



# 展 TENBO 望

## ナノ構造金属において 重水素透過によって観測される “元素変換”現象について



岩村 康弘

*Iwamura Yasuhiro*

(三菱重工業(株)先進技術研究センター)

### 1 はじめに

重水素透過により誘起される元素変換現象を我々は新元素変換と呼んでいる。新元素変換とは、元素を添加した独自のナノ反応膜に重水素ガスを透過させるだけで、添加元素をほかの元素に変換可能な新技術であり、当社の研究において見いだされた<sup>1)</sup>。従来、元素を変換するためには、加速器や原子炉などの高エネルギーの大掛かりな装置が必要であるのに対し、新元素変換では、コンパクトかつ低エネルギー消費で元素変換が可能という特徴を持っている。

図1に示すようにナノスケールPd薄膜とCaOとPdの混合層から構成されるPd多層膜の表面にCsやBa等の元素を添加し、片側を重水素ガス、片側を真空状態にすると、Pdは重水素を透過させやすい性質を持っているため、Pd多層膜の重水素側の表面で重水素ガス分子が重水素に解離し、多層膜中を透過する。その際、添加したCs等の元素が時間とともに減少し、代わりに最初存在しなかった元素が検出される(図2)。このデー

タは真空容器内に設置したX線光電子分光(X-ray Photoelectron Spectroscopy: XPS)で元素

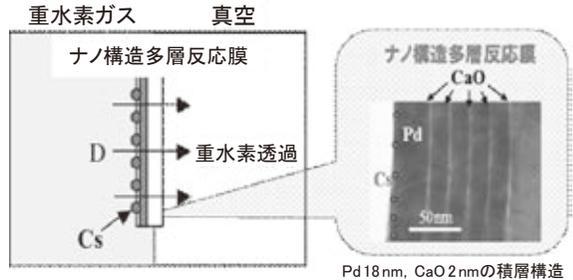


図1 実験方法

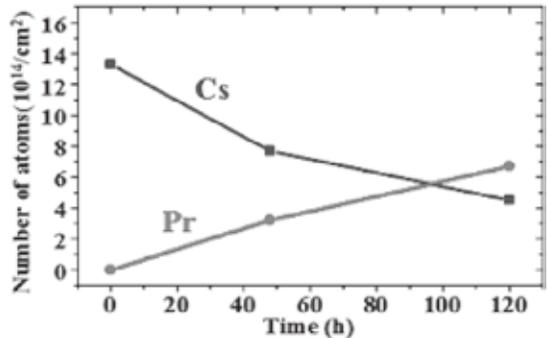


図2 CsからPrへの変換結果例<sup>1)</sup>

表1 観測された主な反応

$^{133}_{55}\text{Cs} \rightarrow ^{141}_{59}\text{Pr}$	$^{138}_{56}\text{Ba} \rightarrow ^{150}_{62}\text{Sm}$
$^{88}_{38}\text{Sr} \rightarrow ^{96}_{42}\text{Mo}$	$^{182}_{74}\text{W} \rightarrow ^{190}_{78}\text{Pt}$
$^{44}_{20}\text{Ca} \rightarrow ^{48}_{22}\text{Ti}$	$^{184}_{74}\text{W} \rightarrow ^{188}_{76}\text{Os}$

の時間変化を観測した結果である。これまでに数十回以上の実験を行い、Csを添加したPd多層膜に重水素ガスを透過させると、Prが検出されることを確認している。また、詳細な議論は論文に記述しているが、不純物の集積でこの現象を説明することはほぼ不可能である。

## 2 これまでの成果<sup>1-5)</sup>

元素変換反応はCsだけではなく、表1にあるような数多くの元素に対して確認できおり、変換された元素は全て安定元素である。このようにアルカリ金属やアルカリ土類金属が変換しやすい傾向があり、反応のメカニズムと何らかの関係があると考えられる。

全く同様な方法で、Csの代わりにBaを用いるとSmに変換する<sup>2)</sup>。最初、天然のBaを添加して重水素を透過させたが、その場合のBaの同位体比が図3の上段左、変換されたSmの同位体比が上段右になる。これらのデータはSIMSによって分析された結果である。天然のBaは図からも分かるように、質量数138が最も多い。これに対して、変換されたSmは透過前と透過後の質量スペクトルを比較すると、質量数150が増加している。したがって、この結果は $^{138}\text{Ba}$ が $^{150}\text{Sm}$ に変換されたと考えることができる。図3の下段は、添加するBaを質量数137だけを濃縮したものを使った場合の結果である。図3の下段左は用いたBaの同位体比で、このように質量数137の同位体が最も大きい。この137が濃縮されたBaを用いて、重水

