

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号	11201
研究種目	挑戦的萌芽研究
研究期間	2011～2012
課題番号	23656205
研究課題名（和文）	レアアース生成を目指したガス放電励起・重水素貫流法による低エネルギー元素変換
研究課題名（英文）	Low Energy Transmutation aiming at Rare-earth Element Production by Deuterium-penetration Method with Gas-discharge,
研究代表者	山田 弘 (YAMADA HIROSHI) 岩手大学・工学部・教授 研究者番号：60125482

研究成果の概要（和文）：

重水素ガスの流れる方向と反対方向に直流電流を流す場合に最もガス貫流量が多くなる。表面に Li を添加した Ni 単層薄膜板状 Pd 試料に軽水素ガスを貫流させると、CR-39 で試料と直接対向する領域にのみ集中したエッチピットが観られた。Ni 薄膜電極とした重水と軽水のどちらのリチウム溶液の電気気分解実験においても CR-39 にエッチピットの異常増加が観られる。Li と Ni の組み合わせが低エネルギー核反応に深く関わっていることを示唆している。

研究成果の概要（英文）：

The highest penetration efficiency of deuterium gas by DC current is observed at the current direction opposite to the gas flow direction. The anomalous etch pit has been observed in only the region of CR-39 facing the Pd foil sample with Ni film and deposited Li. Moreover, anomalously increasing number of etch pit has been observed by electrolysis using Ni film cathode and Li solutions for both D₂O and H₂O. Whole the results suggest that the coexistence of Ni and Li plays an important role in the low energy nuclear reaction.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 ・ 電子・電気材料工学

 キーワード：レアアース生成、多層膜パラジウム試料、重水素貫流法、荷電粒子検出
微量元素分析、金属薄膜電極、CR-39

1. 研究開始当初の背景

- (1) レアアースはハイテク産業に不可欠であり、我国では調達が困難であるためその恒久的な資源確保が急務である。他方、この 23 年間の凝集系低エネルギー元素変換の研究により低エネルギー領域でも元素変換が起こることが明らかとなった。これらの成果はこの分野の国際会議 (ICCF)、米国物理学会 (APS) と同化学会 (ACS) の常設セッションにおいて数多く報告され、米国では重要プロジェクトの 1 つとして位置づけられている。そのため近年は原料元素を決めて目的

とする特定元素への変換を狙う選択的要素変換の研究が進められている。この選択的変換の実験結果から高密度の自由電子群中を高密度の重水素原子が移動する際にアルカリ金属元素が元素変換を起こしやすいことが推測できる。

- (2) これまでの 70℃における重水素貫流実験から、試料ではパラジウム表面に重水素低貫流性の薄膜を被覆することが元素変換に有効であることが明らかとなっている。また、高気圧ガス放電法および申請者らも含めて幾つかの研究組織で成果を上げているガス貫

流法の 2 つの手法が室温近くの選択的要素変換の高効率化では特に有望である。

- (3) 元素生成は太陽など恒星内部の超高压・超高温の特異な環境で起こるものであり、関与する粒子のエネルギーレベルは常温で核外電子が関わる化学反応のそれとは大きく異なる。すなわち地上の常温で熱平衡にある電子を含むあらゆる粒子がもつエネルギーでは元素変換は起こらないと考えられている。このため常温近くの温度における元素変換に関するこの 23 年間の実験結果は従来の物理・化学の基盤概念の大きな見直しを迫っている。これまでの研究結果は常温でも特異な実験環境下では原子核外の電子が原子核に影響を及ぼすことを示唆しており、この研究分野は新しい重要な領域と言える。このため近い将来に期待されている低エネルギー元素変換の機構究明は物理・化学上の大きな知見をもたらすと考えられる。
- (4) この研究の元素変換法はレアアース元素生成に応用できるのみならず放射性廃棄物処理にも展開可能である。既に、重水素を吸蔵させたウランウムでは壊変時間が有意に減少する結果が得られている。さらに発熱を伴う反応では過剰熱の利用が可能である。エネルギー源となり反応の主な原料元素となる軽・重水素は資源としてほぼ無尽蔵である。すなわち、本研究は核廃棄物処理法の著となるのみならず無尽蔵のクリーンエネルギー開発に大きく寄与する可能性を秘める。

2. 研究の目的

ハイテク産業に不可欠なレアアースを室温近くの低エネルギー領域で他元素から元素変換により生成する手法の開発を目指し、これまで成果を上げてきたパラジウム基板試料を用いるガス貫流法とガス放電法を 1 つに融合した新たな手法を用いて、室温近くでアルカリ金属元素変換を調べる。パラジウムを基板としナノ構造多層膜をもつ試料を開発し、変換効率を高める。さらにナノ秒方形波パルス高電圧印加等により放電を起こし多層膜パラジウム試料の活性化を図り、ガス圧を 10 気圧に加圧してガス貫流効率を上げてナノ構造多層膜における元素変換効率を高める。これらの結果からパラジウム試料表面薄膜の役割を明らかにし、低エネルギーにおける元素変換機構の究明を進めることによりレアアースへの元素変換を図る。

