

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号
特開2002-202392
(P2002-202392A)

(43)公開日 平成14年7月19日(2002.7.19)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード*(参考)
G 2 1 B	1/00	G 2 1 B	1/00 Y 4 K 0 2 1
C 2 3 C	30/00	C 2 3 C	30/00 B 4 K 0 4 4
C 2 5 B	1/00	G 2 1 F	9/00 N
G 2 1 F	9/00	G 2 1 G	1/04
G 2 1 G	1/04	C 2 5 B	1/00 D
審査請求 未請求 請求項の数9 O L (全 19 頁)			

(21)出願番号 特願2001-201875(P2001-201875)
(22)出願日 平成13年7月3日(2001.7.3)
(31)優先権主張番号 特願2000-333640(P2000-333640)
(32)優先日 平成12年10月31日(2000.10.31)
(33)優先権主張国 日本 (J P)

(71)出願人 000006208
三菱重工業株式会社
東京都千代田区丸の内二丁目5番1号
(72)発明者 伊藤 岳彦
神奈川県横浜市金沢区幸浦一丁目8番地1
三菱重工業株式会社基盤技術研究所内
(72)発明者 岩村 康弘
兵庫県高砂市荒井町新浜2丁目1番1号
三菱重工業株式会社高砂研究所内
(74)代理人 100112737
弁理士 藤田 考晴 (外3名)

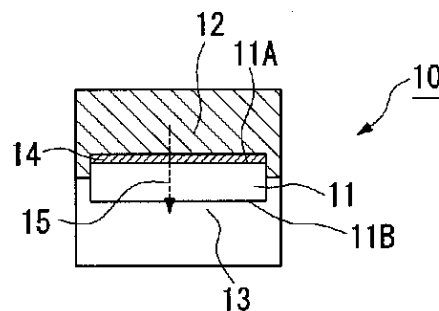
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 核種変換装置及び核種変換方法

(57)【要約】

【課題】 相対的に小規模な装置で核種変換を行う。

【解決手段】 核種変換を発生させる装置10は、パラジウム(Pd)又はPdの合金、或いは、その他の水素を吸蔵する金属(例えば、Ti等)又はこれらの合金等からなる、例えば略板状の構造体11と、この構造体11の両面のうち、一方の表面11A上に付着された核種変換を施す物質14とを備えて構成されている。構造体11の一方の表面11A側が例えば加圧或いは電気分解等により重水素の圧力が高い領域12とされ、他方の表面11B側が例えば真空排気等により重水素の圧力が低い領域13とされることで構造体11内に重水素の流れ15が生成され、重水素と核種変換を施す物質14とが反応することによって核種変換が行われる。



10 ; 核種変換方法を実現する装置
11 ; 構造体
12 ; 重水素の圧力が高い領域
13 ; 重水素の圧力が低い領域
14 ; 核種変換を施す物質
15 ; 重水素の流れ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 パラジウム又はパラジウム合金、或いは、パラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる構造体と、前記構造体を両側から挟み込むようにして配置され、前記構造体により密封可能な閉空間をなす吸蔵部及び放出部と、前記構造体の一方の表面側とされる前記吸蔵部側を、相対的に重水素の圧力が高い状態とする高压化手段と、前記構造体の他方の表面側とされる前記放出部側を、相対的に重水素の圧力が低い状態とする低压化手段と、前記構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を接触させる変換物質接触手段とを備えていることを特徴とする核種変換装置。

【請求項 2】 前記高压化手段は前記吸蔵部に重水素ガスを供給する重水素供給手段を備え、前記低压化手段は前記放出部を真空状態にする排気手段を備えていることを特徴とする請求項 1 に記載の核種変換装置。

【請求項 3】 前記高压化手段は、前記吸蔵部に重水素を含む電解溶液を供給して前記構造体を陰極として前記電解溶液を電気分解する電気分解手段とを備え、前記低压化手段は前記放出部を真空状態にする排気手段を備えていることを特徴とする請求項 1 に記載の核種変換装置。

【請求項 4】 前記変換物質接触手段は、前記構造体の一方の表面上に前記核種変換を施す物質を積層する変換物質積層手段を備えていることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 の何れかに記載の核種変換装置。

【請求項 5】 前記変換物質接触手段は、前記吸蔵部に前記核種変換を施す物質を供給して前記構造体の一方の表面を前記核種変換を施す物質を含む気体又は液体に曝す変換物質供給手段を備えていることを特徴とする請求項 1 から請求項 3 の何れかに記載の核種変換装置。

【請求項 6】 前記構造体は、前記他方の表面側から前記一方の表面側に向かい、順次、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる基材と、前記基材の表面上に形成され、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金と、仕事関数が低い物質とからなる混合層と、前記混合層の表面上に形成され、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる表面層とを備えて構成されていることを特徴とする請求項 1 から請求項 5 の何れかに記載の核種変換装置。

【請求項 7】 パラジウム又はパラジウム合金、或いは、パラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金

以外の水素吸蔵合金からなる構造体に対して、前記構造体の一方の表面側を相対的に重水素の圧力が高い状態とする高压化処理と、前記構造体の他方の表面側を相対的に重水素の圧力が低い状態とする低压化処理と、前記構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を接触させる変換物質接触処理とを含むことを特徴とする核種変換方法。

【請求項 8】 前記変換物質接触処理は、前記構造体の一方の表面上に前記核種変換を施す物質を積層する変換物質積層処理、又は、前記構造体の一方の表面上を前記核種変換を施す物質を含む気体又は液体に曝す変換物質供給処理の何れかの処理を含むことを特徴とする請求項 7 に記載の核種変換方法。

【請求項 9】 前記変換物質接触処理は、前記核種変換を施す物質を前記構造体の一方の表面上に接触させることを特徴とする請求項 7 又は請求項 8 の何れかに記載の核種変換方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、例えば長寿命の放射性廃棄物を短寿命核種或いは安定核種に変換する消滅処理や自然界に豊富な元素から希少な元素を生成する技術等に係る核種変換装置及び核種変換方法に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、例えば重イオン加速器を用いた核融合反応による重元素合成等のように、微量の核種を核種変換する方法に対して、例えば高レベル放射性廃棄物等に含まれる多量の長寿命放射性核種を短時間のうちに効率的かつ効果的に核種変換する方法として、いわゆる消滅処理が知られている。消滅処理は、高レベル放射性廃棄物に含まれる N P、A m、C m等のマイナーアクチナイドや、T c - 99 及び I - 129 等の長寿命核分裂生成物や、発熱性の S r - 90、C s - 137 や R h、P d等の有用な白金族元素を、各元素の特性に応じて分離（群分離）した後に、半減期の長いマイナーアクチナイド及び核分裂生成物に対して中性子等を照射して核反応を発生させて、短寿命又は非放射性の核種に変換する核種変換処理であり、高レベル放射性廃棄物中に含まれる有用元素や長寿命放射性核種を分離及び回収して有用元素の有効利用を図ると共に、長寿命放射性核種を短寿命或いは安定な核種に変換する。

【0003】消滅処理では、高速増殖炉等の原子炉やアクチノイド専焼炉での中性子照射によるアクチノイド等の消滅処理と、加速器での陽子照射によるアクチノイド等の核破砕処理と、加速器でのガンマ線照射による例えばセシウム、ストロンチウム等の消滅処理との 3 種類の方法が知られている。原子炉等での中性子照射では、中性子反応断面積が大きいマイナーアクチナイドを合理的に処理することができ、特に、高速の中性子を照射する

ことで核分裂が起こりにくい超ウラン元素を直接核分裂させることができる。ただし、原子炉等の中性子照射では消滅しにくい長寿命核分裂生成物、例えば中性子反応断面積が小さい $Sr - 90$ 、 $Cs - 137$ 等については、加速器を利用した消滅処理が適用される。

【0004】加速器による消滅処理では、原子炉と異なっており、陽子加速器と電子線加速器が利用される。陽子加速器を用いる消滅処理では、例えば $500\text{ MeV} \sim 2\text{ GeV}$ 程度の高エネルギー陽子を照射して標的核を破砕する核破砕反応を利用して、核破砕反応を直接利用して核種変換を起こすと共に、標的核の破砕に伴って発生する多数の中性子を標的核周りの未臨界ブランケットに投入して核分裂反応を発生させたり、中性子の捕獲反応によって核種変換反応を発生させる。これにより、例えばネプツニウム、アメリシウム等の超ウラン元素及び長寿命核分裂生成物を消滅することができ、しかも、未臨界ブランケットで発生した熱を回収して発電を行い、陽子加速器の運転に必要な電力を自給することができる。

【0005】また、電子線加速器を用いる消滅処理では、例えば電子線の制動輻射で発生するガンマ線や、例えば電子蓄積リングと光キャビティーを組み合わせて逆コンプトン散乱により発生させたガンマ線等による光核反応、例えば (γ, N) 反応や $(\gamma, \text{核分裂})$ 反応等の巨大共鳴を利用することによって、例えばストロンチウム、セシウム等の長寿命核分裂生成物や超ウラン元素等を消滅処理する。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】ところで、上記従来技術の一例による消滅処理のように、原子炉や加速器を利用して核種変換を行う場合、大規模かつ高価な装置を用いなければならない、核種変換に要する費用が高むという問題がある。しかも、例えば長寿命核分裂生成物である $Cs - 137$ を処理する場合において、 100 万 KW 程度の原子力発電所から放出される $Cs - 137$ を加速器を利用して他の核種に変換する場合に、必要な電力は数 100 万 KW に達してしまい、高強度かつ大電流の加速器が必要になって効率が悪いという問題がある。

【0007】また、例えば軽水炉等の原子炉では熱中性子束が $1 \times 10^{14} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ 程度であるのに対して、中性子反応断面積が小さい $Cs - 137$ の核種変換に必要な中性子束は $1 \times 10^{17} \sim 1 \times 10^{18} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ 程度となり、必要な中性子束を得ることができないという問題がある。本発明は上記事情に鑑みてなされたもので、例えば加速器や原子炉等の大規模な装置に比べて、相対的に小規模な装置で核種変換を行うことが可能な核種変換装置及び核種変換方法を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決して係る目的を達成するために、請求項 1 に記載の本発明の核種変換装置は、パラジウム又はパラジウム合金、或いは、パラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる構造体（実施の形態での構造体 11、多層構造体 32、陰極 72、多層構造体 89、多層構造体 102）と、前記構造体を両側から挟み込むようにして配置され、前記構造体により密封可能な閉空間をなす吸蔵部（実施の形態での吸蔵室 31 又は吸蔵容器 103 又は電解セル 83）及び放出部（実施の形態での放出室 34 又は放出容器 101 又は真空容器 85）と、前記構造体の一方の表面側とされる前記吸蔵部側を、相対的に重水素の圧力が高い状態とする高圧化手段（実施の形態での重水素ポンプ 35 又は重水素ポンプ 106 又は電源 81）と、前記構造体の他方の表面側とされる前記放出部側を、相対的に重水素の圧力が低い状態とする低圧化手段（実施の形態での、ターボ分子ポンプ 38、110 及びロータリーポンプ 39、111 又は真空排気ポンプ 91）と、前記構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質（実施の形態での ^{13}Cs 、 ^{12}C 、 ^{23}Na ）を接触させる変換物質接触手段（実施の形態での、ステップ S04 又はステップ S22 又はステップ S44 又はステップ S04a）とを備えていることを特徴としている。

