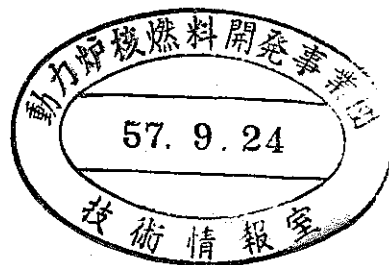


F.P.ヨウ素の活量への放射線照射効果

(受託研究)

昭和 57 年 3 月



東京大学原子力研究総合センター

1982年3月31日

F. P. ヨウ素の活量への放射線照射効果*

山 脇 道 夫**

菅 野 昌 義***

〔 要 旨 〕

本研究は、1981年6月－1982年3月末の期間に実施された F. P. ヨウ素の活量への放射線照射効果についての実験的研究について述べたものである。

高速炉のステンレス鋼被覆管成分の燃料ペレット中への化学輸送現象を説明するモデルとして、ヨウ化セシウムの放射線分解によって生成するヨウ素を介しての気相輸送モデルが提唱されているが、本研究はその妥当性を検証する目的で、ヨウ化セシウムの電子線照射下で鉄の化学輸送が生ずる条件を実験的に研究したものである。その結果、高温表面で鉄の析出が生ずることが観察され、鉄について上記のヨウ素を介する気相輸送モデルの妥当性を検証する結果が得られた。

* 本報告書は、東京大学原子力研究総合センターが動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

** 東京大学原子力研究総合センター（1982年3月1日以降は同大学工学部原子力工学科）

*** 東京大学工学部原子力工学科

Irradiation Effects upon Activities of
Fission Product Iodine

Michio YAMAWAKI*

Masayoshi KANNO**

- * Research Center for Nuclear Science and Technology,
University of Tokyo
- ** Department of Nuclear Engineering, Faculty of Engineer-
ing, University of Tokyo

ABSTRACT

This report describes the experimental study of the irradiation effects upon activities of fission product iodine made in the period from June, 1981 to March, 1982.

Chemical transport of iron was studied under irradiation of cesium iodide by electron beam. Deposited ion was identified on the high temperature surface, which can be taken to certify the appropriateness of the model of the iodine-including chemical transport of stainless-steel cladding components to fuel in the LMFBR fuel pins.

目 次

1. 緒 言	1
2. 研究計画と実施内容	2
1) 装置の構成	2
2) 実験条件	3
3. 研究結果	5
1) 予備実験	5
2) 本実験	6
3) ブランクテスト	6
4) 石英ガラス管内壁の XMA 試験	7
4. 考 察	8
5. ま と め	11
1) 結 論	11
2) 今後の課題	11
参考文献	12

付表：Table 1

付図：Fig. 1～Fig. 4, Photo. 1～Photo. 3

1. 緒 言

高速増殖炉の燃料照射挙動のうち、燃料-被覆管化学的相互作用 (FCCI) は最も重要性の高い現象の一つであるが、その機構は必ずしも十分に解明されているとは言えない。FCCI として理解されている挙動の中でも、燃料表面及びそのクラック内部に被覆管の成分元素の沈着が見られる現象は特に CCCT (cladding component chemical transport) として分類され注目されている^{1)~3)}。この現象の機構として、Calais らによるヨウ素気相輸送モデルと、Adamson らによるセシウム-テルル液相輸送モデル²⁾が提唱されている。照射後燃料のクラックの深い箇所にも被覆管成分元素が沈着するという観測事実から推察すると、気相輸送に基づいた Calais らのモデルは妥当性が高い。さらに、ヨウ素による炉外腐食実験結果もこのモデルを支持している⁴⁾。しかし、通常の熱力学的データに基づいて、燃料内における核分裂生成物 (F. P.) のヨウ素の化学的挙動を推測した研究によれば⁵⁾、F. P. ヨウ素は F. P. セシウムと安定な化合物 CsI を作るため、その雰囲気中のヨウ素ポテンシャルは Calais らの気相輸送モデルが成立するほど十分高くないのではないかと指摘されていた。

これに対し最近、炉内のように高線量の条件下では、気相ヨウ素-セシウム系の平衡が熱力学的予測値からずれる可能性のあることが理論的計算から指摘された⁶⁾。その指摘通り、炉内の燃料管中に十分高いヨウ素分圧が存在することになれば、CCCT はヨウ素による気相輸送モデルで十分に説明されるようになるはずである。この観点から α 線によるヨウ化セシウムの分解によるヨウ素の生成断面積を求める試みがなされた⁷⁾。

本研究では、放射線照射下でステンレス鋼被覆管成分元素のヨウ素による気相輸送が起こることを確認するための実験的研究を行なった。

2. 研究計画と実施内容

CCOT は実際には原子炉内で長時間照射された後に観察されるが、実験室的にはこのように長時間の実験を行うことは困難である。従って輸送された物質(クラッド材成分)の高感度な検出、もしくは、クラッド材のより速い腐食速度の達成、即ち加速実験が必要となる。また、CsIの放射線分解に主として寄与していると思われる核分裂片(F.F.)(≤ 80 MeV)の放射線場を再現するのも困難であって、ここではこのF.F.と同等の速度を有する電子(≤ 40 eV)に置き替えて、気相輸送モデルを確認しようとするものである。

この条件のもとで特に問題と考えられるのは、低いエネルギーの電子を取扱うため、真空($\leq 10^{-3}$ Torr)に保つことが望ましい。即ちCsの蒸気圧(P_{Cs})を $P_{Cs}/P_{CsI} \cong 10$ とする時、CsIの蒸気圧(P_{CsI})を 10^{-4} Torr ($= 10^{-7}$ atm)以上にすることは困難であることである。このため、加速実験条件にするために、炉内条件よりもはるかに高い放射線場を設定することによりCsI分子と電子の相互作用の機会を増大させる必要がある。

1) 装置の構成

上述の条件を満足するよう Fig. 1 のような装置(石英セル部)を製作した。

この反応部は、それぞれ温度制御されたCsI及Cs₂UO₄部と、その真上にクラッド材成分(Fe, Cr, Mn等)金属もしくはクラッド材(SUS 316)からなるgridと、その中心部にFuel表面に相当するMoリボン(Moコレクター)が配置されている。このMoリボンは通電加熱により700~1000℃に保たれる。放射線源に相当する電子源としては、イリジウム線表面にBaO, SrOの等モル混合物をcoatingすることにより、比較的低い温度(1000~1500℃)で十分な電子を放出するように考慮した。このfilamentからemission制御器により制御させることにより、10 μ A~10mAまでの範囲で安定した電流を得ることができる。しかし、 $P_{CsI} = 10^{-4}$ Torrでは実験中に徐々にこのfilamentが赤熱化し、emitterの劣化が見られ、繰返し使用することは困難であることが判明した。そこで実験毎にemitterをcoatingすることにした。

