

JAERI-Research
2001-023



JP0150333



希ガス-酸素系の低温プラズマ励起反応に関する研究

2001年3月

小河 浩晃*・木内 清・佐分利 祓・深谷 清

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2001

編集兼発行 日本原子力研究所

希ガス-酸素系の低温プラズマ励起反応に関する研究

日本原子力研究所東海研究所エネルギー・システム研究部

小河 浩晃*・木内 清・佐分利 祯**・深谷 清

(2001年2月9日受理)

発電炉の酸化物燃料では、燃焼度と共に放射性元素のXeやKr等の希ガスが多量に生成し、燃料と被覆管のギャップ内に放出して、伝熱阻害を促進し、被覆管の健全性を低下させることが重要な課題となっている。また、それらのオフガス中の回収技術の開発も急務となっている。

本研究では、重元素の放射性希ガスであるXeやKr等の燃料中の振る舞いや、廃棄物としての回収・固定化のための新技術の基礎検討として、これらのガスの重照射場における化学的反応性を、量子線による励起効果の新しい観点から基礎検討した。重照射場において当該ガスが低温プラズマ化して化学反応性が活性化することを想定して、これまでに未解明で、実用的にも重要な希ガス-酸素系の反応性を解析した。試験装置として、RF励起型の低温プラズマ反応試験装置を整備して、重元素希ガス自身及び実用環境で想定される酸素との混合ガス系について、プラズマ励起反応の起こり易さを評価して、重照射場における当該ガスの存在状態や反応性を検討した。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

* 特別研究生：東京工業大学

** 科学技術特別研究員

A Study on Rare Gas - Oxygen Reactions Excited by Low Temperature Plasma.

Hiroaki OGAWA * , Kiyoshi KIUCHI, Tei SABURI* and Kiyoshi FUKAYA

Department of Nuclear Energy System
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 9, 2001)

The concentration of radioactive rare gases like Xe and Kr in nuclear fuels on PWRs and BWRs increases promptly with dependent on the burn-up ratio. These gases are affect to the long performance of nuclear fuel elements due to accumulate in gap between cladding and fuel, because it has the low thermal conductivity. It is also required to develop the practical means to correct these gases including in the off-gas in nuclear plants for inhibiting the environmental pollution. On the present study, we carried out the fundamental research to evaluate the chemical reactivity of these gases under heavy irradiation. We proposed the new excitation mechanism of these gases by expecting the formation of low energy plasma under irradiation. The chemical reactivity on rare gas-oxygen system was examined by using the low energy plasma driven reaction apparatus installed the RF excitation source. The density of electrons and lower pressure limit for the RF excitation was depended on the ionization energy of each gas. It is clarified that Xe is easy to form gaseous oxide due to the high excitation efficiency in low energy plasma.

Keywords : Low Temperature Plasma, Off-gas, Collection Technology, Heat Transfer, Xenon, Krypton, Rare Gas-Oxygen System, Electron Density, Electron Temperature

* Student Research Fellow : Tokyo Institute of Technology

* Domestic Research Fellow : Japan Science and Technology Corporation

目次

1. 緒 言	1
1.1 研究の背景	1
1.2 核分裂生成物の発生量の評価	1
2. 試験方法	5
2.1 低温プラズマ実験装置の構成	5
2.2 プラズマ発生系	5
2.3 メインチャンバー	5
2.4 プラズマ診断系	5
2.5 ガス導入系	6
2.6 排気系	6
2.7 実験条件	6
3. 結果と考察	11
3.1 ガス圧力と電子密度および電子温度の関係	11
3.2 RF出力と電子密度の関係	11
3.3 混合率と電子温度および電子密度の関係	11
3.4 ガス圧と平均自由行程の関係	12
4. 総括	20
謝 辞	20
参考文献	21

Contents

1. Introduction	1
1.1 Background	1
1.2 Evaluation for Mass Fraction of Fission Products	1
2. Experimental Method	5
2.1 Construction for Device of Low Temperature Plasma	5
2.2 Plasma Generation System.....	5
2.3 Main Chamber	5
2.4 Plasma Diagnostic System	5
2.5 Gas Inlet System	6
2.6 Vacuum Exhaust System	6
2.7 Experimental Conditions	6
3. Results and Discussion	11
3.1 Relationship Between Gas Pressure and Electron Density / Electron Temperature	11
3.2 Relationship Between RF Output and Electron Density	11
3.3 Relationship Between Mixture Ratio and Electron Temperature / Electron Density	11
3.4 Relationship Between Gas Pressure and Mean Free Path	12
4. Conclusion	20
Acknowledgment	20
References	21

1. 緒 言

1.1 研究の背景

発電炉の酸化物燃料では、燃焼度と共に放射性中元素の Xe や Kr 等の希ガスが多量に生成する。それらの化学的性質や燃料中の存在状態は、高燃焼度側の燃料健全性や廃棄物としての処理・処分の観点から重要となるほか、有効利用の観点から稀少価値の高い元素としても注目されている。特に、放射性 Xe は、半減期の最も長いもので約一ヶ月程度であることから、一般工業用途へ利用できる可能性が高い。酸化物燃料中で生成した希ガスは、燃焼度と共に、燃料と被覆管のギャップ内に次第に放出されるようになる。重元素希ガスは、ギャップ充填剤の He と比較して熱伝導率が一桁以上も低いので、伝熱阻害が促進される。このために、放出量と共に燃料温度の上昇を招き、燃料からの FP の放出が一層増大して被覆管健全性の低下が促進されることになる[1]。希ガスは、化学的安定性の高い原子であるために、現用では経済性が非常に乏しい低温吸着法の回収技術が実用化されている程度であり、トリチウムと同様に実用的な回収技術が開発されていない。現在の原子力発電所、再処理工場等の施設から廃棄されるオフガス中に含まれる放射性の重元素希ガス (^{222}Rn , ^{133}Xe , $^{85\text{m}}\text{Kr}$ ~ ^{88}Kr) の殆どは、希釈されて大気中へ放出されている。将来的な環境安全性や資源の有効利用の観点から、これらのガスの化学的性質の解明と、それを応用した回収技術の開発が急務となっている。

本研究では、上述の観点から、重元素希ガスの Xe や Kr 等の燃料中の振る舞いや、廃棄物としての回収・固定化のための新技術の基礎検討として、これらのガスの放射線場における化学的反応挙動の基礎評価を実施した。特に、重元素希ガスは、不飽和核を有するものの、電子励起に必要なエネルギーが非常に低いことから、放射線場においては比較的高い化学的反応性を有している可能性がある。既に、フッ素と重元素希ガスの化合物に関しては、いくつかの報告がされている[2-11]。凝縮系であっても、放射線場では高エネルギー量子線やコンプトン散乱電子を受ける環境と材料の界面では、電子励起により多量の原子、イオンや錯体等の励起種が生成して、局所的には低温プラズマと同様な環境状態が生成しているものと想定される。著者らは、被覆管表面で高温水中の浸漬と比較して一桁以上加速される酸化や水素透過の機構が、低温プラズマ励起条件下の表面反応の加速現象と類似した現象であることを明らかにしている[12-15]。また、電子励起による化学的活性種の生成断面積は、電子エネルギーが 10eV 以下と低い条件で極大を持つことが知られている[16]。当該観点から、RF 駆動型の低温プラズマ反応試験装置を整備して、重元素希ガス自身及び実用環境で想定される酸素との混合ガス系に関して、プラズマ励起のし易さの観点からの評価試験を行い、これまでに未解明で、実用的にも重要な希ガス - 酸素系の反応性を解析した。

1.2 核分裂生成物の発生量の評価

核分裂生成物の発生量の評価は、解析コード ORIGEN-II を用い、Table 1 で想定した燃焼条件に対して計算を行った。その結果を Fig.1a に示す。生成した希ガスのはほとんどは、Xe であり、他の物質と比較してもその生成量は、著しいことが分かった。Kr については、生成量の低い方に分

類することができる。また、Xeの天然同位体組成と核分裂生成物からの組成を比較すると、Fig.1bに示すように、核分裂生成物からの場合、 ^{129}Xe が最も少ないので特徴である。

解析結果からも、生成量から判断して、重照射場中でのXeの化学的挙動を明らかにすることは重要であることが分かる。また、回収技術を確立することは、将来的な環境安全性や資源の有効利用の観点から、大きな課題となっている。

Table 1 Condition for Calculation.