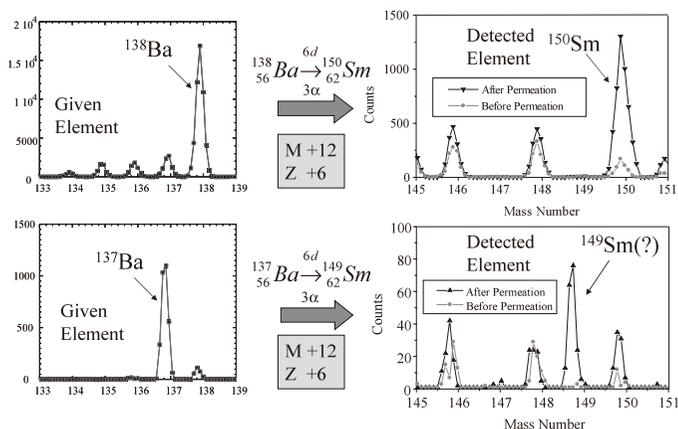


図3 変換元Baの同位体の違いによる変換先Smの同位体変化<sup>2)</sup>

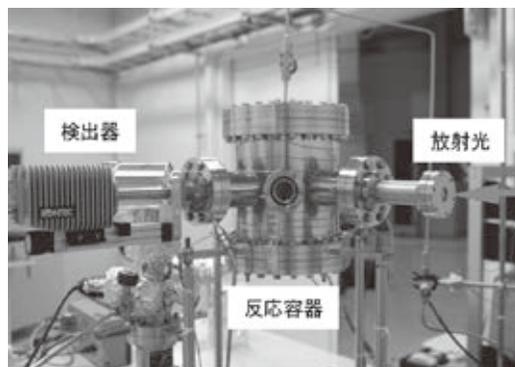


図4 理研/SPRING-8に設置したin-situ計測装置

素透過実験を行った結果が、図3下段の右である。このように今度は149の質量数が増加している。このように、変換元の元素の同位体比を変化させると変換先の元素の同位体比が変わるという結果は、核変換が起きていることを強く支持する。なお、この実験結果の詳細は文献<sup>2)</sup>に記述している。

CsからPrへの変換反応をXPSだけではなくより信頼性の高い蛍光X線分析(X-ray Fluorescence Analysis: XRF)を用いて、in-situで変換反応を観測した。これは、図4に示すように装置をSPRING-8のビームラインに設置し、元素の変換を観測するもので、5.97 keVの放射光を入射させそれを試料表面に照射し、元素の

変化を観測する。図5に *in-situ* 計測の一例を示す。Initialが重水素透過前、Finalが重水素透過後を示し、重水素透過前になかったPrが透過後に生成されていることが分かる<sup>5)</sup>。

### 3 再現実験

当社の発表後、幾つかの再現実験の成功が報告された<sup>6-8)</sup>。その中で、最近論文が出版された豊田中央研究所の結果について、簡単に述べる。図6に豊田中央研究所の実験装置を示す。我々と同様にPd/CaOの多層膜を作成し、そこ

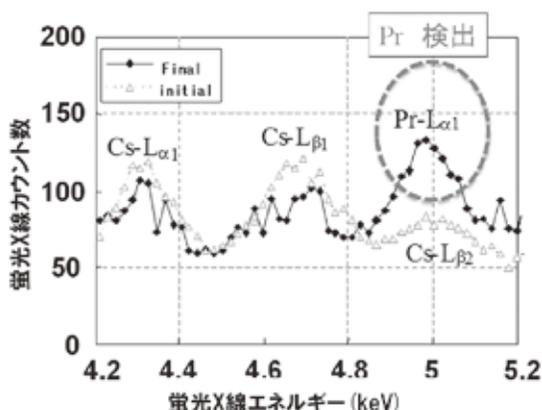


図5 蛍光X線分光によるCsからPrへの変換確認

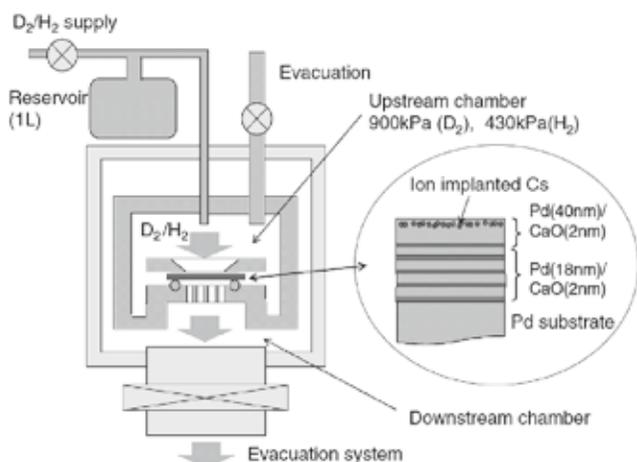


図6 豊田中央研究所の実験装置<sup>8)</sup>

にCsを添加し、重水素を透過しその後Pd多層膜の表面の元素を分析している。元素の分析はICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) を用いている。

