

加圧ガス中グロー放電を用いた重水素吸蔵
固体中の過剰熱発生に関する研究

(研究課題番号 08650325)

平成8年度～平成9年度科学研究費補助金 (基盤研究 C2)

研究成果報告集

平成10年3月

研究代表者 山田 弘

(岩手大学工学部電気電子工学科教授)

研究成果報告書

はしがき

エネルギー消費量の増加と健全な地球環境を守りことを考えるとき、クリーンエネルギーを生み出す技術はきわめて重要である。とりわけエネルギー資源の殆どを海外に依存している我が国で育成すべき技術といえる。重水の電気分解により投入エネルギー以上の過剰熱が発生することが報告されているが、その現象の再現性が極めて低いため、多くの研究者が認めるには至っていない。他方、重水素ガスを直接吸蔵させたパラジウムを用いる、いわゆるガス法などでも実験後に試料表面から混入不純物としては考えられない量の多種類の元素が検出される報告が多数出されている。これは、これまで常温核融合という名称で呼ばれてきたこの現象名の再考を迫るものといえる。ガス法の中でも水素吸蔵性固体を電極に用いてグロー放電を起こし、固体内における核反応について調べる研究は、生成元素の判別や元素粒子のエネルギー計測など核反応の機構究明に結びつく情報が得やすいのみならず、実用的見地からも将来の大規模な装置に発展する可能性を秘めている。

研究代表者は以上の観点から、これまで、約2気圧の重水素ガス中であらかじめ重水素を吸蔵させたパラジウム針を電極として長時間にわたりグロー放電を行ってきた。その結果、まれにバースト的中性子の放出（最大でバックグラウンドの9万倍）が起こり、その場合に限り針電極先端に多量の炭素が生成されることを見出した。そこで、この研究では、対照ガスとして軽水素を加え、パラジウム電極表面で生成される元素の解析を中心に研究を進めた。さらに、ガス圧を低くした低気圧ガスグロー放電による核反応誘起実験も取り入れ、効率的に核反応が起こる実験条件を探った。

研究組織

- 研究代表者 山田 弘 (岩手大学工学部 教授)
- 研究協力者 藤原 民也 (岩手大学工学部 教授)
- 研究協力者 千葉 晶彦 (岩手大学工学部 助教授)
- 研究協力者 李 星国 (岩手大学工学部 助教授)
- 研究協力者 八代 仁 (岩手大学工学部 助教授)
- 研究協力者 中村 満 (岩手大学工学部 助教授)
- 研究協力者 平原 英俊 (岩手大学工学部 助手)
- 研究協力者 今井 潤 (岩手大学工学部 助手)
- 研究協力者 土肥 礼樹 (岩手大学工学研究科学生)
- 研究協力者 浅里 直人 (岩手大学工学研究科学生)
- 研究協力者 稻村 功 (岩手大学工学研究科学生)
- 研究協力者 内山 和義 (岩手大学工学研究科学生)
- 研究協力者 河田 信彦 (岩手大学工学研究科学生)
- 研究協力者 仲居 倫宏 (岩手大学工学研究科学生)

研究経費

平成8年度 1,800千円

平成9年度 400千円

計 2,200千円

研究成果の公表

内山 和義、 藤原 民也、 山田 弘、 李 星国、 平原 英俊：
「重水素ガス中グロー放電によるパラジウム針電極からの中性子放出」
電気学会放電研究会資料、ED-96-79, pp. 1-10, 1996

Tamiya Fujiwara, Jyunya Sekikawa, Emma Ebisu, Tetsuya Sato
and Hiroshi Yamada:
“Transient continuous Glow Discharge in He, H₂ and N₂ at Sub-atm-Pressure”
電気学会論文誌A, pp. 914-918, 1996

山田 弘、 佐藤 新吾、 石田 正秀、 許 維春、 梅津 芳生、 平原 英俊：
「軽水電気分解による金板陰極表面の生成物」
平成9年電気学会全国大会講演論文集、No. 10, 1997

山田 弘、 佐藤 新吾、 石田 正秀、 許 維春、 梅津 芳生、 平原 英俊：
「軽水電気分解による金板陰極表面の生成物」
1997日本素材物性学会固体内核変換研究会報告集、pp. 93-100, 1997

山田 弘、 内山 和義、 河田 信彦、 藤原 民也、 李 星国、 千葉 晶彦：
「重水素化パラジウム電極を用いた重水素ガス中グロー放電における放射線計測」
平成10年電気学会全国大会講演論文集、No. 237, 1998

Hiroshi Yamada and Tamiya Fujiwara:
“Neutron Emission from Palladium Point Electrode in Pressurized Deuterium
Gas under DC Voltage Application”
Int. J. Soc. of Mat. Eng. for Resources, No.1, 1998 (in press)

目 次

| | | |
|------|---------------------------|----|
| 第1章 | 緒言 | 1 |
| 第2章 | 中性子計測系 | 3 |
| 2. 1 | 固体内核反応と中性子検出 | 3 |
| 2. 2 | 中性子検出器とその特徴 | 3 |
| 2. 3 | 中性子検出効率の算定 | 9 |
| 第3章 | γ 線計測系 | 15 |
| 3. 1 | 固体内核反応と γ 線検出 | 15 |
| 3. 2 | γ 線検出器とその特徴 | 15 |
| 3. 3 | γ 線計測系の較正 | 20 |
| 第4章 | 試料 | 22 |
| 4. 1 | 試料の種類 | 22 |
| 4. 2 | 試料の作成 | 22 |
| 4. 3 | 試料表面の洗浄 | 22 |
| 4. 4 | アニーリング | 23 |
| 4. 5 | ガス吸蔵 | 23 |
| 4. 6 | 吸蔵率の算定 | 26 |
| 第5章 | パラジウム針電極を用いたグロー放電法 | 27 |
| 5. 1 | 加圧グロー放電による中性子計測 | 27 |
| 5. 2 | 捕獲中性子触媒核融合 (TNCF) モデル検証実験 | 37 |
| 第6章 | パラジウム板電極を用いたグロー放電法 | 45 |
| 6. 1 | パラジウム板陽極を用いた低気圧グロー実験 | 45 |
| 6. 1 | パラジウム板陰極を用いた低気圧グロー実験 | 47 |
| 第7章 | 電極表面の元素分析 | 58 |
| 7. 1 | 表面分析装置 | 58 |
| 7. 2 | 分析結果 | 59 |
| 第8章 | まとめ | 71 |

第1章 緒言

固体内核反応(常温核融合)現象は、1989年3月、Martin Fleischmann, Stan Pons 両博士そしてS.E.Jones博士らによって初めて報告された。これは、パラジウムを陰極に用いて重水を電気分解した際に、重水中の重水素が陰極に吸収され、電流のために互いに押しつけられて核融合が生じた、というものである。この現象は科学者やエネルギー関連の技術者らの興味を引いた。将来のエネルギー需給の見通しについて各国の関心が高まり、次世紀前半からのエネルギー調達をいかにして行っていくかが緊急の課題となっていたからである。その後多くの研究者の地道な研究は続き、常温核融合の実験事実はここ8年間豊富に蓄積され、現在では現象の存在そのものを疑うことは困難な段階まで来ている。

今日までに、常温核融合をテーマにした国際会議が6回開催されており、1996年10月に北海道洞爺湖畔で開かれた第6回常温核融合国際会議(ICCF6)においては、これまでの実験事実を確認する多くのデータや、さらに結果の再現性を高める方法が発表された。近年、パラジウム等の水素吸蔵性固体の表面処理法、電気分解法のほかに真空法、グロー放電法、さらにそれらを改良した手法も開発され、核反応を誘起させやすい条件が明らかになりつつある。

本学では、1990年より固体内核反応の研究が行われている。最初に行われた方法は、重水素を吸蔵させたパラジウム針電極を陽極に用いたグロー放電法であり、他の核反応生成粒子に比べてバックグラウンドとの判別が容易である中性子計測を中心に行われた。約2atmの重水素ガス雰囲気中で、重水素吸蔵パラジウム針を陽極に用いて高電界を印加すると、まれにバースト状の中性子放出が観測され、またこの電極の表面を分析すると炭素が検出されることがある⁽¹⁾。最近では、発生粒子も初めに予想された 2.45 MeVの中性子よりも、トリチウム、³He、⁴Heなどの検出が多数報告されている。また、ロシアのI.B.Savvatimovaらのグループ他は、グロー放電法による試行後の水素吸蔵金属製の電極表面において元素の変換が起こるといふ、いわゆる核変換現象

(Transmutation Phenomena)を報告^{(2),(3)}している。

現在、中性子バーストやトリチウム、³He、⁴Heなどの検出や核変換を含むこの固体内核反応を説明付けようとする諸説が多数提案されている。小島が提案する捕獲中性子触媒核融合(TNCF)モデル⁽⁴⁾もその一つであり、豊富に存在するバックグラウンド中性子がトリガーの役目をして固体内核反応を引き起こすというものである。このモデルは、報告されている実験事実を定性的に、時には半定量的に説明することができるため、固体内核反応の機構解明の手掛かりとなる可能性が大きい。

これらを踏まえ、本研究では固体内核反応の検証を目的として以下の3つの実験を行った。

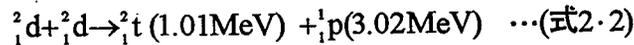
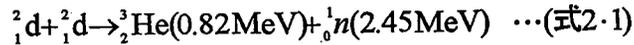
- (1)約2atmの重水素ガス雰囲気中で、重水素吸蔵パラジウム針を陽極に用いて高電界を印加し、核反応を促進させる実験。(略称:中性子計測実験)
- (2)豊富なバックグラウンド中性子が存在する場合に核反応が起こりやすいという、捕獲中性子触媒核融合モデル⁽⁴⁾を検証するため、屋外において1)と同様の手法で行う実験。(略称:屋外実験)
- (3)重水素吸蔵パラジウム板を陰極に用い、低気圧の重水素雰囲気中でグロー放電を行い、核反応を促進させる実験。(略称:低気圧グロー実験)

すべての実験に対して試料表面の元素分析を行い、(1)、(3)の実験に対しては核反応生成物である中性子及び γ 線の計測を行った。また、オートラジオグラフィによる放射線の検出も行った。これにより、固体内核反応について検証し、考察する。

第2章 中性子計測系

2.1 固体内核反応と中性子検出

以下に、重陽子同士の融合反応を示す。



固体内核反応の検証には、ヘリウム、トリチウム、中性子などの1次生成物、反応熱の測定などが考えられるが、本研究では (式2・1)に示される2.45MeVのエネルギーを持つ中性子の検出にまず着目し、以下の利点から中性子計測を行った。

1. 一次生成物の直接計測である。
2. 他の1次生成物よりバックグラウンドレベルが低い。
3. 中性子計測法がよく研究されており扱いやすい。

2.2 中性子検出器とその特徴

本研究で用いた中性子計測系の装置構成をFig.1に示す。 ${}^3\text{He}$ 比例計数管に中性子が入射すると、そのエネルギーに対応した電荷パルスが発生する。この電荷パルスをプリアンプ及びメインアンプにより積分及び増幅し、電圧パルスに変換してから、シングルチャネルアナライザーで希望のエネルギーを持つ中性子信号のみを取り出す。この中性子信号をタイマー&カウンターにより記録し、コンピューターにより自動計測を行う。以下、各機器についてそれぞれ説明する。

2.2.1 ${}^3\text{He}$ 比例計数管

本研究で用いた中性子検出器は、直径26mm、実効感度長150mm、封入ガス圧4atmの ${}^3\text{He}$ 比例計数管である。Fig.2に示すように、中空円筒の中心に張った細線を陽極、円筒自体を陰極とし、陽極には1.15kVの高電圧が印加される。このような構造をしているのは、比較的低い印加電圧で高い電界強度を得るためである。

このような形状の計数管では、陽極の半径を a 、陰極の半径を b 、印加電圧を V とすると、

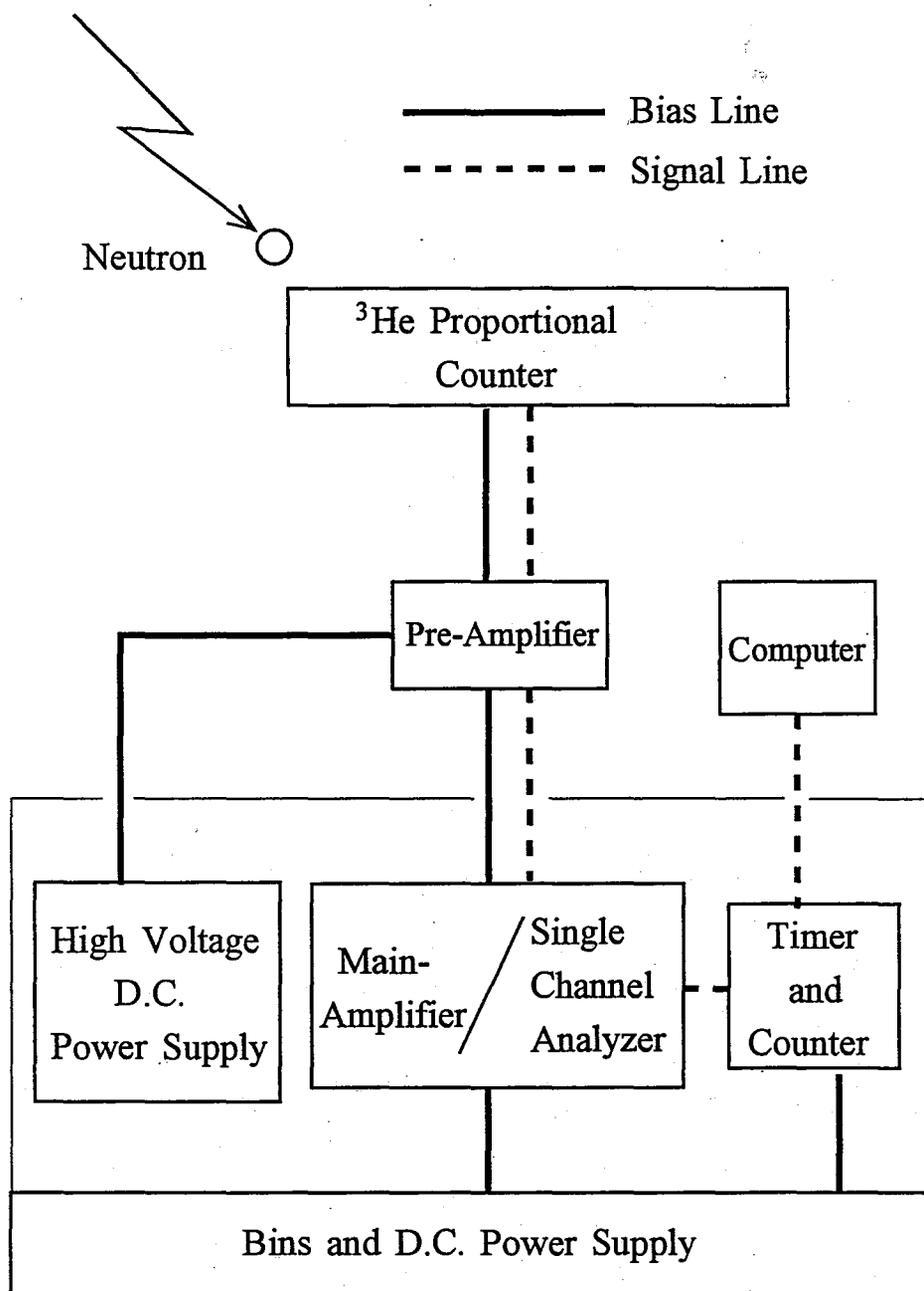
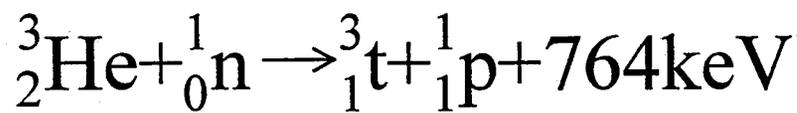
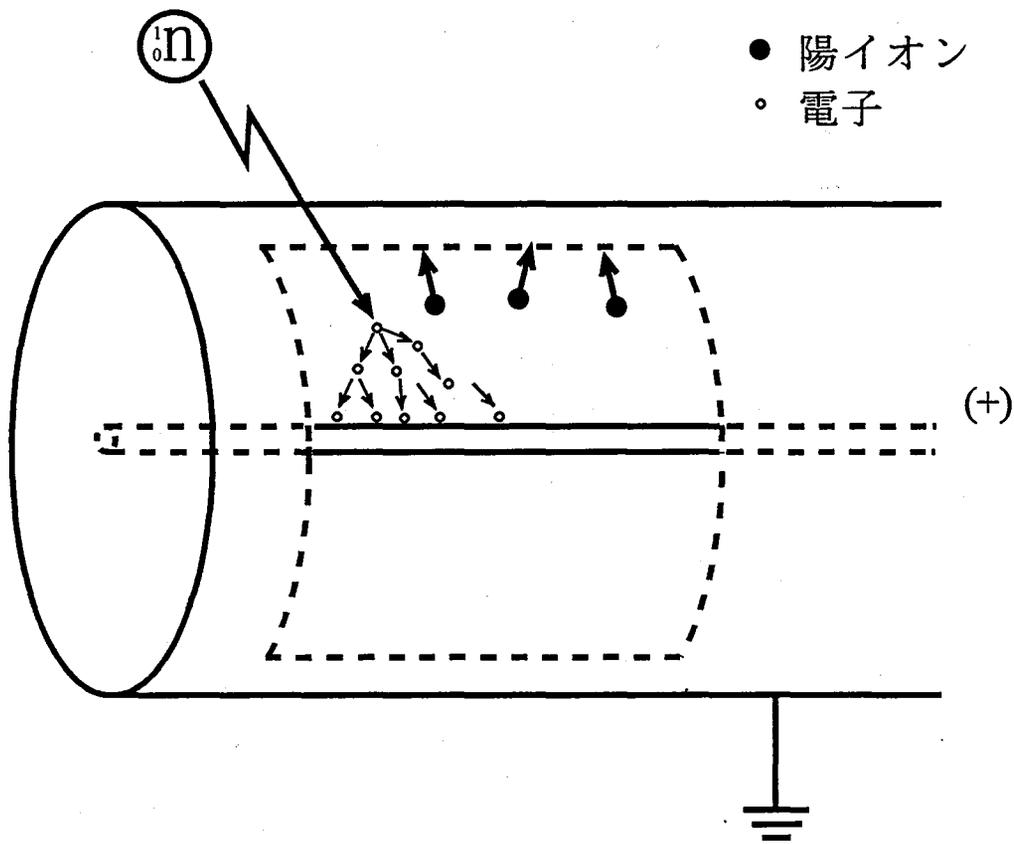


Fig. 1 Neutron counting system



入射した中性子のエネルギーに対応した数の電荷パルス

増幅器の時定数(*Shaping Time*)で決まる時間で
電荷パルスを電圧パルスに変換

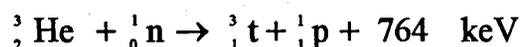
出力パルスの波高値は、エネルギーに関係した値となる

Fig.2 ${}^3\text{He}$ Proportional Counter

中心から r だけ離れた点の電界強度 E は、次の式で表される。

$$E = \frac{V}{r \ln(b/a)}$$

この式から明らかなように電界強度は陽極に近づくほど急激に強くなる。一例として、 $a=0.008\text{cm}$, $b=1.0\text{cm}$ の同心円筒状計数管に2000Vを印加すると、陽極表面の電界強度は $5.18 \times 10^6 \text{ V/m}$ となる。比較のために、これと同じ電界強度を間隔が同じく1.0cmの平行平板状計数管で得るには、約52kVの高電圧が必要である。中性子が比例計数管に入射すると、以下に示す反応



により、荷電粒子である陽子(proton)が生じる。この陽子が、周囲の気体を電離して一次電子を生じる。この一次電子は、電界に沿って移動する間に運動エネルギーを獲得し、陽極付近で別の中性原子を電離して二次電子を生じる。このため、二次三次と電離が行われ、結果として電子の数は鼠算的に増加する。この増幅作用により、電子は陽極に集まり、電荷パルスを発生する。この出力パルスの大きさ(波高)は一次イオンの数、すなわち放射線のエネルギーに関係した値となる。

2.2.2 前置増幅器(プリアンプ)

比例計数管から出力される電荷パルスは、非常に微弱なものであり、ノイズ等の影響を非常に受けやすい。このため、比例計数管の直後に接続したプリアンプにより電荷パルスを積分し、電圧パルスに変換・増幅した信号を比例増幅器に出力する。

プリアンプの時定数は、比例計数管の正電極に出現する電荷を積分する時間に関係している。もし時定数が短すぎると全ての電荷を捕らえることができず、長すぎる場合には雑音が増加する。これらは中性子スペクトルの測定に悪影響を与える。

本実験で用いたプリアンプは、電荷感応型(Charge Sensitive Type)で、オープンループゲイン40000, フィードバック容量 $0.1\mu\text{F}$, Si半導体荷電粒子検出器を使用したときの感度は 300mV/MeV である。

2.2.3 比例増幅器(メインアンプ)

メインアンプはプリアンプからの電気信号をさらに増幅すると共に、波高分析器や記録装置に適合できるようにパルスの波形整形を行う。このため出力パルス波形は入力波形とは異なったものとなるが、その波高値は入力パルス電圧に完全に比例するように設計されている。整形されるパルスの形状は、アンプのシェイピングタイムと呼ばれる定数によって決まる。シェイピングタイムが短いときは高い計数率の時に有利であり、最適な値の時にはパルス波高スペクトルの歪みを少なくすることができる。本実験で用いたメインアンプはシェイピングタイムが 0.5, 1.5, 3.0[μ s]の中から選択可能で、この他ポールゼロ補償回路、BLR:ベースラインレストアラ回路等の補助回路が使用されている。

2.2.4 シングルチャネルアナライザー

メインアンプから出力される電圧パルスの波高は、その1つ1つが入射中性子のエネルギーに対応している。この電圧パルス波高にしきい値を設け、ある特定の波高を持つ信号のみを取り込む働きをする機器が波高分析器である。シングルチャネルアナライザー(SCA)はこの波高分析器の一種で、しきい値であるベース電圧 E (Lower)とウインドウ電圧 ΔE (Window)とがそれぞれ独立に設定できるようになっており、入力パルスの波高値が $E + \Delta E$ の間にある場合に限り、パルスを出力するものである。 ΔE を一定として E を順次変えてゆき、そのつど出力パルスの計数率を見れば入力信号のパルス波高分布が求められる。また、 ΔE を大きくとれば、あるパルス波高領域の信号だけを選択して取り出すことも可能である。本研究で用いたSCAは、T-SCA(タイミナーシングルチャネルアナライザー)と呼ばれるもので、レベル電圧 E 、ウインドウ電圧 ΔE がともに0-10[V]のものである。

2.2.5 タイマー&カウンタ

今回用いたものは、8桁LEDによる表示装置で付属のタイマーにより計測時間の設定ができるようになっている。

2.2.6 高圧電源

比例計数管には、印加電圧の変動が読みに敏感に反応するという欠点がある。今回用いたものは、放射線計測用に特に安定化、低ノイズ化されたものである。この電圧はプリアンプを通して比例計数管に送られる。

2.2.7 NIM

NIM (Nuclear Instrument Module) は、放射線計測におけるシステムの規格化を図ったもので、アメリカの原子力委員会 USAEC により制定された。本研究に用いた計測装置もこの規格に沿っており、メインアンプ及び SCA, 高圧電源, タイマー&カウンタはこの NIM 規格に準拠した標準ビン(容器)に収納され、BNCコネクタによって信号のやりとりをする。

2.2.8 パーソナルコンピューター

本研究で用いたコンピューターは、タイマー&カウンタに接続して中性子カウントの自動計測を行うために使用したもので、日本電気製のPC-9801NOTE/NVである。また、自動計測及びデータ処理に関しては、BASICプログラム“Auto Measurement Program”を使用した。以下に、これらの装置名及び製造元、製品番号を示す。

| 製品名 | 製造元 | 製品番号 |
|------------------------------------|---------------|----------------|
| ^3He Proportional Counter | Reuter-Stokes | RS-P4-0806-207 |
| Pre-Amplifier | EG&G | 142PC |
| Amplifier&T-SCA | EG&G | 590A |
| H.V.Power Supplies | EG&G | 556 |
| Timer&Counter | EG&G | 996 |
| Modular System Bin | EG&G | 4001A |
| Power Supply for NIM Bins | EG&G | 4002DS |
| Personal Computer | NEC | PC-9801NV |

