

JAERI - M
90-134

常温核融合確認実験 (第2報)

1990年8月

化学部・アイソトープ部
共同実験チーム

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 いばらき印刷㈱

常温核融合確認実験（第2報）

日本原子力研究所東海研究所
化学部・アイソトープ部
共同実験チーム*

（1990年7月17日受理）

1989年3月下旬のFleischmannとPonsら及びJonesらによる「重水電解法による常温核融合反応」成功の報道以来、1年以上を経過し、その間世界各国で精力的な反応確認実験が進められてきたにもかかわらず、いまだ明白な結論は得られていない。

原研ではこれまでに、化学部、物理部及びアイソトープ部の各研究分野からなる共同実験チームを編成し、反応確認のための実験を行ってきた。前報¹⁾では1989年7月までに得た結果を報告したが、本報告ではそれ以降、1990年4月までに得た実験結果について報告する。

本研究では、①提案された各種系での反応を追試すること及び②反応率が高く再現性のある新しい反応系を見出すことを目的として、主として次の実験を行った。

- i) パラジウムを陰極とする重水電解法、
 - ii) 重水素を加圧導入したチタン及びチタン合金を用いて冷却-昇温法（乾式法）、
 - iii) 重水素ガス中でのパラジウム2極間放電法における中性子発生率の測定、
- ならびに、
- iv) 用いた材料中の α 線放射性核種の分析、である。

これまでに、電解法、乾式法、放電法いずれにおいても、中性子発生率は毎秒0.1個以下であることを明らかにした。また、500マイクロ秒以下の短時間内に放出される中性子（いわゆる中性子バースト）についても、再現性のある結果を得ることができなかった。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

※共同実験チーム構成員

化学部；立川圓造，平林孝罔，吉田善行，荒殿保幸，木村貴海，青柳寿夫，
米沢仲四郎，佐藤 亮，小原和弘
アイソトープ部；棚瀬正和，加藤岑生

In Search of Cold D-D Nuclear Fusion (II)

Cooperative Researching Team* of
Departments of Chemistry and Radioisotopes
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 17, 1990)

Since the success of "Cold Nuclear Fusion by the Electrolysis of D_2O " was reported in March, 1989, the experiments for confirming the phenomena have been carried out by the cooperative team of Departments of Chemistry and Radioisotopes in JAERI. The following items have been studied;

- (i) The measurements of the neutron emission rate during the electrolysis of D_2O using various palladium cathodes,
- (ii) The measurements of neutron emission rate from titanium and titanium alloy sponge in pressurized D_2 gas,
- (iii) The measurements of the neutron emission rate from the palladium rods stimulated with a high voltage discharge between the rods, and
- (iv) The determination of α -emitting nuclides contained in the materials used for the experiments.

The results so far proved are as follows;

- ① The neutron emission rate is less than 0.1/sec in both the D_2O -electrolysis and the gas-type experiment,
- ② The burst emission of neutron is not observed.

In the present report, the results obtained during August, 1989 - April, 1990 are summarized.

Keywords: Cold Nuclear Fusion, Experiments, Electrolysis

* Members of cooperative researching team;

E. Tachikawa, T. Hirabayashi, Z. Yoshida, Y. Aratono, T. Kimura,
H. Aoyagi, C. Yonezawa, R. Sato, K. Obara (Department of Chemistry),
M. Tanase and M. Katoh (Department of Radioisotopes)

目 次

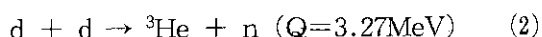
緒 言	1
実験と結果	3
I. パラジウム陰極重水電解法	3
1. 実 験	3
1.1 大容積パラジウム電極を用いる電解法	3
1.2 透過型パラジウム膜電解法	3
1.3 中性子計測法 (^3He 中性子計測装置)	4
2. 結 果	4
2.1 大容積パラジウム電極を用いる電解法	4
2.2 透過型パラジウム膜電解法における中性子計測	5
II. チタン及びチタン合金を試料とする重水素加圧/冷却-昇温法 (乾式法)	6
1. 実 験	6
1.1 反応試料の調製と冷却-昇温操作法	6
1.2 中性子計測法	6
2. 結 果	6
III. パラジウム電極気相放電法	8
1. 実 験	8
1.1 電極材料及び重水素ガス	8
1.2 反応容器	8
1.3 放電装置	8
1.4 中性子計測法	8
1.5 放電操作法	8
2. 結 果	9
IV. 中性子放射化分析法によるパラジウム, チタン材料中のウラン, トリウムの定量	10
1. 分析方法	10
2. 結 果	10
考 察	11
参考文献	13

Contents

Preface	1
Experimentals and Results	3
I. PALLADIUM/D ₂ O ELECTROLYTIC METHOD	3
1. Experimental	3
1.1 Electrolysis with palladium electrode of large volume	3
1.2 Electrolysis with permeable palladium foil	3
1.3 Measurement of neutron emission	4
2. Results	4
2.1 Electrolysis with palladium electrode of large volume	4
2.2 Electrolysis with permeable palladium	5
II. Ti OR Ti-ALLOY/D ₂ GAS PHASE METHOD	6
1. Experimental	6
1.1 Preparation of sample and procedure of temperature change ..	6
1.2 Measurement of neutron emission	6
2. Results	6
III. Pd-Pd/D ₂ HIGH VOLTAGE DISCHARGE METHOD	8
1. Experimental	8
1.1 Electrode material and D ₂ gas	8
1.2 Reaction vessel	8
1.3 Apparatus for discharge	8
1.4 Measurement of neutron emission	8
1.5 Procedure for discharge	8
2. Results	9
IV. DETERMINATION OF U AND Th IN Pd AND Ti MATERIALS BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS	10
1. Analytical procedure	10
2. Results	10
Discussion	11
References	13

緒 言

従来の理論によると、0.074nmの核間距離をもつD₂分子内の核同志が室温付近で核融合反応(1)、(2)を起こす確率は毎秒10⁻⁷⁴程度であり、ほぼ零に近い。



1989年3月にあいついで公表された2件の研究報告^{2,3)}は、固体中に高密度に重水素が凝集された系において、上記理論値をはるかに上回る確率のd-d核融合反応を検知したとするものであった。いずれもごく普通の方法でPdあるいはTiを陰極とする重水電解中に、大量の過剰発熱と微量のγ線、トリチウム²⁾、あるいは微量の中性子³⁾を検出している。ただし、実測値から推定される反応率は両者の間に6桁以上の開きがある。いずれにしても従来説をくつがえすこれら実験結果には大きな関心が寄せられてきたが、とくに過剰発熱を伴うとされる反応には、科学においてのみならずエネルギー源としての重要性が強調されてきた。この「常温核融合反応」成功の報道以来、1年以上を経過し、その間世界各国で広範な観点から精力的な反応確認実験が進められてきた^{4,5)}にもかかわらず、いまだ明白な結論は得られていない。今年3月、米国ソルトレークシティで開催された第1回常温核融合反応国際会議では多くの研究グループから過剰発熱、中性子発生、トリチウム生成等の反応を支持する結果が報告された。一部ではこれに基づいて、“常温核融合反応は程度の違いこそあれ疑いもなく存在すると認めざるをえない状況にある”と受け取られている。一方これに反して、反応を確認できなかったとする否定的データも数多く報告されている。昨秋に公表された米国エネルギー省からの調査報告書⁶⁾では、“反応を支持する根拠は得られなかった”と結論されている。また、最近の英国ネイチャー誌にも盛んに反応を否定する論文、論説が掲載されている^{7,8)}。このように反応はいまだ確認されておらず、さらに肯定的なデータ自身再現性も乏しいため、系統的な研究はほとんど進んでいないのが現状である。

ところで1989年12月初頭に我が国の研究者によって従来の報告例と比べると圧倒的に多量の中性子を検出したとする2件の報告があいついだ。和田ら⁹⁾の実験では真空中放電によって表面処理したPdに重水素ガスを吸収させる過程で、十分に有意な差のある中性子を検出している。とくに重水素を吸収したのちの2つのPd電極間で12kVの交流放電を行った時、BGの2万倍にあたる中性子を観測し、反応がおこるためにはPd中で重水素が過飽和状態を作り出すことが大きな要因であると報告している。さらに、荒田ら¹⁰⁾は大きなPd電極(2cm径×5cm長)を陰極とする電解法によって極めて多量の中性子発生を検出したと公表した。あわせて彼らはPd中への重水素の吸蔵過程における“ON-OFF効果”を提案し反応条件を解明したと報告している。もしこれが再現性のある事実だとすれば低温核融合研究がさらに進捗すると期待される。

さらに最近では、ロスアラモス研究所¹¹⁾、イタリアのフラスカッチ研究所¹²⁾等からの報告によって、核融合反応による大量のトリチウム生成が確認され、またこの時の反応が、上式(1)と(2)がほぼ同率で起こるといふ従来から認められている説からほど遠いものであることが明らかにされた。

一方、Jonesらの実験結果に代表されるような極めて微弱な中性子検出については当初より、

宇宙線による影響、あるいは用いる材料中に含まれる放射性核種から発生する高エネルギー粒子による核反応の影響等が指摘されてきた。

原研化学、物理、アイソトープ部では各研究分野からなる共同実験チームを編成し、反応確認のための実験を行ってきた。今回、パラジウムを陰極とする重水電解法、重水素を加圧導入したチタン及びチタン合金を用いて冷却-昇温法（乾式法）、重水素ガス中でのパラジウム2極間放電法、の3手法に重点を置いて中性子発生率の測定を行うとともに、材料中に混在する放射性核種に起因する核反応の寄与を評価する目的で、中性子放射化分析法により用いた材料中のウラン、トリウムを分析した。本報告では、前報¹⁾以降に得た結果について述べる。

実験と結果

I. パラジウム陰極重水電解法

1. 実験

[実験法については文献1)；JAERI-M 89-142も参照されたい。]

1.1 大容積パラジウム電極を用いる電解法

従来用いてきたものより大きな体積を有するパラジウム電極を用いて、以前と同様な電解を行い、電解中の中性子発生率を測定した。電解装置をFig.1に示した。なお本実験では、パラジウム電極の中心部に封入した熱電対で電極内部の温度 (T_2) を、また電極近傍の電解質溶液中及び冷却用循環水中においた2本の熱電対を用いてそれぞれ T_1 及び T_3 を連続測定した。

電解条件は以下のとおりである。

パラジウム電極；20mm径×50mm長パラジウム丸棒，市販品を処理しないでそのまま用いた。

電解質溶液　　；0.1M LiOD

電流　　　　　；10A (一定)

電圧　　　　　；18~20V

電解時間　　　；3週間

なお、電解液の調製法及び用いた電解装置は既報¹⁾の通りである。

1.2 透過型パラジウム膜電解法

用いたセルをFig.2に示す。0.1~0.2mm厚さのパラジウム薄板をはさんで両側にお互いに独立した2室のセル部分を持つ。これを用いるとパラジウム電極の両面で異なった電極反応を進行させることができ、次のようなパラジウム膜中での重水素濃度の非平衡状態を作り出すことができる。と期待される。

重水素透過法；Aセル側のパラジウムを陰極とし-500mAの定電流で電解すると電極内にAセル側から重水素が導入される。一方、Bセル側の電極を電位測定用電極Rに対して+0.5V (重水素がイオン化され、かつパラジウムが溶出しない電位) に保っておくと、電極内部の重水素はBセル側から溶液中に溶出される (この場合パラジウムは陽極)。その結果、パラジウム膜のAセル、Bセル両側表面に大きな重水素の濃度勾配が生じ、膜を通してAセル側からBセル側に重水素が透過する。

