

課題番号：2006A0241（※）

課題名：蛍光X線分析を用いた重水素透過中のPd多層膜表面元素のin-situ観察

実験責任者所属機関及び氏名：三菱重工業（株）先進技術研究センター 岩村康弘

使用ビームライン：BL37XU

実験結果：

## 1. 目的と概要

Pd多層構造膜表面にCsを添加し重水素ガス透過するとこれら元素が減少し、新たにPrが出現し、増大してゆく現象が確認されている<sup>(1)</sup>。これは、常温・常圧での重水素透過というシンプルな手法による元素変換を示しており、学術的に新しい分野を創出しうる現象である。元素変換現象はナノスケールでPdとCaOを交互積層した反応膜（図1）に重水素を透過することで起きている<sup>(1)-(3)</sup>。また、深さ方向の反応領域は右図写真の表面10nmナノメーター領域の微細な領域で起きている結果が得られており<sup>(2)-(3)</sup>、かつ生成物は不均一に存在していることが分かってきた。（2005B0554等）本研究の目的は、Cs→Pr変換のIn-situ計測を行い、現象のメカニズム解明を進めることである。

## 2. 実験方法

試験装置概要を図1、外観を図2に示す。BL37XUからの放射光（5.97keV）は、Be-Windowを通して反応容器内に導入し、試料に入射する。この試料からの蛍光X線を、X線検出器（シリコンドリフトチェンバ検出器）で検出する。ビームライン放射光の大気による減衰をなくすため、導入管内は真空（1Torr以下）に保っている。検出器にはPdの蛍光（ $L\alpha 1$ ：2.839keV）によるバックグラウンド低減のため、塩素含有の吸収体（K殻吸収：2.816keV）として塩素含有有機膜“サララップ”を検出器前に設置した。また有機膜からの炭化水素系ガスは試料表面付着により、重水素透過を阻害し、変換率を低下させる原因になるため、検出器と試料間はBe-Windowでしきり、さらにBe-Window、検出器間の大気による蛍光X線減衰を防止するため、検出器設置容器内は真空（数Torr）に保っている。装置は微動ステージ上にあり試料表面の2次元分布が計測可能になっている。実験手順は下記の通りである。

- ① Pd多層膜を作成し、試料にCs添加。
- ② 試料を試験装置に設置し、真空引き及び昇温（70℃）。
- ③ 放射光により重水素透過前試料の蛍光X線分析実施。
- ④ 重水素ガス導入し透過開始（圧力：120kPa）
- ⑤ 約1週間から2週間経過後、放射光により蛍光X線分析実施。

