

小特集

プラズマを利用した同位体分離

3. 直流放電プラズマを用いた同位体分離

赤塚 洋*, EZOUBTCHENKO Alexandre N.

鈴木 正昭

(東京工業大学原子炉工学研究所)

Isotope Separation in a DC Discharge Plasma

AKATSUKA Hiroshi, EZOUBTCHENKO Alexandre N.[†] and SUZUKI Masaaki

Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8550, Japan

(Received 25 December 1997)

Abstract

The separation of the isotopes of various kinds of rare gases in steady state DC discharges along a thin capillary is examined. The cathode region is enriched in the heavier isotopes, while the anode region in the lighter isotopes. The parameter values for the experiment includes an initial working gas pressure of 0.5–30 Torr, an inner diameter of 2–10 mm for the discharging tubes, a tube length of 100–200 mm and a discharging current ≤ 10 A. Theoretical calculations are also carried out incorporating two different separation mechanisms: the difference in the longitudinal diffusive friction forces on neutral species by ions, and the difference between the degree of ionization of the components. We describe a very recent progress in the experimental verifications of proposed theories and in the numerical simulation terms of atomic processes.

Keywords:

isotope separation, DC discharge, diffusive friction force, ion wind, cataphoresis, Haeffner effect

3.1 緒言

同位体混合物となっている気体元素を低圧にして細長い放電管に封入し、定常直流放電を生じ一定時間放置すると、陰極側空間と陽極側空間とで放電気体の同位体比に変化が生じる。この現象によって得られる同位体分離係数は、統計的分離法に属する単位操作の中でも大きく(たとえば Ne について1.2程度)、しかも作動圧力が数 Torr と遠心分離法や気体拡散法に比べても大きい。このため、基礎的なレベルから興味を持たれ、旧ソ連、

また我が国でも地道な研究が行われてきた。本章では、この直流放電同位体分離に関して、これまで行われた実験的研究・理論的研究を紹介する。極めて単純な現象であり、最初にこの方法による同位体分離が提案されたのは半世紀以上も前のことである[1]。にも関わらず、十分なパラメータスタディが行われたのは最近になってからである。一方、理論面においても、イオンが中性粒子に及ぼす拡散摩擦力の観点から、比較的最近新たな展開がなされている。さらに最近では、実験と理論の精細な

*corresponding author's e-mail: hakatsuk@nr.titech.ac.jp

[†]現在の勤務先: Laboratory of New Methods of Isotope Separation, Molecular Physics Institute, Russian Research Center, Kurchatov Institute, Kurchatov Sq. 1, 123182, Moscow, Russia

比較や、原子モデルに基づく数値シミュレーションなども実施されている。なお、他の参考文献中では、この現象は電気泳動 (cataphoresis) と呼ばれることが多いようである[2]。この術語によると電場中のイオンの運動により分離現象が説明されるような印象が与えられるが、実際はイオン衝突により運動量を与えられる中性原子の運動が同等以上に重要であることが研究の結果示されているので、本稿中ではこの術語を可能な限り使用しないこととする。

3.2 実験的研究成果の概要

直流放電中における同位体分離は、初めに Groth and Harteck によって、グロー放電陽光柱内で水素と重水素の混合気体を用いて行われた[1]。彼らはイオンに関しては重水素原子イオンの存在比が天然存在比よりも高くなり、陰極側で重水素濃度が大きくなるという可能性を見出し、実験により確認している。しかし、Xe を用いた彼らの実験においては、同位体分離は観察されなかった。

直流放電による希ガス同位体分離実験は、初めに Matsumura and Abe によって Ne に対して行われ、陰極側に重い同位体が濃縮されることが確認された[3]。次いで、前章の進行波 RF 放電同位体分離実験との実験技術および現象の類似性から、同グループの Gorbunova *et al.* によって Ne, Kr, Xe に対して行われた[4,5]。その後、各実験パラメータの分離係数への依

存性に関して、Sone *et al.* が Ne に関し[6]、また大槻らがその他の希ガス・希ガス混合気体について実験的研究を報告している[7]。

Matsumura *et al.* の実験においては、放電管は内径 3.2 mm、細く絞られた部分の長さ (以下キャピラリー長という) は 100 mm で石英製であり、電極にはステンレス鋼または無酸素銅を用い、陽極は内径 10 mm、

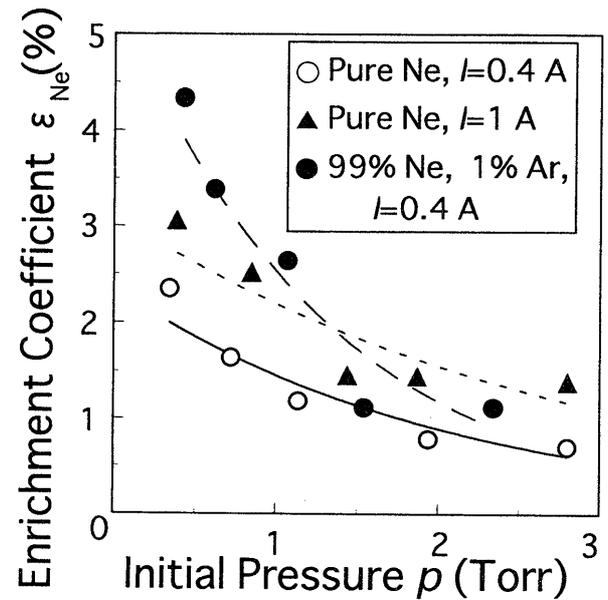


Fig. 1 Dependence of the enrichment coefficient ϵ on the initial pressure.