図7に、彼らの透過実験の結果を示す。#1~#3は多層膜にCsをイオン注入し、重水素を透過させたもので、3回ともPrが検出されており、 $1\sim 2 \times 10^{12}$  atoms/cm<sup>2</sup>のオーダーである。それに対してCsを添加しない場合やCsを添加せず多層膜でない場合、Csを添加して軽水素を透過した場合などの対照実験の結果が示されており、どれもCsを添加して重水素を透過した場合に比べ、1桁以上低い。また、通常ICP-MSで分析する際は、サンプルの表面を100nm程度溶かして分析するが、#19~#21はサンプル全体を溶かしてPrが不純物として存在しないかどうか確認した結果で、このように $1 \times 10^{11}$  atoms/cm<sup>2</sup> (0.02 ng/cm<sup>2</sup>)程度である。このことから、多層膜にCsを添加して重水素を透過した場合にのみ、Prが検出されることが確認された。

### 4 収量増大への取り組み

これまでの反応収量は通常数ng~数十ngオーダーに留まっており、実用化のためには、反応収量の増大が必要である。そのため、最近実用化を目指した、変換量の増大研究に取り組んでいる。実験結果から、以下の要因が変換反応に重要であるという仮説を立てて研究を進めている。

- 1) 表面の重水素密度
  - 2) Pd表面層の電子状態
- 1)の重水素密度が高い方場合に変換量が増大することは重水素透過実験から確認できている。ただし、ガス透過法では付加できる圧力には限界があり、収率の飛躍的向上は困難と判断し、以降の重水素透過は電気化学的