膜両面からの重水素導入法；Aセル、Bセルの両側を陰極として電解するとパラジウム膜の両面から多量の重水素を同時に導入することができる。

重水素パルス状導入法；Aセル側から重水素を連続導入しながら、Bセル側での電位を例えば

-1.0Vと+0.5Vの間でパルス的に掃引することによって、Bセル側電極界面で重水素の導入／放出を繰り返すことができる。

本電解法においても電解質溶液、電解装置等は既報¹⁾と同様なものを用いた。

1.3 中性子計測法 (^3He 中性子計測装置)

減速材付き ^3He 比例計数管を用いて全中性子計測を行った。検出器部 (Fig.3参照) は円筒型のポリエチレン減速材 (外形寸法; 400mm径 \times 500mm, 試料室; 150mm径 \times 400mm) 及び試料を中心とする同心円上に配置した ^3He 比例計数管 (米国Reuter-Stokes社製Model RS-P4-0818-202, 直径25.4mm, 有効長457mm, ガス圧4気圧) 32本で構成した。検出器部の全体をカドミウム板 (厚さ0.5mm) 及びホウ酸を含む水槽 (500gホウ酸/20 l, 厚さ約200mm) で遮蔽し, バックグラウンド中性子を低減した。バックグラウンドの計数値は 0.38 ± 0.01 cps (Gross Counting), $(6.8 \pm 0.2) \times 10^{-3}$ cps (Coincidence Counting, $< 500 \mu\text{sec}$) であった。また, ^{252}Cf あるいは ^{241}Am 標準線源で校正した全中性子検出効率は約30%であるが, 低波高部分を除くために常時使用位置におけるそれは試料室内で約20%であった。

計測装置の回路部をFig.4に示した。4本ずつ8組の ^3He 比例計数管からの信号をそれぞれプレアンプ (PA), アンプ (AP) で増幅したのち, サムアンプ (SA) で加算した。パルス波高スペクトルを測定し, 計数管の動作及びノイズ発生の有無等を確認しながら計測した。バックグラウンド測定で得たパルス波高スペクトルをFig.5aに示した。斜線部にウィンドウを設定し, γ 線あるいはノイズによる低波高部分の寄与を除いた。マルチチャンネルスケーリング (MCS) を用いて設定時間毎の計数値を記録した (Fig.5b)。さらに, 中性子同時発生 (いわゆるバースト発生) の確認にはパルス時間間隔分析 (PIA) によって $500 \mu\text{sec}$ の短時間内同時計数値を測定した。バックグラウンド計測時に記録したPIAスペクトルをFig.5cに示した。バックグラウンドとして検出された中性子も $500 \mu\text{sec}$ より短い時間幅内に高い計数値を示しており, 同時発生の特徴を現していることが注目される。一例として $^{241}\text{AmO}_2$ 及び PuO_2 (^{239}Pu ; 85%, ^{240}Pu ; 14%, その他; 1%) を用いて記録したPIAスペクトルをFig.6に示した。 $^{241}\text{AmO}_2$ がランダムな中性子発生挙動を, また PuO_2 が ^{240}Pu の自発核分裂に起因する同時中性子発生挙動を示すことが明らかである。

2. 結 果

2.1 大容量パラジウム電極を用いる電解法

2.1.1 中性子計測結果

全ての電解期間を通して有意な中性子発生は観測されなかった。

2.1.2 パラジウム陰極内部等の温度変化

電解を開始すると同時に, 主としてジュール熱によって T_1 , T_2 ともに上昇するが一定 (T_3 ; 通常 $20 \sim 40^\circ\text{C}$) に保った循環水で冷却され平衡温度に達する。ただし, 蒸発及び電解によって減容した電解質溶液に重水を補充する操作を行うと, T_1 , T_2 はより高い平衡温度に達する。ここ

で T_3 を上昇させると（たとえば70～80℃まで）これに応じて T_1 , T_2 ともに上昇する。ときには電解質溶液が100℃に達して沸騰することがあるが、このような場合でも T_2 は最高102～103℃を超えることはない。全電解操作を通じて、荒田ら¹⁰⁾によって報告されているような電極内部温度が約110℃を超えるような現象、あるいは80～110℃間での温度振動を観測することはできなかった。

2.2 透過型パラジウム膜電解法における中性子計測

パラジウム膜電極電解法において中性子を計測した結果をFig.7に示す。

電極表面あるいは内部において大きな重水素濃度の非平衡状態が生じていると考えられるが、これらの電解法によっても有意な中性子発生を確認することはできなかった。

II. チタンおよびチタン合金を試料とする 重水素加圧／冷却－昇温法（乾式法）

1. 実 験

〔実験方法については文献¹⁾も参照〕

1.1 反応試料の調製と冷却－昇温操作法

ステンレス製反応容器（耐圧60kg/cm²，容量約50ml）は既報¹⁾と同様である。反応容器内にチタンスポンジ（径2～12mm，高純度チタン粒，Aldrich Chemical Co., Inc.製，純度99.5%以上）80gをアルゴン雰囲気中で採取した。これを10⁻⁶torr以下の真空下，150℃で7日間保った。容器を液体窒素で冷却しながら23気圧の重水素ガス（昭和電工（株）社製重水素ガス，純度99.8%以上）を導入した。試料容器全体が十分に冷却されたのち，容器を液体窒素から取り出して中性子計測装置試料部に移動後，放置して室温まで昇温した。この冷却－昇温サイクルを繰り返しながら（6サイクル）その間の中性を連続計測した。

チタン系662合金（Ti:V:Al:Sn=86:6:6:2）を切削加工したチップ（2mm×0.1mm×5mm）を試料として上記と同様な実験を行った。チップ22.3gをアセトンでよく洗浄後，反応容器に採取し，真空下，150℃で2～3時間保った。真空下で室温とし重水素ガス50気圧を容器内に満たしたのち，中性子検出器試料部に試料容器を設置し，容器を液体窒素で冷却した。液体窒素を自然気化させることによって試料温度を室温まで約20時間かけてゆっくりと昇温した。さらに，試料容器をリボン状ヒータを用いて数百度℃まで加温した。この冷却－昇温操作を繰り返しながらその間の中性を計測した。

1.2 中性子計測法

I パラジウム陰極重水電解法，1.3節で前述した³He中性子計測装置を用いた。また，前報¹⁾で述べたBF₃中性子計測装置も用いた。

2. 結 果

チタンスポンジを試料として用いたときの中性子計測結果の一例をFig.8に示す。これは，各冷却－昇温サイクル間の1分ごとの計数値を経過時間とともにプロットしたものである。

第1～5サイクルにおいてそれぞれ1回ずつ，8カウント以上の高い計数値が観測された（この時のバックグラウンドは平均毎分1.9カウント）。特に，第4サイクル中に得られた14カウントは，1分当たり240個の中性子が発生したことに相当する値である。この値は，ロスアラモス研究所の実験結果として報告されている¹³⁾バースト中性子の発生数と同レベルである。ただし，このデータの再現性は得られていない。

上記結果の解析例として計数値の頻度分布を検討した結果をFig.9に示す。1000分間の測定において毎分1.9カウントの平均値が得られた場合の理論ポアソン分布曲線を実線で示し、またバックグラウンドの実測値を○印でプロットした。実測値の分布は理論値とよく一致している。ただし、この図からは実測値として8あるいは9カウントを得る頻度もそう高くはないものありうることがわかる。しかし、第4サイクル中に観測された14カウントという値を得る確率は極めて低く、理論的には約140年に1回程度の頻度となる。さらに、これまでの長時間のバックグラウンド計測において、10カウント以上の高い値が観測されたことはない。

チタン系662合金を試料として用いたときの冷却-昇温サイクルの時間-試料温度曲線を模式的にFig.10に示した。金属チタンを試料とした場合と比較して、662合金を試料としたときの大きな特徴は、後者の場合液体窒素温度から室温までの昇温操作中に試料がほとんど重水素を吸収しないことである。Fig.10に示したように第6、9、12及び第16サイクルでは試料を250~300℃まで加温したが、この操作中に662合金が急激に重水素を吸収することが、容器内圧力を測定することによって確認された。

Fig.10に示したように冷却-昇温サイクルにおいて、バックグラウンドの変動を超える中性子発生は一度も観測されなかった。第1、4、8、16サイクルにおけるMCSによる中性子測定結果をFig.11に例示した。

III. パラジウム電極気相放電法

1. 実 験

1.1 電極材料及び重水素ガス

次の2種類のパラジウム及び重水素ガスを用いた。

- ① パラジウム角棒；高純度化学（株）社製，純度99.9%，2mm×3.5mm×35mm
 - ② パラジウム丸棒；ニラコ（株）社製，純度99.95%，2mmφ×40mm
- 重水素ガス；昭和電工（株）社製

1.2 反応容器

パイレックスガラス製容量約300mlの丸底フラスコ（Fig.12）を用いた。容器内の圧力を測定するための圧力計を取り付けた。

1.3 放電装置

理研電機（株）社製ネオントランス（50サイクル，12kV及び6kV）を用いた。

1.4 中性子計測法

次の2種類の中性子計測装置を用いた。

- ① ^3He 中性子計測装置；I章パラジウム陰極重水電解法，1.3節参照。
- ② BF_3 レムカウンター；Harwell, Neutron-Equivalent-Dose Monitor, 95/0949-5/6, Ser. No H63, を用いた。本測定器の計数効率は約0.01%であった。

1.5 放電操作法

1.5.1 放電用重水素吸蔵パラジウム電極の調製

反応容器にパラジウム電極対を取り付け放電装置に電極を接続したのち， 10^{-4} torr程度の真空下で両電極間で放電させ電極を前処理した。通常，約10秒間の放電を10～20回繰り返した。反応容器内に重水素ガス，約760torrを導入し，室温で長時間放置してパラジウム電極に重水素を吸蔵させた。なお，圧力計の指示を記録して重水素の吸蔵挙動をモニターした。

これと別に，パラジウム極を0.25M Li_2SO_4 を含む重水溶液中において陰極電解し（電解電流；500mA，電圧；7.7V，電解時間；122時間，白金対極）パラジウム電極に重水素を吸蔵させた。

1.5.2 放 電

気相からの吸蔵操作を行った場合には，吸蔵操作後そのままの雰囲気中で容器内圧力が760torrになるまで放電させ，中性子を計測した。同様な操作を数回繰り返した。また，電解法によ

り重水素を吸蔵させたパラジウム電極を用いた場合には、電極を放電装置に設置したのち 5×10^{-2} torrまで減圧し、放電操作を行った。さらに放電後、反応容器を重水素ガス約1気圧で満たし、重水素を再導入し放電した。

2. 結 果

ニラコ（株）社製パラジウム丸棒を電極として用いた時の、重水素吸蔵過程における反応容器内圧力の時間変化を一例としてFig.13に示した。この曲線は実験毎に多少異なるが、長時間（10～15時間）放置することによってそれぞれほぼ一定の圧力に到達した。今回行った13実験について、試料調製法をTable 1に一覧した。重水素吸蔵操作前後の容器内圧力変化から重水素吸蔵量を推定し、その結果を同表中に示した。なお、電解導入法では吸蔵量を正確に実測しなかったが、前報¹⁾の中性子回折法による結果を参照すると、D/Pd比で0.7～0.8の重水素が吸蔵されていると推定できる。

重水素ガス吸蔵操作中、放電中及び放電後、連続して中性子計測を行った。13回の同様な実験を繰り返し行ったがいずれにおいても、バックグラウンドの変動を超える中性子発生は観測することができなかった。

