

低温核融合追試実験中間報告書

1989年10月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター
低温核融合追試ワーキンググループ

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

正誤表

		誤	正
1ページ	2行目	Fleishmann	Fleischmann
1ページ	4行目	Fleishmann	Fleischmann
1ページ	13行目	確認	認識
1ページ	19行目	低の温	の低温

1989年11月

低温核融合追試実験中間報告書

大洗低温核融合追試
ワーキンググループ

要 旨

フライシュマンとポンス及びジョーンズの低温核融合実験の追試実験を行うことにより、低温核融合の可能性について評価した。また、今後の課題についても検討した。

今回の追試実験は大洗工学センター各部よりそれぞれの分野の専門家が集まり実施した。

追試実験における測定項目は、重水の電気分解方式では、中性子、重水電解液中のトリチウム (T) 量、パラジウム (Pd) 電極中の T 量等、重水素ガスを吸蔵させ冷却する方式では中性子である。

今回の追試実験結果をまとめると以下の様になる。

(1) 電気分解方式における T の測定結果については、Pd電極中に濃縮又は分離効果以上の T が生成された可能性がある。

(70時間電気分解で約10pCi (2×10^8 個 T))

(2) 電気分解方式における中性子測定結果については、一部バックグラウンドと優位な差(1.2倍, 3σ 以上)と見とめられる結果が得られたが、その後未だ再現したデータは得られていない。

(3) 重水素ガス方式における中性子測定結果については、40気圧の場合、冷却停止約40分後、温度上昇時にバックグラウンドより多い計測が数度得られた。

これら追試実験結果より低温核融合の可能性について、次の様な推察ができる。

(i) Tの生成から考えて、フライシュマンとポンスの実験のような大量の発熱生はないにしても低温核融合の可能性はあると思われる。

(ii) T生成量と比べる中性子発生数は非常に少ないため、 $D(d, p)T$ 反応と $D(d, n)He$ 反応の分枝比(p/n)が大幅にかたよっている可能性がある。

低温核融合実験に関する今後の課題としては、次のものがあげられる。

- (i) 発熱量の精密測定（装置の整備）
- (ii) 微量中性子測定系の整備(NB213及び ^3He システム) 及び再現性実験
- (iii) Dイオン注入方式による実験
- (iv) 理論研究
- (v) 最適実験方式（材料, 条件）の確立

目 次

1. はじめに	1
2. 各国, 各機関の実験結果	2
3. 実験項目	7
4. 電解液を用いた実験	13
4.1 実験装置	13
4.2 放射線計測	17
4.3 トリチウムの測定	34
4.3.1 液体シンチレーションカウンターでの測定	34
4.3.2 質量分析器での測定	57
5. 重水素ガスを用いた実験	60
5.1 実験装置	60
5.2 測定方法	60
5.3 測定結果	60
6. 低温核融合の理論	83
7. ま と め	84
8. 今後の課題	86
参考文献	88
謝 辞	89
付録1 予備実験	90
付録2 低温核融合追試実験における中性子計測計画	97
付録3 Dイオン注入方式による実験計画	103
付録4 低温核融合関連主要論文の和訳	105
付録5 執筆者及びワーキンググループメンバー	127

1. はじめに

FleishmannとPons¹⁾がPd電極を用いた重水の電気分解により、多量の熱及び中性子が発生したという発表は、“低温核融合(Cold Fusion)”として、全世界の科学者に大きな衝撃を与えた。

Fleishmann等とは独立にJones等²⁾は、TiとPd電極を用いた重水の電気分解により低いレベルの中性子の発生確認したとNatureに発表した。

更に、イタリアのENEA³⁾、Grano Sasso 研究所⁴⁾及びロスアラモスの Menlove⁵⁾等はTiを入れたステンレス容器内に重水素ガスを加圧して入れ、その容器の温度を変化させることによりバースト的に中性子の発生を確認したと発表している。

また、このような発見に対して世界各国で追試実験が行われ、Positive^{6) 7)}あるいはNegativeな結果も出されつつある。それを裏付ける理論的な考察もいくつか出されているがまだ確固したものとは言いがたい。

大洗工学センターとしては、低温核融合が将来の我々の仕事に大きな影響を与える可能性があるとの確認の基に、本年4月に大洗低温核融合追試ワーキンググループを設置し、追試実験に着手した。

ワーキンググループは各部の協力を得て、それぞれの分野の専門家により構成された。

追試実験は、電気分解による方法、重水素ガスによる方法に着目し、中性子、重水中のT、Pd等電極中のT、熱等の測定を行った。

本報告書は大洗における追試実験の第1ステップの結果をまとめたものである。また、第2ステップ以降の低温核融合実験の構想についてもまとめている。

2. 各国，各機関の実験結果

表2.1及び表2.2に各国，各機関の低温核融合実験結果（電気分解方式及び重水素ガス方式）の主なものを示す。また，付録5にフライシュマンとポング及びジョーンズの論文の和訳を示す。

表2.1(1) 各国、各機関の低温核融合実験結果
(重水電解液を用いた実験)

研究機械等	実験条件及び実験結果	備考
<p>1. サウスサンプト (英) ユタ大 (米)</p> <p>① フライシュマンとポ ンス</p> <p>② 3/23</p> <p>③ 論文 (J. Electroanal. Chem. 261(1989))</p>	<p>1. 実験条件</p> <ul style="list-style-type: none"> • 電解液 99.5% D₂O 0.1M LiOD • 電極 陰極… Pd 棒 陽極… 白金 (1, 2, 4mm φ × 10cm) • 電流 8~512mA/cm² <p>2. 実験結果</p> <ul style="list-style-type: none"> • 中性子 バックグラウンドの3倍 • トリチウム 標準液の7倍 • 熱 4 MJ/cm² (入熱の7~10倍) 	<p>付録5参照</p>

表 2. 1 (2) 各国, 各機関の低温核融合実験結果
(重水電解液を用いた実験)

研究機械等	実験条件及び実験結果	備考
2. プリガム・ヤング大学 ① S. E. Jones 他 ② 3/29 ③ 論文 (Nature 4/27)	1. 実験条件 ・電解液 ~160gの重水, 微量の AuCN ~0.1gの各種金属塩 ・電極 陰極…Ti, Pd 陽極…Au箔 ・電圧 3~25V ・電流 10~500mA 2. 実験結果 ・中性子 BGの4倍 $4.1 \pm 0.8 \times 10^{-3}$ 個/秒(2.5MeV)	付録 5 参照
3. テキサス A & M 大学 ① K. L. Wolf 他 ② 5/23 ③ サンタフェワークシ ョップでの発表	1. 実験条件 ・電解液 重水+LiOD, LiOH, NaOD ・電極 Pd-Ni 2. 実験結果 ・中性子 BG(0.8個/分)の3.4倍 (2.5MeV) ・T 5×10^{12} 個	・Pd…950°C, 1時間 アニール→真空冷 却 ・実験200回中 2回中性子検出 ・中性子発生前のT 量は不明
4. 北海道大学工学部原子 力工学科 ① 水野忠彦 秋本正, 両助手 ② 9月号 ③ 核融合炉研究連絡会 会報(日本原子力学 会)	1. 実験条件 ・電解液 重水+0.5M LiOD ・電極 陰極…棒状Pd 陽極…螺 旋状 ・電流 200mA/cm ² 2. 実験結果 ・BG(7日間計測)…1個/1000秒 ・中性子(18.2日間実験)…2.5MeVを 中心にしたガウス状分布で, ピー ク値がBGの20倍の中性子を計測	・暗い地下室で実験 ・γ線と熱電子ノイ ズを除去して計測 実施 ・Pd…真空中20時間 800°C→D ₂ ガス中 8時間アニールを 実施

表2.1(3) 各国, 各機関の低温核融合実験結果
(重水電解液を用いた実験)

研究機械等	実験条件及び実験結果	備考
<p>5. 東海大学 原子力工学科</p> <p>① 阪本重康教授</p> <p>② 10/18</p> <p>③ 日本原子力学会1989 年秋の大会</p>	<p>1. 実験条件</p> <ul style="list-style-type: none"> • 電解液 重水+NaOH • 電極 陰極…Pd 陽極…Pt • 電流 10~20mA <p>2. 実験結果</p> <p>第一段階</p> <ul style="list-style-type: none"> • 中性子 核融合を示す中性子は検出されず • 温度 実験230時間中, 7~8時間にわたり最高12°Cの上昇 <p>第二段階</p> <ul style="list-style-type: none"> • 中性子 25~52個/90分 BGは25個/分以下 	<p>…1.5~2cc</p> <p>• 空調なし (室温変化あり)</p>
<p>6. インド</p> <p>① Iyengar</p> <p>② 7/3</p> <p>③ ICENESV (Fifth International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems)</p>	<p>1. 実験条件</p> <ul style="list-style-type: none"> • 電解液 重水+5M NaOD • 電極 陰極…Pd-Ag, 陽極…Ni • 電流 100A <p>2. 実験結果</p> <ul style="list-style-type: none"> • 中性子 17758counts/300sec(BF₃) • トリチウム 中性子×10⁸個 	

表2.2. 各国, 各機関の低温核融合実験結果
(重水素ガスを用いた実験)

研究機械等	実験条件及び実験結果	備考
1. イタリア・ENEA, ローマ ① A. De. Ninno他 ② 4/19 ③ Europhysics Letters	1. 加圧重水素ガス実験条件 ・ガス 重水素ガス最大50気圧 ・金属材料 Ti ・温度 ① 77k維持, 及び77k →室温 ② 重水素ガスを排気 →77k 2. 実験結果 ① ラングム状に平均70個/時, BG の35倍 ② ガウス分布状に発生, 最高320 個/10分, 平均1000個/時, BGの 500倍	・削りくず状の Ti100g
2. ロスアラモス国立研究 所 (LSNL) ① H. O. Menlove S. E. Jones 他 ② 5/24 ③ サンタフェワークシ ョップ	1. 加圧重水素ガス実験条件 ・ガス 重水素, 20~50気圧 ・金属材料 Ti又はPd被覆Ti ・温度 77k →室温 2. 実験結果 (中性子) ① バースト状 ・最高85個 ② ランダム状 ・室温到達後12時 間あたり, 0.05~0.2個/秒, (BGの 11倍)	←チップ, スポンジ 状のTi30~200g

3. 実験項目

今回の追試実験の検討フローを図3.1に示す。実験は大きく分けて電気分解方式と重水素ガス方式の2つについて行った。

電気分解方式の実験では以下パラメータの基に中性子、重水中T、Pd電極中T、発熱の測定を行った。

- (1) 陰電極種類…………… Pd及びTi
- (2) Pd形状, 大きさ…… Pd棒 (1cm ϕ × 3 cm), Pd板 (2cm²~50cm²)
- (3) 電解液…………… LiOH, Li₂SO₄ 等
- (4) 電解時間…………… 24時間~7日
- (5) 電圧, 電流

重水素ガス方式の実験ではTiをステンレス容器に入れ, 重水素ガス圧をパラメータにして中性子測定のみを行った。

これら実験において確認すべき事項を表3.1~表3.3に示す。

なお, 発熱量の測定は測定装置(熱量計)の整備が未だ行われていないので, 熱電対による温度変化のモニターだけに留まっている。

図3.1 低温核融合追試実験項目とフロー

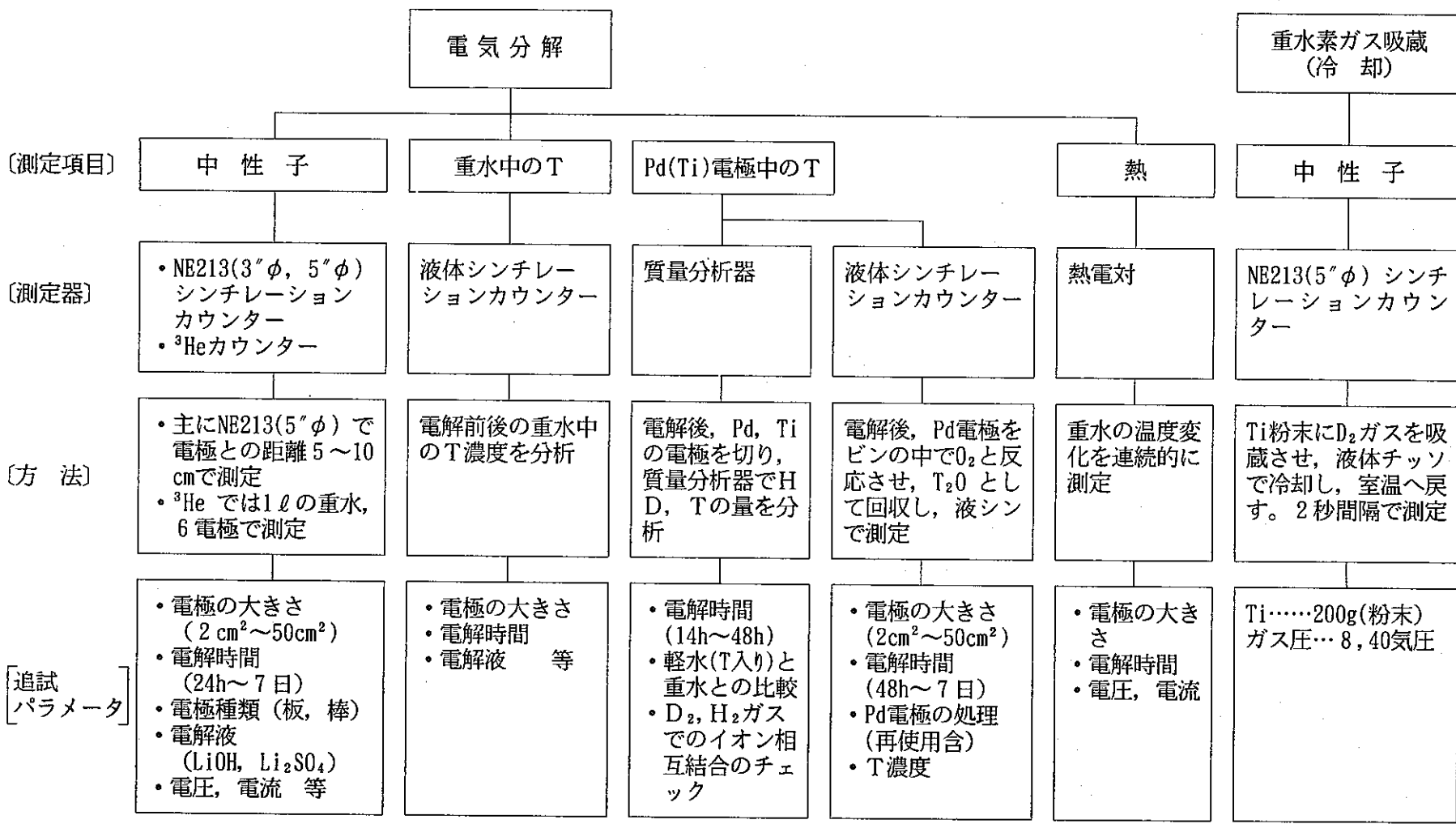


表 3.1 低温核融合追試実験で確認すべき事項

項目 中性子測定

確 認 事 項	確 認 方 法	判 定
(1) 中性子の発生 (2) 中性子エネルギー (3) 測定系の信頼性 (4) バックグラウンド (5) トリチウム等, 他の測定結果との整合性	<ul style="list-style-type: none"> • バックグラウンドからの増加 <ul style="list-style-type: none"> i) 長時間 (10~20時間) の平均計数率の増加 (電気分解) ii) 長時間 (1秒以下) の瞬間的増加 (冷却: 加熱) iii) 多系統の検出器による測定 • NE-213の測定dataのunfolding <div style="border: 1px solid black; padding: 5px; margin: 10px 0;"> <p>(1)については手法は確立, hardwareが必要。 (2)は(1)が確認されてから。未経験の為, 大学等の協力が必要。(特殊なプログラムが必要)</p> </div> <p>長時間の繰り返し測定と線源による頻繁な確認</p> <p>長時間・多数回の測定 特に長時間の平均計数率の増加の確認では重要</p>	

表3.2(1) 低温核融合追試実験で確認すべき事項

項目 液シンによるPd中のT測定(1)

確認事項	確認方法	判定
(1) H ₂ OとD ₂ OにおけるPd中へのT濃縮効果の相違	H ₂ O及びD ₂ O同一T濃度で同一条件で電気分解, D ₂ Oの濃度を変えて電気分解	D ₂ Oの方がH ₂ OによT量が多い
(2) 空気中のTの付着	洗浄	影響なし
(3) Pdへ付着した不純物への濃縮	pH調整及び口過により不純物を除去	
(4) 液シンの測定精度 ・ pHの影響 ・ 回収液の色の影響 ・ サンプリング量	pHを変えて測定 今までの経験で色の影響大 今までの経験でサンプリング精度良	pHの影響大 同一pHで測定 無色にする(口過)
(5) Pdから回収されたTの個数	pCiからの計算	
(6) 回収量の測定精度(D ₂ O)	重量差より計算	
(7) Pdに吸蔵されたDの個数	重量差より計算	
(8) 電導度の影響	電導度を変える	影響小さい
(9) 電気分解時間	48h~7日間	3日間程度
(10) 電解液のpH	酸性, アルカリで実験	同一pHで実施
(11) 電解液の種類	LiOH, Li ₂ SO ₄ で比較	差はない
(12) 電極の大きさ	2 cm ² ~20cm ²	大型電極で実施

表 3. 2 (2) 低温核融合追試実験で確認すべき事項

項目 液シンによるPd中のT測定(2)

確 認 事 項	確 認 方 法	判 定
(13) 電圧, 電流	5 ~ 10 v 200mA ~ 500mA	5 ~ 6 v で実施 300mA
(14) 温 度	電圧, 電流に影響を受ける	35°C以下で実施
(15) Contamination	洗浄	影響なし

表 3. 3 低温核融合追試実験で確認すべき事項

項目 質量分析器によるPd中のT分析

確 認 事 項	確 認 方 法	判 定
(1) D, H のイオン結合DDH, DH等の可能性	D ₂ ガス, H ₂ ガスによる実験	DDH, DH等フラグメントイオンが生成しており標準ガスを用いた比較法によってTの生成を検討する必要のあることが判明。
(2) 測定精度	ガス分圧とMass強度の相似則が成立するレンジを検討	実験的に相似則の成立する領域を明らかにし、以後の測定はこの範囲に入るようにガス分圧を調整。
(3) 試料加熱温度	試料溶融の影響 試料加熱温度の最適化 (400~1600℃の範囲の分析)	溶融法によりガスを抽出するとBGが高目になることが判明。よって、試料加熱温度は融点以下とし、約1100℃が最適であることが明らかになった。
(4) Tの存在の確証	Mass分析ではTの定量化は困難であることが判明したので、その他の方法を併用することが明らかになった。具体的にはガスクロ分析があげられる。	測定装置に最適なもの(Tの微量分析の観点から)がなく東海フロンティアにて新規に導入を検討中。
(5) D ₂ O 中のTのPd電極への拡散 (電気分解をしない状態で)	D ₂ O 中に長時間浸したPd極の分析	Tは検出されず。

4. 電解液を用いた実験

4.1 実験装置

重水電解液を用いた実験の場合の電解装置は、フライシュマンとポンス及びジョーンズの論文を参考にするとともに、目的に応じて改良を加えて用いた。図4.1.1及び図4.1.2に電解装置の概略図を示す。追試実験当初は図4.1.1の電解装置(A)を用いていたが、その後、Pd電極中のトリチウムを回収するためにPd電極を大きくした図4.1.2の電解装置(B)を用いた。電解装置(B)の詳細については4.3章で示す。また、図4.1.3に電解装置(B)の写真を示す。両電解装置とも陰極にPd又はTi、陽極にPt又はAuを用い、定電流電源で電圧約6~10V、電流200mA~1Aの範囲で電気分解を行った。記録計には、電圧及びアルメルクロメル熱電対で測定した電解液中の温度の時間変化を記録した。また、電解装置にはArガスを流し、電気分解によって発生する酸素ガスを重水素ガスの結合による爆発が起きないようにした。電解液の重水は純度99.9%のものを用い、重水中にはLiOH、Li₂SO₄等を0.1M程度添加した。また、濃硝酸でpH≈2に調整した。

電極については電解装置(A)では、陰極にPd板(2cm×3cm×0.3mm(又は0.2mm))又はPd棒(1cmφ×3cmL)を用い、陽極に1mmφのPt線を用いた。Pd板を中心にしてその周囲にPt線をまいた。

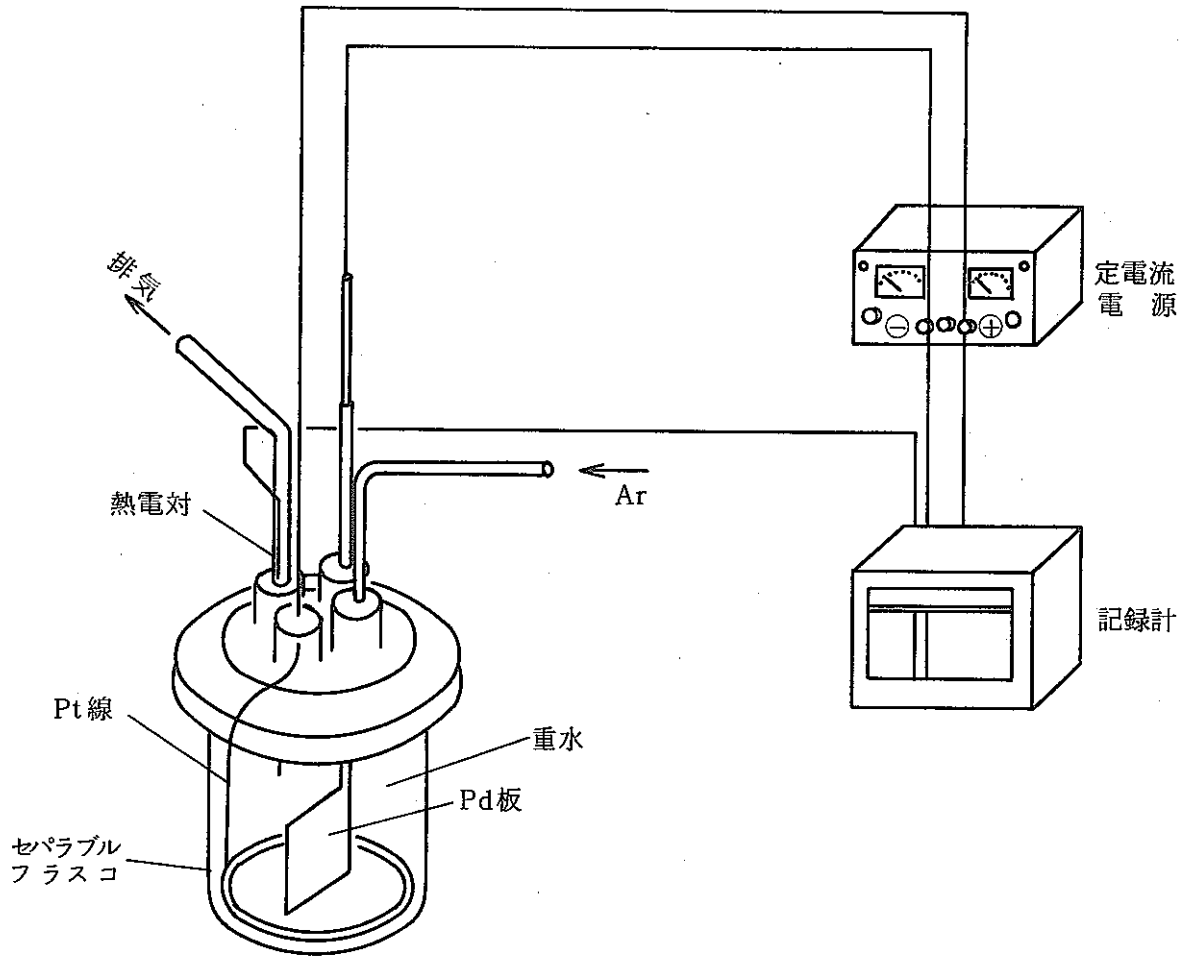


図 4.1.1 電 解 装 置 (A)