2.2.9 ポリエチレンブロック

固体内核反応における中性子検出で問題となるのは、核融合反応がごくわずかであるため、バックグラウンドとの判断が非常に難しい点である。この問題の解決には

- ・反応効率の上昇
- ・バックグラウンドの低減

が考えられるが、ここでは後者に注目し、宇宙線による中性子バックグラウンドの遮蔽を行った。遮蔽・減速材として、 ^3He 比例計数管を設置した4層立方体形状のポリエチレンブロックを用いた。これをFig.3に示す。このブロックの上段からI, II, III, IVと番号をつけ、中心部のポリエチレンブロックII (PE-II)にはテストセルを収納するための直径140mmの円筒空間を設けた。この様な構造により、外部バックグラウンドの遮蔽と共にセル内で発生した中性子をポリエチレン内部で減速・反射させ、効率よく ^3He 比例計数管が動作すると考えられる。

2.2.9 カドミウムシート

2.2.9で述べたポリエチレンブロックだけではバックグラウンドの遮蔽には不十分と考え、ブロックの周囲全体を大きさ $500 \times 500 \times 1$ [mm]のカドミウムシートを6枚用いて覆った。以前の研究では、これをさらに1.5klのホウ酸水溶液で囲んだが、今回の実験では実験場所の関係からホウ酸水溶液は省いた。さらに実験によってはポリエチレンブロックのみを用いて実験を行った。現在までの報告においては、バースト状の中性子発生がほとんどであるため、遮蔽・減速対策はこれで十分であると考えられる。

2.3 中性子検出効率の算定

2.3.1 中性子源

計測系の校正のため、カリフォルニウム252を中性子源として用いた。このカリフォルニウム252の壊変図をFig.4に示す。カリフォルニウム252から放出される中性子は、その自発核分裂現象によって生じ、エネルギースペクトルのピークが約2MeVであることが知られている。

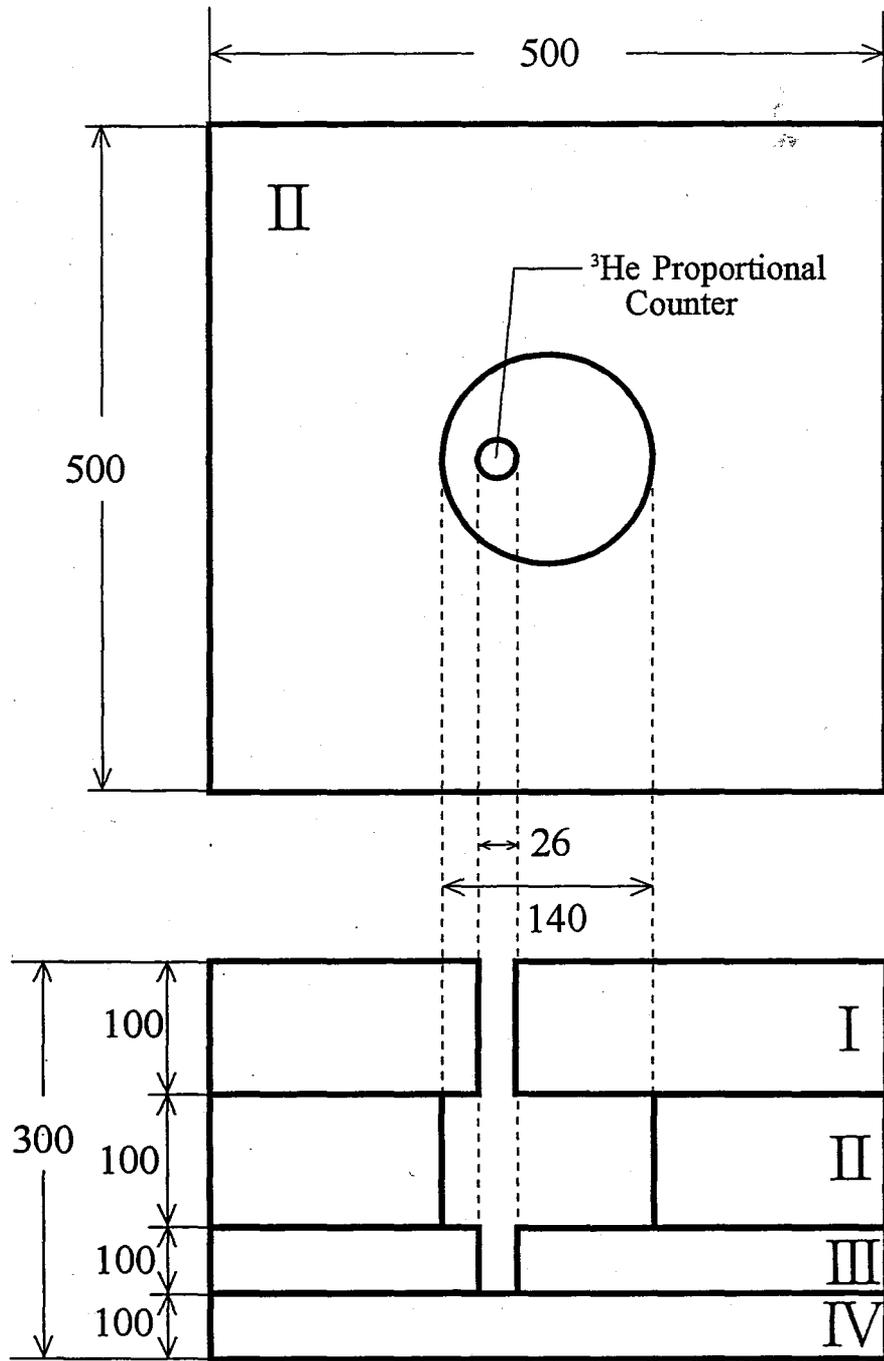


Fig.3 Polyethylene Block

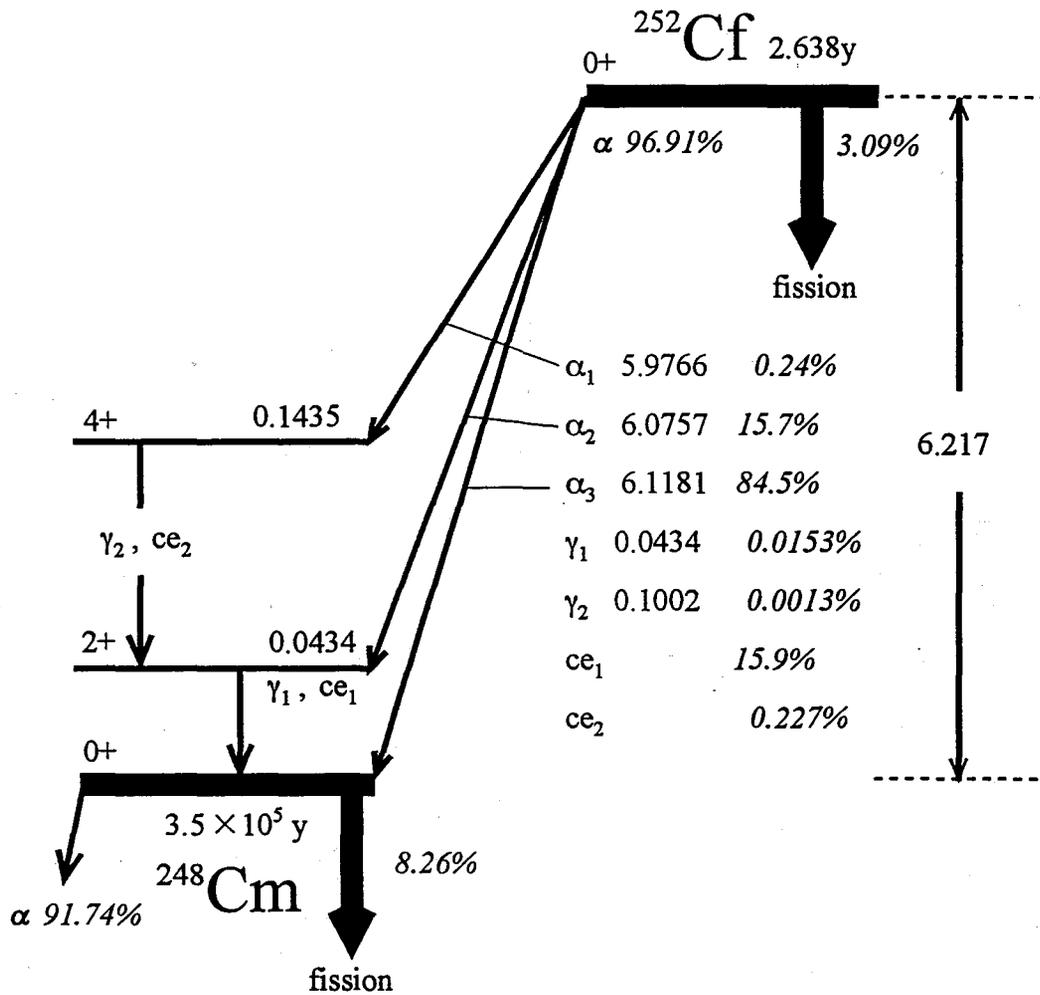


Fig.4 ^{252}Cf Decay Scheme

このエネルギーはd-d反応で生じる中性子のエネルギー(2.45MeV)に近似しており、本実験における中性子計測の較正に適している。計測系の較正に用いたカリフォルニウム252は、0.01 μ g(5 μ Ci)で半減期は2.638年であり、毎秒23000個の中性子を放出する。

2.3.2 計測系のパラメータ設定

適切な中性子検出を行うため、各機器のパラメータは、経験上最も適した値を使用した。³He比例計数管に印加するバイアス電圧は1.15kVを用い、またメインアンプのシェーピングタイムには3.0[μ s]を用いた。これにより測定したパルス波高スペクトルをFig.5に示す。横軸は、電圧パルスの波高、縦軸は1秒当たりのカウント数である。パルス波高が0~1Vの間に大きなピークが見られるが、これには機械的振動などによるノイズ成分も含まれているため、これは約2MeVの中性子によるピークではない。パルス波高のピークが、7.6Vのところにある。これが、カリフォルニウム252の放出中性子のうち、約2MeVのエネルギーを持つものであると考えられる。このピークが、正規分布に従うとして、中心から上下3 σ ずつの幅をとる。このピークの半値幅(FWHM:Full Width at Half Maximum)は、図から0.3Vである。標準偏差 σ は、ピークの半値幅から次式のようになる。

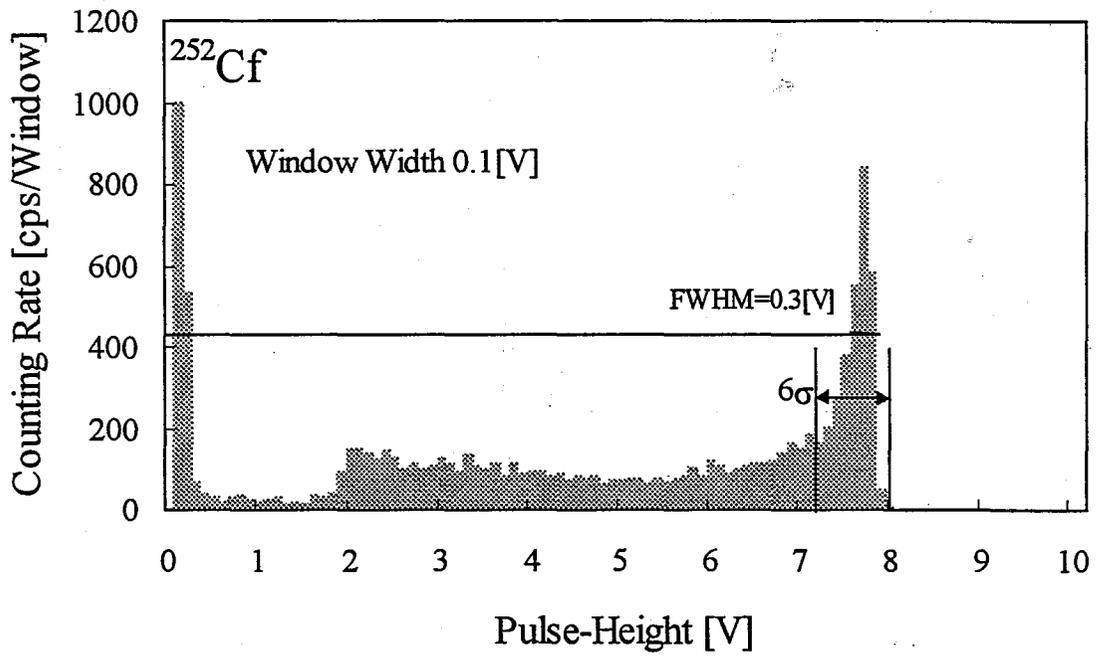
$$\sigma = \text{FWHM}/2.36$$

図より、FWHM=0.3[V]であるから、 $\sigma = 0.127$ となり、6 σ に含まれるパルス波高は、約7.2~8.0Vとなる。従って、本実験でのレベル電圧(しきい値)とwindow幅(上限までの幅)は、それぞれ7.0V,1.0Vに設定し、7.0Vから8.0Vのパルス波高を持つ信号のみの計測としている。

2.3.3 検出効率

Fig.5より、簡単に検出効率を求める。検出器単独の計数効率は、本来検出器のカバーする立体角で較正しなければならないが、ここでは簡単に、6 σ に含まれる計数値を、カリフォルニウム252の毎秒放出中性子数で割ったものとし、これを計数効率とする。

較正に用いたカリフォルニウムは、今年で7年が経過しているため、元の約16%に減少し



| | |
|--------------------|---------------------|
| Bias Voltage | 1150 [V] |
| Gain | 5 |
| Shaping Time | 3.0 [μ s] |
| P.E.Block | I , II , III & IV |
| Pulse Peak | 7.6 [V] |
| FWHM | 0.3 [V] |
| Energy Resolution | 2.67% |
| Standard Deviation | 0.1271 |
| 6σ | $\cong 7.2-8.0$ [V] |

Fig.5 Pulse Height Spectrum of Neutron with ^3He Proportional Counter

ている。従って現在の放出数は、

$$2.3 \times 10^4 \times \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{7}{2.638}} = 2.3 \times 10^4 \times 0.16 = 3680 \text{ 個/秒}$$

計測した中性子数のうち、 6σ に含まれる計数値は、毎分 2880 個すなわち毎秒 48 個であるから検出効率 χ は、

$$\chi = \frac{48}{3.680 \times 10^3} = 1.304 \times 10^{-2} \cong 0.01$$

となり、約 1% と見積もられる。

第3章 γ 線計測系

3.1 固体内核反応と γ 線検出

前章で述べたように、固体内核反応の検証には種々の1次生成物等の測定が不可欠である。 γ 線は、中性子とともに電荷を持たない粒子であり、核反応生成物の代表的な存在である。 γ 線のエネルギースペクトルもまた、核反応の直接証拠であり、データとしての価値が高い。そこで、本研究では中性子計測に加えて γ 線の計測を行った。

3.2 γ 線検出器とその特徴

本研究で用いた γ 線計測系の装置構成をFig.6 に示す。NaIシンチレーションカウンターに γ 線が入射すると、シンチレータと呼ばれる発光体の原子を励起する。これが基底状態に遷移する際、 γ 線強度に比例した光が発生する。この光を光電子増倍管(Photomultiplier)により光電子に変換し、プリアンプ及びメインアンプにより増幅する。増幅された信号は、マルチチャンネルアナライザーにより γ 線のエネルギーに対応したチャンネルごとに振り分けられる。この γ 線信号をコンピューターにより処理し、自動計測及びデータの記録を行う。以下、各機器についてそれぞれ説明する。

3.2.1 NaIシンチレーションカウンター

本研究で用いた γ 線検出器は、タリウム(Tl)で活性化したヨウ化ナトリウム(NaI)を発光体としたNaIシンチレーションカウンターであり、放射線の発光作用を利用した検出器である。このカウンターには、シンチレータ(発光体)、光電子増倍管、プリアンプ、及び光電子増倍管に電圧を供給する高圧電源が組み込まれている。ここでは、シンチレータ及び光電子増倍管について述べ、残りの機器については節を改めて述べることとする。

まず、シンチレータの発光機構について述べる。 γ 線が発光体のNaI単結晶に入射すると、青白い蛍光を発する。これは、 γ 線によって励起された原子がもとの基底状態に戻る際に軌道準位の差に相当するエネルギーを光として放出するからである。物質を高温に加熱し

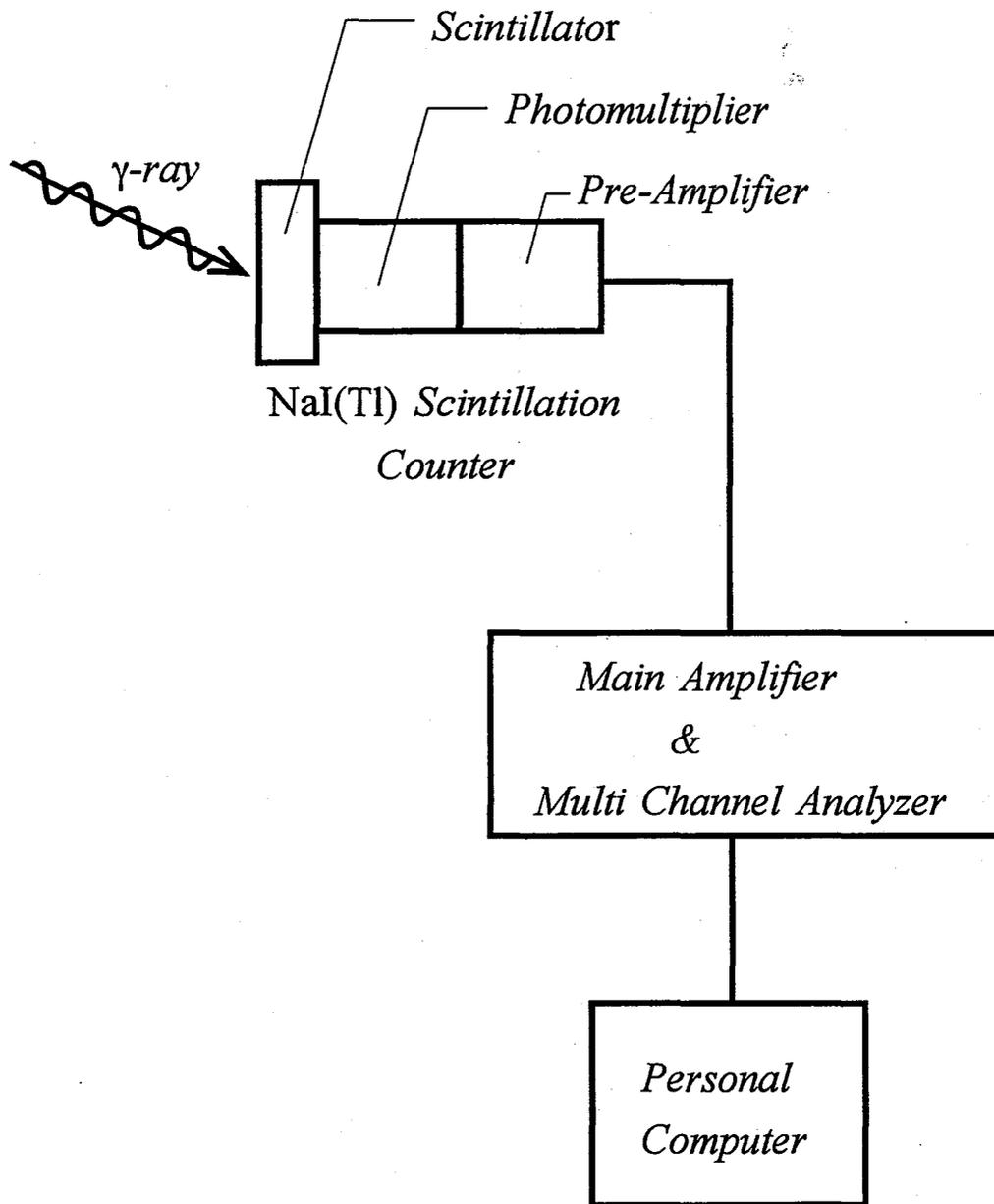


Fig. 6 Gamma-ray counting system

た際の発光現象を熱放射と呼ぶのに対し、熱を伴わない発光現象をルミネッセンスと呼ぶ。放射線による発光現象もまたルミネッセンスの一種であり、とりわけこの場合はシンチレーションと呼ばれる。シンチレータには、固体、液体、気体など多数の種類があるが、計測に用いるためにはいくつかの条件が存在する。この条件を以下に示す。

1. 放射線エネルギーの蛍光への変換効率(蛍光効率)が高い。
2. 蛍光に対する透明度が高い。
3. 蛍光の減衰時間が短い。
4. 蛍光の波長分布が光電子増倍管の分光感度特性に適合している。

本研究で用いたシンチレータのヨウ化ナトリウム(NaI)は、発光効率が230%と高く、減衰時間が230nsと短い。また、 γ 線測定のためには密度が大きいことが必要であるが、固体であるため密度は 3.67g/cm^3 と大きく、計測に適している。

次に、光電子増倍管について述べる。本研究で用いた光電子増倍管は、光電子放出面と、9段の二次電子放出面(ダイノード)から構成されている。光電子放出面は実効直径67mm、スペクトル範囲は310-650nmである。ダイノードの材質は、Sb-Cs合金であるため、低エネルギーの一次電子でより多くの二次電子放出を行うことが可能である。増倍度は、バイアス電圧600Vの場合で 10^4 倍程度である。以下に、NaIシンチレーションカウンタの特性を示す。

- ・ γ 線に対する検出効率がGeiger-Mueller計数管の10-100倍と高く、検出範囲が広い。
- ・動作が安定している。
- ・検出器の寸法が比較的小さい。
- ・シンチレーターの減衰時間が短いため、分解時間が短い。
- ・シンチレーターに付属する光電子増倍管は、印加電圧の影響を受けやすい。
- ・外部磁界によるノイズの影響を受けやすい。

3.2.2 前置増幅器(プリアンプ)

光電子増倍管から出力される信号を増幅するプリアンプは、電荷感応型 (Charge Sensitive Type) のものであり、低ノイズで高利得の帰還型演算増幅器、積分回路から構成されている。光電子増倍管の第10ダイノードから出力される電荷パルスを経路により積分し、電圧パルスに変換する。続いてこの電圧パルスを演算増幅器により増幅し、メインアンプに出力する。このプリアンプの特性に関する表を以下に示す。

| | |
|------------|-------------------------------------|
| 出力信号の極性 | 陽極 |
| 出力信号立上り時定数 | <100ns |
| 出力信号減衰時定数 | 50 μ s |
| 出力ノイズ | 実効値で300 μ V以下である。 |
| 利得 | 1 μ V/eV または6 μ V/eV どちらか選択 |

3.2.3 主増幅器(メインアンプ)

本研究で用いたメインアンプは、マルチチャンネルアナライザと共に、ボードに内蔵されており、パーソナルコンピュータのバスに組み込まれている。メインアンプは、プリアンプから出力された信号をさらに増幅し、また波高分析器や記録装置に適合できるように電圧パルスの波形を整える。整形されるパルスの形状は、2.2.3でも述べたようにアンプのシェイピングタイムによって決定付けられる。このアンプでは、シェイピングタイムが3.5 μ sに設定されており、これがNaIシンチレーションカウンターとの併用に最も適した値となっている。また、アンプの利得は、コンピュータにより5倍-25倍の間で設定が可能となっている。

3.2.4 波高分析器

本研究で用いた波高分析器は、マルチチャンネルアナライザ(MCA)である。2.2.4において、単一のエネルギー信号のみを弁別するシングルチャンネルアナライザについて述べ

たが、マルチチャンネルアナライザーでは複数のチャンネルで同時に波高を分析できるため、放射線の持つさまざまなエネルギーを特定することが可能になる。

MCAは、Wilkinson型ADコンバータ、および多数の補助回路から構成されている。チャンネル数は、512もしくは2048をコンピュータからの操作により選択できるようになっており、メインアンプから電圧パルスが次々と到来すると、その波高値に従って相隣り合う多数のチャンネルに弁別して同時に計数し、その値を各チャンネルのメモリに記憶する。AD変換を行うのに要する時間は、512channelにおいて7 μ s以下、2048channelにおいて30 μ s以下である。不感時間を補正する方法として、Gedcke-Hale法が用いられている。

3.2.5 高圧電源

光電子増倍管にバイアス電圧を供給する高圧電源は、DC 12VをDC1100Vに変換するDC-DCコンバータを用いている。装置は、発振回路、変圧器、コッククロフトーウォルトン昇圧回路、出力フィルタ、帰還ループ、電圧安定回路から成っている。高圧電源は、光電面-収束電極、収束電極-第1ダイノード、第1ダイノード-第2ダイノード、…、第10ダイノード-陽極の12区間に、印加電圧の1/12をそれぞれ分配する。高い計数率の際には、第8,9,10ダイノードにかかる電圧はトランジスタにより安定化される。光電子増倍管に供給するバイアス電圧は、D.C.600Vから1100Vの間で設定が可能である。この高圧電源の特徴を以下に示す。