この装置の電気的な接続図を Fig. 2 に示す。本実験ではグリッド材とMoコレクターとはほぼ同電位であり、フィラメントとグリッド等との電位差は150V一定である。従ってフィラメントより放出された電子は150eVに加速され、その部分はグリッド周辺部を往復

運動することによって CsI と相互作用する機会を高めている。この機構は、真空測定に用いられる BA ゲージと同様である。

Mo コレクター、グリッド及びフィラメントを含む反応部の加熱及び温度制御は、入力を交流安定化電源で安定化した後、スライダックにより飽和定常温度を変化させることにより制御した。CsI 及び Cs_2UO_4 部においては熱電対により测温し、P. I. D. 制御を行わせることにより $\pm 2^\circ\text{C}$ に保つことができた。Mo コレクターの温度は、赤外線光高温計により測定したが試料幅が必要径よりも小さいこと、また光の輻射率が明らかでないため正確な温度を示すとは考えられないが、一応輻射率を 0.2 として測定した。

この反応部と排気系とは 1.7 mm ϕ の穴を持つ石英ガラス板で隔てられており、この穴及び白金電極近くのすきま等からの CsI 蒸気等の流失は十分に少いので、一応反応部内での平衡は保たれていると考えられる。Fig. 3 に排気系統図を示す。実験装置の本体部分は、上述の石英セル部とイオンポンプにより排気される SUS 304 製真空容器とからなる。この両者の接続は粗排気部と超高真空領域の二段バイトン O リングシールにより気密を保つようにしてある。その理由は、この接続部が実験中に反応部からの熱伝導によりかなり高温 (100°C 位) になるために、O リング中を通してのガスの透過が考えられ、これを防ぐためである。装置の到達真空度は、ベーキングの後、イオンポンプ制御部のメーターで読み取り不可能 ($< 1 \times 10^{-9}$ Torr) な程度の高真空になる。なお、補助排気系として液体窒素トラップ付きの油拡散ポンプ (作動油 DC-705) 排気系により、本体部のベーキング時排気と石英シール粗排気部の排気を行っている。

2) 実験条件

上述の装置を用いての実験と、実際の燃料ピン中との大きな相違は、反応時間ばかりでなく、燃料ピン中では fuel 表面からの熱伝導を考慮して He 等のガスが封入されており本装置の様な真空ではないことである。この違いは燃料中ではガス圧が高いために燃料表面に付着した成分 (Fe, Cr, Mn 等) が高温であっても蒸発し難いと考えられる一方、本実験のような真空中では、比較的低温 ($800 \sim 900^\circ\text{C}$) であっても、かなりの蒸発が考えられ、放射線分解した I による Fe 等のコレクター上への輸送速度とその表面から輸送された成分の蒸発速度が競合することになる。蒸発速度は温度上昇とともに急速に増大するため、コレクター温度の選択範囲はかなり狭められ、Mn 等ではかなり困難を伴うことが予想される。

試料は、まず手始めとして、コレクター上からの蒸発が比較的少く、かつ加工性の良い鉄とした。ジョンソンマッセイ社製99.99%以上の5mmφ×120mmの棒を0.4t×6×800mm程度の板に圧延し、2mmw×500mmℓに切断、直径20mmφ、長さ約50mmのらせん形に成形してグリッドとした。

また、まずCsI放射線分解による輸送が起るかどうかを確認するためにCs₂UO₄は装荷しないで実験を行った。

CsI部の温度は反応部での蒸気圧が $1\sim 2\times 10^{-4}$ Torrとなる様412~430℃とし、反応部は430~470℃、Moコレクターは710~830℃とした。この範囲内で、Feの気相中での輸送が起る条件を見出すために、試行錯誤を繰り返しながら選択を行った。

エミッション電流は主として5mA、実験時間は71~72時間とした。

Moコレクター上の輸送された物質の分析には、日本電子製JXA-733型X線マイクロアナライザー(XMA)を用いた。Moコレクターとして使用したリボン(15μmt×3.2mmw)の受入れ状態でのFe不純物は0.018±0.002mass%であることをこのマイクロアナライザーにより確認した。

3. 研究結果

5つの Run を Table 1 に示すような条件下で行った。各 Run の結果を、以下に実験の順序に従って述べる。

1) 予備実験

Run 1 及び Run 2 は装置操作に慣れることと本実験の設定条件を得ることを目的とした予備実験である。この装置における反応時間の上限は、filament 上に coating した emitter ($\text{SrO} + \text{BaO}$) の劣化により決定される。Run 1 では、操作に不慣れであったことから emitter の劣化を早め、十分な反応時間が得られなかった。実験後 Mo collector を XMA にかき、Fe ピーク強度を測定したところ、 5.28 ± 0.33 cps で、As-received Mo 上の Fe ピーク強度 5.45 ± 0.41 cps との間に有意な差は認められなかった。これらの値はいずれも純 Fe 強度の 0.02% 以下で、バックグラウンドと見なせる。この Run で、Fe 輸送の証拠が認められなかった原因として

- (1) 十分な反応時間をとり得なかった
- (2) 十分な emission current が得られなかった
- (3) Fe grid 温度 T_{grid} が Cs I 温度 (Cs I 蒸気圧) に対して高すぎた為熱力学的に FeI_2 の安定領域に入っていなかった

等の可能性があげられる。

そこで Run 2 では emitter の劣化を極力抑え、十分な反応時間を得ると同時に十分な emission current を得ることに努めた。又、 T_{grid} を下げ $T_{\text{Cs I}}$ を上げることにより、熱力学的により反応が生じ易いと思われる条件に設定した。

その結果、Run 2 では Mo collector の白金電極に近い比較的温度の低い部分が黒変し、又 Mo 板の加工傷にそって黒い斑点が確認された。それを XMA にかけて分析した結果、Fe が検出され、純 Fe との強度比で最大 0.21% 程度であった。又、そこではヨウ素の存在は確認されず、ヨウ化物ではないことが明らかになった。黒変した部分以外の光沢部では、Fe 強度はバックグラウンド程度であった。又、石英ガラスの内壁が若干黒ずんだ。以上のことからこのシステムにおいて、Fe が何らかの過程を経て Mo collector に輸送されることが確認された。しかし中央の高温部で Fe が検出されなかったことから、一度 Mo collector に