Fuel name	PWR fuel
Fuel type	PWR
Primary concentration	4.5Wt%
Burn-up	45GWd/t
Power ratio	38MW/t
Cooling term	4 years

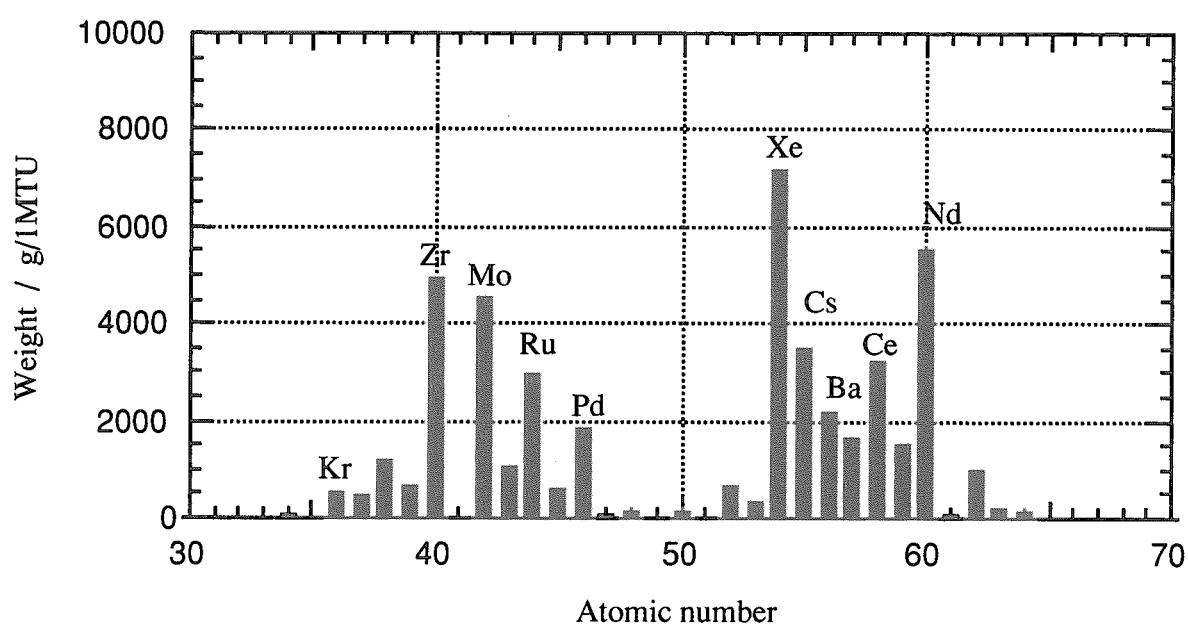


Fig.1a Mass fraction for fission products.

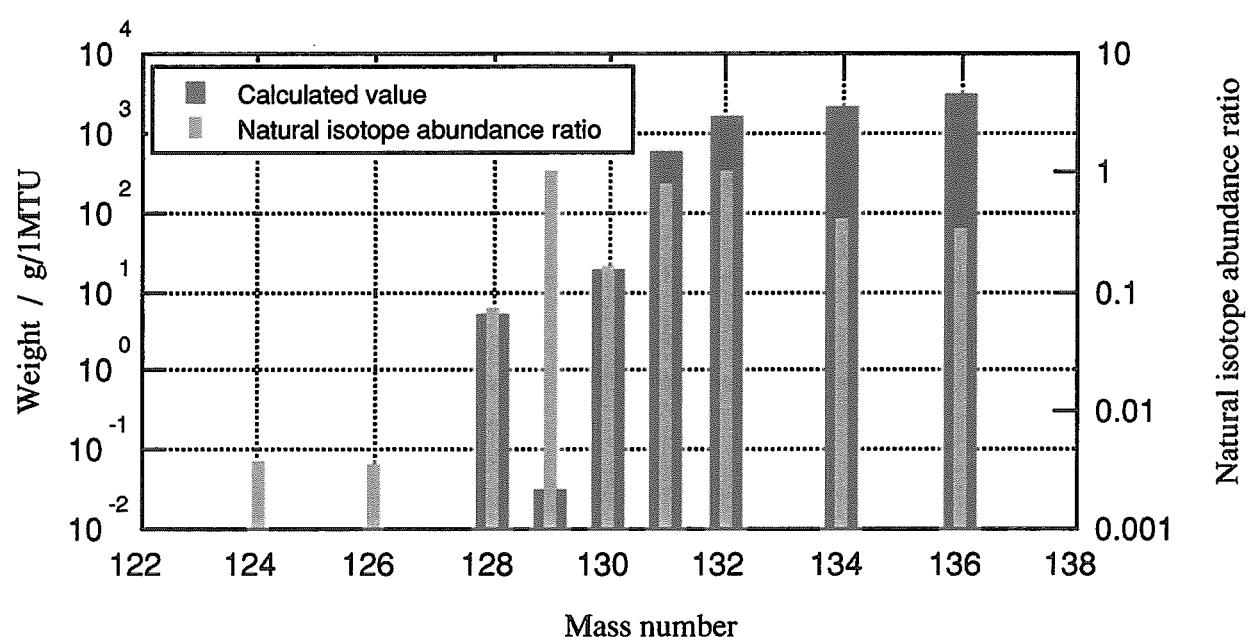


Fig.1b Isotope mass fraction of Xe.

2. 試験方法

2.1 低温プラズマ実験装置の構成

希ガス-酸素系の低温プラズマにおける化学反応の基礎解析に必要なRF励起の試験装置を整備した。Fig.1の概略図に示すような実験装置を準備した。この装置は、低温プラズマ発生用RF励起源、反応容器、プラズマ診断系、ガス導入系、排気系から構成されている。以下に、これらの詳細を述べる。

2.2 プラズマ発生系

プラズマ発生源には、RF発振器を用いた。RF発振器は、RF電源とマッチング回路から構成されており、その最大出力は300W、周波数は13.56MHzである。RF印加用の電極は、ディスク状の平行平板であり、容量結合方式により典型的なグロー放電によるプラズマを発生させることができる。この電極は、RFの印加により発熱するために、冷却水を循環させて、常時15°Cに保たつようしている。また、容量結合方式の特徴は、一般的に、比較的大きな容量のプラズマ生成に適している。

2.3 メインチャンバー

メインチャンバーは、SUS304製で、円筒形をしており、大きさは、約25d × 25h cmである。上部には、RF印加用電極、下部には、ステージがセットされており、円筒側面には、プラズマ診断系、ガス導入系、排気系が接続されている。チャンバー内の圧力は、低真空側ではピラニー真空計、高真空側ではペニング真空計を用いて測定した。

2.4 プラズマ診断系

Fig.2aにプラズマ診断系の概略図を示す。診断方法としては、測定系が単純であり、応答速度が速く、長期間のモニタリングに優れたトリプルプローブ法を採用した。この手法では、電子温度ならびに電子密度の情報を得ることができる。しかしながら、この手法では、ダブルプローブ法と同様に空間電位が得られないため、プラズマポテンシャルを得ることができない。トリプルプローブ法の詳細は、文献[16-18]に記述されている。プローブの探針は、0.75mm ϕ のタンゲステンワイヤで作られており、そのジオメトリは、先端1mmを除きセラミック碍子で各探針を覆っており、また、それらの探針間隔を4mmとし、直線上に配置させた。

電子温度を kT_e のエネルギー単位で評価すると、電子温度は、次式 (2-1) から求められる。

$$\frac{I_1 + I_2}{I_1 + I_3} = \frac{1 - \exp(-eV_{d2}/kT_e)}{1 - \exp(-eV_{d3}/kT_e)} \quad (2-1)$$

(ただし、 $I_1=I_2+I_3$ である)

ここで、 I_2 および I_3 は、各探針に流れる電流である。 V_{d2} および V_{d3} は、測定系に印加される電圧である。 e 、 k 、 T_e は、それぞれ、電子の電荷、ボルツマン定数、電子温度である。

(2-1) 式は、 kT_e について一般に解くことはできないので、予め $(I_1+I_2) / (I_1+I_3)$ と kT_e の関係をグラフ (Fig.2b を参照) にしておき、実測された値から、あらためて kT_e を求める。

電子密度 n_e は、トリプルプローブ法では空間電位が得られないので、ダブルプローブ法と同様に、イオン電流 I_i から求める。次式 (2-2) にイオン電流の関係式を、(2-3) に n_e の関係式を示す。

$$I_i = \frac{I_3 - I_2 \exp(-e\Delta V / kT_e)}{1 - \exp(-e\Delta V / kT_e)} \quad (2-2)$$