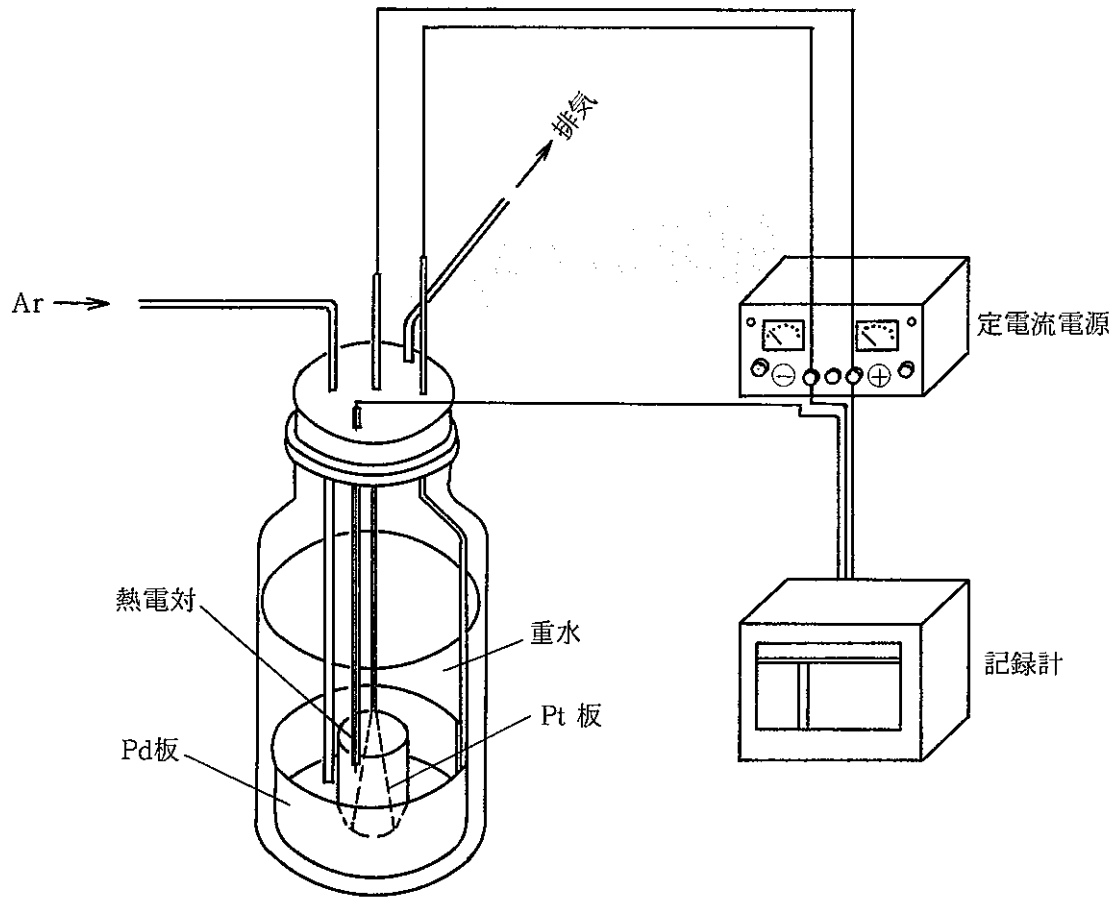


図 4.1.2 電 解 装 置 (B)

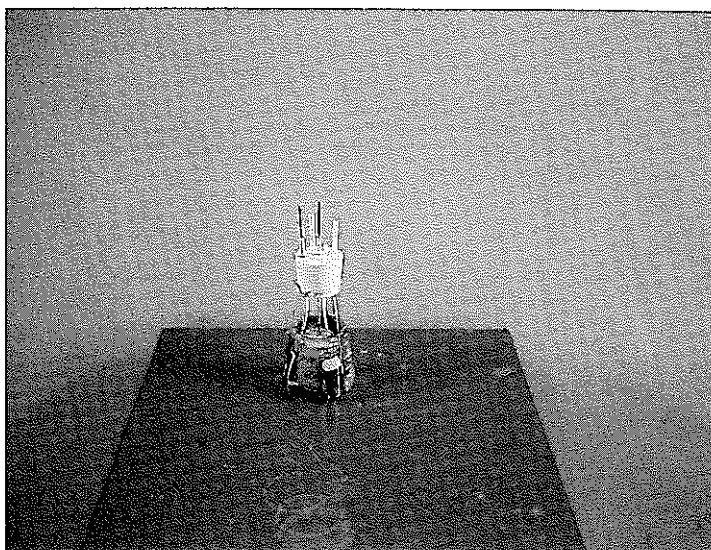
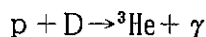
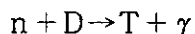


図4.1.3 電気分解装置（大型Pd電極の場合）

4.2 放射線計測

(1) 測定法

重水素原子核の衝突による核融合反応（D-D反応）では、



の反応がほぼ1:1で起こり、 $D + D \rightarrow {}^4\text{He}$ の反応は極めて少ないとされている。そこで、反応の確率と計測の容易さから、約2.5MeVの中性子の検出が最も直接的な核融合反応の検証となる。

低温核融合追試実験のための放射線計測として、大洗工学センターでは、ガンマ線及び中性子線について以下に示す測定器を用いて測定を行った。

a. ガンマ線測定

- NaI (Tl) スペクトロメータ

b. 中性子測定

- 中性子サーベイメータ（レムカウンタ）
- He-3 比例係数管式中性子検出器
- NE-213中性子検出器

(2) 検出器

① NaI (Tl) スペクトロメータ

本実験に使用したNaI (Tl) スペクトロメータの構成は以下のとおりである。

検出器：3インチ円筒型NaI (Tl) 検出器（応用光研(株)製）

波高分析器：NAIG製E-560

本検出器は、高速実験炉「常陽」炉上部における中性子捕獲ガンマ線等の微弱高エネルギーガンマ線のエネルギースペクトルを測定するために用いたものであるが、今回は検出最高エネルギーを約3MeVに設定し、測定を試みた。しかしながら、フード内での電気分解実験という実験系の構成から、鉛遮蔽等によるバックグラウンド（BG）ガンマ線の十分な遮蔽が困難であったため、BG値が高く（～250cps）、核融合反応に起因するガンマ線とBG放射線との弁別が不可能と判断し、実験の初期で中止した。

② 中性子サーベイメータ（レムカウンタ）

レムカウンタはセンターの原子力施設内作業環境の放射線管理に使用している中性子サーベイメータであり、その中で最も感度が高い、富士電機製レムカウンタ（測定範囲：0.01mrem/h）を用いた。本測定器は、操作が簡便である半面、施設内作業環境の中性子線を測定を目的とした測定器であるため、本実験で想定される微弱中性子線の測定

には適しておらず、BG中性子線のモニタとして、実験の初期に使用した。

③ He-3 比例計数管式中性子検出器

He-3 比例計数管式中性子検出器は、上記のレムカウンタと同様の検出原理を用いた中性子検出器であり、ボナー型検出器とも呼ばれている。今回使用したボナー型検出器は、東京大学原子核研究所で開発されたものであり、開発者の了解を得て初期の実験に使用した。

使用した検出器は、直径2インチの球形He-3 比例計数管を半径4.2cmのポリエチレン減速材で覆い、さらにその外側をカドミウム板で囲ったものであり、熱中性子を除く全てのエネルギーの中性子を測定する。なお、BF₃ 検出器を含めて同様の検出原理を持つ検出器（比例計数管）はセンター内でも数種類あり、それぞれ感度特性試験を行ったが、本検出器が最も高い検出感度を有していたため、本検出器を反応の確認実験に使用し、他の検出器は本検出器のバックアップもしくはBG中性子線モニターとして使用した。

本検出器を用いた計測システム図4.2.1に示す。検出器は、プリアンプ(ORTEC 109PC)を通して高電圧1800Vをかけ、リニアアンプ内蔵の多重波高分析器(MCA;NAIG E-560)を用いて計測した。MCAでは、ノイズ成分である低波高値をカットし、高波高部分にROIをかけて積分し、中性子計数を求めた。(単波高分析器(SCA)を用いて中性子成分のみを計数する方法も併用した)。なお、本検出器の検出感度は、1MeVの単色中性子に対して約1.8%であり、2MeVの中性子では約0.7%であることが、開発者らの実験により求められている。

上記計測システムのBG計数率は、中性子遮蔽を設置しない実験室の環境で、35~40 cphであった。

④ NE-213検出器

核融合反応で発生する約2.5MeVの中性子を直接に測定する検出器として考えられる最も一般的な検出器は、NE-213液体シンチレータを用いた検出器である。センターにおいても、本実験のためにはNE-213検出器が必要であると考え、実験開始当初から、検出器の開発整備を行い、実験に使用してきた。

NE-213検出器は、高速中性子の計測手法としては広く知られており、それほど特殊なものではないが、特別の電子回路とその調整が必要となるため、わが国でも十分な経験と計測技術を有する機関はそれほど多くない。以前実験炉においても試用されたことがあったようであるが、必要性がないこともあり、長い間計測に使用されることはなかった。実験炉に保管されていた検出器(2インチ円筒型、ニュークリア・エンタープライズ製)そのものも、経年変化により使用不能であり、新たに製作する必要がある。

NE-213検出器は、ガラス製もしくはアルミニウム/SUS製の容器にNE-213と称する液体

シンチレータを封入し、透明な容器境界面（受光面）にライトガイドを介して光電子増倍管を接続したものである。光電子増倍管の大きさから、直径2インチの円筒型のNE-213検出器が最も一般的に使用されるが、検出器そのものが特殊なものであるため、実験開始当時メーカー（国内では、1社のみ製作）に在庫がなかったことと、より高度感の検出器が必要であると考えたことにより、大型の検出器が自作することとした。

光電子増倍管を含むNE-213検出器として、3種類の検出器を開発・試作した。最終的に使用しているのは最後の1本だけであるが、貴重な経験であったので失敗も含めた経緯をまとめておく。

試作第1号は、米国Brigham Young大学のS. E. Jonesらが開発・使用した検出器を参考に製作したもので、濃縮B-10粉末を塗布したガラス板3枚を、NE-213を封入する容器の中に容器受光面とは垂直に挿入したものである。本検出器では、NE-213による高速中性子に対する反応によって生成された陽子に加えて、NE-213中の水素原子により減速し熱化した中性子とB-10の(n, α)反応による α 粒子を利用し、検出効率を向上させることを意図した。Jonesらは、透明で薄いLi-6のガラスシンチレータを液体シンチレータ(BC-505)中に挿入した検出器を使用しているが、このLi-6ガラスシンチレータは高価でしかも入手困難であったため、Li-6より熱中性子に対する断面積の高いB-10の使用を考えた。ガラスシンチレータは透明であるので、光電子増倍管の受光面とは垂直に設置することができ、Jonesらもそのように配置している。しかし、B-10は黒色粉末(B₄C)であり、Jonesらの配置では容器内で中性子との反応により生成された光を光電子増倍管に導くことができないため、受光面とは垂直に設置した。アイデアは現在でも検討に値すると考えているが、経験不足と検出器の特性に関する知識の不足から、電子回路の調整ができず、またNE-213が高溶解性の液体であることから、検出器からのNE-213の漏洩もあり、結果的には実用に供さなかった。NE-213を入れる容器本体は、アルミニウム製の大きさ16cm×16cm×10cmの直方体で、直径5インチの光電子増倍管(浜松ホトニクス製R877)を両側から接続可能なようにした(製作時には、電子回路の保有数から光電子増倍管は片側だけとし、反対側は遮光した)。また、容器本体及び光電子増倍管、並びに光電子増倍管に直接接続したプリアンプ(NAIGD 203A-2)は、遮光処理した大型のアルミニウム製の直方体の外箱に収納した(図4.2.2参照)。

本器を製作する過程で得られた経験を以下に記す。

- 容器本体は、立方体に近い形状をしたアルミニウム製で、容器の両端の開放面をガラス板で閉じた構造をしている。NE-213の溶液は溶解性が強いので、アルミニウムとガラス板との間の密閉性を保つには、両者間のパッキング材を選ぶ必要があった。当初、シリコンゴム系のパッキングを使用したが、NE-213により膨張変形し、NE-213が漏洩した。パッキング材としては、テフロンゴム系が使用できることが判った。

- NE-213は温度の上昇により気泡が発生し著しく膨張するため、膨張と気泡の吸収を考慮したNE-213のバッファが必要である。そこで、バッファを兼ねて、NE-213の溶液を注入するためのプラスチック製の長いパイプをアルミ容器の側面に取付けたが、大部分の材質のパイプがNE-213溶液で膨張変形し、使用できなかった。パッキング材と同様にテフロンパイプが使用可能であったが、最終的にはSUS管を使用した。
- 濃縮B-10粉末は、接着材（酢酸セルロース+アセトンの混合液）を用いてガラス板に塗布した。試験の結果、NE-213に浸しても溶解・剝離は起こらないことを確認した。
- NE-213溶液は、強揮発性・強臭性で、また皮膚に刺激があるため、取り扱いに注意を要する。溶液の注入は、フードやグローブボックス等の換気設備を有する所で行う必要である。
- NE-213溶液は、プラスチック材に対して、強い腐食性を持つ。プラスチック壁を持つグローブボックス等を使用する場合には、壁面の保護が必要である。

試作第2号は、1号機の外側容器をそのまま利用し、1号機よりは小型の内箱（12cm×12cm×10cm）を製作し、直径3インチの光電子増倍管（浜松ホトニクス製R1848-07）を接続した。なお、容器にはB-10を塗布したガラス板は挿入されておらず、より標準的な構造のNE-213検出器とした。

本機を製作する過程で得られた経験を以下にまとめておく。

- NE-213容器受光面と光電子増倍管の光学的結合の重要性は言うまでもないが、両者の接合部には透明度の高い石英ガラスが有効であり、接合に際してシリコングリスの塗布が不可欠である。シリコングリスには有り合わせの物を使用した。それでもパルス波形等に大きな改善が見られた。
- 通常、NE-213溶液は、出荷時に希ガスによるバブリングを行い、溶存酸素を追い出しているが、容器への注入時にもバブリングは不可欠である。今回は、2時間程度アルゴンガスによるバブリングを行ったが、バブリング前に比べて n/γ の弁別効率に大幅な改善が見られた。

試作2号機を実験に供した際のBG計数率は、約80cphであった。

NE-213検出器は、ガンマ線にも感度を有するため、パルス波形の立ち上がり時間の弁別回路等の電子回路を用いて中性子線とガンマ線を弁別するが、両者を完全に弁別することは不可能であり、ガンマ線の計数が中性子の計数に混ざりこむことは避けられない。また μ 粒子等の宇宙線の検出器内での反応による計数も取り除くことが困難である。本実験では、十分なものとは言い難いが、鉛ブロックやパラフィンブロック等を用いてガンマ線の漏れ込みやBG中性子に起因するBG計数率の低減化を図り、実験に供した。

しかしながら、長時間にわたる電気分解実験の過程で、本検出器が、10時間に1度、3時間程度にわたってノイズを計数することが明らかとなった。ノイズの計数率は、1～5 cps 程度であり、原因を調査したが解明できなかった（放射線ノイズ、光学的ノイズ、電源、電子回路、波高分析器等を調査した）。このような事情によって、本検出器は電気分解実験のように長時間にわたる連続測定には使用できないことが明らかになり、並行して開発してきた3号機に切り替えた。

試作第3号は、直径5インチの円筒型NE-213検出器である。感度を高めるために、NE-213の容器は受光面積を大きくし、入手できる最大径の光電子増倍管（5インチ、試作1号機より転用）を使用することとして、容器の直径を5インチとした。また、容器の長さはNE-213中での中性子の多重散乱による n/γ 弁別特性の劣化を極力防ぎ、かつ容積を大きなものにするために3インチとした。なお、実験での操作性を考慮して、1、2号機で使用したアルミ製の外箱は使用せず、NE-213容器本体と光電子増倍管を一体としてアルミニウムのケースに収めた構造とした（図4.2.3参照）。

前述したように、NE-213は温度により気泡が発生し易いため、本検出器では気泡と溶液の膨張を吸収するために、図4.2.3に示すように、バッファとしてテフロンパイプを検出器の周りに巻き付けた。なお、NE-213の注入時には、予め容器やNE-213溶液を冷却し、気泡が生じない状態で注入すると良いという知見を得た。しかしながら、今回、溶液注入時に溶液を冷却し過ぎて、常温にもどる際に溶液が膨張し、容器のガラス部が破損するというハプニングがあった。なお、溶液の冷却には液体窒素ボンベから出る低温の窒素ガスを用いた。

本検出器のBG計数率は、実験に供する状態で約0.018cpsであった。また、検出効率を概略評価した結果、標準中性子線源 $Cf-252$ の発生する中性子（平均エネルギー:2.5MeV）に対して、約13%であることを確認した。また、電解槽との幾何学的条件を含めた検出効率は、約3%であった。図4.2.4にNE-213検出器と遮蔽体を示す。

前述のように、NE-213液体シンチレータは、中性子線とガンマ線の両方に感度を有するために、電子回路を用いて両者を弁別する必要がある。この弁別には、中性子とガンマ線のパルス波形の相違を利用するが、それには2種類の方法が用いられる。1つはパルス波形を微分整形した後、パルス波形がゼロレベルと交差する時間を解析する手法（ゼロクロス法）であり、もう1つはパルスの立ち上がり時間の違いを利用する方法である。前者は、分離性能が優れている半面、多くの特殊な電子回路と調整が必要であり、その使用にはかなりの経験を要する。この方法を用いている東京工業大学の例では、中性子・ガンマ線のピークと谷の比は、約200:1であった。

今回の実験では、システム構成が簡単であり調整も比較的簡単な、後者の立ち上がり時間を利用する方法を採用した（Am-Be中性子線源を用いた本検出器の中性子・ガンマ

線のピークと谷の比は、約50：1であった)。本検出器の計測システムの構成図を図4.2.5及び図4.2.6に示す。光電子増倍管のプリアンプは、NAIGの標準品を改造してアノード出力とともに最終段ダイノード出力をとれるようにし、このダイノード出力をディレイラインアンプに入力した。また、図4.2.6の1台の波高分析器(MCA)は、パルスの立ち上がり時間の分布(中性子・ガンマ線の弁別状態とノイズチェック)の測定に使用し、もう1台の波高分析器では中性子の波高分析(中性子エネルギースペクトルの指標)を測定した。

図4.2.7に $n-\gamma$ 弁別波高分布の測定例を示す。

本計測システムは、重水の電気分解実験の測定とともに、重水素ガスによる実験にも使用した。重水素ガスによる実験では、米国ロスアラモス国立研究所での測定から、バースト的な中性子の発生が予想されたため、計測システムの回路構成を若干変更して、中性子計数の時間分布を精度良く測定するために、1台の波高分析器を多チャンネル計数器(MCS)として使用して測定を行った。

(3) 中性子測定結果

電解液を用いた実験の中性子測定には、ボナーボール検出器とNE-213中性子検出器が使用された。予備実験を含めた殆どすべての実験について、初期のものにはボナーボール検出器が、後期のものにはNE-213中性子検出器が使用されたが、いずれも中性子の有意な増加は認められなかった。即ち、バックグラウンド計数率の変動以上の系統的な計数率の変化は観測されなかった。

ボナーボール検出器については、小型の反応容器の側面に設置して測定したものと、検出器を囲む反応槽を製作して測定したものがある。検出器を囲む反応槽を使用すると、中性子検出器のまわりが重水で囲まれたことになる為、若干のバックグラウンドの低減が確認されたが、検出効率および発生率の増大(発生しているとすれば)にもかかわらず、計数率の増大はなかった。

一般的には、検出効率が低すぎることで、回路系が不安定で長時間の測定データに信頼性がないこと、バックグラウンドの変動が大きく微弱な増大の確認が困難であること等の印象を持った。

しかし、その後、Pd中のトリチウム測定に用いた大型Pd電極での実験(図4.1.2の電解装置)で中性子測定を行った場合、表4.2.1に示した様に、トリチウム濃度を低くした場合のケースで、バックグラウンドの約1.2倍の計数値が得られた。この値は、バックグラウンドの 3σ よりも大きい値となっている。図4.2.5に大型Pd電極を使用し、トリチウム濃度が低い電気分解における中性子のMCS計測結果(波高分析器で1チャンネル90秒間ずつ中性子と測定し、次のチャンネルに移る使用法で、時間依存の中性子と測定できる。)である。表4.2.1の値はMCS計測結果を積分(251010秒、約70時間)したものである。

図4.2.6には大型Pd電極を使用し、トリチウム濃度が高い電気分解における中性子のMCS計測結果を示す。また、図4.2.7及び図4.2.8には電気分解前後の中性子バックグラウンドのMCS計測結果を示す。バックグラウンド計測においては、遮蔽状況は電気分解を行った場合と同一した。

表4.2.1 NE-213を用いた中性子測定結果
(大型Pd電極を用いた実験)

項目	測定開始	測定時間 (sec)	count数	counts/sec
電気分解 (T濃度低)	8/30 13:45~	251010	5128	0.0204
電気分解 (T濃度高)	9/8 15:45~	251010	4508	0.0180
バックグラウンド	8/26 13:45~	251010	4500	0.0179
バックグラウンド	9/11 14:45~	251010	4337	0.0173