また、放電後の電極表面をEPMAにより観察したが、放電前の試料と比べて顕著な変化は認められなかった。

IV. 中性子放射化分析法によるパラジウム, チタン材料中のウラン, トリウムの定量

1. 分析方法¹⁴⁾

試料の中性子照射には, JRR-4, S-パイプを用いた。試料0.05~0.1gを3時間照射後, 5日間冷却したのち, 試料を塩酸及び硝酸で溶解し蒸発乾固した。残留物を1M HClで溶解し, $\text{FeCl}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$, 0.1gを加えて全てのネプツニウムをNp (IV) に原子価調製したのち, 0.5M TTA-キシレン中にネプツニウム (^{239}Np) とプロトアクチニウム (^{233}Pa) を抽出した。有機相中の ^{239}Np と ^{233}Pa をそれぞれ10M HNO_3 及び5M H_2SO_4 中に逆抽出し, これらを測定試料として γ 線スペクトロメトリーにより定量した。標準溶液についても同様な操作を行った。

用いた γ 線スペクトロメータはGe (Li) 検出器 (ORTEC WIN-15型) 及びMCA (CANBERRA 95型) より成る。

2. 結 果

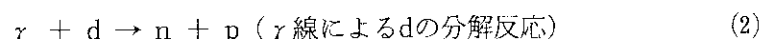
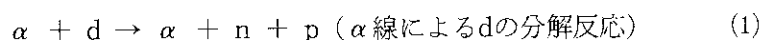
パラジウム, チタン試料の分析結果をTable 2に掲げた。試料中に含まれるウラン及びトリウムはいずれも検出限界以下であった。

考 察

本報告では主として電解法、乾式冷却-昇温法、及び気相放電法における中性子計測の結果について述べた。先に和田ら⁹⁾及び荒田ら¹⁰⁾が報告したような大量の中性子発生を確認することはできなかった。

チタン粒を試料とする重水素ガス中での冷却-昇温実験において、ロスアラモス研究所からの報告¹³⁾で指摘されているような微弱でかつパースト的な中性子発生に対応するとされている異常計数値をまれに観測した (Fig.8参照)。しかし、これらのデータは極めて再現性に乏しいため、これに基づいてd-d核融合反応の確認を結論することはできない。

このような微弱な中性子の測定については当初より指摘されているようなバックグラウンド低減、あるいはノイズ対策が重要であることは言うまでもないが、本研究でも取上げたような材料中に含まれる放射性不純物による中性子発生の寄与を精密に評価する必要がある。今回、材料中に含まれるウラン、トリウムを定量するとともに、次の4つの中性子発生過程についてそれらの寄与を考察した。



今、材料中にウラン及びトリウムがそれぞれ1ppmずつ含まれているとすると材料100g中に含まれる²³²Th及び²³⁸Uの放射能はそれぞれ0.4及び1.2Bqである。また、Fig.14に示すようにウラン、トリウムはいずれも壊変系列を形成し、閉鎖系ではすべての娘核種が等しい放射能で存在する。ここでは簡単にウラン及びトリウム系列の全ての核種が1Bqで存在するとして上記の4つの過程で放出される中性子を評価する。

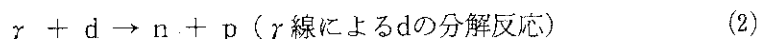
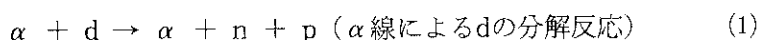
- (1) $\alpha + d \rightarrow \alpha + n + p$; この反応のしきい値は実験系で6.6MeVとされている。したがって、この反応に寄与する主な核種はトリウム系列では²¹²Po (8.8MeV), ウラン系列では²¹⁴Po (7.8MeV) である。また、この反応の断面積は8MeVの α 線に対し約100mbである。これから計算した反応の確率は重水、金属中の重水素及び純粋な重水素に対してそれぞれ 1.6×10^{-5} , 0.6×10^{-5} , 6×10^{-5} , である。したがって、上で仮定した系から放出される中性子は $\leq 10^{-4}$ n/sである。
- (2) $\gamma + d \rightarrow n + p$; dの結合エネルギーは2.18MeVであるから、これより高いエネルギーをもつウラン系列の²¹⁴Bi及びトリウム系列の²⁰⁸Tlから放出される γ 線はdを分解する。なお、これらは(γ , n)中性子線源としてよく知られている。これらの γ 線により発生する中性子の収率は線源から1cm離れた場所での1gのD₂Oに対してそれぞれ、 9.5×10^4 及び 1×10^3 n/s・Ciである。したがって、1kgの重水に対して放出される中性子は $\leq 3 \times 10^{-3}$ n/sである。
- (3) (α , n) 反応; 数MeVの α 粒子は、軽元素の原子核との(α , n)反応により中性子を放出する。いま実験系に含まれる軽元素としてリチウム及び酸素を考える。これらの元素

考 察

本報告では主として電解法、乾式冷却-昇温法、及び気相放電法における中性子計測の結果について述べた。先に和田ら⁹⁾及び荒田ら¹⁰⁾が報告したような大量の中性子発生を確認することはできなかった。

チタン粒を試料とする重水素ガス中での冷却-昇温実験において、ロスアラモス研究所からの報告¹³⁾で指摘されているような微弱でかつバースト的な中性子発生に対応するとされている異常計数値をまれに観測した (Fig.8参照)。しかし、これらのデータは極めて再現性に乏しいため、これに基づいてd-d核融合反応の確認を結論することはできない。

このような微弱な中性子の測定については当初より指摘されているようなバックグラウンド低減、あるいはノイズ対策が重要であることは言うまでもないが、本研究でも取上げたような材料中に含まれる放射性不純物による中性子発生の寄与を精密に評価する必要がある。今回、材料中に含まれるウラン、トリウムを定量するとともに、次の4つの中性子発生過程についてそれらの寄与を考察した。



今、材料中にウラン及びトリウムがそれぞれ1ppmずつ含まれているとすると材料100g中に含まれる²³²Th及び²³⁸Uの放射能はそれぞれ0.4及び1.2Bqである。また、Fig.14に示すようにウラン、トリウムはいずれも壊変系列を形成し、閉鎖系ではすべての娘核種が等しい放射能で存在する。ここでは簡単にウラン及びトリウム系列の全ての核種が1Bqで存在するとして上記の4つの過程で放出される中性子を評価する。

- (1) $\alpha + d \rightarrow \alpha + n + p$; この反応のしきい値は実験系で6.6MeVとされている。したがって、この反応に寄与する主な核種はトリウム系列では²¹²Po (8.8MeV)、ウラン系列では²¹⁴Po (7.8MeV)である。また、この反応の断面積は8MeVの α 線に対し約100mbである。これから計算した反応の確率は重水、金属中の重水素及び純粋な重水素に対してそれぞれ 1.6×10^{-5} 、 0.6×10^{-5} 、 6×10^{-5} である。したがって、上で仮定した系から放出される中性子は $\leq 10^{-4}$ n/sである。
- (2) $\gamma + d \rightarrow n + p$; dの結合エネルギーは2.18MeVであるから、これより高いエネルギーをもつウラン系列の²¹⁴Bi及びトリウム系列の²⁰⁸Tlから放出される γ 線はdを分解する。なお、これらは(γ , n)中性子線源としてよく知られている。これらの γ 線により発生する中性子の収率は線源から1cm離れた場所での1gのD₂Oに対してそれぞれ、 9.5×10^4 及び 1×10^3 n/s・Ciである。したがって、1kgの重水に対して放出される中性子は $\leq 3 \times 10^{-3}$ n/sである。
- (3) (α , n) 反応; 数MeVの α 粒子は、軽元素の原子核との(α , n)反応により中性子を放出する。いま実験系に含まれる軽元素としてリチウム及び酸素を考える。これらの元素

の同位体に対する反応のしきい値は、 ${}^6\text{Li}$, ${}^7\text{Li}$, ${}^{16}\text{O}$, 及び ${}^{18}\text{O}$ に対してそれぞれ6.6, 4.4, 15及び0.85MeVである。なお、 ${}^{17}\text{O}$ はしきい値をもたない。天然組成のリチウム及び酸素の(α , n)反応による中性子収率は6MeVの α 粒子に対してそれぞれ 4.7×10^{-6} 及び $9.9 \times 10^{-8}\text{n}/\alpha$ である。いまウラン及びトリウム系列の核種が材料表面で平均6MeVの α 粒子をそれぞれ10Bqずつ放出しリチウム及び酸素を照射したとすると、全中性子収率は $\leq 10^{-4}\text{n}/\text{s}$ である。

- (4) 自発核分裂反応； ウラン及びトリウム系列で自発核分裂により中性子を放出する核種は ${}^{232}\text{Th}$, ${}^{238}\text{U}$, ${}^{234}\text{U}$ 及び ${}^{230}\text{Th}$ である。中性子収率は、それぞれ 3.02×10^{-11} , 1.095×10^{-6} , 2.17×10^{-11} 及び $1.14 \times 10^{-12}\text{n}/\text{Bq}$ である。したがって、全中性子収率は約 $1 \times 10^{-6}\text{n}/\text{s}$ である。

今回用いたパラジウム、チタン材料中に含まれているウラン、トリウムを実測した結果、これら不純物は数十ppb以下と極めて微量であり、これら核種からの放射線による効果によって毎秒0.01~1個程度の中性子発生を説明することはできない。

さらに、微量中性子測定における宇宙線の影響も多くの研究者によって指摘されているが、明確な結論は得られていない。宇宙線に含まれる高速中性子による材料中での核破碎反応などの寄与を詳細に検討する必要があると考えられる¹⁵⁾。

参考文献

- 1) E. Tachikawa, et. al, JAERI-M 89-142, 1989.
- 2) M. Fleischmann, S. Pons, et. al., J. Electroanal. Chem., 261 (1989) 301.
- 3) S.E. Jones, et. al., Nature, 338 (1989) 737.
- 4) J.M. Schultze, et. al., Electrochim. Acta, 34 (1989) 1289.
- 5) P.K. Iyengar, et. al., ed., BARC-1500 (1989).
- 6) A report of the energy research advisory board to the USDOE, Washington, DC 20585, DOE/S-0073 (1989).
- 7) D.E. Williams, et. al., Nature, 342 (1989) 375.
- 8) D. Lindley, Nature, 344 (1990) 375.
- 9) N. Wada, et. al., Jpn. J. Appl. Phys., 28 (1989) 2017.
- 10) Y. Arata, et. al., Kakuyuugo Kenkyu, 62 (1989) 398.
- 11) T.N. Claytor, et. al., LA-UR-89-39-46 (1989).
- 12) The 1st International Meeting on "Cold Fusion", Salt Lake City, Mar., 1990.
- 13) H.O. Menlove, et. al., LA-UR 89-1974 (1989).
- 14) C. Yonezawa, et. al., Bunsekikagaku, 37 (1988) 7.
- 15) T. Kimura, Science, submitted.

なお、前報で参照した文献については重複を避けるため割愛したので、それを参照されたい。

Table 1 The list of the samples used for high voltage discharge method

Sample #	Specification	D ₂ -soaking	D/pd ²⁾
1	High Purity Chemetals Co. Ltd, 99.9% 2 mm × 3.5 mm × 35 mm	Room Temperature D ₂ -atmosphere (cf. Fig. 13)	0.168
2			0.356
3			0.356
4			0.422
5			0.457
6			0.524
7	THE NILACO CORPORATION 2 mm φ × 40 mm, 99.95%	Electrolysis ¹⁾	—
8		Electrolysis ¹⁾	—
9		Room Temperature D ₂ -atmosphere	0.157
10			0.445
11			0.445
12			0.457
13			0.550

1) 0.25M Li₂SO₄/D₂O, 0.5A(constant), ca.7.7v.

2) calculated from difference between initial and final pressure of D₂.

Table 2 Analytical results of uranium and thorium in palladium and titanium materials by neutron activation analysis.

