマ対向機器およびブランケットシステム 中のトリチウム計測技術は必ずしもその開発が十分な段 階に達しているとはいい難い. これらのトリチウム計量

講 座

奥野

技術,すなわち固体中のトリチウム測定技術が開発され るかどうかが,核融合炉全体におけるトリチウムトラッ キングが可能かどうかを大きく左右する.核融合炉廃棄 物中のトリチウムトラッキングの観点からも固体中トリ チウム測定技術の開発は重要な課題である.

また、PWI研究の視点からも、壁材料中のトリチウムの滞留および透過挙動の測定精度を上げ、研究精度を 向上すると言った観点からも固体中トリチウムの分析測 定技術は重要である.

そこで、本章では、トリチウム分析測定技術全般を簡 単に紹介するとともに、特に固体中のトリチウム測定技 術の開発の現状とその問題点を概観する.

7.2 トリチウム分析測定技術

トリチウムの分析測定技術は、その測定対象によって 二つに大別される。トリチウム自身が放射する β線お よびそれに起因する放射線量を測定する方法と、トリチ ウム自身の物理量を測定する方法がある。目的対象のト リチウムの存在状態、要求精度等を考慮して測定方法が 決定される。以下に主なものについてその概要を紹介する。

放射線測定には Table 1 に示すように, β線による気 体の電離作用を利用した測定法, β線の作用による発光 現象, β線による発熱を利用する方法,およびβ線が二 次的に発する電磁波を利用する法に大別される.

電離作用を利用してトリチウムを計測する方法は最も 確立された方法と考えられ,その計測方式より電離箱,



比例計数管,およびGM 計数管に大別される.

電離箱ではβ線と気体の相互作用によって発生する 気体分子のイオン対を電極に収集し、その電荷量を測定 する.イオン対収集効率が100%であれば、空気中にお けるトリチウム1Ciのイオン化電流は0.82 μA に相当す る.電離箱で使用可能な気体は、比例計数管やGM管 と異なり、アルゴン、ヘリウム等の希ガスのみならず空 気、窒素などの雰囲気ガスも使用できる.本測定方法の 実用検出限界は電離箱の体積に依存するが10⁻⁶ μCi/cc 程度であり、低濃度トリチウム測定に適している.本法 はほぼ実時間測定が可能であり、ルームモニタやスタッ クモニタとして古くから使用されている.近年は高濃度 トリチウム測定用小型電離箱の開発も行われている.

比例計数管は、β線が気体中で生成する一次イオン対 の電子を強電場中で衝突電離を繰り返させてイオン量を 増倍し、生じた陽イオンの移動に伴う電気的パルスを電 極から取り出すもので、印荷電圧は、パルス出力が生成 1次イオン対数に比例する比例領域で作用される.比例 計数管は、電離箱領域で使用される電離箱に比べ、ガス 増幅現象により、感度が高い.また、出力パルスの波高 弁別により、入射エネルギーのスペクトル測定が可能に なり、トリチウム以外の他の放射線の影響を除去できる.

発光作用を利用する方法としては, β線が物質内で生 ずる励起、電離過程を介して発光した蛍光を光電子増倍 管等により測定するものである.シンチレータとしては, 放射線による吸収エネルギーへの変換率が高いこと、蛍 光の減衰時間が短いこと, 生じた蛍光に対し透明度のよ いこと、蛍光の波高分布が使用する光電子増倍管の光電 子面の波長感度特性によく整合していることが望まれ る. 液体シンチレータはトルエンやキシレンなどのアル キルベンゼン系有機溶媒に Terphenyl (TP) や 2,5-Diphenvloxazole (PPO) などの発光体を溶かしたもので ある. 固体シンチレータは, NaI (Tl) のようなアルカリ ハライド無機結晶に 10⁻¹ モル%程度の活性化不純物を 添加したものとプラスチックに発光体を溶解させたもの がある.液体シンチレーション測定は、液体中のトリチ ウム測定に一般的に使用されており,実用検出感度は2 × 10⁻⁸ µCi/cc 程度と非常に低く,環境レベルのトリチ ウム計測に適している.一方,固体シンチレーション法 は、トリチウムを直接測定するよりもむしろ、後述する 制動X線測定の検出器として利用される.