【0009】上記構成の核種変換装置によれば、多層構造をなす構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質が接触させられた状態で、構造体の一方の表面側と他方の表面側との間に重水素の圧力差を設けて、構造体の内部で一方の表面側から他方の表面側へと向かう重水素の流束を生成することで、重水素と核種変換を施す物質とに対して、再現性良く核種変換反応を発生させることができる。

【0010】さらに、請求項 2 に記載の本発明の核種変換装置は、前記高圧化手段は前記吸蔵部に重水素ガスを供給する重水素供給手段（実施の形態での重水素ポンプ 35、106）を備え、前記低圧化手段は前記放出部を真空状態にする排気手段（実施の形態での、ターボ分子ポンプ 38、110 及びロータリーポンプ 39、111）を備えていることを特徴としている。

【0011】上記構成の核種変換装置によれば、重水素供給手段によって吸蔵部を加圧すると共に、排気手段によって放出部を真空状態に減圧することによって、構造体に重水素の圧力差を形成することができる。

【0012】さらに、請求項 3 に記載の本発明の核種変換装置は、前記高圧化手段は、前記吸蔵部に重水素を含む電解溶液（実施の形態での電解溶液 84）を供給して前記構造体を陰極として前記電解溶液を電気分解する電気分解手段（実施の形態での電源 81）とを備え、前記低圧化手段は前記放出部を真空状態にする排気手段（実施の形態での真空排気ポンプ 91）を備えていることを

特徴としている。

【0013】上記構成の核種変換装置によれば、構造体を陰極として、構造体の一方の表面側で電解溶液を電気分解することによって実効的に大きな圧力で構造体に重水素を吸蔵させることができ、さらに、排気手段によって放出部を真空状態に減圧することによって、構造体に重水素の圧力差を形成することができる。

【0014】さらに、請求項4に記載の本発明の核種変換装置は、前記変換物質接触手段は、前記構造体の一方の表面上に前記核種変換を施す物質を積層する変換物質積層手段（実施の形態でのステップS04又はステップS44又はステップS04a）を備えていることを特徴としている。

【0015】上記構成の核種変換装置によれば、変換物質積層手段、例えば電着、蒸着、スパッタリング等の成膜処理によって構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を積層することができる。

【0016】さらに、請求項5に記載の本発明の核種変換装置は、前記変換物質接触手段は、前記吸蔵部に前記核種変換を施す物質を供給して前記構造体の一方の表面を前記核種変換を施す物質を含む気体又は液体に曝す変換物質供給手段（実施の形態でのステップS22）を備えていることを特徴としている。

【0017】上記構成の核種変換装置によれば、例えば重水素を含む気体又は液体に核種変換を施す物質を混入することで、構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を接触させることができる。

【0018】さらに、請求項6に記載の本発明の核種変換装置は、前記構造体は、前記他方の表面側から前記一方の表面側に向かい、順次、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる基材（実施の形態でのPd基板23）と、前記基材の表面上に形成され、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金と、仕事関数が低い物質（実施の形態でのCaO）とからなる混合層（実施の形態での混合層22）と、前記混合層の表面上に形成され、パラジウム又はパラジウム合金或いはパラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる表面層（実施の形態でのPd層21）とを備えて構成されていることを特徴としている。

【0019】上記構成の核種変換装置によれば、多層構造をなす構造体に、仕事関数が低い物質を含む混合層を設けることで、核種変換反応の発生の再現性を向上させることができる。

【0020】また、請求項7に記載の本発明の核種変換方法は、パラジウム又はパラジウム合金、或いは、パラジウム以外の水素吸蔵金属又はパラジウム合金以外の水素吸蔵合金からなる構造体（実施の形態での構造体1

1、多層構造体32、陰極72、多層構造体89、多層構造体102）に対して、前記構造体の一方の表面側を相対的に重水素の圧力が高い状態とする高圧化処理（実施の形態でのステップS07又はステップS25又はステップS46）と、前記構造体の他方の表面側を相対的に重水素の圧力が低い状態とする低圧化処理（実施の形態でのステップS05又はステップS23又はステップS45）と、前記構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を接触させる変換物質接触処理（実施の形態での、ステップS04又はステップS22又はステップS44又はステップS04a）とを含むことを特徴としている。

【0021】上記のような核種変換方法によれば、多層構造をなす構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質が接触させられた状態で、構造体の一方の表面側と他方の表面側との間に重水素の圧力差を設けて、構造体の内部で一方の表面側から他方の表面側へと向かう重水素の流束を生成することで、重水素と核種変換を施す物質とに対して、再現性良く核種変換反応を発生させることができる。

【0022】さらに、請求項8に記載の本発明の核種変換方法では、前記変換物質接触処理は、前記構造体の一方の表面上に前記核種変換を施す物質を積層する変換物質積層処理（実施の形態でのステップS04又はステップS44又はステップS04a）、又は、前記構造体の一方の表面上を前記核種変換を施す物質を含む気体又は液体に曝す変換物質供給処理（実施の形態でのステップS22）の何れかの処理を含むことを特徴としている。

【0023】上記のような核種変換方法によれば、変換物質積層処理、例えば電着、蒸着、スパッタリング等の成膜処理によって構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を積層する、又は、例えば重水素を含む気体又は液体に核種変換を施す物質を混入することで、構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を接触させることができる。

【0024】さらに、請求項9に記載の本発明の核種変換方法では、前記変換物質接触処理は、前記核種変換を施す物質を前記構造体の一方の表面上に接触させることを特徴としている。

【0025】上記のような核種変換方法によれば、核種変換を施す物質を同位体比構成が類似した核種へと変換させることで、核種変換反応の発生を促進することができる。

【0026】

【発明の実施の形態】以下、本発明の第1の実施形態に係る核種変換装置及び核種変換方法について添付図面を参照しながら説明する。図1は本発明の第1の実施形態に係る核種変換方法の原理を説明する図であり、図2は、本発明の第1の実施形態に係る核種変換方法にて使用される構造体11を示す断面構成図であり、図3は、本発

明の第 1 の実施形態に係る核種変換装置 30 の構成図であり、図 4 は、図 3 に示す核種変換装置 30 での多層構造体 32 を示す断面構成図であり、図 5 (a) は混合層 22 の断面構成図であり、図 5 (b) は混合層 22 を含む構造体 11 の断面構成図であり、図 6 は、構造体 11 に核種変換を施す物質を添加する装置の構成図である。

【0027】本実施の形態による核種変換方法を実現する装置 10 は、例えば図 1 に示すように、パラジウム (Pd) または Pd の合金、あるいはその他の水素を吸蔵する金属 (例えば、Ti 等) またはこれらの合金等からなる、例えば略板状の構造体 11 と、この構造体 11 の両面のうち、一方の表面 11A 上に付着された核種変換を施す物質 14 とを備え、構造体 11 の一方の表面 11A 側が例えば加圧あるいは電気分解等により重水素の圧力が高い領域 12 とされ、他方の表面 11B 側が例えば真空排気等により重水素の圧力が低い領域 13 とされることで構造体 11 内に重水素の流れ 15 が生成され、重水素と核種変換を施す物質 14 とが反応することによって核種変換が行われる装置である。ここで、構造体 11 は、例えば図 2 に示すように、好ましくは Pd 基板 23 の表面上に、相対的に仕事関数が低い物質つまり電子を放出し易い物質 (例えば、仕事関数が 3 eV 未満の物質) と Pd との混合層 22 が形成され、この混合層 22 の表面上に Pd 層 21 が積層されて形成されている。

【0028】図 3 に示すように、本実施の形態による核種変換装置 30 は、内部が気密保持可能とされた吸蔵室 31 と、この吸蔵室 31 の内部にて多層構造体 32 を介して気密保持可能に設けられた放出室 34 と、バリアブルリークバルブ 33 を介して吸蔵室 31 内に重水素を供給する重水素ポンプ 35 と、放出室 34 内の真空度を検出する放出室真空計 36 と、例えば多層構造体 32 から生成されるガス状の反応生成物を検出すると共に放出室 34 内の重水素量を計測することにより多層構造体 32 を透過する重水素の透過量を評価する質量分析器 37 と、放出室 34 内を常に真空状態に保つターボ分子ポンプ 38 と、放出室 34 及びターボ分子ポンプ 38 内を荒引きするためのロータリーポンプ 39 とを備えて構成されている。

【0029】さらに、核種変換装置 30 は、例えば X 線や電子線、粒子線等の照射により励起された多層構造体 32 の表面上の原子から放出される光電子やイオン等を検出する静電アナライザー 40 と、多層構造体 32 の両面のうち吸蔵室 31 内の重水素に曝される表面上に X 線を照射する XPS (X-ray Photo-electron Spectrometry: X 線照射光電子スペクトル分析) 用の X 線銃 41 と、内部に重水素が導入された吸蔵室 31 内の圧力を検出する圧力計 42 と、例えばベリリウム窓 43 を有する高純度ゲルマニウム検出器 44 からなる X 線検出器と、吸蔵室 31 内の真空度を検出する吸蔵室真空計 45 と、例えば重水素の導入以前等に吸蔵室 31 内を真空状態に

保持する真空バルブ 46 と、吸蔵室 31 を真空状態にするターボ分子ポンプ 47 と、吸蔵室 31 及びターボ分子ポンプ 47 内を荒引きするためのロータリーポンプ 48 とを備えて構成されている。

【0030】そして、多層構造体 32 の吸蔵室 31 側を相対的に重水素の圧力が高い状態とし、多層構造体 32 の放出室 34 側を相対的に重水素の圧力が低い状態として、多層構造体 32 の両面において重水素の圧力差を形成することで、吸蔵室 31 側から放出室 34 側へ重水素の流れを作り出す。ここで、例えば図 4 に示すように、多層構造体 32 は、Pd 基板 23 の表面上に相対的に仕事関数が低い物質 (例えば、仕事関数が 3 eV 未満の物質) と Pd との混合層 22 が形成され、この混合層 22 の表面上に Pd 層 21 が積層され、さらに、Pd 層 21 の表面上に核種変換を施す物質としてセシウム (Cs) 層 52 が添加されて構成されている。