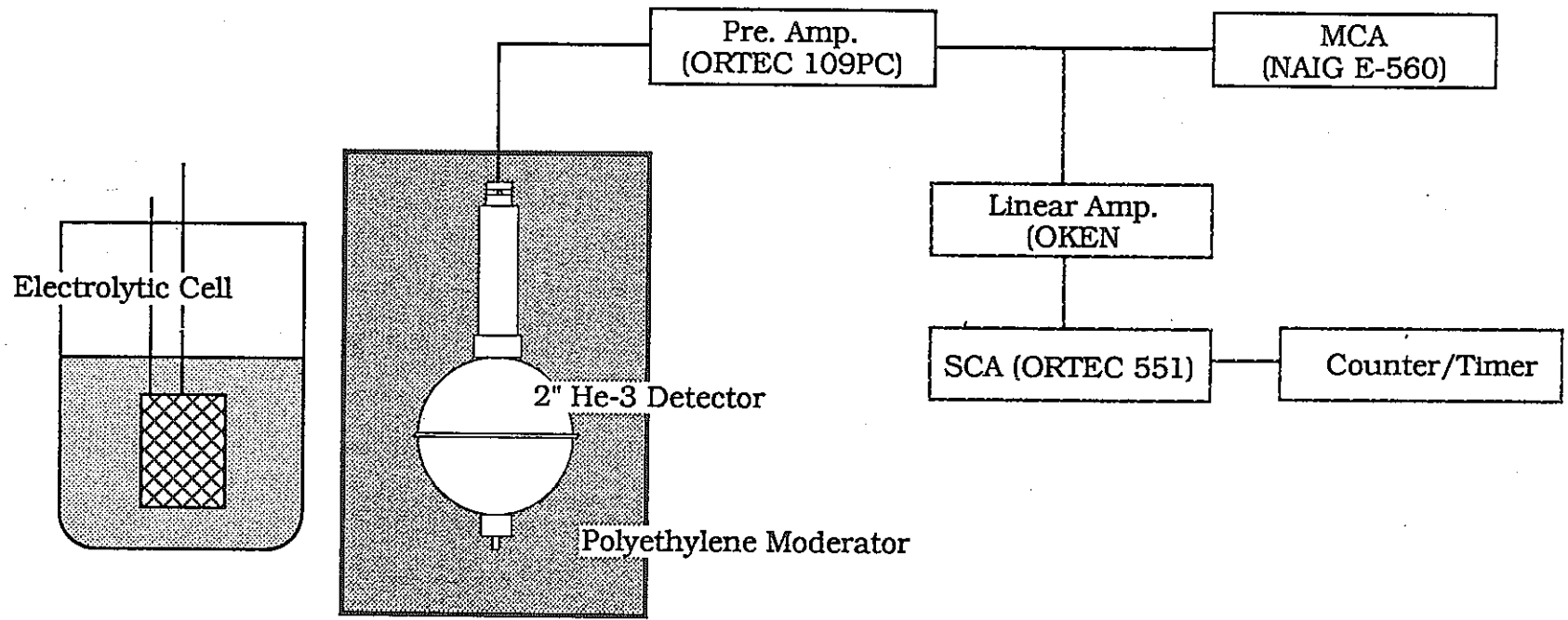


図4.2.1 ^3He 検出器を用いた中性子計測システム

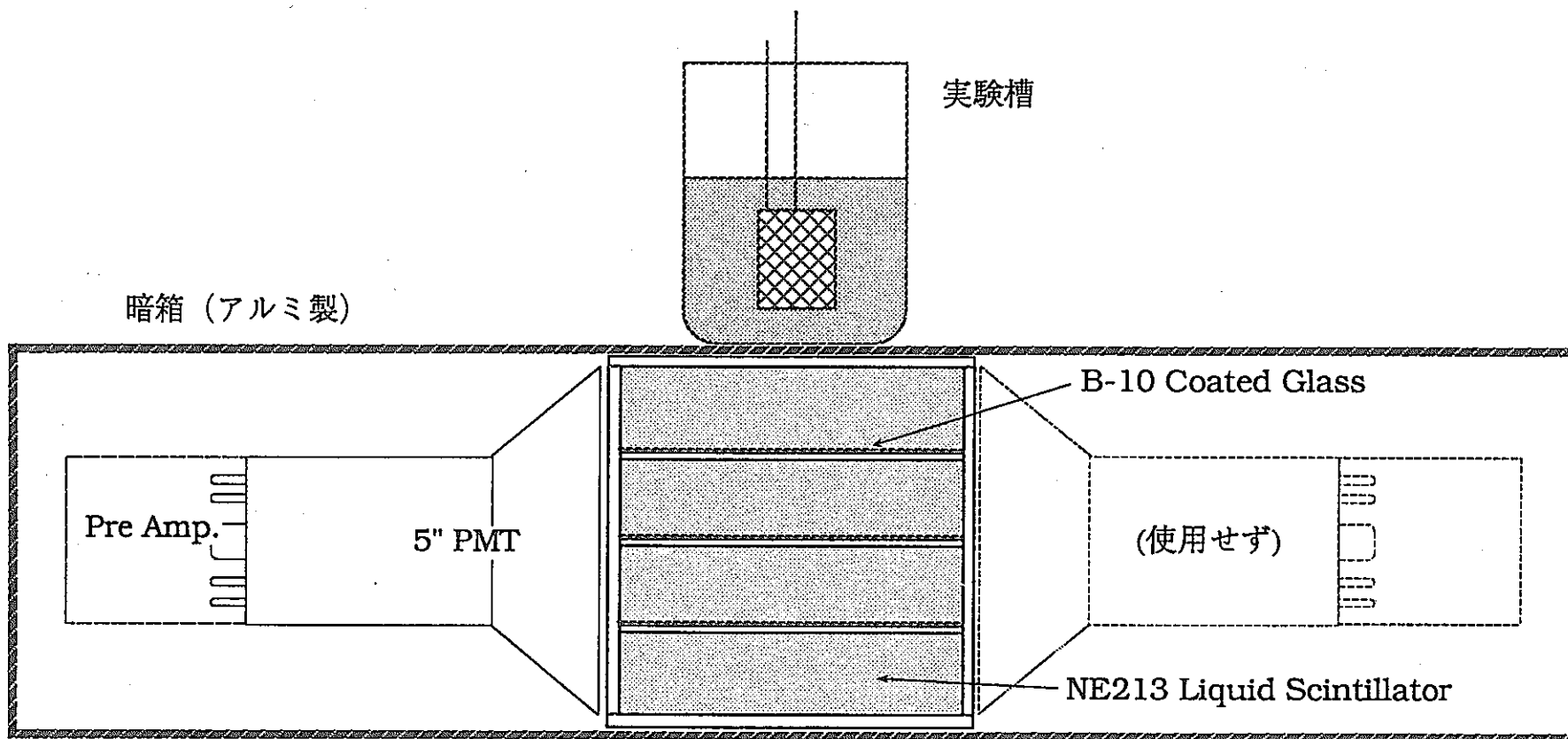


図4.2.2 NE-213中性子検出器 (試作第1号) 概略図

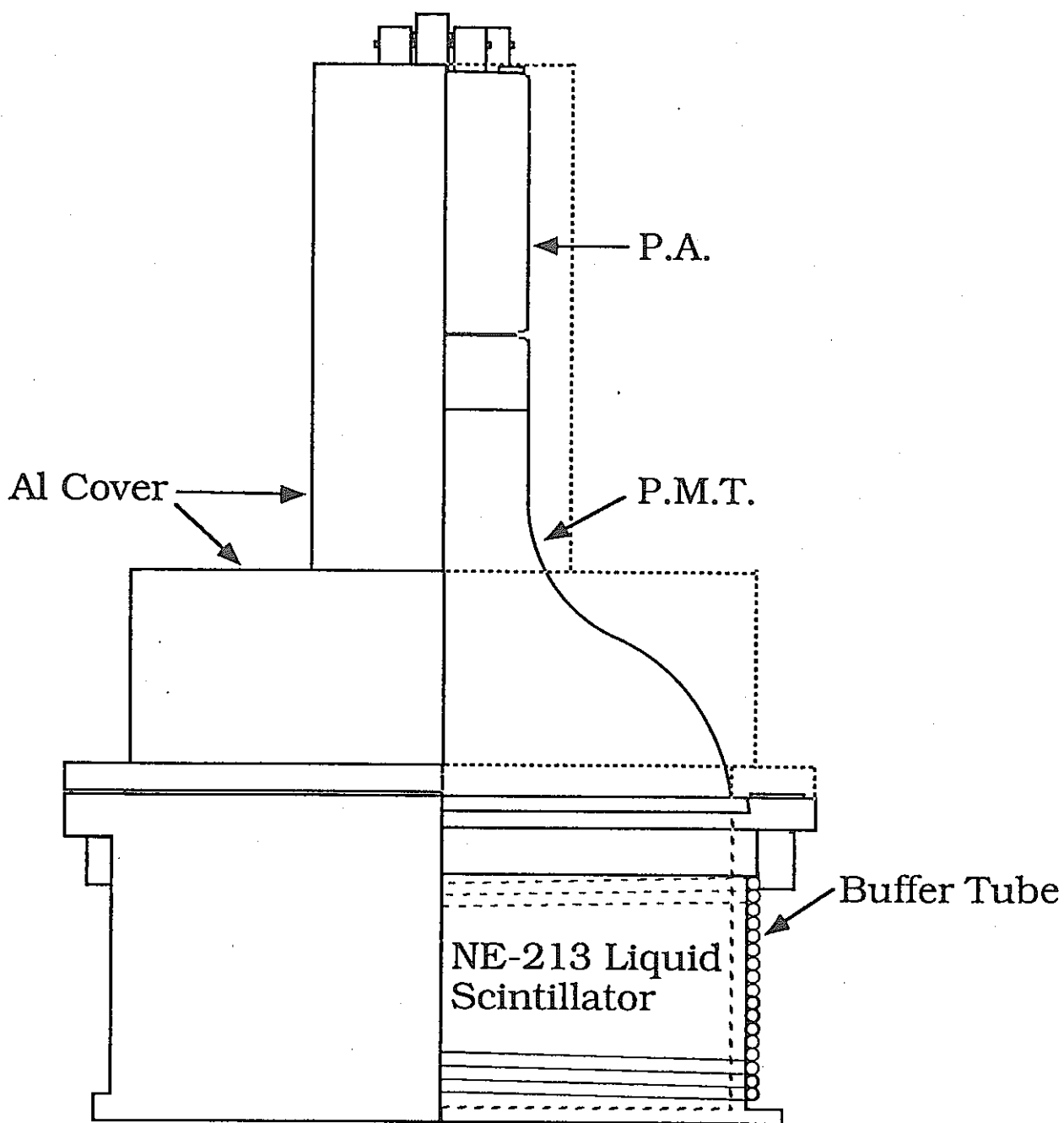


図4.2.3 5インチNE-213検出器断面図

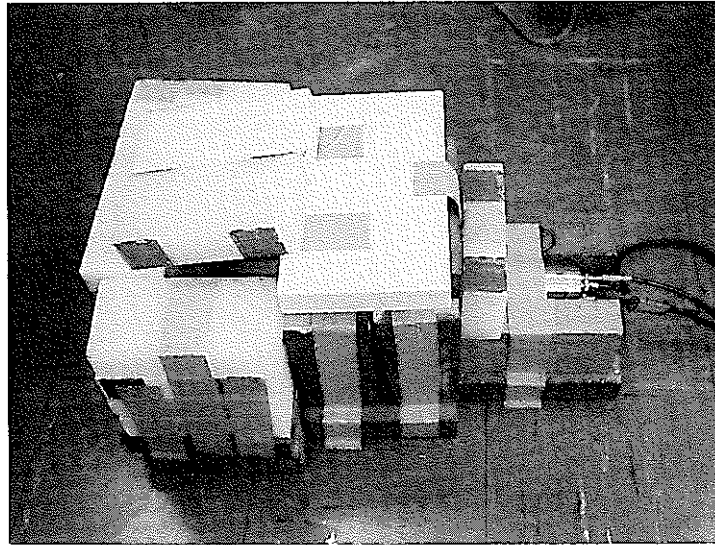


図4.2.4 中性子計測システム (NE213検出器と遮蔽体)



図4.2.5 中性子計測システム (電子回路とデータ処理システム)

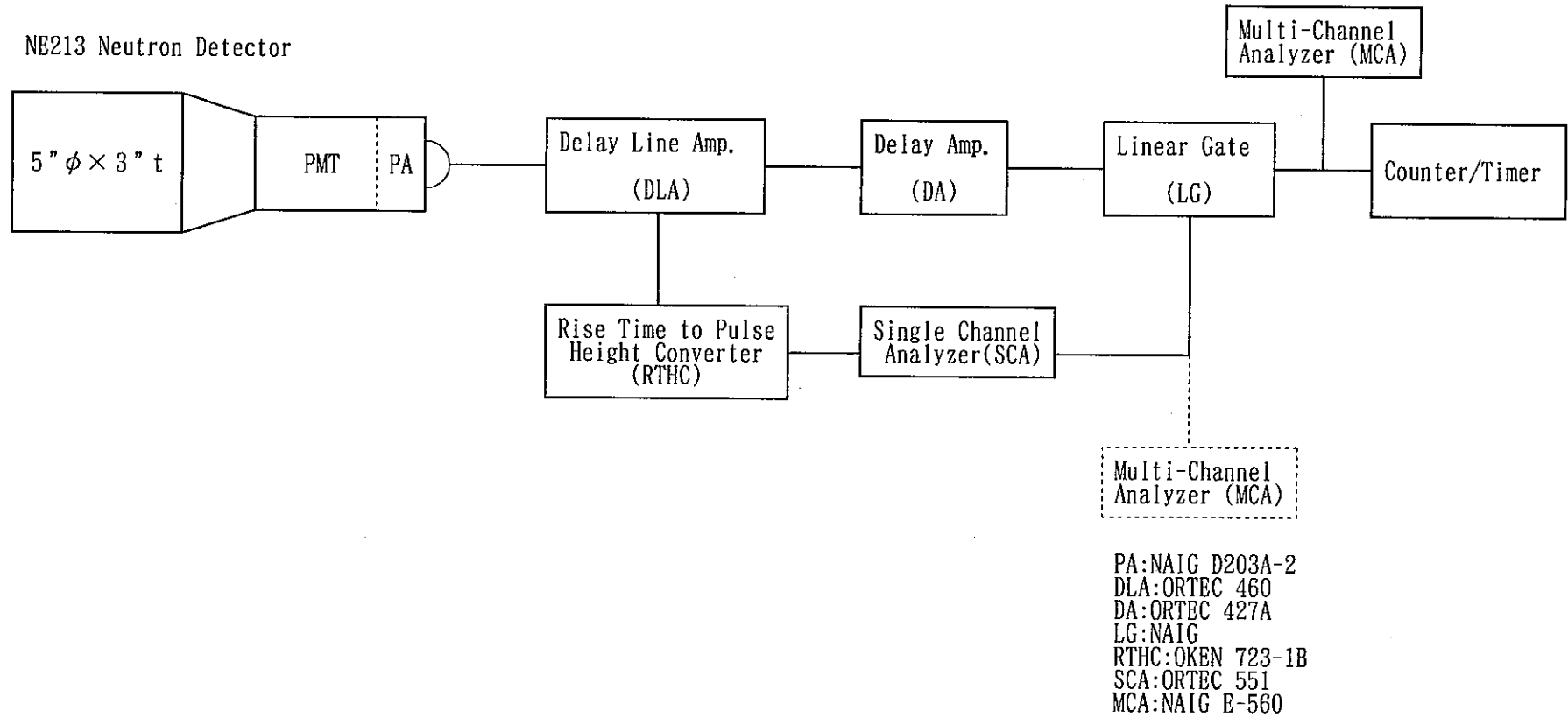


図4.2.6 NE-213中性子計測システムブロックダイヤグラム

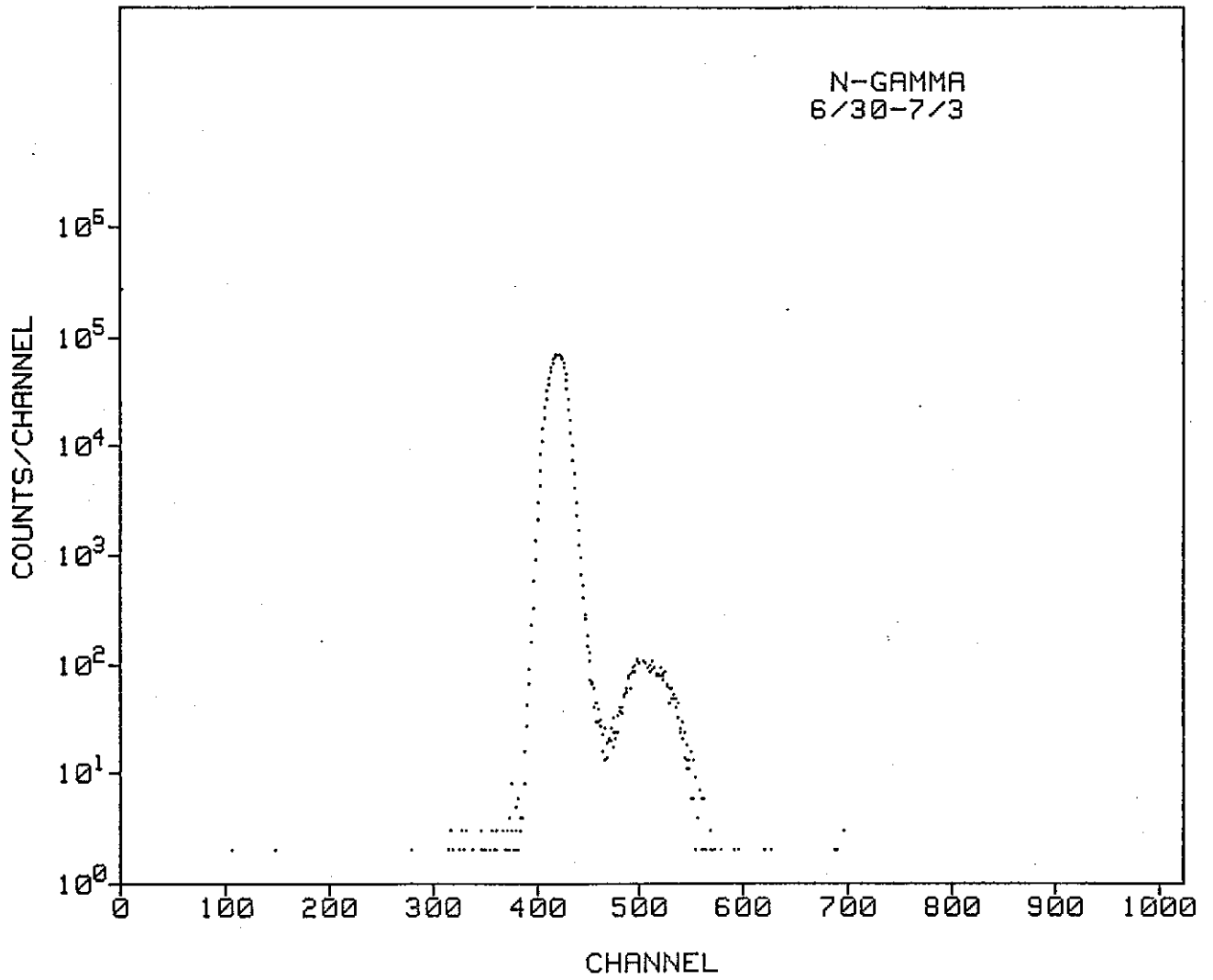


図4.2.7 NE213検出器の波高分布測定例

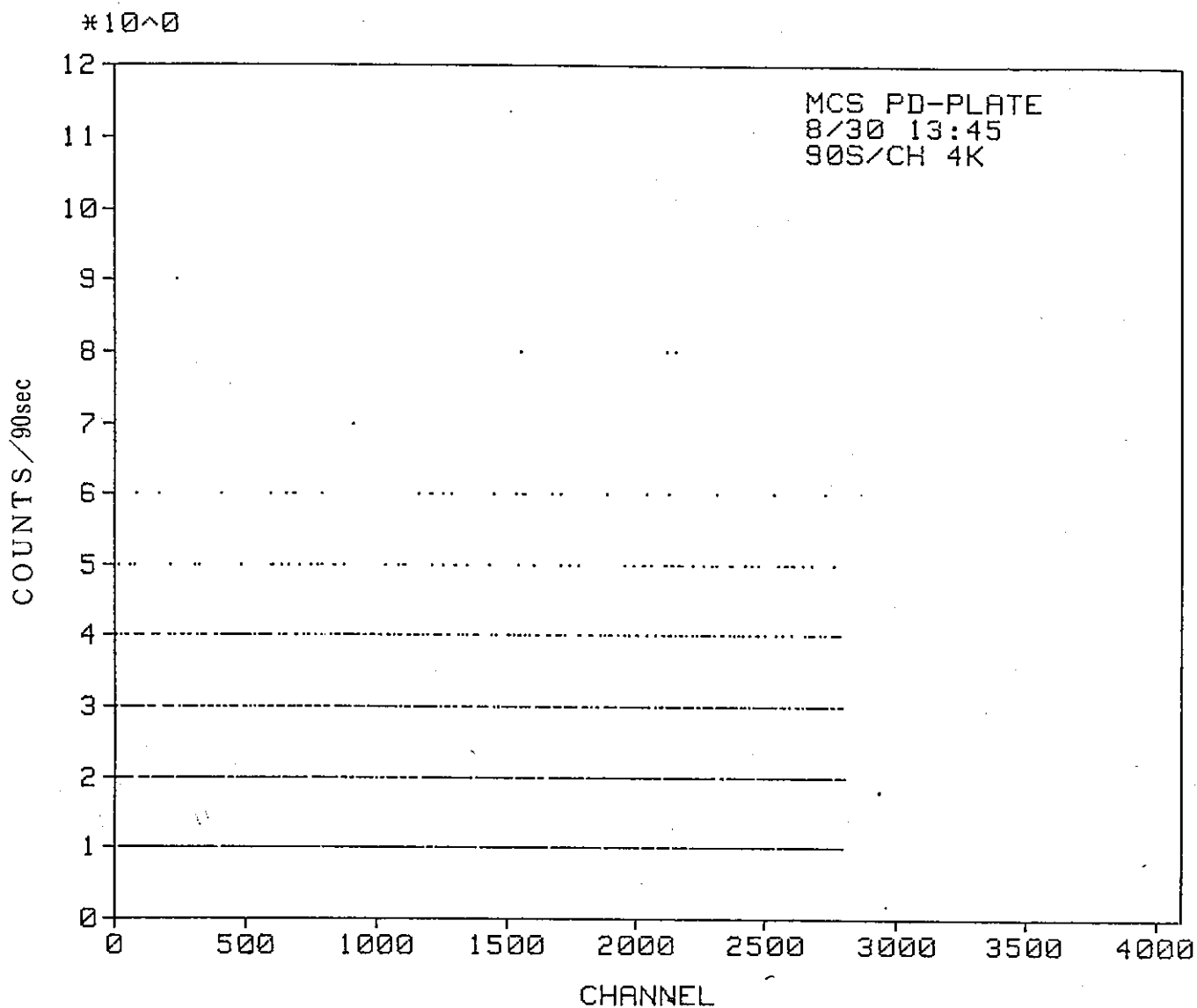


図4.2.8 中性子のMSC計測結果
(大型Pd電極使用, トリチウム濃度小)

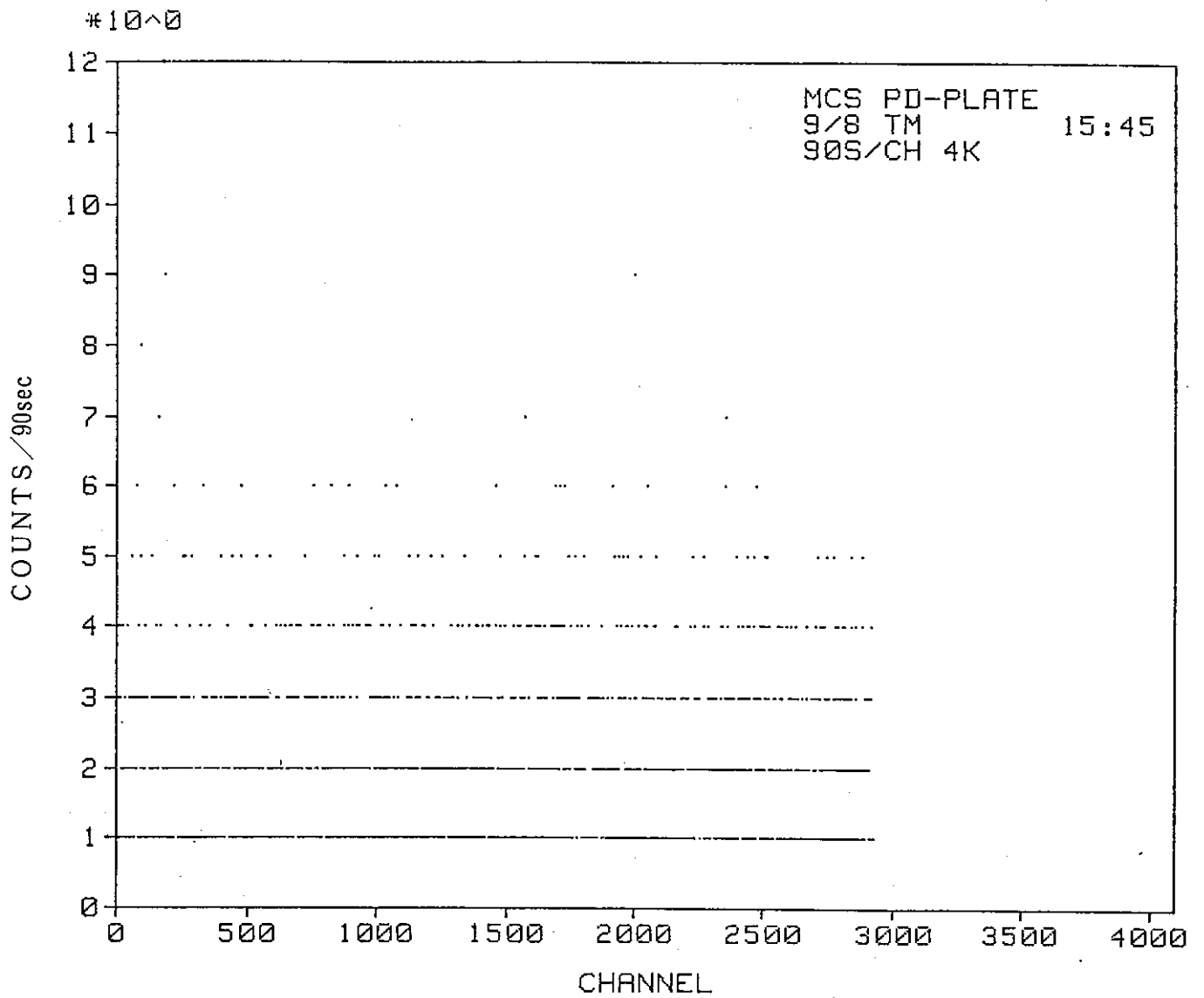


図4.2.9 中性子のMCS計測結果
(大型Pd使用, トリチウム濃度大)

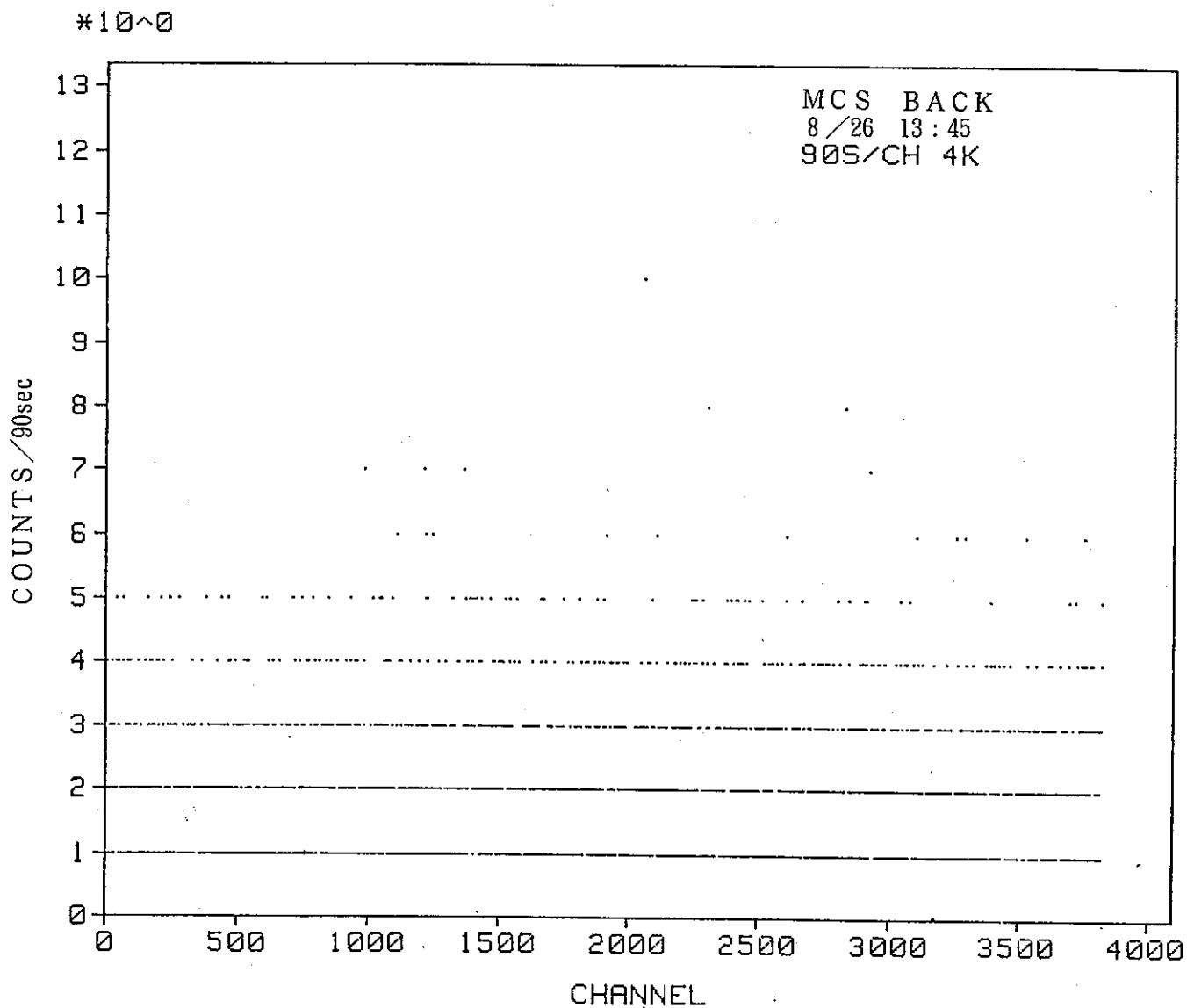


図4.2.10 中性子のMCS計測結果
(バックグラウンド)