- (1) 試料に直流電流を流すことにより重水素貫流効率が上がることがわかったため、適切な電流値と試料に対する電流方向を明らかにする。
- (2) 低エネルギー核反応は重水素系と同様に軽水素系でも起きていることがわかったため、重水素と軽水素の両系における電流効果を調べる。
- (3) 圧力を 10 気圧として軽水素ガス貫流効率を

高め、固体飛跡検出器 CR-39 を用いて荷電粒子の検出を試みる。

- (4) 重水電気分解実験において高エネルギー荷電粒子が捉えられることがわかったため、軽水電気分解における荷電粒子検出を試み、重水電気分解の結果と比較する。
- (5) 電気分解実験で荷電粒子が放出される実験条件を求め、その際の放出荷電粒子のエネルギー値を見積もる。
- (6) ガス貫流法と電気分解法で共通する荷電粒子放出条件を明らかにする。

3. 研究の方法

- (1) 最大 12 気圧、温度 200°C までの使用に耐えその内部全体を清浄に保つ構造をもつガスチャンバーを含むガス貫流法実験装置を構築する。重水素は重水素貯蔵部側から Pd 基板試料を貫流して反対側の真空側に移動する。薄膜付 Pd 試料と近距離で対向させて CR-39 を配置し荷電粒子を捉えるように試料ホルダーを設計する。試料ホルダーは VCR 継手で接続されており、ホルダーごと脱着が可能である。したがって、実験を行うたびに取り外したホルダーをアセトンに浸し丸ごと超音波洗浄ができるのでホルダー内の不純物を除去しやすい。
- (2) この多層膜 Pd 試料を用いて 1A オーダーの直流電流励起法を取り入れた貫流法により薄膜付 Pd 試料表面に添加した微量 Li の元素変換を試みる。
- (3) 低エネルギー核反応で発生する荷電粒子のエネルギーは MeV~数 10MeV と高いが比較的薄い固体でも透過することができないため、検出が困難である。本研究ではこの困難を克服するため電気分解実験では非常に薄い 5 μm の厚さの Ni 薄膜を電極とする電気分解セルが考案されている。荷電粒子を検出する固体飛跡検出器の CR-39 はこの Ni 薄膜の背後に密着して配置される。このため電解溶液側の Ni 薄膜表面で発生した荷電粒子はいくらかエネルギーが減衰するものの CR-39 により高い検出効率で捉えることが可能となる。
- (4) 低エネルギー領域での元素変換は Pd など水素吸蔵性固体への重水素の吸蔵効率および重水素が抜け出す脱蔵効率と深く関わっている。板状試料ではこの 2 つの効率が 1 つのガス貫流率となって現れるため、このガス貫流法では厚さ 0.1 mm の Pd を基板とする薄膜付試料を用いる。すなわち試料は 12.5×12.5×0.1 mm の Bulk Pd 基板の片面に CaO と Pd の薄膜層を交互に堆積させた Pd/CaO 多層膜試料と Ni 薄膜層を堆積させた Ni 単層膜試料の 2 種類である。どちらの試料も最表面に Li が添加される。このとき Pd/CaO 多層膜と Ni 単層膜はスパッタリングにより成膜し、Li は LiOH 溶液の電気分

解により添加される。

- (5) 電気分解用のテストセルは円筒状ポリキシメシレン製で上部の蓋部に直径 0.5 mm の白金線陽極をもつ。電解液の容量は約 6 cc である。白金陽極の下部は螺旋形状で、上部は熱収縮性の PTFE で覆われ、電気分解で発生する水素ガスの燃焼を防いでいる。陰極は厚さ 5 μm で 30 \times 40 mm の Ni フィルムのほぼ中心部の直径約 10 mm の部分である。白金陽極下部の螺旋面と Ni 陰極はほぼ平行でその間隔は約 10 mm である。固体飛跡検出器 CR-39 は Ni フィルム陰極の背後にそれと密着して配置される。CR-39 の大きさは 30 \times 30 mm である。この配置により CR-39 は電気液による化学的損傷から免れる。電気分解時間は 200 分から 168 時間とする。
- (6) 荷電粒子により生成された CR-39 の飛跡損傷は 70 $^{\circ}\text{C}$ の 6N 水酸化ナトリウム溶液で 7 時間エッチング処理することにより光学顕微鏡で観察可能なエッチピットに変わる。エッチピット数とその直径の関係を図表して荷電粒子の特徴を調べる。
- (7) 実験後の試料はガス貫流等を行わない参照試料と共に飛行時間型二次イオン質量分析法 (TOF-SIMS) により試料表面の元素が比較され、新たな生成元素と元素の同位体変化が調べられる。