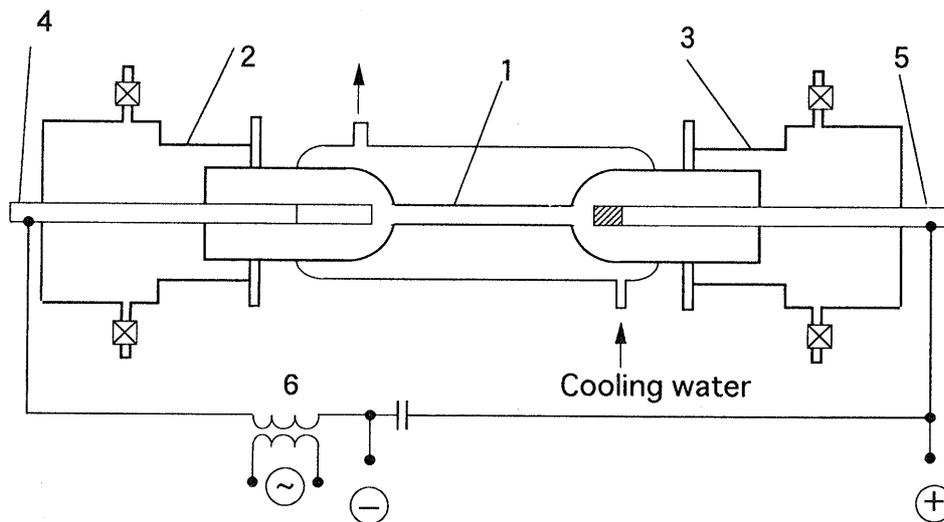


Fig. 2 Schematic drawing of the experimental arrangement for the DC-discharge apparatus. 1: discharge tube, 2, 3: metal chambers as gas holders, 4: cathode, 5: anode and 6: high voltage transformer.

長さ100 mm, 陰極は内径10 mm, 長さ20 mm で, 両電極ともに円筒状にして放電を実施している(実験装置は後述の Fig. 2 に類似している)のでここでは省略する). 初めに, 放電気体すなわち分離対象として Ne を用い, 放電中陰極側圧力 3 Torr, 放電電流 4 A の条件で実験を実施し, 分離係数 1.2 を得た[3]. 次に, 内径 3.2 mm, キャピラリー長 190 mm の放電管を用い, 放電電流は 1 A, 0.4 A の 2 通り, 放電中の陰極側圧力を 0.5~3 (Torr) の範囲で 3 分間放電させ, また, 放電電流 0.4 A で Ne にモル分率 1% の Ar を混入した混合気体での実験を行った. その結果を Fig. 1 に示す[8]. 放電電流・放電管形状が同一であれば, 気圧が低いほど分離係数は大きい. 圧力・放電管形状が同一ならば放電電流の大きいほど分離係数が大きいことも理解できる. また, 純粋な Ne に比べ, Ar を 1% 混入した混合気体の方が分離係数が大きくなることを確認される.

一方, Gorbunova *et al.* は, Fig. 2 の装置を用い実験を行った[4,5]. 石英放電管はキャピラリー長 100, 170, 190 mm, 内径は 3, 9 mm のものをそれぞれ用いており, サンプリング容器の体積は 600 cm³ である. 陽極はニオブ製円柱(長さ 35 mm, 直径 10 mm), 陰極はタンタル製中空円筒(長さ 100 mm, 直径 10 mm, 厚さ 0.03 mm)

である. 放電開始には高圧トランスを用いた. 試料気体に Ne, Kr, Xe を用い, 放電電流 10 A で実験を行った(電流密度 $j \leq 1.5 \times 10^6$ A/m²). 彼らの実験結果の一部を Fig. 3 に示す. Ne については ²⁰Ne と ²²Ne についての濃縮係数を, Kr, Xe に関しては任意の同位体の組に対して濃縮係数を前章の式(2)から計算した. いずれの条件においても同一電流・同一放電管形状では低気圧下で濃縮係数は大きくなり, 同一放電電流・同一放電管断面面積ではキャピラリー長の長い方が濃縮係数が大きくなるのがわかる. 濃縮係数の最大値は Ne で 14% であった. 注目すべき現象として, 放電中の陽極側圧力は陰極側より高くなり(この現象は直流放電管に生じる気体ポンピング現象として古くから知られている[9,10]), しかも高気圧部分には軽い同位体が濃縮されている. この点が前章の進行波 RF 放電同位体分離と逆であり, 単純な圧力拡散現象では, 直流放電同位体分離を記述することはできないことを示している. 分離平衡までの到達時間は Xe の初期圧力 10 Torr, 放電電流 10 A, キャピラリー長 170 mm, 内径 3 mm の場合で 60 分であった. また, 放電電流 10 A までは濃縮係数は放電電流に比例することを見出した. これらの実験から, 同位体分離現象は(電極近傍ではなく)細長い放電管内の陽光柱で生じているとしている.