Sample	U found, ppb	Th, found, ppb
Palladium rod(#1)	< 6	< 12
Palladium rod(#2)	< 23	< 20
Palladium plate	< 14	< 8
Titanium sponge	< 3	< 30

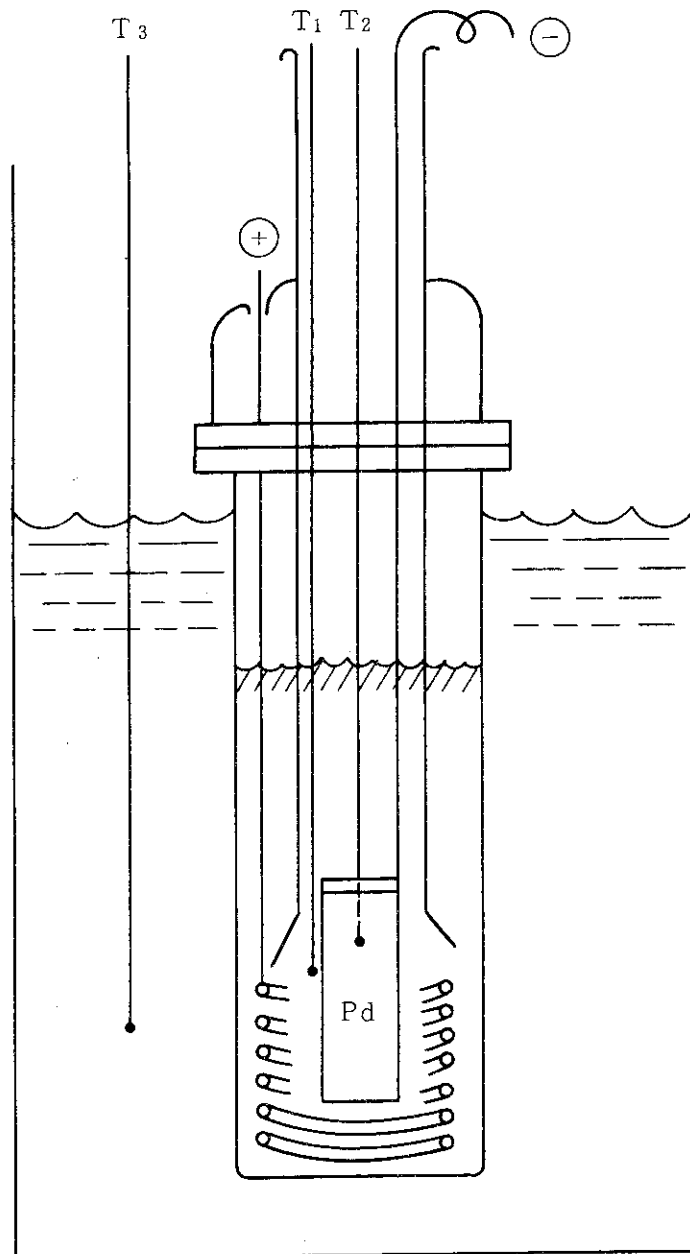


Fig.1 Electrolytic cell with palladium cathode
 cathode ; palladium rod (20mm ϕ \times 50mm)
 anode ; platinum wire (1mm ϕ \times ca.500mm)
 T₁, T₂, T₃ ; thermocouple

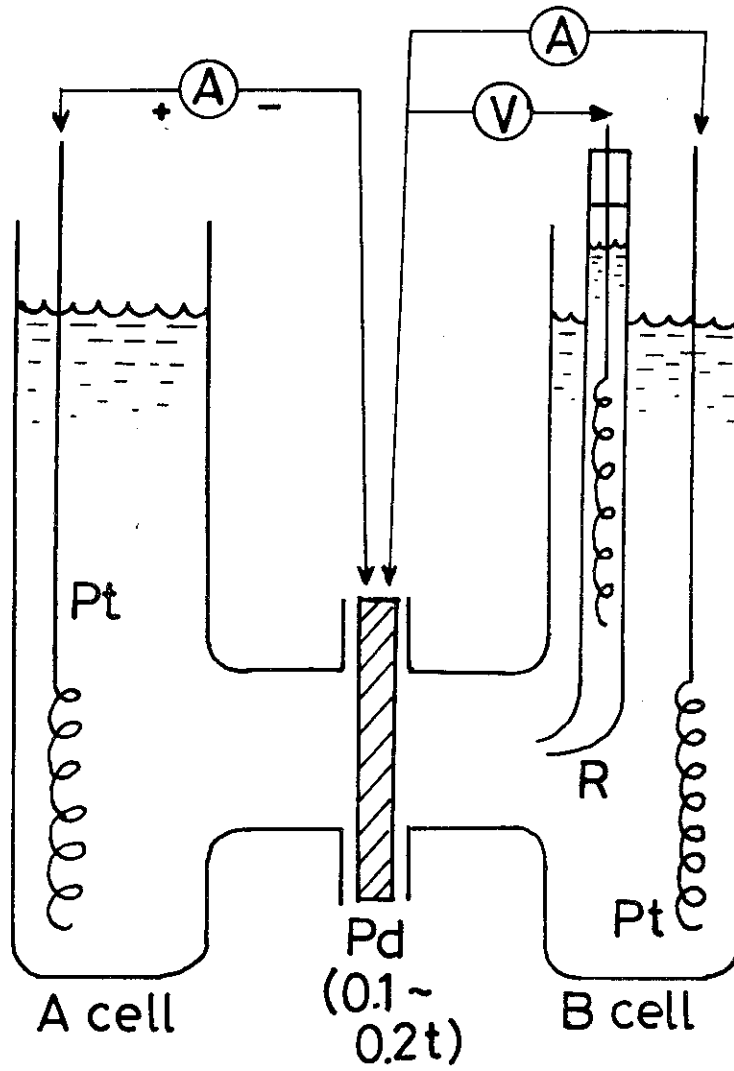


Fig.2 Twin-electrolytic cell
with permeable palladium foil electrode

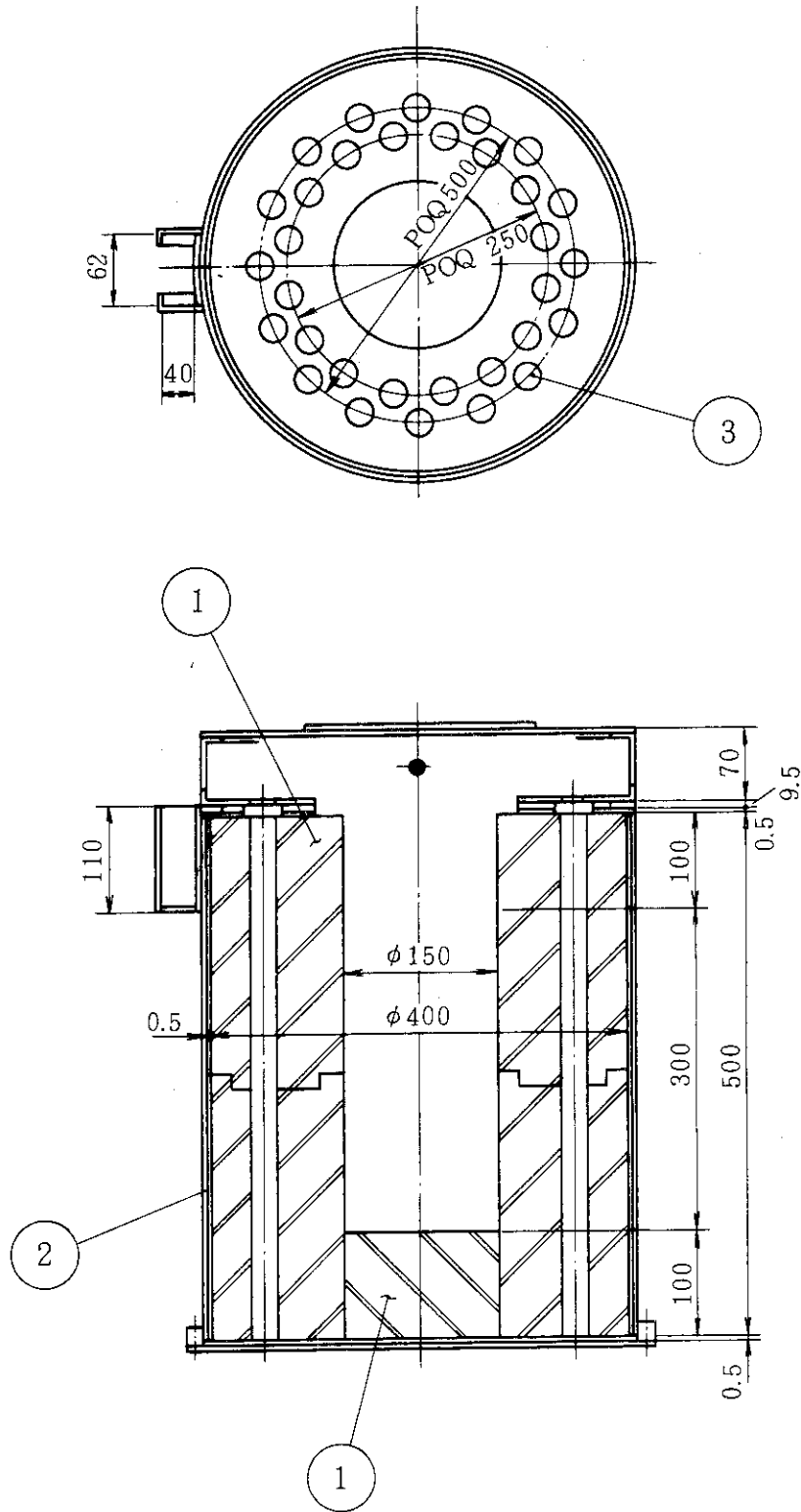
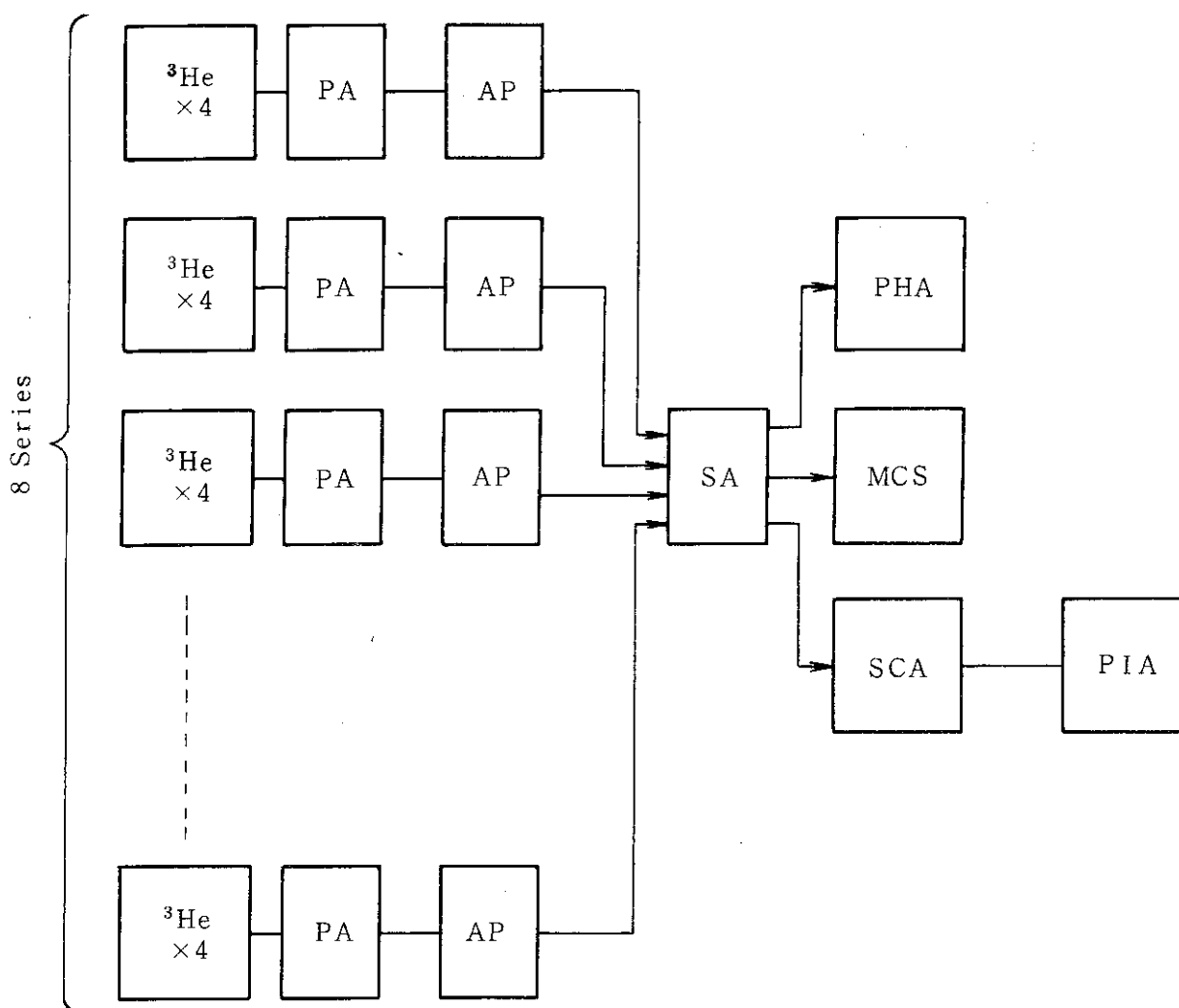