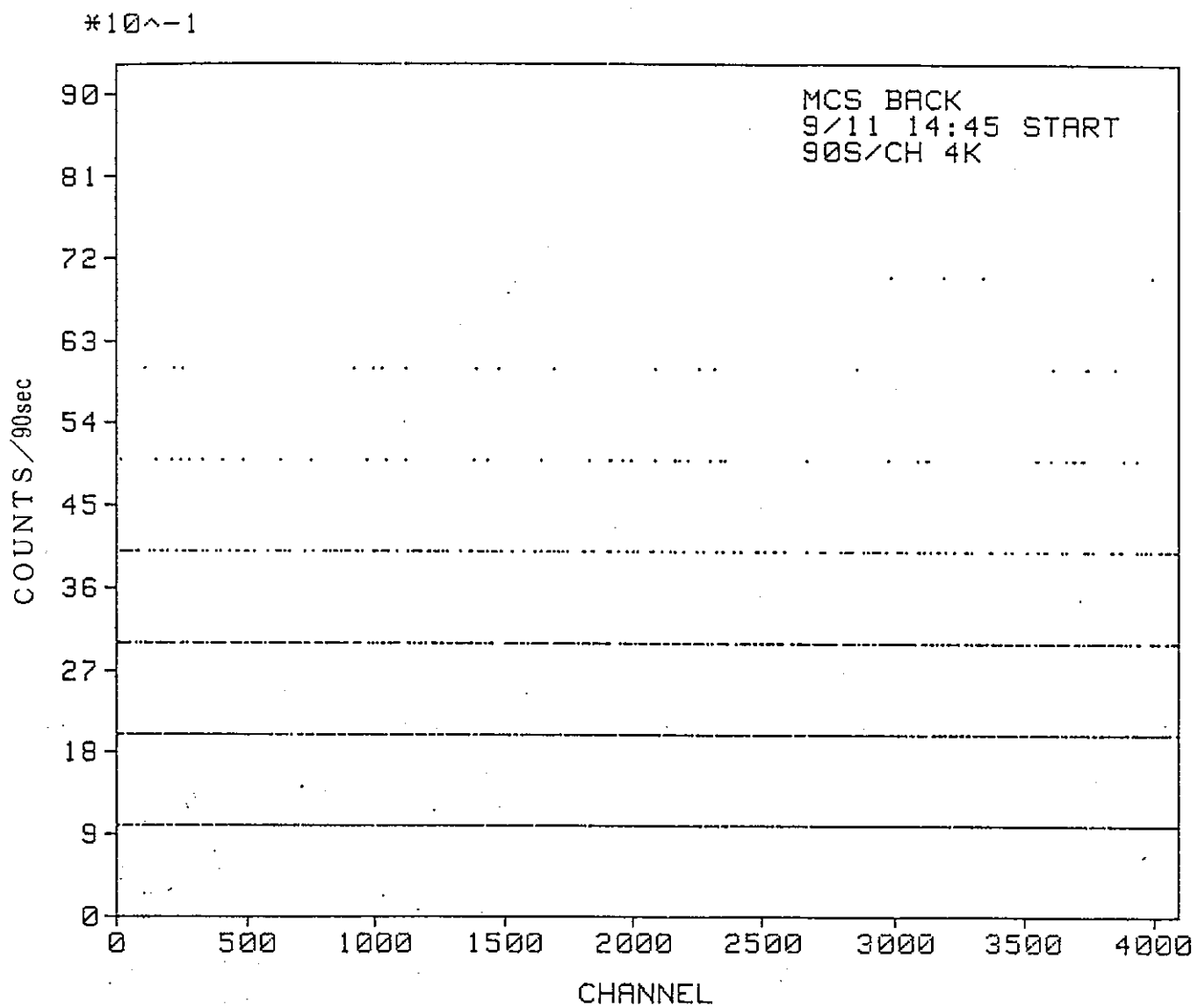


図4.2.11 中性子のMCS計測結果
(バックグラウンド)

4.3 トリチウムの測定

4.3.1 液体シンチレーションカウンターでの測定

(1) 目的

パラジウムの結晶格子内で重水素 (D) どのような核反応が起こっているとすれば、 $D + D \rightarrow T + p$ 反応によってパラジウム電極中にはトリチウム (T) が生成されていることが考えられる。このため、重水を電解したパラジウム電極中のトリチウムを回収し、液体シンチレーションカウンターによりトリチウムの定量を行う。

(2) 実験方法

(イ) 電 極

アノードに白金 (Pt)、カソードにパラジウム (Pd) を使用した。電極は、いずれも厚さ 0.3mm の板状試験片であり、図 4.3.1 に示すようにステンレス線のリード線を圧着端子で接続し、極板部以外は熱収縮性のテフロンチューブで被覆絶縁した。試験片は極板部をエメリー紙 # 600 で研磨し、純水及びアセトンで洗浄後試験に供した。これは、電解液の汚れを防ぐばかりでなく、パラジウム極板から重水を回収する際、極板の洗浄度を保っておくことが重要となるためである。

試験片の大きさは、白金電極の場合約 $2.7 \times 3.3 \text{ cm}$ のものを使用し、パラジウム電極の場合 50 cm^2 以上の大きな試験片を円筒状に巻いて使用した。パラジウム電極は最初約 $2 \times 3 \text{ cm}$ 程度の極板を使用した。この程度の大きさではパラジウム電極中から回収されるトリチウム量が少なく、液体シンチレーションカウンターでトリチウムが定量できなかったため、大きなパラジウム試験片を使用した。

(ロ) 電解装置

広口瓶または三角フラスコに電解液を約 300ml 入れ、アノードを白金電極、カソードをパラジウム電極として電解した。パラジウム中に入り込む重水素は拡散現象で入り込んで行くと考えられるので、単位時間当たりパラジウム中に入り込む重水素量は、電極の電位よりも極板表面の重水素濃度即ち電流密度に依存するものと考えられた (実験で確認したわけではない)。このため、電解は極板表面での重水素発生量が同じとなるよう、定電流で電解した。

重水素は結晶格子間に入り込むため、重水素を吸収したパラジウムは結晶格子間隔が拡がり、電解中にパラジウム電極が変形する。1 回目の試験でパラジウム電極が試験途中に予想以上に変形し、白金電極と接触して短絡、予定試験時間の電解ができなかったことを経験した。このため、2 回目以降の試験では、白金電極をポリエチレン製の容器で囲い、電極どうしが接触しないように工夫した。

電解中は、電解電圧及び温度を監視し、レコーダに記録した。また、発生する重水素ガスと酸素ガスが反応して爆発することがないように、アルゴンガスをバブリングし、電

解槽中の重水素ガス濃度を希釈した。電解装置の概略を図4.1.2に示す。

(ハ) 電解液

核反応からトリチウムが生成されたのか、単に重水中のトリチウムを取り込んだだけなのかを調べるため、二種類の電解液を容易した。一つは純度99.9%の重水を用いて調整した電解液であり、一つは重水と同程度のトリチウムを含んだ軽水を用いて調整した電解液である。また、重水はロットを変え、重水中に含まれるトリチウム量を変化させた。

いずれの電解液も、まず水酸化リチウム (LiOH) を加え (濃度 0.1mol/l) , その後濃硝酸でpHを約2になるよう調整した。水酸化リチウムを加えた理由は、ポンスからの実験で電解液に水酸化リチウム (LiOH) が加えられていたことによる。小型のパラジウム電極を使用した試験では、水酸化リチウムのほかに硫酸リチウム (Li_2SO_4) も使用したが、いずれの場合もパラジウム電極中にトリチウムが検出されたことから、この試験では水酸化リチウムのみを使用した。pHを調整した理由は、ジョーンズらの実験で電解液のpHを硝酸でpH3以下に調整していたことによる。また、一般的傾向として、アルカリ側より酸側で水素が金属中に入りやすいことが指摘されているため、pHは酸側に調整しておいた方が好ましいと判断した。

電解液を再使用する場合、試験後、電解液の量の濾過または蒸留を行った。濾過した場合は、濃硝酸でpH調整を行い (試験後電解液のpHが変化する) , 蒸留した場合は新たに水酸化リチウムを加えるとともに濃硝酸でpH調整を行った。

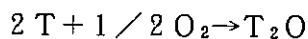
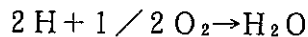
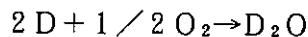
(ニ) 電解時間

電解時間は2~10日程度とした。これは、ポンス、ジョーンズらの報告から核反応が起こるとすればパラジウム電極中の重水素濃度が飽和に達した以降で可能性が高いと推定されたこと、質量分析計による重水素分析結果から今回の試験に使用したパラジウム電極の板厚0.3mmでは十数時間で重水素が飽和に達すると判断されたことから、最低の電解時間をその2倍以上とし2日程度としたためである。また、トリチウム生成量が少ない場合トリチウム生成量を1オーダー増やすことを考えると、1オーダー上の電解時間が必要と考えられ、最大の試験時間を10日程度とした。4回目までの試験結果から、70時間程度の電解でトリチウムが十分検出できることが判ったため、5回目以降の試験では、電解時間を70時間に統一した。

(ホ) パラジウム中のトリチウムの定量法

重水素を吸収したパラジウムを大気中に放置しておくと、吸収した重水素を逆に放出する。この際、大気中の酸素と下記に示す反応によりパラジウム表面で重水 (軽水, トリチウム水) を生成し、比較的容易に水が回収されることを追試試験中に発見した (電解後のパラジウム試験片を大気中に放置したところ、異常な発熱がみられた。この発熱

原因を調べたところ、大気中の酸素との反応による発熱であることがわかり、密閉容器に電極を入れておくと重水が回収できることがわかった)。このため、電解後のパラジウム試験片を広口瓶に入れ、2～3日程度放置し、広口瓶壁面に結露する水滴を回収した(図4.3.2参照)。



パラジウム電極が汚れている場合、重水の回収率が悪くなるため、電解終了後のパラジウム電極は表面に付着した汚れを落とし、純水中で超音波洗浄後、アルゴンガスを吹き付け乾燥させた。また、反応中にパラジウム電極が漏れると、表面での反応が起こらなくなるので、パラジウム電極は広口瓶壁面に接触しないように注意した。

回収水量の定量は、広口瓶及び反応前後のパラジウムの重量を測定することによって行った。重量測定は直示天秤により0.1mgオーダーまで測定したが、水の蒸発吸着などの影響があって指示値が変動し、信頼できる数値は10mgオーダーまでである。

回収した重水に、軽水1ml及びシンチレーター14ml(Packard社製, Insta-gel)を加え、液体シンチレーションカウンター(Aloka社製, LSC-903型)によってトリチウムを定量した。

(ヘ) 電解液水質の測定

使用した電解液は、電解前後にpH、導電率、トリチウム濃度を測定した。これは、核反応あるいは電極中へのトリチウムの濃縮が起きているとすれば、電解液中のトリチウム濃度に変化が見られることが考えられること、及び電解液の水質変化によって、重水素の吸収速度に差がでることも考えられたためである。

(3) 測定結果

試験結果一覧を表4.3に示す。試験はこれまで12回実施した。試験結果一覧表には、電解液、試料寸法、電解条件、回収水量、回収トリチウム量等を示した。以下、今回の試験で得られた結果概要を記す。

(イ) 重水を電解したパラジウム電極中のトリチウム量

重水を電解したパラジウム電極の場合、いずれも大気中の酸素と反応させ回収した重水中からトリチウムが30～80pCi程度検出された。

2回目の試験で、回収トリチウム量に2つの値が記載されているのは、ピペットで採水した回収重水の分析と瓶壁面に付着した回収重水の分析と2回のトリチウム分析を行ったためである。即ち、回収重水をピペットで採水しトリチウムを定量したところ、約7pCiと1回目の試験結果と比べ小さな値が得られた。トリチウムが瓶壁面あるいは極板表面に吸着している可能性が考えられたので、重水を回収した瓶に直接シンチレー

ターを加え、瓶壁面及び極板表面に付着した水滴を洗浄補集し再度トリチウムを分析し、合計2回の分析を行った。瓶を洗浄し回収した重水からは約15pCiのトリチウムが検出されており、両者を足し合わせると約22pCiとなり、この値が回収トリチウム量と推定される。2回目の試験で、トリチウムが瓶壁面及び極板表面に吸着されていることが明らかとなったため、以後の試験では重水を回収した瓶に直接シンチレーターを加え、瓶壁面及び極板表面に付着した水滴ごと重水を回収し、トリチウムを定量した。

4回目以降の試験では、6回目及び8回目の一部（一度使用したPd電極を高温で焼き水素を追い出したPd電極を再使用）を除いて、電解条件はほぼ一定である。回収重水はいずれも1.1g程度回収されており、回収重水中のトリチウム量は電解液のトリチウム濃度が高いほど多くなる傾向にあった。電解液中のトリチウムが重水素と一緒にパラジウム電極中に取り込まれるので、これは予想された結果である。

(ロ) 軽水を電解したパラジウム電極中のトリチウム量

軽水を電解したパラジウム電極の場合、1回目の試験では回収軽水中のトリチウム量が2pCi程度とほとんどバックグラウンドレベルと変わらず、トリチウムが存在するかどうか識別できなかった。1回目の試験は、電解途中で極板どうしが接触し電解時間が42.5時間と短く、パラジウム電極中のトリチウム蓄積量が少なかったため、トリチウムが検出できなかったものと考えられる。2回目、4回目の試験では、軽水を電解したパラジウム電極から回収した軽水にトリチウムが検出されている。2回目の試験では約17pCi（ピペット採水中のトリチウム量約4pCi、瓶壁面及び極板表面に付着した水滴中のトリチウム量約13pCi）、4回目の試験では約4pCiのトリチウムが検出された。この軽水中の重水素濃度は0.1%であり、重水素どうしの核反応が起こりにくいため、検出されたトリチウムは軽水中のトリチウムが水素といっしょにパラジウム電極中にとりこまれたものであると結論づけられる。

5回目の試験ではトリチウムを含まない軽水の電解を行った。これは、シンチレーションカウンターが、化学反応による発光を計測している可能性を否定するために実施した試験である。結果は回収軽水からトリチウムが検出されず、回収水中にトリチウムが存在しなければシンチレーションカウンターは発光を計測しないことが確認された。

(ハ) 電解前後の電解液の水質変化

電解後の電解液の水質は、電解前に比べてpHが上がり（アルカリ側に寄る）、導電率（CON）が下がった。これは、pH調整として加えた硝酸が、電解中に電解液から失われてしまう（硝酸塩の生成、大気中へ逃げる等）ためと考えられる。例えば1回目の試験で、電解後pHが12.4となっているが、これは硝酸を加える前のpHに等しい。また、電解液のpH調整を行わなかった2回目の試験では電解前後のpHはいずれも12.4と変わらず、導電率も変化していない。

電解液のトリチウム濃度に関しては、電解後の値が電解前に比べ若干高くなる傾向を示した。この原因を調べたところ、一つの原因として、液体シンチレーションカウンターによるトリチウム分析値が、pHによって変化することが明らかとなった。酸性側では分析値が安定しているものの、中性領域では分析値が安定せず、アルカリ側では高めの値が得られた。このため、3回目以降の試験では電解後の液のpHを2に調整してからトリチウムの分析を実施した。しかし、3回目以降の分析結果でも電解後の値が電解前に比べ若干高くなる傾向を示している。電解後、電解液は水の分解（計算では1Aで10時間電解すると約3.4ccの水が分解する。300mA、70時間の電解では約7.1ccが分解する。）、及び蒸発により電解前に比べ減少するため、数パーセントのトリチウム濃度の増加では電解液中のトリチウムが濃縮されたのか、パラジウム電極中で生成されたのか判定できない。

重水の劣化は、4回目試験終了後の電解液について重水素濃度を分析した。分析結果を表4.3.2に示す。重水には水酸化リチウム、硝酸を加えたため、初期の重水の純度99.9mol%に比べて劣化しており、分析結果は96.65mol%であった。

(4) 考 察

(イ) 重水を電解した場合と軽水を電解した場合の回収トリチウム量の比較

重水を電解したパラジウムから回収された重水中のトリチウム量と、軽水を電解したパラジウムから回収された重水中のトリチウム量を比較すると、1回目の試験で30pCiと2pCi(バックグラウンドレベル)、2回目の試験で22pCiと17pCi、4回目の試験で41pCiと4pCiと、いずれも重水を電解した場合の方がトリチウム量は多い。

4回目の試験では、回収水中のトリチウム量は重水電解の方が軽水電解に比べ約4倍多い。電解液中のトリチウム濃度は重水の方が軽水に比べ約1.6倍高いため、回収水中のトリチウム量が多くなってもおかしくはないが、トリチウム濃度比で比較した場合でも約6.4倍の違いがあり、明らかに重水電解の方が回収トリチウム量は多い。

2回目の試験は、電解時間が約290時間と他の試験に比べ電解時間が長く、パラジウム電極中には電解液中のトリチウムが十分蓄積されていると考えられる。2回目の試験では、重水電解と軽水電解との回収トリチウム量の比は約1.3倍であり、電解液中のトリチウム濃度の比約1.6倍に比べ回収トリチウム率は重水電解の方が少ない。しかし、十分トリチウムを蓄積したと考えられる軽水電解にもかかわらず、回収されたトリチウム量17pCiは、他の試験で得られた重水電解の回収トリチウム量に比べ少なく（電解液中のトリチウム濃度比で比較しても少ない）、軽水電解から回収されたトリチウム量は決して多いわけではない。

重水を電解したパラジウムから回収された重水中のトリチウム量が、軽水を電解したパラジウムから回収された重水中のトリチウム量に比べ多いという事実は、パラジウム

電極内の核反応の可能性を指示するものではあるが、必ずしもこれまでの経験に反する事実ではない。即ち、重水を精製する方法の一つに電解法があり、軽水を含んだ重水の電気分解では、電解液中に重水が濃縮され、重い元素の方が電気分解されにくい。従って、重水中からパラジウム電極がトリチウムを吸収する速度と軽水中からパラジウム電極がトリチウムを吸収する速度に差があってもおかしくない。パラジウム電極内で核反応が起こっているか否かは、同位体分離の定量的議論をしなければ判定はできない。しかし、この議論は難しく定量的議論は不可能に近い。パラジウム電極の水素（重水素、トリチウム）吸収には、以下のような素過程が考えられ、それぞれの素過程で同位体効果の定量的評価を行わなければならないからである。

- (A) 電解液中の水素（重水素、トリチウム）イオンの電極への移動
- (B) 水素（重水素、トリチウム）イオンの電極表面の吸着
- (C) 水素（重水素、トリチウム）イオンの還元
- (D) 水素（重水素、トリチウム）原子どうしの反応
- (E) 水素（重水素、トリチウム）原子のパラジウム中への侵入
- (F) 水素（重水素、トリチウム）原子のパラジウム中への拡散

(ロ) 電解液中のトリチウム濃度と回収重水中のトリチウム量の関係

4回目以降の試験はほぼ電解条件を統一した。そこで、4回目以降のデータを基に電解液中のトリチウム濃度とパラジウム電極から回収された重水中のトリチウム量の関係を整理し、図4.3.3に示す。また、回収トリチウム量を回収重水量で除し、縦軸を回収重水中のトリチウム濃度として、図4.3.4及び図4.3.5に示す。

電解液中のトリチウム濃度が増せば、当然回収重水中のトリチウム量は増加するが、問題は電解液中のトリチウム濃度がゼロの時、回収重水中のトリチウム量がどうなるかである。電解液中にトリチウムが存在しなければ、当然回収重水中のトリチウム量はゼロになるはずである。しかし、図4.3.3のプロットからは原点を通る直線あるいは曲線は引けそうもない。（ここで問題となるのは、電解液中のトリチウム濃度と回収重水中のトリチウム量との関係が、直線か曲線かということである。この問題は、9回目以降の試験で軽水中のトリチウム濃度をパラメータに電解を行い、パラジウムから回収される軽水中のトリチウム量を調べることによって検証を行った。軽水電解の試験結果を重水電解の試験結果と合わせ、図4.3.5に示す。軽水を電解した場合、電解液中のトリチウム濃度とパラジウム電極から回収された軽水中に含まれるトリチウム濃度との関係は、ほぼ原点を通る直線関係にある。従って、重水電解の場合も電解液中のトリチウム濃度と回収重水中のトリチウム量との関係は直線関係にあると考えてよいものと思われる。）

図4.3.3のグラフから、電解液中のトリチウム濃度ゼロの場合、パラジウム電極から

回収されるトリチウム量を推定すれば10～20pCi 程度となる。試験の再現性、トリチウムの分析値が信頼できるものとすれば、この10～20pCi 程度のトリチウムはパラジウム電極内で生成された可能性がある。(再現性に関しては、270pCi程度のトリチウムを含む電解液を電解したパラジウム電極から回収されたトリチウム量が67～78pCi であることから、この程度の再現性は期待できるものと考えられる。また、トリチウムの分析精度に関しては、分析値が安定しないことがあるものの、表4.3.1の分析値の変動は±3 pCi であること、トリチウムを含まない軽水を電解した6回目の試験で回収軽水中にトリチウムが検出されていないことから、相対値は信頼できるものと判断している。しかし、トリチウム量の絶対値については、微量トリチウムの分析として別途標準試料で校正する必要があると考えている。)

(ハ) パラジウム電極の違いによる回収トリチウム量の違い

2回目、5回目、8回目の試験では、一度使用したパラジウム電極を高温で焼き、電極中の水素(重水素、トリチウム)を追出し電極を再使用した。この再使用電極から回収されたトリチウム量を新品のパラジウム電極から回収されたトリチウム量と比較するため、図4.3.3中に値をプロットし図4.3.5に示す。2回目の試験は電解時間が約260時間と70時間に比べ長く、5回目、8回目の試験では電解電流が630mAと500mAに比べ大きい。いずれも回収トリチウム量が多くなってよいように思われるが、同一トリチウム濃度の電解液を電解した(電解電流:500mA, 電解時間:70h)新品のパラジウム電極から回収されたトリチウム量よりも少ない。再使用パラジウム電極から回収されるトリチウム量は新品のパラジウム電極から回収されるトリチウム量に比べ、明らかに少ない傾向にある。

(ニ) 生成トリチウム量と中性子検出数の比較

トリチウム1pCiは、トリチウム原子 2.09×10^7 個に相当する。これまでの知見によれば、重水素どうしの核反応として、 $D + D \rightarrow T + p$ と $D + D \rightarrow He + n$ がほぼ同等の確率で起こることが指摘されている。従って、もしパラジウム電極中で $D + D \rightarrow T + p$ の反応が起こっているとすれば、 $D + D \rightarrow He + n$ の反応によりトリチウムと同一オーダーの中性子が発生しているはずである。重水中で電解したパラジウム電極中から回収されたトリチウムのうち、10pCiが核反応で生成されたと仮定して、中性子検出器による中性子検出数との比較検討を行ってみる。

10pCiのトリチウムが70時間で生成されたとすれば1秒間に約830個のトリチウムが生成されていることになり、中性子も1秒間に100個のオーダーで発生する。一方、中性子検出器で検出された中性子の数は1秒間に0.02個程度であり、オーダー的に全く一致しない。従って、これまでの知見を正しいとするならば、10pCiが核反応で生成されたと仮定したことが誤りとなる。一方、10pCiが核反応で生成されたとの仮定が正しけれ

ば、これまでの知見が誤りとなり、結晶格子中の低温の核反応では主に $D + D \rightarrow T + p$ の反応が起こることになる。これは、中性子の発生しない核反応を主張するポンスらの見解を支持するものである。どちらが正しいのかを結論づけるためには、より精度の高い実験が必要である。

(5) まとめ

パラジウムをカソードに、白金をアノードにして重水を電解し、パラジウム電極中のとトリチウムの定量を試みた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- (イ) 60cm²の大型パラジウム電極を用いて、重水を約70時間電解し、電解後パラジウム電極を大気中の酸素と反応させる1g程度の重水が回収された。その回収重水から20~80pCi程度のトリチウムが検出できた。
- (ロ) 重水を電解したパラジウム電極から回収されるトリチウム量と、重水と同程度のトリチウムを含む軽水を電解したパラジウム電極から回収されるトリチウム量を比較すると、重水電解から得られるトリチウム量が明らかに多かった。ただし、この原因が低温核融合によるものか、同位体の分離効果によるものか、定かではない。
- (ハ) 重水中のトリチウム濃度をパラメータに重水の電解を行い、パラジウム電極から回収されるトリチウム量を調べ、トリチウム濃度ゼロの時の回収重水中のトリチウム量を推定した。その結果、トリチウム濃度ゼロの重水電解において、10~20pCiのトリチウムが回収されるものと推定された。これは、パラジウム電極内でのトリチウム生成を示唆し、低温核融合の可能性を支持するものである。
- (ニ) パラジウム電極中で生成されたと推定されるトリチウム量と、電解中に検出された中性子の数はオーダー的に全く一致しない。これは、低温核融合では中性子の発生しない核反応が主とするポンスらの主張を支持するものであるが、この結論を出すためにはさらに精度のよい実験が必要である。

(6) 今後の課題

大型パラジウムを用いて重水の電解を行い、重水中のトリチウムの吸収では説明しにくい量のトリチウムがパラジウム電極中から検出されることが明らかとなった。しかし、今回の追試試験は実験条件の設定がラフな面があり、この結果から低温核融合が起きていると結論づけることは難しい。トリチウムの定量値から低温核融合の可能性を決定するためには、今後以下に示すような実験が必要と考えられる。

- (イ) パラジウムのカソード分極の測定
- (ロ) パラジウム加熱によるトリチウムの全量回収と回収トリチウム量の定量
- (ハ) より正確に制御した電解条件下での重水電解電解とパラジウム電極中のトリチウム量の定量
- (ニ) トリチウム量をパラメータとした軽水の電解とパラジウム電極中のトリチウムの定量