また Gorbunova *et al.* は, Ne-Kr 混合気体の放電実

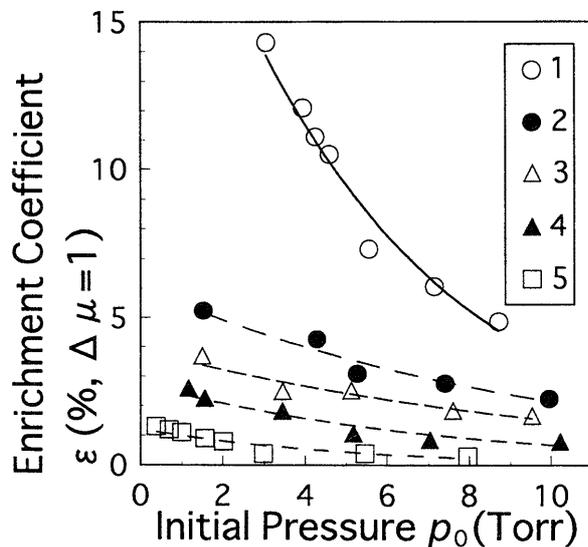


Fig. 3 Dependence of the enrichment coefficient ε on the initial pressure in the discharging tube p_0 . $I=10$ A. (1) Pure Ne, $L=170$ mm, $D=3$ mm, $V_d=140-200$ V, (2) pure Kr, $L=170$ mm, $D=3$ mm, $V_d=115-145$ V, (3) pure Xe, $L=170$ mm, $D=3$ mm, $V_d=100-120$ V, (4) pure Xe, $L=100$ mm, $D=3$ mm, $V_d=75-95$ V, and (5) pure Xe, $L=190$ mm, $D=9$ mm, $V_d=50-80$ V.

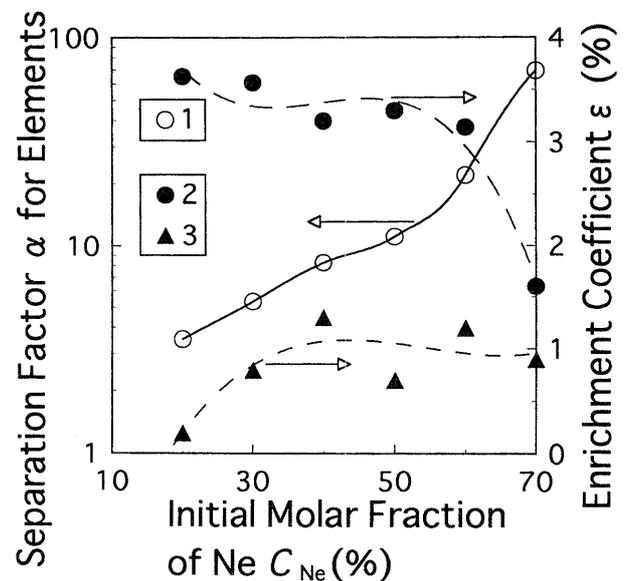


Fig. 4 Concentration dependence of (1) the separation factor α for a Ne-Kr mixture and of the enrichment coefficients (2) ε_{Kr} and (3) ε_{Ne} for a DC discharge in a Ne-Kr mixture ($p=5$ Torr, $I=10$ A, $V_d=115-125$ V).

験において、Ne のモル分率20~65%の範囲で実験を行った (Fig. 4). この放電において、Ne の濃縮係数は1.5%より小さい。一方、Kr の濃縮係数は、純粋な Kr で計測された値と等しい。Ne の ϵ の値の小さいのは、それ自身の電離電圧が高いことにより、Ne の電離度が小さくなることによるとしているが、これは松村らの Ar 混入実験の結果とは逆である。さらに Gorbunova *et al.* は、縦 (放電電流に平行、以下 z 方向という) 方向に