Fig.3 ³He-Neutron Detector

① Polyethylene, ② Cadmium, ③ ³He-Counters (x32)



- PA ; pre-amplifier
- AP ; amplifier
- SA ; sumamplifier
- PHA ; pulse height analyzer
- MCS ; multichannel analyzer
- SCA ; single channel analyzer
- PIA ; pulse interval analyzer

Fig.4 Block Diagram of the Electronics
for ^3He --Neutron Detector

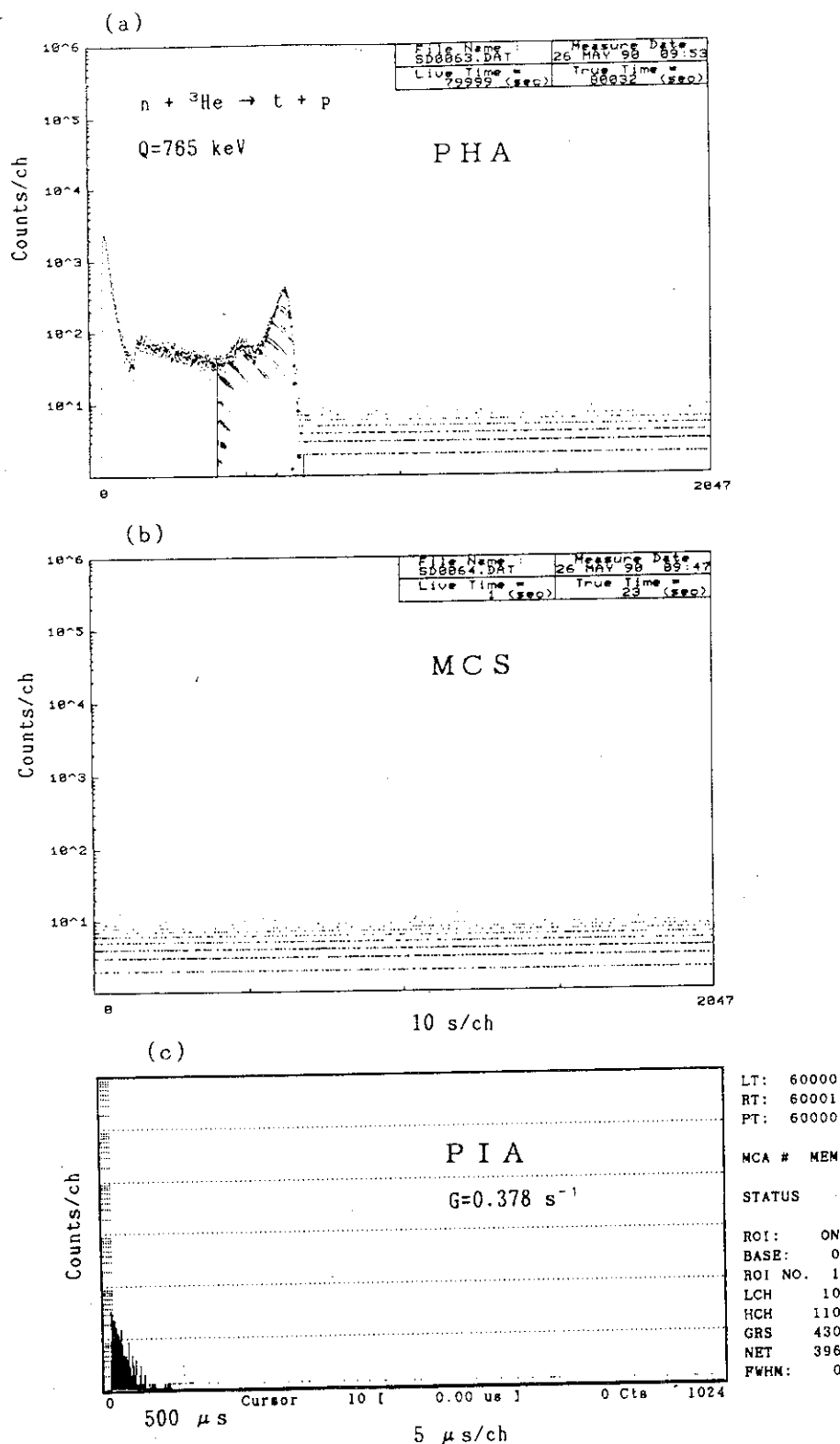


Fig.5 Typical Results of Neutron Counting

- (a) Pulse-height Analysis
- (b) Multichannel Scaling Analysis
- (c) Pulse Interval Analysis

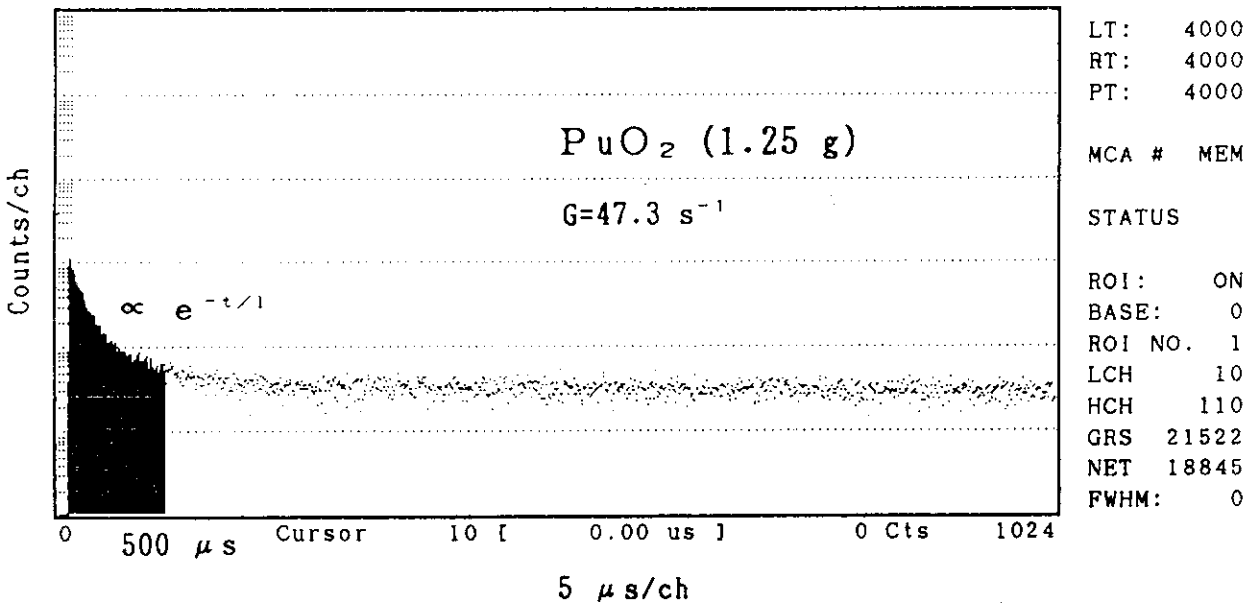
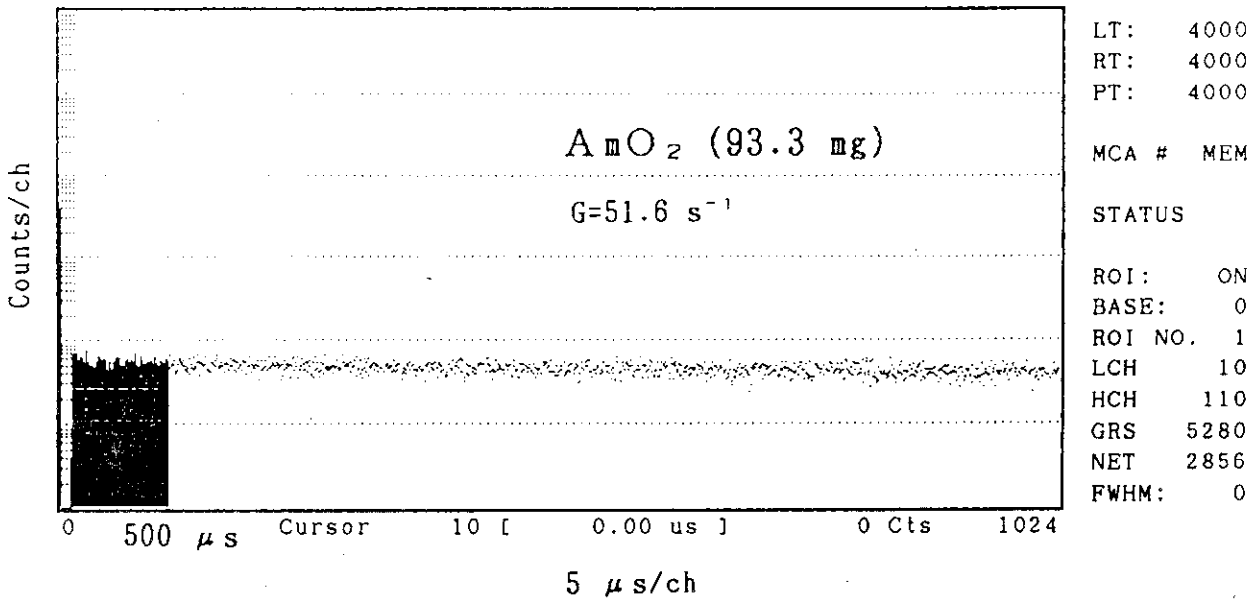


Fig.6 Results of Pulse Interval Analysis
with $^{241}\text{AmO}_2$ -and PuO_2 -Neutron Sources