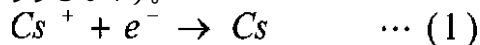
【0031】本実施の形態による核種変換装置 30 は上記構成を備えており、次に、この核種変換装置 30 を用いて核種変換を行う方法について添付図面を参照しながら説明する。

【0032】まず、例えば図 2 に示す Pd 基板 23 (例えば、縦 25 mm × 横 25 mm × 厚さ 0.1 mm、純度 99.5% 以上) をアセトン中で所定時間に亘って超音波洗浄することにより脱脂する。そして、真空中 (例えば、 1.33×10^{-5} Pa 以下) において、例えば 900 の温度で所定時間 (例えば、10 時間) に亘ってアニールつまり加熱処理を行う (ステップ S01)。次に、例えば室温でアニール後の Pd 基板 23 を重水素により所定時間 (例えば、100 秒間) に亘ってエッチング処理を施して表面の不純物を除去する (ステップ S02)。

【0033】次に、アルゴンイオンビームによるスパッター法を用いて、エッチング処理後の Pd 基板 23 上に成膜処理を施して構造体 11 を作成する。ここで、例えば図 2 に示す Pd 層 21 の厚さは $400 \cdot 10^{-10}$ m とし、仕事関数の低い物質と Pd との混合層 22 は、例えば図 5 (a) に示すように、例えば厚さ $100 \cdot 10^{-10}$ m の CaO 層 57 と、例えば厚さ $100 \cdot 10^{-10}$ m の Pd 層 56 とを交互に積層して形成し、この混合層 22 の厚さを $1000 \cdot 10^{-10}$ m とした。そして、混合層 22 の表面上に Pd 層 21 を $400 \cdot 10^{-10}$ m で成膜することにより、構造体 11 を形成した (ステップ S03)。

【0034】次に、CsNO₃ の D₂O 希薄溶液 (CsNO₃ / D₂O 溶液) の電気分解により、核種変換を施す物質として、例えば Cs を構造体 11 の成膜処理表面に添加する。例えば、図 6 に示す電着装置 60 のように、1 mM の CsNO₃ / D₂O 溶液を電解液 62 として、電源 61 の陽極に白金陽極 63 を接続し、陰極に構造体 11 を接続して、例えば 1 V の電圧で 10 秒間に亘って電気

分解を行い、構造体 11 の表面上で下記化学式 (1) に示す反応を発生させて Cs 層 52 を添加して、多層構造体 32 を形成する (ステップ S04)。



【0036】そして、多層構造体 32 の Cs 層 52 を吸蔵室 31 側に向けて、多層構造体 32 を介在させて吸蔵室 31 と放出室 34 とをそれぞれ気密状態に閉塞して、先ず、放出室 34 をロータリーポンプ 39 およびターボ分子ポンプ 38 により真空排気する。そして、バリアブルリークバルブ 33 を閉じ、真空バルブ 46 を開いて吸蔵室 31 をロータリーポンプ 48 およびターボ分子ポンプ 47 により真空排気する (ステップ S05)。次に、吸蔵室 31 の真空度が充分安定した後 (例えば、 1×10^{-5} Pa 以下の状態) に、XPS により吸蔵室 31 側の多層構造体 32 の表面上に存在する元素を分析する (ステップ S06)。すなわち、X線銃 41 からの X 線を多層構造体 32 の表面に照射して、この X 線の照射により励起された多層構造体 32 の表面上の原子から放出される光電子のエネルギーを静電アナライザー 40 により検出する。これにより、多層構造体 32 の吸蔵室 31 側の表面上に存在する元素を同定する。

【0037】次に、多層構造体 32 を、加熱装置 (図示略) により例えば 70 の温度で加熱した後、真空バルブ 46 を閉じて吸蔵室 31 の真空排気を停止して、バリアブルリークバルブ 33 を開いて吸蔵室 31 内に所定のガス圧力で重水素ガスを導入して、核種変換の実験を開始する。ここで、重水素ガスを導入する際の所定のガス圧力は例えば 1.01325×10^5 Pa (いわゆる 1 気圧) とした。そして、放出室 34 の質量分析器 37 でガス状の反応生成物 (例えば、質量数 $A = 1 \sim 140$) の測定を行い、多層構造体 32 を透過して放出室 34 内に放出された重水素の拡散挙動の評価を行う。また、多層構造体 32 の吸蔵室 31 側の高純度ゲルマニウム検出器 44 により X 線の測定を行う (ステップ S07)。なお、多層構造体 32 を透過して放出室 34 内に放出された重水素量は、例えば放出室真空計 36 により検出される放出室 34 内の真空度と、ターボ分子ポンプ 38 の排気速度とに基づいて算出する。

【0038】吸蔵室 31 内に重水素ガスの導入を開始してから所定時間、例えば数十時間後に、多層構造体 32 の温度を常温に戻す。そして、バリアブルリークバルブ 33 を閉じて吸蔵室 31 内への重水素ガスの導入を停止して、さらに、真空バルブ 46 を開いて吸蔵室 31 を真空排気して核種変換の実験を終了する。そして、吸蔵室 31 内の真空度が充分安定した後 (例えば、 1×10^{-5} Pa 以下の状態) に、XPS により吸蔵室 31 側の多層構造体 32 の表面上に存在する元素を分析して生成物の測定を行う (ステップ S08)。

【0039】そして、上述したステップ S06 ~ ステッ

* 【0035】

【化 1】

*
... (1)

プ S07 の処理を繰り返して、核種変換反応の時間変化を測定する (ステップ S09)。そして、多層構造体 32 を核種変換装置 30 から取り出して、核種変換の実験を終了する (ステップ S10)。

10 【0040】以下に、上述した本実施形態による核種変換方法により行った核種変換実験での 2 つの実験結果、すなわち同一の実験を 2 回実施した際の実施例 1 及び実施例 2 について図 7 及び図 8 を参照しながら説明する。図 7 は、図 4 に示す多層構造体 32 の表面上における XPS による Pr のスペクトルを示すグラフ図であり、図 8 は図 4 に示す多層構造体 32 の表面上における Cs 及び Pr の原子数の時間変化を表すグラフ図である。実施例 1 及び実施例 2 での XPS の分析結果により、実施例 1 及び実施例 2 にて、多層構造体 32 の Cs (原子番号 $Z = 55$) は時間が経過するにつれて減少して、例えば図 7 に示す XPS による Pr のスペクトルのように、Pr (プラセオジウム、原子番号 $Z = 59$) が増加した。以下に、XPS による Cs 及び Pr に対するスペクトルから、各元素の原子数を算出する方法について説明する。

【0041】なお、XPS での測定時に X 線銃 41 から多層構造体 32 に対して照射される X 線の強度は常に一定とし、これらの X 線が照射されている領域は実施例 1 及び実施例 2 の各測定において同一であると仮定した。さらに、多層構造体 32 の表面上で X 線が照射されている領域は、例えば直径 5 mm の円形領域とし、放出される光電子の脱出深さの見積もりから、XPS にて分析可能な深さは例えば $20 \cdot 10^{-8}$ m とした。また、Pd 基板 23 を構成する Pd は fcc (面心立方格子) 結晶なので、XPS により得られた Pd のスペクトルのピーク強度から、Pd の原子数は $3 \cdot 0 \times 10^5$ 個と算出した。

【0042】そして、各元素のイオン化断面積、すなわち元素の内殻電子が例えば X 線等を吸収して励起する割合を参照して、XPS により得られる各元素のスペクトルのピーク強度と Pd のスペクトルのピーク強度とを比較することによって、各元素の原子数を算出する。なお、表 1 には、各元素のイオン化断面積の計算値を、C の 1s 軌道に対する値 (2.22×10^{-18} m²) を「1」とした場合の相対値として示した。なお、下記表 1 において、Si の 2p 及び S の 2p 及び Cl の 2p については、2p_x と 2p_y の和として算出した。

【0043】

【表 1】

50

内殻電子の結合 エネルギー	イオン化 断面積	内殻電子の結合 エネルギー	イオン化 断面積
C 1s(283.5eV)	1.00	Mg 2s(88.6eV)	2.27
O 1s(543.1eV)	2.92	Pd 3d _{5/2} (335.1eV)	10.1
Si 2p(99eV)(*)	0.894	Pd 3d _{3/2} (340.4eV)	7.03
Si 2s(149.8eV)(*)	0.884	Cs 3d _{5/2} (726.6eV)	22.93
S 2p(163eV)(*)	1.85	Ce 3d _{5/2} (883.9eV)	28.57
Cl 2p(201eV)(*)	2.47	Pr 3d _{5/2} (928.8eV)	30.72

【0044】図8に示すように、実施例1では、初期状態で 1.3×10^{14} 個存在していたCsが、48時間後には 8×10^{13} 個に減少し、120時間後には 5×10^{13} 個に減少している。一方、実験開始以前には存在しなかったPrが48時間後には 3×10^{13} 個検出され、120時間後には 7×10^{13} 個に増加しているのが観測された。同様に、実施例2においても実験開始からの時間経過に伴って、Csの原子数の減少と、Prの生成及びPrの原子数の増加が観測され、実施例1とほぼ同様の傾向を示している。これにより、CsからPrへの核種変換が起きていると解釈できる。

【0045】なお、以下において、検出されたPrが不純物に由来するものであるか否かについて考察する。上述した本実施形態に係る実施例1及び実施例2では、多層構造体32を吸蔵室31及び放出室34からなる真空容器から取り出すことなく元素分析を行っているため、不純物が混入する原因として考えられるのは重水素ガス(D₂ガス)に含まれる不純物と多層構造体32内部の不純物である。D₂ガスは例えば純度99.6%であり、不純物としては、N₂及びD₂Oが10ppm以下で、O₂及びCO₂及びCOが5ppm以下とされており、核種変換装置30内でD₂ガスを分析した場合にも、これらの不純物及び炭化水素以外のガスは検出されなかった。

【0046】一方、多層構造体32においては、Pdの純度は99.5%、CaO及びCsNO₃の純度は99.9%である。また、グロー放電質量分析法(GD-MS)によって実験開始以前の多層構造体32に対してランタノイド(La~Lu)の定量分析を行った結果、Ndが0.02ppm検出され、Nd以外の他のランタノイドは検出限界以下、つまり0.01ppm以下であった。ここで、実施例1及び実施例2で使用した多層構造体32(例えば、 $0.7g \sim 7 \times 10^{-3} mol$)内に、検出限界である0.01ppmのPrが存在していると仮定すると、多層構造体32中にPrの原子が 4.2×10^{13} 個存在することになる。

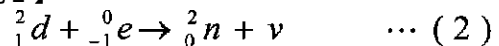
【0047】この場合、実施例1及び実施例2にて検出されたPr原子は、上記仮定に基づく検出限界以下のPr原子に起因すると仮定すると、これらの検出限界以下の全てのPr原子が多層構造体32の表面上から数10