(ただし、 $\Delta V = V_{d3} - V_{d2}$ である)

$$n_e = \frac{I_i}{0.61e \left(\frac{kT_e}{m_i} \right)^{1/2} S} \quad (2-3)$$

ここで、 m_i はイオンの質量、 S はプローブの表面積である。

2.5 ガス導入系

ガス導入系については、混合器が設置されており、希ガスと酸素を任意の比率で混合させることができる。その混合率は、各ガス圧を接続されているバラトロン真空計によって読みとり、調整されて、[希ガス分圧 / 全圧]として評価した。ここで、全圧は、[希ガス分圧 + 酸素分圧]である。

2.6 排気系

排気系は、メインポンプとして排気量 50lit/min のターボ分子ポンプ、補助ポンプとして排気量 135lit/min のロータリーポンプで構成されており、メインチャンバー内の到達真空度は、ペニンギ真空計を用いて測定した結果、 10^{-6} torr 以下であった。

2.7 実験条件

実験条件は、Table 2 に示すように、RF出力及びガス圧力を、10 ~ 100W 及び 0.001 ~ 0.1torr の範囲で設定した。ガスには、He、Ne、Ar、Kr、Xe の希ガス、反応性ガスとして酸素のいずれも高純度仕様のものを用いた。ガス雰囲気は、各々の単独ガス、及び、酸素と希ガスの混合系とし

た。最初に、各ガスの充填条件で低温プラズマを発生させて、プラズマ診断を実施した。反応系内ガス圧は、低真空側で安定したプラズマを生成させた後、測定対象の高真空側へチャンバー内を減圧する方法による連続測定を行った。プラズマ診断では、ガス圧に対して、電子温度およびイオン密度と対応関係にある電子密度を測定した。また、RF出力に対する電子密度の関係も評価した。

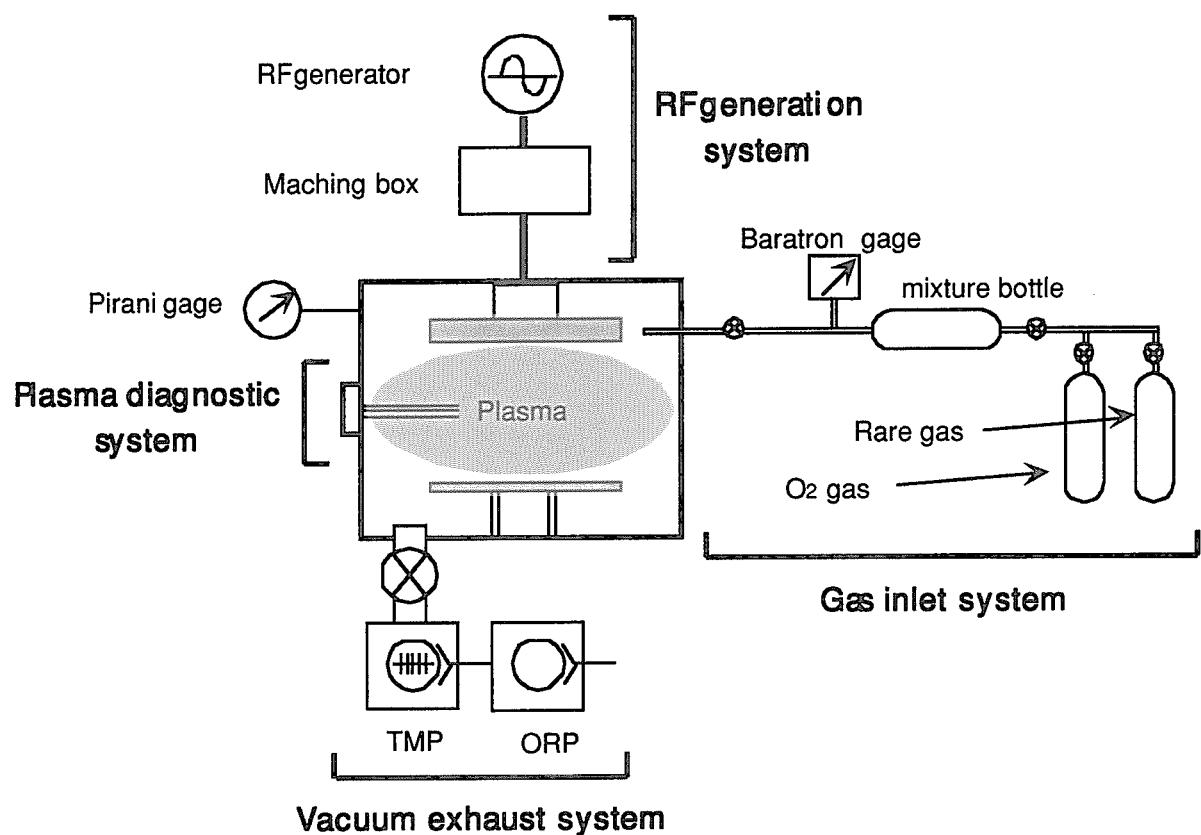


Fig.2a Experimental apparatus.

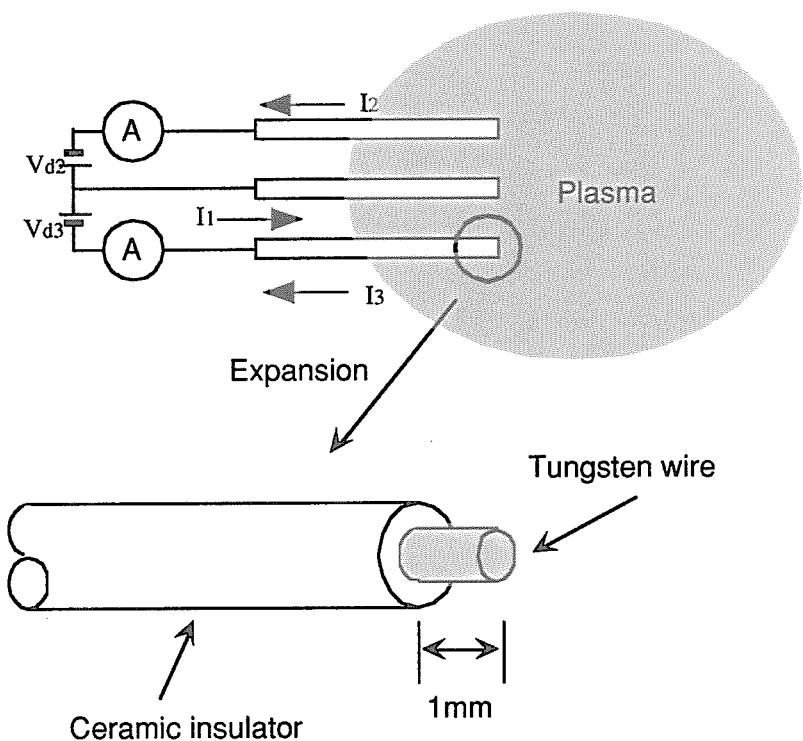


Fig.2b Triple-Probe.