輸送された Fe が蒸発してしまった可能性が考えられる。そこで、本実験 Run 3 では Mo collector 温度を下げ、Fe の Mo collector からの蒸発を抑えることを目指した。

2) 本実験

Run 3 では、Mo collector 温度のみ 720℃に下げ、他の条件は Run 2 と等しく設定した。その結果 Mo collector 全面にわたり光沢が失われ、又、加工傷にそって黒変が生じた。Mo collector の凹凸像、組成像、Fe の特性 X 線像の写真を Photo. 1 に、また As-received Mo の各像を Photo. 2 にそれぞれ示す。Photo. 1-a における凹凸が Mo の加工傷で、Photo. 1-b や Photo. 1-c と比較することにより、特に加工傷に Fe が多く付着していることがわかる。一方 Photo. 2-b で暗色に見える部分は Photo. 2-a の凹凸像とよく一致しているが、Photo. 2-c の Fe の特性 X 線像とは何の対応も見られない。Photo. 2-b で暗色に見えるものは Mo 酸化物であることが確認された。Mo collector 上の Fe 強度は純 Fe との強度比で示すと、強い所で 1% 以上、弱い所でも 0.28% 程度検出された。Mo collector の半分を、中央から 6mm 程度ずつ 3 部分に分けて平均 Fe 強度を測定した所、純 Fe との強度比で 0.49%、0.42%、0.38% であった。これらは、バックグラウンドの 20 倍程度乃至それ以上であり、十分有意な差と考えられる。従って、Fe 輸送が生じたことが確認された。また、石英ガラス内壁にも暗色の沈着が生じていた。

3) ブランクテスト

以上のことからこのシステムで Fe 輸送が生じることは確認できたが、その機構を明らかにするため以下のブランクテストを実施した。

Run 4 では

- (1) CsI が電子衝撃による分解なしに直接 Fe と反応するか、
- (2) カーボネイトによる影響があるか、*1
- (3) Mo collector 上及び filament 上での CsI の熱分解による影響があるか、

等を調べる為、電子の emission はとらずに、しかし、本実験 Run 3 と filament 温度が低

脚注 *1 emitter である (SrO + BaO) は空气中で劣化しやすいので、filament に (SrCO₃ + BaCO₃) の等モル混合液を塗布した後、真空中で加熱分解させることにより (SrO + BaO) の coating を行なった。この為カーボネイトによる影響も考慮したものである。

ほぼ等しくなるように filament に 1.1 A 通電して加熱した。

Run 5 では、CsI 以外の物質が直接輸送機構に参与しているかどうか調べる為に、CsI 蒸気の存在しない条件で実験を行なった。この時 emission current の安定性は他の Run よりはるかによかった。

Run 4, Run 5 の結果、いずれも Mo collector 上の Fe 強度は純 Fe との強度比で 0.02 % 以下とバックグラウンド程度であり、Fe の輸送を示すような有意な沈着は認められなかった。

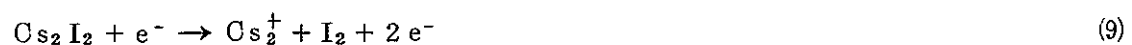
4) 石英ガラス管内壁の XMA 試験

一連の実験後の石英ガラス管内壁の汚れを Photo. 3 に示す。暗色の濃い部分はフィラメントに近い側である。石英容器を切断し、暗色部を分析したところ純 Fe との強度比で $\sim 1\%$ の Fe と、純 Mo との強度比で $\sim 0.2\%$ の Mo 及び僅かな量の S が検出された。

4. 考 察

2つのブランクテスト Run 4, Run 5 により, Run 3 で得られた Fe 輸送が CsI の放送線分解で生じたヨウ素によるものであることが確かめられた。以下に, その機構を定性的に述べる。

CsI の蒸気圧は筆者らにより 430 °C では, 1.7×10^{-4} Torr^{*2} であり, dimer (Cs₂I₂) はその中に 10 % 程度しか含まれていないことが Knudsen cell + 質量分析計結合システム (高温マス) を用いて確かめられている。⁸⁾ CsI は, 電子衝撃により, 以下のような種々の反応を経てイオン化すると考えられる。



高温マスを用いて, CsI 蒸気のイオン化を調べたところ, 電子エネルギー 30 eV の時, I⁺, Cs⁺, CsI⁺, Cs₂⁺, Cs₂I⁺, Cs₂I₂⁺ が検出されそれぞれのイオン電流強度比は, 3, 50, 43, ≈ 0, 4, ≈ 0 であった。これより最も支配的な過程は, Cs⁺ 及び CsI⁺ を生ずる過程で, (1), (2), (3), (10), (11) の各式等であると考えられるが, (10), (11) 両式の寄与が少ないことは当研究室で確かめられている。⁸⁾

ただし, 本実験で用いた電子のエネルギーは 150 eV と高く, fragment を生ずる割合が高くなると考えられ, (3) 式よりも (1) 式, (2) 式の反応が生じ易くなると考えられる。また, dimer (Cs₂I₂) は全体の 10 % 程度しか存在しないので, (10) 式, (11) 式の反応が生じ易くなったとしてもその影響は無視しうる。これらの反応の他にラジカルを生成する過程も考えられるが,

脚注 *2 完全自由蒸発時における FeI₂ の蒸発速度は 430 °C で ≈ 190 μg/cm²·sec であり本実験の場合 Fe grid 上での FeI₂ の蒸発は自由蒸発に近いと考えられる為, FeI₂(g) の放出速度は [I] (後出) の供給律速 (或は, 反応律速) であると考えられる。

それら全ての反応により生じたヨウ素 (I, I^+, I^-, I^* etc) を簡単のためにまとめて $[I]$ と書くことにする。一連の実験からこの $[I]$ が Fe 輸送機構にどのような形で関与しているかを推定した。その結果を模式図 Fig. 4 に示す。各部での反応は次のように考えられる。

(1) CsI 蒸気が反応 (a) $CsI + e^- \rightarrow Cs^+ + [I] + ne^-$ により分解し $[I]$ を放出する (n : 正整数)。

(2) $[I]$ は Fe grid 上で反応 (b) $Fe + 2 [I] \rightarrow FeI_2(g)$ により Fe と反応し, $FeI_2(g)$ を生成する。この時 FeI_2 の平衡蒸気圧は十分高く, 生成とほぼ同時に気体となって蒸発するものと考えられる。^{*2}