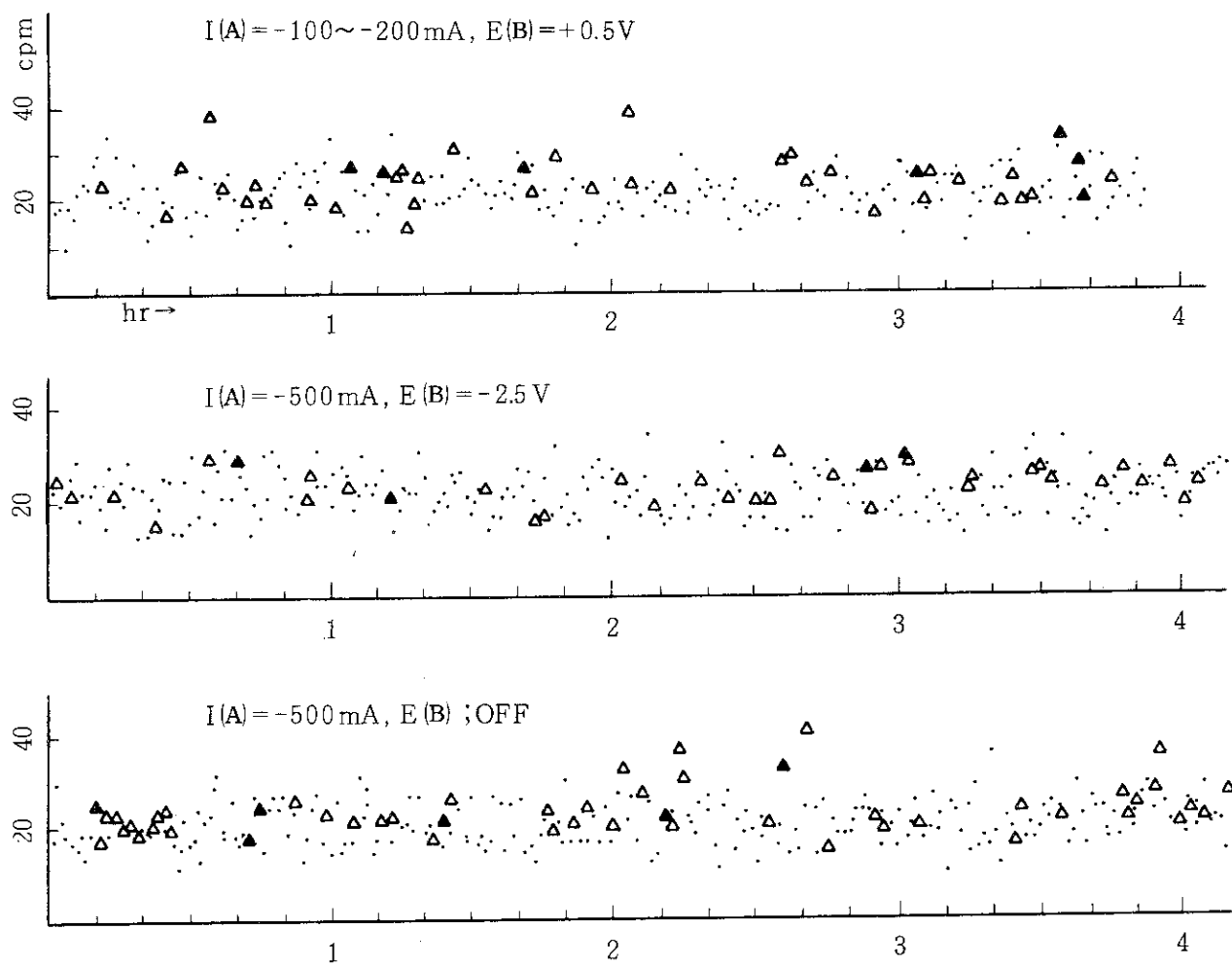


Fig.7 Neutron Counts during Electrolysis with Palladium Film Electrode

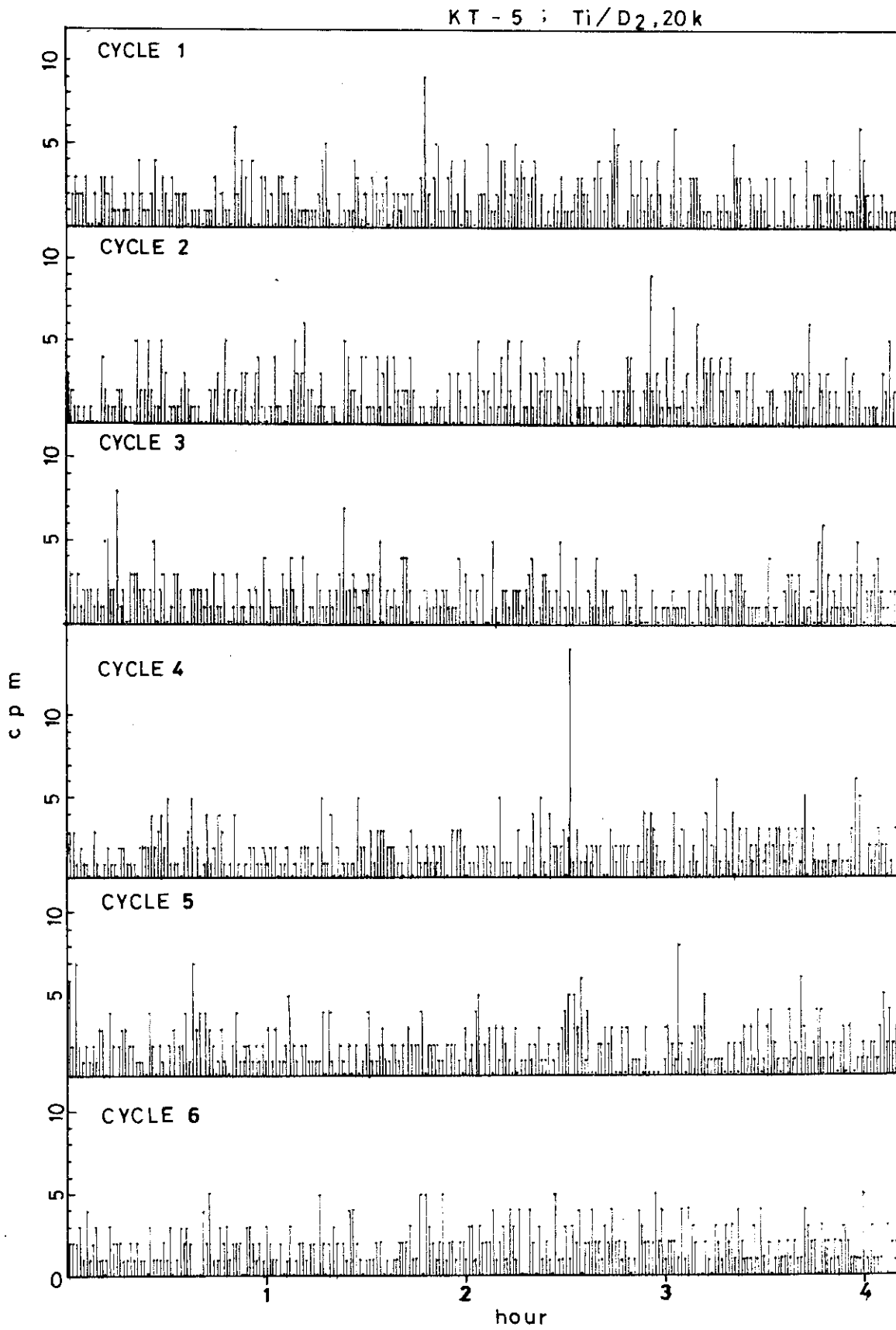


Fig.8 Neutron Counts in Ti/D₂ Gas Phase Experiments.

$n=1000$

$\bar{x}=1.9$

$$P(x) = \frac{(\bar{x})^x e^{-\bar{x}}}{x!}$$

$P(0) = 1.496 \times 10^{-1}$

$P(1) = 2.842 \times 10^{-1}$

$P(2) = 2.700 \times 10^{-1}$

$P(3) = 1.710 \times 10^{-1}$

$P(4) = 8.122 \times 10^{-2}$

$P(5) = 3.086 \times 10^{-2}$

$P(6) = 9.773 \times 10^{-3}$

$P(7) = 2.653 \times 10^{-3}$

$P(8) = 6.300 \times 10^{-4}$

$P(9) = 1.330 \times 10^{-4}$

$P(10) = 2.527 \times 10^{-5}$

$P(11) = 4.365 \times 10^{-6}$

$P(12) = 6.911 \times 10^{-7}$

$P(13) = 1.010 \times 10^{-7}$

$P(14) = 1.371 \times 10^{-8}$

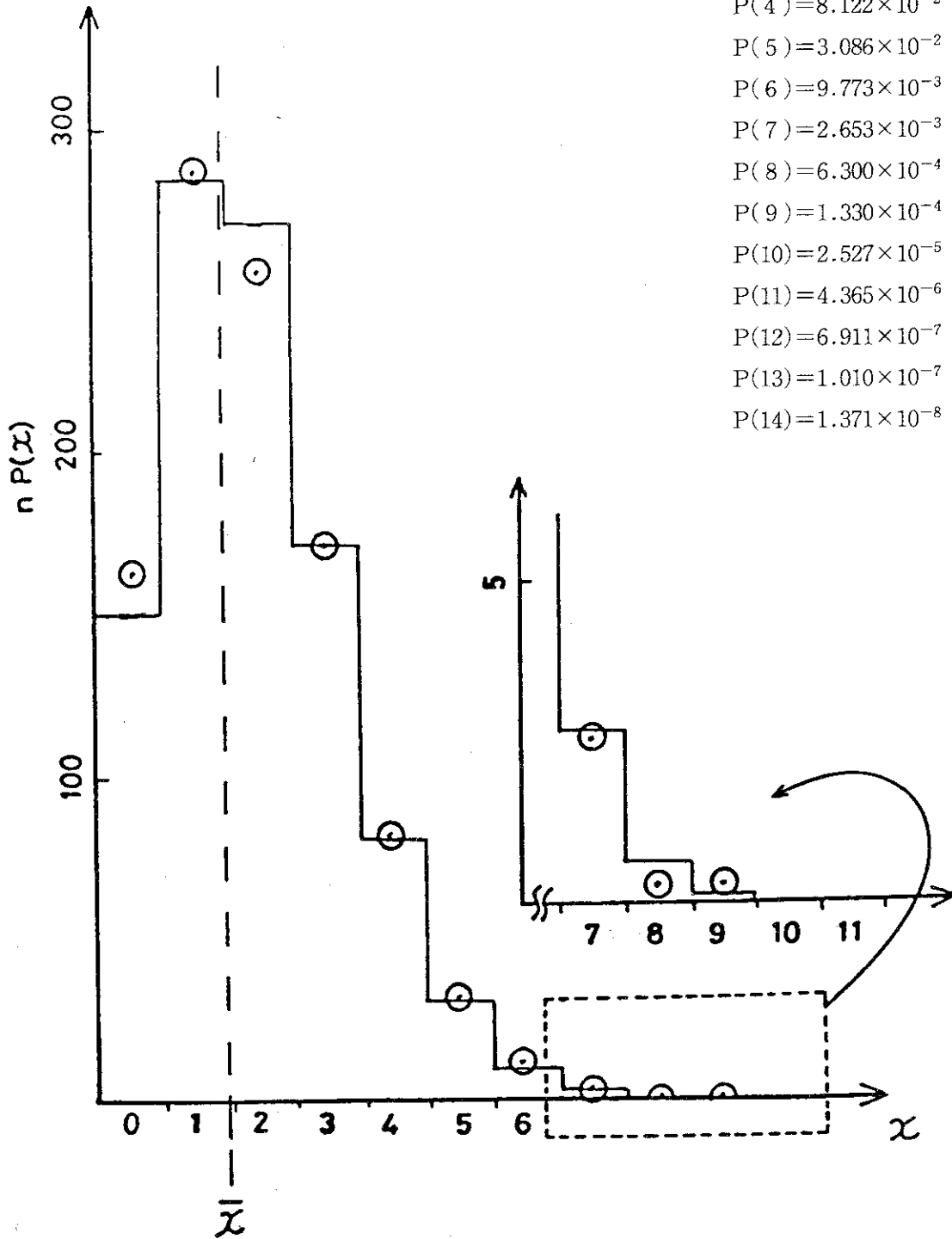


Fig.9 Distribution Function of Neutron Counting Rate for Results of Neutron Counts Given in Fig.8.