4. 研究成果

核反応による荷電粒子生成を視覚的に示す固体飛跡検出器 CR-39 の活用を中心に研究を進めた。

- (1) 表面に Li を添加した Ni 単層薄膜板状 Pd 試料に軽水素ガスを貫流させると、CR-39 で試料と直接対向する領域にのみ集中したエッチピットが観られた。
- (2) 直流 1A を流した Ni 単層膜 Pd 試料表面に添加された Li の同位体存在比に希に変化が観られた。水素ガス貫流中に電流を流すことは核反応を誘起する上で有効と考えられる。重水素ガスを用いると、重水素ガスの流れる方向と反対方向に直流電流を流す場合に最も貫流効果が高いことがわかった。
- (3) 並行して、Ni 薄膜電極を用いて硫酸リチウム重水溶液の電気分解実験を進めた。23 時間 55 分間 20mA の直流で電気分解を継続し、その後 5 分だけ極性を反転させ、このサイクルを 7 日間続ける実験において顕著なエッチピットの増加が最も高い頻度で観られた。荷電粒子がアルファ粒子で、電解液と接する Ni 陰極表面から放出されたと仮定すると、そのエネルギーは 4.0 \sim 4.6 と 5.3 \sim 9.1MeV と推定される。
- (4) エッチピットの異常増加は重水溶液のみならず、水酸化リチウムと硫酸リチウムの軽水溶液の電気分解でも観られた。最も多数のエッチピットが観られたのは、水酸化リチウム

軽水溶液で直流電流を 24 時間ごとにステップ状に上昇させ 7 日間電気分解を続ける場合であった。

- (5) 重水溶液の場合も含めると、エッチピットの異常増加は電解液に Li を含む場合に観られる。さらにガス貫流法の結果も含めると、試料に Ni を含む場合にそれが観られる。すなわち Li と Ni の組み合わせが低エネルギー核反応に深く関わっていることを示唆している。

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 9 件)

- ① H. Aizawa, K. Mita, D. Mizukami, H. Uno and H. Yamada, Detecting Energetic Charged Particle in D₂O and H₂O Electrolysis Using a Simple Arrangement of Cathode and CR-39, Proceedings of the 17th Int. Conf. on Cold Fusion, in press 査読有
- ② T. Kamihira, Maziah. N. B. Ishak, S. Narita and H. Yamada, Investigation of nuclear phenomena in deuterium adsorption to Pd film, Proceedings of the 12th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 19-26 (2012) 査読有
- ③ S. Narita, H. Yamada, M. Kawashima, N. Oikawa, G. Hosokawa and R. Omi, Deuterium desorption test using Ni/Pd multi-layered sample, Proceedings of the 12th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 27-34 (2012) 査読有
- ④ Y. Abe, H. Baba and H. Yamada, Change in Isotopic Ratio of Li by Light Water Electrolysis, Proceedings of the 12th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 35-42 (2012) 査読有
- ⑤ K. Mita, H. Aizawa, H. Uno, D. Mizukami and H. Yamada, Numerous etch pits on CR-39 produced by light and heavy water electrolysis, Proceedings of the 12th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 43-51 (2012) 査読有
- ⑥ H. Ougida, H. Sasaki, A. Tamura, S. Narita and H. Yamada, Search for Nuclear Phenomena in Deuterium Irradiation to Nano-Structured Metal under Glow Discharge, Proceedings of the 11th Meeting of Japan CF Research

Society, pp. 23-28 (2011) 査読有

⑦M. Kawashima, A. Taguchi, N. Oikawa, H. Yamada and S. Narita, Search for Nuclear Phenomena in Deuterium Desorption Process with Multi-layered Metal Complex, Proceedings of the 11th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 29-35 (2011) 査読有

⑧S. Narita, H. Yamada, H. Sasaki, H. Ougida, S. Sato and Y. Suzuki, Systematic Uncertainties of Isotopic Abundance Measured by TOF-SIMS, Proceedings of the 11th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 36-40 (2011) 査読有

⑨H. Yamada, S. Narita, S. Sato, H. Aizawa, K. Mita, Y. Takahashi, Y. Abe, Y. Shida and H. Nanao, Detection of Energetic Charged Particles from Thin Metal Cathodes in Heavy and Light Water Electrolysis Using CR39, Proceedings of the 11th Meeting of Japan CF Research Society, pp. 41-46 (2011) 査読有