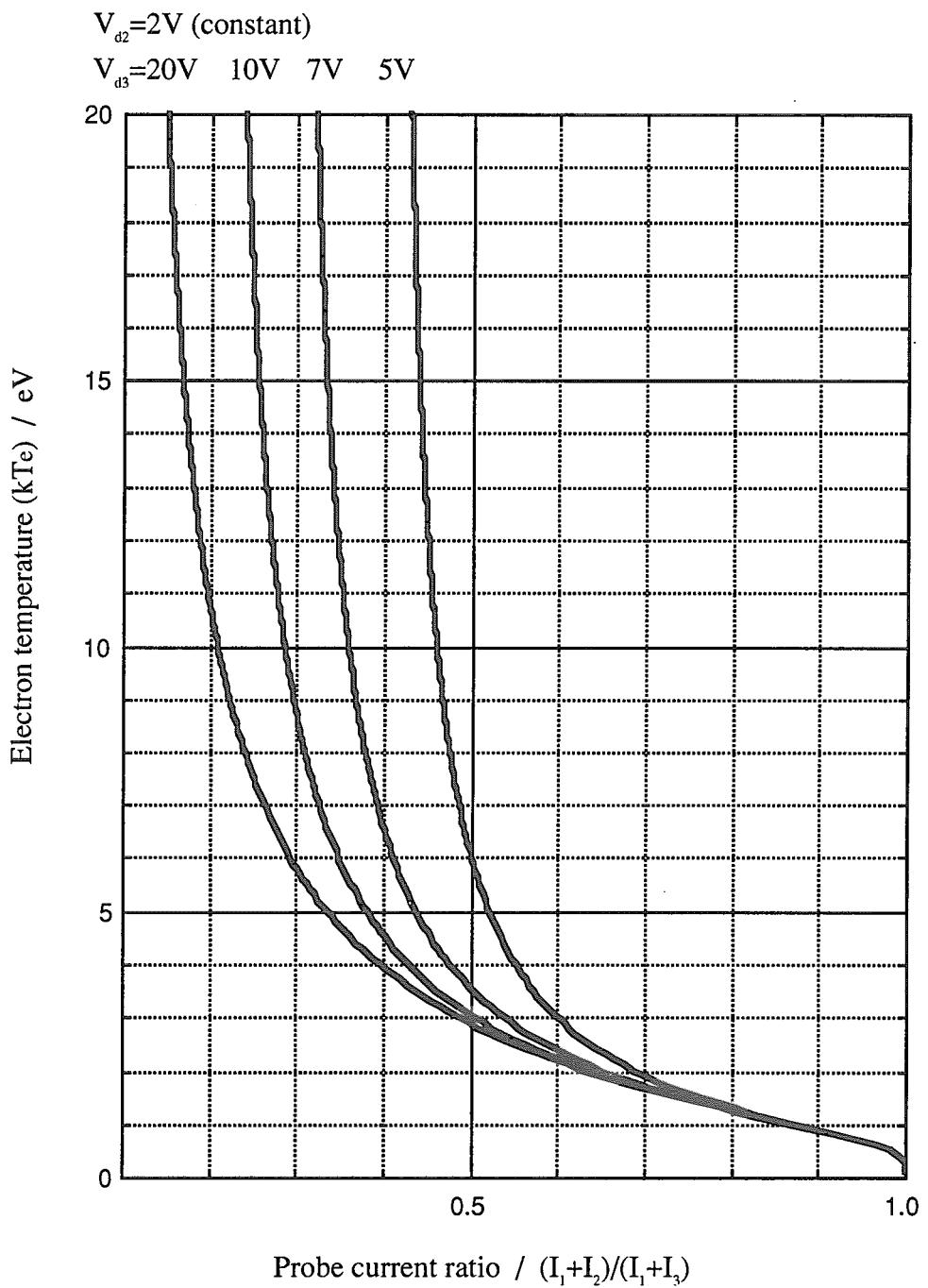


Fig.2c Relationship between probe current ratio and electron temperature.

Table.2 Experimental condition and primary ionization energy.

Rare gas	He, Ne, Ar, Kr, Xe
Reaction gas	O ₂
RF output power / W	10, 20, 50, 100
Pressure / torr	0.1 ~ 0.001
Mixture ratio	0 ~ 1

3. 結果と考察

3.1 ガス圧力と電子密度および電子温度の関係

各種希ガスと酸素ガスを用いたプラズマ状態におけるガス圧と電子密度および電子温度の関係を Fig.3-1a と b に示す。なお、RF出力毎に評価している。

電子密度とガス圧力の関係では、イオン化エネルギーの違いにより二つの傾向に分けることができる。一つは、イオン化エネルギーの高い、軽元素の He、Ne、Ar の場合では、ガス圧が減少するに従って、電子密度も減少している。もう一つは、比較的イオン化エネルギーの低い、重元素の Kr、Xe および O₂ の場合で、電子密度は、ほぼガス圧 0.01 torr のときに極大値を示す傾向がある。その程度は、最も小さいときと比べて約 2 倍であった。また、これらの傾向は、RF出力を上げても同じ傾向をもって全体的に増大した。ところで、He、Ne、Ar は、大気側で高い電子密度を示した。これは、これらのイオン化エネルギーが高いため、プラズマが、電極近傍でしか生成されないことが影響していると考えられる。

電子温度とガス圧の関係では、試験対象の全ガスにおいて、ガス圧によって電子温度に極端な変動を生じることはないが、上述の電子密度の圧力依存性と弱い逆相関性を示した。

3.2 RF出力と電子密度の関係

前節で、電子密度が極大値を示したガス圧 0.01 torr 条件において、各種ガスの RF 出力と電子密度の関係を Fig.3-2a に示す。RF 出力が増加するに従って、電子密度も増加することは前節で述べたが、それは、100W 出力において、極めて明瞭な違いとなって現れている。これは生成したプラズマの密度と密接に関係していると考えられ、RF 出力が 100W 以上で十分なプラズマ励起が起こる条件となることを示唆している。各ガスの電子密度の大小関係は、O₂ を除き、イオン化エネルギーと密接な対応を見せた。ここで、特に 100W 出力時における各種ガスの電子密度とイオン化エネルギーの関係を Fig.3-2b に表すと、イオン化エネルギーと電子密度の間に、O₂ を除き、明瞭な相関関係があることが確認できた。O₂ について、本来なら、その電子密度は、イオン化エネルギーの観点から推測すると、Xe の電子密度と同程度の値を示すはずである。しかしながら、実際は、1/2 度になっている。この異なる原因については、定性的には次のように考察できる。今回、生成したプラズマは、典型的なグロー放電による弱電離プラズマであるため、プラズマ中に中性分子の酸素も多量に存在している。酸素は、ハロゲン属と同様に電気陰性度が大きく、他の元素（物質）から電子を奪い取りやすいため、プラズマ状態にしたときに生成した電子は、中性酸素分子にトラップされるという電子付着効果を有する。その結果、電子密度としては、イオン化エネルギーの観点から比較した場合、本来の値から減少した値を示すものと判断できる。1/2 度減少する原因については、今回の実験からは、明確な説明はできないが、プラズマ状態にした場合、酸素分子（原子）は、電子と極めて相互作用を起こしやすいと判断できる。

3.3 混合率と電子温度および電子密度の関係

本節では、希ガスに酸素を混合した場合のその混合率と電子温度および電子密度の関係を、RF出力を変えた条件と併せて、Fig.3-3に示す。電子温度および電子密度は、イオン化工エネルギーの高いHe、Neを除き、20W以下の条件では、混合率との明確な相関関係は見られない。しかしながら、50Wあるいは適切な条件であると判断した100Wにおいて、電子密度は、Heの場合、酸素分圧が増加する（混合率としては、小さい値）に従って、増加傾向を示し、Kr、Xeの場合、それとは反対になり、酸素分圧が増加するに従って、減少する傾向を示す。特に、前節3.1で顕著な極大値を示したKrおよびXeに対して、その傾向は、非常に著しい。希ガス-酸素系の場合、酸素分圧により、傾向が逆転する原因は、前節3.2で明らかとなった理由から説明することができる。すなわち、100W出力での電子密度の大小関係は、 $Xe > Kr > Ar > O_2 > Ne > He$ であり、 O_2 より大きい Xe および Kr の電子密度は、酸素を混合した場合、酸素濃度が増加するに従って、希ガスのみの場合の値から平均化されて、減少傾向を示し、 O_2 より小さい He の場合は、逆の増加傾向を示す。 O_2 の電子密度と隣り合った Ar あるいは Ne については、その傾向は非常に弱い。

3.4 ガス圧と平均自由行程の関係

本節では、ガス圧と平均自由行程との関係を調べた。平均自由行程 λ は、一般に、次式で定義することができる。

$$\lambda = \frac{1}{\sigma_s n_n} \quad (3-1)$$

ここで、 σ_s は電子の運動量移行断面積（ m^2 ）、 n_n はガスの密度（ m^{-3} ）である。対象電子温度は、0から10eVの間にあり、この電子は、中性原子に対して、イオン化には関与せず（ペニング効果によるイオン化はあり得る）、そのほとんどが、励起に関与している。各種希ガスおよび酸素の運動量移行断面積 σ_s と電子温度の関係[2.3]をFig.3-4aに示す。ガス密度 n_n は、チャンバー内圧力から気体の状態方程式を用いて換算でき、実際の電子温度は、実験で求まっているので、Fig.3-4aから、運動量移行断面積 σ_s を算出すれば、平均自由行程 λ は、上式(3-1)から求めることができる。ガス圧と平均自由行程の関係は、Fig.3-4bのようになる。これまで、注目してきたガス圧0.01torrにおいて、平均自由行程の大きい順に、 $Ne > Xe > Kr > Ar > O_2 > He$ の関係にあることがわかった。 Ne を除けば、ほぼ質量数の大きい順となった。 Ne は、対象電子温度における運動量移行断面積が、他のガスと比較して、約一桁小さいために、結果として平均自由行程が大きくなつたものであると考えられる。また、Fig.3-4aから分かるように、通常、質量数が増加するに従って、運動量移行断面積も大きくなり、同一の対象電子温度（2～3eV）で評価した場合、平均自由行程は、 $Ne > Ar > Kr > O_2 \approx Xe \approx He$ の順となると考えられる。本研究で、ほぼ逆の関係となっているのは、実際に測定した電子温度を使用した結果によるものである。この結果から、プラズマによって生成した電子は、他の希ガスよりも反応性に富む Xe ガスあるいは Kr ガス中では、「電子雰囲気」の状態にあり、高密度の低エネルギーの電子による励起が十分に行われていることが示唆される。また、