(ホ) 標準トリチウム試料を用いた液体シンチレーションカウンターの微量トリチウム分析
精度の校正

(7) 電解液中のトリチウム濃度について

電気分解前後の電解液中のトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターで測定している。傾向としては電解後のトリチウム濃度が電解前よりも高くなっているが、測定誤差を考えると有意な差はないと見られる。これは電解液の量が多いことが、たとえ低温核融合が起きているとしてもトリチウム量が少ないため、分からなくしているとも考えられる。

表4.3.1 実験結果一覧表(1)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電 極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備 考
1	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.6 CON =17 mS/cm T =48 (±2) pCi/ml	pH =9.5 CON =15 mS/cm T =47 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 4×20 cm 約 28 g	I : 150 mA V : 約3.5 V Time: 42.5 h	測定せず	2 pCi (B.G.レベル)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解途中, Pd電極とPt電極が接触 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =15 mS/cm T =77 (±3) pCi/ml	pH =12.4 CON =14 mS/cm T =82 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 4×20 cm 約 28 g	150mA, 約3.5V, 73.7 h 1000mA, 約 8V, 1.5 h 900mA, 約 6V, 4.3h	測定せず	30 pCi (±3)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解途中, Pd電極とPt電極が接触 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
2	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =9.5 CON =15 mS/cm T =47 (±2) pCi/ml	pH =12.3 CON =19 mS/cm T =62 ? (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 2枚 - : Pd 約 4×19 cm 約 27 g	150mA, 約3.5V, 23 h 500mA, 約8.3V, 235 h	0.96 g	回収軽水 4 pCi (±1.5) 瓶の付着軽水 13 pCi (±3)	<ul style="list-style-type: none"> • 電解液は1回目使用液を濾過し, そのまま使用 • 1回目で使用したPd板を高温で焼き, 水素を追い出して使用
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃ ?	pH =12.4 CON =14 mS/cm T =82 (±3) pCi/ml	pH =12.4 CON =14 mS/cm T =86 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 2枚 - : Pd 約 4×19 cm 約 27 g	150mA, 約3.5V, 23 h 500mA, 約8.3V, 235 h	1.17 g	回収重水 7 pCi (±2) 瓶の付着重水 15 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • 電解液は1回目使用液を濾過し, そのまま使用 • 1回目で使用したPd板を高温で焼き, 水素を追い出して使用
3	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =1.5 CON =18 mS/cm T =83 (±2) pCi/ml	pH =12.6 CON =14 mS/cm T =88 ? (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 2枚 - : Pd 約 5×11 cm 約 20 g	I : 300 mA V : 約 5 V Time: 94 h	0.69 g	36 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • 電解液は2回目使用液を濾過後, pH調整 • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析

表4.3.1 実験結果一覧表(2)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備考
4	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =23 mS/cm T =58 (±3) pCi/ml	pH =9.4 CON =18 mS/cm T =61 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 5.7 ~6.6 V Time: 69.7 h	1.16 g	4 pCi (±1.5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は2回目使用液を蒸留後, 液調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =15 mS/cm T =97 ? (±3) pCi/ml	pH =12.4 CON =14 mS/cm T =100 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 7.2 ~7.8 V Time: 69.7 h	1.14 g	41 pCi (±4)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は3回目使用液を蒸留後, 液調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析

表4.3.1 実験結果一覧表(3)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備考
5	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =12 mS/cm T =60 (±2) pCi/ml	pH =12.0 CON =11 mS/cm T =61 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 10~ 11.5 V Time: 70 h	1.18 g	30 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =12 mS/cm T =265 (±3) pCi/ml	pH =11.7 CON =12 mS/cm T =269 (±4) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 9 ~ 10 V Time: 70 h	1.16 g	78 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は既使用液を蒸留後、液調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =14 mS/cm T =66 (±2) pCi/ml	pH =8.9 CON =14 mS/cm T =66 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 4×19 cm 約 27 g	I : 630 mA V : 7.5 ~ 8.5 V Time: 70 h	1.09 g	15 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • 電解液は既使用液を濾過後、pH調整 • 2回目で使用したPd板を高温で焼き、水素を追い出して使用
	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃ ?	pH =2.0 CON =16 mS/cm T =検出限界以下 (-1.5pCi/ml)	pH =4.1 CON =14 mS/cm T =検出限界以下 (-1.5pCi/ml)	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×11 cm 約 20 g	I : 500 mA V : 6 ~ 6.5 V Time: 70 h	0.91 g	検出限界以下 (-3 pCi)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液はトリチウムの存在しない軽水を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析

表4.3.1 実験結果一覧表(4)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電 極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備 考
6	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =1.9 CON =14 mS/cm T =269 (±3) pCi/ml	pH =2.6 CON =14 mS/cm T =271 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 21 g	I : 500 mA V : 7.4 ~ 8.1 V Time: 70 h	1.13 g	70 ? pCi (±5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は5回目使用液をpH調整後、濾過 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =14 mS/cm T =185 (±3) pCi/ml	pH =9.6 CON =13 mS/cm T =183 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 21 g	I : 500 mA V : 7.6 ~ 8.4 V Time: 70 h	1.08 g	23 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は4回目使用液、既使用液を濾過後混合し、液調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • 大気中でPd板が発熱Tが大気中へ逃げた可能性有り
7	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =14.7 mS/cm T =183 (±2) pCi/ml	pH =11.7 CON =14.4 mS/cm T =187 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 7.1 ~ 9.2 V Time: 70 h	1.10 g	70 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は6回目使用液をpH調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • 中性子測定

表4.3.1 実験結果一覧表(5)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電 極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備 考
8	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =16.0 mS/cm T =282 (±3) pCi/ml	pH =9.3 CON =13.3 mS/cm T =-286 (±) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 21 g	I : 500 mA V : 7.7 ~ 8.4 V Time: 70 h	1.14 g	67 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 電解液は6回目使用液を濾過後, pH調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • 中性子測定
	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =18.6 mS/cm T =196 (±3) pCi/ml	pH =2.6 CON =17.5 mS/cm T =202 (±) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 4×19 cm 約 27 g	I : 630 mA V : 6.6 ~ 7.3 V Time: 70 h	1.01 g	51 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • 2回目で使用したPd板を高温で焼き, 水素を追い出して使用 • 電解液は7回目使用液を濾過後, pH調整 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析

表4.3.1 実験結果一覧表(6)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備考
9	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =11.3 mS/cm T =66 (±2) pCi/ml	pH =9.3 CON =9.2 mS/cm T =65 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 9.4 ~ 11.4 V Time: 70 h	1.08 g	17 pCi (±1.5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 新品重水を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • 中性子測定
10	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =20.5 mS/cm T =120 (±2) pCi/ml	pH =3.5 CON =11.9 mS/cm T =122 (±2) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 g	I : 500 mA V : 6.7 ~ 8.3 V Time: 70 h	1.01 g	5 pCi (±1.5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • Pd電極に吸蔵されるTを分析 • 回収水は0.1g程度少ない
	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =20.6 mS/cm T =193 (±3) pCi/ml	pH =3.6 CON =11.9 mS/cm T =203 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 6.1 ~ 7.1 V Time: 70 h	0.54 g	3 ? pCi (±0.5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • Pd電極に吸蔵されるTを分析 • 回収水は全量回収されていない
	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =21.6 mS/cm T =290 (±3) pCi/ml	pH =6.9 CON =11.8 mS/cm T =298 (±3) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 5.8 ~ 7.2 V Time: 70 h	1.14 g	12 pCi (±1.5)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • Pd電極に吸蔵されるTを分析

表4.3.1 実験結果一覧表(7)

回	電解液	電解前水質	電解後水質	電 極	電解条件	回収水量	トリチウム量	備 考
11	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =25.8 mS/cm T =630 (±10) pCi/ml	pH =8.0 CON =11.3 mS/cm T =665 (±15) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1 枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 6.1 ~ 7.1 V Time : 70 h	1.07 g	33 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • Pd電極に吸蔵されるTを分析
	H ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =2.0 CON =27.5 mS/cm T =1050 (±20) pCi/ml	pH =2.7 CON =15.8 mS/cm T =1120 (±20) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1 枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 5.8 ~ 7.2 V Time : 70 h	0.99 g	39 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • Pd電極に吸蔵されるTを分析
12	D ₂ O +LiOH 0.1mol/l +HNO ₃	pH =1.5 CON =9.5 mS/cm T =68 (±3) pCi/ml	pH =8.6 CON =8.0 mS/cm T =74 (±4) pCi/ml	+ : Pt 約 2.7×3.3 cm 1 枚 - : Pd 約 5×12 cm 約 22 g	I : 500 mA V : 9.8 ~ 12.2 V Time : 70 h	1.10 g	40 pCi (±2)	<ul style="list-style-type: none"> • Pd板は新品を使用 • 瓶に付着した水滴ごとTを分析 • 中性子測定

表4.3.2 電気分解後の電解液の重水純度分析結果

測定数	D ₂ O+LiOH+HNO ₃
1	3.385
2	3.331
3	3.305
4	3.365
5	3.338
6	3.390
7	3.352
8	3.300
9	3.344
10	3.340
\bar{X}	3.344
$\frac{\sigma_n}{\bar{X}}$ (%)	0.84
MOL (%)	96.65

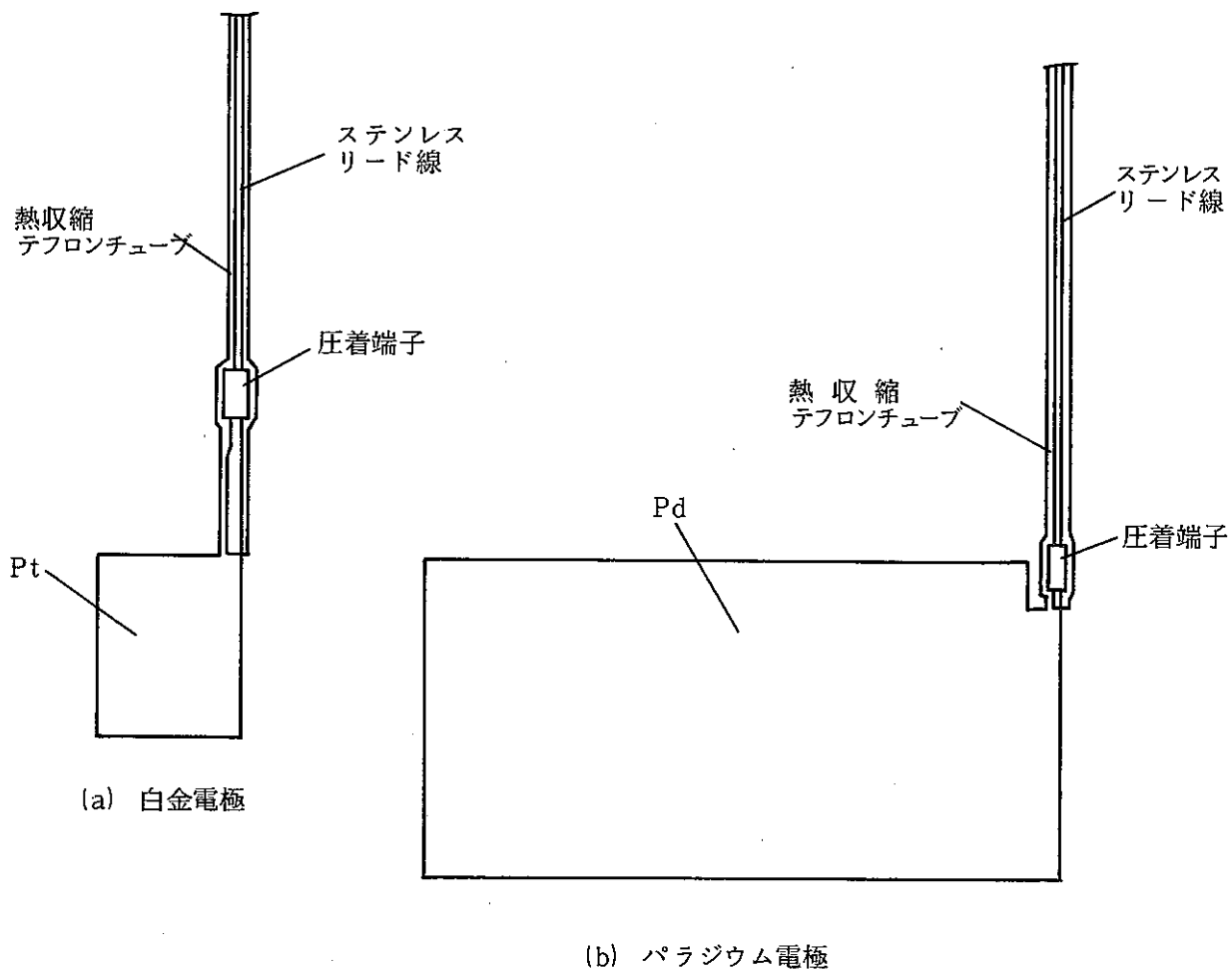
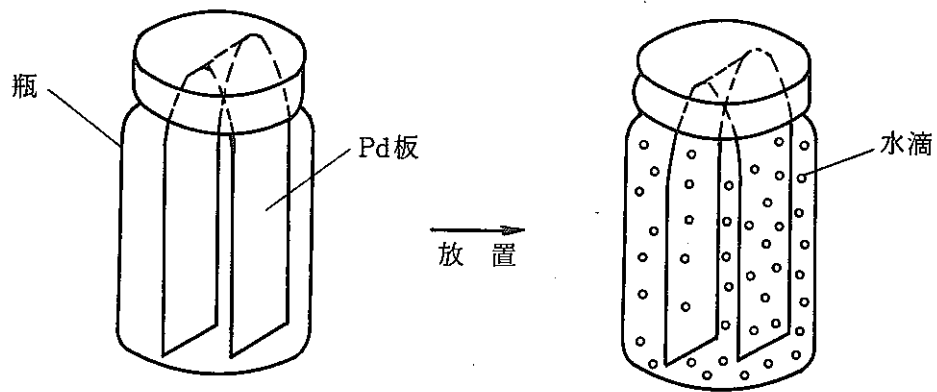


図 4.3.1 電 極



Pd 板上で以下の反応が起こり水が回収される。

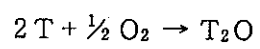
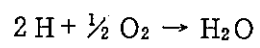
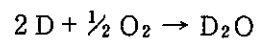