熱量法は、トリチウムのβ線のエネルギーを熱エネ ルギーに変化させ、それを熱量計によって測定する方法 である。特にトリチウムのβ線のエネルギーの飛程が 短いため、放射線エネルギーはすべて熱エネルギーに変 換できる. トリチウムの β 線の平均エネルギーは 5.6 keV であるので、トリチウム 1 Ci あたりの発熱量は 33.7 μ W に相当する.

本方法は、トリチウムの物理的、化学的状態に関係な く計測できる利点がある.壁材料中に存在するトリチウ ムの全量測定に使用可能である.しかしながら、極微量 の熱量測定であるので、カロリメータの精度からその実 用検出限界としては 0.1 Ci 程度であり、むしろ大量トリ チウムの測定に適している.由良ら[4]は、Fig.1 に示 した双子型等温型熱量計を用いて約 3 Ci のトリチウム 水を測定し、1%の精度を得ている.また、最近原研ト リチウム研究室では、トリチウム金属貯蔵ベット中のト リチウム計量を目的として、流通式熱量計を開発し、 25g 容量の貯蔵ベッドについて1% 精度でのトリチウム 計量可能な熱量計を開発した.装置とその結果をFig.2、 3 にそれぞれ示す[3].制動放射線計測については次節 でその詳細を紹介する.

物理量測定は,表に示すように主に,重量,体積,分 離,質量,分光,電磁波測定法に大別される.

重量測定は、トリチウム化合物の重量を、天秤等で秤 量し、トリチウム量を測定するものである。トリチウム 1グラムは 9.59 × 10³ Ci であり、市販の天秤の計量限界 は 10⁻⁹g 程度であるので原理的には 10μ Ci 程度が検出 限界となる. 体積法は、トリチウムガス (T₂)の臨界温度は、 40.44K であるから、常温では理想気体方程式 (PV = nRT)が成立する. 圧力 P,体積 V,温度 T を測定し、モル数 n を得ることができる. T₂ ガス 1 Ci は 0.39 cm³ (STP)であるから nによってトリチウム量が求められる. 測定対象形態は T₂ ガスのみであるが、その際に T₂ ガスの純度または共存ガスの組成・種類が正確に判 明していなければならない. したがって、本法は質量分 析法等組成を分析できる方法との組み合わせで使われる. 現在大量トリチウムの計量には本方法が一般的に採 用されている.本法の実用検出限界および精度は使用す る圧力計,温度計等に依存するが、一般的にはそれぞれ 10 mCi, 1%程度である.



Fig. 2 Flow diagram of "in-bed" gas flowing calorimetry with a heat transfer equilibrium model.



Fig. 1 Simplified cross-section of calorimetric body.



Fig. 3 The relation curve between tritium inventory and He temperature raise.

1378

NII-Electronic Library Service

講 座

分離分析のガスクロマトグラフ法は,水素同位体およ びその化合物の固体吸着材に対する親和力の差を利用し て分離分析する方法であるので,トリチウムの放射能を 測定する方法と異なり,化学形の分析が可能である.電 離箱等の放射線測定法を検出部に使用すれば,ラジオガ スクロマトグラフとしてより高精度・高感度で測定でき る.水素同位体分離分析用カラムとしては MnCl₂ コー ティングしたアルミナカラム等を液体窒素温度で使用す る.その際,キャリアガスとしては一般的にはネオンを 使用する.トリチウム化合物の分離分析用としてはモレ キュラーシーブカラムを使用する.キャリアガスとして は,ヘリウム,アルゴン等を用いる.ガスクロマトグラ フ水素同位体分析法としては歴史も古く,かつ,信頼性 にも優れた方法である.