(3) $FeI_2(g)$ はより高温な Mo collector 上で反応 (c) $FeI_2(g) \rightarrow Fe(c) + 2 [I]$ により熱分解し, $Fe(c)$ は Mo collector 上に付着する。

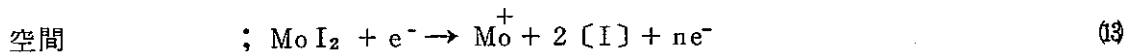
また, $[I]$ は放出され, 再び grid での反応 (b) に寄与する。

(4) Mo collector 温度が高いと, 反応 (d) $Fe(c) \rightarrow Fe(g)$ により付着していた Fe が蒸発し, 器壁に蒸着する (反応 (e) $Fe(g) \rightarrow Fe(c)$)^{*3}。

(5) (2) で生成された $FeI_2(g)$ の一部は, filament 上で反応 (f) $FeI_2(g) \rightarrow Fe + 2 [I]$ により熱分解される。この時 filament は高温 (1000~1500℃) であるので Fe は蒸発し, 器壁に蒸着する (反応 (g) $Fe(g) \rightarrow Fe(c)$)。ここで生じた $[I]$ も, grid での反応 (b) に再び寄与する。

(6) 更に (2) で生じた $FeI_2(g)$ の一部は, 電子衝撃により電離し (反応 (h) $FeI_2(g) + e^- \rightarrow Fe^+ + 2 [I] + ne^-$), Fe^+ は $Fe(c)$ となって器壁に付着する (反応 (i) $Fe^+ + e^- \rightarrow Fe(c)$)。ここで生じた $[I]$ も再び grid での反応 (b) に寄与する。

以上のプロセス以外に, 石英反応管の内壁を XMA 分析した結果 Mo が検出されたことから Mo の輸送過程, 即ち



脚注 *3 完全自由蒸発と Mo collector 温度の均一性を仮定すると, 本実験で用いた Mo collector (3mm×50mm) からの 255.6 Ksec の間の Fe 蒸発量は, 800℃で約 500 μg, 720℃で約 10 μg となる。前者(800℃)は高温である中央部で Fe を検出することのできなかつた Run 2 における T collector で, 後者(720℃)は全面で Fe が検出された Run 3 の T collector である。

が生じていると考えられる。また、同様な反応が Ir filament 上でも生じていると考えられ、emitter 劣化の一因となっていると考えられる。(尚、Mo collector 上及び filament 上で CsI の熱分解反応 $CsI \rightarrow Cs + [I]$ は、Run 4 の結果から無視しうることが確認された。)

また、器壁及び grid 上において CsI 生成反応 $Cs + [I] \rightarrow CsI$ が生じ、[I] ポテンシャルをコントロールしていると考えられる。

本研究において Mo collector 上に付着した Fe に関する定量的考察は十分なものではない。

上述の結果に % で示した値は、純 Fe 強度と Mo 表面に付着した Fe 強度との比であり、Fe の絶対量を直接示すものではないので、相対的な判断しか下せない。Fe の Mo 中への拡散(粒界拡散等)や蒸発挙動を踏まえた上で、Fe を定量的に分析することが今後必要であろう。

5. ま と め

1) 結 論

ヨウ化セシウム蒸気^とに電子線を照射することにより、ヨウ素の活量が高くなり、その為鉄試料のヨウ素化が誘発され、次いで生成したヨウ化鉄の気相輸送と高温部表面での熱分解のプロセスを経て鉄の析出が生ずることが観察された。これは、高速炉被覆管成分の熱料ペレット中への移行現象 CCOCT を説明するモデルの1つである CsI の放射線分解生成ヨウ素による気相輸送モデルの妥当性を鉄について実験的に検証しうる結果である。

2) 今後の課題

鉄以外の被覆管成分 (Cr, Mn 等) について同様の方法により放射線分解生成ヨウ素による気相輸送モデルの妥当性を確認し、原子炉内条件との比較対照を行なうことが望まれる。またセシウムポテンシャル、酸素ポテンシャルの上記輸送プロセスに及ぼす影響についても検討することが望まれる。

参考文献

- 1) M.G. Adamson, E.A. Aitken, "Cladding Component Transport in Mixed-Oxide Fast Reactor Fuel Pins: An Additional (High Burnup) Mechanism for FCCI," General Electric Co., GEFR-00404 (Sept. 1978).
- 2) M.G. Adamson et al., "Thermodynamics of Nuclear Materials," (IAEA-SM-236/63) Proceedings of A Symposium, Julich, 29 January-2 February, 1979, Vol. 1, p503 (1980).
- 3) M.G. Adamson et al., Int. Conf. Fast Breeder Reactor Fuel Performance (1979) p.538.
- 4) D. Calais et al., IAEA-SM-190/24 (1975).
- 5) 本田, 八登, 小無, 金子, PNCT842-80-01 (1980).
- 6) 小無, 八登, 金子, 本田, 昭和55年日本原子力学会秋の分科会要旨集 p.140 (1980).
- 7) 音在, "ヨウ化セシウムの放射線分解" (動燃事業団委託研究) 昭和56年3月 (1981).
- 8) 長崎, 平井, 安本, 志田, 山脇, 菅野, 昭和56年日本原子力学会秋の分科会要旨集 p.154 (1981).

Table 1. Experimental conditions and results

	Run 1	Run 2	Run 3	Run 4	Run 5
T _{collector} /°C	800	800	<u>720</u>	720	720
T _{grid} /°C	470	<u>430</u>	430	430	430
T _{CsI} /°C	410	<u>430</u>	430	430	<u>**</u>
P _{CsI} /Torr	7 × 10 ⁻⁵	<u>2 × 10⁻⁴</u>	2 × 10 ⁻⁴	2 × 10 ⁻⁴	<u>**</u>
Emission current/mA	1	<u>5</u>	5	<u>0*</u>	<u>10</u>
Time/ksec	84.0	<u>253.2</u>	255.6	255.6	255.6
Specific Fe intensity***	0	0.21% locally	0.38-0.49% whole area	0	0
Remarks	---	---	---	blank test	blank test

* Temperature of filament of Run 4 was nearly equal to those of Run 3 and Run 2.

** CsI was not identified.

*** Iron intensity from collector as compared with that of pure ion.

— Each specific condition with underline had been altered from the previous i.e. left-side one.