図 4.3.2 重水の回収法

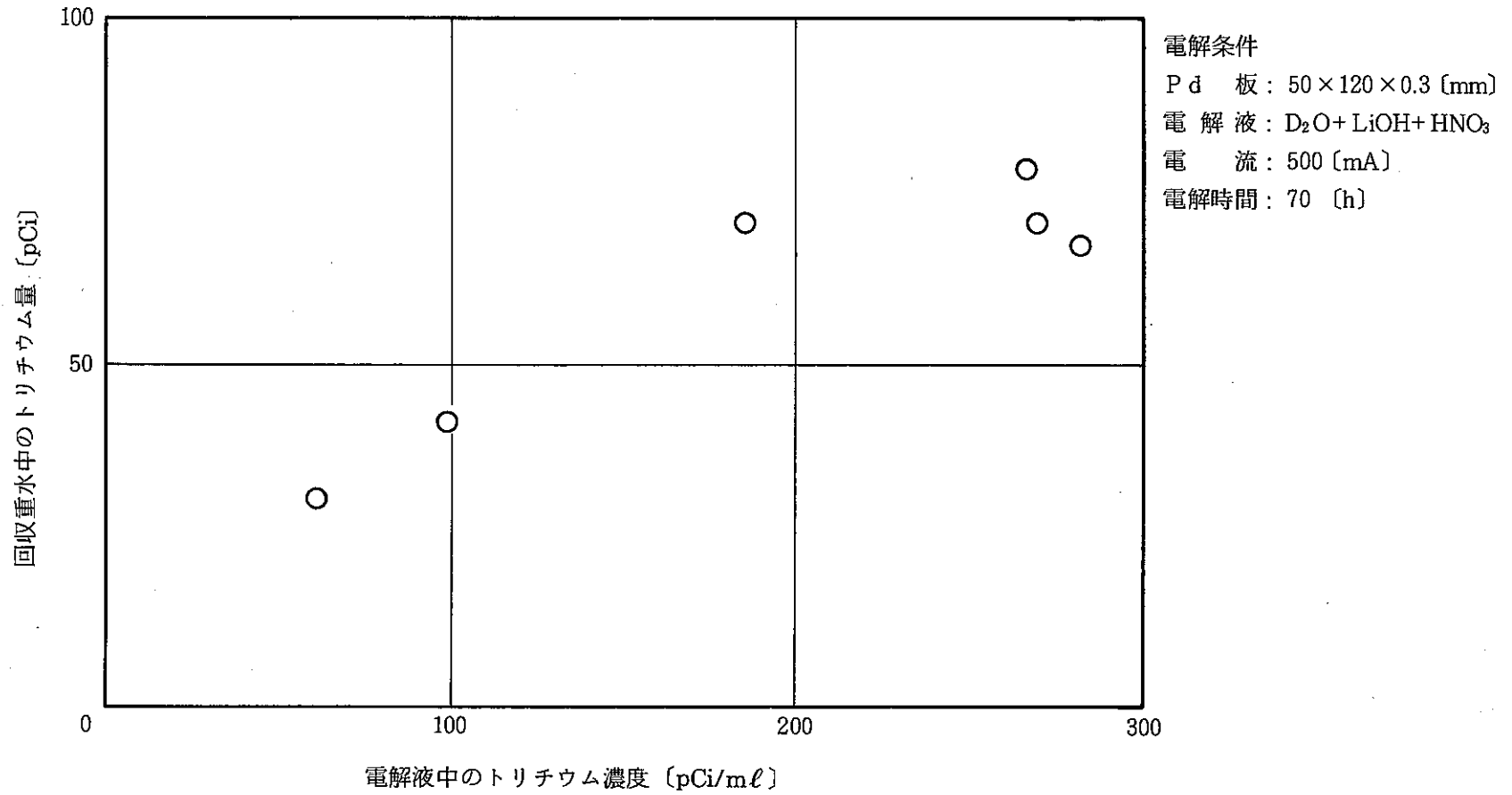


図 4.3.3 電解液中のトリチウム濃度とパラジウム電極から回収されたトリチウム量の関係

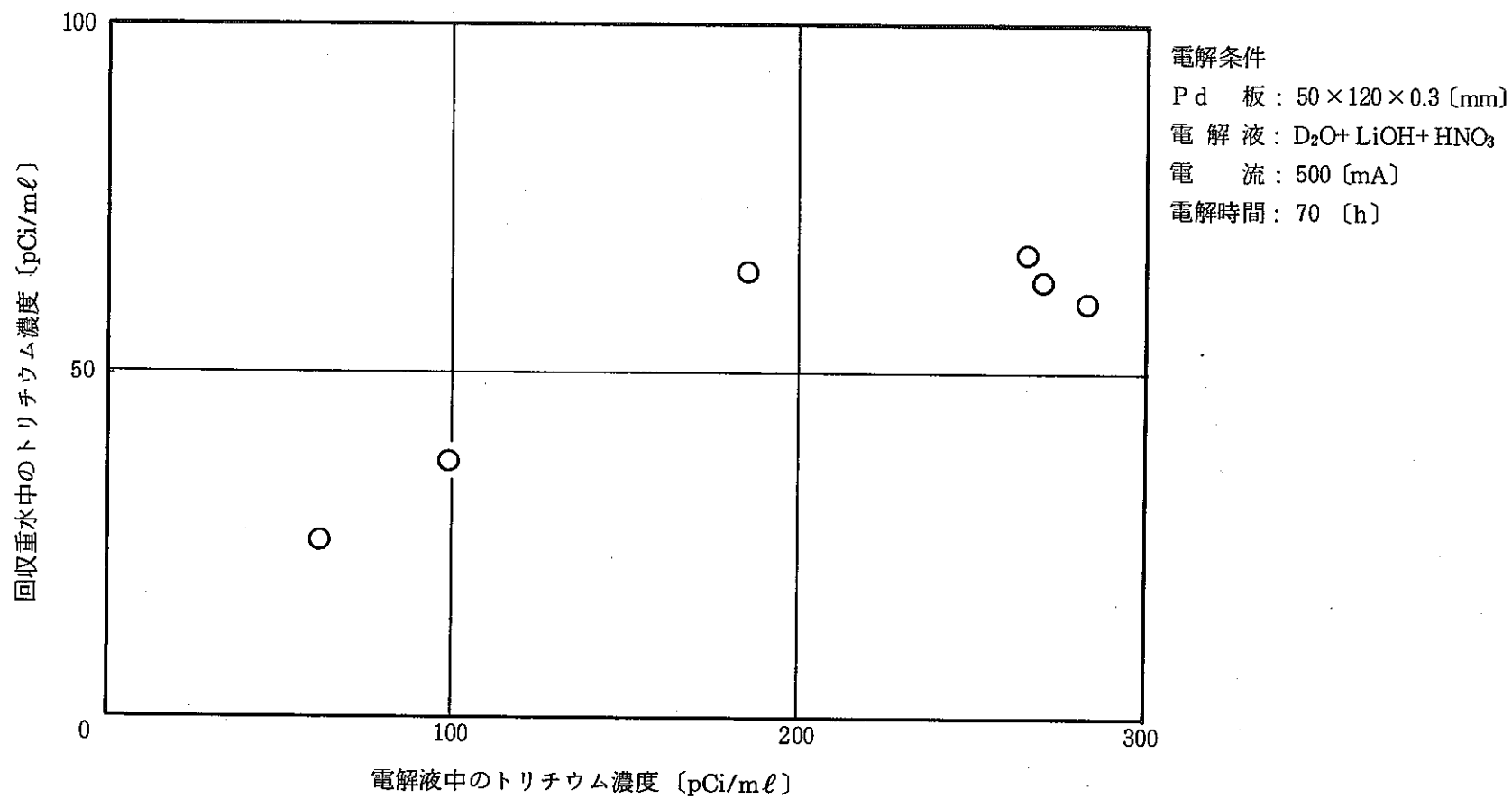


図 4.3.4 電解液中のトリチウム濃度とパラジウム電極から回収された重水中のトリチウム濃度の関係

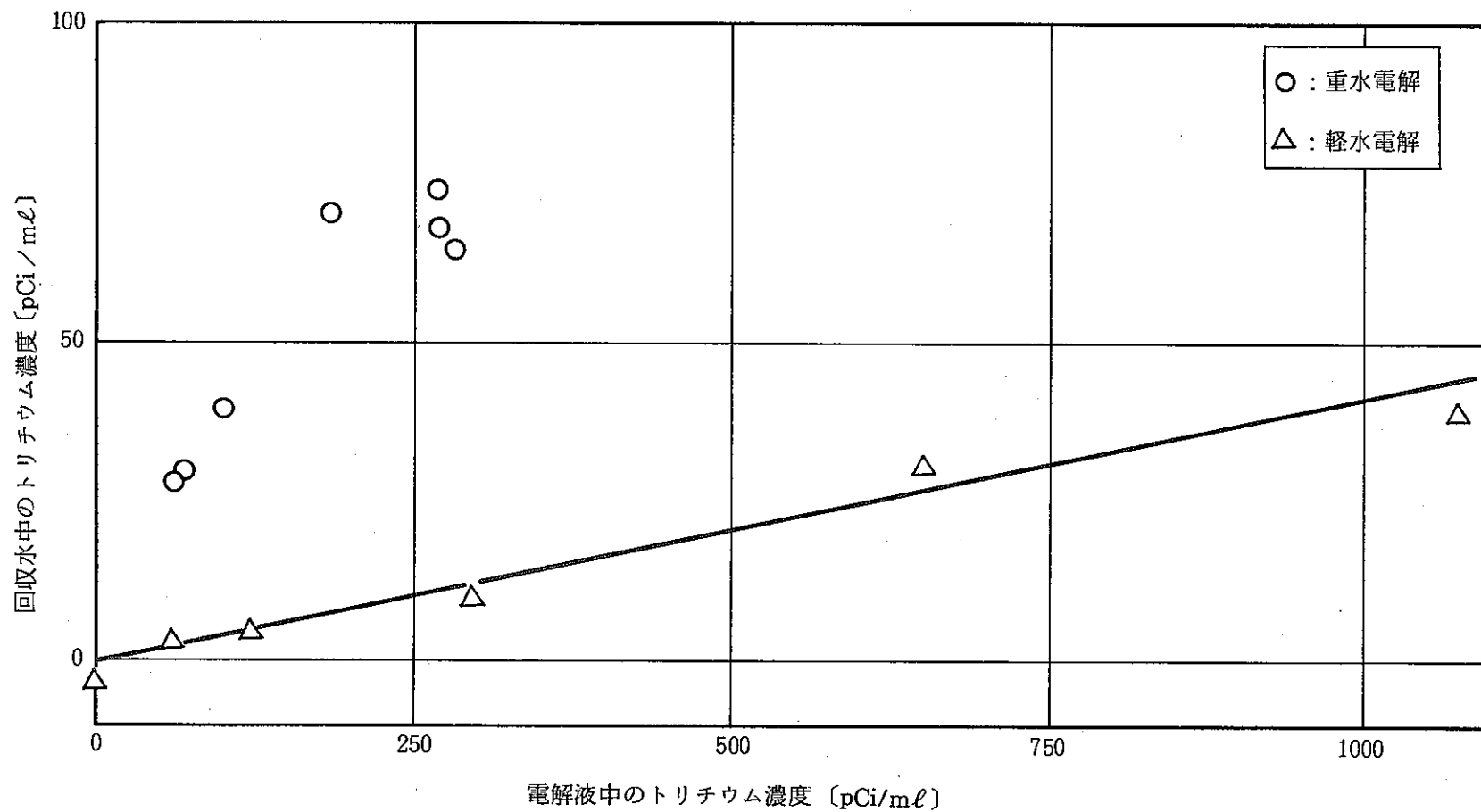


図 4.3.5 電解液中のトリチウム濃度とパラジウム電極から回収された回収水中のトリチウム濃度との関係

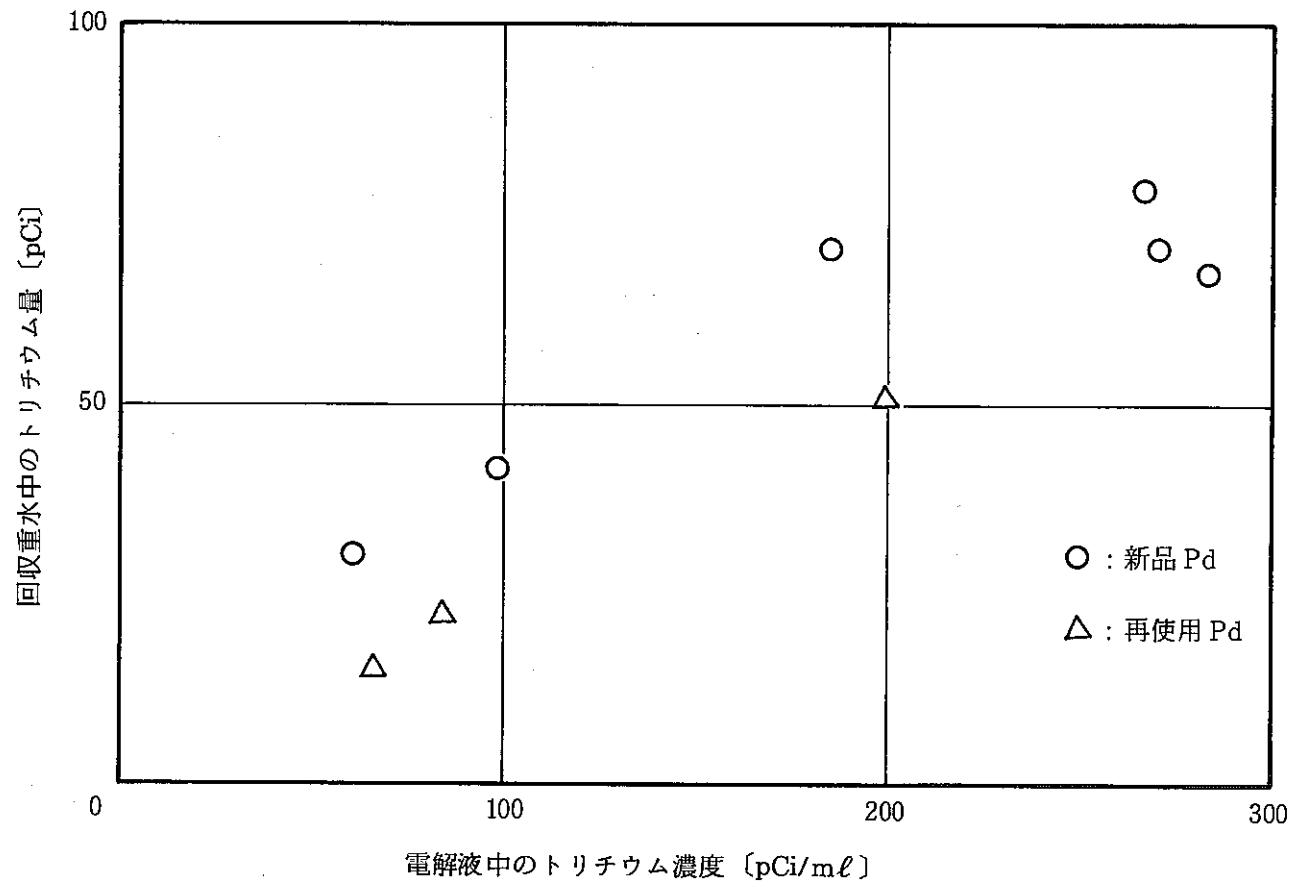


図 4.3.6 パラジウム電極の違いによるトリチウム回収量の違い

4.3.2 質量分析器での測定

(1) 測定装置

使用した質量分析計は、ガス抽出系、質量分析系、真空排気系から構成されている。ガス抽出は、黒鉛ルッポを高周波により加熱し、その中へ試料を落とし込みガスを放出させる。分析系は四重極マスフィルター型で、日本真空製MSQ-400型である。真空系はターボ分子ポンプ及びロータリーポンプで構成されている。以下に概略仕様を示す。

質量範囲	M/e = 1 ~ 400
分解能	M/ΔM = 2 M (50% P. H.)
最少検知分圧	$4 \times 10^{-14} \sim 4 \times 10^{-13}$ Torr (N ₂)
掃引速度	0.1 ~ 1000 秒/Full Mass
二次電子増倍管増幅率	10 ⁵ 以上

(2) 測定方法

1) 試料調整

測定に供した試料はアセトンによる超音波洗浄を施した後、ニッパーにて所定の重量に切断した。試料の重量は2 ~ 3 mgとした。

2) 測定

1100°Cに加熱したルツボ中に試料を落とし込み放出されたガスを直接分析管に導き、M/eマークについて約5分間分析した。各M/e毎のピーク面積を求めガス量とした。

3) 標準ガスの測定

試料中に電気分解により吸収されたD₂、H₂以外にTが吸収されていればM/e 5 (DT⁺)、M/e 6 (T₂) にピークが現れるが、表4.3.3に示すようにH₂、D₂は分析管内でH₂+H⁺、D₂+H⁺、HD、D₂+D⁺の反応を起こし、M/e 5、6のプラグメントイオンを生成し、Tが存在するかどうかかわからない。従って、予めH₂及びD₂の標準ガスにてこの反応によるM/e 5、6の割合を調べる必要があり、試料から放出されるH₂とD₂の比をカバーする範囲で、標準ガスのH₂とD₂の混合割合を変え(1:1 ~ 1:10)測定した。

(3) 測定結果

図4.3.7に電極試料と標準ガスの分析結果を示す。H₂及びD₂ガス量を基準に比較してみるとM/e 3、5及び6が標準ガスよりも明らかに多く検出されていることから、このM/e 3、5及び6に相当するものが電極中に含まれていると考えられる。50サンプル以上に及ぶ分析結果から以下の結論を得た。

(イ) Pd電極中にトリチウムが存在する可能性がある。

(ロ) トリチウムの含有量の定量化については、質量数5又は6の分析強度(面積)より推定すると、バックグラウンドと有為な差が認められる。

(ハ) 質量分析法による水素、重水素、トリチウムのガス分析は、 DDH^+ 、 DHT^+ 等のフラグメントイオン種が生成するため正確な測定が困難である。

(ニ) 微量トリチウムの分析として定量化できる方法は、液体シンチレーションカウンタによるトリチウム水分析である。

表4.3.3 ガスマスク分析法によるマスナンバーと相当する水素系、ガス成分一覧表

マスナンバーM/e	ガス成分
2	H_2^+
3	HD^+ 、 H_3^+
4	HT^+ 、 D_2^+ 、 H_2D^+
5	DT^+ 、 H_3D^+ 、 HD_2^+
6	T_2^+ 、 HDT^+ 、 D_3^+ 、 $^{12}C^{2+}$ (るつぼ容器材)
7	HT_2^+ 、 D_2T^+

(M:質量数)
(e:価電子数)

($^3He^+$ 、 $^4He^+$ 系のイオンは除く
2価、3価のイオン系は省略した)

	H	D	T
H	H_2	HD	HT
D		D_2	DT
T			T_2

	H	HD	HT	D_2	DT	T_2
H	H_3	H_2D	HT	HD_2	HDT	HT_2
D		HD_2	HDT	D_3	D_2T	DT_2
T			HT_2	D_2T	DT_2	T_3

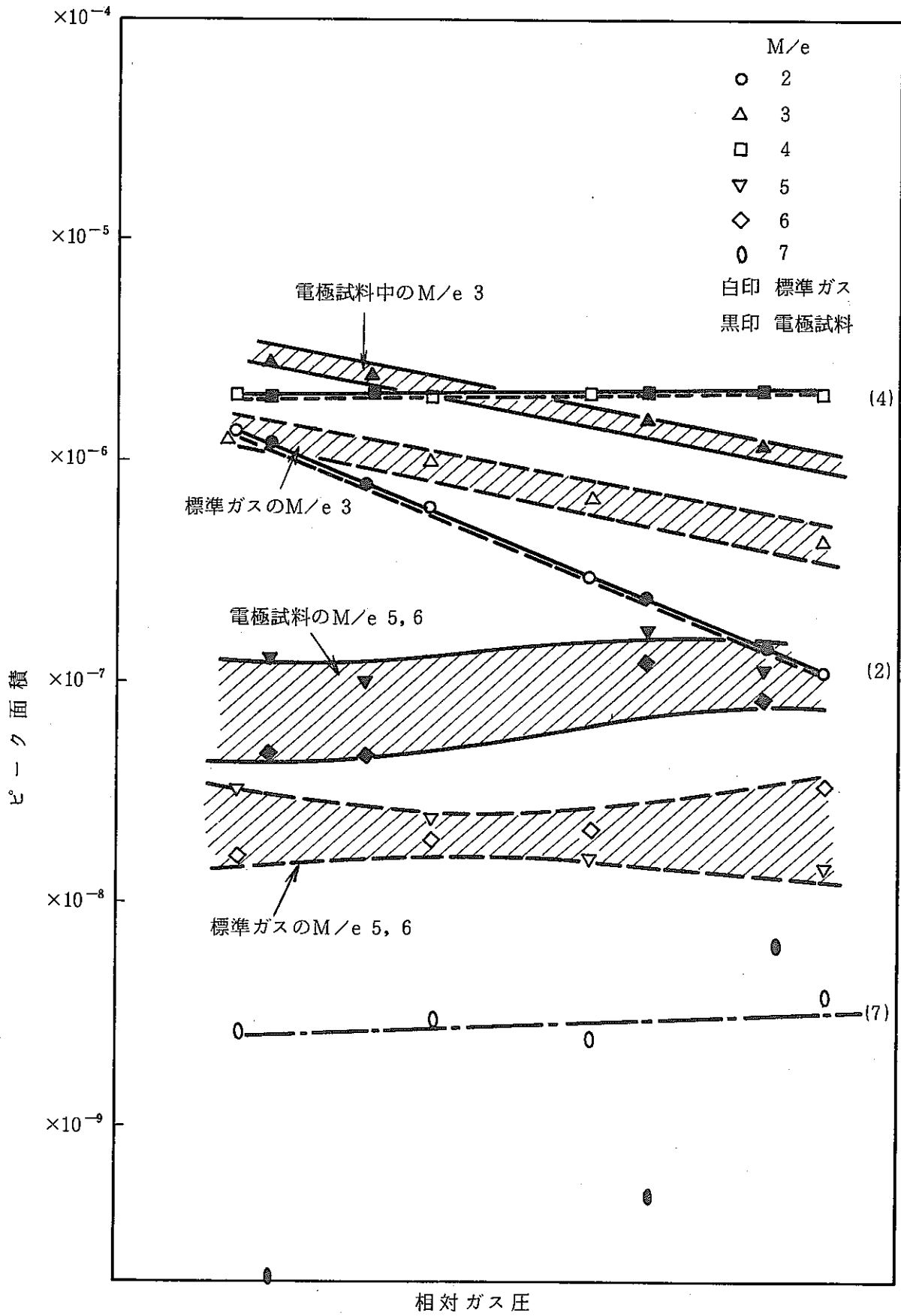


図4.3.7 標準ガスと電極試料におけるM/e 2, 4に対するM/e 3, 5, 6の割合の比較

5. 重水素ガスを用いた実験

5.1 実験装置

重水素ガス方式の実験に用いた装置は図5.1に示すように、ステンレス製の容器である。この容器の中に200gの粉末Tiを入れ、Tiに重水素を十分に吸蔵させた。

5.2 実験方法

5.1の実験装置内の重水素ガス圧を8気圧又は40気圧にし、30分～1時間液体チッソで冷却したあと(図5.2参照)、1時間半～2.5時間放置し、5"φNE213液体シンチレーションカウンタで中性子を計測した(図5.3,4参照)。

米国LANLの同様の実験では、中性子は200マイクロ秒程度の間にはバースト状に発生したとの報告があった。中性子が短時間に集中して発生するとすれば、その前後の短時間では中性子計数率はバックグラウンド計数率より高くなるため、中性子発生の確認がより容易であることになる。即ち、直径5"のNE-213検出器でバックグラウンドが、1秒間に1個の計数がある確率は0.018であり、2秒間に3個の計数がある確率は $0.036 \times 0.036 \times 0.036 = 4.7 \times 10^{-5}$ となる。従って計数の時間幅を2秒に設定すれば、約12時間の間に3個以上の計数のある確率は1回となる。LANLの実験結果と我々の検出器の検出効率を勘案して、短時間に3個程度の計数があるものと期待してこの様な考え方で測定を実施した。

計測システムは図4.2.3と同じであり、MCS測定(2秒/1チャンネル)を行った。中性子測定は冷却時から行った。冷却、冷却停止、放置のサイクルは6～9サイクル行った。

5.3 実験結果

3個以上の計測があったのは1度だけであり、その結果を図5.5に示す。3個の計測があった時間は冷却停止後約40分の時である。なお、バックグラウンドの測定(6サイクル)で2個以上の計測は認められていない。今後、再現性の実験を行う必要がある。

また、LANLの実験では約-30°Cでバースト的に中性子が放出されたとしているが、本実験に用いた装置は大きいため、装置内に温度分布がつき、Ti粉末全部が同時に-30°C程度になり、大量の中性子に放出する確率は小さいとも考えられる。時間遅れがありバースト中性子量が少ない可能性がある。

このため、2秒間ずつ測定したものを積分して1,000secでまとめた結果を図5.6～図5.21、バックグラウンドの例を図5.22に示す。図5.6～図5.12はガス圧8気圧の場合、図5.13～図5.21はガス圧40気圧の場合である。

ガス圧 8 気圧の場合、サイクル 3 及び 7 で冷却停止後約 40 分にバックグラウンドより若干高い数値が見られている。ガス圧 40 気圧の場合では、サイクル 2, 3, 4, 6 及び 8 で停止後約 40 分にバックグラウンドより若干高い数値が見られている。

また、サイクル 1 及び 9 では冷却初期の時にバックグラウンドより若干高い値が見られている。

今後、再現性の実験を行うとともに、精度を向上させるには低バックグラウンド、高計数効率の中性子検出器を整備する必要がある。

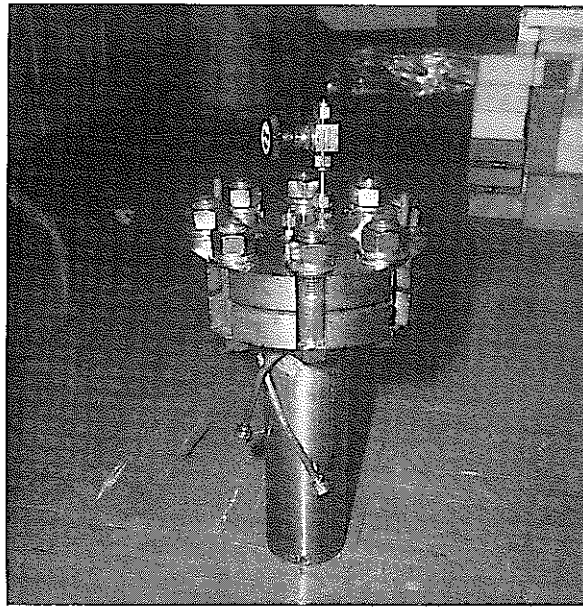


図5.1 重水素ガス方式のステンレス製容器

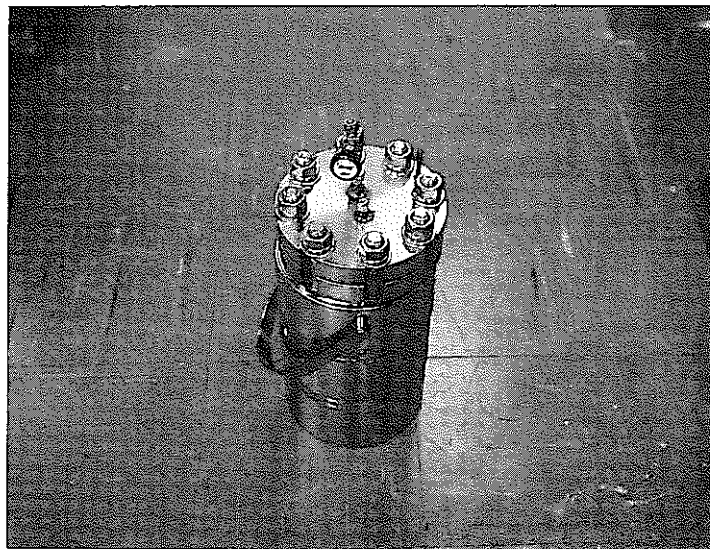


図5.2 ステンレス製容器を液体チッソで冷却している状態

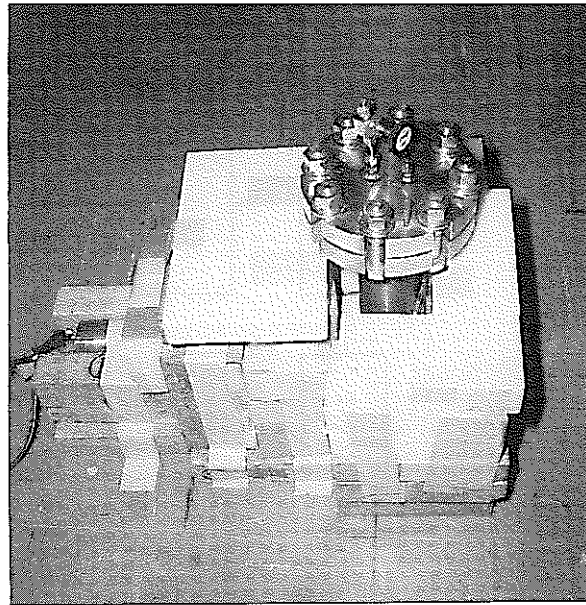


図5.3 冷却停止後の実験装置のNB213で計測

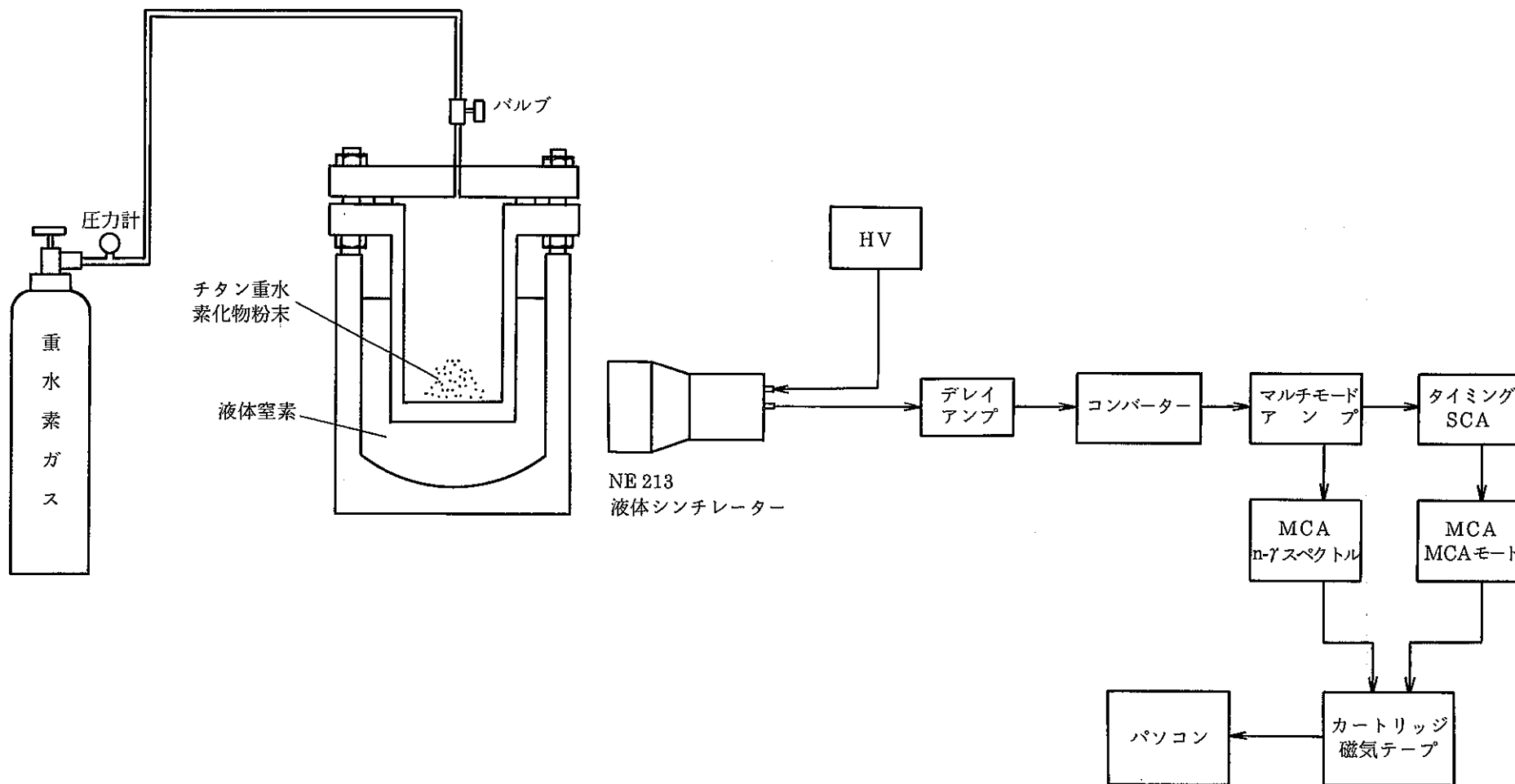


図5.4 重水素ガス方式の中性子測定系

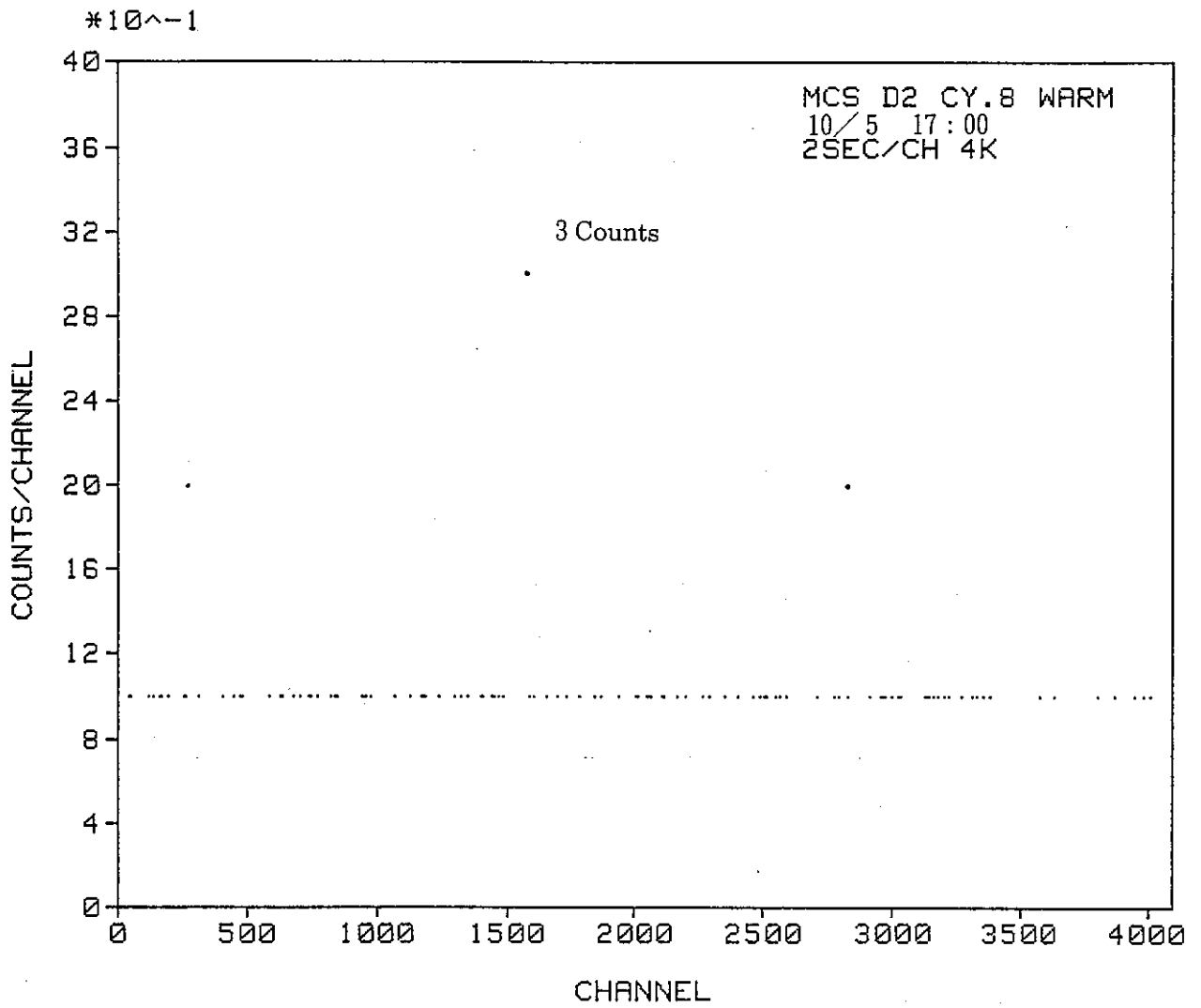


図5.5 中性子測定結果 (Cycle 8, ガス圧40気圧)