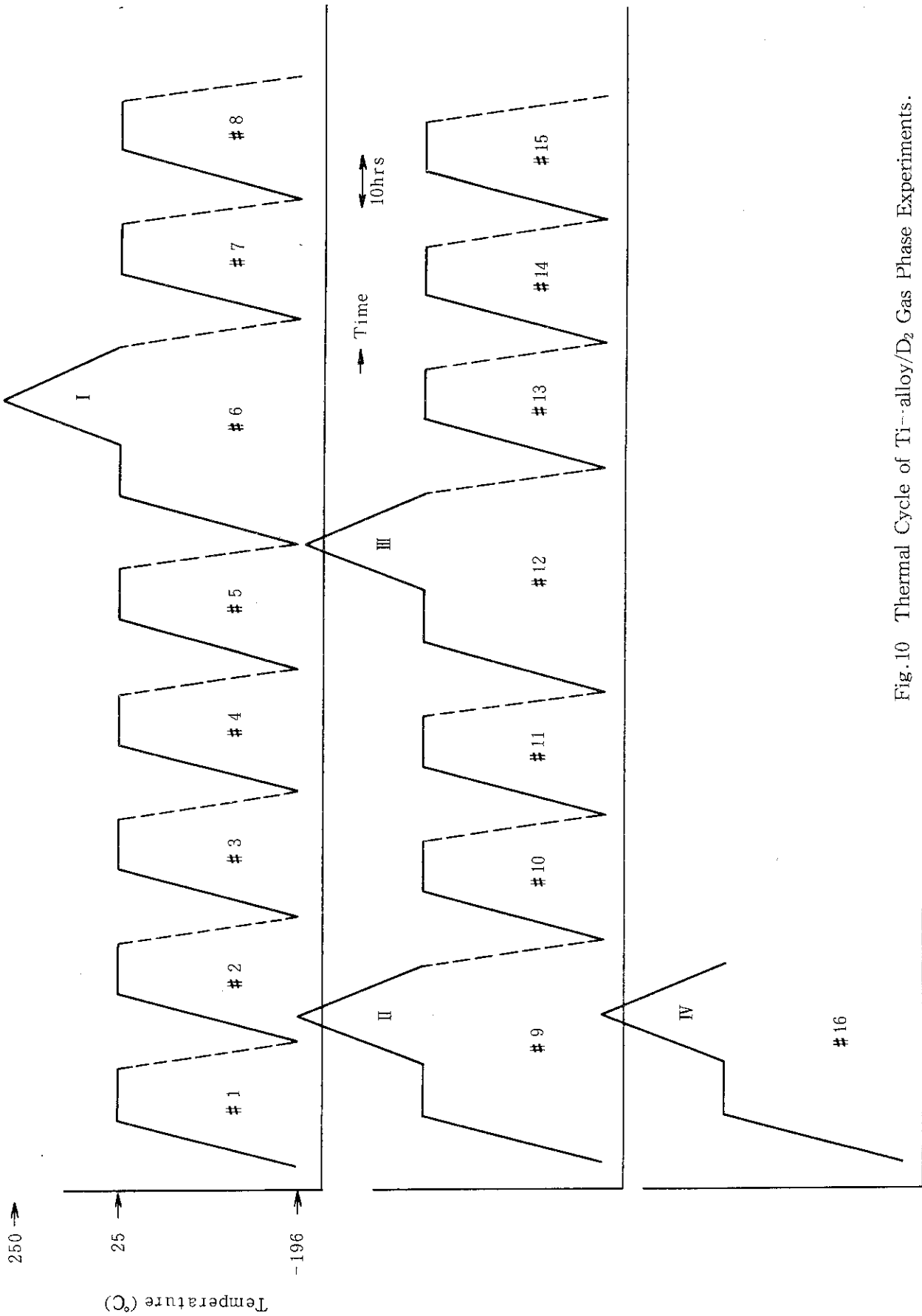


Fig.10 Thermal Cycle of Ti-alloy/D₂ Gas Phase Experiments.

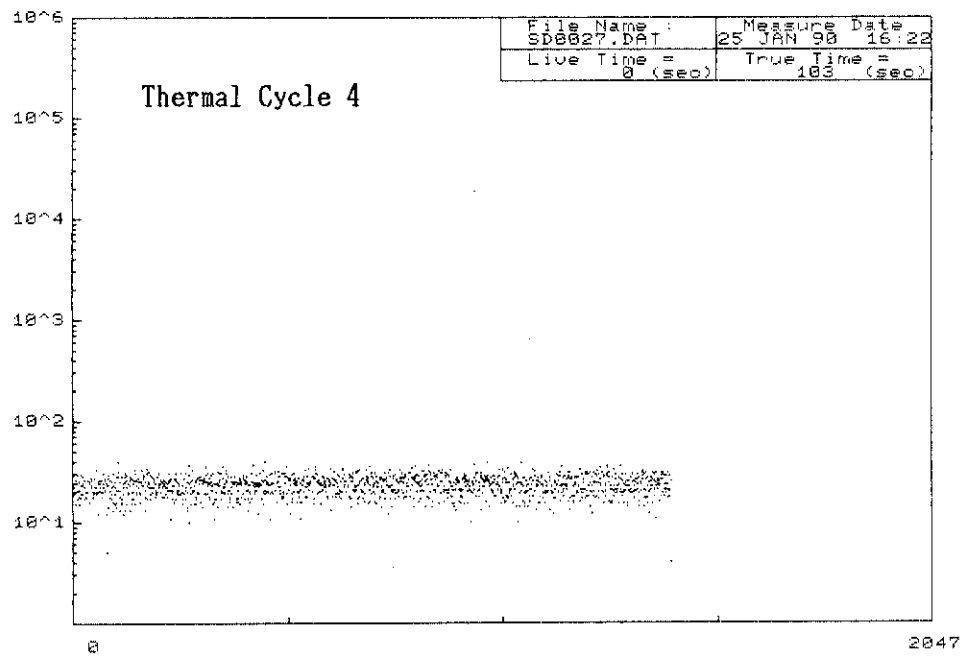
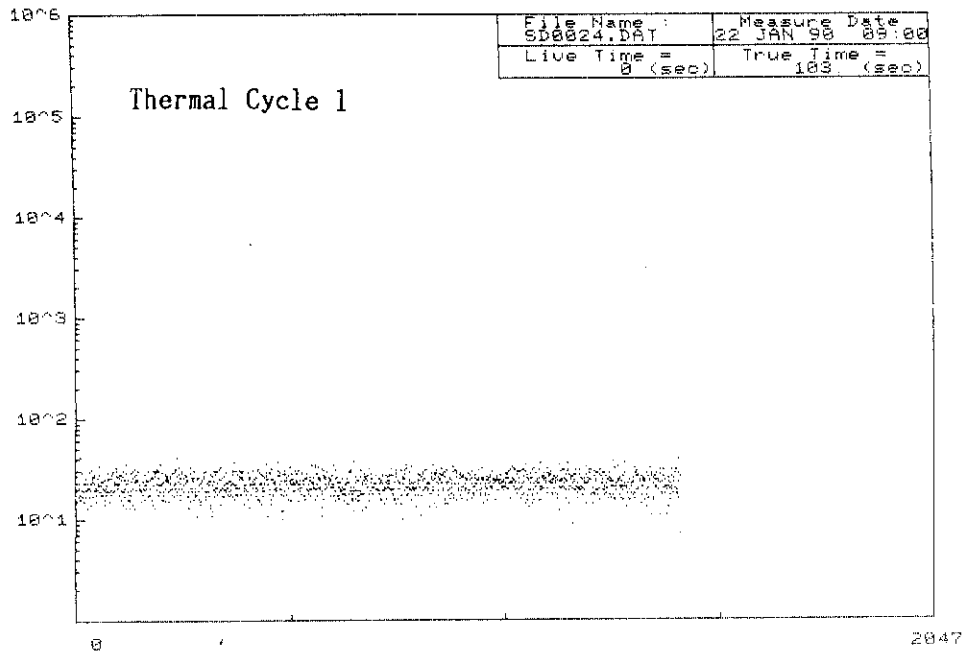


Fig.11 Neutron Counting Rate in Ti-alloy/D₂ Gas Phase Experiments.

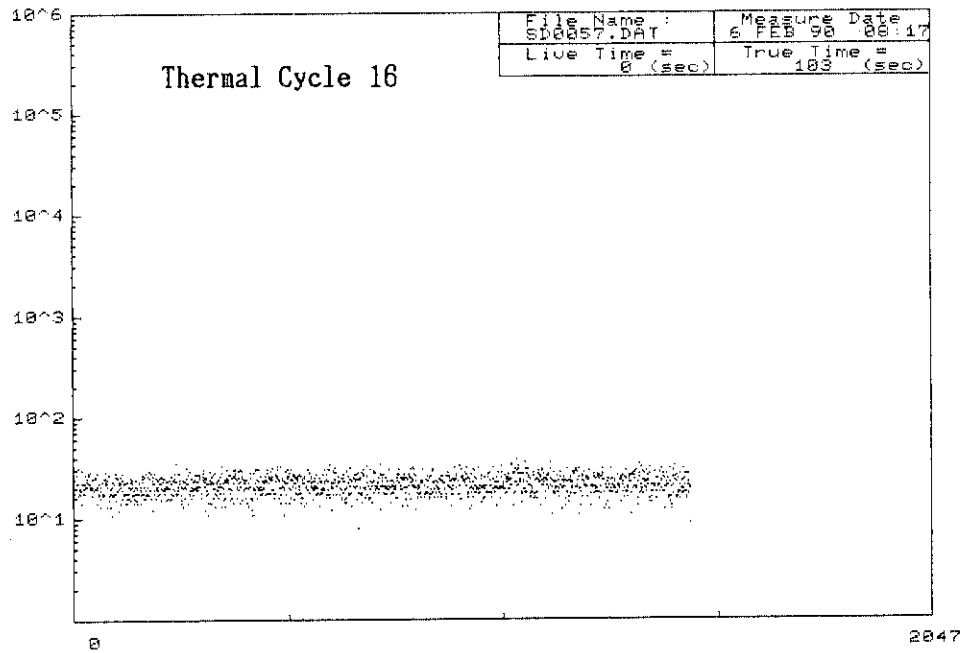
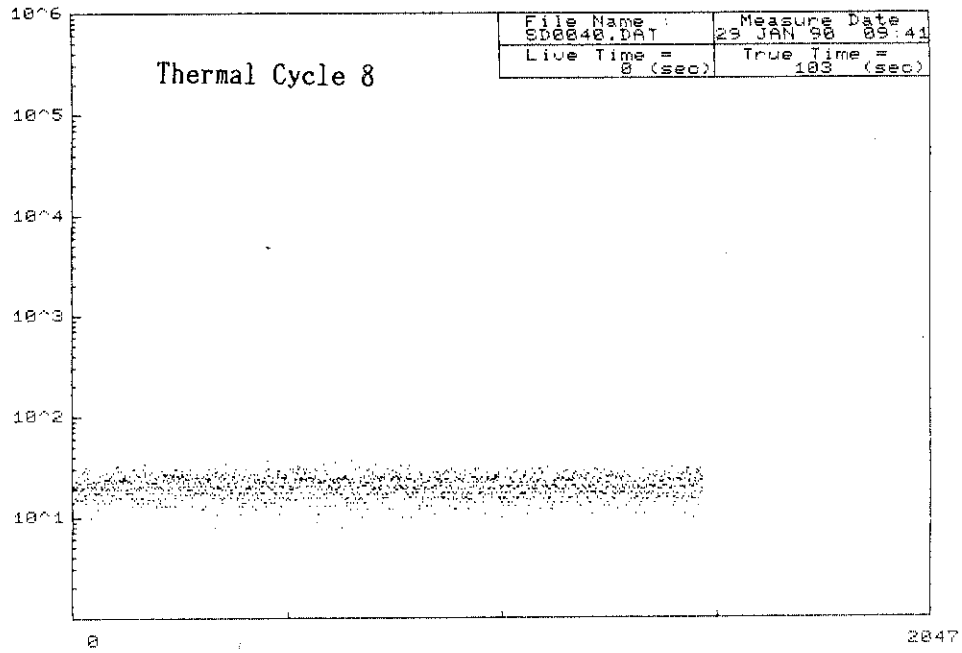