$10^{-10}m$ の深さの領域に濃縮するようにして配置されていると仮定する必要がある。多層構造体32中に不純物として分散配置されているPr原子が、多層構造体32の表面近傍にのみ集中するような物理現象は熱力学的に不可能であり、実施例1及び実施例2にて検出されたPr原子が、予め多層構造体32中に含まれていた不純物であると結論することはできない。しかも、予め多層構造体32中に含まれていた不純物であれば、原子数の時間変化は観測されずに一定値を保持すると判断できる。以上より、実施例1及び実施例2にて検出されたPrは、核種変換反応の結果として生成されたと結論できる。

【0048】なお、上述した実施例1及び実施例2での実験結果は、例えば、米国原子力学会が発行しているFusion Technology誌(Y. Iwamura, T. Itoh, N. Gotoh and I. Toyoda, "Detection of Anomalous Elements, X-ray and Excess Heat in aD₂-Pd System and its Interpretation by the Electron-Induced Nuclear Reaction Model", Fusion Technology, vol.33, No. 4, P.476,1998)に掲載されたEINRモデルによって非常に良く説明できる。このEINRモデルによれば、PrはCsから下記数式(1)及び(2)によって生成されと考えられる。なお、下記化学式(2)及び(3)において、dは重水素、eは電子、²nはダイニュートロン、νはニュートリノをそれぞれ示している。

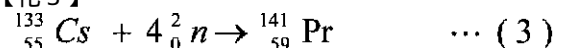
【0049】

【化2】



【0050】

【化3】



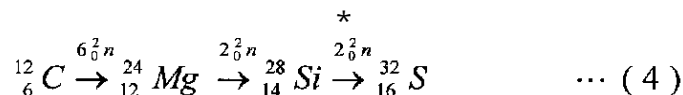
【0051】化学式(2)に示すように、EINRモデルでは重水素が電子を捕獲してダイニュートロンが生成し、同時にCs等の物質と反応して核種変換が起きると考えている。なお、化学式(3)でβ崩壊、すなわち¹⁴¹Cs(=¹³³Cs + 4²n)から¹⁴¹Prへ向かうβ崩壊の記号は省略した。

【0052】上述したように、本実施の形態による核種

変換装置 10 によれば、例えば原子炉や加速器等の相対的に大規模な装置を必要とせず、相対的に小規模な構成で核種変換の処理を施すことができる。また、本実施の形態による核種変換方法によれば、実験開始以前には検出されず核種変換の実験開始後に増加傾向に検出された Pr の原子数が、供給された D₂ ガスや多層構造体 32 中に予め含まれていた不純物に起因して検出された可能性を廃して、Cs から Pr への核種変換反応が生じていることを再現性良く確実に示すことができる。

【0053】なお、上述した本実施の形態においては、Pd 層 21 の表面上に核種変換を施す物質としてセシウム (Cs) 層 52 を添加して多層構造体 32 を構成したが、これに限定されず、核種変換を施す物質として Cs の代わりに、例えば炭素 (C) 等のその他の物質を添加しても良い。以下に、本実施形態の第 1 変形例として、Pd 層 21 の表面上に核種変換を施す物質として例えば炭素 (C) を添加した場合について図 9 及び図 10 を参照しながら説明する。図 9 は実施例 3 にて、多層構造体 32 の表面上における C 及び Mg 及び Si 及び S の各原子数の時間変化を表すグラフ図であり、図 10 は実施例 4 にて、多層構造体 32 の表面上における C 及び Mg 及び Si 及び S の各原子数の時間変化を表すグラフ図である。

【0054】この第 1 変形例において、上述した第 1 の実施形態と大きく異なる点は多層構造体 32 を形成する方法、特に、上述したステップ S04 での処理である。すなわち、上述したステップ S03 の後に、Pd 基板 23 及び混合層 22 及び Pd 層 21 からなる構造体 11 を大気中に曝すことで、Pd 層 21 の表面上に大気中の炭素 (C) を付着させて多層構造体 32 を形成する (ステップ S14)。そして、C が付着した Pd 層 21 を吸蔵室 31 側に向けて、多層構造体 32 を介在させて吸蔵室 31 と放出室 34 とを閉塞して、吸蔵室 31 及び放出室 34 の双方をそれぞれ真空排気する (ステップ S15)。そして、上述したステップ S06 以下の処理を行う。



【0060】以下に、本実施形態の第 2 変形例として、Pd 層 21 の表面上に核種変換を施す物質として例えばストロンチウム (Sr) を添加した場合について図 11 から図 17 を参照しながら説明する。図 11 は、本実施形態の第 2 変形例に係る多層構造体 32 を示す断面構成図であり、図 12 は、図 11 に示す多層構造体 32 の表面上における XPS による Mo のスペクトルを示すグラフ図であり、図 13 および図 14 は、図 11 に示す多層構造体 32 の表面上における Sr 及び Mo の原子数の時間変化を表すグラフ図である。図 15 は天然に存在する Mo の同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図であり、図 16 は第 5 実施例にて多層構造体 32 の表面

* 【0055】以下に、この本実施形態の第 1 変形例による核種変換方法により行った核種変換実験での 2 つの実験結果、すなわち同一の実験を 2 回実施した際の実施例 3 及び実施例 4 について添付図面を参照しながら説明する。この場合、実施例 3 及び実施例 4 での XPS の分析結果により、実施例 3 及び実施例 4 にて、多層構造体 32 の C は時間が経過するにつれて減少して、反応生成物である Si 及び S と、中間生成物である Mg とが検出された。そして、上述した本実施の形態と同様に、XPS による C 及び Mg 及び Si 及び S に対するスペクトルから、各元素の原子数を算出した。

【0056】図 9 に示すように、実施例 3 では、炭化水素に由来する C の原子数は、実験開始後の 4 4 時間後に減少しているのに対し、実験開始以前には存在しなかった Mg が 4 4 時間後には検出され、しかも、116 時間後にはやや減少している。さらに、実験開始以前には存在しなかった Si 及び S は、4 4 時間後、116 時間後において単調増加している。

【0057】図 10 に示すように、実施例 4 では、炭化水素に由来する C の原子数は、実験開始後の 2 4 時間後、7 6 時間後、116 時間後において単調減少しているのに対し、実験開始以前には存在しなかった Mg が 2 4 時間後には生成して、しかも、7 6 時間後、116 時間後において単調減少している。さらに、実験開始以前には存在しなかった Si 及び S は、2 4 時間後、7 6 時間後、116 時間後において単調増加している。

【0058】以上の結果より、本実施形態の第 1 変形例に係る核種変換方法によって、C が核種変換して、Mg 及び Si 及び S が生成されたと結果できる。この場合、上述した EINR モデルによると、C の核種変換は上記化学式 (2) 及び下記化学式 (4) にて表される。なお、化学式 (4) においては、ダイニュートロンクラスター (6^2_0n 、 2^2_0n) による反応を示した。

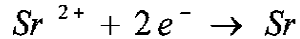
【0059】

【化 4】

上に観測された Mo の同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図であり、図 17 は核種変換を施す物質として添加された天然に存在する Sr の同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図である。

【0061】この第 2 変形例では、上述した第 1 の実施形態の多層構造体 32 において、核種変換を施す物質からなる Cs 層 52 の代わりに Sr 層 53 を添加した。すなわち、上述した第 1 の実施形態と大きく異なる点は多層構造体 32 を形成する方法、特に、上述したステップ S04 での処理である。なお、この第 2 変形例では、Pd 基板 23 として、例えば、縦 25 mm × 横 25 mm × 厚さ 0.1 mm、純度 99.9% 以上を用いた。この第

2 変形例では、上述したステップ S03 の後に、SrO の D₂O 希薄溶液 (Sr (OD)₂/D₂O 溶液) の電気分解により、核種変換を施す物質として、例えば Sr を構造体 11 の成膜処理表面に添加する。例えば、図 6 に示す電着装置 60 において、1 mM の Sr (OD)₂/D₂O 溶液を電解液 62 として、電源 61 の陽極に白金陽極 63 を接続し、陰極に構造体 11 を接続して、例え



【0063】そして、多層構造体 32 の Sr 層 53 を吸蔵室 31 側に向けて、上述したステップ S05 以下の処理を行う。

【0064】以下に、この本実施形態の第 2 変形例による核種変換方法により行った核種変換実験での 2 つの実験結果、すなわち同一の実験を 2 回実施した際の実施例 5 及び実施例 6 について添付図面を参照しながら説明する。実施例 5 及び実施例 6 での XPS の分析結果により、実施例 5 及び実施例 6 にて、多層構造体 32 の Sr (原子番号 Z = 38) は時間が経過するにつれて減少して、例えば図 12 に示す XPS による Mo のスペクトルのように、Mo (モリブデン、原子番号 Z = 42) が増加した。

【0065】ここで、XPS により得られる Sr 及び Mo に対するスペクトルから、各元素の原子数を算出する際には、上述した第 1 の実施形態と同様の方法を用いた。すなわち、XPS での測定時に X 線銃 41 から多層構造体 32 に対して照射される X 線の強度は常に一定とし、これらの X 線が照射されている領域は実施例 5 及び実施例 6 の各測定において同一であると仮定した。さらに、多層構造体 32 の表面上で X 線が照射されている領域は、例えば直径 5 mm の円形領域とし、放出される光電子の脱出深さの見積もりから、XPS にて分析可能な深さは例えば 2.0×10^{-10} m とした。また、Pd 基板 23 を構成する Pd は fcc (面心立方格子) 結晶なので、XPS により得られた Pd のスペクトルのピーク強度から、Pd の原子数は 3.0×10^{15} 個と算出した。

【0066】そして、各元素のイオン化断面積、すなわち元素の内殻電子が例えば X 線等を吸収して励起する割合を参照して、XPS により得られる各元素のスペクトルのピーク強度と Pd のスペクトルのピーク強度とを比較することによって、各元素の原子数を算出した。

【0067】図 13 に示すように、実施例 5 では、初期状態で 1.2×10^{16} 個存在していた Sr が、80 時間後には 1.0×10^{16} 個に減少し、240 時間後には 8×10^{15} 個に減少し、400 時間後には 4×10^{15} 個に減少している。一方、実験開始以前には存在しなかった Mo が 80 時間後には約 2.2×10^{15} 個検出され、240 時間後には約 3.2×10^{15} 個に増加し、400 時間後には 3.8×10^{15} 個に増加しているのが観測された。同様にして、図 14 に示す実施例 6 においても、実

* ば 1 V の電圧で 10 秒間に亘って電気分解を行い、構造体 11 の表面上で下記化学式 (5) に示す反応を発生させて Sr 層 53 を添加して、多層構造体 32 を形成する (ステップ S04a)。