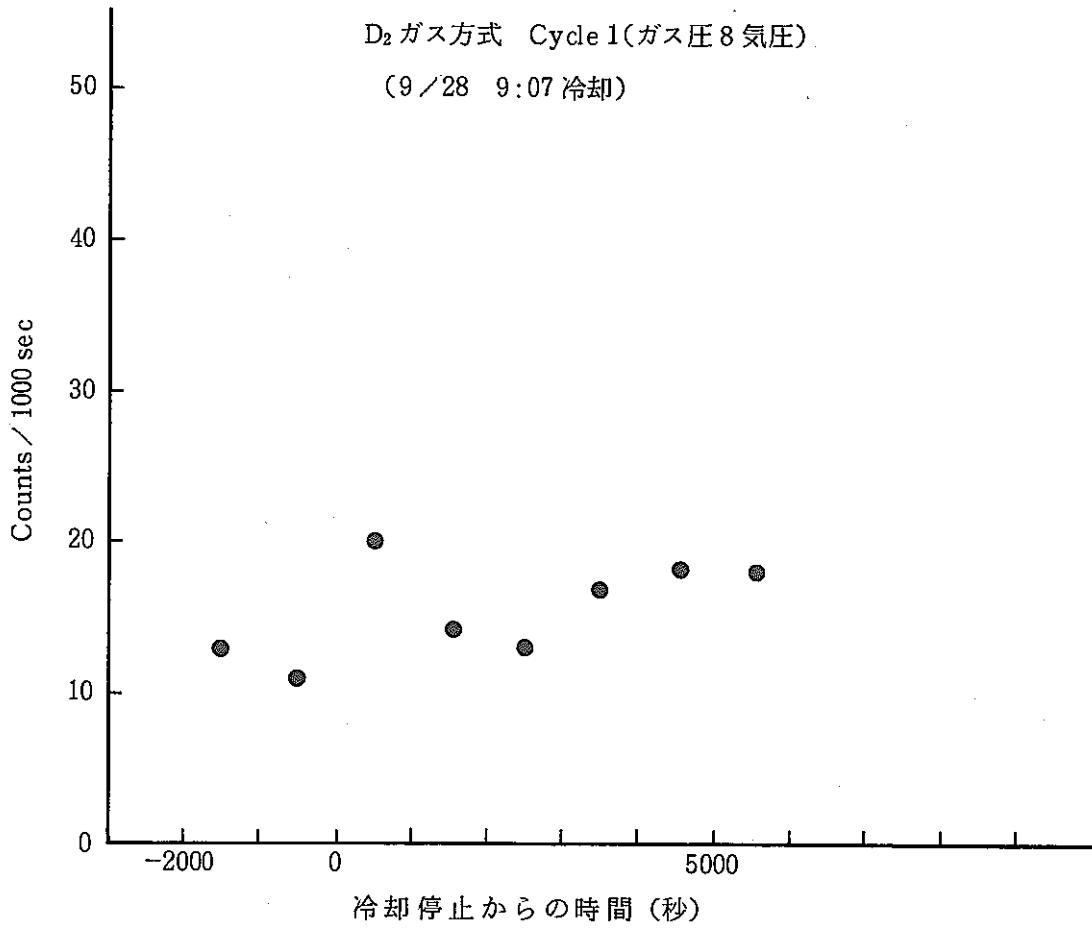


図 5.6 中性子測定結果 (Cycle 1, ガス圧 8 気圧)

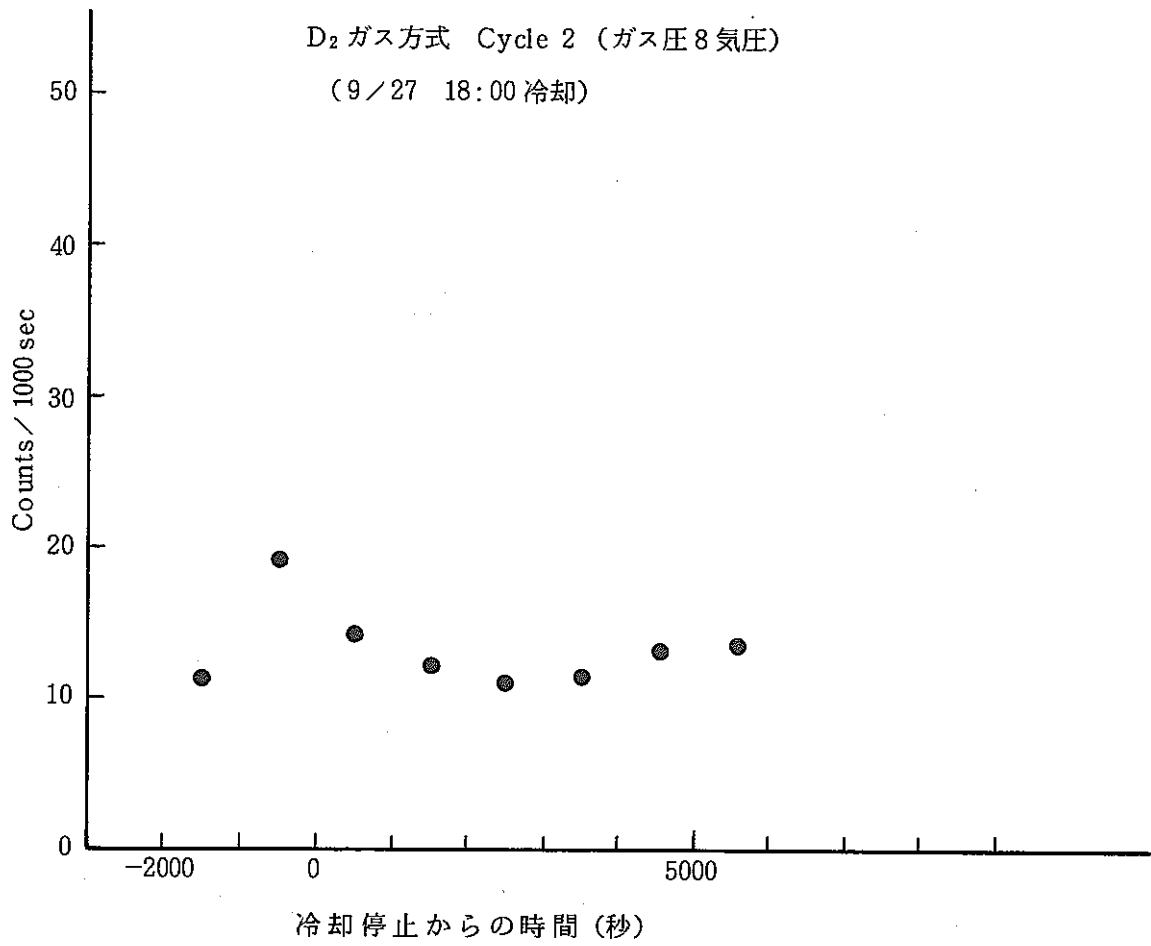


図 5.7 中性子測定結果 (Cycle 2, ガス圧 8 気圧)

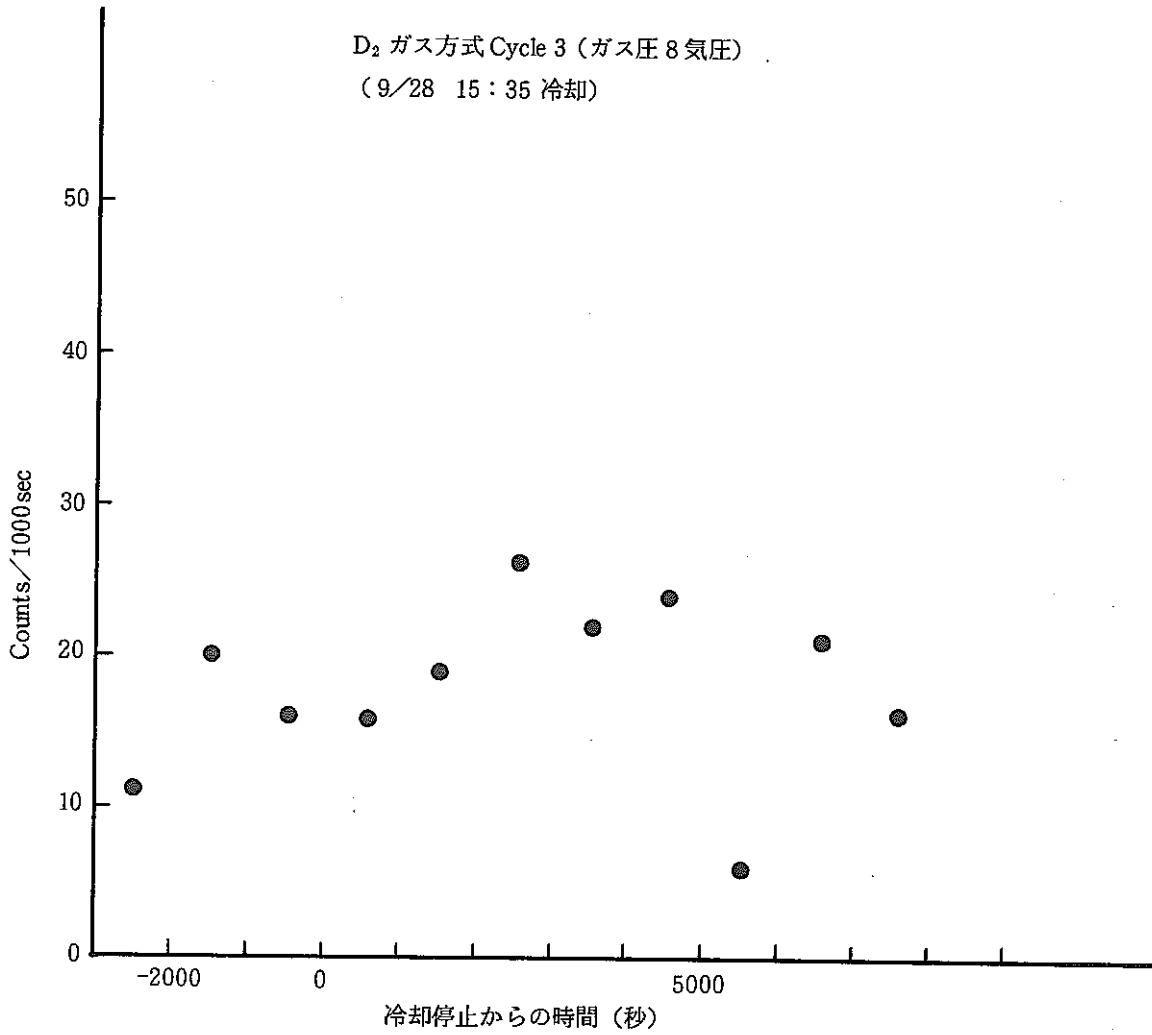


図 5.8 中性子測定結果 (Cycle 3, ガス圧 8 気圧)

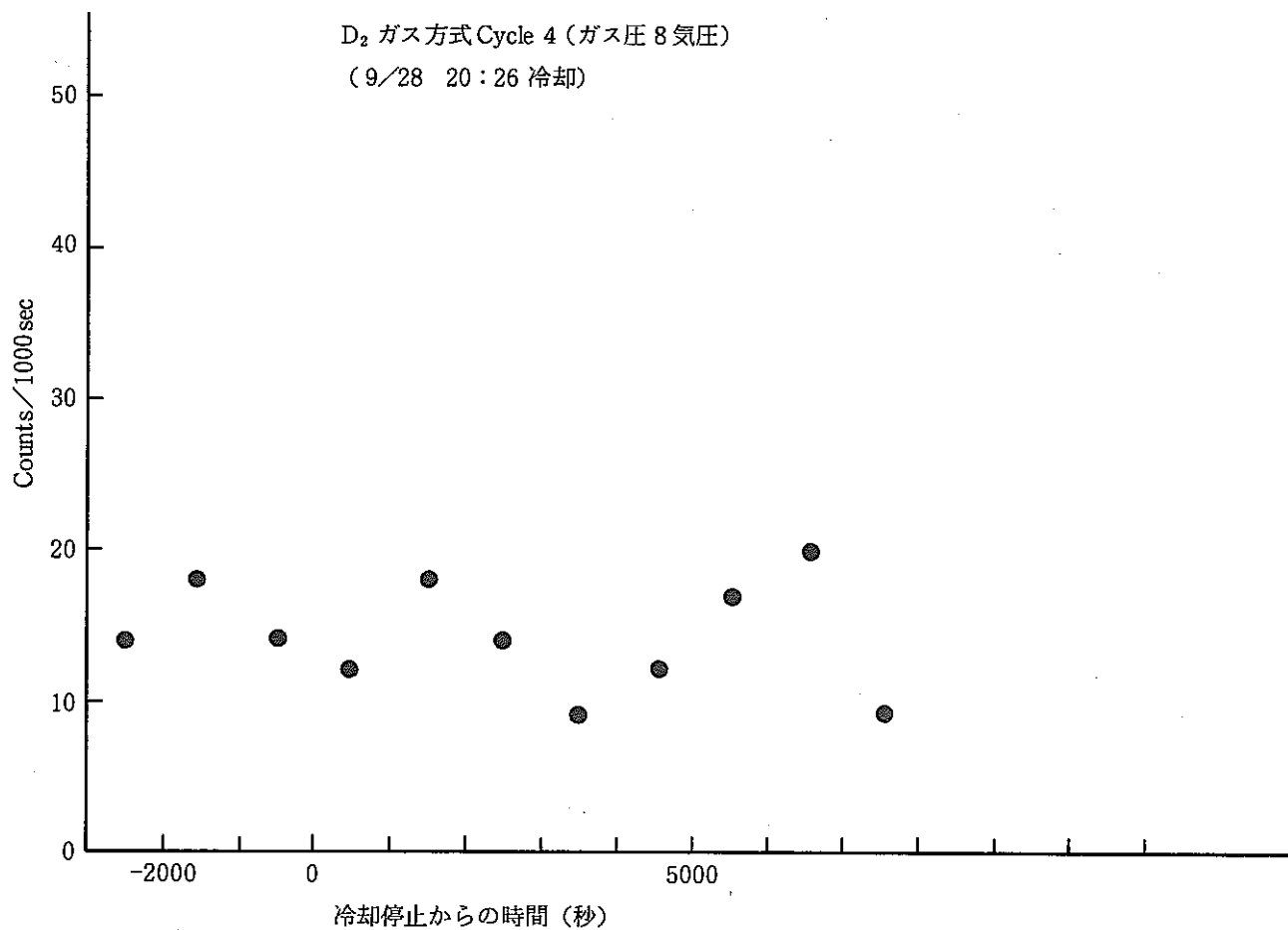


図 5.9 中性子測定結果 (Cycle 4, ガス圧 8 気圧)

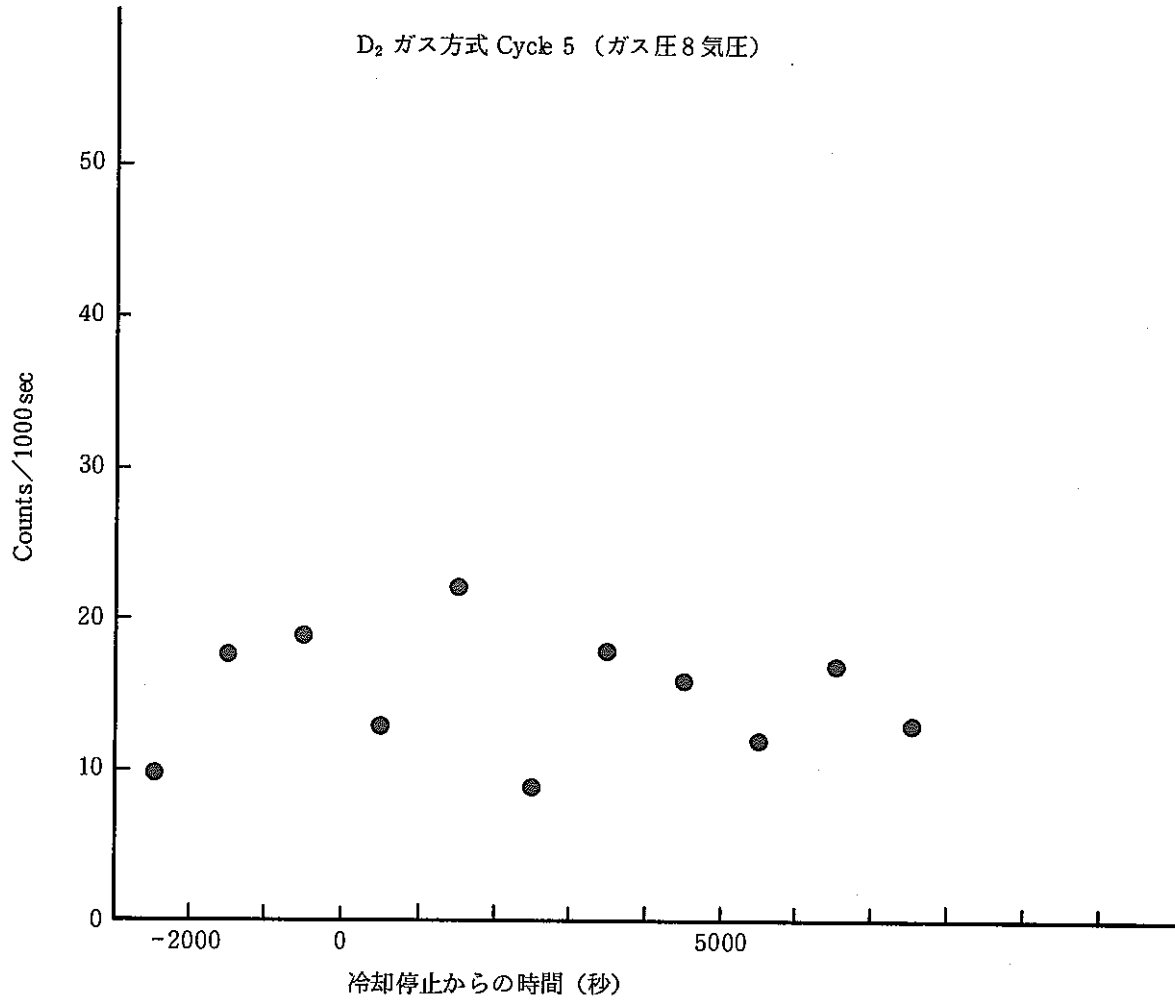


図 5.10 中性子測定結果 (Cycle 5, ガス圧 8 気圧)

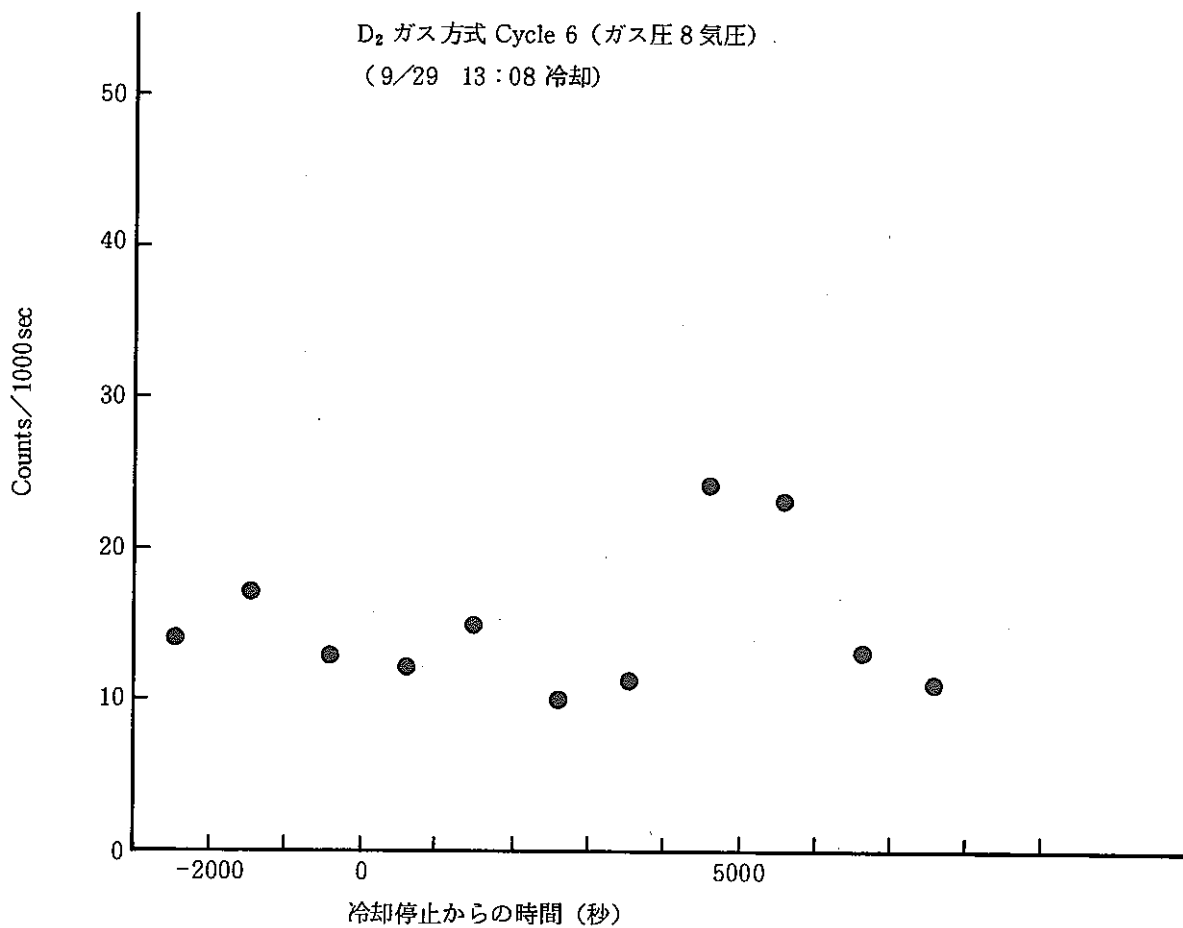


図 5.11 中性子測定結果 (Cycle 6, ガス圧 8 気圧)

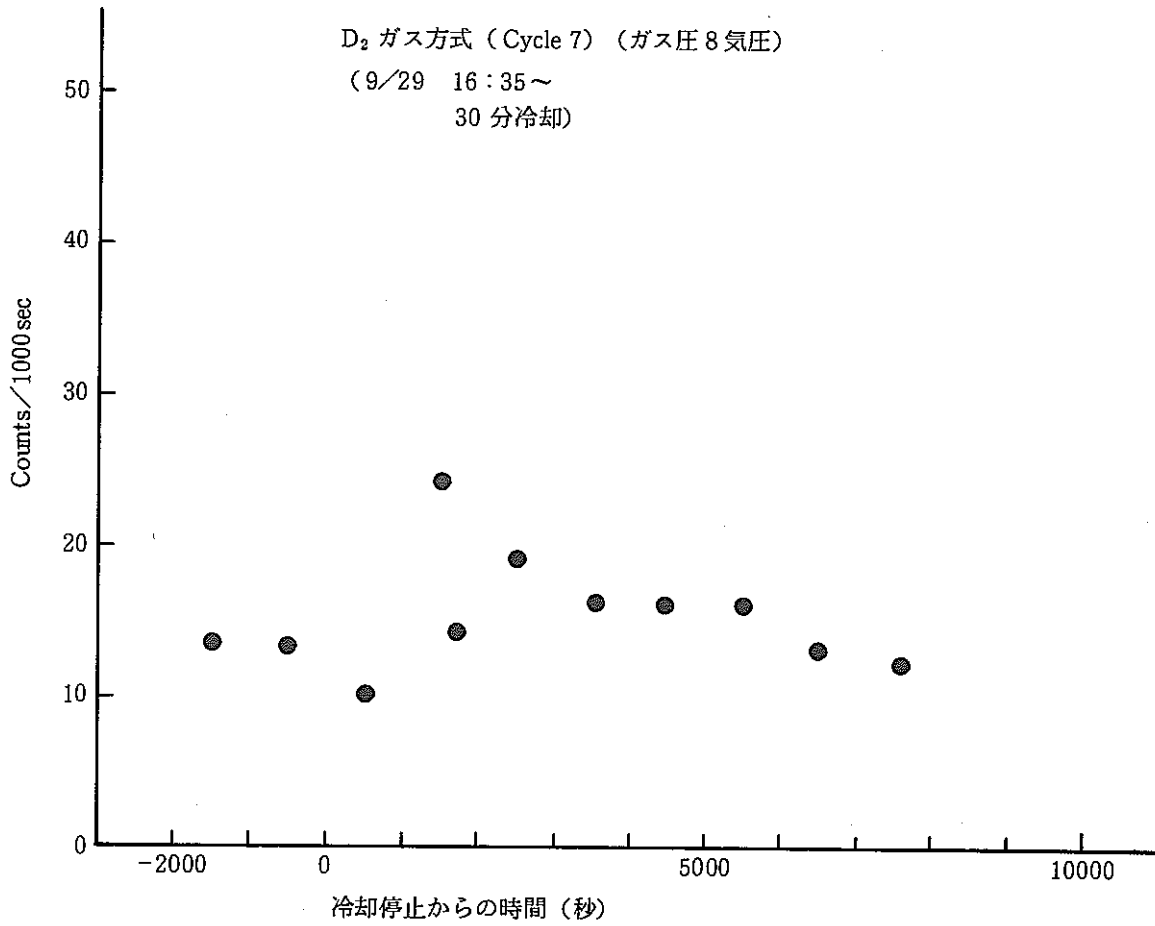


図 5.12 中性子測定結果 (Cycle 7, ガス圧 8 気圧)