平均自由行程を見積もる場合、実際に測定した電子温度を用いなければならないことが分かった。

次に、高真空側でのプラズマ生成可能な最小ガス圧を評価した。これまでの測定では、プラズマを発生させながら減圧を行い、各パラメータを測定したが、今回、減圧を行う毎に、プラズマを消滅させ、プラズマ生成可能な高真空側での最小ガス圧を求めた。その結果をFig.3-4cに示す。この結果から、O₂ガスを除き、イオン化エネルギーの小さい順に、より高真空側でプラズマが生成できることが分かる。プラズマ生成のし易さに関しては、化学種のイオン化エネルギーと密接な関係があり、本実験では、これを明瞭に再現している結果となった。また、O₂ガスについて、一連の傾向から下方に外れているのは、前節で議論してきた電子付着効果により、放電に必要とされる速度の大きい電子が速度の小さい負イオンに変換されるため、再結合が頻繁に行われる結果、放電阻止やプラズマの消滅あるいは、放電現象を困難にしている働きが顕著に現れている。

これまでにXeおよびKrの安定な化合物ではフッ化物が知られている。しかし、プラズマ中では、Xe-O₂系あるいはKr-O₂系混合ガス系においても化合物が生成する可能性が高いことが明らかになったことから、今後は、プラズマの分光や質量分析計を用いた反応生成物の測定等による反応機構の詳細な解明が必要である。

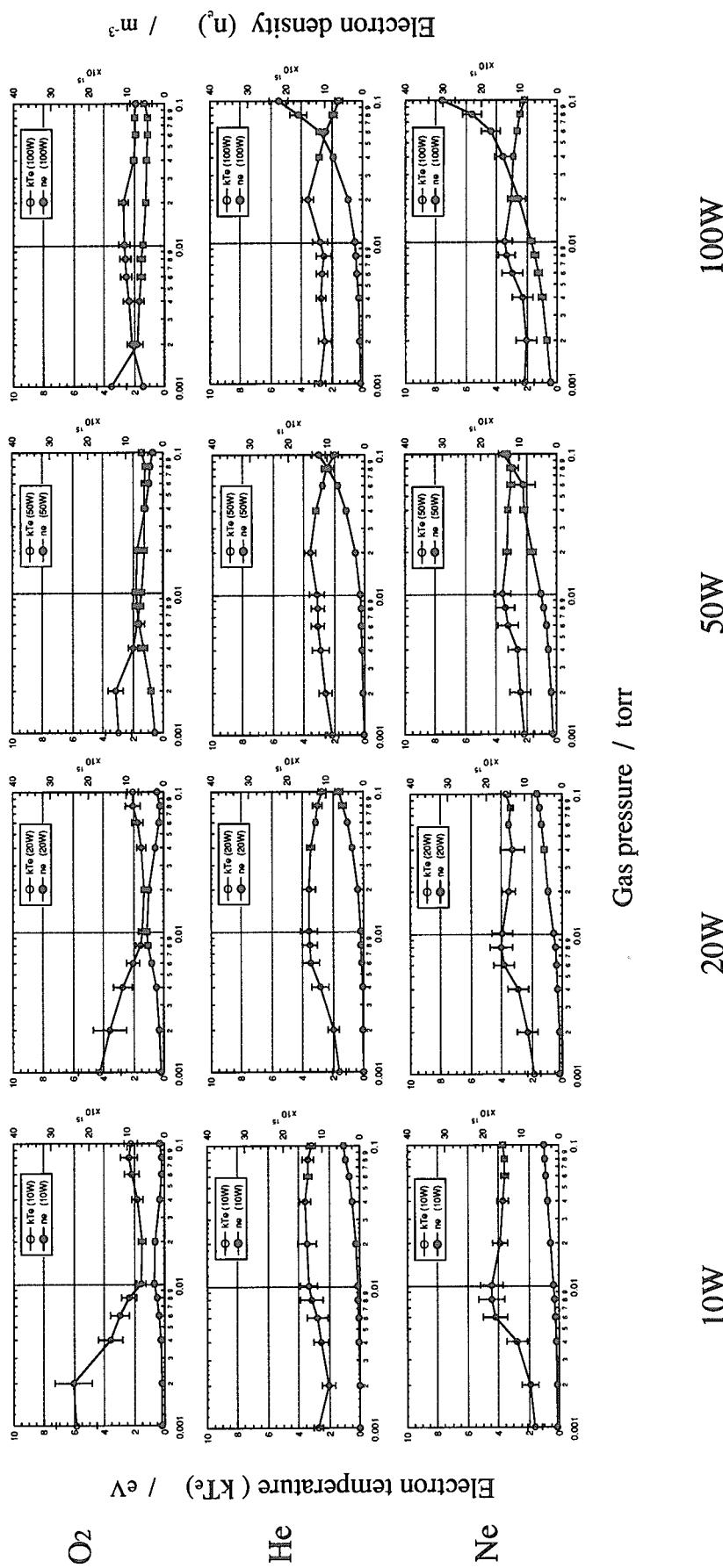


Fig.3-1a Relationship between gas pressure and electron density or the temperature with RF output power for O₂, He and Ne.

