

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：15501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610192

研究課題名(和文) 低エネルギー水素イオン照射によって促進されるメゾ多孔性ニッケルの核種変換

研究課題名(英文) Nuclear Transformation of Mesoporous Nickel Stimulated by Low-energy Irradiation of Hydrogen Ions

研究代表者

大原 渡 (Oohara, Wataru)

山口大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：80312601

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：Niパウダーと軽水素の組み合わせによりCuなどへ核種変換する現象が報告されており、メゾ多孔性ニッケルへ水素イオン照射によって核種変換することの検証を行った。Niパウダー(< 50 nm)を付着させたNi多孔体を600℃一定に保ち、水素イオン(300 eV)を6-42時間照射した。SEM/EDXによって表面元素分析したところ、CとFeが多く検出された。ICP発光分光分析で金属内部元素を調べたところ、FeとCoが多く検出されたが、Cuは検出されなかった。スパッタリング等によってステンレスからFeが供給された可能性も考えられるため、核種変換が発生したという明確な証拠は得られなかった。

研究成果の概要(英文)：Nuclear transformation of nickel to copper et al. has been reported owing to combination of nickel powder and hydrogen. The nuclear transformation was verified when hydrogen ions irradiate to mesoporous nickel. Hydrogen ions with 300 eV were irradiated to a Ni porous plate attached Ni powder (< 50 nm) kept at 600 deg C for 6-42 hours. In the result of the surface elemental analysis by SEM/EDX, C and Fe were contained relatively abundant. Meanwhile, in the internal metal, Fe and Co were abundantly detected, but Cu was not detected by ICP atomic emission spectrometry. It was considered possible that Fe was supplied from stainless steel by sputtering, we could not obtain the clear evidence of the nuclear transformation.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：プラズマ 水素正イオン 多孔性ニッケル

## 1. 研究開始当初の背景

核種変換(核分裂,核融合)に伴う質量欠損由来の核エネルギーは根源的なエネルギー源であるが,核燃料の深刻な放射能の問題や,核融合の技術的要求レベルの高さからエネルギーの取り出しが難しいという問題がある。そこで放射線が非常に少なく比較的容易に核エネルギーを取り出すことのできる原理が探索されてきた。再現率の高い実験的アプローチとして,ナノ金属粒子 D/H ガス吸蔵法(神戸大/テクノバ,NRL,Colorado大など),Pd/CaO 多層膜重水素透過法(三菱重工,NRLなど)等が報告されている。本研究では Ni パウダーへの軽水素 H 吸蔵・透過に伴う異常発熱現象と核種変換に関する Ni-H 系高温ガス法(A. Rossi, Bologna 大,イタリアなど)に注目している。これは小型の熱エネルギー発生器の研究開発に関連して報告された。特許や製品開発の関係から装置構造や結果の詳細は開示されていないが,主要な制御パラメータは Ni パウダーの温度であり,過剰発熱と共に Ni から Cu などが生成されているとのことである。

核融合プラズマ加熱に不可欠な軽水素/重水素負イオン型中性粒子入射加熱の開発に関連して,我々はプラズマ支援触媒イオン化法を提案してきた。これはプラズマ中の正イオンを Ni 等の触媒金属に加速照射すると,正イオンと触媒金属との表面相互作用によって,照射裏面より正負イオンが生成されるというものである。一連の実験を行う中で,正イオン照射電流密度が高く積算照射時間が長いほど,実験装置や放電形態に依らず Ni 多孔体の正イオン照射裏面に不純物が生成されることが明らかになっている。なぜ照射裏面に不純物が生じるのかについてこれまで疑問であり,実験環境が似ている Ni-H 系高温ガス法との関連性について着目した。

## 2. 研究の目的

凝集系核科学と呼ばれる分野において,上述の Pd/CaO 多層膜重水素透過法や Ni-H 系高温ガス法といった放射線を伴わない金属の核種変換現象が注目されている。全く研究目的の異なる我々の実験においても,核種変換を示唆する予備的結果が得られている。現象の発現を加速させる鍵は,金属の形状と水素透過性と考えられる。不純物生成について再現率が高く定量的に示すことによって,凝集系核科学の分野に新たな実験的手法を提案することができ,途上段階にある理論モデルの構築にも寄与できるだろう。これらは放射線が非常に少ない核エネルギー発生原理の検証につながる可能性を秘めており,新エネルギー源を探索するという意義がある。