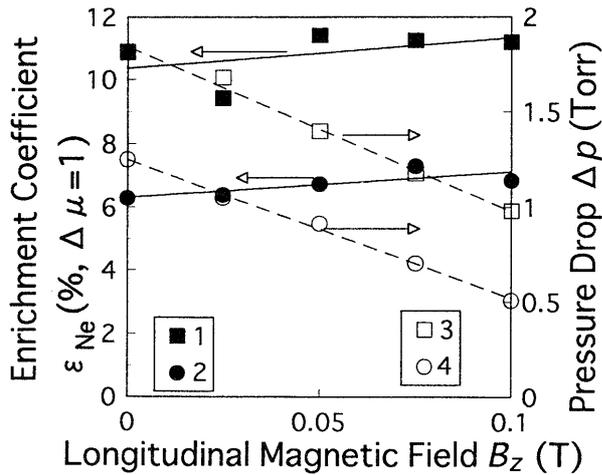


Fig. 5 (1), (2) The enrichment factor ϵ_{Ne} and (3), (4) the pressure drop Δp in a DC discharge vs the longitudinal magnetic field B_z ($I=10$ A). (1), (3) $p=5$ Torr, $V_d=170-190$ V; (2), (4) $p=7$ Torr, $V_d=150-170$ V.

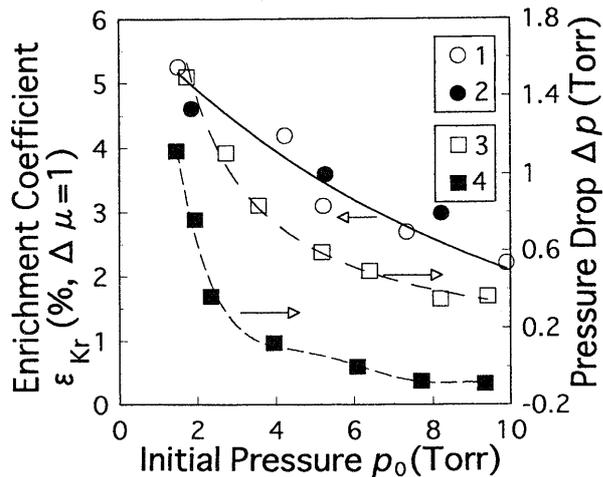


Fig. 6 (1), (2) The enrichment factor ϵ_{Kr} and (3), (4) the pressure drop Δp in a DC discharge vs the initial pressure p ($I=10$ A). (1), (3) $B_z=0$, $V_d=115-145$ V; (2), (4) $B_z=0.1$ T, $V_d=110-120$ V.

磁場 ($B_z \leq 0.1$ T) を印加した状態で実験を行った (Fig. 5, 6). これらの実験から、両電極の圧力差は磁場強度とともに変化するが、同位体濃縮係数は変わらないため、磁場の分離効果への影響は小さいとしている。加えて、中性粒子温度 T_a をスペクトル線のドップラー広がりから求めている。圧力9.5 Torr, 放電電流10 A で、Ne プラズマについては $T_a \sim 1500$ K, Kr については $T_a \sim 2000$ K であった。

これらの実験をふまえ、Sone *et al.* は Ne に関して、濃縮係数の各放電条件に対する依存性を実験的に詳しく調べた [6]. その結果、濃縮係数 ϵ が放電電流 I , キャピラリー長 L に比例し、放電初期圧力 p , 放電管断面積 S に反比例するという結果を得た。彼らはこのデータを下に Duman *et al.* の理論式 [11] から放電管両端における電位降下 V_d , 電子ドリフト速度 v_{ed} とした場合、 ϵ は IV_d/pSv_{ed} というパラメータに比例するという式を導き出し、およそすべてのデータを整理することに成功した (Fig. 7).

3.3 理論的研究成果の概要

混合気体における直流放電により、放電電流方向に生じる気体偏析現象の研究は数多くなされてきた [12, 13]. この現象は電気泳動偏析といわれ、電離電圧の低い成分が陰極側に濃縮される。この現象は低い電離電圧を持つ

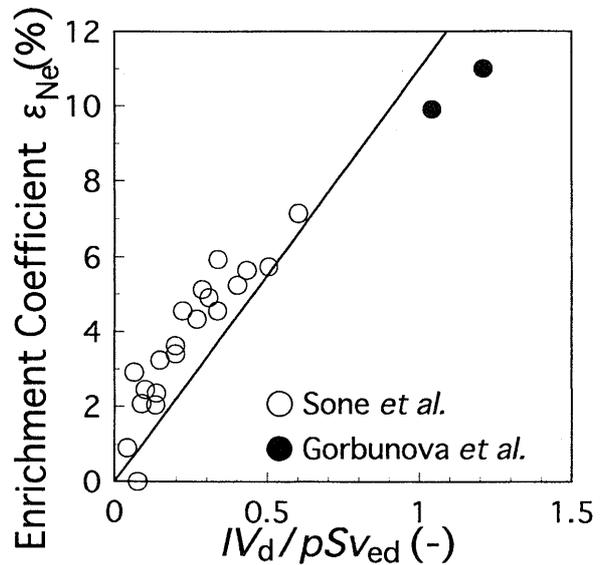


Fig. 7 Correlation between values of enrichment factor ϵ_{Ne} derived from measured data and non-dimensionalized factor (IV_d/pSv_{ed}) . S denotes the cross sectional area of the capillary.