【0062】

【化 5】



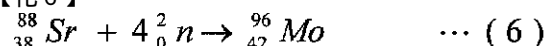
実験開始からの時間経過に伴って、Sr の原子数の減少と、実験開始以前には存在しなかった Mo の生成及び Mo の原子数の増加が観測され、実施例 5 とほぼ同様の傾向を示している。また、実施例 5 および実施例 6 の両方において、Sr の原子数の減少の時間変化と、Mo の原子数の生成および増加の時間変化とが、ほぼ一致していることから、Sr から Mo への核種変換が起きていると解釈できる。しかも、実施例 5 および実施例 6 の両方において、定性的に再現性の良い実験結果が得られていると結論することができる。

【0068】さらに、実施例 5 においては、核種変換の実験終了後、つまり上述したステップ S10 の後に、多層構造体 32 の表面を二次イオン質量分析 (SIMS : Secondary Ion Mass Spectroscopy) により分析して、生成された Mo の同位体存在比を算出した。例えば図 15 に示す天然に存在する Mo の同位体存在比に比べて、例えば図 16 に示す第 5 実施例にて観測された Mo の同位体存在比では、特定の同位体、すなわち ⁹⁶Mo のみが突出して高い存在率を示していることが分かる。ここで、例えば図 17 に示すように、核種変換を施す物質として多層構造体 32 に添加された天然に存在する Sr の同位体存在比では、特定の同位体、すなわち ⁸⁸Sr のみが突出して高い存在率を示していることが分かる。すなわち、核種変換を施す物質 (Sr) の同位体存在比と、実験開始以前には存在せずに、実験終了後に生成された物質 (Mo) の同位体存在比とが、強い相関関係にあると結論することができ、実施例 5 および実施例 6 にて検出された Mo は、Sr に対する核種変換により生成されたと結論できる。

【0069】さらに、実施例 5 及び実施例 6 での実験結果は、例えば、上述した E I N R モデルによって非常に良く説明することができ、例えば ⁹⁶Mo は上記化学式 (2) 及び下記化学式 (6) によって生成されと考えられる。なお、化学式 (6) で β 崩壊、すなわち ⁸⁸Sr (= ⁸⁸Sr + 4¹n) から ⁹⁶Mo へ向かう β 崩壊の記号は省略した。

【0070】

【化 6】



【0071】以下、本発明の第 2 の実施形態に係る核種

変換装置及び核種変換方法について添付図面を参照しながら説明する。図 18 は本発明の第 2 の実施形態に係る核種変換方法の原理を説明する図であり、図 19 は本発明の第 2 の実施形態に係る核種変換装置 80 の構成図である。

【0072】本実施の形態による核種変換方法を実現する装置 70 は、例えば図 18 に示すように、例えば白金等の陽極 71 と、パラジウム (Pd) または Pd の合金、あるいはその他の水素を吸蔵する金属 (例えば、Ti 等) またはこの合金等からなる陰極 72 と、陽極 71 と陰極 72 の一方の表面とを浸す重水溶液 73 と、陰極 72 により液密とされ、例えば核種変換を施す物質が含まれた重水溶液 73 が満たされた電解セル 74 と、陰極 72 により気密とされた真空容器 75 とを備え、陰極 72 の一方の表面 72A 側が例えば電気分解等により重水素の圧力が高い領域とされ、他方の表面 72B 側が例えば真空排気等により重水素の圧力が低い領域とされることで陰極 72 内部に重水素の流れが生成され、重水素と核種変換を施す物質とが反応することによって核種変換が行われる装置である。ここで、陰極 72 は、例えば図 2 に示す構造体 11 と同様の構成を有しており、好ましくは Pd 基板 23 の表面上に、相対的に仕事関数が低い物質つまり電子を放出し易い物質 (例えば、仕事関数が 3 eV 未満の物質) と Pd との混合層 22 が形成され、この混合層 22 の表面上に Pd 層 21 が積層されて形成されている。

【0073】図 19 に示すように、本実施の形態による核種変換装置 80 は、電源 81 と、圧力計 82 を備えた電解セル 83 と、電解セル 83 内に貯溜される電解溶液 84 と、真空容器 85 と、電解セル 83 内の電解溶液 84 を冷却する螺旋状の例えば絶縁性の樹脂等からなる冷却管 86 と、触媒 87 と、電源 81 の陰極に接続されて電解溶液 84 に浸漬された白金等の陽極電極 88 と、電解セル 83 内を液密に保持すると共に、真空容器 85 内を気密に保持して、電源 81 の陰極に接続された多層構造体 89 と、電解セル 83 及び真空容器 85 を格納して温度を制御する恒温槽 90 と、真空容器 85 内を真空状態とする真空排気ポンプ 91 とを備えて構成されている。

【0074】ここで、例えば絶縁性の樹脂等からなる電解セル 83 及び例えばステンレス等からなる真空容器 85 のそれぞれは、耐薬品性に優れた例えばカルレッツオリング等を介して多層構造体 89 によって、液密及び気密状態に封止されており、いわば多層構造体 89 を介して接続されている。また、電解セル 83 内に貯溜された電解溶液 84 は、核種変換を施す物質として例えばセシウム (Cs) が含まれた重水溶液、例えば濃度が 3.1 mol/l の $\text{Cs}_2(\text{SO}_4)$ 重水溶液とされている。なお、触媒 87 は、白金上に白金黒を電着したものより構成され、電解溶液 84 の電気分解により発生した大部分

の水素及び酸素から水を生成して、再び、電解溶液 84 に戻す。

【0075】本実施の形態による核種変換装置 80 は上記構成を備えており、次に、この核種変換装置 80 を用いて核種変換を行う方法について添付図面を参照しながら説明する。

【0076】先ず、上述した第 1 の実施形態に係る核種変換方法におけるステップ S01 ~ ステップ S03 と同様にして構造体 11 を作成する。そして、この構造体 11 を多層構造体 89 として、この多層構造体 89 の Pd 層 21 を電解セル 83 側に向けて、電解セル 83 及び真空容器 85 をそれぞれ液密及び気密状態に封止する (ステップ S21)。次に、電解セル 83 内に電解溶液 84 とし、例えば濃度が 3.1 mol/l の $\text{Cs}_2(\text{SO}_4)$ 重水溶液を注入する。さらに、電解セル 83 内部で電解溶液 84 が満たされていない空間を窒素ガスで置換して封入し、電解セル 83 内の圧力を例えば 1.5 kg/cm^2 に保持する (ステップ S22)。

【0077】そして、真空容器 85 内を真空ポンプ 91 にて排気して真空状態に保持する (ステップ S23)。そして、例えば絶縁性の樹脂等からなる冷却管 86 内に冷媒を供給して、電解セル 83 内の温度を所定の一定温度に保持する (ステップ S24)。そして、電解セル 83 内で電解溶液 84 に浸漬された例えば白金からなる陽極電極 88 と、陰極とされる多層構造体 89 とを電源 81 に接続して、電源 81 から供給される電力により電気分解反応を発生させる (ステップ S25)。ここで、電気分解時に供給する電流は、例えば 3 時間で徐々に 1 A から 2 A へ上昇させ、この後、2 A を保持する。

【0078】そして、電気分解開始後、12 時間後に恒温槽 90 の温度を 70°C として、以後、この温度を保持する (ステップ S26)。この電気分解を所定時間、例えば 7 日間持続した後に電気分解を停止して、恒温槽 90 の温度を常温にする (ステップ S27)。そして、核種変換装置 80 から多層構造体 89 を取り外して、多層構造体 89 の表面を二次イオン質量分析 (SIMS: Secondary Ion Mass Spectroscopy) により分析する (ステップ S28)。

【0079】以下に、上述した本実施形態による核種変換方法により行った核種変換実験での実験結果、すなわち実施例 7 について図 20 及び図 21 を参照しながら説明する。図 20 は、図 19 に示す核種変換装置 80 を用いた実験後の多層構造体 89 の電解セル 83 側の表面を示す図であり、図 21 は、図 19 に示す核種変換装置 80 を用いた実験後の多層構造体 89 の表面の SIMS 分析結果を示すグラフ図である。

【0080】図 20 に示す重水素が透過した部分 96 と、図 20 に示す重水素が透過していない部分 95 とに対して、図 21 に示すように、 ^{140}Ce については二次イオンの強度が一致しているが、 ^{138}La 及び ^{140}Pr で

は重水素が透過した部分 96、すなわち核種変換反応が発生している部分の方が、二次イオンの強度が大きくなっている。また、質量数 $A = 142$ については、 ^{10}Ce と ^{10}Nd との何れかであるかを判別することはできないが、重水素が透過した部分 96の方が、二次イオンの強度が大きくなっている。これにより、少なくとも ^{141}Pr は、 Cs が核種変換されて生成された物質であると結論できる。

【0081】上述したように、本実施の形態による核種変換装置 80 によれば、例えば原子炉や加速器等の相対的に大規模な装置を必要とせず、相対的に小規模な構成で核種変換の処理を施すことができる。しかも、上述した第 1 の実施の形態に係る核種変換装置 30 とは異なる構成でありながら、 Cs から Pr への核種変換反応が生じていることを示す実験結果を得ることができ、本発明の本質的手段の有効性を示すことができる。また、本実施の形態による核種変換方法によれば、多層構造体 89 における重水素が透過した部分 96 と、重水素が透過していない部分 95 との比較から、少なくとも Cs から Pr への核種変換反応が生じていることを確実に示すことができる。

【0082】なお、本実施の形態においては、電解溶液 84 として核種変換を施す物質を含む重水溶液を用いるとしたが、これに限定されず、多層構造体 89 の一方の表面上に、例えば真空蒸着やスパッター法の成膜処理によって核種変換を施す物質、例えば Cs を積層して、この Cs が積層された面を電解セル 83 の内部に向けて、電解セル 83 に貯溜された重水溶液からなる電解溶液 84 に浸しても良い。この場合、重水溶液には核種変換を施す物質、つまり Cs を含有させる必要はない。

【0083】なお、上述した本実施の形態においては、電解溶液 84 として Cs を含む重水溶液を用いるとしたが、これに限定されず、核種変換を施す物質として Cs の代わりに、例えばナトリウム (Na) 等のその他の物質を添加しても良い。以下に、本実施形態の変形例として、核種変換を施す物質として例えばナトリウム (Na) を重水溶液に添加した場合について説明する。

【0084】この変形例において、上述した第 2 の実施形態と大きく異なる点は、上述したステップ S 22 以下 *

* の処理である。すなわち、上述したステップ S 21 の後に、電解セル 83 内に電解溶液 84 として、例えばナトリウムが 400 ppm だけ添加された、濃度が 4.3 mol/l の LiOD 重水溶液を注入する。さらに、電解セル 83 内部で電解溶液 84 が満たされていない空間を窒素ガスで置換して封入し、電解セル 83 内の圧力を例えば 1.5 kg/cm² に保持する (ステップ S 32)。