質量分析法では、磁場偏向型質量分析計と四重極型質 量分析計が一般的に使われている. これらの質量分析計 を用いることによりトリチウムおよびその化合物を直接 定量分析できる.しかしながら、水素同位体の分離分析 には高分解能の質量分析計が必要となる。特に, m/e = 3のT⁺とHe⁺の分離には分解能(M/ΔM)が1.6× 105以上必要であり、非常に高価な磁場偏向型質量分析 計が必要となる.四重極型質量分析計は,磁場偏向型質 量分析計と比較して低分解能であり、高分解能のもので もm/e = 4の He^+ と D_2^+ イオン(分解能:約160)が 分離できるのみである. 質量分析計は真空排気装置が必 要なため装置が大型となる欠点がある.特に、磁場偏向 型質量分析計は大型となる.この欠点を克服するために、 非常に小型のオメガトロン型質量分析計の開発が行われ ており、試作段階ではあるが分解能として500程度を達 成しており、T⁺とHD⁺イオンの分解が可能なものが 開発されている[5]. 質量分析法自身は固体中のトリチ ウム測定法とはなり得ないが、次節で紹介する昇温脱離 法(TDS)との組み合わせで使用できる.

分光法では、赤外分光法とラマン分光法がトリチウム 分析に使われるのが一般的である、赤外分光法は、試料 に赤外線を照射し、分子の振動および回転のうち双極子 モーメントの変化を起こす振動に起因する吸収を、透過 光または反射光を分光分析することにより測定する.赤 外分光法は原理上,水素分子(H₂, D₂, T₂)のように対称2 原子分子においては双極子モーメントの変化が起こらな いものに対しては不活性である.気体状のトリチウムガ スには適用できない.これと相補的関係にあるのがラマ ン分光法である.ラマン分光法では、固有振動数 ν_sの 分子に振動数 ν₀の単色光を照射し、照射光に対して直





角方向から観測すると、入射光の大部分は振動数の変化 無しに散乱(Rayleigh 散乱) するが,一部(入射光強 度の $10^{-6} \sim 10^{-10}$) は振動数 $\nu_s \pm \nu_0$ の光として散乱す る (ラマン効果). この散乱光は分子の振動あるいは回 転励起に依存し、分光分析することによって、トリチウ ムおよびトリチウム化合物の定量分析が可能である.原 研では核融合燃料循環系におけるトリチウムトラッキン グシステムおよびシステム監視・制御システムの開発と いった視点で、レーザーラマン分光法によるプラズマ排 ガスの定量分析の可能性の検討を行っている. Fig.4 に 結果の一例を示す[2]. この結果, レーザーラマン分光 法によるトリチウムガスの定量測定が可能なことが明ら かとなった.また、その実用検出限界はトリチウムでは 10 ppm 程度であった。光ファイバ技術を組合わせ遠隔 多点分析システムの開発も行っている.両分光方法とも 基本的には気体分子の分析定量に利用されているが、反 射型セルを用いることにより固体表面に吸着するトリチ ウムの吸着量およびその状態の測定が可能である.

核磁気共鳴吸収分析法は、磁気的性質を有する原子核 を磁場 H₀ に置くと、核スピンのエネルギー準位が分裂 する.そのエネルギー差 ΔE に相当する高周波を照射 すると吸収が生じる.共鳴条件は、高周波の周波数を ν_0 ,プランク定数を \hbar とすると、

 $2\pi\nu_0 = \gamma H_0 = \Delta E/\hbar$ (2) となり、 γ は磁気回転比と呼ばれ核種によって一定の値 を持つ、水素同位体の核特性を Table 2 に示す、表から 明らかなように、NMR は、水素同位体の内、H と T に 対して感度が高い.

NMR は,特に有機化合物の同定に有効であり,トリ チウム標識化合物の測定に使われているが,固体中のト リチウムの測定が原理的には可能であるが,系統的研究

1379

奥野

プラズマ・核融合学会誌 第72巻第12号 1996年12月

Table 2 Nuclear Characteristics of Hydrogen Isotopes.

同位体	核スピン	磁気モー メント	磁気回転比 10 ⁷ Hz/T	相対感度比
H	1/2	4.8371	26.7510	1.00
D	1	1.2125	4.1064	1.45×10^{-6}
·Τ	1/2	5.1594	28.5336	1.21

は行われていないのが現状である.今後の開発に待たざ るをえない.

以上、トリチウムの計測技術全般を概観したが、 Table 3 に、それぞれのトリチウム測定法の試料形態、 実用検出限界等の比較を示す.