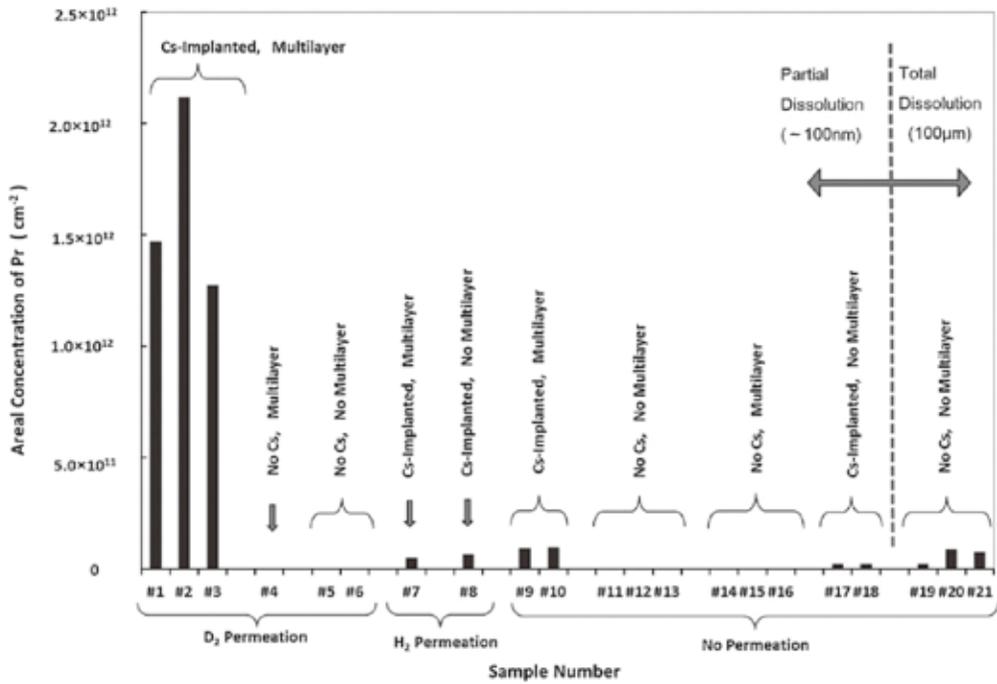


図7 豊田中研の再現実験結果<sup>8)</sup>

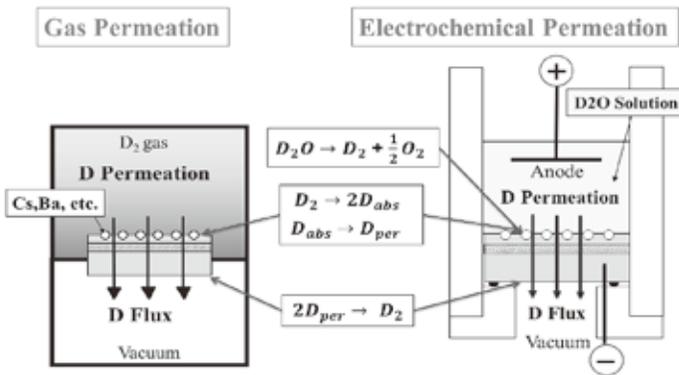


図8 重水素ガス透過法と電気化学的重水素透過法

法を採用し、等価的に高い重水素圧力をPd表面に加えることで重水素密度の向上を図った。

図8は重水素のガス透過法と電気化学的手法を用いて透過的に重水素を高圧で透過させる手法の比較を示している。両者は重水素を透過させるという意味において同じであるが、表面の重水素密度が異なる。図9はこの両者の実験に

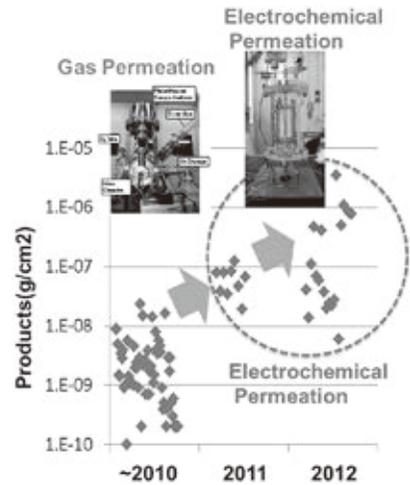


図9 元素変換収量の増大

よる元素変換反応の収量の違いをまとめたものである。このように従来ngオーダーであった収量が電気化学的重水素透過法により2~3桁程度増大していることが分かる。

## 5 終わりに

従来の物理学の常識では考えにくい低エネルギーでの新元素変換反応であるが、多くの機関で再現実験に成功している。新元素変換現象の本質はまだまだよく分かっていないのが実情ではあるが、実験事実が着実に出てきており、多くの国でより多くの研究が行われることを期待している。

### 【謝辞】

本研究を行うに当たって、(財)熱・電気エネルギー技術財団から援助をいただいております、深く感謝したい。また、本研究は、SPring-8 ((財)高輝度光科学研究センター)の一般課題で行われているほか、高橋 阪大名誉教授、東北大 笠木教授、東大 福谷教授、物質材料研究機構の西村ユニット長、Naval Post Graduate SchoolのProf. M. Melich、Naval Research LaboratoryのDr. K. Grabowski、イタリア INFNのDr. F. Clelani、各先生方の貴重なご意見をいただいた。関係各位に感謝する次第である。

## 参考文献

- 1) Iwamura, Y., *et al.*, *Japanese Journal of Applied Physics*, **41**, 4642-4650 (2002)
- 2) Iwamura, Y., *et al.*, *J. Condensed Matter Nucl. Sci.*, **4**, 132-144 (2011)
- 3) Iwamura, Y., *et al.*, *J. Condensed Matter Nucl. Sci.*, **10**, 1-9 (2012)
- 4) Iwamura, Y., *et al.*, *J. Condensed Matter Nucl. Sci.*, **12**, 1-11 (2013)
- 5) Iwamura, Y., *et al.*, *Condensed Matter Nuclear Science*, Takahashi, A., *et al.* (Ed.), Proc. 12th Int. Conf. on Condensed Matter Nuclear Science, World Scientific, New Jersey, pp.178-187 (2006)
- 6) Higashiyama, T., *et al.*, Proc. 10th Int. Conf. on Condensed Matter Nuclear Science, Hagelstein, P.H., *et al.* (Eds.), *Condensed Matter Nuclear Science*, World Scientific, New Jersey, pp. 447-454 (2006)
- 7) Yamada, H., *et al.*, Proc. 12th Int. Conf. on Condensed Matter Nuclear Science, Takahashi, A., *et al.* (Eds.), *Condensed Matter Nuclear Science*, World Scientific, New Jersey, pp.196-205 (2006)
- 8) Hioki, T., *et al.*, *Japanese Journal of Applied Physics*, **52**, 107301 (2013)