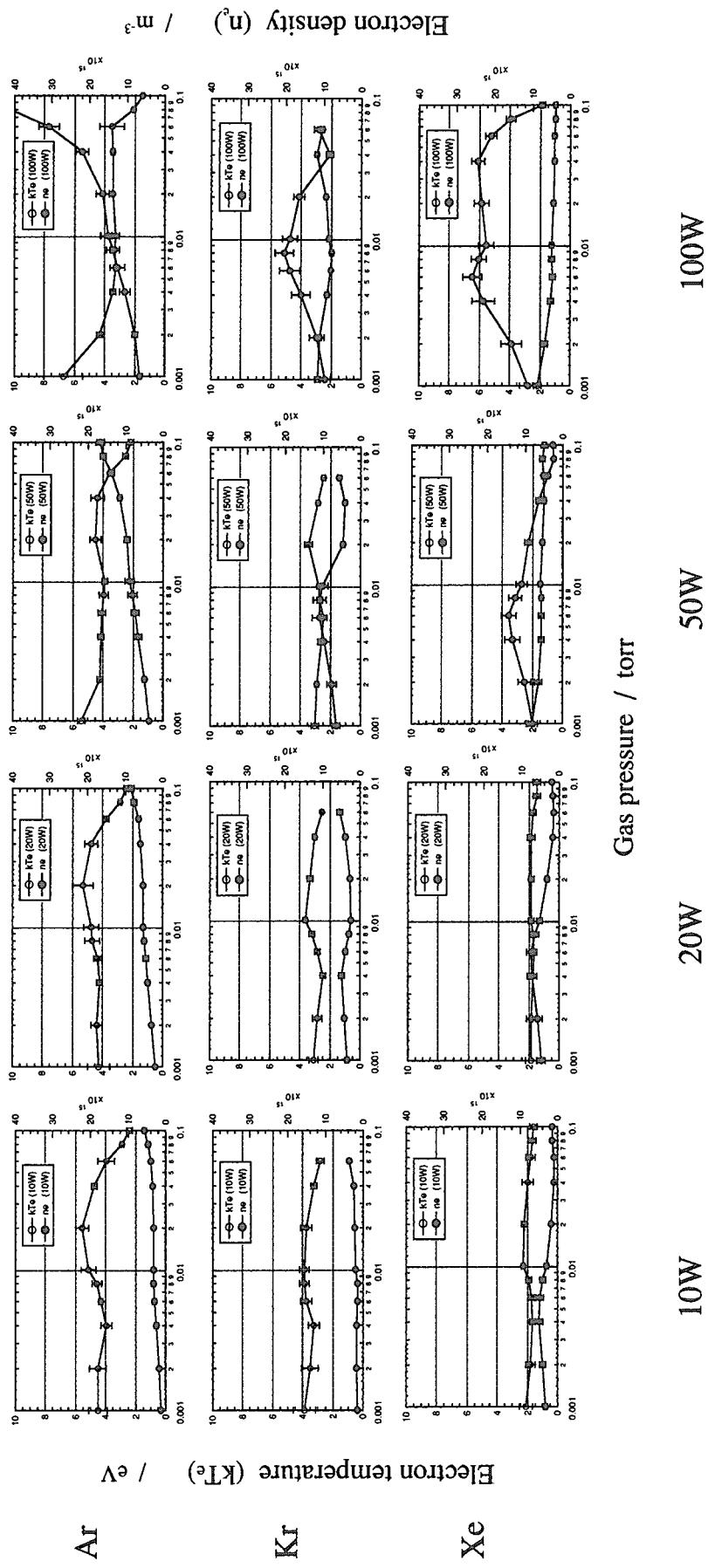


Fig.3-1b Relationship between gas pressure and electron density or the temperature with RF output power for Ar, Kr and Xe.

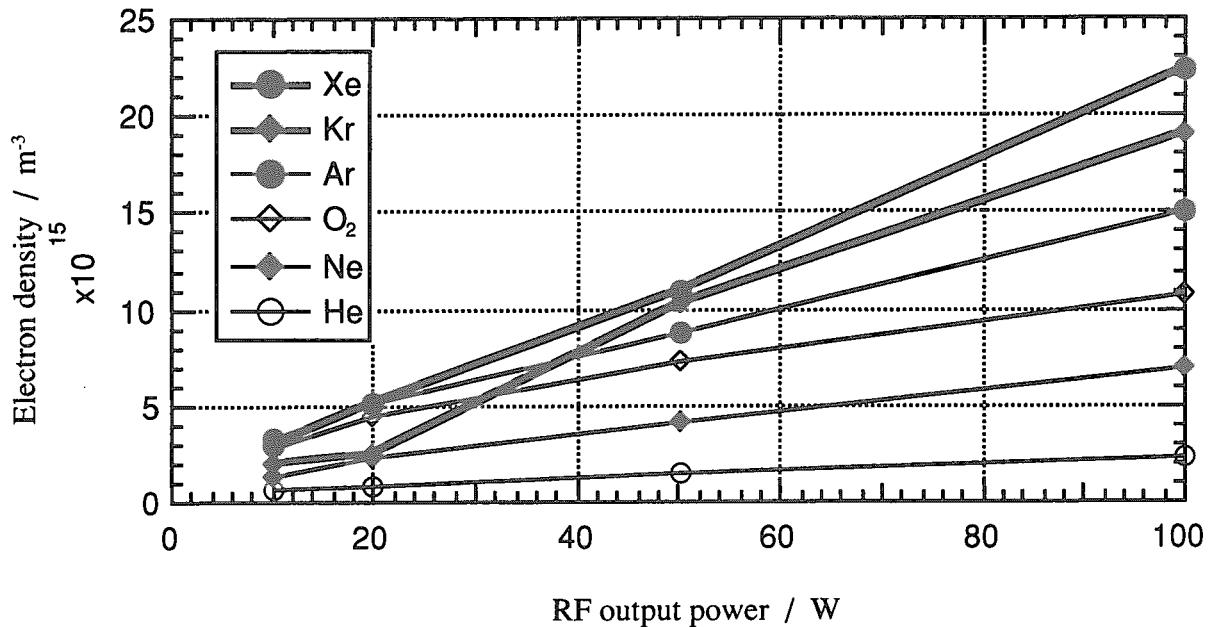


Fig.3-2a Relationship between RF output power and electron density for rare gases and O₂ gas.

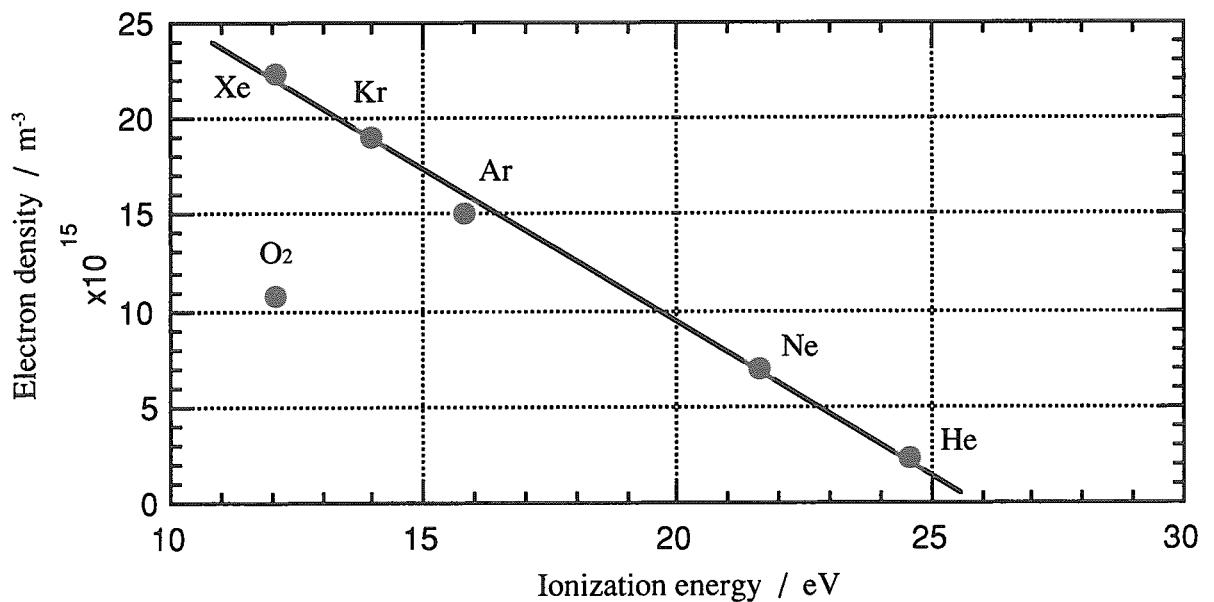


Fig.3-2b Relationship between ionization energy and electron density for rare gases and O₂ gas.