- ・寸法が小さいため、限られた計測空間での使用が可能である。
- ・消費電力が極めて低い (240mW)
- ・信号線及びバイアス電圧供給線が、一本の同軸ケーブルにまとまっているので、煩雑な配線作業が不要である。

3.2.6 パーソナルコンピューター

本計測で用いたパーソナルコンピュータは、MCAの各チャンネルに記憶された情報をモニターに表示し、自動計測を行うために使用したもので、プロサイド社製 PC/AT互換機

Aries3 PLUSである。

また、自動計測及びスペクトルデータ処理に関しては、EG&G製プログラム”MAESTRO”を使用した。

以下に、これらの装置名及び製造元、製品番号を示す。

| 装置名 | 製造元 | 製品番号 |
|--|-------------------------------|-------------|
| NaI Scintillation Counter | THORN EMI Electron Tubes Ltd. | 9265B53 |
| PMT Base with Preamplifier and H.V. Supply | EG&G ORTEC | 296 |
| Amplifier and MCA | EG&G ORTEC | μACE |
| Personal Computer | Proside | Aries3 PLUS |

3.3 γ 線計測系の校正

3.3.1 γ 線源

計測系の校正のため、セシウム137を線源として用いた。このセシウム137の壊変図をFig.7に示す。壊変図から、 ^{137}Cs は、最初に β 崩壊して準安定核種の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ に変化する。この $^{137\text{m}}\text{Ba}$ は、半減期2.552分でより安定な ^{137}Ba に変化するが、この際に約661keVのエネルギーを持つ γ 線を放出する。この γ 線を計測することにより、エネルギー校正を行った。

3.3.2 計測系のパラメータ設定

適切な γ 線検出を行うため、各機器のパラメータは、以下のように設定した。

| | |
|------------------|-------------------|
| バイアス電圧 | 600V |
| メインアンプのシェイピングタイム | 3.5 μs |
| MCAのチャンネル数 | 2048 |

3.3.3 エネルギー校正結果

セシウム137を用いた校正により、1チャンネルあたりの幅を約4keVとし、これより測定範囲は0-8MeVであることを確認した。

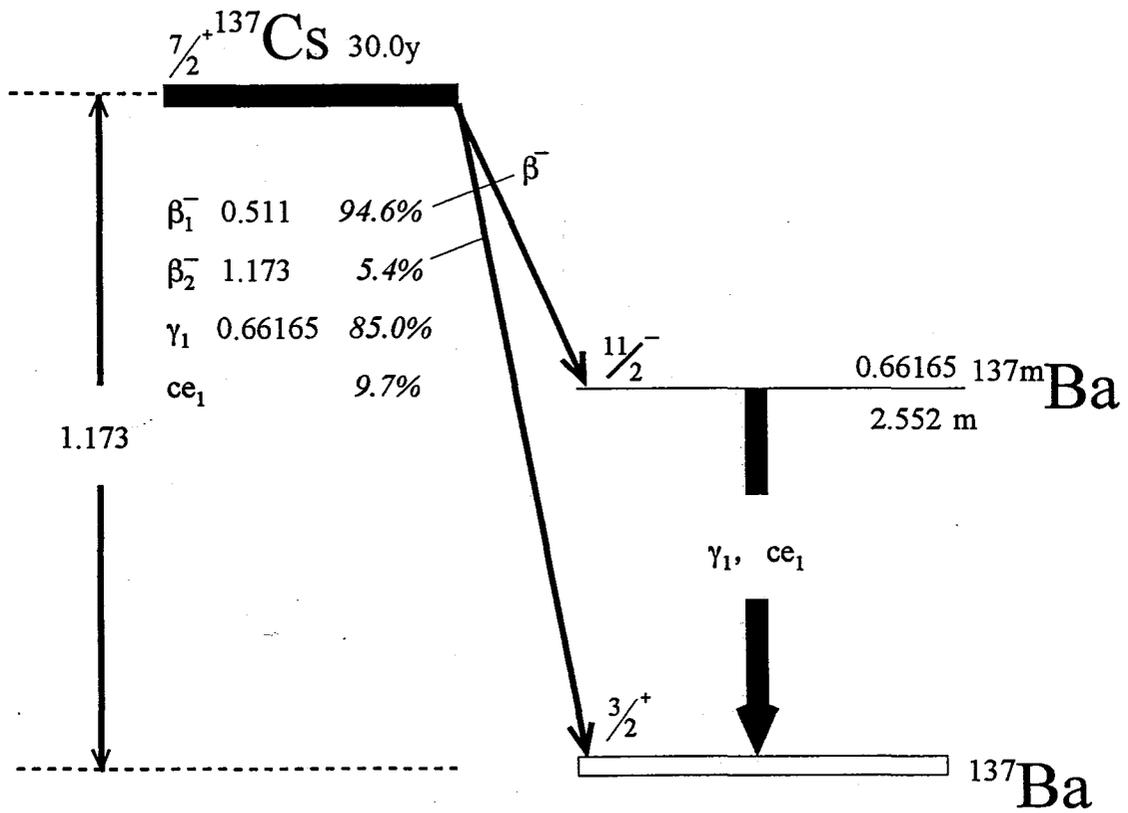


Fig.7 ^{137}Cs Decay Scheme

第4章 試料

4.1 試料の種類

本研究では、中性子計測実験、屋外実験、低気圧グロー実験の3種類の実験を行ったが、その場合に用いた試料の種類を以下の表に示す。

| 実験方法 | 材質 | 形状 | 吸蔵気体 |
|----------|-------|----|-----------|
| 中性子計測実験 | パラジウム | 針状 | 重水素 |
| 屋外実験 | パラジウム | 針状 | 重水素または軽水素 |
| 低気圧グロー実験 | パラジウム | 板状 | 重水素 |

4.2 試料の作成

実験に用いたパラジウム針試料は、長さ 30mm に切断した直径 0.5mm のパラジウム線を、研磨紙を用いて針状に研磨する。また、パラジウム板試料については、厚さ 0.1mm のパラジウム板から直径約 10mm の円盤を切り出す。切断の際の汚染を避けるため、刃がセラミック製のハサミを使用した。本研究で用いた材料について以下に示す。

針： パラジウム線 $\phi 0.5\text{mm} \times 100\text{cm}$ (純度 99.95%)

板： パラジウム板 $0.1 \times 50 \times 50\text{mm}$ (純度 99.95%)

共に (株)ニラコ 製

4.3 試料表面の洗浄

本研究では実験試行後の電極試料について表面分析を行うため、実験試行前の試料表面は清浄にしておく必要がある。様々な表面処理法が知られているが、今回は王水洗浄法によって表面洗浄を行った。王水は、濃塩酸と濃硝酸を体積比 3:1 で混合した液体

であり、最も酸化されにくい金や白金をも溶かすことができる。この王水に、作成した試料を浸して約 20 秒程度放置する。その後、純水で良くすすぎ、付着した王水を除去する。純水から試料を取り出し、十分に乾燥させる。王水の材料について以下に示す。

硝酸： 35.0-36.0% 原子吸光分析用

塩酸： 60 -61% 原子吸光分析用

共に関東化学(株) 製

4.4 アニーリング

本研究で用いたパラジウム線、パラジウム板は押し出し成形、プレス加工された物であるため、原子レベルでかなりの構造的不均質性が生じているものと考えられる。この状態では、パラジウムに十分な量の重水素を吸蔵させるのは困難と考え、前処理として真空中でアニーリング(焼鈍)を行うこととした。その際に用いた装置を Fig.8 に示す。アニーリング装置は、電気炉、油回転真空ポンプ、ピラニ真空計、重水素ガスボンベ、そしてこれらを繋ぐガラス管により構成される。パラジウムは、電気炉に挿入された石英ガラス管内で真空脱気を始めてから1時間後($\sim 10^{-3}$ Torr)に、800℃で3時間加熱する。その後電気炉を0℃に設定し、脱気をしながら 8-10 時間をかけて自然冷却する。この処理により、結晶構造を整えると共に内部の吸蔵気体を取り除く。石英ガラス管より取り出したパラジウム試料は、吸蔵率算定のために質量を測定した。

4.5 ガス吸蔵

アニーリングを終えた試料には、重水素(もしくは軽水素)ガスを吸蔵させる。この際に用いるガス吸蔵装置を Fig.9 に示す。ガス吸蔵装置は、油回転真空ポンプ、油拡散ポンプ、電離真空計、デジタル圧力計、重水素(軽水素)ガスボンベ、そしてこれらを繋ぐステンレスパイプにより構成される。吸蔵装置のステンレスセルからの汚染を避けるために、試

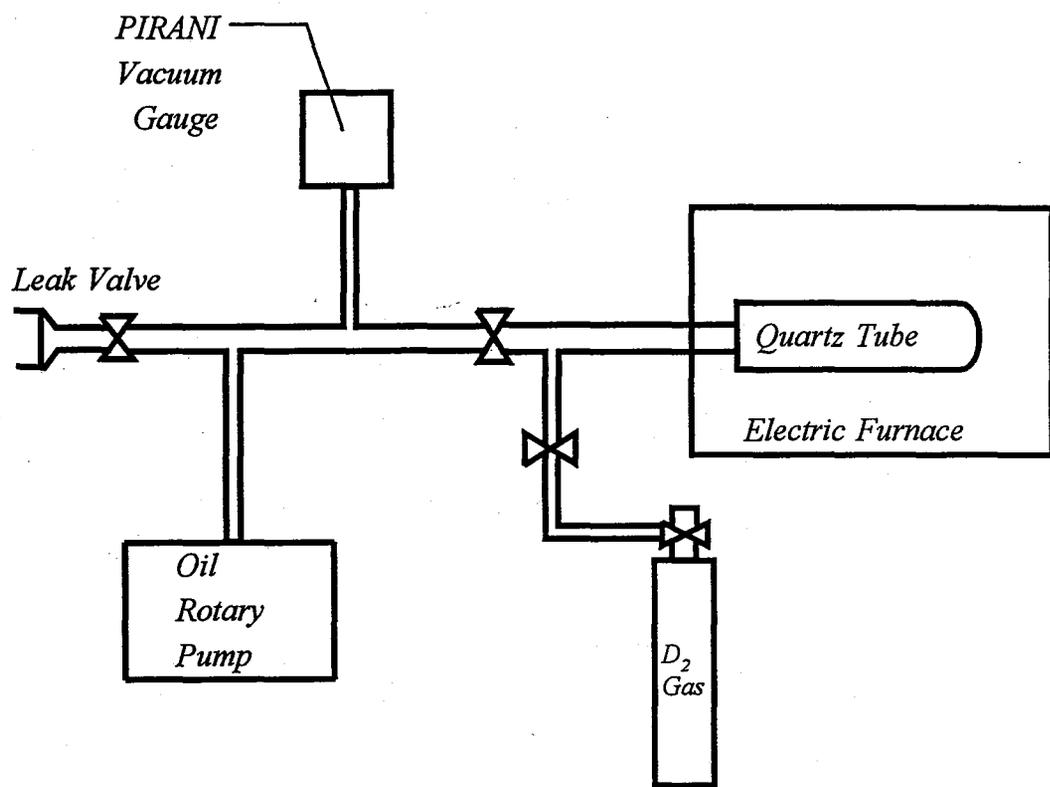


Fig.8 Annealing System

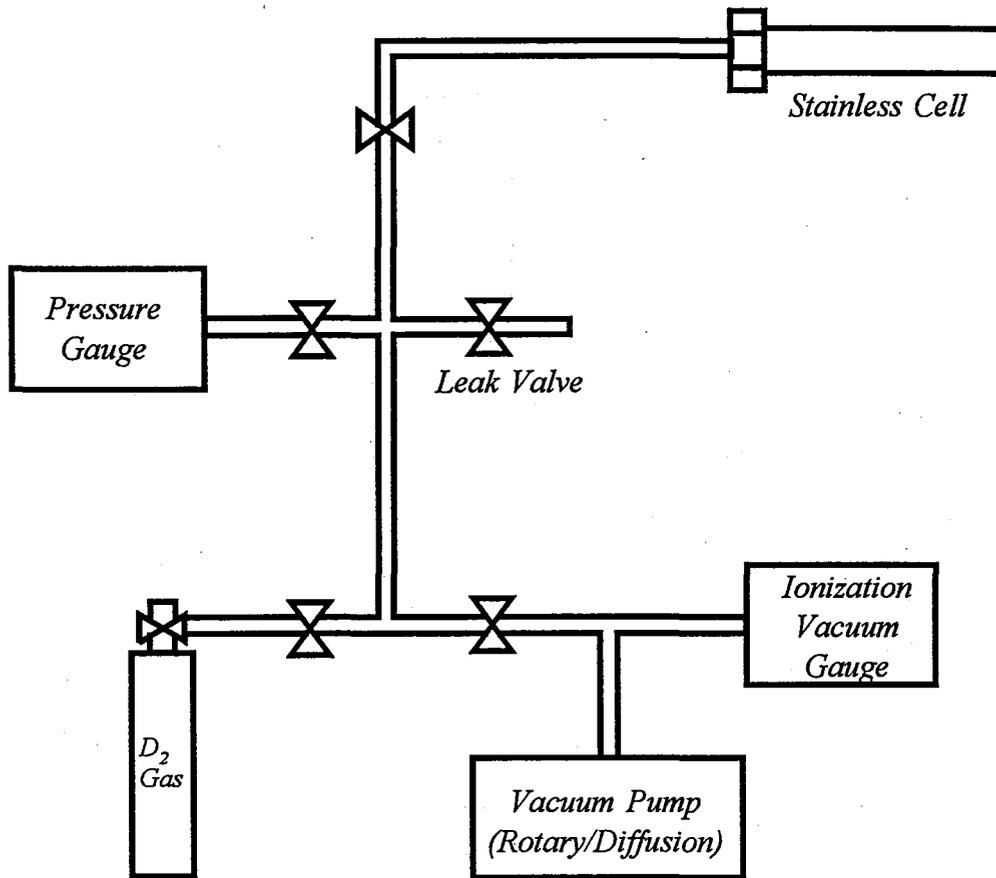


Fig.9 Gas Loading System

料は、メタノール及びアセトンで内部を洗浄した直径 18mm のサンプル管瓶にまとめて収められる。これをステンレスセル内に配置し、テフロン製のパッキンを用いて密閉する。油回転真空ポンプ及び油拡散ポンプにより、ステンレスセル内を約 1 時間(10^{-5} torr)まで真空引きした後、約 6 気圧の重水素(軽水素)ガスを封入し、約 24-100 時間の間でパラジウム試料に重水素を吸蔵させる。

4.6 吸蔵率の算定

吸蔵前後の質量差から、パラジウム試料内部に取り込まれた重水素(軽水素)の質量を測定した。吸蔵前の質量と差分から、パラジウムと重水素(軽水素)の原子個数比 D/Pd (H/Pd)を計算し、この量を吸蔵率とした。以下に、吸蔵率の算出に用いた式を示す。

パラジウムの質量数 $M_{Pd}=106.4$,吸蔵前の質量: M_{before} ,吸蔵後の質量: M_{after}

重水素ガスの場合: D の質量数 $M_D=2.0141$ より

$$\begin{aligned} \text{吸蔵率 } D/Pd &= (M_D / M_{Pd}) \times (M_{after} - M_{before}) / M_{before} \\ &= 52.8276 \times (M_{after} - M_{before}) / M_{before} \end{aligned}$$

軽水素ガスの場合: H の質量数 $M_H=1.0078$ より

$$\begin{aligned} \text{吸蔵率 } H/Pd &= (M_H / M_{Pd}) \times (M_{after} - M_{before}) / M_{before} \\ &= 105.5765 \times (M_{after} - M_{before}) / M_{before} \end{aligned}$$

第5章 パラジウム針電極を用いたグロー放電法

5.1 加圧グロー放電による中性子計測

5.1.1 テストセル

本実験で用いたテストセルを、Fig.10に示す。このテストセルの特徴は、容器及びふたの部分がステンレス製であり、相互をボルトによって密閉するため真空漏れが極めて少なく、またガスを封入する際の気密性に優れているという点にある。テストセルは、封入容器と真空バルブ、及び電極ホルダから構成され、加圧・真空の両状態ともに耐え得る。セル上部には、電極ホルダが設置されており、電極間隙はネジにより可変である。高電圧を印加するため、電極部分は容器と接触しないようガラス管により絶縁してある。電極構成は、電極ホルダ先端に取り付けたパラジウム針を陽極、セルの底面及び内壁を陰極とした針対平板電極である。

テストセルの仕様を以下に示す。

| | |
|-------|-------------------------------|
| 容量 | 35cc |
| 電極数 | 2 |
| 真空バルブ | 1 Swagelock社 製 ボールバルブ SS-1GS4 |
| 材質 | SUS304 ステンレス鋼 |

5.1.2 バックグラウンドレベル

実験結果との比較検討のため、自然界に存在するバックグラウンド中性子及び γ 線の測定を行った。バックグラウンド中性子計測データのうち代表的なものをFig.11、Fig.12に示す。合計2300時間以上に渡って計測されたバックグラウンド中性子計測データにおいて、カウント数に大きな変動は見られなかった。測定結果から、平均バックグラウンド中性子数は1時間当たり約9.38個であった。次に、バックグラウンド γ 線計測データのうち代表的なものをFig.13、Fig.14に示す。全てのバックグラウンドデー

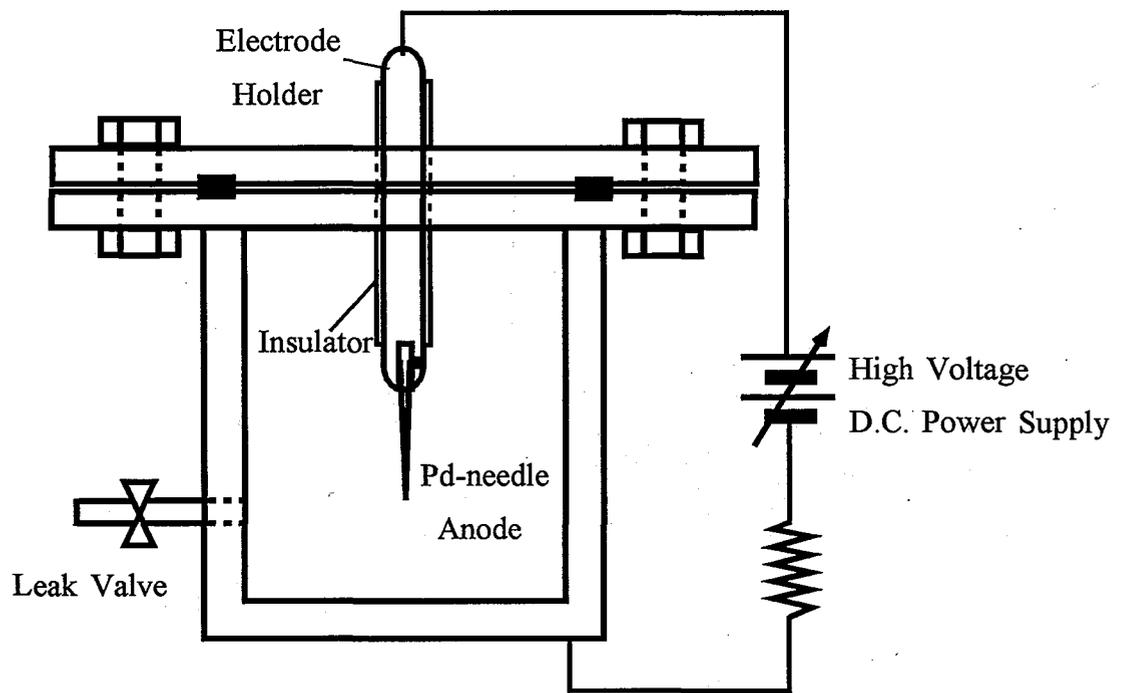
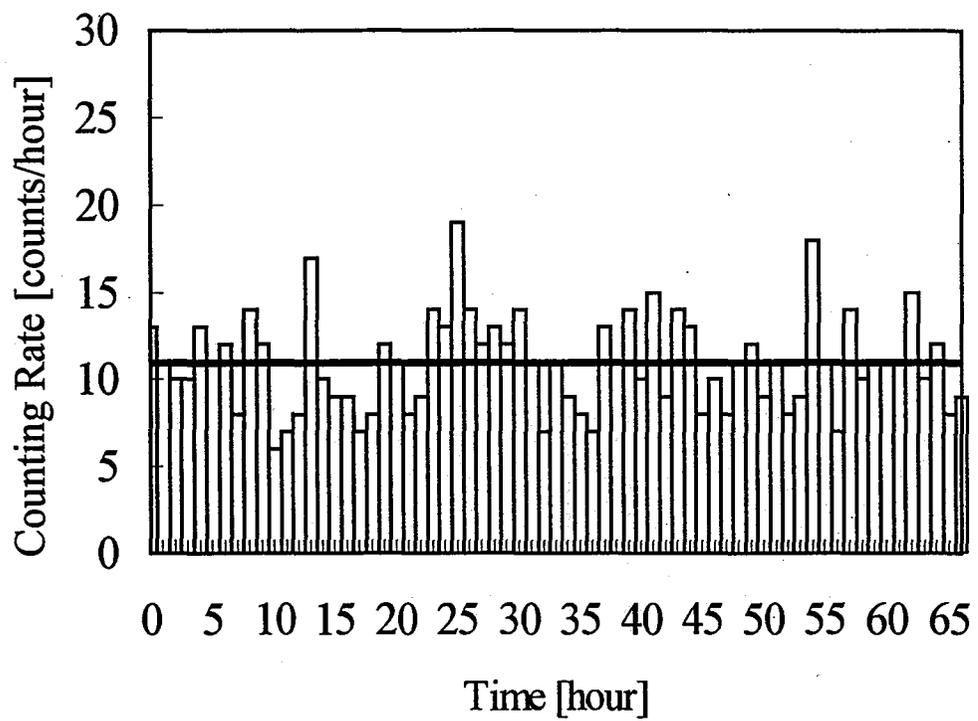
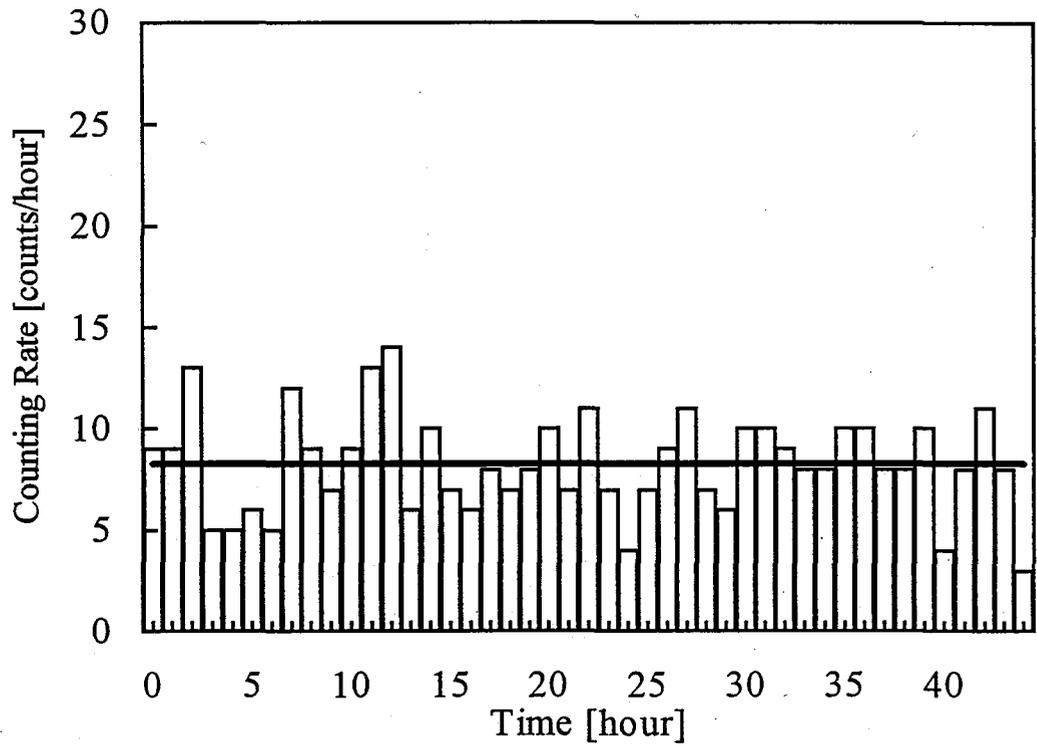


Fig. 10 Test cell (Stainless steel)



| Method | Background |
|----------------|------------|
| Lower Level | 7.0 [V] |
| Window Voltage | 1.0 [V] |
| Average | 10.9 [c/h] |