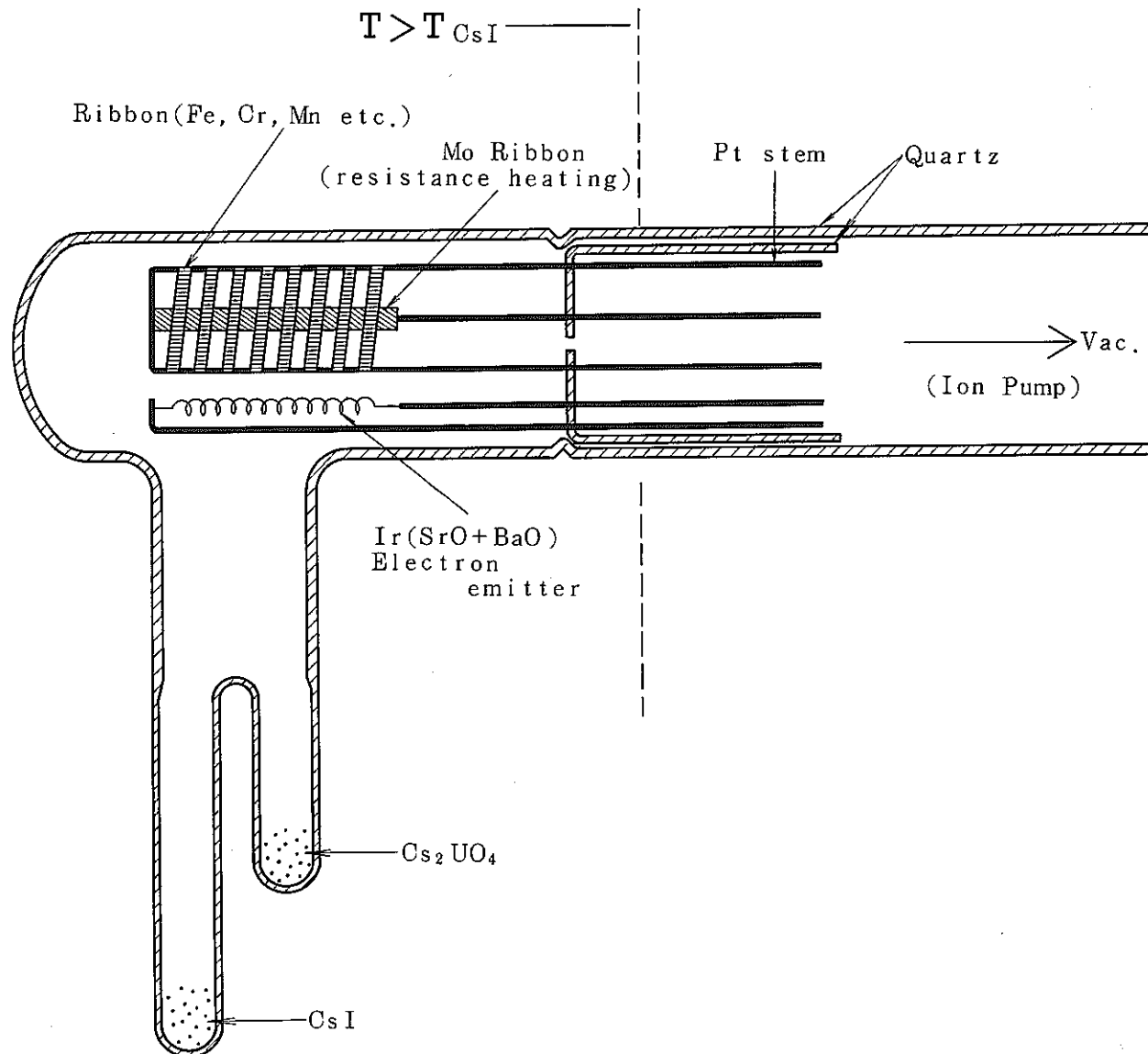


Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus (reaction chamber).