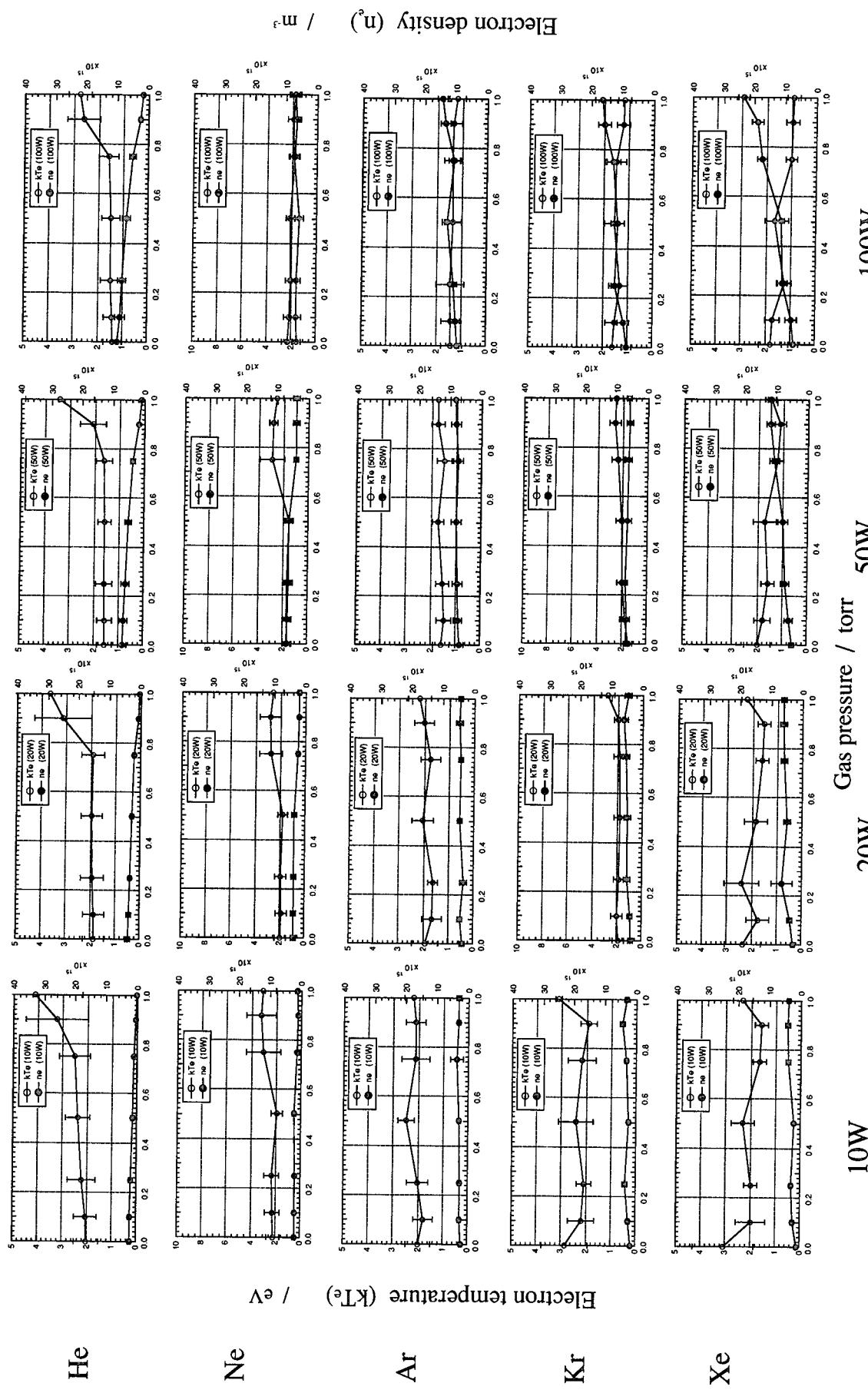


Fig.3-3 Relationship between the mixture rate and electron density or the temperature
with RF output power

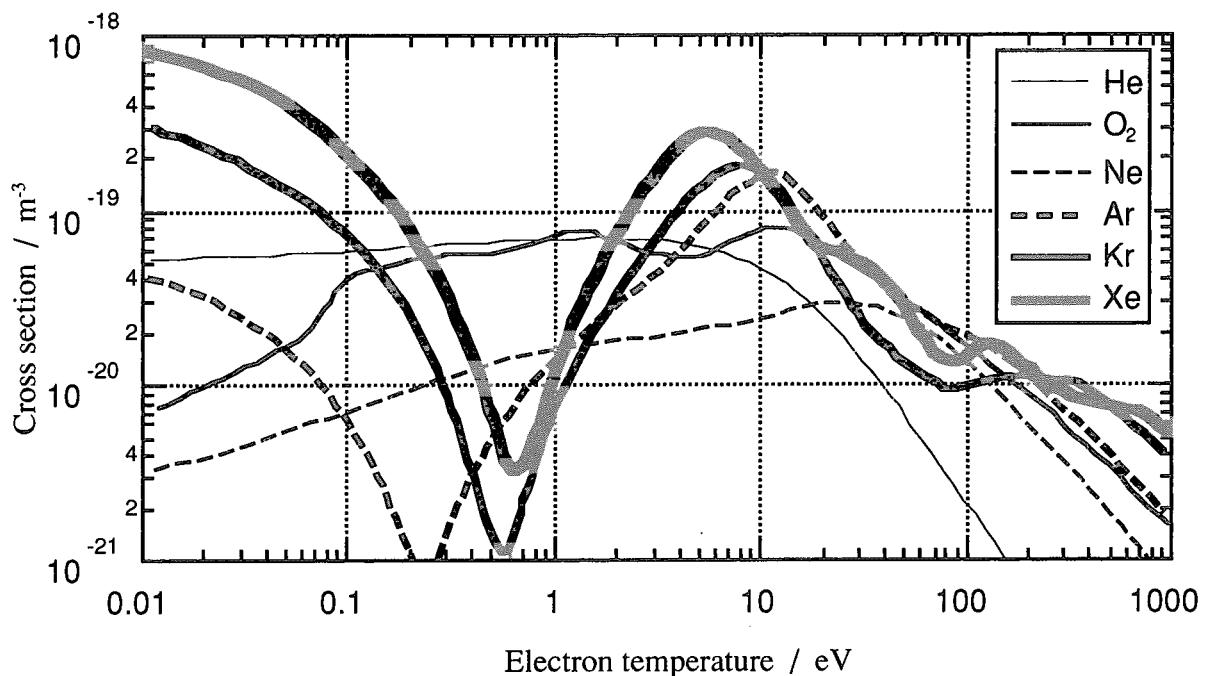


Fig.3-4a Relationship between electron temperature and cross section of electron in rare gases and O₂ gas.

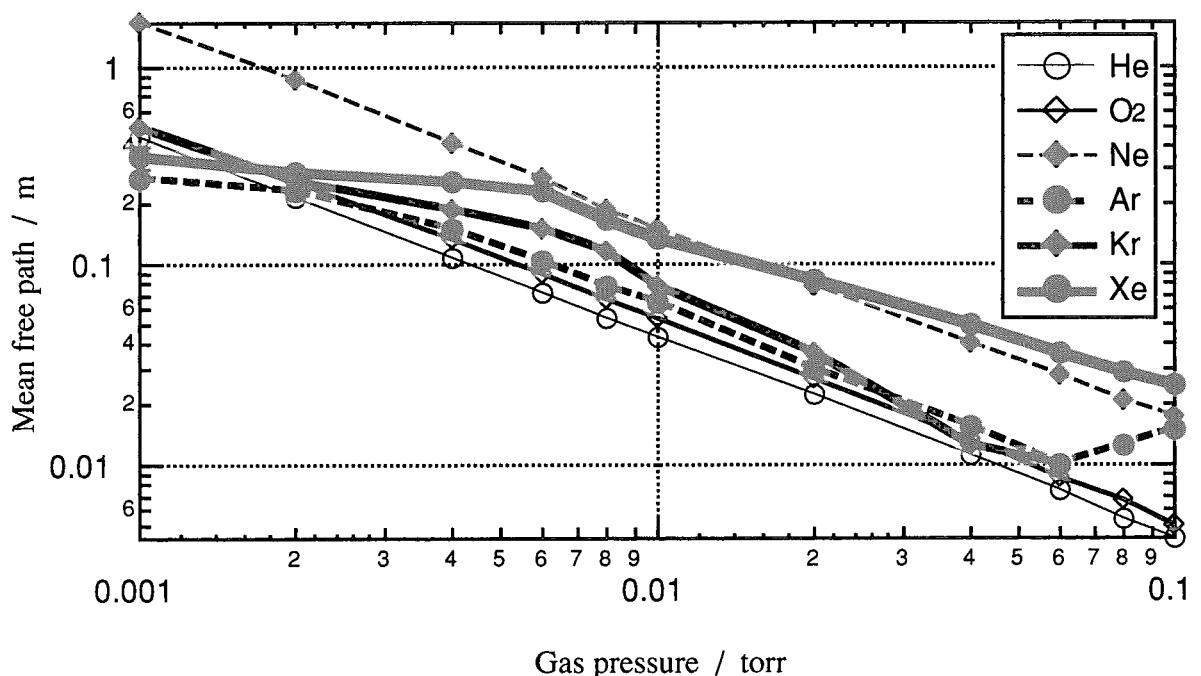


Fig.3-4b Relationship between gas pressure and mean free path in rare gases and O₂ gas.