Fig. 11 Time dependence of neutron counts with a Pd-needle in D₂ gas



| Method | Background |
|----------------|------------|
| Lower Level | 7.0 [V] |
| Window Voltage | 1.0 [V] |
| Average | 8.27 [c/h] |

Fig. 12 Time dependence of neutron counts with a Pd-needle in D₂ gas

Background

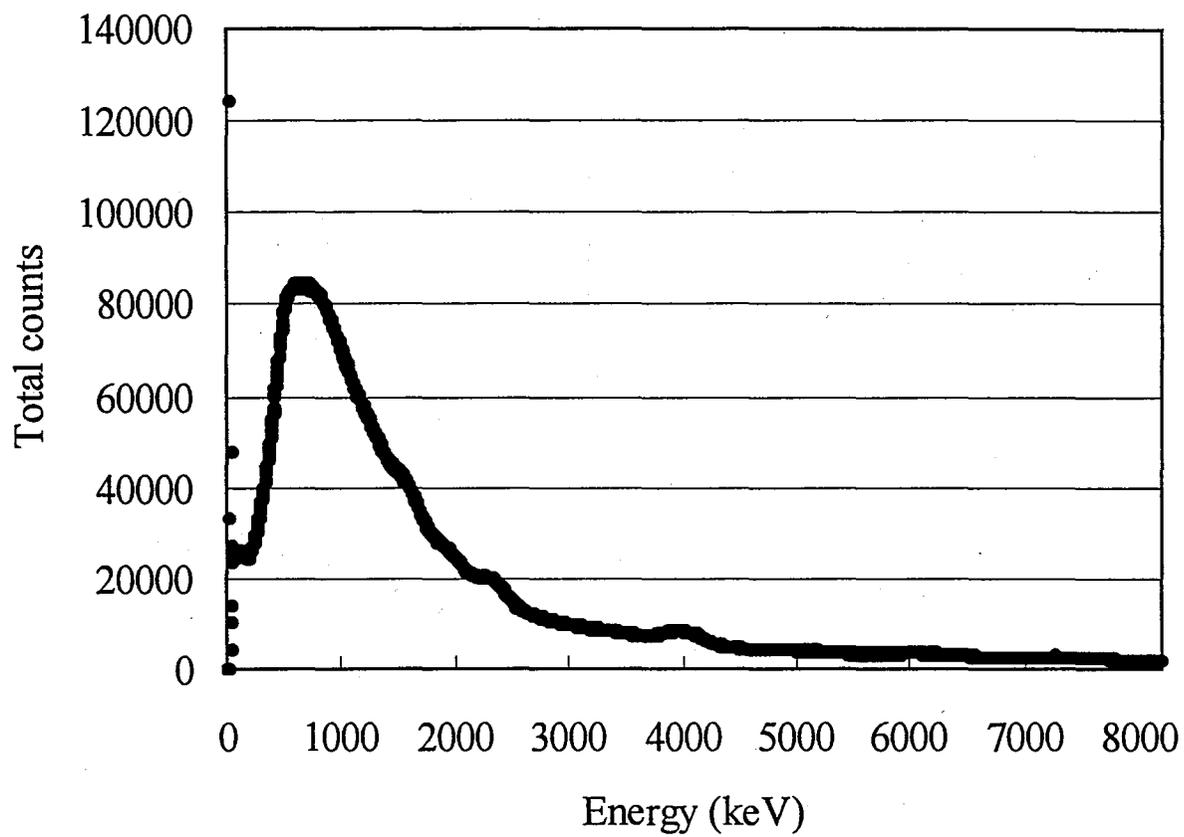


Fig.13 The Spectrum of Background Gamma-Ray (54 hours)

Background

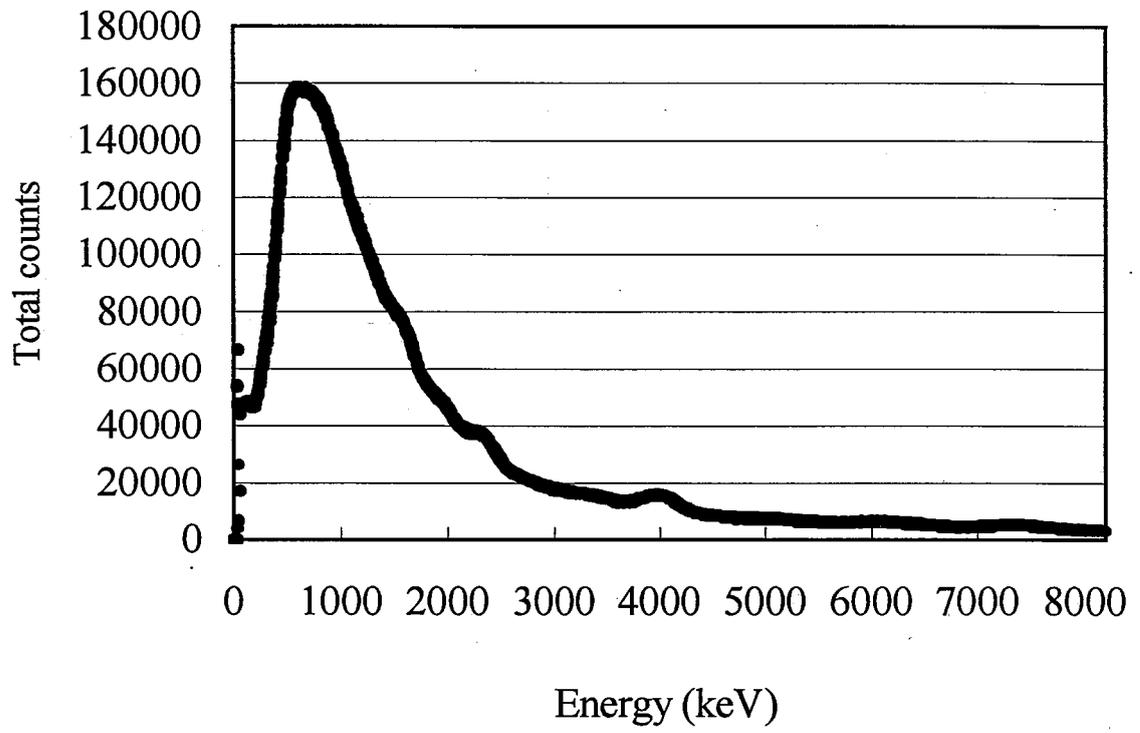


Fig.14 The Spectrum of Background Gamma-Ray (100 hours)

タにおいて、600keV,4MeV付近に大きなピークが見られる傾向があり、エネルギースペクトルについては総じて類似したものが得られた。これらのデータにより、実験データとの比較検討を進めた。

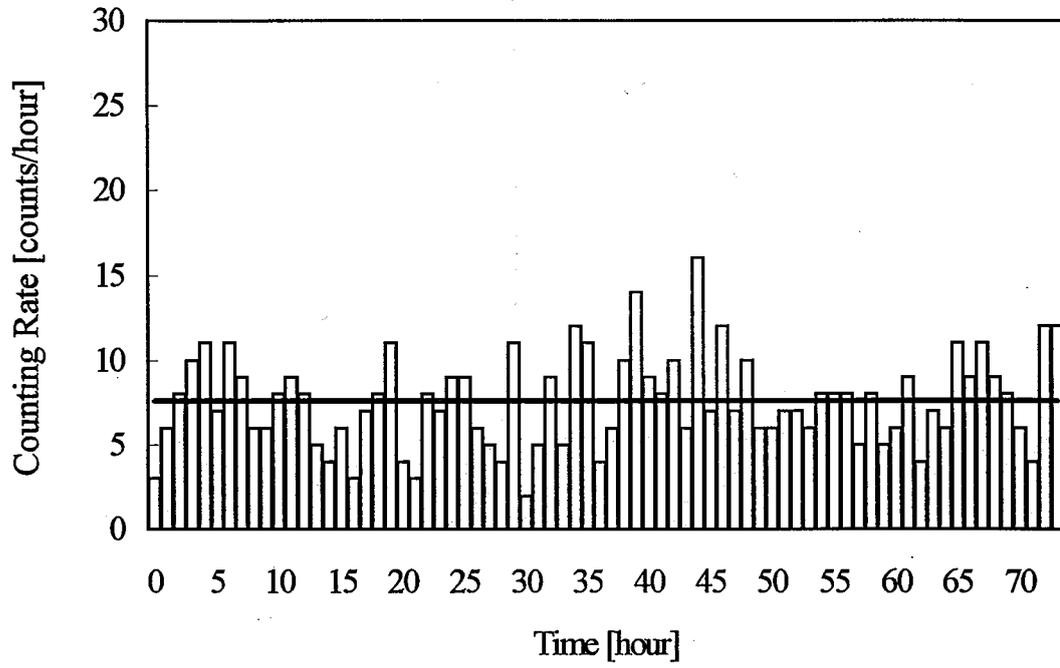
5.1.3 実験方法及び結果

前処理を経たパラジウム針電極を、Fig.10のテストセル内部の電極ホルダに取り付け、電極間隙が約10mmとなるように針電極の位置をネジで固定する。続いてテストセル内部を 10^{-2} torr程度まで脱気し、重水素ガスを2気圧で24時間封入する。直ちに電極間に4-8kVの直流電圧を印加し、グローコロナ放電を形成し、重水素吸蔵パラジウムに変動を与えて、内部の重水素の拡散を促進した。この際、電極間に流れるアース電流は数 μ A程度であった。電圧の印加と同時に、中性子計測(2.2参照)及び γ 線計測(3.2参照)を開始する。電圧印加と計測は、1回の試行につき24-100時間の間で行った。全試行回数は59回、中性子計測については全ての試行について行い、 γ 線については14回の試行で計測を行った。

まず、中性子計測の結果について代表的なデータをFig.15からFig17に示す。グラフは、横軸が時間、縦軸が1時間当たりの中性子計測数となっており、中太線は平均カウント数を示す。グラフの下には、上から順に、実験方法、試料の吸蔵率、封入ガスの種類、試料の極性、印加電圧、そして1時間当たりの平均計数率を示す。

Fig.15は、吸蔵率0.31のパラジウム試料を用いて行った実験結果である。実験開始から約45時間経過した所に若干高いカウントが見られるが、これはバックグラウンドの変動によるものと考えられる。Fig.16は、吸蔵率0.64の試料を用いて約168時間の計測を行ったものである。計測系は100時間以上計測不能であるため、図中の平均カウント数については100時間経過した時点での値である。全168時間の計測における平均計数率を計算したところ、1時間当たり6.28カウントとなり、図中の平均カウントと大差が見られなかった。Fig.17は、吸蔵率0.29の試料を用いて行った実験である。以

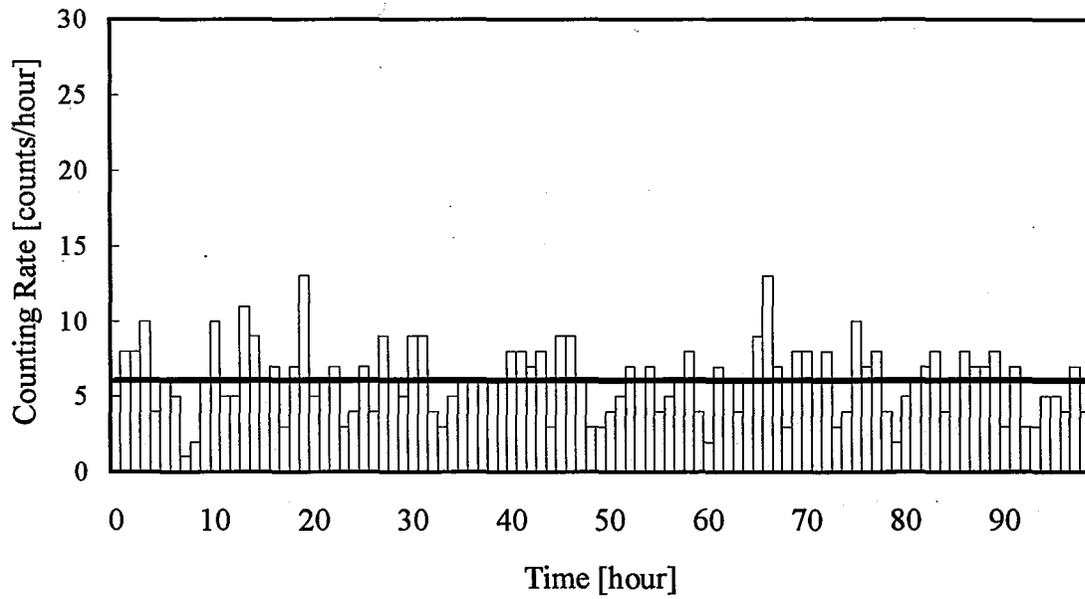
97G02



| | |
|----------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.31 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 4.0 [kV] |
| Average | 7.61 [counts/hour] |

Fig. 15 Time dependence of neutron counts with a Pd-needle in D₂ gas

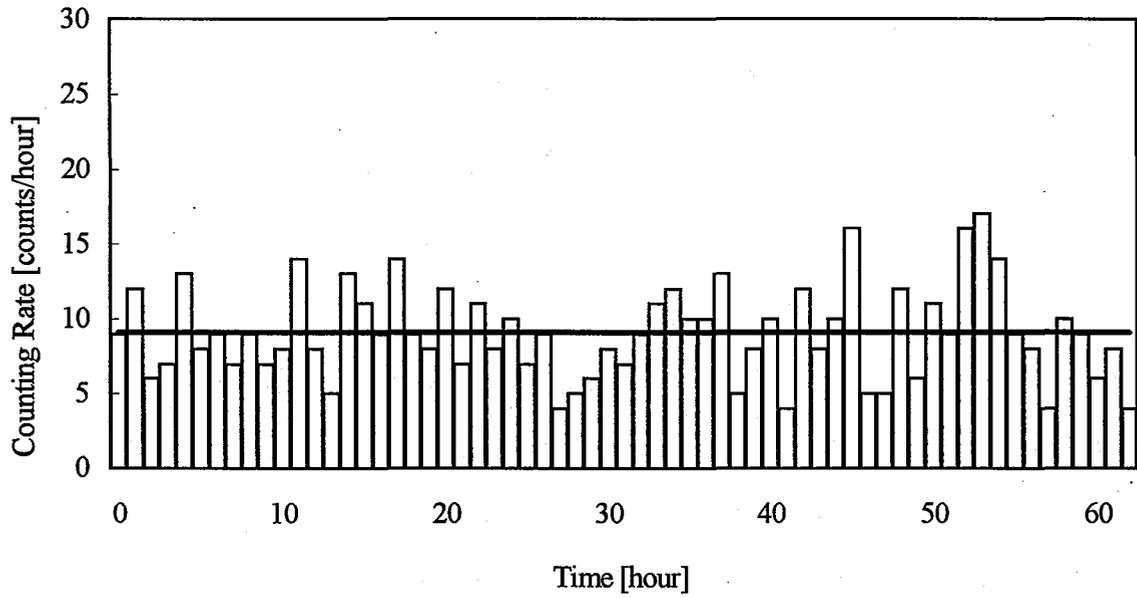
96G026



| | |
|----------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.64 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 4.0 [kV] |
| Average | 6.05 [counts/hour] |

Fig. 16 Time dependence of neutron counts with a Pd-needle in D₂ gas

97G10



| | |
|----------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.29 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 2.0-4.0 [kV] |
| Average | 9.06 [counts/hour] |

Fig. 17 Time dependence of neutron counts with a Pd-needle in D₂ gas

前の研究において、過剰中性子の放出が冬季に行った実験において多く見られたということがあった。その条件に近付けるため、ガスを封入したテストセルを冷凍庫に24時間保管して冷却した後に行ったのが本実験である。電圧は、結露による影響を考慮して、はじめ2kVを印加し、その後4kVに増加させた。平均カウント数は、9.06カウントとなり、実験データの中では僅かに高くなったが、バックグラウンドと比較してみると大きな差は見られない。

次に、 γ 線計測の代表的な実験結果をFig.18からFig.20に示す。グラフにおいて、横軸は γ 線のエネルギー(keV)、縦軸は実験計測時間における累積カウント数を示している。グラフの下には、上から順に、実験方法、試料の吸蔵率、封入ガスの種類、試料の極性、印加電圧、そして総計測時間を示す。

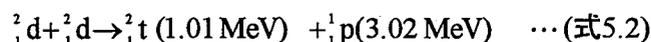
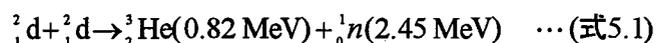
Fig.18は、吸蔵率0.31のパラジウム試料を用いて、Fig.15に示す中性子計測と同時に行った実験結果である。電圧の印加と計測は74時間行ったが、バックグラウンドとの顕著な違いは見られない。Fig.19は、比較的高い吸蔵率0.68の試料を用いて48時間の計測を行ったものである。バックグラウンドとの相違は見られない。Fig.20は、低い吸蔵率0.07の試料を用いて99時間の計測を行った実験である。バックグラウンドと比較してみると大きな差は見られない。

このように、加圧グロー放電においては、どのデータからもバックグラウンドとの相違は見られなかった。

5.2 捕獲中性子触媒核融合(TNCF)モデル検証実験

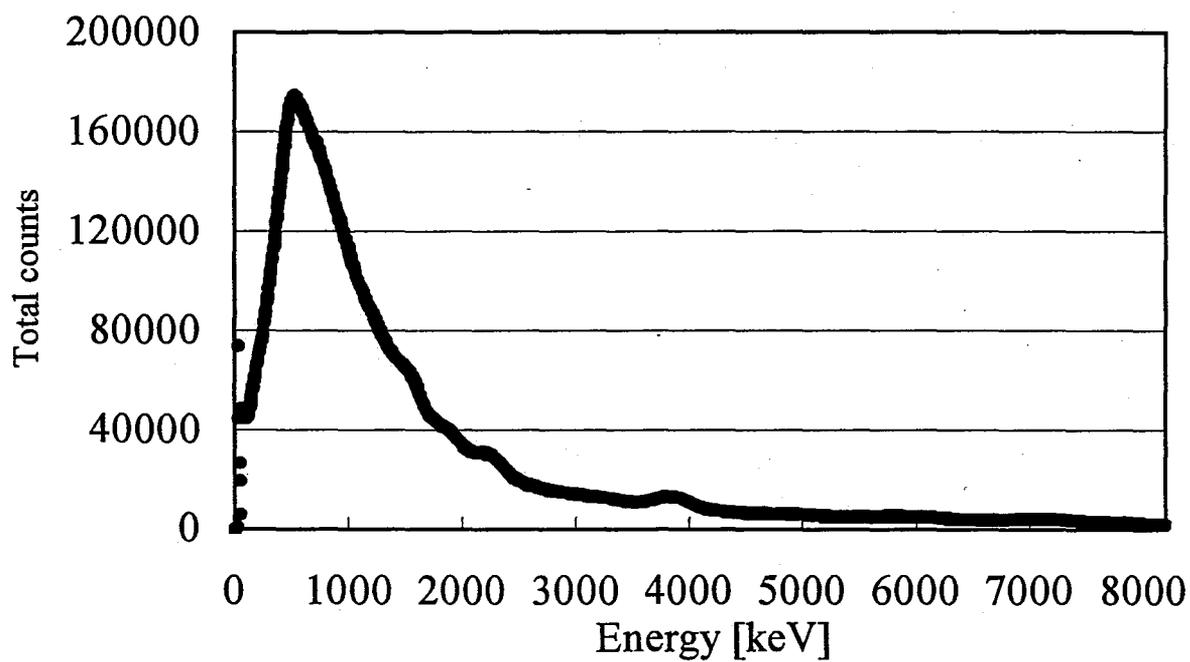
5.2.1 捕獲中性子核融合モデル

従来の原子核物理学では、重陽子同士の融合反応は、次式



のように考えられ、この2つの反応分岐割合は理論上1:1である。しかし、固体内核反応においてこれらの反応の再現性は低く、また起こった場合でもトリチウムが中性

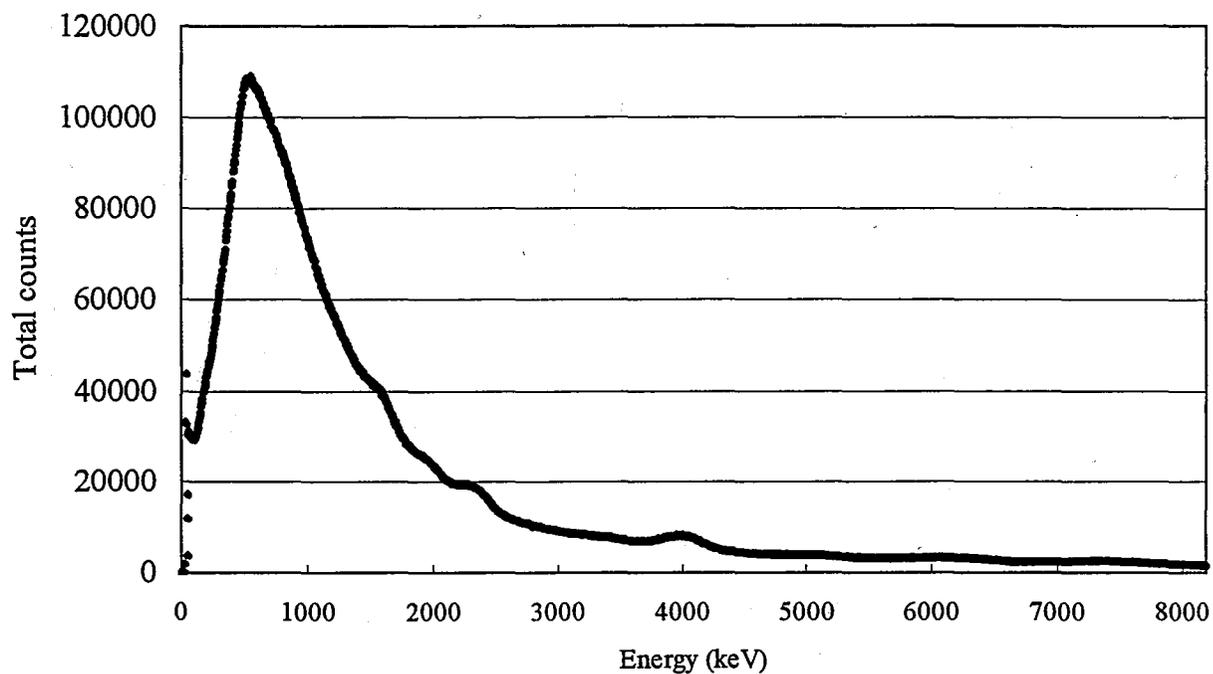
97G02



| | |
|------------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.31 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 4.0 [kV] |
| Total Measurement Time | 74 hours |

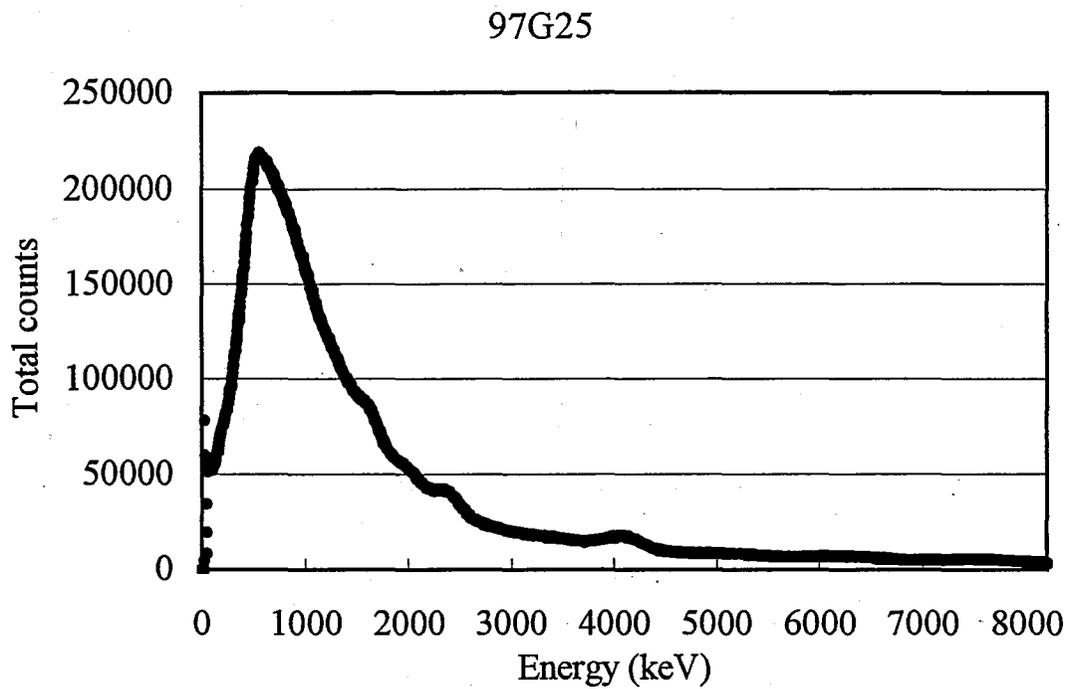
Fig.18 Gamma-Ray Spectrum with a Pd-needle in D₂ gas