Ni パウダーと軽水素の組み合わせにより,化学反応熱以外の過剰発熱と放射線を伴わずに Cu などへ核種変換する現象の報告がな

されている。我々が推進してきた水素正負イオン生成手法であるプラズマ支援触媒イオン化法においても,予期せぬ不純物の生成が確認されている。水素正イオンの照射エネルギー・照射フラックスを主制御パラメータとして,メゾ多孔性ニッケルの急峻な温度勾配形成,固相/気相水素透過の促進により,定常的に核種変換することの検証が目的である。正イオンビームの Ni への照射によって水素透過性を向上しつつ,適切な温度を維持することにより, Ni から Cu, Fe への核種変換を加速させる。これは放射線が非常に少ない核エネルギー発生原理の検証につながる可能性を秘めている。

## 3. 研究の方法

### (1) 高密度プラズマ源とメゾ多孔性 Ni 加熱保持部の製作

不純物生成における水素正イオンの果たす役割を明確にするためには,メゾ多孔性ニッケルへ正イオンの照射量を大きくする必要がある。数十時間単位で定常生成できる高密度水素プラズマ源を整備する。高エネルギー電子を静電的に閉じ込めて放電効率の高い PIG 放電は,正イオンに対しては閉じ込め構造になっていないことから,プラズマ外へ出ていく正イオンフラックスが大きいプラズマである。電子供給量を増加させるために,熱電子放出する熱陰極フィラメントを利用する。フィラメントの沿磁力線方向にはプラズマ密度が特に高くなるため,磁力線垂直方向に不均一な密度分布になる。そこで,プラズマ断面が円環状になるように放電させて,内側領域にプラズマを拡散(内側拡散)させて,この拡散プラズマを利用すれば比較的均一な正イオン照射が期待できる。また,正イオン照射エネルギーと照射電流密度に応じて,正イオンによる Ni 多孔体加熱パワーが変化する。そこで, Ni 多孔体後方に設置した追加熱用ヒータ電力を制御して, Ni 多孔体温度が一定に維持されるようにする。

### (2) 制御された水素正イオン照射

Ni 多孔体に負電圧を印加すると,水素放電プラズマ中の正イオンが, Ni 多孔体前面のシースで加速されて照射される。この方法では,プラズマ電位と印加電圧の差によって正イオン照射エネルギーが,プラズマ密度によって正イオン照射電流密度が,それぞれ独立して制御できる。正イオンは Ni 多孔体表面で衝突してエネルギーを失うため局所表面が加熱され,バルクとの間に大きな温度勾配が生じる。なお, Ni 多孔体は網目状の構造になっており, 1 つの金属バルクは網を構成する直径数十~数百  $\mu\text{m}$  程度の線状の部分をしており,多孔体の厚み全体のことでない。水素分子は表面で解離して金属内部へ拡散するが,温度勾配により照射裏面方向への拡散が優勢となる。さらに,入射した正イオン

は、照射裏面方向に水素透過を促すため裏面で滞留せず、固相から気相へ水素が連続的に移動する。これにより核種変換の定常的な発現が期待できる。

水素供給や正イオン照射する前に、高真空中で Ni 多孔体を加熱して、付着している不純物をあらかじめ除去して、Ni 多孔体表面の活性化を促す。その上で Ni 多孔体のバルク温度、正イオン照射エネルギー、照射電流密度を適切な値にして、正イオン照射積算時間を変化させて、不純物の生成を行う。

### (3) Ni 多孔体に含まれる元素分析

Ni 多孔体の表面を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察しながら、エネルギー分散型 X 線分光法(EDX)によって表面の元素分析を行う。金属内部の元素を調べるために、溶媒に溶解させて ICP 発光分光分析によって元素分析を行う。溶媒に溶解しない残渣の分析は、ここでは実施しない。

### 平成 26 年度

上述した実施項目の(1)と(2)を主に取り組み、安定して生成できる水素プラズマ源を構築する。Ni 多孔体のバルク温度制御、正イオンの照射エネルギー、照射電流密度の適切なパラメータを見出す。本研究では Ni が核種変換により Cu などに変換されることを予想しており、外部から混入する可能性を排除するために、Cu は放電プラズマ部や触媒加熱保持部で一切使用しない。また、ヒータで追加加熱する際には、高温部の金属が若干蒸着される可能性があるため、多孔体は Ni 板のみで囲み、Ni 以外の元素が蒸着されないように注意を払う。

### 平成 27 年度

実施項目の(2)と(3)を主に取り組み、不純物の生成について調べる。Ni 多孔体のバルク温度と正イオン照射条件が一定になるよう制御しながら、長時間の正イオン照射を行って、不純物の生成を行う。次に Ni 多孔体の表面を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察しながら、エネルギー分散型 X 線分光法(EDX)によって表面の元素分析を行う。また、面方向において生成され易い場所があれば、その Ni 多孔体面構造との関係を明らかにする。なお、Ni パウダーへの正イオン照射をするためには、Ni パウダーを担持する必要がある。Ni 多孔体の一部に Ni パウダーをあらかじめ担持させておいて、Ni 多孔体と Ni パウダーへ同一の条件で正イオンの照射を行う。