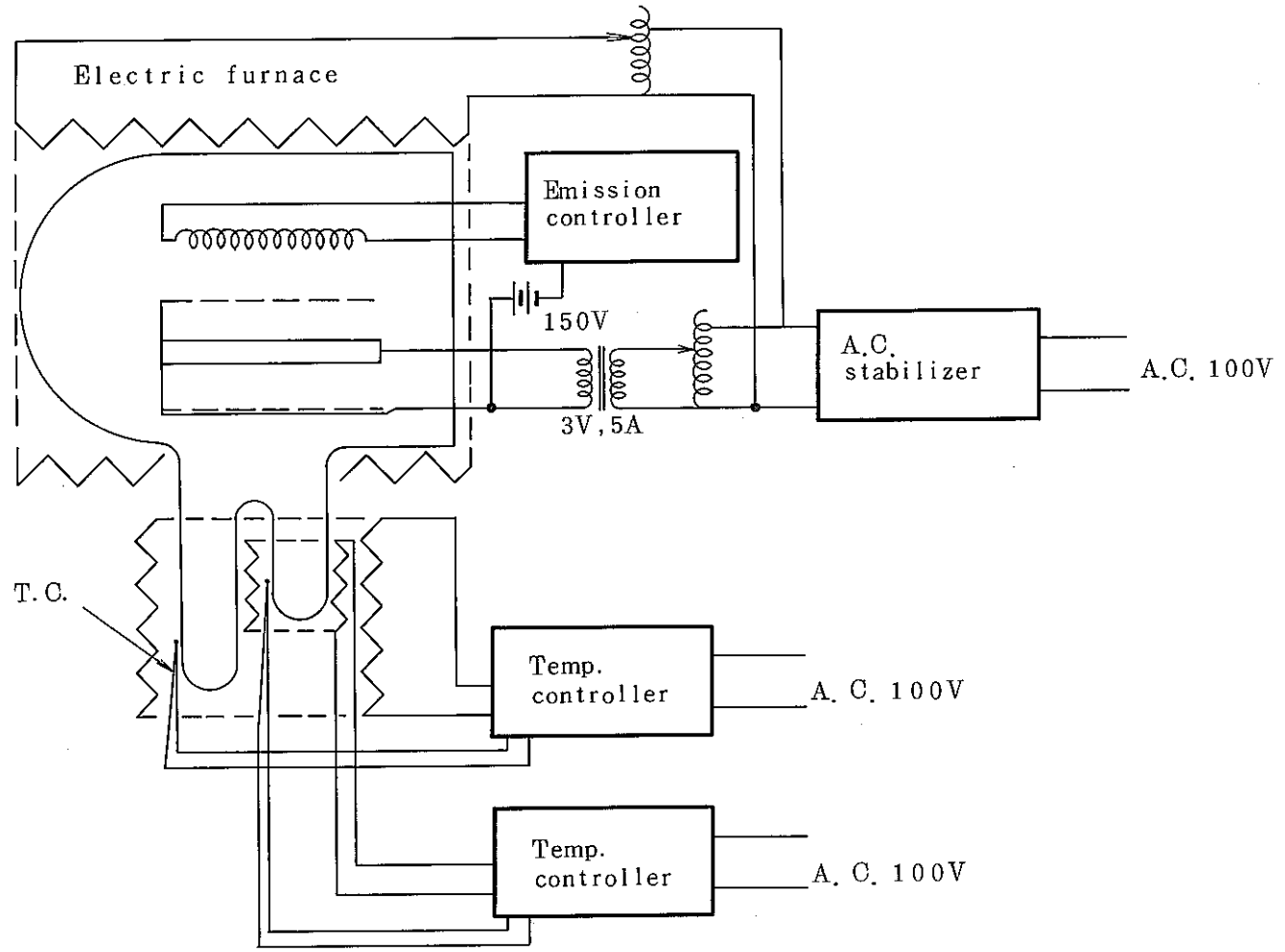


Fig. 2 Schematic diagram of electronic control systems.

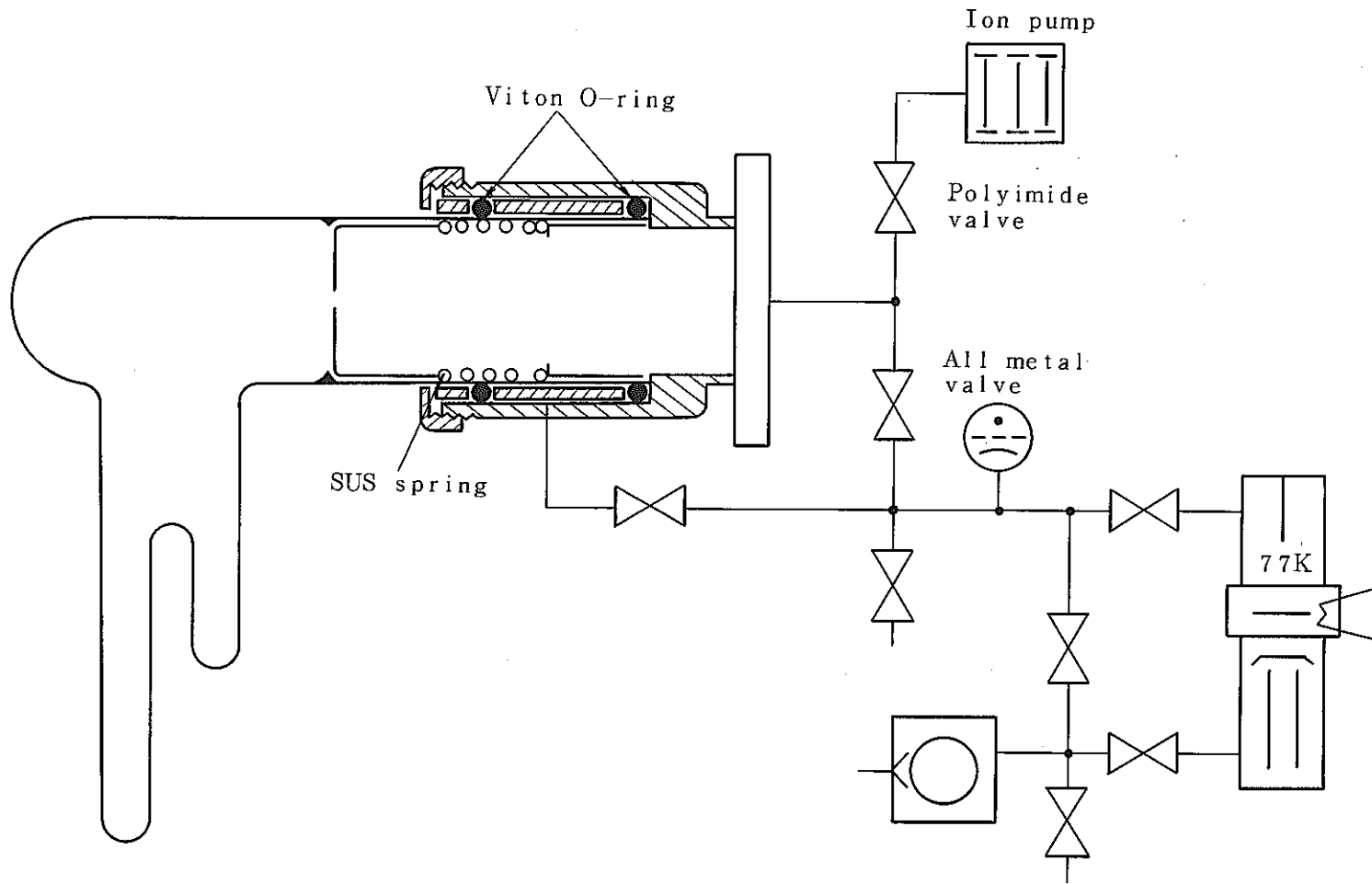


Fig. 3 Schematic diagram of vacuum systems.