7.3 壁材料中トリチウム測定技術

壁材料中のトリチウムの検出・定量するための手法と しては以下のように分類される.

(1)加熱,溶解等で回収したトリチウムの測定

(2)放射線を利用した非破壊測定

(3)イオン、光子等を利用した非破壊測定

(1)としては加熱処理によりトリチウムを脱離させる TDS 法 (Thermal Desorption Spectroscopy) と酸等によ り材料を溶解させトリチウムを取り出す化学エッチング 法が代表的である.前節で紹介した計測法との組み合わ せによりトリチウムの測定を行う.(2)については熱量法, 制動放射線計測,トリチウムイメージング法,オートラ ジオグラフ等が考えられるが、ここでは"その場"測定 の可能性を持つ制動X線計測法とトリチウムイメージン グ法につてい紹介する.(3)については、加速イオンを用 いる方法としてラザフォード後方散乱法 (RBS), 反跳粒 子検出法 (ERD),核反応法 (NRA),粒子励起X線法 (PIXE), 二次イオン質量分析法 (SIMS) 等がある. また, 光子を用いる方法としては紫外光電子分光法 (UPS), X 線光電子分光法 (XPS) イオン散乱を利用する方法があ り、それぞれは、すでに4および5章において詳細に紹 介されているので、本章では割愛する.

以下,昇温脱離法,制動X線計測法およびトリチウム イメージング法による固体中トリチウム測定についての 現状を紹介する.

7.3.1 昇温脱離法 (Thermal Desorption Spectroscopy)

本法は, 試料中に滞留しているトリチウムの量および その存在状態を測定するための最も単純な方法である. 試料を等速昇温加熱して滞留するトリチウムを脱離さ せ, 脱離してくるトリチウムを前節で紹介した方法によ り測定するものである.水素および重水素の場合では, 質量分析計との組み合わせでの測定が一般的ではある. トリチウムを使用する場合は,放射線計測法との組み合 わせにより極微量のトリチウムを使用するだけで非常に 精度の高い測定が可能となる.

等速昇温脱離スペクトルについては, Redhead [6]に より理論的解釈がなされている. 排気速度の大きい条件 で昇温脱離スペクトルを測定した場合, 次のような関係 が成り立つ.

$$\ln(T_{\rm p}^2/\beta) = (E_{\rm d}/RT_{\rm p}) + \ln(E_{\rm d}/nR\nu_{\rm d}) - (n-1)\ln(\sigma)$$
(1)

あるいは

$$\ln(\beta E_{\rm d}/RT_{\rm p}^{2}) + (E_{\rm d}/RT_{\rm p}) = \ln(nR\nu_{\rm d}) + (n-1)\ln(\sigma)$$
(2)

*T*_p:最大脱離速度における温度 β:昇温速度

Ed:脱離の活性化エネルギー

n:反応次数

ν_d:頻度因子

σ:表面濃度

そこで、昇温速度 β を変化させ、 $\ln(T_p^2/\beta)$ に対して $\ln(1/T_p)$ をプロットすることにより脱離の活性化エネル ギーを求めることができる.また、昇温脱離スペクトル を積分することにより滞留していたトリチウム量の絶対 量も測定することができる.この際試料中のトリチウム が残量していないことを確認しなければならないが、確 実な方法としては試料を溶解するか燃焼してすべてのト リチウムを捕集しなければならない.

本法を用いて,田辺ら[7],芦田ら[8]および奥野ら[9] によりプラズマ対向材料中の水素同位体の滞留挙動に関 する研究が行われている. Fig. 5 に奥野らによる D2 ガ スの RF プラズマ照射したグラファイトからの D2 ガス 昇温脱離スペクトルを示す. 図から明らかなように、約 800 K および 1250 K 近傍で脱離速度が最大となり、グ ラファイトに注入された D は少なくとの 2 つの異なる 状態で存在することが明らかとなった. (1) 式の関係 よりそれぞれの活性化エネルギーを求めると 1.8 eV お よび 3.9 eV であることが判明した. この結果から,約 800 K 近傍で脱離する D はグラファイト中の欠陥等のト ラップサイトに捕捉されていたものであり、また、1250 K 近傍については C-D 結合を形成していた D の結合解裂 による脱離に起因するものと推測された.このように TDS 法により、固体中の水素同位体の挙動が測定でき る.また、トリチウムを使用すれば、固体中に滞留する

講	座
---	---

7. トリチウム検出技術と定量評価

奥野

Table 3a Commparison of Tritium Measurement Methods.