## 4. 研究成果

### (1) 平成 26 年度

熱陰極 PIG 放電による水素プラズマ源を製作した。直線様磁場中で直径 4 cm 程度の水素プラズマを定常的に生成することがで

きた。アンチカソードの引出孔(直径 3 cm)からプラズマを引出し、終端電極で水素正イオンの照射電流を測定した。水素正イオンの照射電流は放電電力によって制御でき、フィラメント寿命から 100 時間以上にわたって水素正イオンの照射が可能になった。

厚さ 5 mm と 1 mm の Ni 板の間に Ni 多孔体板(厚さ 1 mm, 気孔率 96.6%)を挟んで固定して、Ni 板の後方よりヒータ加熱して多孔体板の温度制御する加熱保持部を製作した。ヒータから不純物が蒸発して多孔体板に付着することを避けるために、挟み込み構造になっている。水素正イオンは多孔体板の直径 3 cm の範囲へ照射できるようになっている。ヒータ加熱のみでは、多孔体板を 730 °C まで昇温することができた。水素正イオンの照射エネルギー 300 eV, 照射電流 200 mA の場合には多孔体板が 470 °C になり(ヒータ加熱無し)、Ni のキュリー温度 354 °C を越えることが分かった。水素正イオン照射のみではプラズマ生成のゆらぎによって多孔体板温度が変動するため、電力制御したヒータ加熱を併用して多孔体板温度をほぼ一定に保つことができるようになった。ヒータ加熱で不純物を除去する過程において、Ni が 700 °C 以上になると表面から正イオンが生成され始めて、温度と共に指数関数的に正イオン電流が増加することが明らかになった。これは蒸発した Ni が正イオンとなる熱電離と呼ばれる現象であると考えられる。Ni の熱電離を抑制して、温度を一定に保ったまま多孔体板へ水素正イオンを照射するために、多孔体板温度を 600 °C とすることにした。以上より、Ni 多孔体板の温度を一定に保ったまま、定めた水素正イオンの照射エネルギーと照射電流の下で、長時間照射が可能になった。

### (2) 平成 27 年度

熱陰極 PIG 放電による水素プラズマを、ヒータ加熱で温度制御された Ni 多孔体板へ照射した。水素正イオンの照射は、照射エネルギー 300 eV, 照射電流 200 mA, 多孔体板温度 600 °C 一定となるよう調整した。6 時間または 42 時間正イオンを照射した場合の Ni 多孔体サンプルを作成した。なお、既に発表されている報告では、核種変換しやすい形態はパウダー状とのことなので、Ni 多孔体板の一部に Ni パウダー(< 50 nm)を塗布して正イオン照射を行った。

Ni 多孔体板の表面を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察しながら、エネルギー分散型 X 線分光法(EDX)によって元素分析を行った。Ni パウダーは正イオンの照射によって自己融着して固まっており、多孔体の網目が Ni パウダーで埋まった状態になっていた。表面元素分析(EDAX GENESIS)を実施したとこ

る,正イオン照射前に比べてC, O, Si, Feが増加していた.なお,Niパウダーは正イオン照射の前後で元素組成に変化が見られなかった.クロスチェックとして別の装置(Hitachi S-4700)で分析したところ, Siは検出されなかったことから,正イオン照射で増加した元素はC, O, Feであることが明らかになった.

金属表面ではなく,Niパウダーを含めた金属内部に含まれる元素を調べるために,ICP発光分光分析を実施した.サンプルを硝酸に溶解させて,残渣を除去して分析を行った.検出された元素はK, Na, Fe, Zn, Coであった.KとNaは作業する際に,手から付着したものと考えられる.炭化物は硝酸に溶解しないので,黒色の残渣は主に炭化物であるといえる.以上より,正イオン照射によって増加した元素は,CとFeであるといえる.質量差よりNiが核種変換してCが形成されたとは考えにくい.Feは比較的多く測定され,核種変換した可能性はある.しかし,Coと共に測定されていることから,真空容器や電極の支持材であるステンレスがスパッタリングで生じたものが付着した可能性を排除できない.よって,水素正イオン照射によって核種変換が行われた,という明確な証拠は得られなかった.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