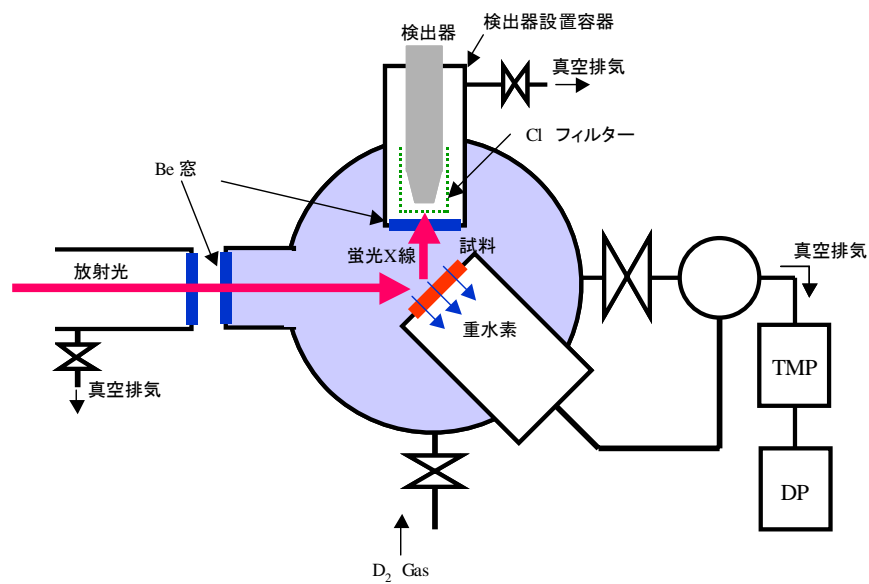


図1 実験装置の構成図

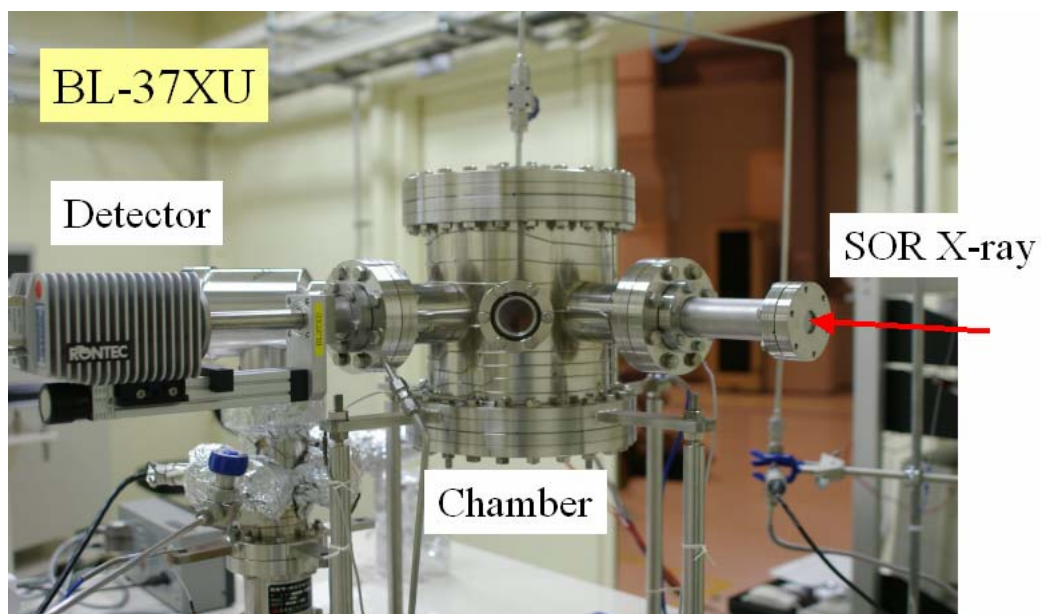


図2 実験装置の外観

### 3. 実験結果および考察

今期は重水素透過前後のIn-situ計測が2回、透過後のみのXRF計測1回の計3回の実験を行った。今回のIn-situ計測では、Csから変換したPrよりもその中間体と思われるLaあるいはBaの信号が検出されるケースがあった。図3にその結果例を示す。この図の上の図はX線でスキャンした際のX線の照射ポイントで、重水素透過後にこれら

のポイントでXRFスペクトルを計測した。図3(a)はポイント9に対応するが、重水素透過によってCsの信号強度は変わっていない。それに対して、図3(b)は、重水素透過によりCsが減少し、代わりに4.6keV付近にピークが出現している。

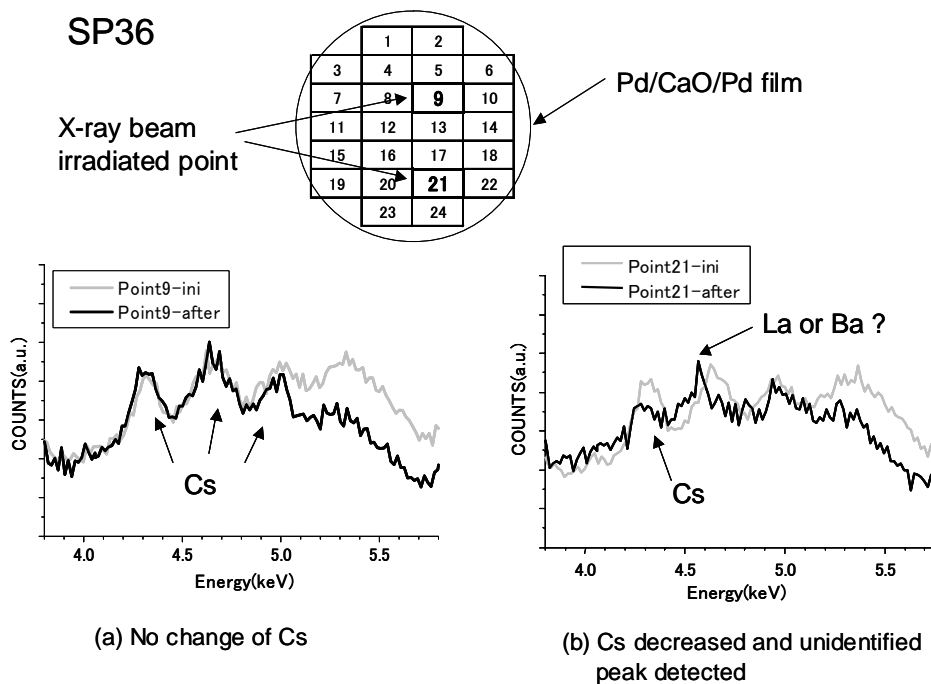


図3 重水素透過によるXRFスペクトルの変化

エネルギーからこのピークはLaあるいはBaの可能性があり、Cs→Prの反応の中間体 (Cs→La→Pr) である可能性が高い。いずれにせよ、現状では信号が弱いため、今後さらに反応量を増やして詳細に検討していく必要がある。なお、77.5keVのX線を用いてK線の測定を試みたが、得られる信号が弱く、計測は困難であることが分かった。従って、今後も従来どおりPrの計測はL線で行うこととしたい。

現状では、重水素透過前、後のスペクトルは得られているが、透過前、透過中、透過後の3点でのXRFスペクトルの変化を示すデータはビームタイムの関係上得られていない。今後は、透過前・透過中・透過後にそれぞれ一週間程度の間隔でXRFスペクトルの変化を観測し、より信頼性の高い元素変換データを取得していく予定である。

[参考文献]

[1] Y. Iwamura, M. Sakano and T. Itoh, "Elemental Analysis of Pd Complexes: Effects of D2 Gas Permeation" Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 41, pp. 4642-4650, 2002.

[2] 岩村康弘, 伊藤岳彦, 坂野充, 栗林志頭真, “重水素透過によるPd多層膜上での元素変換の観測”, 固体物理Vol. 39, pp. 203-210, 2004.

[3] Y. Iwamura, T. Itoh, M. Sakano, S. Kuribayashi, Y. Terada, T. Ishikawa and J. Kasagi, Proc. of ICCF11, France, Oct. 31-Nov. 5, 2004, Marseilles, (France), World Scientific, pp. 339-350, see <http://www.lenr-canr.org/>.