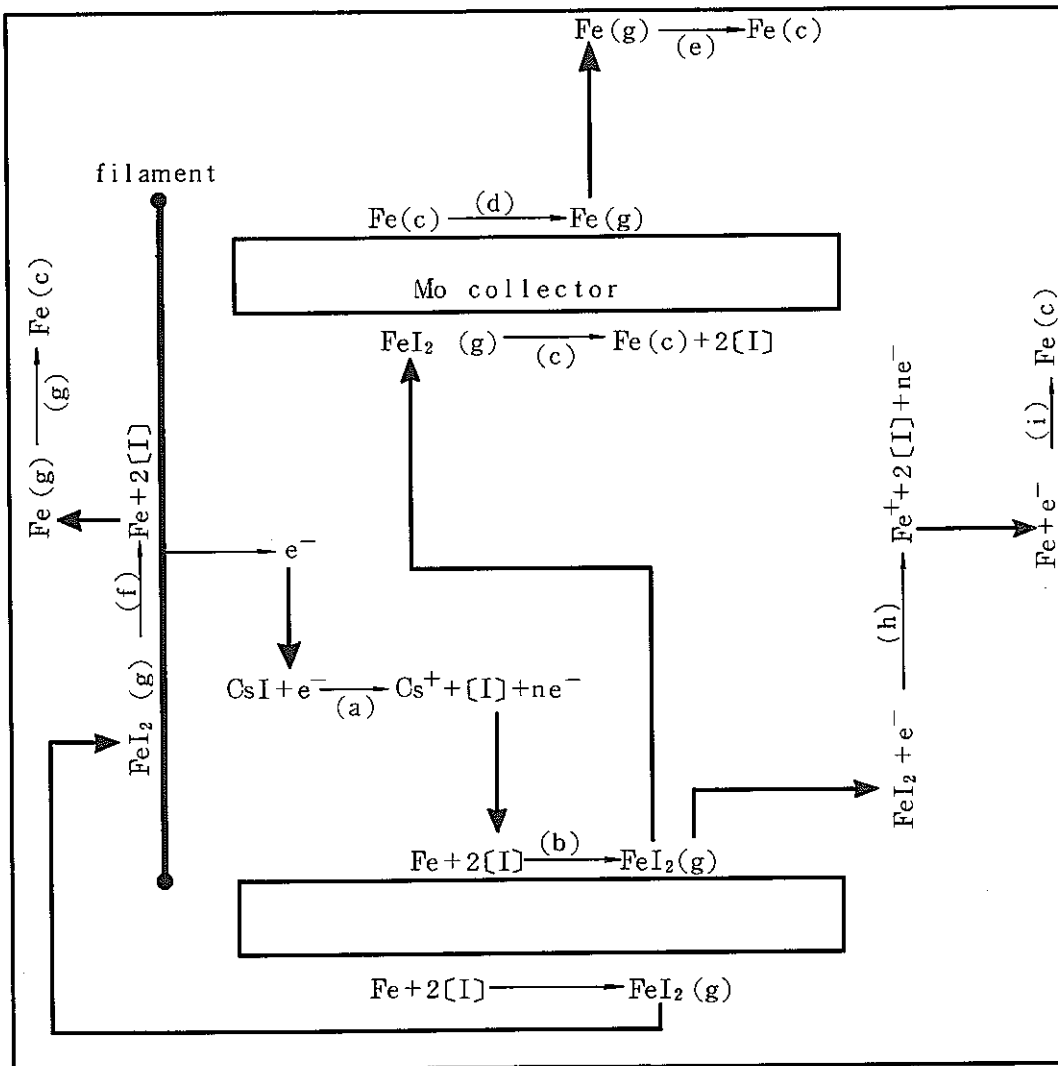


Fig. 4 Explanatory scheme of reaction processes in the apparatus.

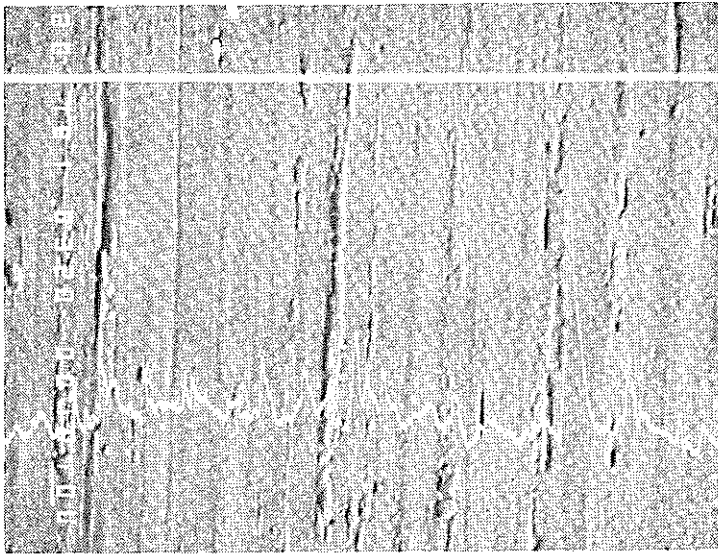


Photo. 1-a Topographic image by electron probe micro analysis (EPMA) and line analysis of Fe K_{α} (Run 3): $T_{\text{collector}}=720^{\circ}\text{C}$, $T_{\text{grid}}=430^{\circ}\text{C}$, $T_{\text{CsI}}=430^{\circ}\text{C}$, $P_{\text{CsI}}=2 \times 10^{-4}\text{Torr}$, emission current=5mA, $t=255.6$ ksec.

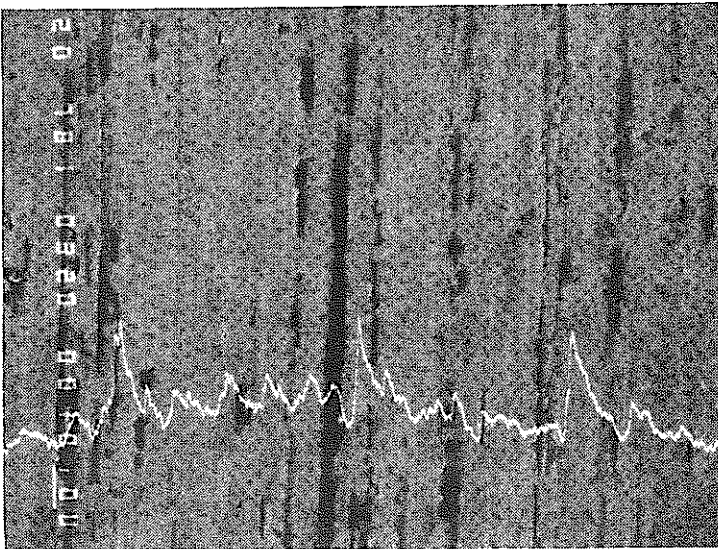


Photo. 1-b Compositional image by EPMA and line analysis of Fe K_{α} (Run 3).

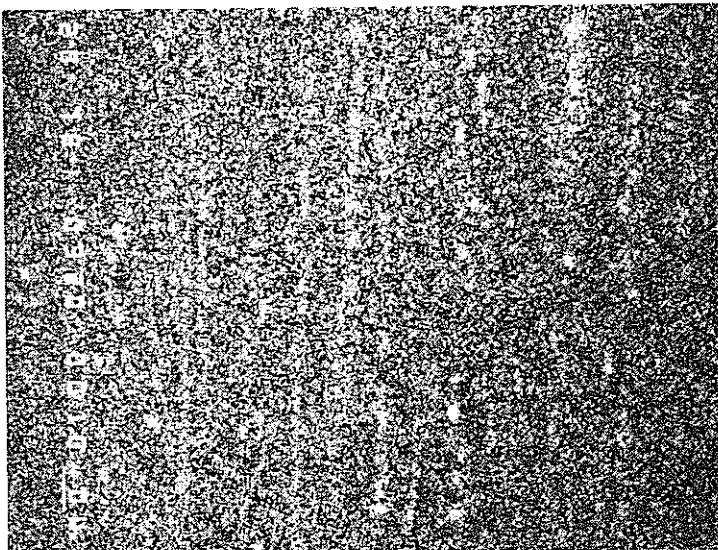


Photo. 1-c Fe K_{α} x-ray image (Run 3).