96G024



| | |
|------------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.68 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 4.0 [kV] |
| Total Measurement Time | 48 hours |

Fig.19 Gamma-Ray Spectrum with a Pd-needle in D₂ gas



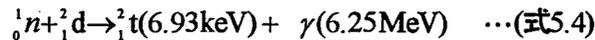
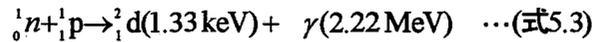
| | |
|------------------------|-----------------------|
| Method | Glow Corona Discharge |
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.07 |
| Working Gas | D ₂ |
| Anode | Pd-needle |
| Cathode | Stainless |
| Voltage | 4.0 [kV] |
| Total Measurement Time | 99 hours |

Fig.20 Gamma-Ray Spectrum with a Pd-needle in D₂ gas

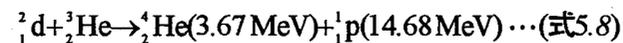
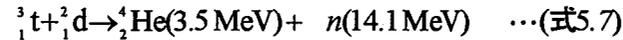
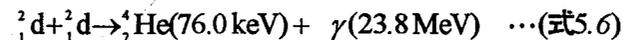
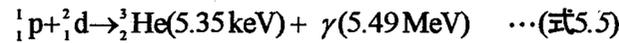
子に比べて 10^5 - 10^6 倍も多く生成されるという報告(トリチウム異常)や、トリチウムは、(式5.2)以外の反応によって生成されるのではないかという推測もなされている。

この実験事実を説明付けようとするモデルは多数提案されており、そのなかの一つに、静岡大学の小島が提唱する捕獲中性子触媒核融合(TNCF: Trapped Neutron Catalyzed Fusion)モデル⁽³⁾がある。ここに、TNCFモデルの概要を示す。

豊富なバックグラウンド中性子が存在する場合、パラジウム等の媒質金属中に多量の熱中性子が捕獲され、金属の原子核と相互作用して安定化する。この安定化した金属原子に強い摂動を与えた場合に、トリガー反応と呼ばれる以下の反応



が起こり、加速された重陽子dや三重陽子tが(式5.1)、(式5.2)及び以下の反応



のように、他の粒子や核と反応して高い確率で粒子やエネルギーを増殖し、さらに次々と連鎖的な反応を起こすというものである。

5.2.2 テストセル

本実験に用いたテストセルをFig.21に示す。このテストセルの特徴は、容器及びふたの部分が真鍮製であり、陰極に銅板を用いてある。真鍮製の電極ホルダと容器は、ガラス管とTorr Sealにより絶縁されており、沿面放電の影響を考慮して、ガラス管を多少長めにした。テストセル内壁への放電を防ぎ、針先端に電界を集中させるため、中空円筒状のデルリン壁を設けてある。また、このデルリン壁は、TNCFモデルにおける熱中性子の捕獲に対して効果的に働くことが期待できる。形状については、以前の研究で過剰中性子を放出した試行の際に用いたテストセルに類似した設計とした。

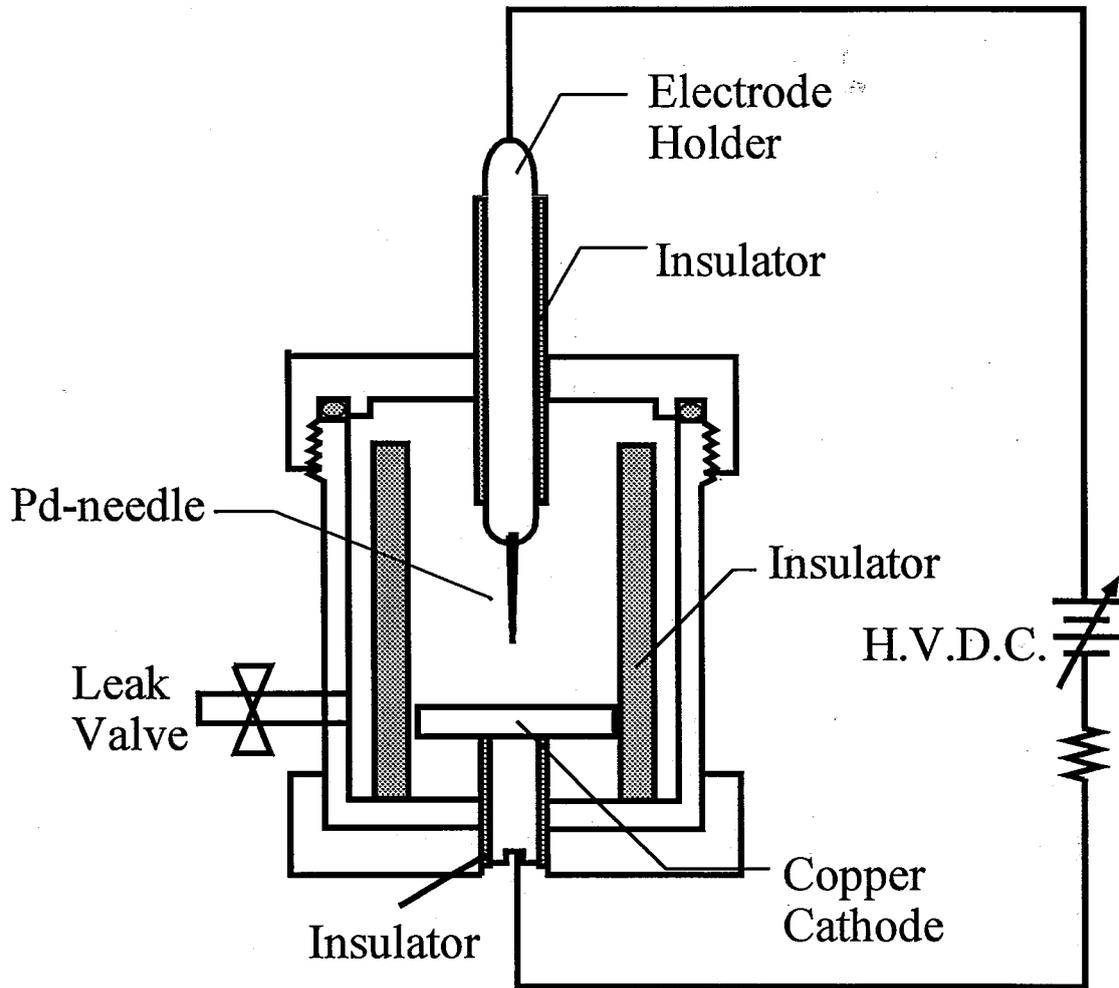


Fig.. 21 Test cell (Brass)

電極構成は、電極ホルダ先端に取り付けたパラジウム針を陽極、銅板を陰極とした針対平板電極である。テストセルの仕様を以下に示す。

| | |
|-------|---|
| 容量 | 80cc |
| 電極数 | 2 |
| 真空バルブ | 1 (株)草野化学器械製作所 製 高真空グリースレスバルブ LHV-10 |
| 材質 | 容器本体 : 真鍮 電極ホルダ : 真鍮 陰極 : 銅 |

5.2.3 実験方法及び結果

本実験は、TNCFモデルを検証するため、屋外に設置したテント内において行った。テントのスペースや装置の関係上、放射線の計測は行っていない。重水素を使用した実験との対照実験として、重水素ガスの代わりに軽水素ガスを用いた試行も併せて行った。

前処理を経たパラジウム針電極を、Fig.21に示す真鍮製のテストセルに取り付け、ギャップ長10mmの針対平板電極を構成する。続いてテストセル内部を、 10^{-2} Torr程度まで減圧し、重水素もしくは軽水素ガスを2気圧で12-24時間封入する。Fig.21に示される直流電源により、電極間に直流5kVを印加し、グローコロナ放電を形成する。電圧の印加は、1回の試行につき6-358時間にわたり行った。全試行回数は14であり、重水素を用いた試行を9、軽水素を用いた試行を5回行った。試行後のパラジウム針電極は、各種表面分析装置によって表面付近の元素分析が行われた。

Table1、Table2 にそれぞれ重水素を用いた場合と軽水素を用いた場合の実験パラメータを示す。左から順に、実験番号、吸蔵率、焼き鈍し温度、印加電圧、電圧印加

時間を示した。

| Ex. number | D/Pd | Annealing temperature | Voltage | Experiment hour |
|------------|---------------------|-----------------------|--------------------------|-----------------|
| 5F97G01 | D ₂ 0.53 | 400°C | Pressurized Glow 5 kV | 70 hours |
| 5F97G02 | D ₂ 0.64 | 500°C | Pressurized Glow 5 kV | 220 hours |
| 5F97G03 | D ₂ 0.14 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 358 hours |
| 5F97G06 | D ₂ 0.08 | 700°C | Pressurized Glow 5 kV | 24 hours |
| 5F97G07D | D ₂ 0.69 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 36 hours |
| 5F97G08D | D ₂ 0.62 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 6 hours |
| 5F97G09D | D ₂ 0.62 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 12 hours |
| 5F97G13D | D ₂ 0.68 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 48 hours |
| 5F97G14D | D ₂ 0.56 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 24 hours |

Table.1 Experimental Parameter at Glow Discharge in D₂ Gas

| Ex. number | H/Pd | Annealing temperature | Voltage | Experiment hour |
|------------|---------------------|-----------------------|--------------------------|-----------------|
| 5F97G15H | H ₂ 0.98 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 36 hours |
| 5F97G16H | H ₂ 0.91 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 12 hours |
| 5F97G17H | H ₂ 1.09 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 24 hours |
| 5F97G18H | H ₂ 0.81 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 48 hours |
| 5F97G19H | H ₂ 0.86 | 800°C | Pressurized Glow 5 kV | 6 hours |

Table.2 Experimental Parameter at Glow Discharge in H₂ Gas

第6章 パラジウム板電極を用いたグロー放電法

6.1 パラジウム板陽極を用いた低気圧グロー実験

6.1.1 テストセル

本実験で用いたテストセルをFig.22に示す。このテストセルの特徴は、容器及びふたの部分が見銀製であり、また、内壁がガラス製であるため、放電状態を目視により確認できるという点にある。電極台がネジ式になっており、ギャップ長を変えることも可能である。しかし、見銀とガラス部分を接着するのにTorr Sealを多用しているため、加圧状態での実験には適していない。よって、このテストセルは低気圧状態での実験にのみ用いた。電極構成は、電極台に取り付けた重水素吸蔵パラジウム板を陽極、テストセルの上部見銀板を陰極とした平板対平板電極である。テストセルの仕様を以下に示す。

| | | |
|-------|---------|---------------------------------------|
| 容量 | 95 cc | |
| 電極数 | 2 | |
| 真空バルブ | 1 | (株)草野化学器械製作所 製 高真空グリースレスバルブ LHV-10 |
| 材質 | 上下のふた部分 | : 見銀 |
| | 電極台 | : 見銀 |
| | 内壁 | : パイレックス管 (45φ) |

6.1.2 実験方法及び結果

重水素吸蔵パラジウムを、テストセルの電極台に設置し、ギャップ長が約10mmとなるようにする。続いてテストセル内部を 10^{-2} Torr程度まで脱気し、真空計を確認しながら重水素ガスをおよそ3Torr封入する。直ちに電極間に1.4-4.2kVの直流電圧を印加してグロー放電を形成する。この際、テストセル内には、電極の形状と同じ広さを持つ薄紫色の陽光柱が見られる。この際、電極間に流れるアース電流は数mA程度であった。電圧の印加と同時に中性子、 γ 線の計測を開始する。電圧の印加と計測は1回の試行につ

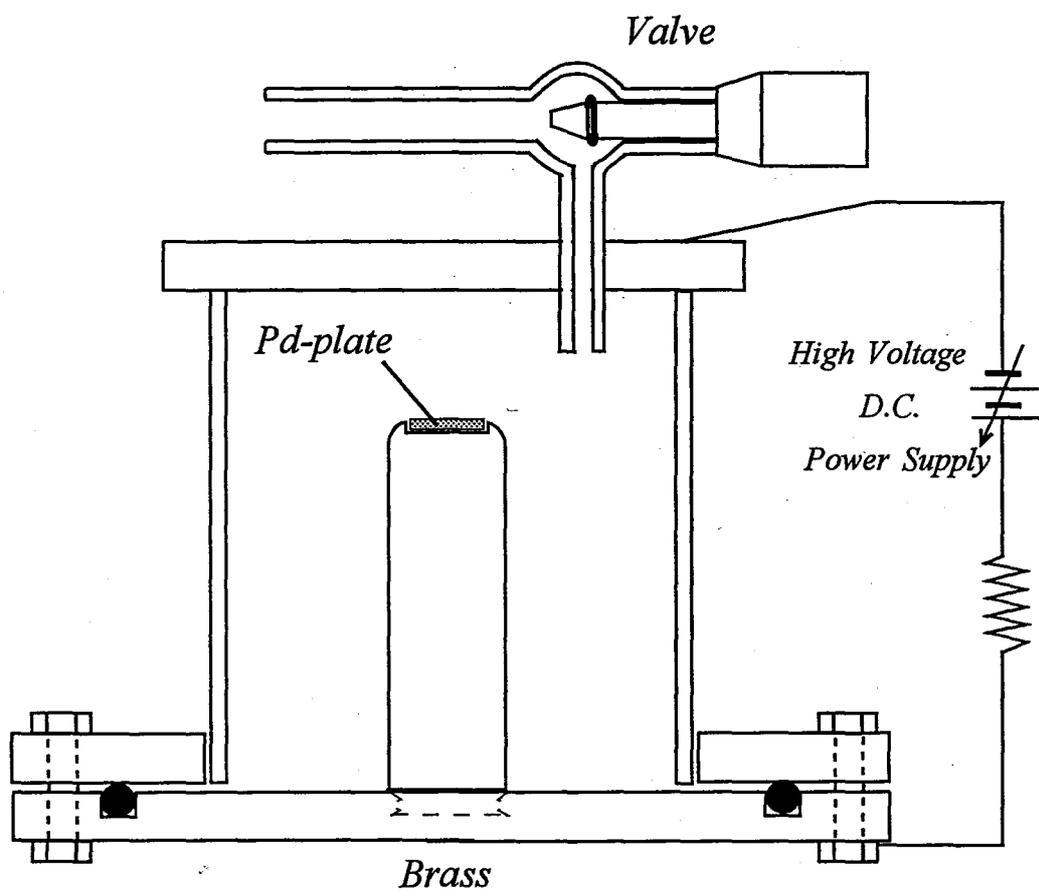


Fig.22 Test Cell (Brass , Anode Type)

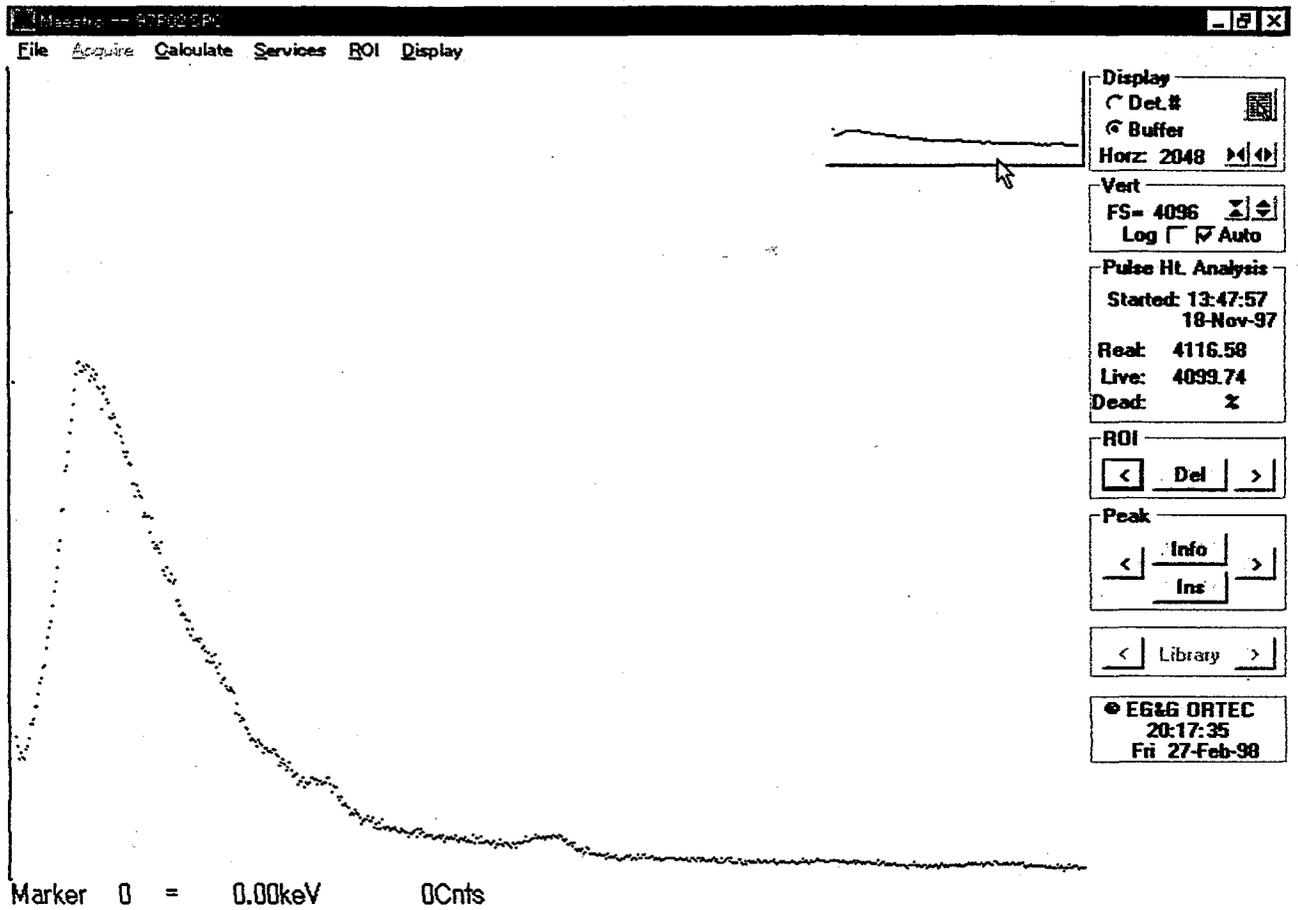
き60-90分の間で行われた。全試行回数は3回であり、 γ 線計測については全試行について行い、中性子計測については1回の試行においてのみ行った。次に、実験結果について述べる。

中性子計測の結果、1時間当たり約9カウントとなり、バックグラウンドと比較して差は見られなかった。 γ 線計測の結果のうち、代表的なデータをFig.23, Fig.24に示す。横軸は γ 線のエネルギー(keV)で、縦軸は累積カウント数を示している。グラフの下には、上から順に、試料の吸蔵率、封入ガス、試料の極性、印加電圧、そして総計測時間を示す。Fig.23(97P02)は、吸蔵率0.62のパラジウム板を用いて行った実験結果である。印加電圧は1.9kV、封入ガス圧は3Torrで、70分間計測を行った。バックグラウンドと比較して、大きな差は見られない。Fig.24(97P03)は、吸蔵率0.68のパラジウム板を用いて行った実験結果である。封入ガス圧は3Torrに設定したが、放電開始電圧はやや高めの4.2kVであり、実際にセル内圧が3Torrであったかどうかは不明である。計測は70分間行った。Fig.23と同様、バックグラウンドと比較して大きな差は見られなかった。

6.2 パラジウム板陰極を用いた低気圧グロー実験

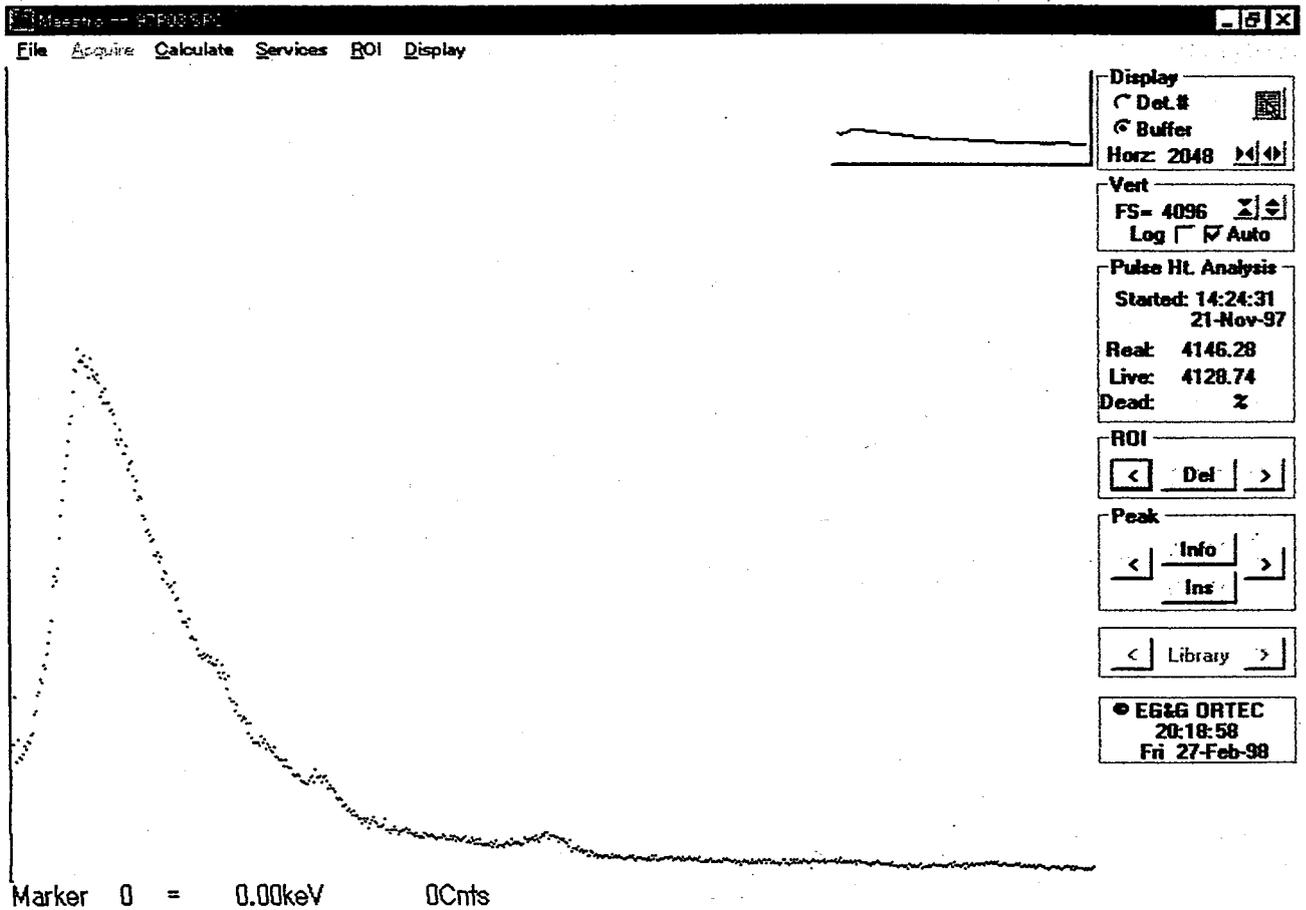
6.2.1 テストセル

本実験で用いたテストセルをFig.25に示す。このテストセルの特徴は、Fig.22のテストセルと同様に容器及びふたの部分が真鍮製であり、内壁はガラス製である。本実験では、重水素吸蔵パラジウム板を陰極に用いて実験を行うため、Fig.22のテストセルとは構造が異なる。電極構成は、直径10mmの真鍮製円筒の先端に厚さ0.02mmの金箔を巻いたものを陽極、テストセルの底部真鍮板の中心においた重水素吸蔵パラジウム板を陰極とした平板対平板電極である。真鍮は、純度の低い金属の合金であり、放電によるスパッタリングの影響により、パラジウム板陰極が汚染されることが予想された。このため、金属の中でも表面が清浄な金を陽極に用いた。ギャップ長は約15mmである。Fig.22のテストセルと同様に、Torr Sealを多用しているため、加圧状態での実験には適していない。よって、このテストセルは低気圧状態での実験にのみ用いた。



| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.62 |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 1.9 [kV] |
| Experiment Time | 70 min. |

Fig.23 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas



| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.68 |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 4.2 [kV] |
| Experiment Time | 70 min. |