【0085】そして、真空容器 85 内を真空ポンプ 91 にて排気して真空状態に保持する (ステップ S 33)。そして、例えば絶縁性の樹脂等からなる冷却管 86 内に冷媒を供給して、電解セル 83 内の温度を所定の一定温度に保持する (ステップ S 34)。そして、電解セル 83 内で電解溶液 84 に浸漬された例えば白金からなる陽極電極 88 と、陰極とされる多層構造体 89 とを電源 81 に接続して、電源 81 から供給される電力により電気分解反応を発生させる (ステップ S 35)。ここで、電気分解時に供給する電流は、例えば 6 時間で徐々に 0.5 A から 2 A へ上昇させ、この後、2 A を保持する。

【0086】そして、この電気分解を所定時間、例えば 7 日間持続した後に電気分解を停止して、恒温槽 90 の温度を常温にする (ステップ S 36)。そして、核種変換装置 80 から多層構造体 89 を取り外して、多層構造体 89 の表面を電子プローブ・マイクロ・アナライザー (EPMA: Electron Probe Microanalysis) により分析する (ステップ S 37)。

【0087】以下に、上述した本発明の第 2 の実施形態の変形例に係る核種変換方法により行った 3 つの核種変換実験での実験結果、すなわち同一の実験を 3 回実施した際の実施例 8 及び実施例 9 及び実施例 10 について説明する。なお、下記表 2 には、実施例 8 及び実施例 9 及び実施例 10 に対して、誘導励起プラズマ - オージェ電子スペクトル分析 (ICP - AES: Inductive Coupled Plasma - Auger Electron Spectrometry) による電解溶液 84 の分析結果について示した。なお、実験開始以前における電解溶液 84 の分析結果を比較例とした。

【0088】

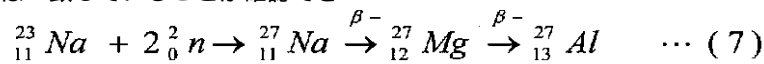
【表 2】

	比較例	実施例 8	実施例 9	実施例 10	
Na	430	25	16	56	(ppm)
	0.086	0.005	0.003	0.011	(g)
	2.3×10^{21}	1.3×10^{20}	8.4×10^{19}	2.9×10^{20}	(Atom)
Al	<1	410	420	310	(ppm)
	$<2 \times 10^{-4}$	0.082	0.084	0.062	(g)
	$<2 \times 10^{18}$	1.8×10^{21}	1.9×10^{21}	1.4×10^{21}	(Atom)

【0089】表 2 に示すように、実験開始以前の電解溶液 84 には Na が 430 ppm、 Al は検出限界以下の

1 ppm 以下である。一方、核種変換の実験後には、 Na の方が一桁程度低い値の数十 ppm となり、 Al が数

百ppmとなった。実験の開始前後での電解溶液84の変化は、電源81から電流を与えて電気分解を行うだけであり、外部から他の物質が添加されることはない。また、原子数(表2での、Atom)では、減少したNaの原子数は 2.2×10^4 から 2.0×10^4 程度であり、Alの増加量にほぼ一致していることが確認でき*



【0092】ここで、Naは ${}^{23}\text{Na}$ の天然存在率が100%であり、Alは ${}^{27}\text{Al}$ の天然存在率が100%である。従来の実験データから帰納的に同位体比構成の類似した核種同士の間で核種変換が生じやすいと判断でき、NaがAlに変換する可能性が高いことは、Na、Alの両元素とも安定に存在する同位体が唯一であることから類推できる。また、多層構造体89の表面をEPM Aによって分析した結果、多層構造体89の中心部、すなわち重水素が透過した部分からもAlが検出された。Alは両性金属であるため、電解溶液84中に溶解可能であるが、多層構造体89の中心部表面からもAlが検出されていることで、Naが核種変換されてAlが生成されたと結論することができる。

【0093】なお、本実施の形態においては、電解溶液84として核種変換を施す物質を含む重水溶液を用いるとしたが、これに限定されず、多層構造体89の一方の表面上に、例えば真空蒸着やスパッター法の成膜処理によって核種変換を施す物質、例えばNaを積層して、このNaが積層された面を電解セル83の内部に向けて、電解セル83に貯溜された重水溶液からなる電解溶液84に浸しても良い。この場合、重水溶液には核種変換を施す物質、つまりNaを含有させる必要はない。

【0094】以下、本発明の第3の実施形態に係る核種変換装置及び核種変換方法について添付図面を参照しながら説明する。図22は本発明の第3の実施形態に係る核種変換装置100の構成図である。

【0095】本実施の形態による核種変換装置100は、内部が気密保持可能とされた放出容器101と、この放出容器101の内部にて多層構造体102を介して気密保持可能に設けられた吸蔵容器103と、レギュレータバルブ104およびバルブ105を介して吸蔵容器103内に重水素を供給する重水素ポンプ106と、吸蔵容器103内の圧力を検出する圧力計107と、真空バルブ108を介して放出容器101内と吸蔵容器103内とを接続する接続配管109と、放出容器101内を真空状態に保つターボ分子ポンプ110と、放出容器101内及び吸蔵容器103内及びターボ分子ポンプ110内を荒引きするためのロータリーポンプ111と、放出容器101内の真空度を検出する真空計112とを備えて構成されている。

【0096】本実施の形態による核種変換装置100は上記構成を備えており、次に、この核種変換装置100

する。

【0090】この結果は、上述したEINRモデルでは上記化学式(2)及び下記化学式(7)で表される。

【0091】

【化7】

を用いて核種変換を行う方法について添付図面を参照しながら説明する。

【0097】まず、例えば図2に示すPd基板23(例えば、直径70mm×厚さ0.1mm、純度99.9%以上)をアセトン中で所定時間に亘って超音波洗浄することにより脱脂する。そして、Arガス雰囲気中において、例えば900の温度で所定時間(例えば、10時間)に亘ってアニールつまり加熱処理を行う(ステップS41)。次に、アニール後のPd基板23に対して、例えば室温にて1.5倍希釈の王水により所定時間(例えば、100秒間)に亘ってエッチング処理を施して表面の不純物を除去する(ステップS42)。

【0098】次に、上述したステップS03と同様にして、アルゴンイオンビームによるスパッター法を用いて、エッチング処理後のPd基板23上に成膜処理を施して構造体11を作成する(ステップS43)。そして、上述したステップS04と同様にして、CsNO₃のD₂O希薄溶液(CsNO₃/D₂O溶液)の電気分解により、核種変換を施す物質としてCs層を構造体11の成膜処理表面に添加して、多層構造体102を形成する(ステップS44)。

【0099】そして、多層構造体102のCs層を吸蔵容器103側に向けて、多層構造体102を介在させて吸蔵容器103と放出容器101とをそれぞれ気密状態に閉塞する。そして、まず、バルブ105を閉じ、接続配管109の真空バルブ108を開いて、放出容器101および吸蔵容器103をロータリーポンプ111およびターボ分子ポンプ110により真空排気する(ステップS45)。

【0100】次に、多層構造体102を、加熱装置(図示略)により例えば70の温度に加熱した後、真空バルブ108を閉じて吸蔵容器103の真空排気を停止して、バルブ105を開いて吸蔵容器103内に所定のガス圧力で重水素ガスを導入して、核種変換の実験を開始する。ここで、重水素ガスを導入する際の所定のガス圧力はレギュレータバルブ104によって調整し、例えば $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ (いわゆる1気圧)とした(ステップS46)。なお、多層構造体102を透過して放出容器101内に出てきた重水素量は、例えば真空計112により検出される放出容器101内の真空度と、ターボ分子ポンプ110の排気速度とに基づいて算出する。

【0101】吸蔵容器 103 内に重水素ガスの導入を開始してから所定時間、例えば数十時間後に、多層構造体 102 の温度を常温に戻す。そして、バルブ 105 を閉じて吸蔵容器 103 内への重水素ガスの導入を停止して、さらに、真空バルブ 108 を開いて吸蔵容器 103 を真空排気して核種変換の実験を終了する（ステップ S47）。そして、核種変換装置 100 から多層構造体 102 を取り外して、この多層構造体 102 に王水でエッチング処理を施して、多層構造体 102 の表面上に存在する元素を溶かした溶液を作成する。この溶液に対し、高周波誘導結合プラズマ - 質量分析（ICP - MS : Inductive Coupled Plasma - Mass Spectrometry）を適用して、多層構造体 102 の表面上に存在する元素 *

* の定量分析を行う（ステップ S48）。

【0102】以下に、上述した本実施形態による核種変換方法により行った核種変換実験での 2 つの実験結果、すなわち同一の実験を 2 回実施した際の実施例 11 及び実施例 12 について表 3 を参照しながら説明する。なお、下記表 3 には、実施例 11 及び実施例 12 に対して、ICP - MS による分析結果について示した。なお、実験開始以前における多層構造体 102 に王水でエッチング処理を施して生成した溶液の分析結果を比較例とした。

【0103】

【表 3】

	Pr	Cr
実施例 11	1.3 μ g	2.3 μ g
比較例	0.008 μ g	3.8 μ g
実施例 12	0.12 μ g	—

【0104】表 3 に示すように、比較例での実験開始以前の多層構造体 102 から得た溶液では、Pr の重量が 0.008 μ g、Cs の重量は 3.8 μ g である。この Pr の量は計測器の検出限界値であり、バックグラウンドノイズとしての値である。これに対して、実施例 12 では Pr の重量が、バックグラウンドに対し十分高い値の 0.12 μ g であった。さらに、実施例 11 にて、Pr の重量は実施例 12 と比べて 1 桁程度高い値の 1.3 μ g に増大し、Cs の重量が 2.3 μ g に減少した。すなわち、実施例 11 及び実施例 12 にて検出された Pr の増大は、Cs から Pr への核種変換反応が発生した結果であると結論できる。しかも、反応断面積を大きくすることで、反応量を増大することができた。

【0105】上述したように、本実施の形態による核種変換装置 100 によれば、例えば原子炉や加速器等の相対的に大規模な装置を必要とせずに、相対的に小規模な構成で核種変換の処理を施すことができる。しかも、上述した第 1 の実施の形態に係る核種変換装置 30 とは異なる装置構成および異なる形状の多層構造体 102 でありながら、Cs から Pr への核種変換反応が生じていることを示す実験結果を得ることができ、本発明の本質的

【0106】また、上述した本発明の第 1 の実施形態及び第 2 の実施形態及び第 3 の実施形態においては、水素を吸蔵する金属としてパラジウム（Pd）を使用した。これに限定されず、Pd の合金、或いは、例えば Ti、Ni、V、Cu 等のその他の水素を吸蔵する金属、又はこれらの合金等であってもよい。