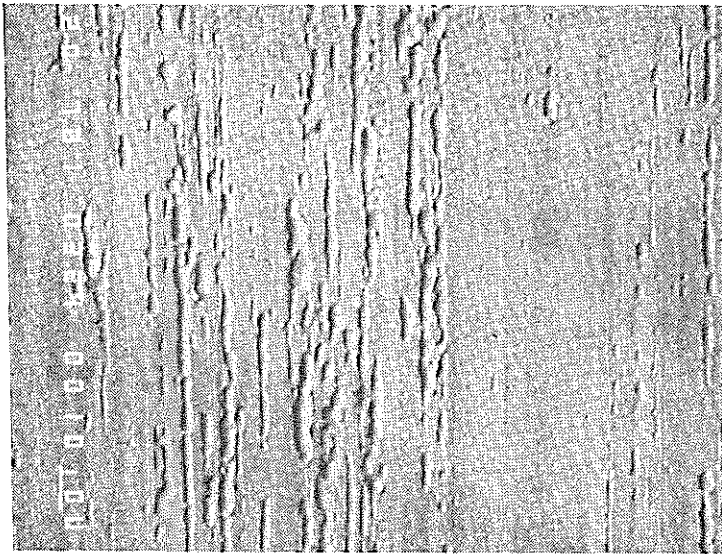


Photo. 2-a Topographic
image by EPMA
(as-received Mo).

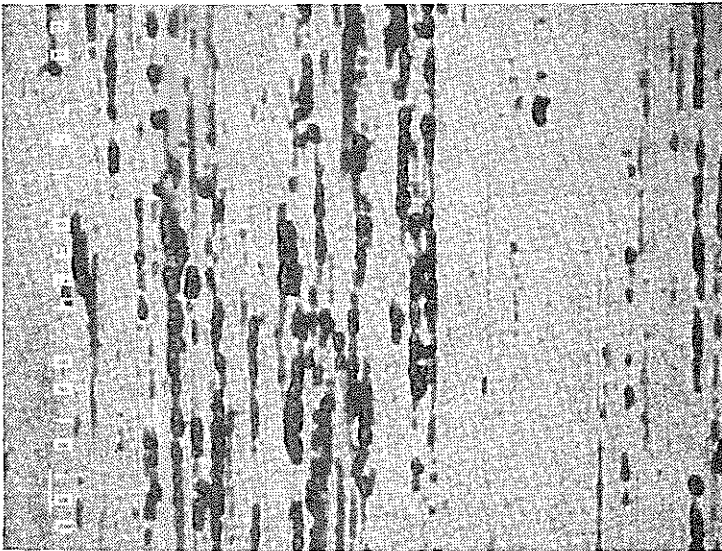


Photo. 2-b Compositional
image by EPMA
(as-received Mo).

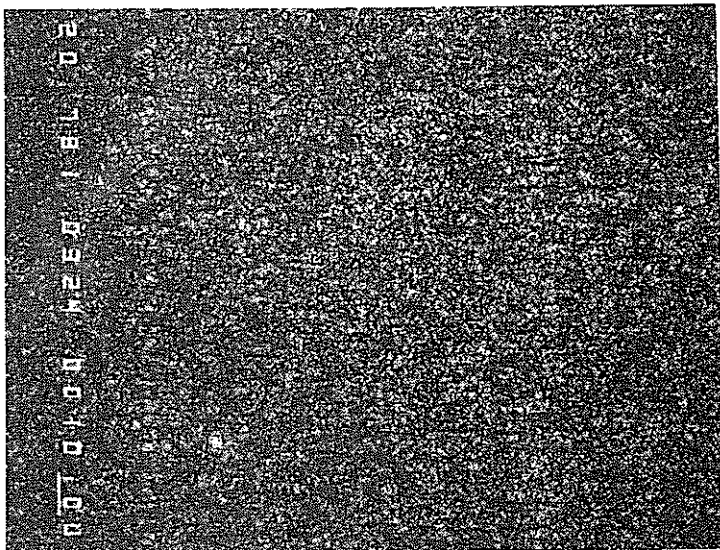


Photo. 2-c Fe K_{α} x-ray
image (as-received Mo).

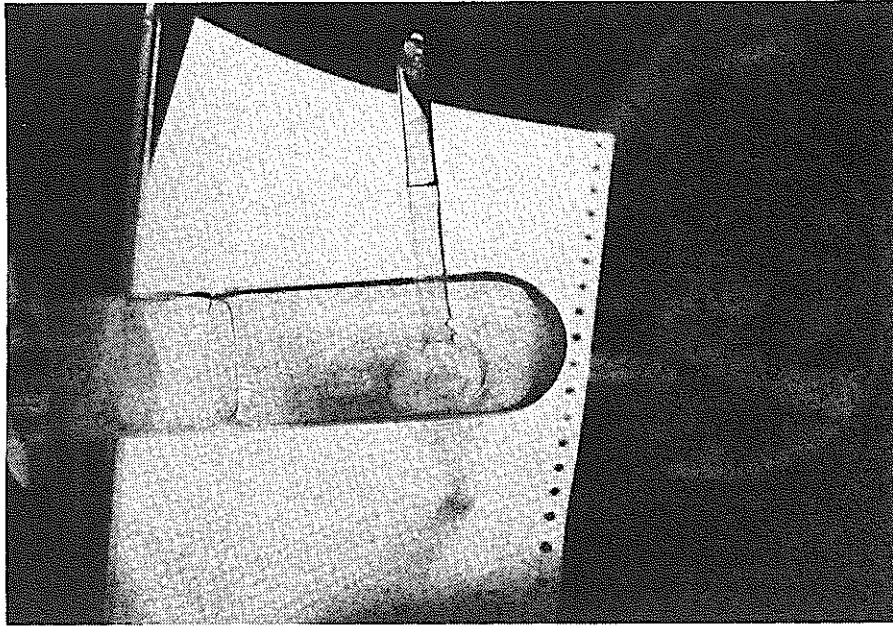


Photo. 3 Quartz tube after experiments.