Fig.24 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas

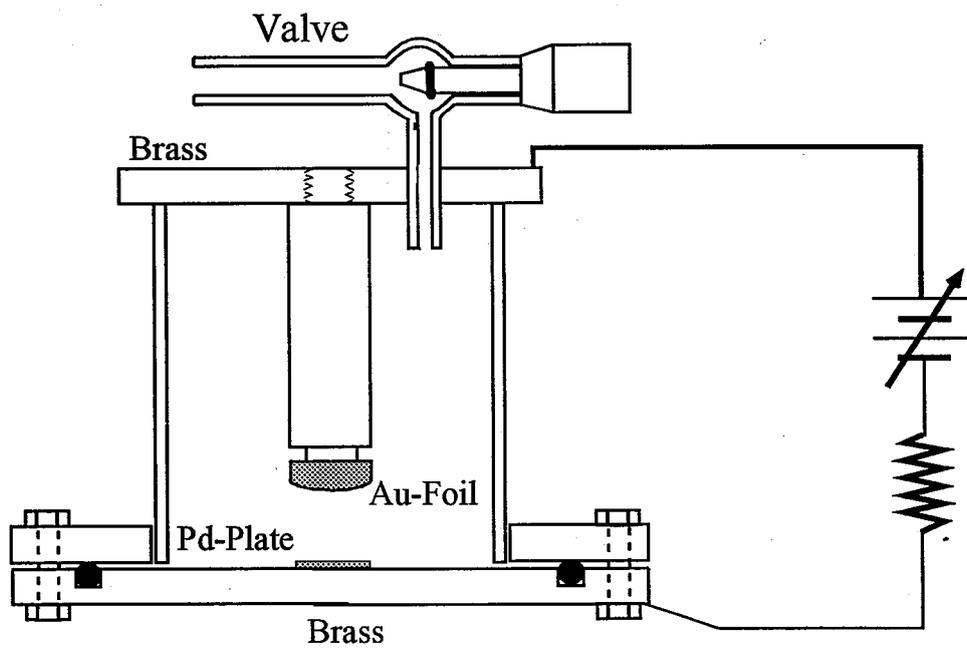


Fig. 25 test cell (Brass, Cathode type)

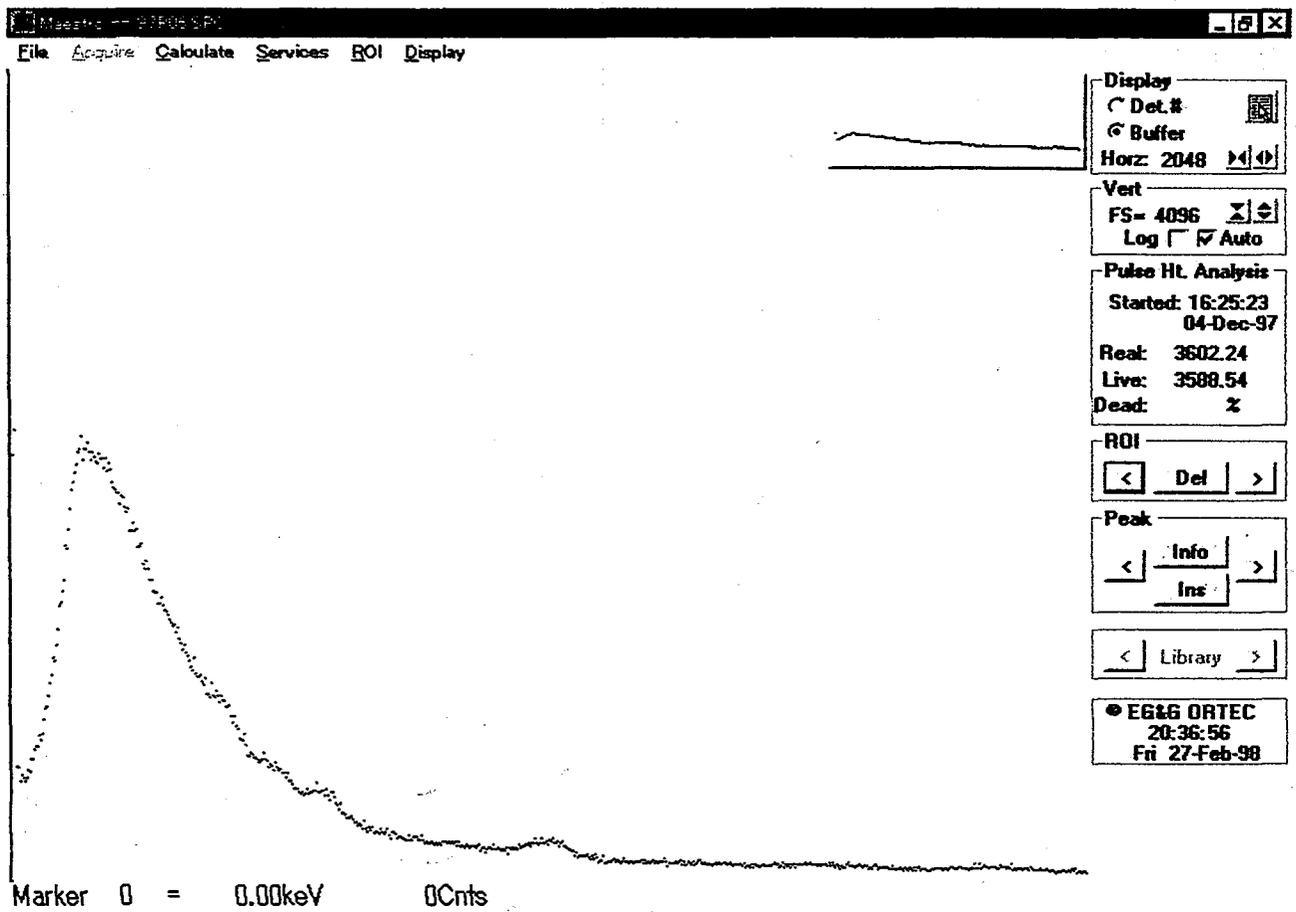
テストセルの仕様を以下に示す。

| | |
|-------|---|
| 容量 | 80 cc |
| 電極数 | 2 |
| 真空バルブ | 1 (株)草野化学器械製作所 製 高真空グリースレスバルブ LHV-10 |
| 材質 | 上下のふた部分:真鍮 |
| | 陽極ホルダ :真鍮 |
| | 陽極 :金箔 (厚さ 0.02mm) |
| | 内壁 :パイレックス管 (45φ) |

6.2.2 実験方法及び結果

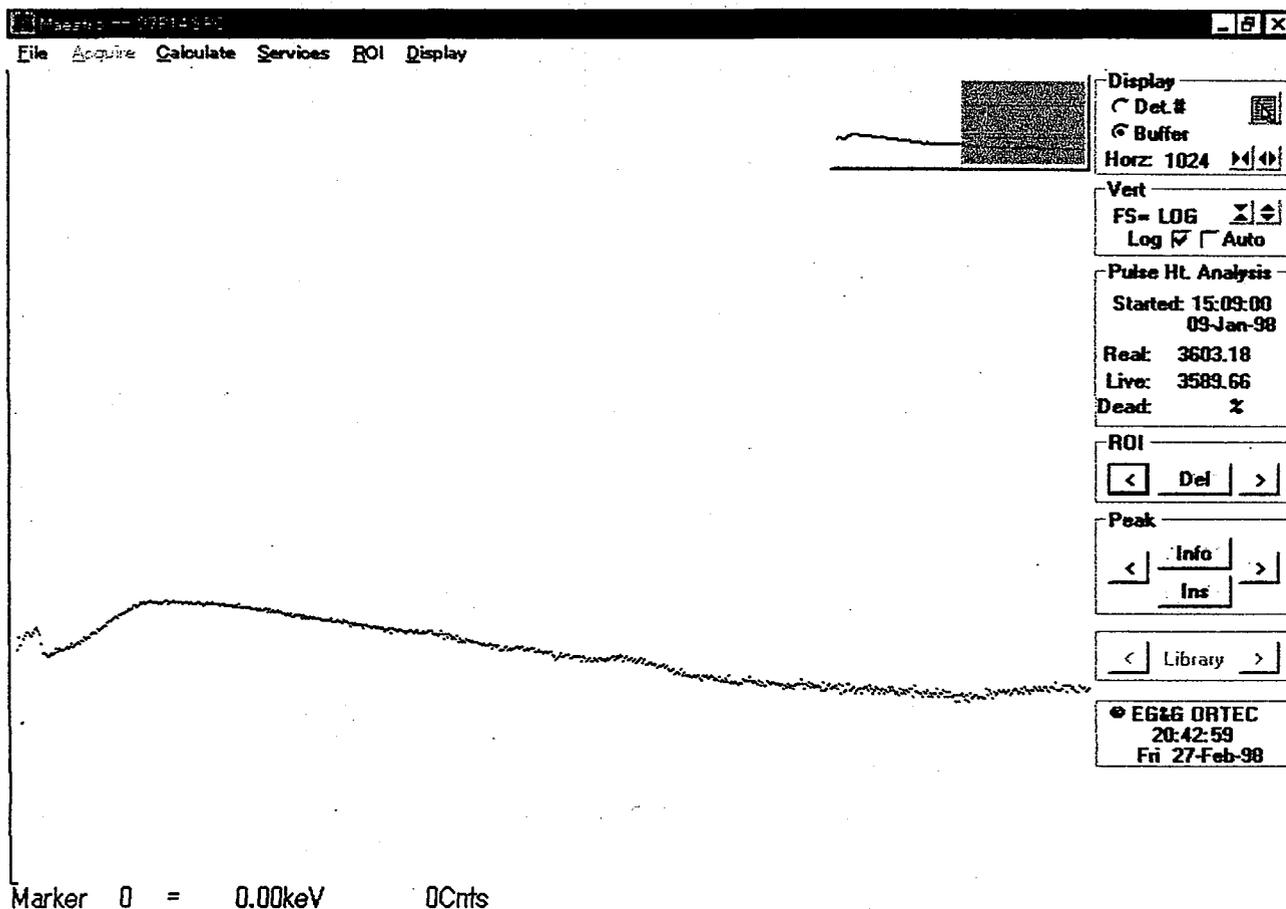
重水素吸蔵パラジウムを、テストセル底面の中心に設置する。続いてテストセル内部を 10^{-2} Torr程度まで脱気し、真空計を確認しつつ重水素ガスをおよそ3Torr封入する。直ちに電極間に500-1600Vの直流電圧を印加してグロー放電を形成する。テストセル内には、薄紫色の陽光柱が見られる。この際、電極間に流れるアース電流は数mA程度であった。電圧の印加と同時に中性子、 γ 線の計測を開始する。電圧の印加と計測は1回の試行につき1時間行われた。全試行回数は28回であり、 γ 線計測については全試行について行い、中性子計測については、10回の試行において行った。次に、実験結果について述べる。

中性子計測の結果、1時間当たり4-11カウントとなり、バックグラウンドと比較して大きな差は見られなかった。 γ 線計測の結果のうち、代表的なデータをFig.26-Fig.29に示す。横軸は γ 線のエネルギー(keV)で、縦軸は累積カウント数を示している。グラフの下には、上から順に、試料の吸蔵率、封入ガス、試料の極性、印加電圧、そして総計測時間を示す。Fig.26(97P06)は、吸蔵率0.72のパラジウム板を用いて行った実験結果である。横軸の最大 γ 線エネルギーは、8188keVである。印加電圧は500V、封入ガス圧は3Torrで、1時間計測を行った。バックグラウンドと比較して大きな差は見られない。



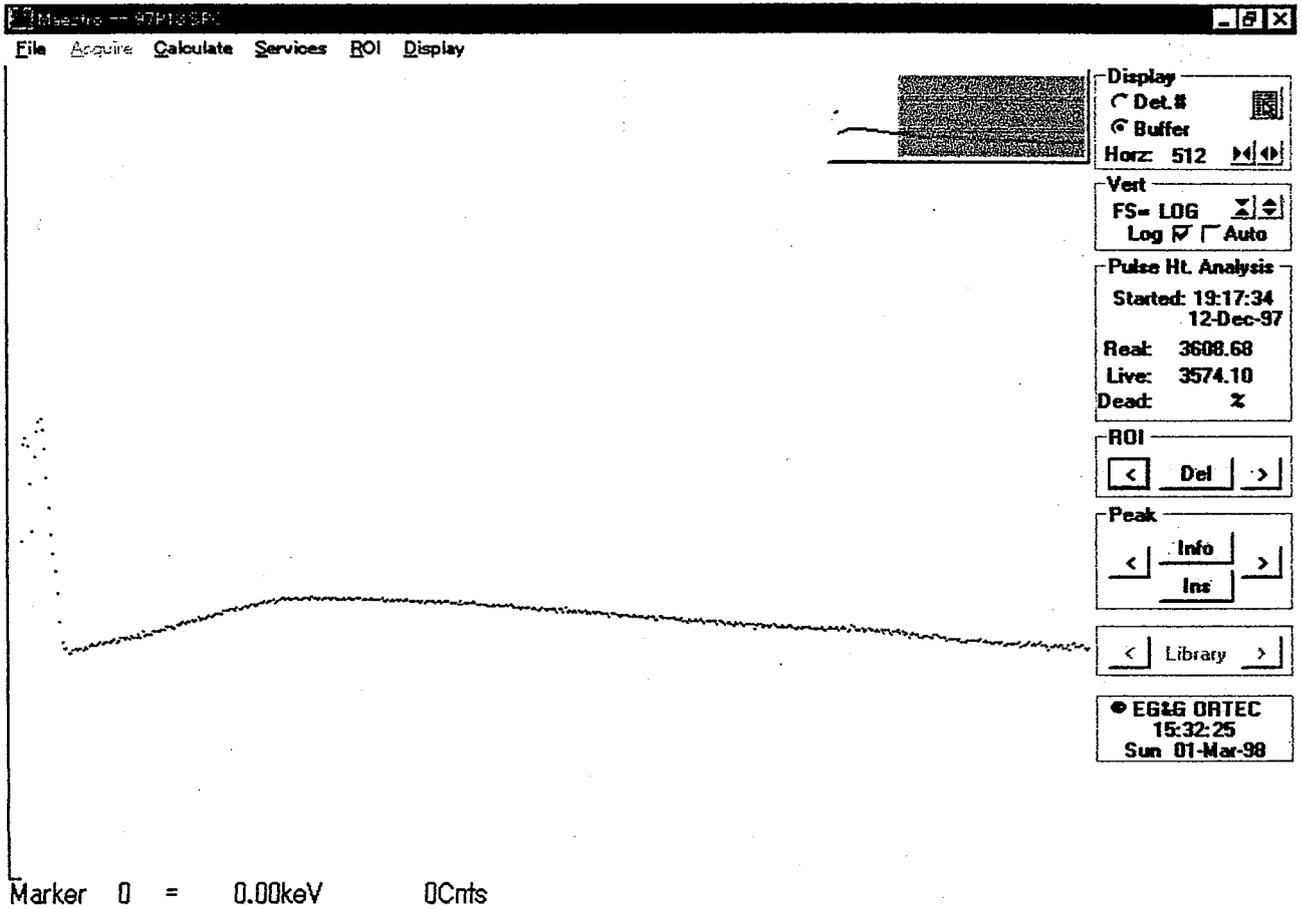
| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.72 |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 500 [V] |
| Experiment Time | 1 hour |

Fig.26 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas



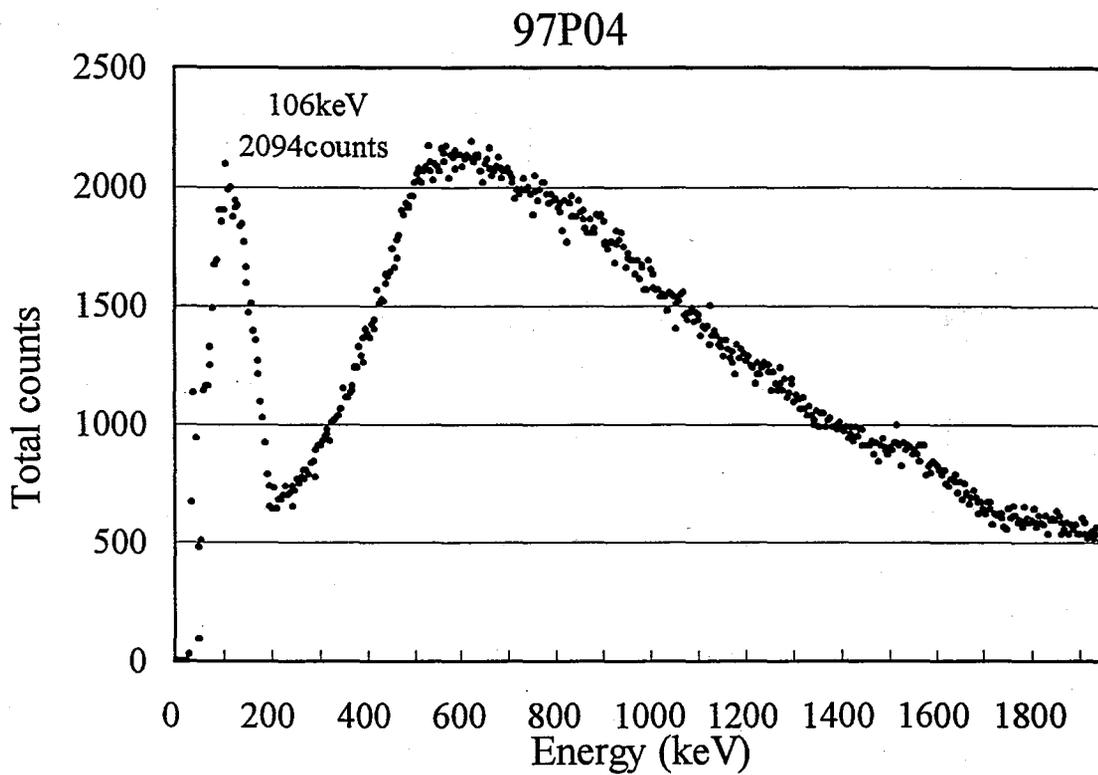
| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.71 |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 760 [V] |
| Experiment Time | 1 hour |

Fig.27 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas



| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | None |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 800 [V] |
| Experiment Time | 1 hour |

Fig.28 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas



| | |
|----------------------|------------------------|
| Loading Ratio (D/Pd) | 0.69 |
| Working Gas | D ₂ 3[Torr] |
| Polarity of Sample | Cathode |
| Voltage | 660 [V] |
| Experiment Time | 1 hour |

Fig.29 Gamma-ray Spectrum with a Pd-plate in D₂ gas

28試行中10回の試行において、バックグラウンドデータと比較して何らかの形で相違が見られたが、ここではその中の3例について示す。Fig.27(97P14)は、吸蔵率0.71のパラジウム板を用いて行った実験結果である。Fig.26同様、横軸の最大 γ 線エネルギーは、8188keVであり、縦軸のカウント数は対数表示である。印加電圧は760V、封入ガス圧は3Torrで、計測は1時間行った。スペクトルによれば、73keV、101keV付近に小さなピークが見られる。

Fig.28(97P13)は、重水素吸蔵の有無による結果の違いがあるかどうかを検証するため、吸蔵なしのパラジウム板を用いて行った実験結果である。横軸の最大 γ 線エネルギーは、2047keVであり、縦軸のカウント数は対数表示である。印加電圧は800V、封入ガス圧は3Torrで、計測は1時間行った。スペクトルによれば、0-114keVまでの区間のピークに異常が見られ、中でも65keV付近に大きなピークが見られる。

Fig.29(97P04)は、吸蔵率0.69のパラジウム板を用いて行った実験結果である。横軸の最大 γ 線エネルギーは、2047keVであり、縦軸のカウント数は線形表示である。印加電圧は660V、封入ガス圧は3Torrで、計測は1時間行った。スペクトルによれば、106keV付近にバックグラウンドと大きく異なるピークが見られる。

6.2.3 放電バックグラウンド実験結果

前節で述べたように、28回の試行中10回の試行において異常な γ 線計測データが見られた。これが、ノイズの影響によるものかどうかを検証するため、様々な条件を変えて102回の放電バックグラウンド実験を行ったが、その際の条件及び実験回数について、Table.3に示す。括弧内は注釈である。電圧印加と γ 線計測は1回の試行につき1時間行い、印加電圧は460-1640V、封入ガス圧は全て3 Torrとした。

実験の結果、102試行中24試行において32keV付近に異常なピークが見られた。この部分のピークは、印加電圧が比較的低い場合に見られることが多く、放電に起因するノイズの可能性が高い。また、いくつかの試行では、不特定のエネルギーに大きなピークが見られた。これらの試行においては、実験終了時の放電状態が不安定であった場合

が多い。重水素や軽水素ガスを封入した実験において、100keV付近にピークは見られなかった。

| Cathode \ Gas (3Torr) | D ₂ | H ₂ | Air | Total |
|--------------------------------|----------------|----------------|---------|-------|
| Brass | 10 (*1) | 10 (*2) | 22 (*3) | 42 |
| Au sheet(50φ) | 10 (*4) | 10 | | 20 |
| Au sheet(10φ) on Au sheet(50φ) | 10 (*5) | 10 | | 20 |
| Pd sheet(10φ) on Au sheet(50φ) | 10 | 10 (*6) | | 20 |
| Total | 40 | 40 | 22 | 102 |

Table.3 Experimental condition of background discharge

注釈:32keV 付近に異常なピークが見られた試行回数

- (*1) 10 試行中 8 試行
- (*2) 10 試行中 7 試行
- (*3) 10 試行中 5 試行
- (*4) 10 試行中 2 試行
- (*5) 10 試行中 1 試行
- (*6) 10 試行中 1 試行

第7章 電極表面の元素分析

7.1 表面分析装置

ロシアの I.B.Savvatimova らのグループ他は、水素吸蔵金属を陰極に用いたグロー放電後の電極を表面分析した結果、Al,P,Zn,Br,Kr,Ag,Cd 等の元素を検出したことを報告^{(2),(3)}している。このように、質量数が 5-150 程度までの元素や同位体の間に変換が起こる現象を核変換(Transmutation Phenomena)という。本研究では、この核変換を検証するため、放電実験終了後のパラジウム試料について、二種類の方法により電極表面近傍の元素分析を行った。表面分析に用いた方法は、X 線光電子分光法(XPS:X-ray Photoelectron Spectroscopy)と、エネルギー分散型 X 線分光法(EDX:Energy Dispersive X-ray spectroscopy)である。以下に、それぞれの分析装置の測定原理について述べる。

7.1.1 X線光電子分光法

X線光電子分光法は、超高真空中で試料にX線を照射し、放出される電子(光電子)のエネルギーをエネルギーアナライザーとよばれる装置で測定する分析法である。励起X線としてはAlやMgの K_{α} 線など、比較的エネルギーの低いものが良く用いられる。エネルギーアナライザーは電場を用いて電子の運動エネルギーを測定する装置で、今回用いたのは同心半球型(CHA)である。

原子を構成している電子は核から一定の強さの束縛を受けている。X線を当てたときに放出される光電子の運動エネルギーは、(励起光のエネルギー) - (束縛エネルギー)となる。束縛エネルギーは、原則として原子の種類と電子の軌道により一定の値をとるが、原子が化合物や結晶格子を形成している場合には、自由な状態と比較するとその値が僅かに変化することが知られており、これを「化学シフト」と呼ぶ。X線光電子分光法ではこの化学シフトを利用して元素の種類だけでなく、化学状態を知ることができる。X線は、試料表面から数 μm まで侵入するが、光電子が脱出できる深さは運動エネルギーにより異なるが、概ね数nmから数10nmであるため、表面のごく近傍で発生した電子だけが検出され

る。そのためX線光電子分光法は表面の化学状態を分析する手法となる。金属や半導体などの最表面を分析したい場合は、表面の汚染を取り除くためイオンスパッタリングを行う。また、試料の深さ方向の組成変化を知りたい場合は、X線光電子分析とイオンスパッタリングを交互に繰り返しスペクトルの変化を追跡することもある。

7.1.2 エネルギー分散型X線分析法

エネルギー分散型X線分析法(EDX)は、電子線を用いた表面分析法の一つである。試料に電子線が入射した際に、試料からは二次電子(微小表面観察)、反跳電子、透過電子の他に、特性X線が発生する。この特性X線は、各元素が固有のエネルギーをもっている。EDXは、この特性X線を検出して電氣的にエネルギー選別を行なう。これにより、試料を構成する元素の種類を分析したり、試料表面における特定の元素の分布状態を観察することが可能となる。EDXの特徴として、分析精度はそれほど高くないが、試料の調整が容易である点が挙げられる。また、EDXでは、試料の傾斜や形状に左右されることなく分析が可能である。