成分が優先的に電離することに起因している。しかし、電離電圧に関しては同位体効果は極めて小さく、偏析だけでは観測された同位体分離現象は説明できない。もちろん、熱拡散効果でも説明できない。

Freudenthal は、Ne-Ar および Ne-He 混合気体の実験を行い、その結果から定常状態での電子・イオンの中性粒子への運動量移行を考察し電気泳動現象による元素偏析を説明した[14]。この理論を下に、Matsumura and Abe は以下の理論を提出した[3]。放電管内の中性粒子が、イオンおよび電子に衝突される際に受ける力(彼らはこれを総括して拡散摩擦力と呼び、イオンによるものをイオンウィンド、電子によるものをエレクトロウィンドと呼んでいる)について、同位体間に差があるとするものである。各同位体は径方向に一様分布し、温度勾配は無視できると仮定すると、イオン・電子の衝突により重い同位体の中性粒子に働く単位体積あたりの z 方向の力は

$$F_1 = n_i e E_z \left[\frac{n_1}{K_1^+} \left(\frac{n_1}{K_1^+} + \frac{n_2}{K_2^+} \right) - \frac{n_1}{K_1^-} \left(\frac{n_1}{K_1^-} + \frac{n_2}{K_2^-} \right) \right] \quad (1)$$

となる。ここに、 K_α^+ および K_α^- ($\alpha=1,2$) は、それぞれ同位体 α (添字 1 を重い同位体とし、2 を軽い同位体に対応させる) の気体分子中におけるイオンまたは電子の換算移動度であり、移動度 μ_α^\pm を用いて

$$K_\alpha^\pm = \frac{\mu_\alpha^\pm}{p_\alpha} \quad (2)$$

と定義される。ここに、 p_α は同位体 α の中性粒子の圧力である。また、 n_i はイオン密度で、電子密度 n_e と等しいと仮定した。さらに、 e は素電荷、 E_z は放電陽光柱中の縦方向電場、 n_α は同位体 α の中性粒子密度である。これにイオンの移動度と質量 m_α の関係式

$$\mu_\alpha^+ \propto \left[\frac{m_\alpha + m}{m_\alpha m} \right]^{1/2}, \quad (3)$$

さらに軸方向の濃度勾配を用いて、濃縮係数は次式で表現されるとした。

$$\varepsilon \approx \frac{n_i e E_z L}{nkT} \times \frac{\sqrt{m_1/(m_1+m_1)} - \sqrt{m_2/(m_1+m_2)}}{(n_1/n)\sqrt{m_1/(m_1+m_1)} + (n_2/n)\sqrt{m_2/(m_1+m_2)}} \quad (4)$$

ここで、 n は全中性粒子密度、 m_i はイオン質量である。質量の間に $0 < m_1 - m_2 \ll m_2$ 、 m_1 が成り立つような 1 種類の元素の気体では、 $m_1 \approx m_2 \approx m_i$ とできるから、(4) 式から、

$$\varepsilon \approx \frac{m_1 - m_2}{2(m_1 + m_2)} \frac{n_i e E_z L}{nkT} \quad (5)$$

となる。さらに彼らは、2 種の同位体以外に、その元素よりも大きい質量・低電離電圧を有する異種の元素を混合した多成分混合気体についても理論を展開し、その場合には

$$\varepsilon \approx \frac{m_1 - m_2}{m_1 + m_2} \frac{n_i e E_z L}{nkT} \quad (6)$$

となるとしている[15]。

Karchevskii *et al.* は、松村らの理論は実験結果に対して定性的には一致が見られるものの、実験値よりも大きな値を与えていると結論した。理論的にも、電荷移行衝突を無視しており、さらに中性粒子のイオンと逆方向への還流運動など、重要な原子の運動・衝突の過程も無視しており、不十分であると考えた。そして、前章の RF 放電同位体分離と同様の考察が可能であると考えた。すなわち、①イオンウィンドによる効果、および②重い同位体の高い電離度(壁面再結合速度に同位体間で差が存在するはずであり、これにより同位体間で電離度に差が生じる)と考え、その濃縮係数を以下のように導出した[16]。

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta m}{4m} \frac{q_i + 3}{(q_i + 1)^2} \left(q_i - q_n \frac{\theta}{1 + \theta} + \frac{1}{1 + \theta} \right) \frac{n_i e E_z L}{nkT} \quad (7)$$

ここに、 m は同位体の平均質量、 $\Delta m = m_1 - m_2$ 、その他使用した断面積に関連する記号は前章と同一である。

また、十分低気圧の直流放電の場合のみ、

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta m}{2m} \frac{\beta e E_z L}{kT} \quad (8)$$