[学会発表] (計 17 件)

①S. Narita, H. Yamada, A. Tamaru and R. Omi, Measurement of low energy nuclear reaction in deuterium discharge experiment, CF 研究会第 13 回年会, JCF13-4, 2012.12.08, 愛知県産業労働センター “ウイंकあいち” (名古屋市)

② G. Hosokawa, M. Kawashima, N. Oikawa, H. Yamada and S. Narita, Characterization of deuterium loading/unloading behavior for various types, CF 研究会第 13 回年会, JCF13-6, 2012.12.08, 愛知県産業労働センター “ウイंकあいち” (名古屋市)

③田村文伸、近江 了、佐々木央、扇田絢光、成田晋也、山田 弘、Pd/Ni 複合膜陰極を用いた重水素気中放電における核変換反応の検証、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H01, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

④上平達朗、佐々木求、成田晋也、山田 弘、太田康司、Pd/Ni 複合膜への重水素吸蔵過程での核反応誘起の検証、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H02, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

⑤及川直大、川嶋 愛、細川源記、成田晋也、山田 弘、Pd/Ni 複合膜試料に対する重水素吸蔵過程で誘起される核反応現象の検証、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H03, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

⑥菊地剛史、菊池直彦、黒羽隆司、山田 弘、重水素透過法における Pd 多層膜試料の元素分析および透過流量の電流効果、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H04, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

⑦菊池直彦、菊地剛史、黒羽隆司、山田 弘、高気圧軽水素透過法における Pd 試料からの荷電粒子放出、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H06, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

⑧相澤裕斗、三田啓介、山田 弘、軽水電気分解における Ni 薄膜陰極からの荷電粒子放出、平成 24 年度電気関係学会東北支部連合大会, 2H07, 2012.8.31、秋田県立大学本荘キャンパス (由利本荘市)

⑨H. Aizawa, K. Mita, D. Mizukami, H. Uno and H. Yamada, Detecting Energetic Charged Particle in D₂O and H₂O Electrolysis Using a Simple Arrangement of Cathode and CR-39, 17th Int. Conf. on Cold Fusion, P_1050, 2012.8.13, Daejeon Convention Center, Korea

⑩S. Narita, H. Yamada, M. Kawashima, N. Oikawa and G. Hosokawa, Deuterium desorption test using Ni/Pd multi-layered sample, CF 研究会第 12 回年会, JCF12-9, 2011.12.18, 神戸大学海事科学部 (神戸市)

⑪Y. Abe, H. Baba and H. Yamada, Change in Isotopic Ratio of Li by Light Water Electrolysis, CF 研究会第 12 回年会, JCF12-10, 2011.12.18, 神戸大学海事科学部 (神戸市)

⑫K. Mita, H. Aizawa, Y. Uno, D. Mizukami and H. Yamada, Numerous etch pits on CR-39 produced by light and heavy water electrolysis, CF 研究会第 12 回年会, JCF12-11, 2011.12.18, 神戸大学海事科学部 (神戸市)

⑬T. Kamihira, Maziah. N. B. Ishak, S. Narita and H. Yamada, Investigation of

nuclear phenomena in deuterium adsorption to Pd film, CF 研究会第 12 回年会, JCF12-3, 2011.12.17, 神戸大学海事科学部 (神戸市)

- ⑭黒羽隆司、佐藤正平、鈴木雄一、菊地剛史、菊池直彦、成田晋也、山田 弘、重水素および軽水素ガス透過法による Pd 多層膜試料からの荷電粒子放出、平成 23 年度電気関係学会東北支部連合大会、1E06、2011.8.25、東北学院大学工学部 (多賀城市)
- ⑮上平達朗、佐々木求、成田晋也、山田 弘、パラジウム薄膜への重水素吸着・脱離過程での核現象の検証、平成 23 年度電気関係学会東北支部連合大会、1E07、2011.8.25、東北学院大学工学部 (多賀城市)
- ⑯川嶋 愛、田口哲広、及川直大、成田晋也、山田 弘、表面修飾 Pd 試料からの重水素脱蔵過程における核現象の探索、平成 23 年度電気関係学会東北支部連合大会、1E08、2011.8.25、東北学院大学工学部 (多賀城市)
- ⑰扇田紘光、田村文伸、佐々木央、成田晋也、山田 弘、グロー放電条件下でのパラジウム複合膜への重水素照射による核現象の探索、平成 23 年度電気関係学会東北支部連合大会、1E09、2011.8.25、東北学院大学工学部 (多賀城市)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山田 弘 (YAMADA HIROSHI)
岩手大学・工学部・教授
研究者番号：60125482

(2) 研究協力者

成田 晋也 (NARITA SHINYA)
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：80322965