7.2 分析結果

7.2.1 中性子計測実験で用いた試料

実験試行前のパラジウム針先端近傍のXPS分析結果をFig.30(a),(b)に示す。グラフは、横軸が結合エネルギー(eV)、縦軸は放出される電子(光電子)の最大カウント数を10とした場合の相対比を表している。Fig.30(a)は、パラジウム線をサンドペーパーで針状に研磨し、その後濃硝酸で表面洗浄を行った試料の分析結果である。スペクトルによれば、Pd以外にも炭素や窒素のピークが見られる。これらは、大気からの汚染による付着物である可能性が高い。Fig.30(b)は、Fig.30(a)に示した試料の表面を19Åエッチングした後の分析結果である。Fig.30(a)に比べ、炭素や窒素が除去され、Pdが支配的であることがわかる。5.1節で述べた加圧グロー放電実験計59回の試行のうち、11回の試料について表面分析を行った。その結果をFig.31-Fig.34に示す。Fig.33(b)及びFig.34(b)はEDXによ

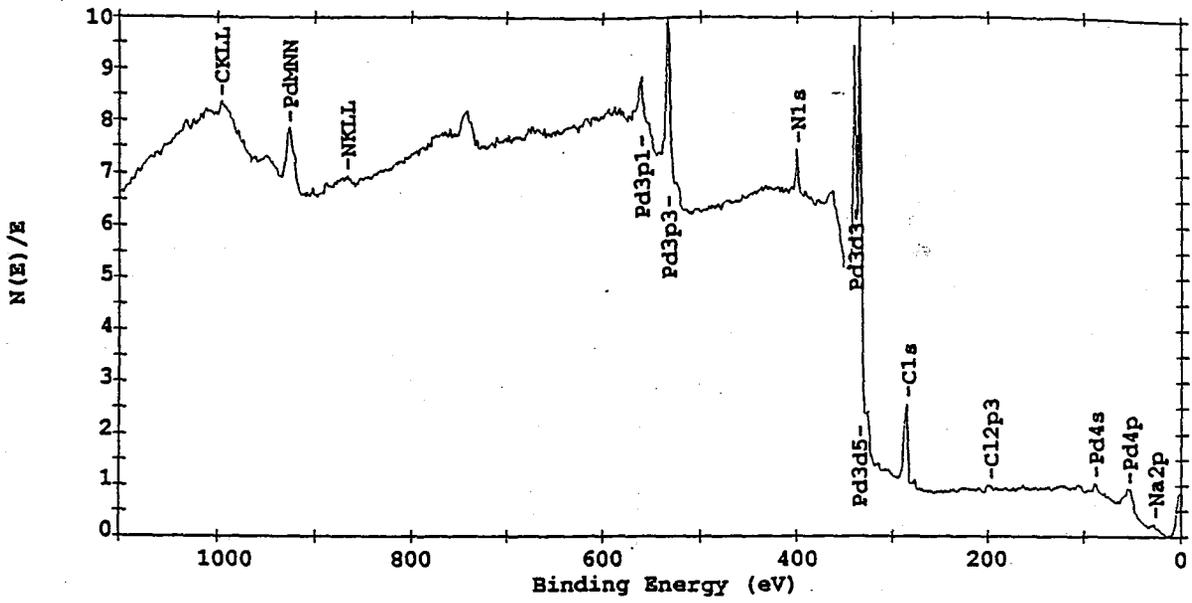


Fig.30(a) The XPS spectrum of Pd-needle before experiment

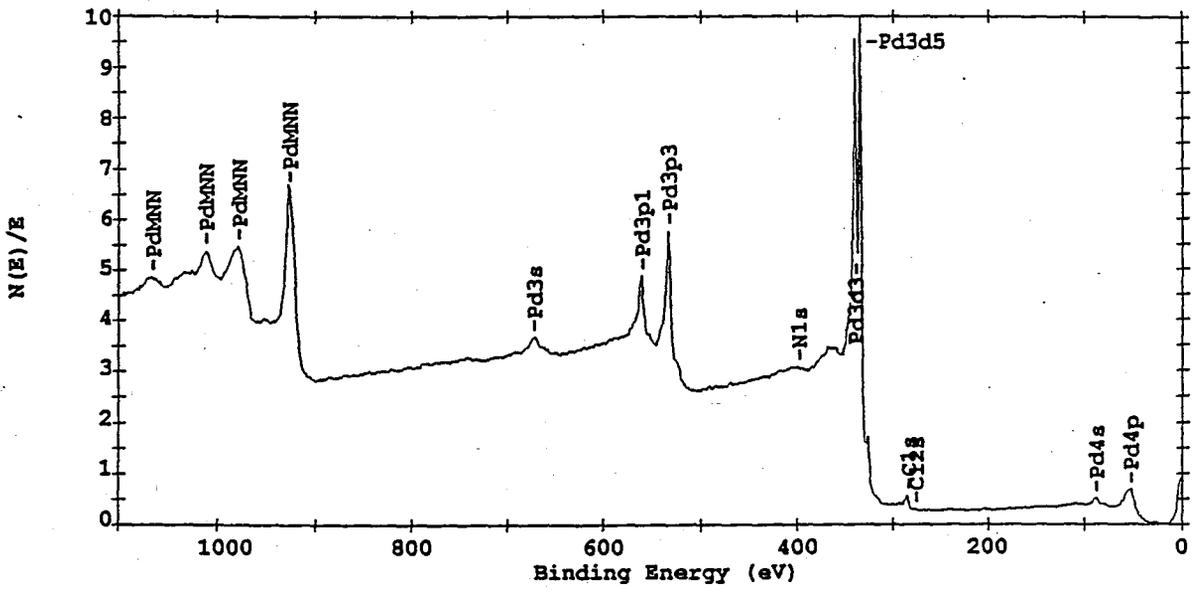


Fig.30(b) The XPS spectrum of Pd-needle before experiment

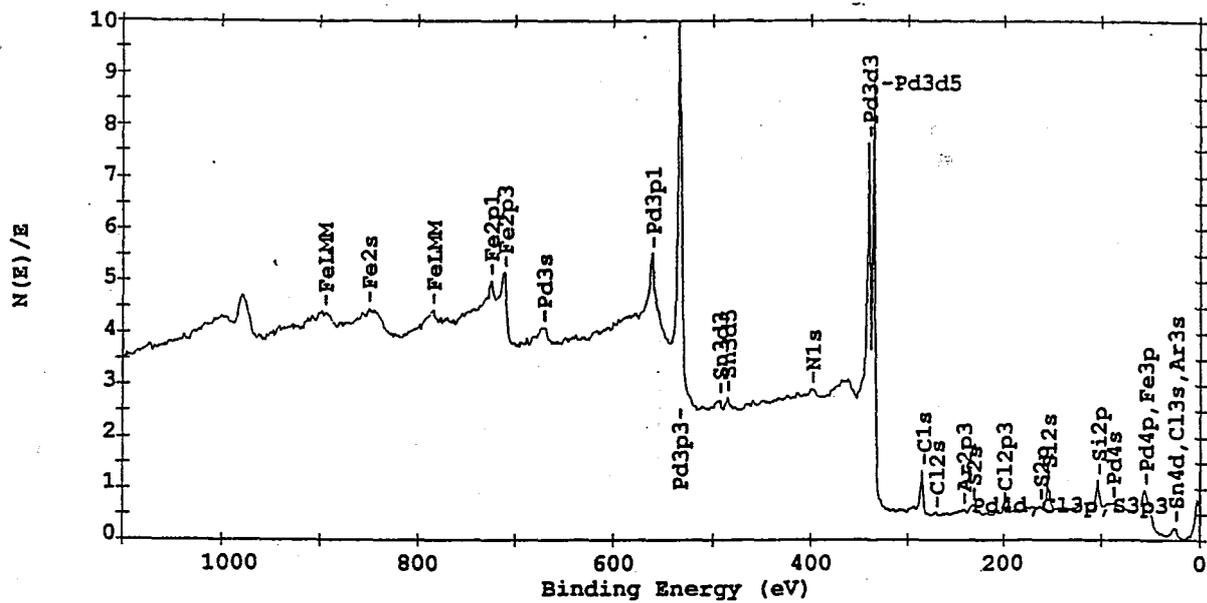


Fig.31 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D_2 gas

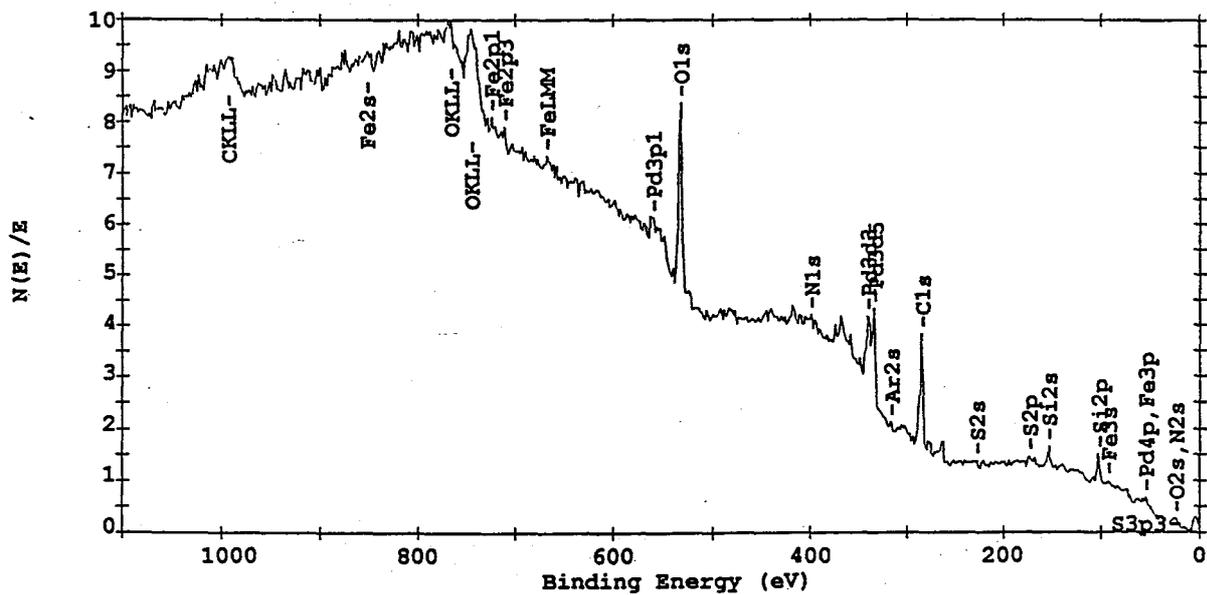


Fig.32 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D_2 gas

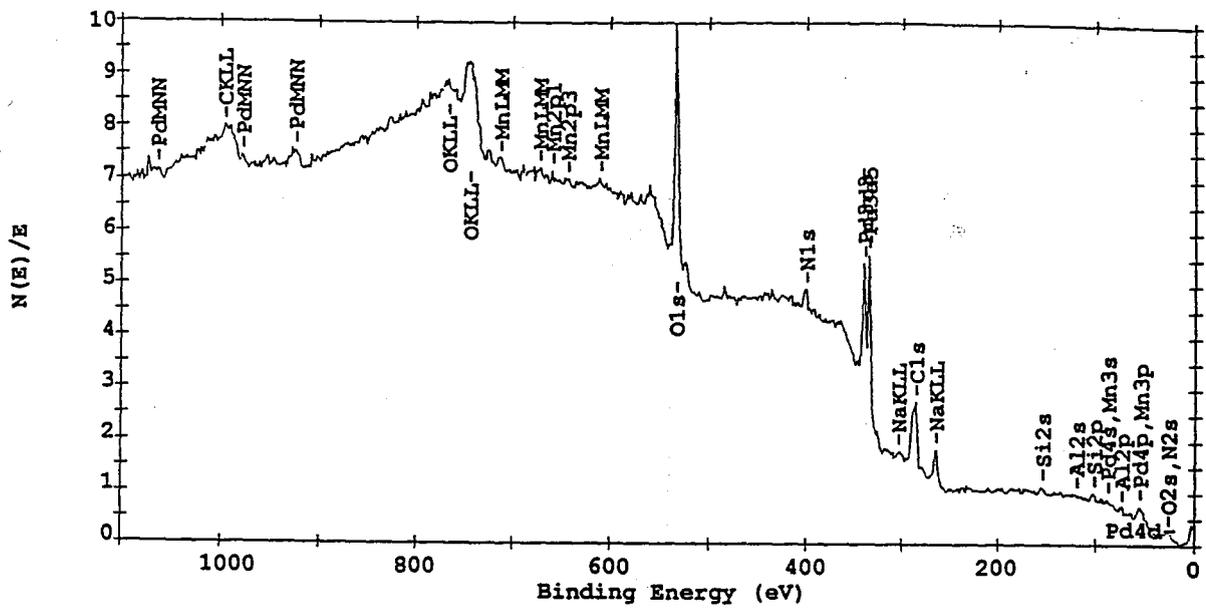


Fig.33(a) The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

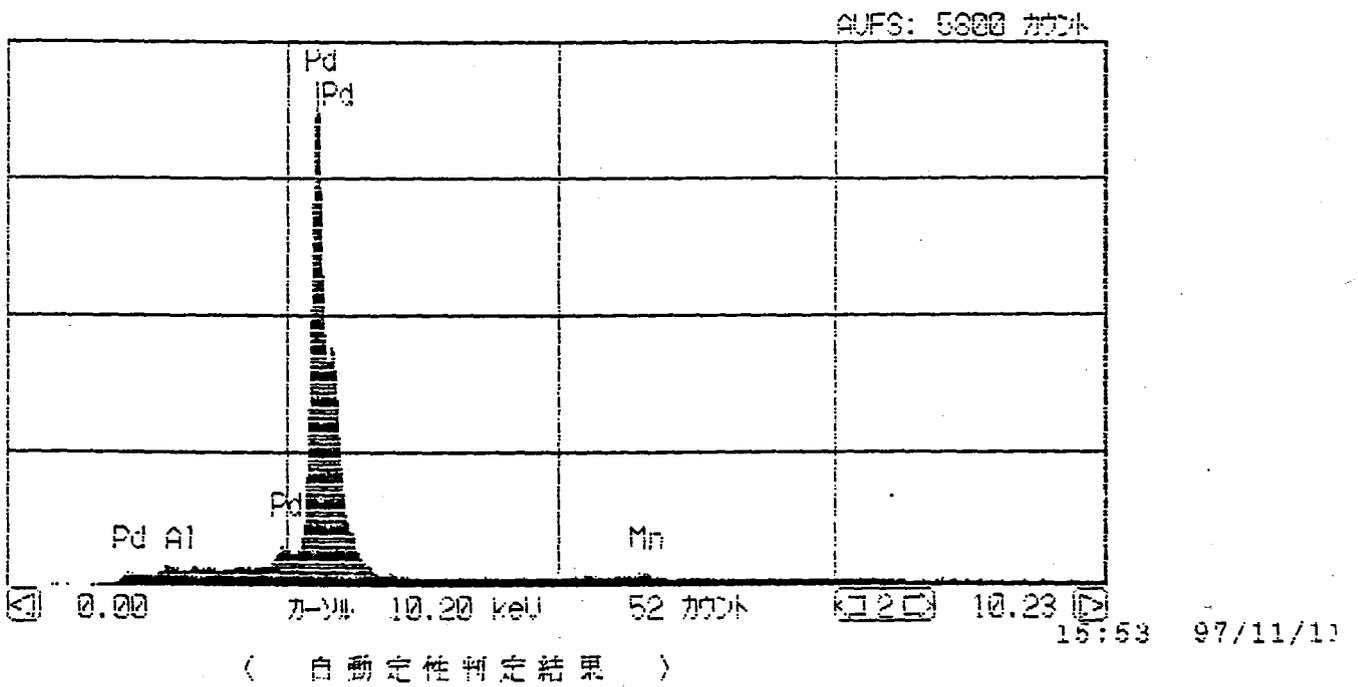


Fig.33(b) The EDX spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

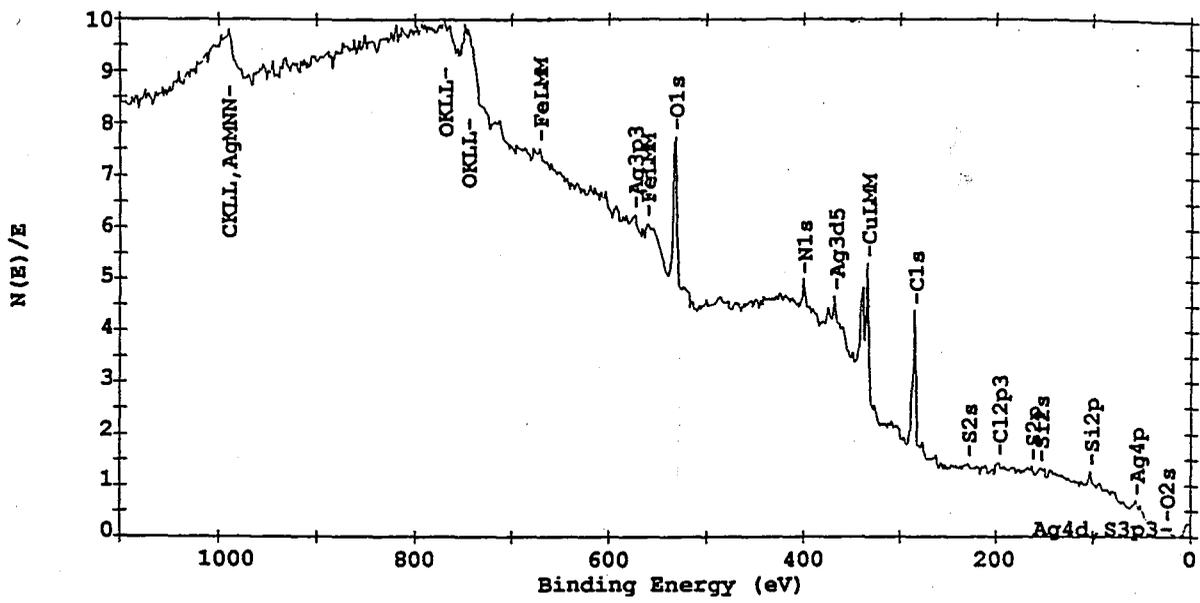


Fig.34(a) The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

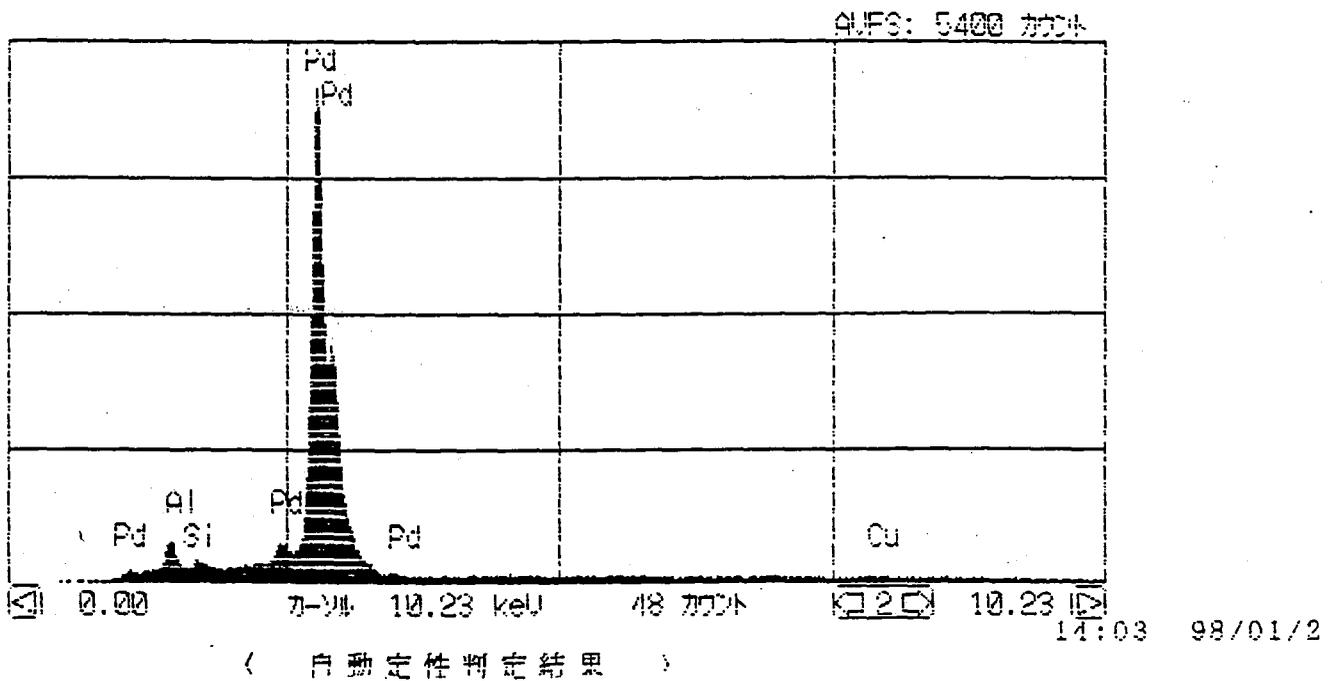


Fig.34(b) The EDX spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

る分析結果であり、それ以外はXPSの結果である。Fig.31(96G013)は、吸蔵率が0.48、印加電圧が8kVその後4kV、実験時間が約54時間の試料の表面から9.5 Åエッチングをした後の分析結果である。スペクトルによれば、Pdのピークの他にFeのピークが多く見られる。この試料については、王水による処理はまだ行っていない。Fig.32(97G10)は、吸蔵率が0.29、印加電圧が2kVのち4kV、実験時間が約63時間の試料の表面分析結果である。Fig.31と同様に、Feのピークが見られる。この試料もまた、王水による処理はまだ行っていない。Fig.33(a) (97G20C)は、吸蔵率が0.60、印加電圧が4kV、実験時間が約79時間の試料の表面分析結果である。スペクトルによれば、Pdのピークの他にMn、Naといったピークが見られる。この試料は、王水処理済みである。Fig.33(b)は、Fig.33(a)と同じ試料のEDX分析結果である。Pdのピークの他に、XPSでも検出されたMnのピークが見られる。Fig.34(a) (97G25)は、王水処理済み、吸蔵率が0.07、印加電圧が4kV、実験時間が約98時間の試料の表面分析結果である。スペクトルによれば、Ag、Fe、Cuなどのピークが見られる。しかし、Cuが検出された付近のエネルギーは、他の多数のデータと比較するとPdである可能性が考えられた。そのため、EDXによって分析を行ったのが、Fig.34(b)である。結果によれば、Pdの他に、Cuのピークが見られ、読み違いではないことがわかった。

7.2.2 TNCFモデル検証屋外実験で用いた試料

屋外における加圧グロー放電実験14回のうち、13回の試料についてXPS分析を行った。その結果をFig.35-Fig.40に示す。Fig.37(b)及びFig.38(b)はEDXによる分析結果であり、それ以外はXPSの結果である。13試料中3試料において鉄、スカンジウム等の異常な元素が検出された。この3試料はいずれも重水素ガスを用いた試行によるものである。Fig.35(5F97G01)は、重水素吸蔵率が0.53、印加電圧は5kV、実験時間が約70時間の試料の分析結果である。スペクトルによれば、Sc、Fのピークが見られる。この試料については、王水による処理はまだ行っていない。Fig.36(5F97G09D)は、重水素吸蔵率が0.62、印加電圧は5kV、実験時間が約12時間の試料の分析結果である。スペクトルによ