となることを示した[17]。 β は平均電離度である。

Duman *et al.* は、Karchevskii らの考察をさらに進め、a. プラズマ粒子の平均自由行程がキャピラリー内径よりはるかに小さい、b. 電離は中性分子への電子衝突のみ、c. 荷電粒子は両極性拡散の結果管壁で消失するの 3 つの仮定の下に、直流放電同位体分離現象の原因を以下の 3 つにまとめた[11]。①陰極への軽い同位体イオンの優先的輸送(軽いイオンの移動度がより高い)、②中性粒子に対する拡散摩擦力(イオンウィンド)、③重い成分の高い電離度、である。全体の分離効果は、上記 3 種の和になるが、①と②は相関があるため、①・②による効果と③による効果に分けて考える。

①・②による効果、すなわち z 方向の拡散摩擦力は、添字 1, 2 をイオン、3, 4 をそれぞれ対応する中性粒子とすると、各成分に働く力を F_j として、以下となる[11]。

$$F_1 = -n_1 n_3 \alpha_{13} v_1 - n_1 n_4 \alpha_{14} v_1 - n_1 n_3 \alpha_{13}^* v_1 - n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1 + n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2, \quad (9)$$

$$F_2 = -n_2 n_3 \alpha_{23} v_2 - n_2 n_4 \alpha_{24} v_2 - n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2 - n_2 n_4 \alpha_{24}^* v_2 + n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1, \quad (10)$$

$$F_3 = n_1 n_3 \alpha_{13} v_1 + n_2 n_3 \alpha_{23} v_2 + n_1 n_3 \alpha_{13}^* v_1 + n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1, \quad (11)$$

$$F_4 = n_1 n_4 \alpha_{14} v_1 + n_2 n_4 \alpha_{24} v_2 + n_2 n_4 \alpha_{24}^* v_2 + n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2. \quad (12)$$

ここで、 α_{ij} と α_{ij}^* はそれぞれ i 種と j 種の成分間の弾性散乱拡散摩擦係数、純電荷移行拡散摩擦係数で、衝突の際に分子が固体弾性球のように相互作用するとみなせば、前章で定義したのと同じの断面積記号を用いて以下のように書ける。

$$\alpha_{ij} = \frac{4}{3} M_{ij} \left(\frac{8kT}{\pi M_{ij}} \right)^{1/2} Q_i, \quad \alpha_{ij}^* = \frac{4}{3} m_i \left(\frac{8kT}{\pi M_{ij}} \right)^{1/2} Q^*, \quad (13)$$

ここに、 M_{ij} は換算質量を表す。また、

$$\alpha_1^* = \frac{4}{3} \frac{m_1^2}{m_1 + m_2} \left(\frac{8kT}{\pi M_{14}} \right)^{1/2} Q^*, \quad \alpha_2^* = \frac{4}{3} \frac{m_2^2}{m_1 + m_2} \left(\frac{8kT}{\pi M_{23}} \right)^{1/2} Q^* \quad (14)$$

である。ここで、各粒子に働く力として、イオンについては電磁力と拡散摩擦力(9)-(10)が釣り合うと考え、中性粒子については圧力勾配と拡散摩擦力(11)-(12)が釣り合うとし、定常状態ではこれらが釣り合うとすれば、以下を得る。

$$n_1 e E_z = -n_1 n_3 \alpha_{13} v_1 - n_1 n_4 \alpha_{14} v_1 - n_1 n_3 \alpha_{13}^* v_1 - n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1 + n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2, \quad (15)$$

$$n_2 e E_z = -n_2 n_3 \alpha_{23} v_2 - n_2 n_4 \alpha_{24} v_2 - n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2 - n_2 n_4 \alpha_{24}^* v_2 + n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1, \quad (16)$$

$$\frac{dp_3}{dz} = n_1 n_3 \alpha_{13} v_1 + n_2 n_3 \alpha_{23} v_2 + n_1 n_3 \alpha_{13}^* v_1 + n_1 n_4 \alpha_{14}^* v_1 + n_3 n_4 \alpha_{34} (v_4 - v_3), \quad (17)$$

$$\frac{dp_4}{dz} = n_1 n_4 \alpha_{14} v_1 + n_2 n_4 \alpha_{24} v_2 + n_2 n_4 \alpha_{24}^* v_2 + n_2 n_3 \alpha_{23}^* v_2 + n_3 n_4 \alpha_{34} (v_3 - v_4), \quad (18)$$

上式では、イオン同士の衝突はその密度が小さいとして無視しているが、中性粒子相互の衝突は考慮している。これから、以下の濃縮係数が計算される。

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta m}{4m} \left[\frac{Q_1^2 + 6Q_1 Q^* + 5Q^{*2} - Q_n (Q_1 + 5Q^*)}{(Q_1 + Q^*) (Q_1 + 2Q^*)} \right] \times \frac{n_e e E_z L}{nkT}. \quad (19)$$