Fig.11 (continued)

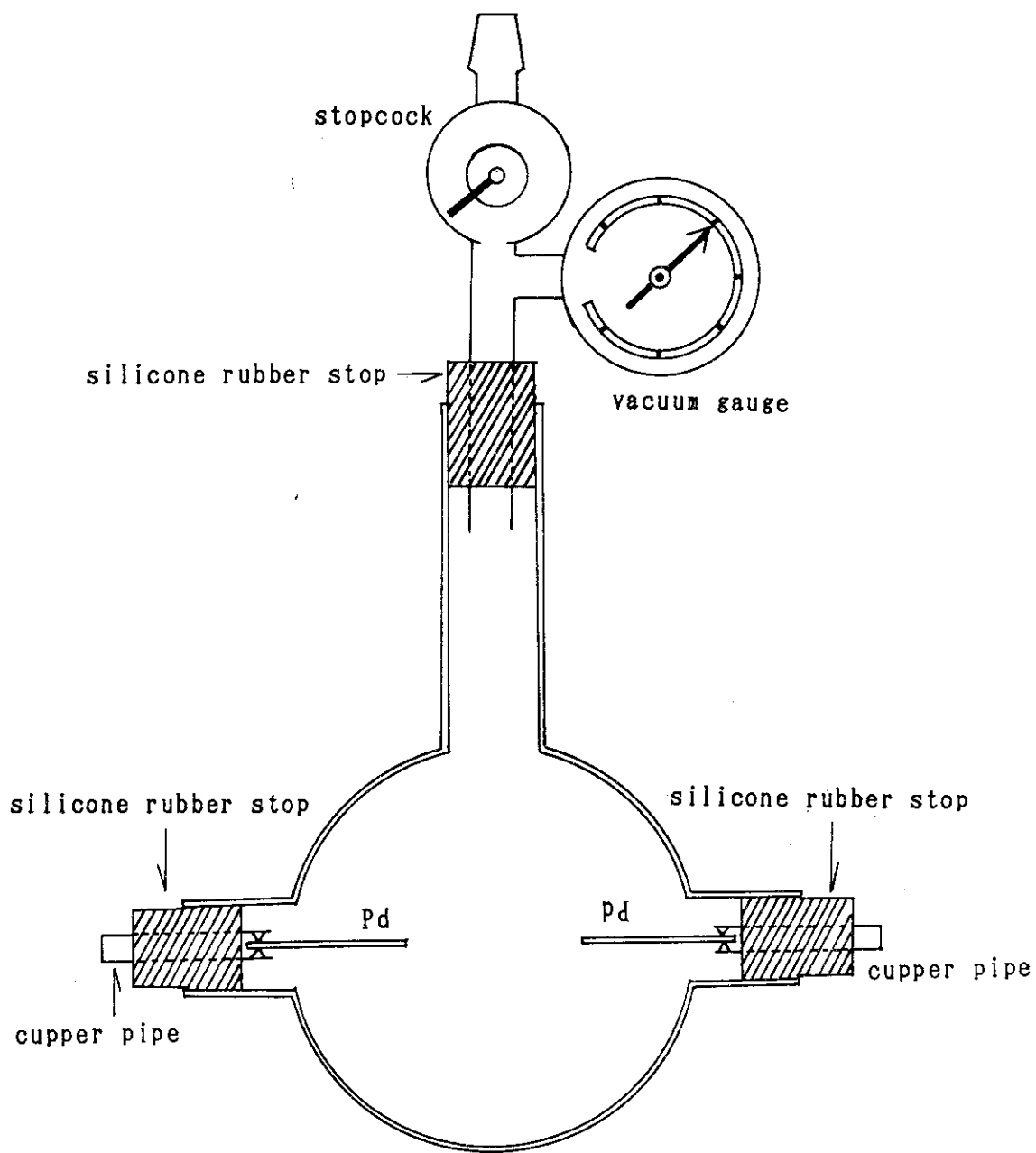


Fig.12 Reaction Vessel for Pd-Pd/D₂ Discharge Experiment

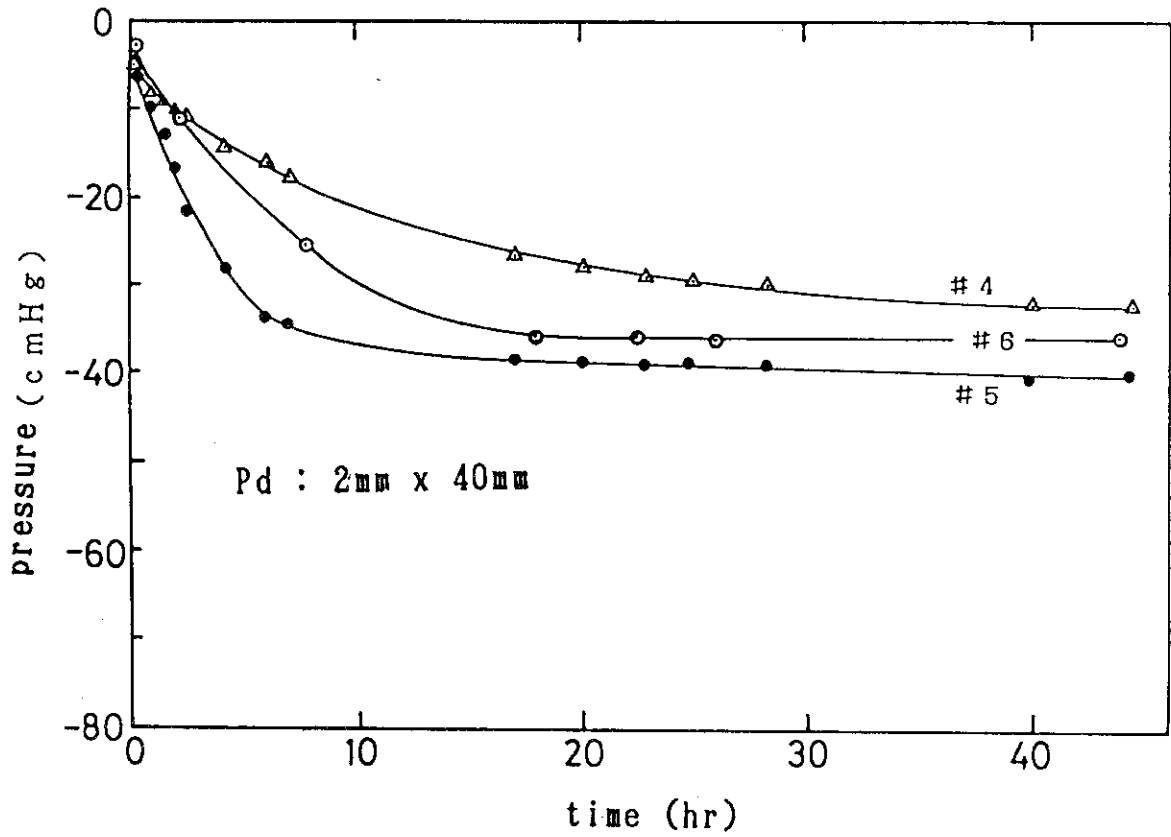


Fig.13 Typical absorption—curves of D₂ by Pd

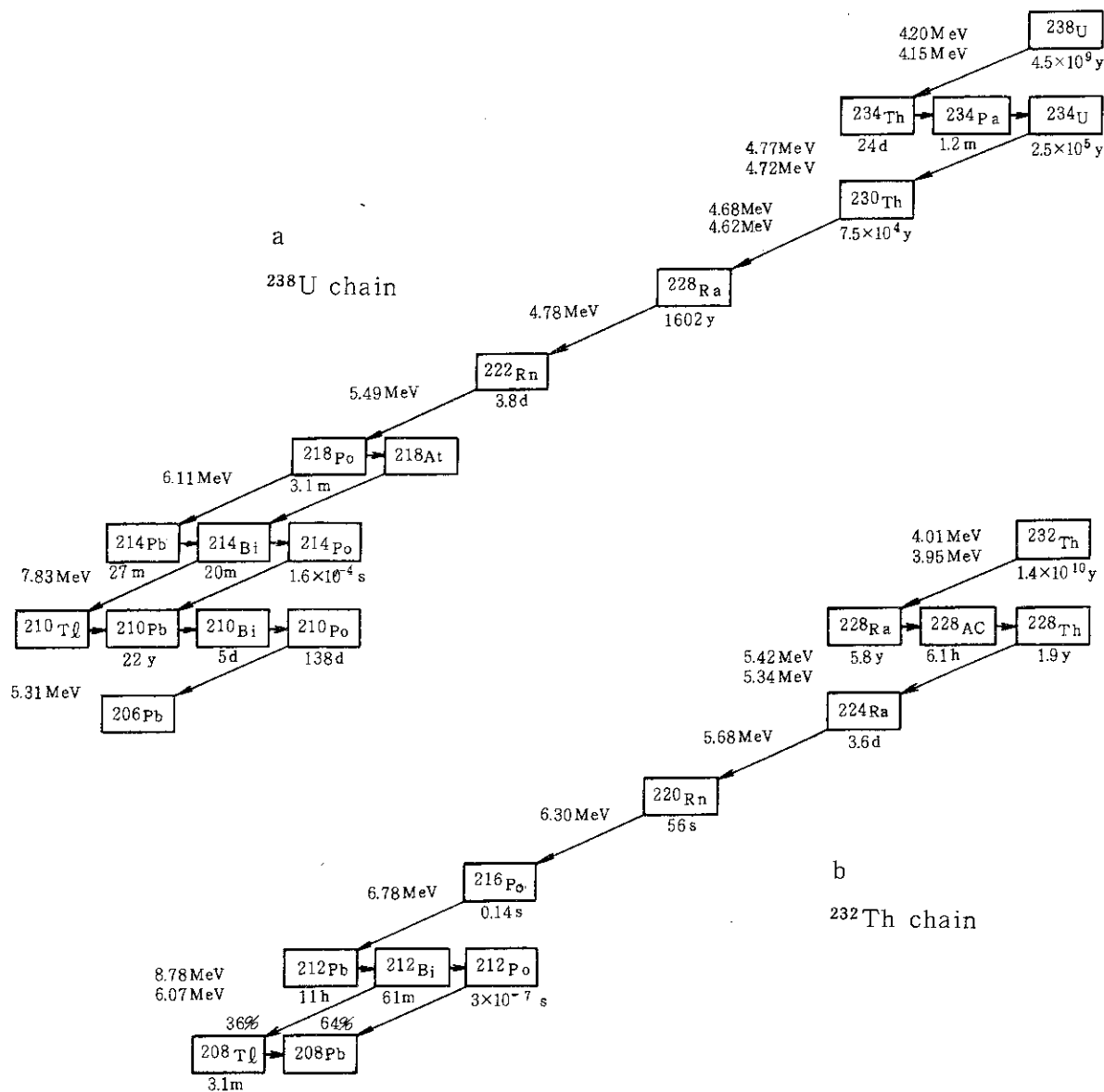


Fig.14 Decay Chains of ^{238}U and ^{232}Th