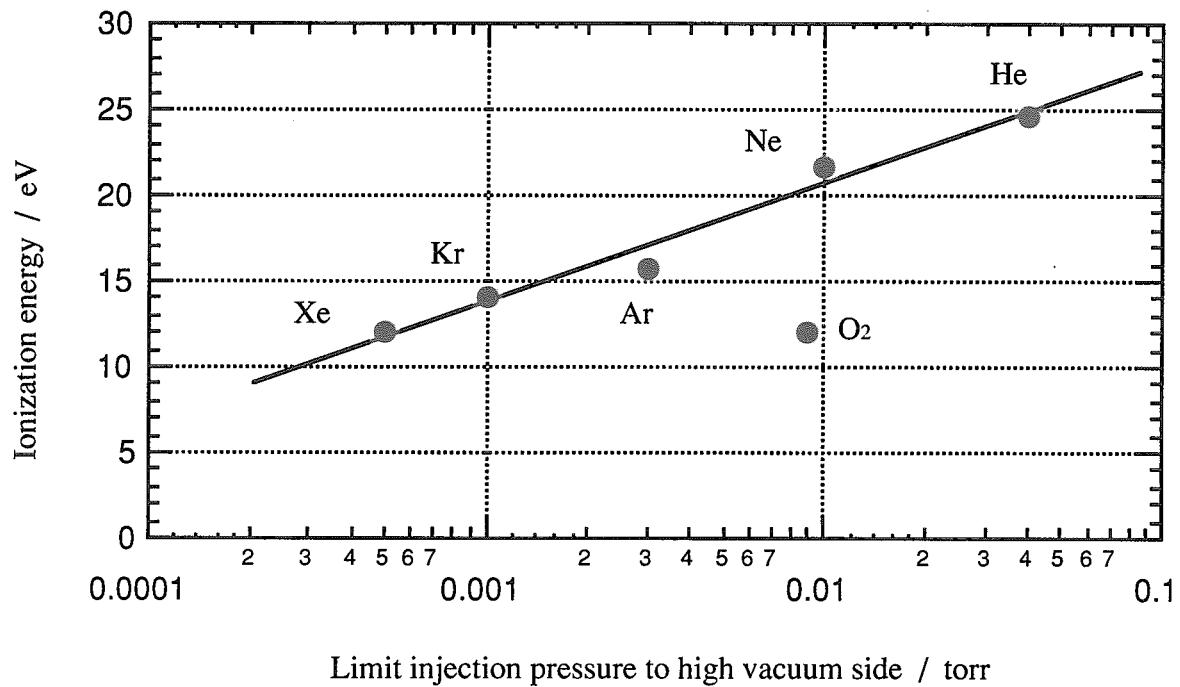


Fig.3-4c Relationship between limit injection pressure to high vacuum side and ionization energy.

4. 総括

発電炉酸化物燃料の燃焼度に伴い生成するFPの主要な放射性核種であるXeやKr等の重元素希ガスでは、高燃焼度燃料の健全性評価や将来のオフガス処理における固定化等の観点から、燃料中の存在状態や化学的反応性の解明が重要な研究課題となっている。

本研究では、燃料のような重放射線場における当該ガスの化学的反応性が、系内に多量に生成する電子の励起効果により高くなる可能性に着目した。その評価試験装置として、RF駆動の低温プラズマ励起反応試験装置を整備して、希ガス単体及び酸素との二元系ガスの励起反応性に関する基礎検討を実施した。その結果として、以下に示すように、XeやKrでは、電子励起を起こし易く、化学反応性の高くなることが評価出来た。

- 1) 電子密度の極大の安定な低温プラズマ励起条件は0.01Torr付近のガス圧で示し、重元素側の希ガス程、高真空側でも安定なプラズマが生成する。
- 2) 希ガスの励起反応に伴い生成する電子の密度は、RF出力に比例し、イオン化工エネルギーの低い重元素程増大する。
- 3) 電気陰性度の大きく、化学反応性の高い酸素は、プラズマ中の希ガスイオンや電子をトラップし易く、電子密度を下げる傾向を示す。
- 4) 実測した電子温度を考慮した平均自由行程の評価結果から、Xe、Krは、電子の生き残る可能性が高く、高密度の電子を生成し易い。

これまでにXeおよびKrの安定な化合物ではフッ化物が知られている。しかし、プラズマ中では、Xe-O₂系あるいはKr-O₂系混合ガスにおいても化合物が生成する可能性が高いことが明らかになつたことから、今後は、プラズマの分光や質量分析計を用いた反応生成物の測定等による反応機構の詳細な解明が必要である。

謝辞

本論文をまとめるにあたり、耐食材料研究グループの濱田省三氏、井岡郁夫氏、橋勝美氏から貴重なアドバイスを受けることができ、感謝いたします。さらに、核変換システム研究グループの二川正敏氏には、御多忙中にもかかわらず、査読を快諾していただきまして、誠に有り難う御座いました。

また、研究を遂行するにあたり、日頃からの相談の窓口となつていただきました科学技術振興事業団の大山健志氏ならびに関根仁氏、そして科学技術特別研究員事務局の加藤ルリ子さんに心からお礼申し上げます。

参考文献

- [1]K.Kiuchi, I.ioka, M.Takizawa and S. Wada; IAEA TCM reports on Technical and economical Limit to Fuel burnup Extension , Development of Advanced Cladding Material for Burnup Extension, Bariloche Argentina, Nov. (1999).
- [2]N. Bartlett, *Proc. Chem. Soc.*, 218 (1962).
- [3]H. H. Claassen, H. Selig, and J. G. Malm, *J. Amer. Chem. Soc.*, **84**, 3593 (1962).
- [4]H. H. Claassen, G. L. Goodman, J. G. Malm, and F. Schreiner, *J. Chem. Phys.*, **42**, 1229 (1965).
- [5]F. Schreiner, J. G. Malm, and C. Hindman, *J. Amer. Chem. Phys.*, **87**, 25 (1965).
- [6]J. S. Ogden and J. J . Turner, *Chem. Comm.*, 693 (1966).
- [7]R. J. Gillespie and G. J. Schrobilgen, *J. Chem. Soc., Chem. Comm.*, 595 (1977).
- [8]G. M. Begun, W. H. Fletcher, and D. F. Smith, *J. Chem. Phys.*, **42**, 2236 (1963).
- [9]J. L. Huston, *J. Phys. Chem.*, **71**, 3339 (1967).
- [10]H. H. Claassen, E. L. Gasner, H. Kim, and J. L. Huston, *J. Chem. Phys.*, **49**, 253 (1968).
- [11]J. L. Huston, *J. Amer. Chem. Soc.*, **93**, 5255 (1971).
- [12]木内、井岡、猪原、小河、宮本、黒田；学振原子力用材料122委員会平成12年度シンポジウム資料集(2000) 260。
- [13]小河、佐分利、木内；“高性能被覆管材料選定のための金属－水素相互作用の基礎的検討”
JAERI-Research 2000-055, 2000年11月。
- [14]佐分利、小河、木内；“低温プラズマ励起表面反応の評価試験装置の開発”, JAERI-Tech 2000-057, 2000年10月。
- [15]佐分利、木内、上田、藤井；第17回プラズマプロセシング研究会プロシーディングス、応用物理学会 P-241,475 (2000)。
- [16]“プラズマ材料科学ハンドブック”，日本学術振興会プラズマ材料科学第153委員会，オーム社 (1992)。
- [17]T. Okuda and K. Yamamoto, “Asymmetrical Triple Probe Method for Determining Energy Distribution of Electron in Plasma” , *J. Appl. Phys.*, **31**, 158 (1960).
- [18]S.-L. Chen and T. Sekiguchi, “Instantaneous Direct-Display System of Plasma Parameters by Means of Triple-Probe” , *J. Appl. Phys.*, **36**, 2363 (1965).

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg/s^2$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	$A \cdot s$
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	$V \cdot s$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	$^{\circ}C$	
光束	ルーメン	lm	$cd \cdot sr$
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名 称	記 号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
ト	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^9	ギガ	G
10^6	メガ	M
10^3	キロ	k
10^2	ヘクト	h
10^1	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名 称	記 号
オングストローム	\AA
バーン	b
バル	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

(注)

1. 表1~5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。

2. 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。

3. barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。

4. EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換 算 表

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

粘度 $1 \text{ Pa} \cdot \text{s} (\text{N} \cdot \text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P}$ (ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 $1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St}$ (ストークス)(cm²/s)

エネルギー・仕事・熱量	J($=10^7 \text{ erg}$)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV	I cal = 4.18605J (計量法)	
								$= 4.184J$ (熱化学)	
1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{-8}		$= 4.1855J$ (15°C)	
9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{-9}		$= 4.1868J$ (国際蒸気表)	
3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^6	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}		仕事率 1 PS(仏馬力)	
4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}		$= 75 \text{ kgf} \cdot \text{m/s}$	
1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}		$= 735.499W$	
1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}			
1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1			

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad	
				1	100	
	3.7×10^{10}	1		0.01	1	

照射線量	C/kg	R	当量	Sv	rem
				1	100
	2.58×10^{-4}	1		0.01	1