また、③による効果を評価するには、Fig. 7-8 の様に外部磁場 B_z の印加された場合に対しても拡張できるような以下の理論が提案されている[18]. 力の釣り合いの式として、中性粒子については前章の式(14)-(15)をそのまま適用することが可能である。一方、電子、イオンについては、電離度が小さく、 z 方向のパラメータ変化は小さいと仮定できれば、以下の式を得ることができる。

$$n_e e u_e B_z = n_e n_3 \alpha_{e3} v_e + n_e n_4 \alpha_{e4} v_e, \quad (20)$$

$$-n_1 e u_1 B_z = n_1 n_3 (\alpha_{13} + \alpha_{13}^*) v_1 + n_1 n_4 (\alpha_{14} + \alpha_{14}^*) v_1, \quad (21)$$

$$-n_2 e u_2 B_z = n_2 n_3 (\alpha_{23} + \alpha_{23}^*) v_2 + n_2 n_4 (\alpha_{24} + \alpha_{24}^*) v_2, \quad (22)$$

$$-n_e e (E_r + v_e B_z) - \frac{dp_e}{dr} = n_e u_e (n_3 \alpha_{e3} + n_4 \alpha_{e4}), \quad (23)$$

$$n_1 e (E_r + v_1 B_z) - \frac{dp_1}{dr} = n_1 u_1 [n_3 (\alpha_{13} + \alpha_{13}^*) + n_4 (\alpha_{14} + \alpha_{14}^*)], \quad (24)$$

$$n_2 e (E_r + v_2 B_z) - \frac{dp_2}{dr} = n_2 u_2 [n_3 (\alpha_{23} + \alpha_{23}^*) + n_4 (\alpha_{24} + \alpha_{24}^*)], \quad (25)$$

記号の定義は前章と同一である。連続の式として前章(16), (17)式を併せて用い、前章と同様の考察から

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta \beta}{\beta} \frac{Q_n + 2Q^*}{Q_1 + 2Q^*} \frac{n_1 e E_z L}{nkT}. \quad (26)$$

ただし

$$\frac{\Delta \beta}{\beta} \approx \frac{\Delta m}{4m} \frac{Q_1 + 6Q^*}{(Q_1 + 2Q^*) (1 + \theta_1)}, \quad (27)$$

$$\theta_1 \approx \frac{T_i R^2 Q^* (Q_1 + 2Q^*) (1 + \chi_i \chi_e)}{3(T_e + T_i)}, \quad (28)$$

$$\chi_i = \frac{e B_z}{(n_3 + n_4) \bar{\alpha}_{in}}, \quad \chi_e = \frac{e B_z}{(n_3 + n_4) \bar{\alpha}_{en}} \quad (29)$$

を得る。ここに、 $\bar{\alpha}_{en}$, $\bar{\alpha}_{in}$ はそれぞれ電子-中性粒子、イオン-中性粒子間の同位体について平均化した全拡散摩擦係数である。その他の記号の定義は前章と同一である。(28)式で磁場 $\rightarrow 0$ とすると、 θ_1 は前章(19)式におおよそ等しくなることがわかる。実際の放電条件では、 $\theta_1 \approx 1$ のオーダーでかつ $\chi_i \chi_e < 1$ であるから、同位体分離に及ぼす磁場の影響は小さいことが結論できる。最終的な結果として、①-③の効果をすべて考慮した濃縮係数は、

(19)式と(26)式の和として以下で与えられることとなる。

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta m}{4m} \left[\frac{Q_i^2 + 6Q_i Q^* + 5Q^{*2} - Q_n(Q_i + 5Q^*)}{(Q_i + Q^*)(Q_i + 2Q^*)} + \frac{(Q_i + 6Q^*)(Q_n + 2Q^*)}{(Q_i + 2Q^*)^2(1 + \theta_1)} \right] \frac{n_i e E_z L}{nkT}. \quad (30)$$

以上の計算結果について、前章(23)式および断面積や各種温度同様の推算値を代入し、Duman *et al.*[11]、また Potanin[18]は以上の理論が実験事実をよく説明するとしている。松村らの理論に比べて、中性粒子挙動、イオン挙動を詳細にモデル化しておりその優位性は明らかである。もちろん、各種の断面積データ、特に弾性散乱拡散断面積 Q_i の精度は不十分であるし、プラズマパラメータも測定されたわけではなく、これら理論の確認実験は彼らのグループでは詳細には行われていない。

理論的研究に関しては、さらに1件、まったく別の観点からの研究がなされた。細管内の液体金属に長時間直流通電を施すと、電子による拡散摩擦力のために同位体分離現象が生じる現象は、Haefner 効果として有名である[19]。Robson *et al.* は、この理論を低圧強電離(電離度 ~ 1)プラズマ中の同位体分離現象に適用した[20]。しかし、彼らの計算結果から濃縮係数を計算すると、近似的に

$$\varepsilon \approx \frac{\Delta m}{m} \frac{m_e}{m} \frac{eE_z L}{kT} \quad (31)$$