【0107】

【発明の効果】以上説明したように、請求項 1 に記載の本発明の核種変換装置によれば、例えば原子炉や加速器

等に比べて相対的に小規模な構成で核種変換を行うことができ、構造体の一方の表面側と他方の表面側との間に重水素の圧力差を設けて、構造体の内部で一方の表面側から他方の表面側へと向かう重水素の流束を生成することで、重水素と核種変換を施す物質とに対して、再現性良く核種変換反応を発生させることができる。さらに、請求項 2 に記載の本発明の核種変換装置によれば、重水素供給手段によって吸蔵部を加圧すると共に、排気手段によって放出部を真空状態に減圧することによって、構造体に重水素の圧力差を容易に形成することができる。さらに、請求項 3 に記載の本発明の核種変換装置によれば、構造体の一方の表面側で電解溶液を電気分解することによって実効的に大きな圧力で構造体に重水素を吸蔵させることができ、さらに、排気手段によって放出部を真空状態に減圧することによって、構造体に重水素の圧力差を容易かつ確実に形成することができる。

【0108】さらに、請求項 4 に記載の本発明の核種変換装置によれば、変換物質積層手段、例えば電着、蒸着、スパッタリング等の成膜処理によって構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を容易に積層することができる。さらに、請求項 5 に記載の本発明の核種変換装置によれば、重水素を含む気体又は液体に核種変換を施す物質を混入することで、構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を容易に接触させることができる。さらに、請求項 6 に記載の本発明の核種変換装置によれば、多層構造をなす構造体に、仕事関数が低い物質を含む混合層を設けることで、核種変換反応の発生の再現性を向上させることができる。なお、請求項 1 ~ 6 に記載の本発明の核種変換装置において、核種変換を施す物質を同位体比構成が類似した核種へと変換させることで、核種変換反応の発生を促進することができ、核種変換反応の

発生に対して再現性を向上させることができる。

【0109】また、請求項7に記載の本発明の核種変換方法によれば、構造体の内部で一方の表面側から他方の表面側へと向かう重水素の流束を生成することで、重水素と核種変換を施す物質とに対して、再現性良く核種変換反応を発生させることができる。さらに、請求項8に記載の本発明の核種変換方法によれば、例えば電着、蒸着、スパッタリング等の成膜処理によって構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を積層する、又は、例えば重水素を含む気体又は液体に核種変換を施す物質を混入することで、構造体の一方の表面上に核種変換を施す物質を容易に接触させることができる。さらに、請求項9に記載の本発明の核種変換方法によれば、核種変換を施す物質を同位体比構成が類似した核種へと変換させることで、核種変換反応の発生を促進することができ、核種変換反応の発生に対して再現性を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の第1の実施形態に係る核種変換方法の原理を説明する図である。

【図2】 本発明の第1の実施形態に係る核種変換方法にて使用される構造体を示す断面構成図である。

【図3】 本発明の第1の実施形態に係る核種変換装置の構成図である。

【図4】 図3に示す核種変換装置で使用する多層構造体を示す断面構成図である。

【図5】 図5(a)は混合層の断面構成図であり、図5(b)は混合層を含む構造体の断面構成図である。

【図6】 構造体に核種変換を施す物質を添加する装置の構成図である。

【図7】 図4に示す多層構造体の表面上におけるXPSによるPrのスペクトルを示すグラフ図である。

【図8】 図5に示す多層構造体の表面上におけるCs及びPrの原子数の時間変化を表すグラフ図である。

【図9】 実施例3にて、多層構造体の表面上におけるC及びMg及びSi及びSの各原子数の時間変化を表すグラフ図である。

【図10】 実施例4にて、多層構造体の表面上におけるC及びMg及びSi及びSの各原子数の時間変化を表すグラフ図である。

【図11】 本実施形態の第2変形例に係る多層構造体32を示す断面構成図である。

【図12】 図11に示す多層構造体の表面上におけるXPSによるMoのスペクトルを示すグラフ図である。

【図13】 図11に示す多層構造体の表面上におけるSr及びMoの原子数の時間変化を表すグラフ図であ

る。

【図14】 図11に示す多層構造体の表面上におけるSr及びMoの原子数の時間変化を表すグラフ図である。

【図15】 天然に存在するMoの同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図である。

【図16】 第5実施例にて多層構造体の表面上に観測されたMoの同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図である。

10 【図17】 核種変換を施す物質として添加された天然に存在するSrの同位体存在比を質量数の変化と共に示すグラフ図である。

【図18】 本発明の第2の実施形態に係る核種変換方法の原理を説明する図である。

【図19】 本発明の第2の実施形態に係る核種変換装置の構成図である。

【図20】 図19に示す核種変換装置を用いた実験後の多層構造体の電解セル側の表面を示す図である。

20 【図21】 図19に示す核種変換装置を用いた実験後の多層構造体の表面のSIMS分析結果を示すグラフ図である。

【図22】 本発明の第3の実施形態に係る核種変換装置の構成図である。

【符号の説明】

10, 30, 70, 80, 100 核種変換装置

11 構造体

21 Pd層(表面層)

22 混合層

23 Pd基板(基材)

30 31 吸蔵室(吸蔵部)

32, 89, 102 多層構造体(構造体)

34 放出室(放出部)

35, 106 重水素ポンプ(高圧化手段、重水素供給手段)

38, 110 ターボ分子ポンプ(低圧化手段、排気手段)

39, 111 ロータリーポンプ(低圧化手段、排気手段)

72 陰極(構造体)

40 81 電源(高圧化手段、電気分解手段)

83 電解セル(吸蔵部)

84 電解溶液

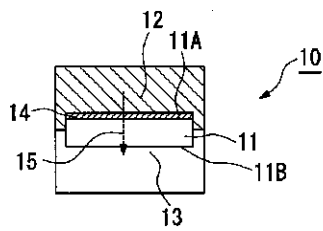
85 真空容器(放出部)

91 真空排気ポンプ(低圧化手段、排気手段)

101 放出容器(放出部)

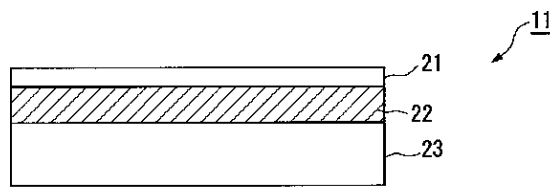
102 吸蔵容器(吸蔵部)

【図1】



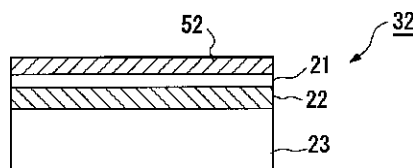
- 10; 核種変換方法を実現する装置
11; 構造体
12; 重水素の圧力が高い領域
13; 重水素の圧力が低い領域
14; 核種変換を施す物質
15; 重水素の流れ

【図2】



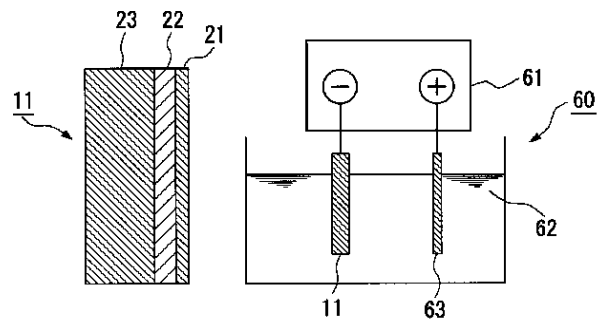
- 21; Pd層
22; 混合層
23; Pd基板

【図4】



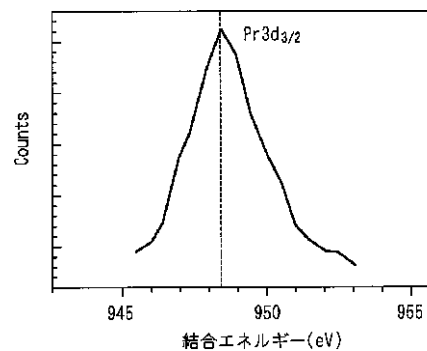
- 21; Pd層
22; 混合層
23; Pd基板
52; Cs層

【図6】

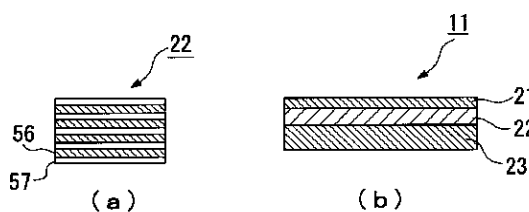


- 21; Pd層
22; 混合層
23; Pd基板
61; 電源
62; 電解液
63; 白金陽極

【図7】



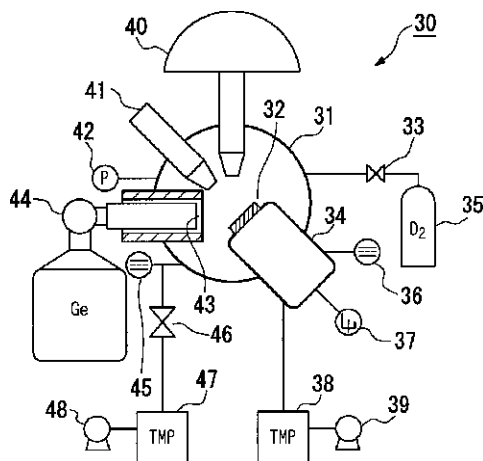
【図5】



- 56; Pd層
57; CaO層

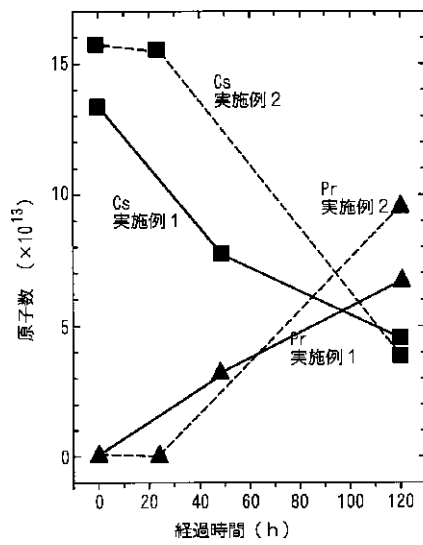
- 21; Pd層
22; 混合層
23; Pd基板

【図3】

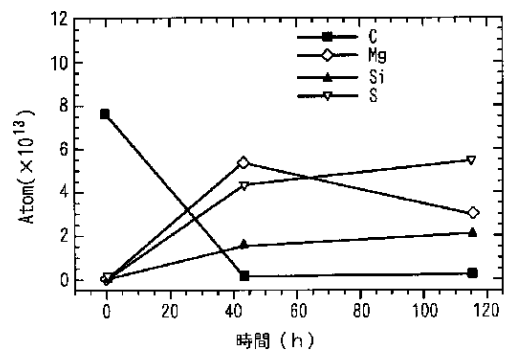


- 30; 核種変換装置
31; 吸蔵室
32; 多層構造体
33; バリアブルリークバルブ
34; 放出室
35; 重水素ポンプ
36; 放出室真空計
37; 質量分析器
38; ターボ分子ポンプ
39; ロータリーポンプ
40; 静電アナライザー
41; X線銃
42; 圧力計
43; ベリリウム窓
44; 高純度ゲルマニウム検出器
45; 吸蔵室真空計
46; 真空バルブ
47; ターボ分子ポンプ
48; ロータリーポンプ