##### [雑誌論文](計2件)

W. Oohara, Y. Maetani, Takashi Takeda, Toshiaki Takeda, H. Yokoyama, and K. Kawata, "Production of Negative Hydrogen Ions on Metal Grids", Physics of Plasmas, 査読有, Vol. 22, Issue 3, 2015, pp. 033507-1-5. DOI: 10.1063/1.4914850

W. Oohara, H. Yokoyama, Toshiaki Takeda, Y. Maetani, Takashi Takeda, and K. Kawata, "Effect of Nickel Grid Parameters on Production of Negative Hydrogen Ions", Physics of Plasmas, Vol. 21, Issue 6, 2014, pp. 063514-1-4. DOI: 10.1063/1.4886149

##### [学会発表](計12件)

横山 浩之, 高森 暁, 竹田 敬, 大原 渡, 金属グリッドで生成された水素負イオンの質量分析, プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第19回支部大会, 2015年12月19日, 熊本大学黒髪北地区(熊本県・熊本市)

林 智成 横山 浩之, 前谷 裕亮, 加美川 俊満, 大原 渡, Niグリッドを用いた水素イオン性プラズマ生成, 平成27年度(第66回)電気・情報関連学会 中国支部連合大

会, 2015年10月17日, 山口大学常盤キャンパス(山口県・宇部市)

大原 渡, Csフリー表面生成法によるイオン性プラズマの生成, 平成27年度 東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会「微粒子プラズマ物理に基づいた新規ナノ材料創成」, 2015年8月31日, 東北大学青葉山キャンパス(宮城県・仙台市)

大原 渡, 河田 晃佑, 中村 将, 武田 俊明, 前谷 祐亮, 竹田 敬, 横山 浩之, 水素イオン性プラズマの生成, 日本物理学会 第70回年次大会, 2015年3月22日, 早稲田大学早稲田キャンパス(東京都・新宿区) 竹田 敬, 横山 浩之, 前谷 裕亮, 武田 俊明, 大原 渡, プラズマ支援触媒イオン化によって生成されたイオン質量分析, プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第18回支部大会, 2014年12月21日, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県・福岡市) 中村 将, 河田 晃佑, 大原 渡, 両極性拡散を利用した水素ペアイオンプラズマ源の開発, プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第18回支部大会, 2014年12月21日, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県・福岡市)

横山 浩之, 前谷 祐亮, 竹田 敬, 大原 渡, 水素放電プラズマ中の正イオン構成比率の分析と制御, プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第18回支部大会, 2014年12月20日, 九州大学筑紫キャンパス(福岡県・福岡市)

Y. Maetani, Takashi Takeda, H. Yokoyama, and W. Oohara, Investigation of Production Mechanism of Negative Hydrogen Ions using Metal Grids, Plasma Conference 2014, 2014年11月19日, 朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

K. Kawata, S. Nakamura, and W. Oohara, Ion Mass Analysis and Separation Oriented to Generation of Paired Hydrogen-Ion Plasma, Plasma Conference 2014, 2014年11月18日, 朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

Toshiaki Takeda, Takashi Takeda, and W. Oohara, Extraction Property of Hydrogen Ions from Plasma Grid with Single Aperture, Plasma Conference 2014, 2014年11月18日, 朱鷺メッセ(新潟県・新潟市)

大原 渡, 武田 俊明, 河田 晃佑, 中村 将, 前谷 祐亮, 竹田 敬, 横山 浩之, 単孔PGからの負イオン引出特性, 平成26年度 核融合科学研究所共同研究 負イオン研究会「負イオンとビーム/科学と技術の協奏」, 2014年8月28日, 核融合科学研究所(岐阜県・土岐市)

前谷 祐亮, 竹田 敬, 横山 浩之, 武田 俊明, 大原 渡, 金属グリッドから生成された負イオン/電子分離計測, 平成26年度 核

融合科学研究所共同研究 負イオン研究会「負イオンとビーム/科学と技術の協奏」,  
2014年8月28日,核融合科学研究所(岐阜県・土岐市)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大原 渡 (OOHARA, Wataru)  
山口大学・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号: 80312601

### (2) 研究協力者

河田 晃佑 (KAWATA, Kosuke)  
前谷 祐亮 (METANI, Yusuke)  
武田 俊明 (TAKEDA, Toshiaki)  
中村 将 (NAKAMURA, Sho)  
竹田 敬 (TAKEDA, Takashi)  
横山 浩之 (YOKOYAMA, Hiroyuki)  
加美川 俊満 (KAMIKAWA, Toshimitsu)  
林 智成 (HAYASHI, Tomonari)  
山口大学・大学院理工学研究科・大学院  
生  
高森 暁 (TAKAMORI, Satoru)  
山口大学・工学部・学部生