となる。もちろん、 m_e は電子の質量であり、(5)式や(30)式と比べると m_e/m という項が乗じられているため、この理論では分離係数は極めて小さくなり、実験結果を説明できない。電子による拡散摩擦力については(もちろん、陽極側圧力が高いのであるから、電子拡散摩擦は放電自体については重要な現象であることには代わりはないが)、同位体効果に限定すれば、その影響は小さいことがわかる。

3.4 結 言

本稿では直流放電プラズマを利用した同位体分離に関連する実験的研究、理論的研究のレビューを述べた。本研究も、今なお基礎的段階にあり、実用化を議論する段階ではないと考えられる。しかし、軽い気体に関しては分離係数がさらに向上する可能性があり、水素などの分子気体についても適用が将来期待される。逆の見方をすると、最近では希ガス以外の気体分子にほとんど研究例がないわけであり、今後の研究が待たれていると考えられる。また、実験的なパラメータスタディも文献[6],[7]

で緒についたばかりである。

最後に、ごく最近の研究の動向について言及しておく。直流放電同位体分離現象の実験的パラメータスタディは、継続的に著者らの研究室で続けられており、Duman *et al.* の理論を下に、実験により各種のパラメータ(電子温度・密度)を測定しつつ種々の条件下で測定を行い、理論式に現れる値をフィッティングにより求めたところ、希ガスについては統一的に Duman *et al.* の理論で実験事実を説明できそうであるとの見通しが得られつつある[21]。また、著者らは粒子法に基づく数値シミュレーションにより本現象の模擬を試みている。中性粒子に対しては、平均自由行程 λ と放電管内径 D の比で与えられるクヌーゼン数 K_n が $0.01 \sim 0.1$ のオーダーとなり、連続体ではなく希薄流として移動現象を解析するべきである。中性粒子・イオン同位体についてモンテカルロ直接法を適用することにより、同位体分離現象、さらには両電極間の圧力差についても実験結果を正確に説明できる可能性が開かれてきており、放電現象の基礎研究としても新たな展開がなされている[21,22]。

参 考 文 献

- [1] W. Groth and P. Harteck, *Naturwissenschaften* **27**, 390 (1939).
- [2] M.W. Grossman and T.A. Shepp, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **19**, 1114 (1991).
- [3] Y. Matsumura and T. Abe, *Jpn. J. Appl. Phys.* **19**, L457 (1980).
- [4] E.F. Gorbunova, A.N. Ezubchenko, A.I. Karchevskii and Yu. A. Muromkin, *Sov. Tech. Phys. Lett.* **7**, 326 (1981).
- [5] E.F. Gorbunova, A.I. Karchevskii and Yu.A. Muromkin, *Sov. J. Plasma Phys.* **12**, 625 (1986).
- [6] T. Sone, H. Akatsuka and M. Suzuki, *J. Nucl. Sci. Technol.* **33**, 414 (1996).
- [7] 大槻信行, A.N. Ezoubtchenko, 赤塚 洋, 鈴木正昭: 日本原子力学会1997年春の年会要旨集, L47, 596 (1997).
- [8] 松村吉康, 阿部俊三, 榎本 幹: 東北工業大学紀要 I 理工学編 **3**, 1 (1983).
- [9] I. Langmuir, *J. Franklin Inst.* **196**, 751 (1923).
- [10] A.N. Chester, *Phys. Rev.* **169**, 172 (1968); *Phys. Rev.* **169**, 184 (1968).
- [11] E.L. Duman, A.V. Evseev, A.I. Karchevskii and E.P. Potanin, *Sov. J. Plasma Phys.* **17**, 127 (1991).
- [12] M.J. Druyvesteyn, *Physica* **2**, 255 (1935).
- [13] C. Sanctrum, *Physica* **83C**, 367 (1976); *Phys. Rev.* **85C**, 209 (1977).

- [14] J. Freudenthal, *Physica* **36**, 354 (1967).
- [15] 松村吉康, 阿部俊三, 榎本 幹, 赤間芳雄, 東北工業大学紀要 I 理工学編 2, 5 (1982).
- [16] A.I. Karchevskii and E.P. Potanin, *Sov. J. Plasma Phys.* **8**, 101 (1982).
- [17] A.I. Karchevskii and E.P. Potanin, *Sov. Tech. Phys. Lett.* **8**, 553 (1982).
- [18] E.P. Potanin, *Itogi Nauki i Tekhniki and Seria Fizika Plazmy* **12**, 1 (1991) [*in Russian*].
- [19] E. Haeffner, *Nature* **172**, 775 (1953).
- [20] R.E. Robson, B.V. Paranjape and N.H. March, *Plasma Phys. Control Fusion* **36**, 635 (1994).
- [21] 赤塚 洋, 大槻信行, 狩野勝弘, A.N. エズブチェンコ, 鈴木正昭: プラズマ核融合学会第14回年会予稿集, 340 (1997).
- [22] 赤塚 洋, 大槻信行, 狩野勝弘, A.N. エズブチェンコ, 鈴木正昭: 日本原子力学会1997年秋の大会予稿集, 971 (1997).