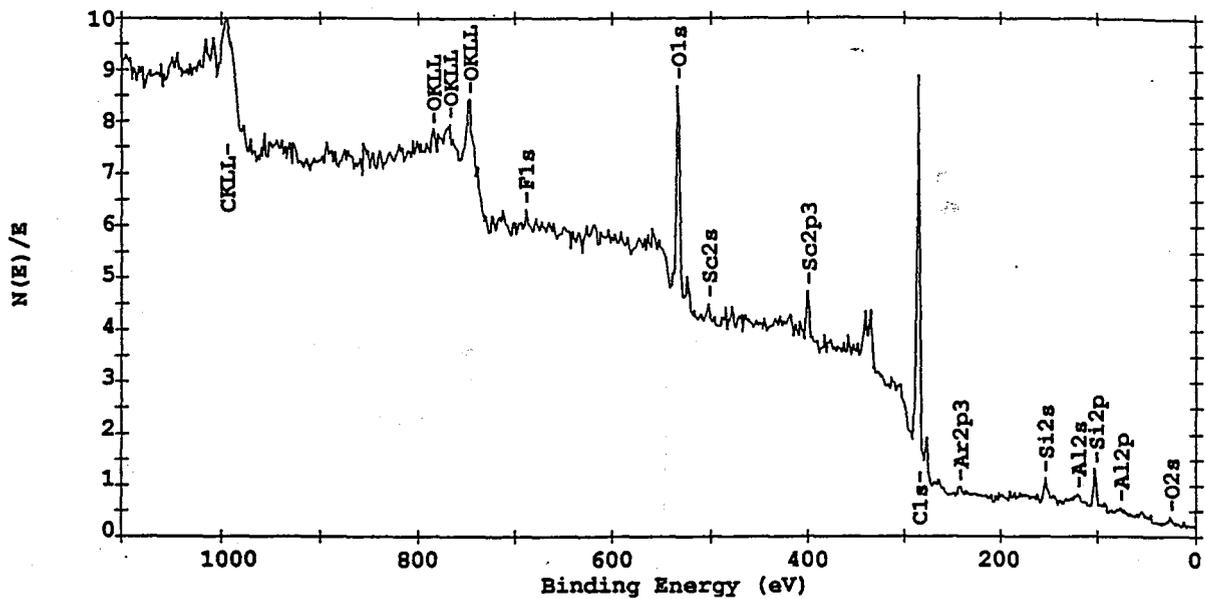


Fig.35 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D_2 gas

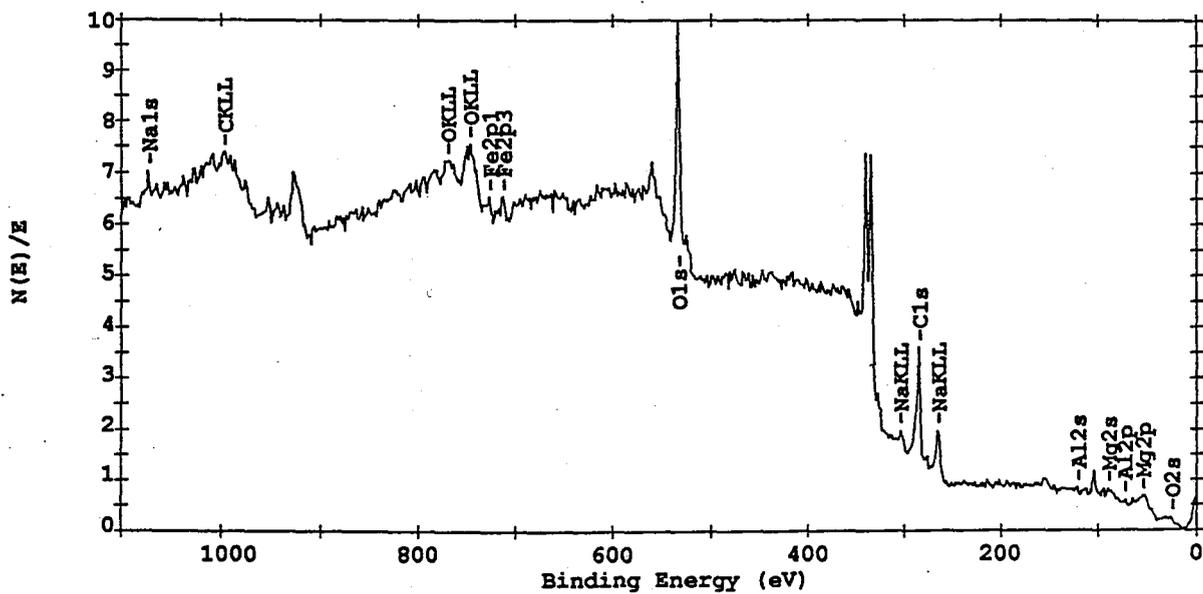


Fig.36 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D_2 gas

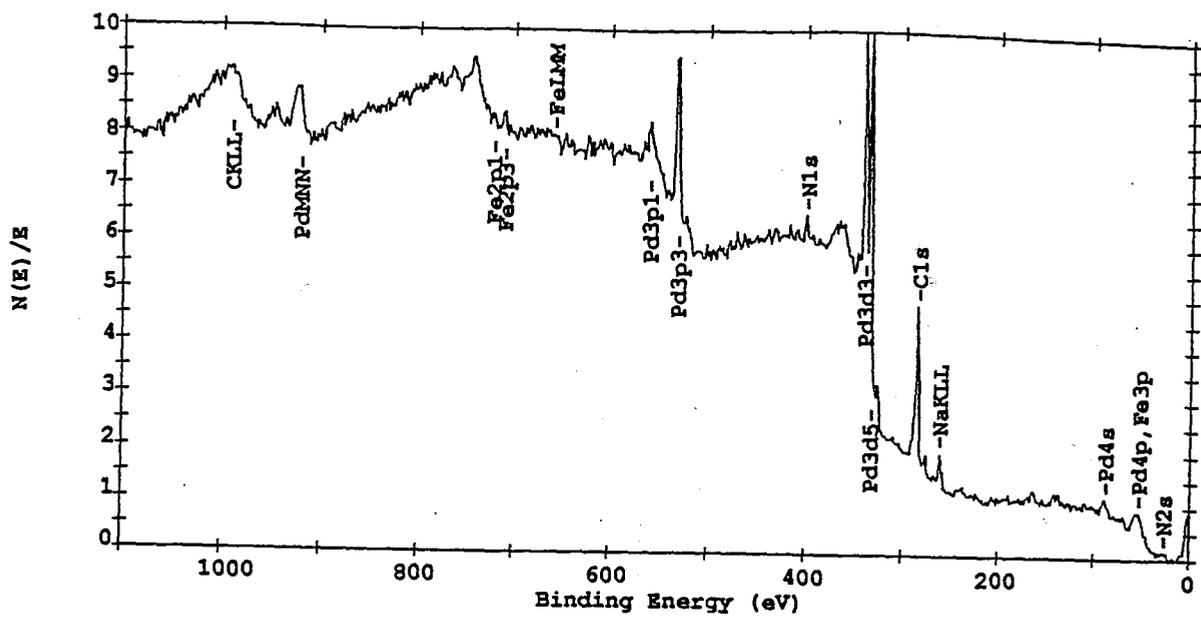


Fig.37(a) The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

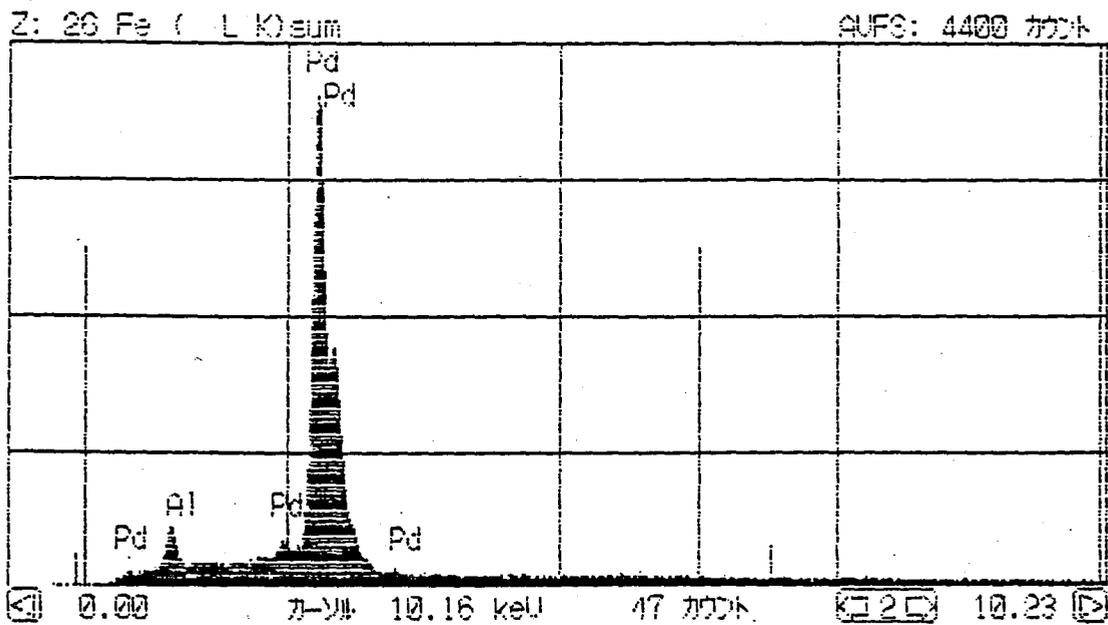


Fig.37(b) The EDX spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

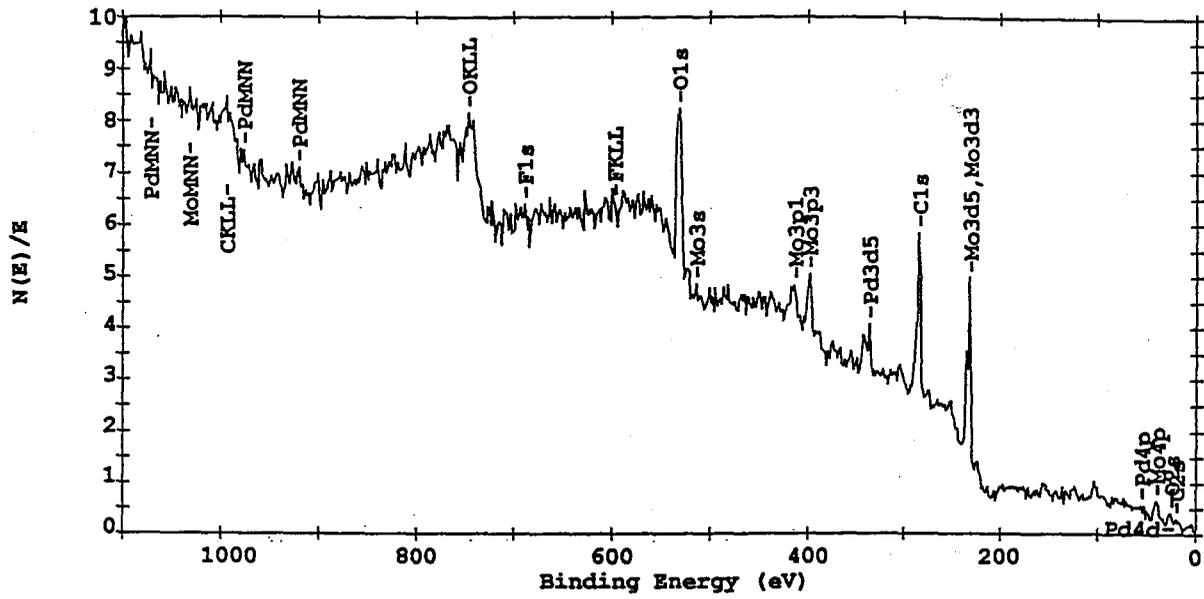


Fig.38(a) The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

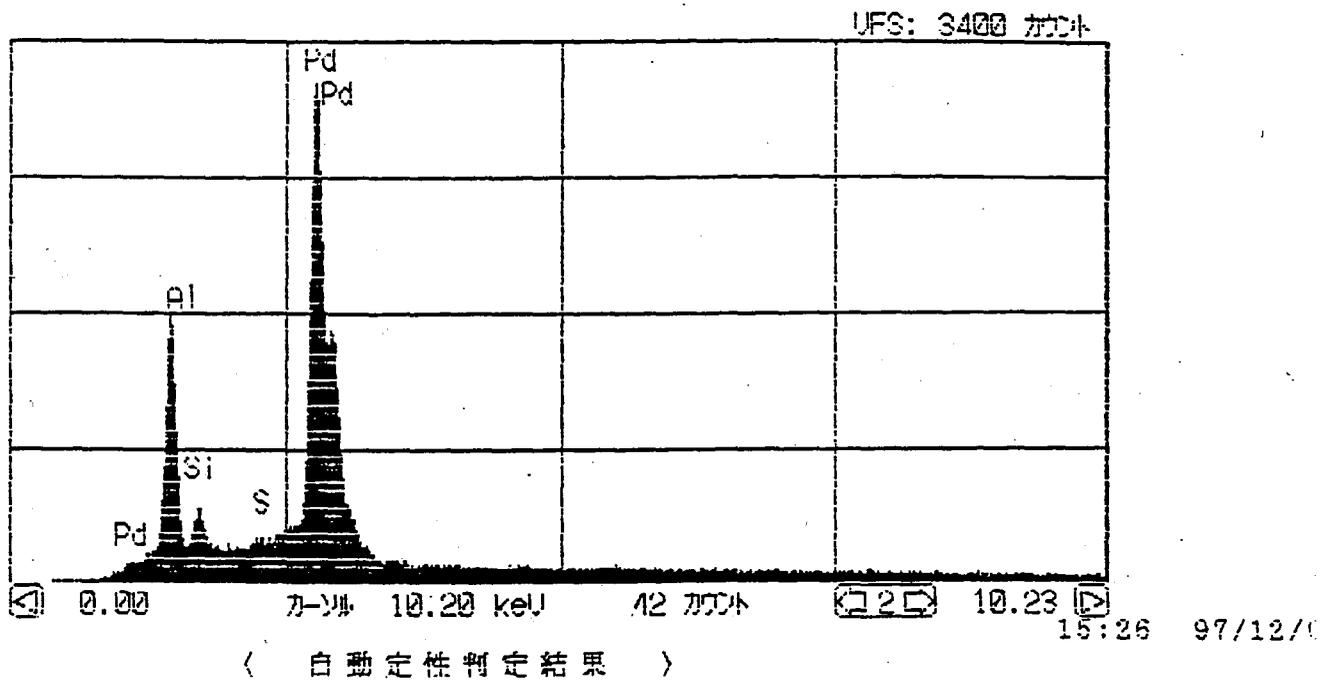


Fig.38(b) The EDX spectrum of Pd-needle after glow discharge in D₂ gas

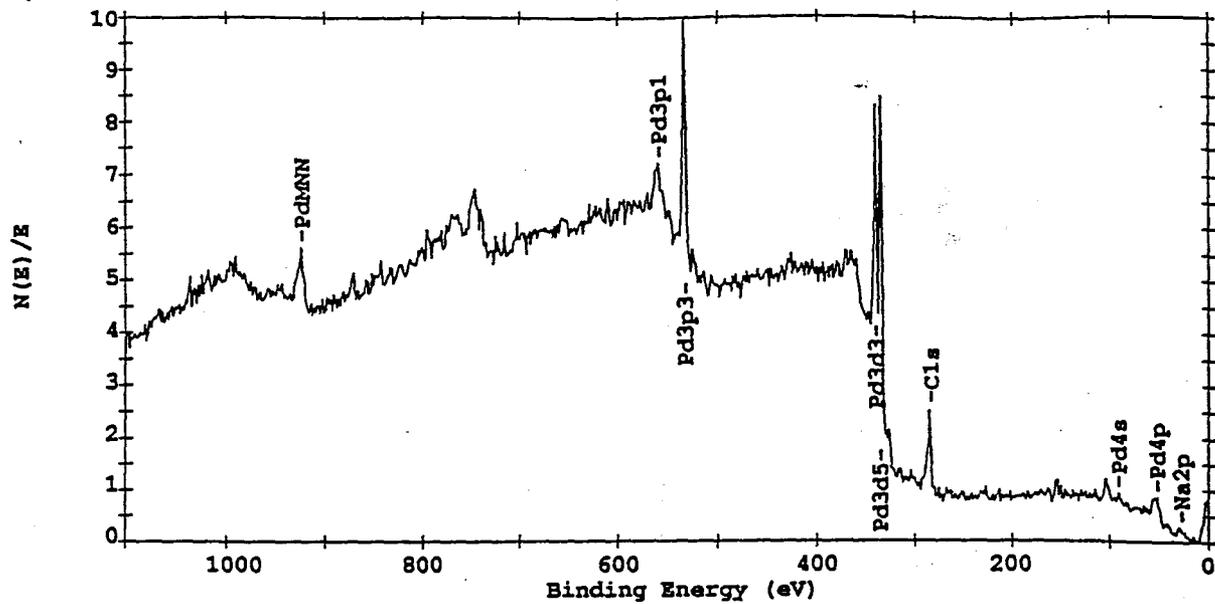


Fig.39 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in H₂ gas

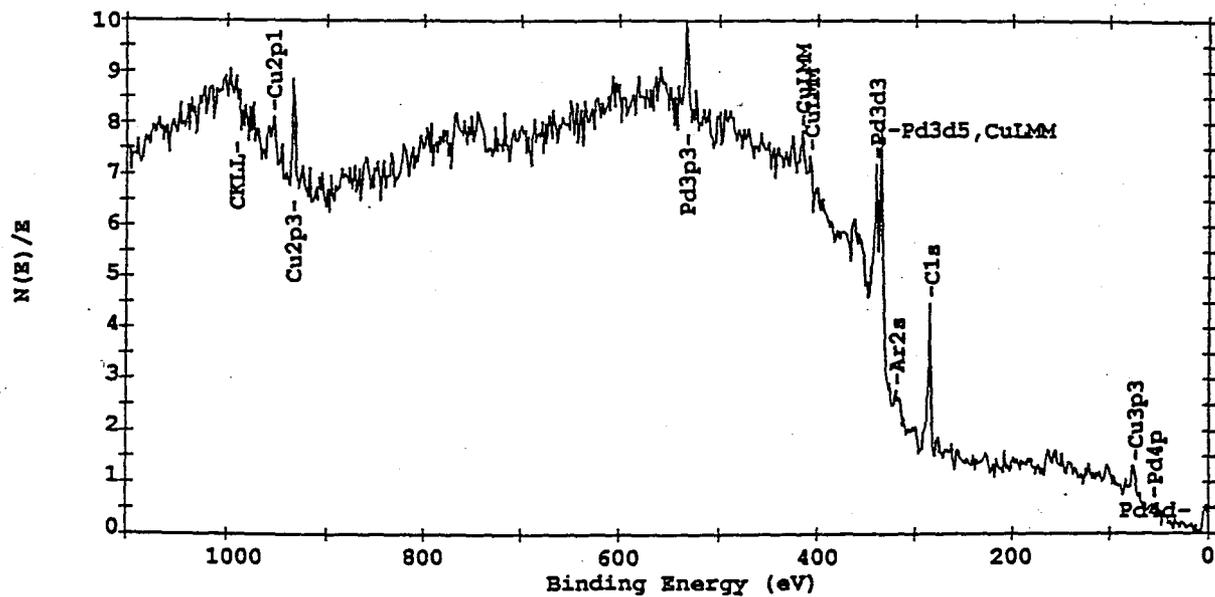


Fig.40 The XPS spectrum of Pd-needle after glow discharge in H₂ gas

れば、Feのピークが見られる。この試料は、王水処理済である。Fig.37(a) (5F97G03)は、王水処理済、重水素吸蔵率が0.14、印加電圧は5kV、実験時間が約358時間の試料の分析結果である。スペクトルによれば、Feのピークが多く見られる。この試料についてEDX分析を行ったのが、Fig.37(b)である。XPS、EDXの試料計測範囲がともに微小であるため、同一の箇所を分析するのは困難ではあるが、可能な限り近い箇所での測定に努めた。これによると、Pd以外の元素のピークは見られない。Fig.38(a) (5F97G13D)は、王水処理済、重水素吸蔵率が0.68、印加電圧は5kV、実験時間が約48時間の試料の分析結果である。スペクトルによれば、Pd以外ではモリブデンのピークが多く見られる。また、他のスペクトルに比べて形状が急峻になっている。このことから、X線が試料に正確に照射されておらず、XPS装置のモリブデン製マスク(試料押さえ板)に照射されてモリブデンが検出された可能性が考えられた。この試料についてEDX分析を行ったのが、Fig.38(b)である。これによると、Pdピークの右側の領域に元素は見られない。

Fig.39(5F97G16H)は、軽水素を用いた対照実験後の試料の分析結果である。試料は王水処理済、軽水素吸蔵率0.91、印加電圧5kV、実験時間約12時間である。このスペクトルによれば、Pd以外のピークは見られない。Fig.40(5F97G17H)もまた、軽水素使用実験後の試料の分析結果である。試料は王水処理済、軽水素吸蔵率1.09、印加電圧5kV、実験時間約24時間である。このスペクトルによると、Pd以外にCuのピークが見られる。これは、テストセルの陰極がCu製であり、電界によって削り取られたCuが舞い上がって針に付着したと考えられる。このように、軽水素を用いた試行後の試料からはとくに検出元素は見られなかった。

7.2.3 低気圧グロー実験で用いた試料

低気圧グロー実験 28 回のうち 6 回の試料について XPS 分析を行った。そのうちの 1 試料の分析結果について Fig.41 に示す。スペクトルにおいて、Fe のピークが見られる。また、O1s-と C1s-の間にある 2 本の極大なピークは、図には表示されていないがパラジウムのピークを示すものである。残りの 5 試料については、Pd 以外の元素は見られなかった。

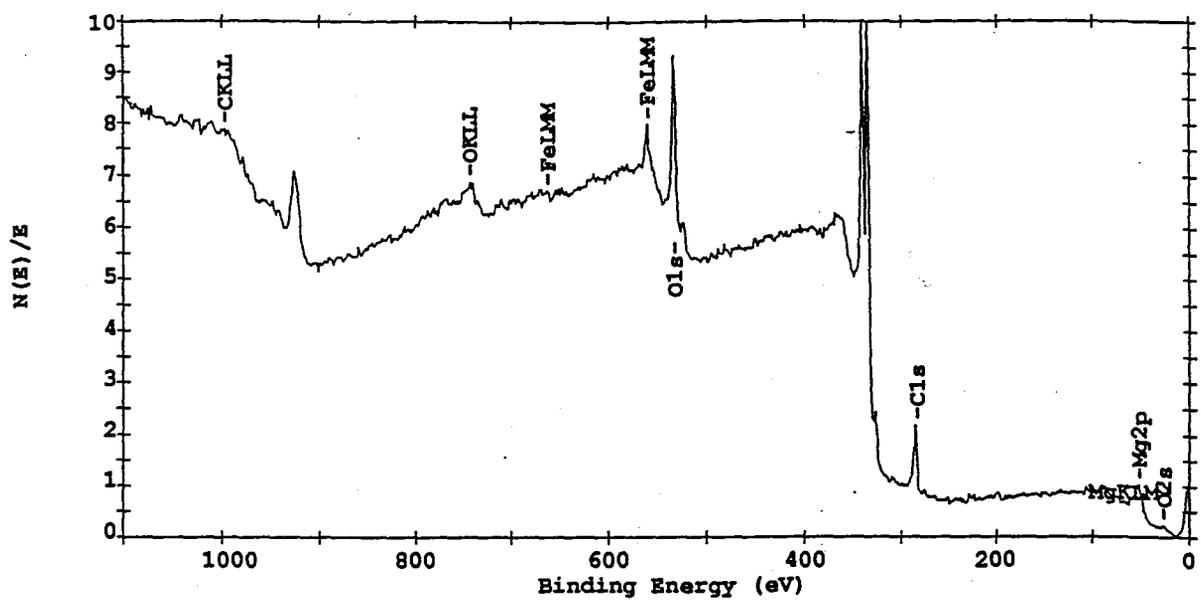


Fig.41 The XPS spectrum of Pd-plate after glow discharge in D_2 gas

第8章 ま と め

直径 0.5 mm、長さ 30 mmのパラジウム線を研磨して針状とし、焼きなまし後に、2気圧の重水素に24時間放置して重水素を吸蔵させた。パラジウム針を陽極、テストセルの内壁および底部を陰極、ギャップ長を10mmとして、針対平板電極を構成し4–8kVの直流電圧を印加して、グロー放電を形成した。電圧印加と同時にヘリウム3比例計数管により過剰中性子を、NaIシンチレーションカウンターによりガンマ線(高エネルギー電磁波光子)の計測を行った。1試行の電圧印加時間(中性子とガンマ線の計測時間)は24–100時間である。全試行回数は59である。中性子、ガンマ線ともバックグラウンドを越える値はどの試行でも得られなかった。試行終了後にX線光電子分光法(XPS)およびエネルギー分散型X線分光法(EDX)により、針電極先端表面の元素分析を行った。11試料中4試料において鉄、マンガン、銅、銀がXPSにより検出された。マンガンが検出されたパラジウム電極についてはEDXでもマンガンが観られる。

バックグラウンド中性子が比較的豊富な屋外において同様なテストセルを用いて同様な試行後にXPSによる元素分析を試みた。ただし、この屋外の実験では中性子とガンマ線の計測を省いている。13試行中3試行で用いた3パラジウム電極において鉄、スカンジウムが検出された。

さらに、低気圧グロー放電用のテストセルを用いて、内部の重水素圧を3Torrとして低気圧グロー放電状態を1時間保ち、その間、ガンマ線と中性子の計測を行った。電極構成は準平板対平板(棒対平板)である。棒側を陽極、平板側を陰極とし、平板電極上に重水素を吸蔵させた厚さ0.3mm、直径10mmのパラジウム円板を配置した。バックグラウンドを越える中性子計測数はなかったが、28試行中10試行においてガンマ線スペクトル上にバックグラウンドとは明らかに異なるピークが認められた。このピークは106 keVのエネルギーの電磁波(ガンマ線)に対応している。放電に伴うパラジウム中の重水素原子の移動がパラジウム中またはその表面近傍において核反応を誘起したと考えられる。また、ガンマ線が観測された1つのパラジウム板電極でXPSにより鉄が検出された。