1)	放射能测定法
- 1)	瓜豹呢郎足 盔

	試料相 (気液固)	絶対測定	連続	測定時間	試料所要量	廃棄物発生	定量範囲	非接触分析	実用検出限界
電離箱法	気 体		0	0	中量		低~中		10 ⁻⁶ µ Ci/cc
比例計数管	気 体		0	0	中量	×	低		10 ⁻⁶ µ Ci/cc
シンチレーション検出器法	液体		0	0	小量	×	低		
半導体検出器法			0	0			低		
二次電子增倍法	気 体 固体(真空 雰囲気)							0	
熱量測定法	ALL	0			大量		高	0	10-4Ci
制動放射線測定法	ALL		0	0	中 量		高	0	10 ⁻³ Ci

Table 3b Commparison of Tritium Measurement Methods.

2) 物質量測定法

	試料相 (気液固)	絶対測定	連続	測定時間	試料所要量	廃棄物発生	定量範囲	非接触分析	実用検出限界
重量法	液 体 固 体	0			大量		高		10-4Ci
体積法	気 体	0			大量		高		10 ⁻³ Ci
ガスクロマトグラフィ法	気 体				小量	×	中~高		10ppm
質量分析法	気 体			0	微量		中~高		10ppm
赤外線分光法	液 体 固 体		0	0	小量			0	
ラマン 散乱分光法	ALL		0	0	微量		中~高	0	10ppm
N M R 法	液体固体				小量			0	

プラズマ・核融合学会誌 第72巻第12号 1996年12月



Fig. 5 Thermal desorption spectra of D_2 from an isotropic graphite (EPT-10) exposed by D_2 RF plasma.

トリチウムの絶対量を精度よく測定することもできる. 実際,著者らは, RF トリチウムプラズマによる同様の 実験からグラファイト等のプラズマ対向材料中のトリチ ウム滞留量についてより精度の高い測定を行っている[9].

7.3.2 制動 X 線計 測法 (Bremsstrahlung X-ray measurement)

高速電子が,原子核のクーロン場において減速される と,高速電子のエネルギーの一部は制動放射 (bremsstrahlung: slowing-down radiation)の形で電磁放射線に 変換される.制動放射線は,その発生過程によって,内 部制動放射,外部制動放射とに区別される.また,制動 放射線によって標的原子の軌道電子が励起される場合に は,特性X線が放射される.

本測定法は、トリチウムから放射される β線により 発生する制動放射線や特性X線を検出することにより、 非破壊でトリチウムを計量しようとするものである. β 線により放射される制動放射線強度は、質量の実効原子 番号を Z_{eff} とすれば、(Z_{eff} + 3)に比例する.また、β 線の最大エネルギーの2乗に比例する.トリチウムのβ 線は低エネルギー(最大: 18.6 keV,平均: 5.6 keV)で あるので、制動放射線収率も小さいため、本測定法は低 濃度トリチウム測定には適当ではない.測定対象形態は 気相または固相のトリチウムである.

トリチウムの β線のエネルギーが低く,制動放射線 の発生率が低いことから,制動放射線測定法は高濃度ト リチウム測定に適している.本測定法は,ゲッター材等 の固体に吸蔵されたトリチウム量を測定するに適してい る.本方法においては,制動放射線は,高原子番号の材



Fig. 6 Discrimination behavior of decay induced photon spectra of tritium from HgI₂ semiconductor detector (tritium: 100 GBq), descriminator: AI, counting live time: 100 s).

料から放出されるため、測定器の幾何学的な形状・寸法 により特性が変わってくる.

固体中のトリチウム測定の例として,岸川ら[10]による Tiターゲットからの制動X線測定があげられる.Fig.6 に観測されたX線スペクトルを示す.図ではAlの窓材 の厚さによるチタンの特性X線(4.5~4.9 keV)と制動X 線の強度変化を示しているが,いずれにしろチタンの特 性X線または制動X線により固体中のトリチウムの測定 が可能なことを示した.