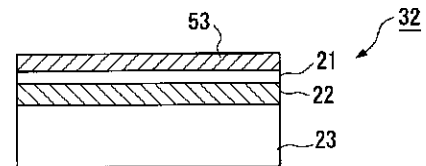
【図 8】



【図 9】

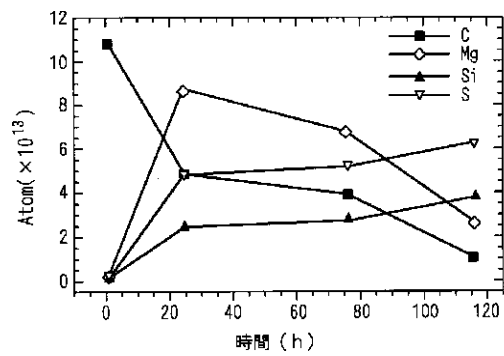


【図 11】

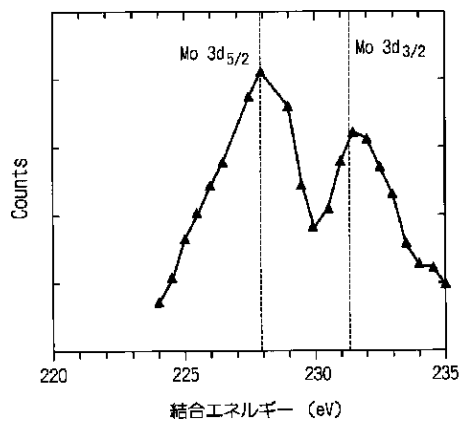


21; Pd 層
22; 混合層
23; Pd 基板
53; Sr 層

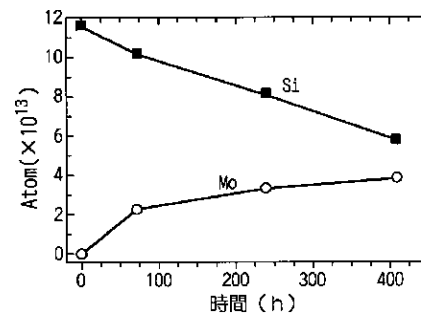
【図 10】



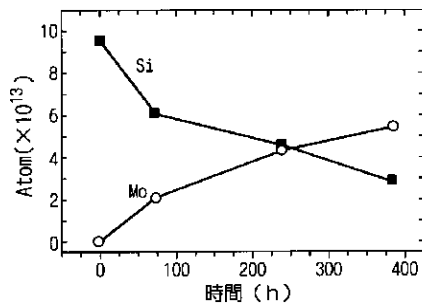
【図 12】



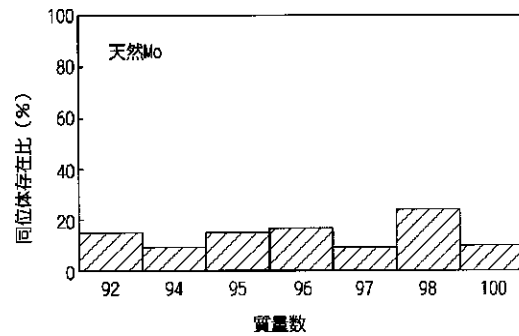
【図 13】



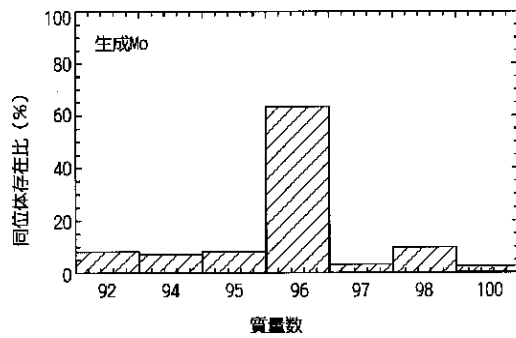
【図14】



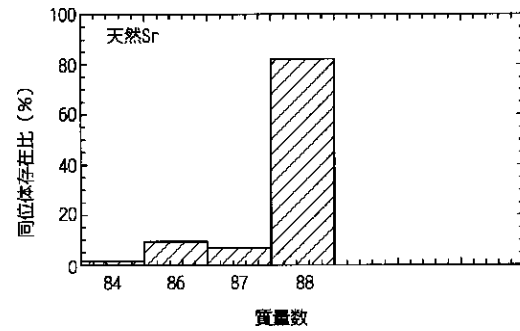
【図15】



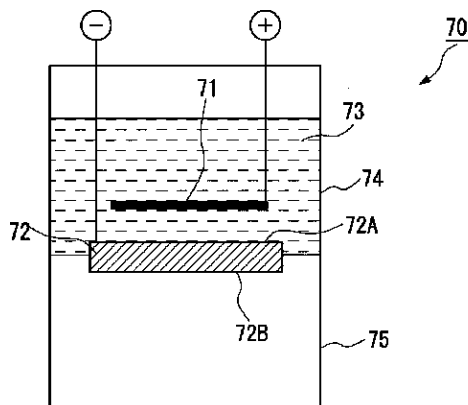
【図16】



【図17】

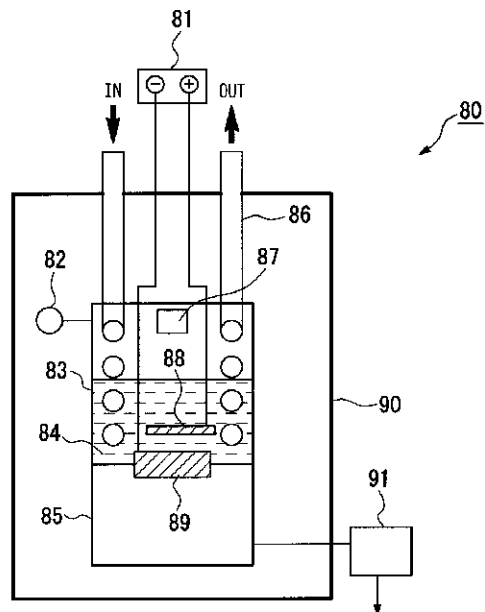


【図18】



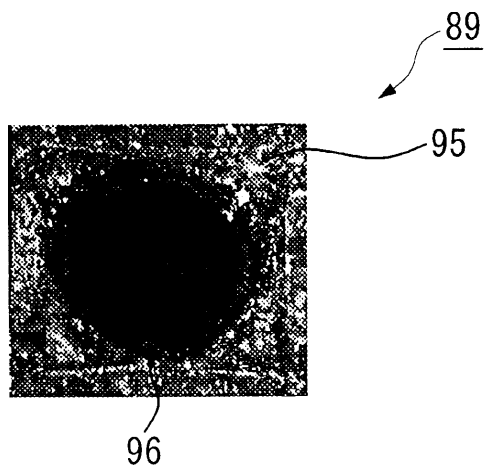
71; 陽極
72; 陰極
73; 電解溶液
74; 電解セル
75; 真空容器

【図19】



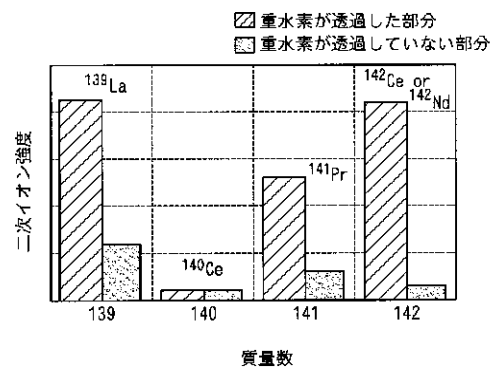
81; 電源
82; 圧力計
83; 電解セル
84; 電解溶液
85; 真空容器
86; 冷却管
87; 触媒
88; 陽極電極
89; 多層構造体
90; 恒温槽
91; 真空排気ポンプ

【図 20】

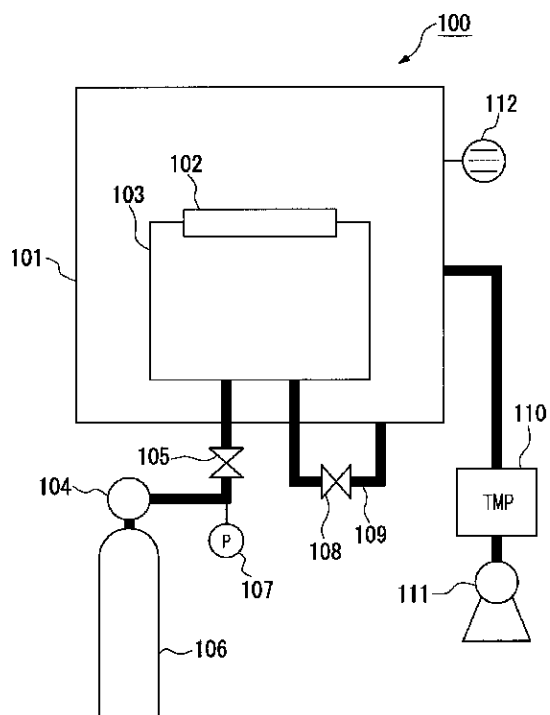


95 ; 重水素が透過していない部分
96 ; 重水素が透過した部分

【図 21】



【図 22】



101 ; 放出容器
102 ; 多層構造体
103 ; 吸蔵容器
104 ; レギュレータバルブ
105 ; バルブ
106 ; 重水素ポンプ
107 ; 圧力計
108 ; 真空バルブ
109 ; 接続配管
110 ; ターボ分子ポンプ
111 ; ロータリーポンプ
112 ; 真空計

フロントページの続き

(72)発明者 坂野 充
神奈川県横浜市金沢区幸浦一丁目 8 番地 1
三菱重工業株式会社基盤技術研究所内

(72)発明者 坂井 智嗣
神奈川県横浜市金沢区幸浦一丁目 8 番地 1
三菱重工業株式会社基盤技術研究所内
F ターム(参考) 4K021 AB23 BA01 DA09
4K044 AA06 BA08 BB02 BC14 CA13
CA14