松山ら[11]は、トリチウムで標識されたポリメチルメ タアクリレート (PMM) を用いて、固体内トリチウム測 定についての可能性の検討を進めている. Fig. 7 には実 験装置を示し、Fig. 8 には厚さ 1mm の PMM 円盤から の制動X線スペクトルの実測(●)を示す.また、図に は、松山らが開発した固体材料からの制動X線スペクト ルのシミュレーションプログラムによる計算スペクトル (○)を重ねて示す.図より6 keV 以下の低エネルギー

1382



Fig. 7 A block diagram of the experimental apparatus used for measurement of bremsstrahlung X-rays.



Fig. 8 Comparison of observed (●) and calculated (○) spectra from the tritium labeled PMM disk.

領域を除いて両スペクトルは極めてよい一致を示してい る. すなわち,開発されたシミュレーションプログラム により固体材料からの制動X線スペクトルが再現できる ことを示している. このシミュレーションプログラムに よりトリチウムが分布する深さ,すなわち PMM 試料 の厚み変化によるスペクトル変化の計算結果を Fig.9 に示す. 試料の厚みとともに制動X線の強度は増加し, スペクトルの最大値は高エネルギー側に移動しているこ







Fig. 10 Comparison of detectable depths of tritium between β -ray and bremsstrahlung counting methods.

とがわかる.すなわち,トリチウムの分布の深さは高エ ネルギーX線成分の増減に大きく関わっていることが判 明した.したがって,制動X線スペクトルのピーク位置 および高エネルギーX線の強度分布の形状により,トリ チウムの分布状態を推測することが可能である.Fig. 10には,β線計測法と制動X線測定法によるスペクト ル強度の試料厚さ依存性を比較したものである.β線測 定法では約2μm 厚さでスペクトルが飽和しており,2

プラズマ・核融合学会誌 第72巻第12号 1996年12月

µm 以上の深さに分布するトリチウムは測定できないこ とを示している.これに対して、制動X線測定では数 mm の深さに分布するトリチウムの測定が可能であるこ とを示している.実験で使用された試料が有機物である ことを念頭におけば、この結果から、核融合炉プラズマ 対向材料である炭素系材料、ベリリウムおよびホウ素系 材料にたいしても同様の深さ情報を得ることが可能であ ることを示しており、本法が固体材料中のトリチウムの 測定方法として有効であると言えよう.現在、ステンレ ス鋼304等金属材料についてもその可能性の検討が進め られている.

7.3.3 トリチウムイメージング法 (Tritium imaging)

トリチウムイメージング法は、Malinowski [12]によ り開発されたトリチウム測定法である.これは、トリチ ウムのβ線と材料との相互作用により発生する2次電 子を測定する方法である.原理的にはオートラジオグラ フと同じであるが、2次電子の検出方法が、トリチウム イメージングではマイクロチャンネルプレート(MCP) を使うのに対して、オートラジオグラフではフィルムを 使うところに違いがある.

トリチウムのβ線の平均エネルギーが5.6 keVである ことからトリチウムが存在する材料によって若干異なる が,約200 nm 程度の深さまでのトリチウム測定が可能 であり,核融合炉のプラズマ対向材料に打ち込まれるト リチウムが1 keV 程度で,その飛程は20 nm 程度であ るから,プラズマ対向材料中のトリチウム測定に利用で きる可能性がある.本方法は,NRAや SIMS 等のよう にイオンビームを利用する方法と比較して,簡便である ことが大きな利点である.櫛田ら[12]による装置の一例 を Fig. 11 に示す.装置は試料ホルダー,レンズ系およ び検出部から構成されている.試料から放出される2次 電子はレンズ系により MCP に焦点を合わされ,増倍さ れる.増倍した電子が発光膜に衝突することにより可視 化される.

櫛田ら[13]は,異方性グラファイト中にイオン注入され たトリチウムのイメージング測定に成功している.Fig.12 に実験結果を示す.図(a)と(d)はグラファイトにそれぞ れ 20 keV (試料#1)および 30 kev (試料#2)のHT⁺ イオンをフルエンス1×10¹¹/cm²で照射したときのトリ チウムイメージング写真である.図(b)と(d)は試料#1 および#2それぞれ1575Kおよび1975Kまで熱アニーリ ングしたときのイメージング写真である.イメージング のアニーリングによる変化から櫛田らはトリチウムのグ ラファイト中での層方向の拡散係数を評価し,



Fig. 11 Tritium imaging apparatus (not to scale).

従来のデータと一致することを示した.これら結果から, トリチウムイメージング法はトリチウム測定のみならず トリチウムの固体内挙動の研究にも有効な手法であるこ とがわかる.特に,上記のようにプラズマ対向材料のよ うにトリチウムの打ち込まれる深さが数10nm程度で ある場合は,非常に簡便な方法として,プラズマ対向材 料中トリチウムの"その場"測定に有効であると思われる.

7.4 おわりに

トリチウムの計測手法を概観するとともに、固体内ト リチウムの測定手法として、昇温脱離法、制動X線法お よびトリチウムイメージング法について紹介した. PWI 研究の視点から壁材料中のトリチウム測定を考えた場 合,本章で紹介したトリチウム測定法および4,5章等 で紹介されたイオン、光子を用いた測定方法を、その研 究目的,要求精度,実験系等に合わせて選択し,また, 場合によっては併用すれば十分である.しかしながら, 先に述べたように、壁材料中のトリチウムの測定におい て最も重要な視点は、核融合炉におけるトリチウムトラ ッキングの観点から壁材料中のトリチウムインベント リーを如何に簡便に、精度よく測定するかにある.この 視点から考えた場合,本章で紹介した制動X線測定法お よびトリチウムイメージング法は簡便で、"その場"測 定ができる可能性が高い.しかしながら、両方法をトリ チウム以外の放射性物質を含まない試料について測定し ている限りは非常に有効であるが、実際の核融合炉環境 下の壁材料中にはその他の γ および β 放射体等が含ま れることが予測され、それらに起因する制動X線あるい は2次電子が測定の障害となる可能性がある.今後,こ の点を如何に解決するかが両方法の課題である.また, これらに代わりうる壁材料中トリチウム測定法の開発も

濜

寙

7. トリチウム検出技術と定量評価



Fig. 12 Photograph of tritium images. (a) Sample # 1 as received. (b) Sample # 1 after annealing to 1575 K. (c) Sample # 2 as received. (d) Sample # 2 after annealing to 1975 K.

必要であろう.いずれにしろ,核融合炉おけるトリチウ ムトラッキング技術の確立と言った視点での材料中のト リチウム測定技術の開発は今後の重要課題と考えられる.

参考文献

- [1] K. Okuno, T. Uda, S. O'hira and Y. Naruse, J. Nucl. Sci. Technol. 28, 509 (1991).
- [2] S. O'hira and K. Okuno, Fusion Technol. in press (1996).
- [3] T. Hayashi, M. Yamada, T. Suzuki, Y. Matsuda and K. Okuno, Fusion Technol. 28, 1015 (1995).
- [4] 由良治,木村 美和子:応用物理 33, 342 (1964).
- [5] 奥野 健二, 私信.

- [6] P. A. Redhead, VACUUM 12, 203 (1962).
- [7] T. Tanabe and Y. Watanabe, J. Nucl. Mater. 179-181, 231 (1991).
- [8] K. Ashida, K. Ichimura, M. Matsuyama and K. Watanabe, J. Nucl. Mater. 128/129, 792 (1984).
- [9] Y. Yaita, S. O'hira and K. Okuno, Fusion Technol. 28, 1294 (1995).
- [10] T. Kishikawa, Fusion Engn. Design 10, 411 (1989).
- [11] M. Matsuyama and K. Watanabe, Ann. Rept. Hydrogen Isot. Res. Center, Toyama Univ. *in press* (1996).
- [12] M. E. Malinowski, Appl. Phys. Lett. 39, 509 (1981).
- [13] K. Kushita, I. Youle, A. A. Haasz and J. A. Sawicki, J. Nucl. Mater. **179-181**, 235 (1991).