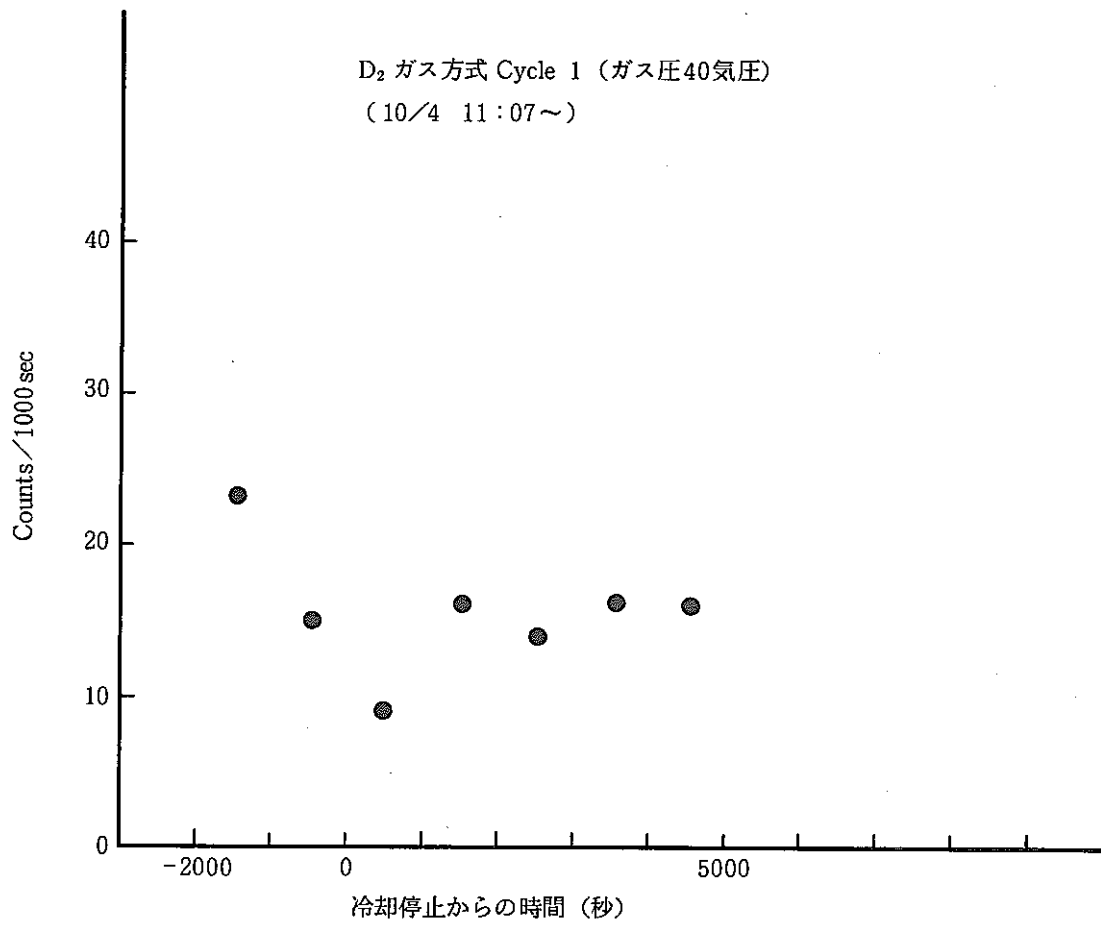


図 5.13 中性子測定結果 (Cycle 1, ガス圧40気圧)

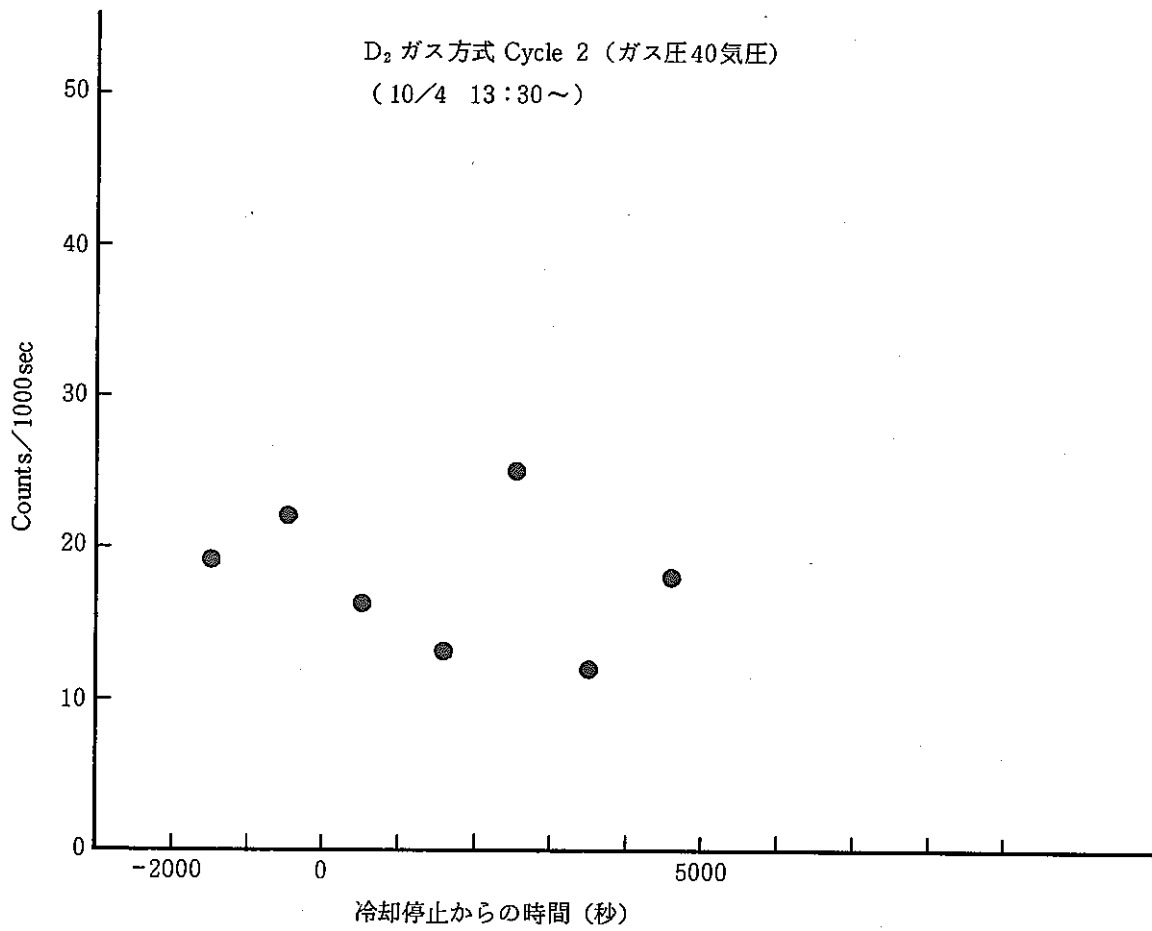


図 5.14 中性子測定結果 (Cycle 2, ガス圧 40 気圧)

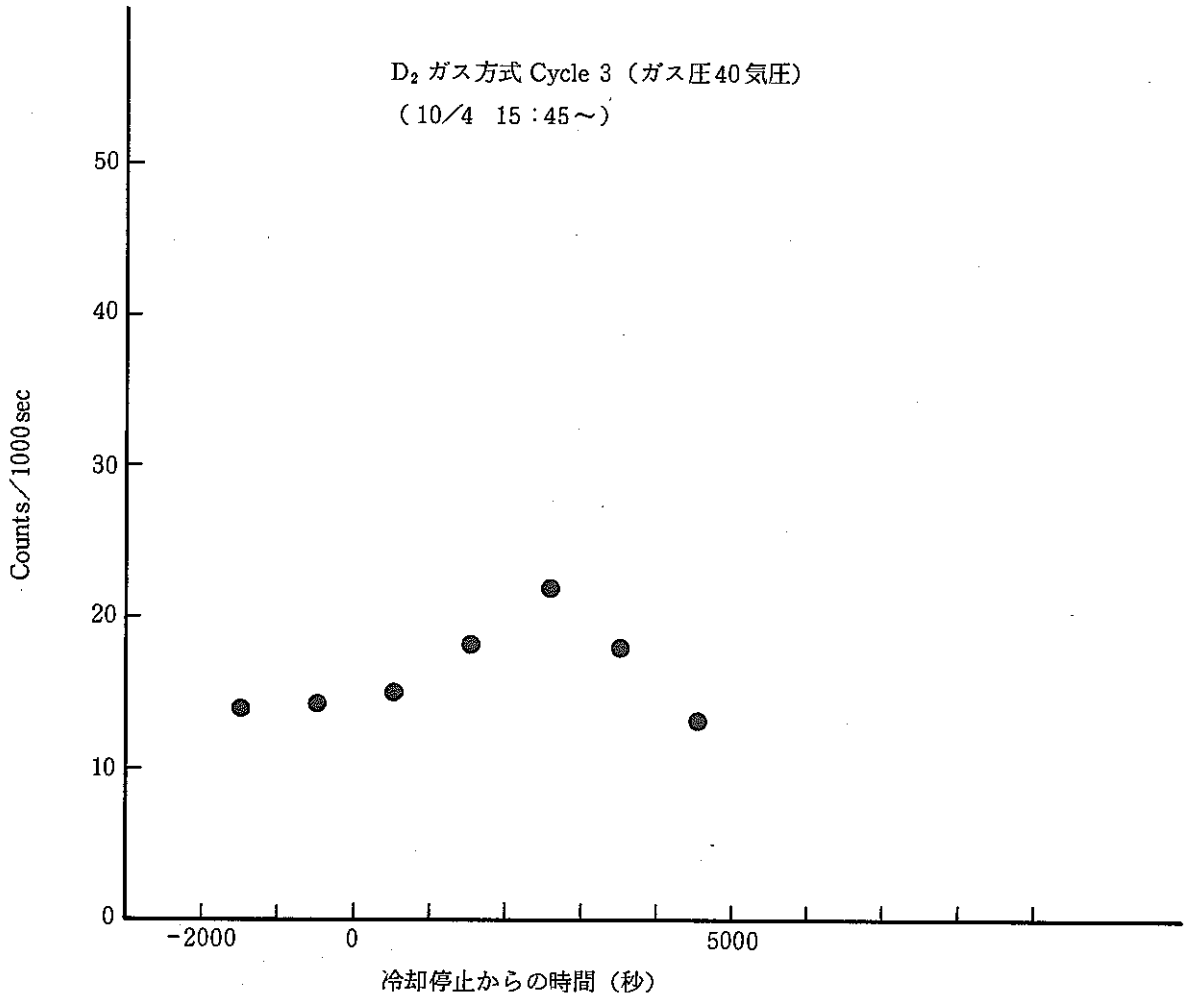


図5.15 中性子測定結果 (Cycle 3, ガス圧40気圧)

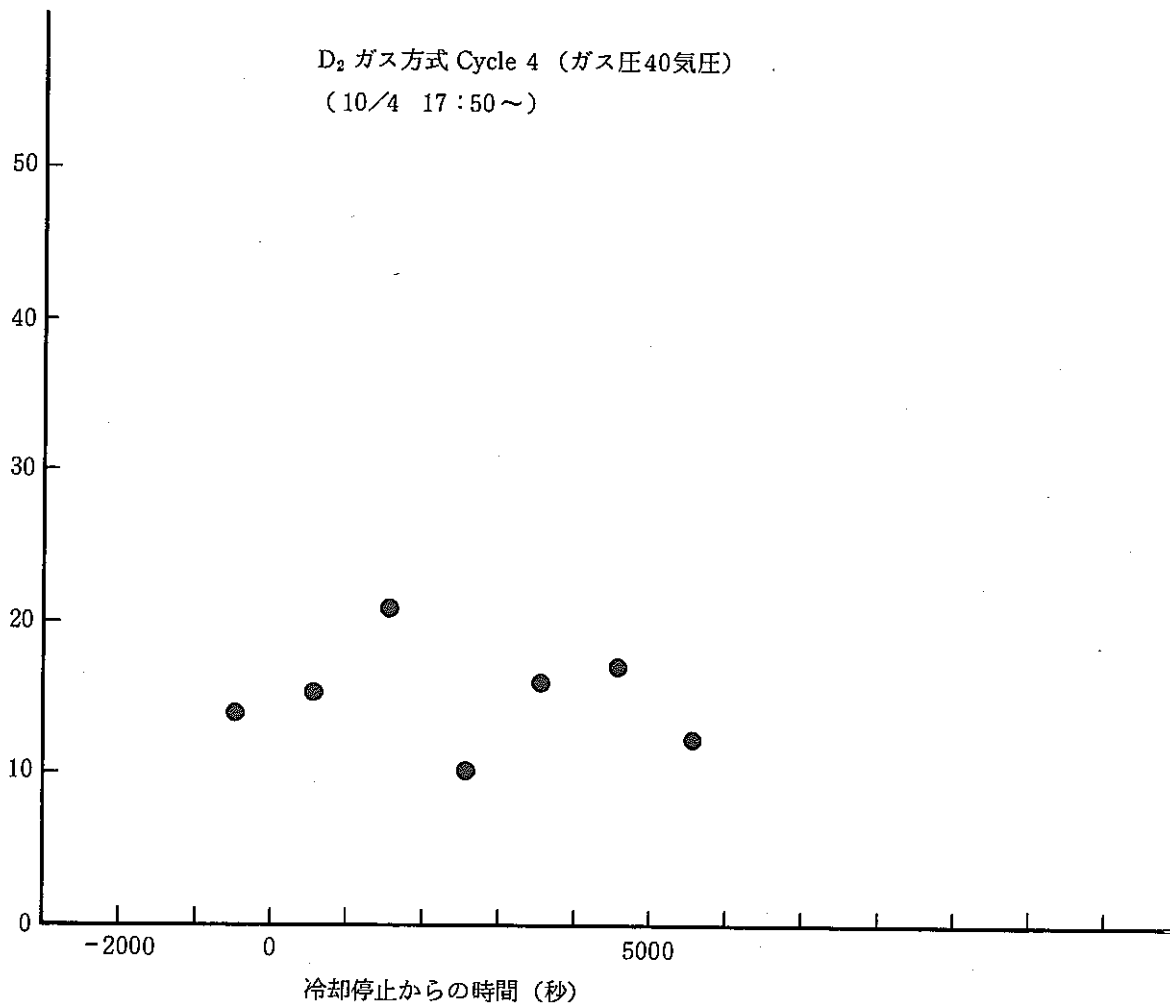


図 5.16 中性子測定結果 (Cycle 4, ガス圧40気圧)

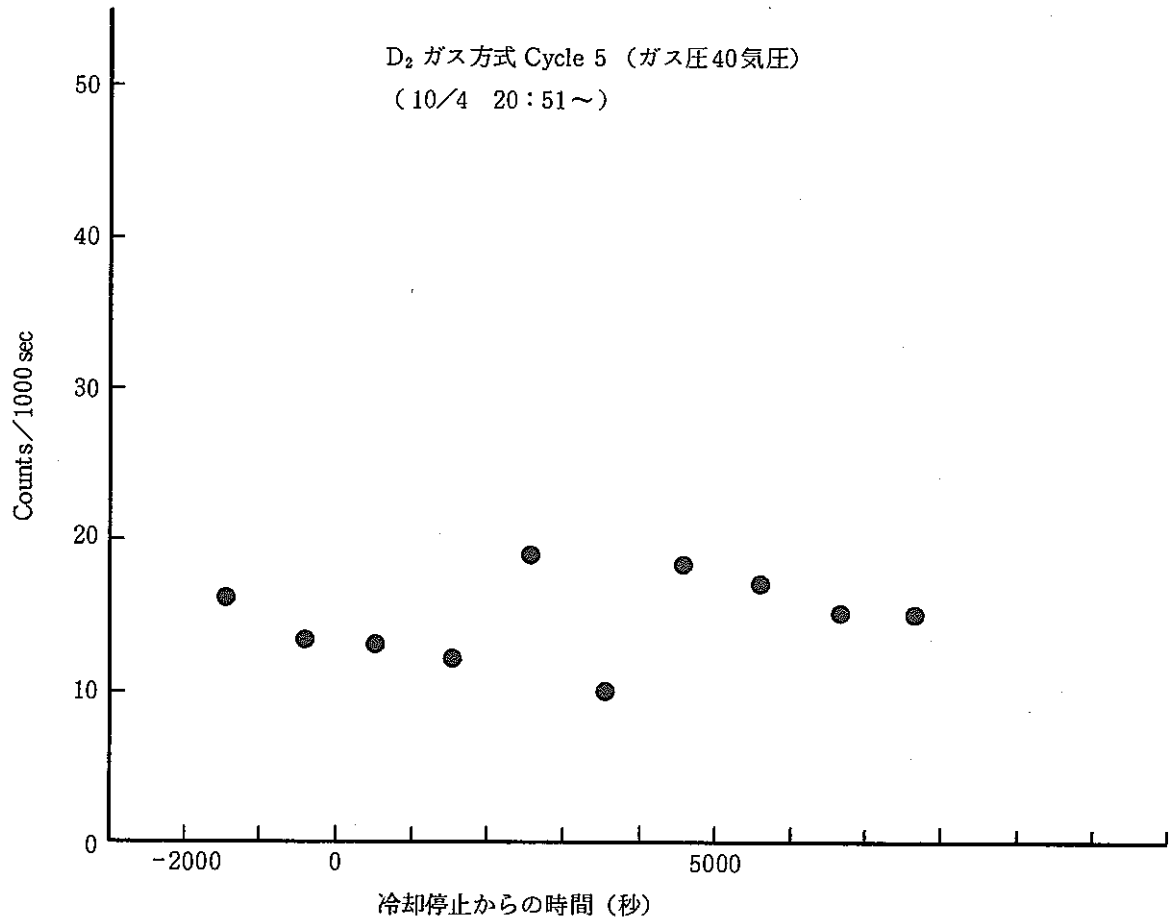


図5.17 中性子測定結果 (Cycle 5, ガス圧40気圧)

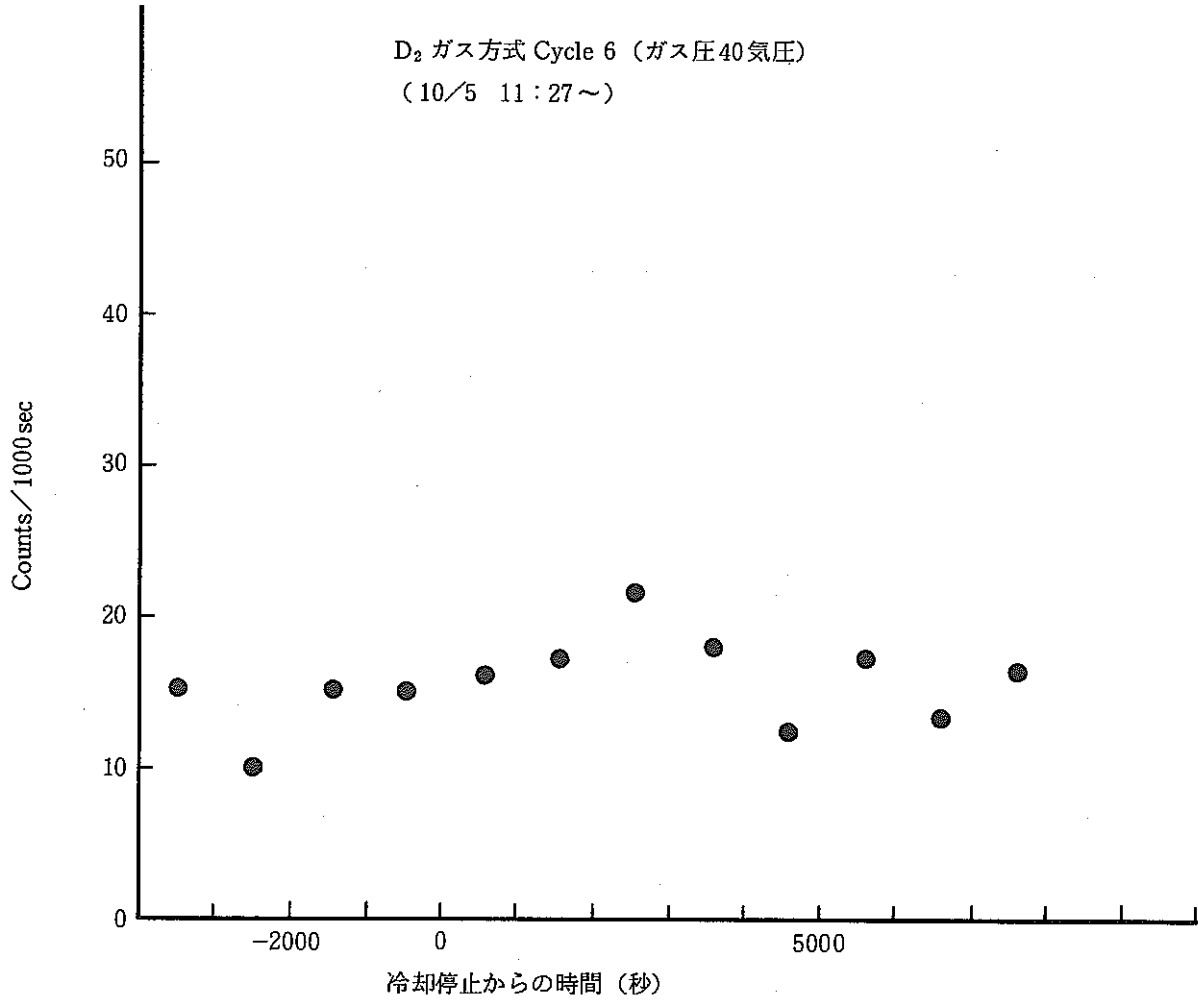


図 5.18 中性子測定結果 (Cycle 6, ガス圧40気圧)

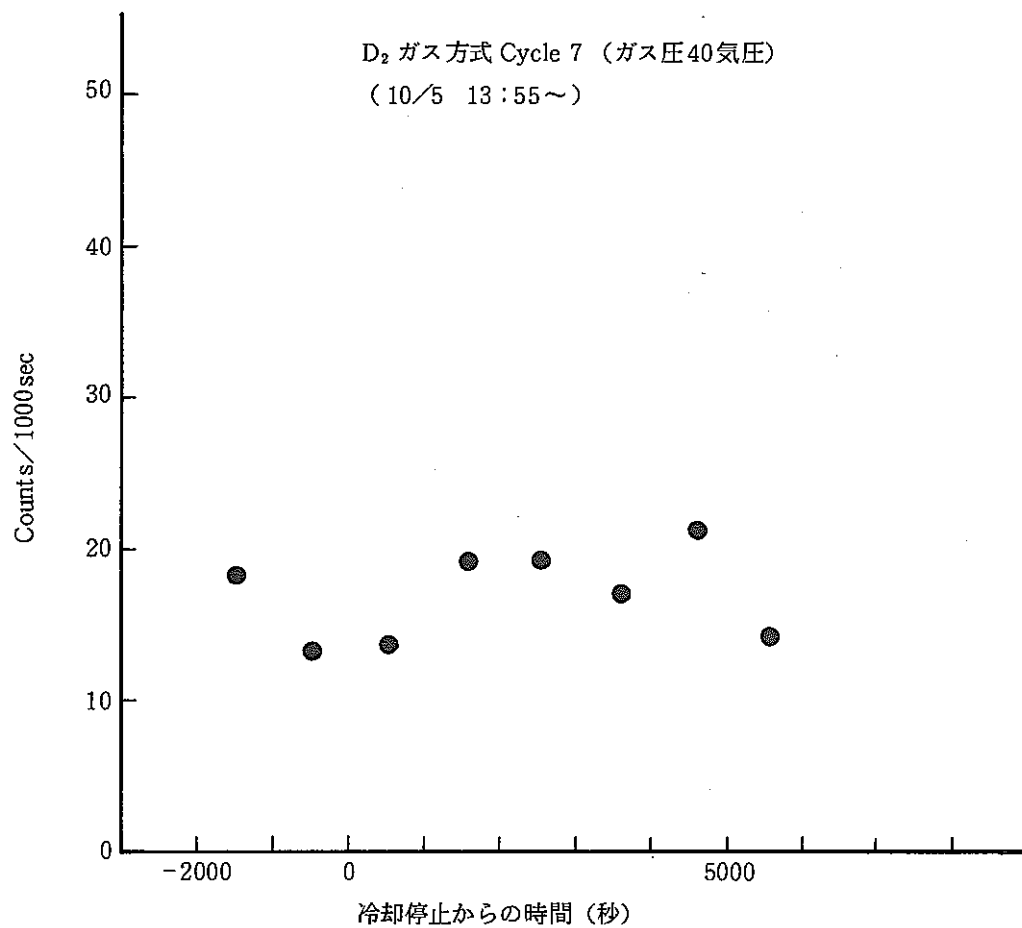


図 5.19 中性子測定結果 (Cycle 7, ガス圧40気圧)

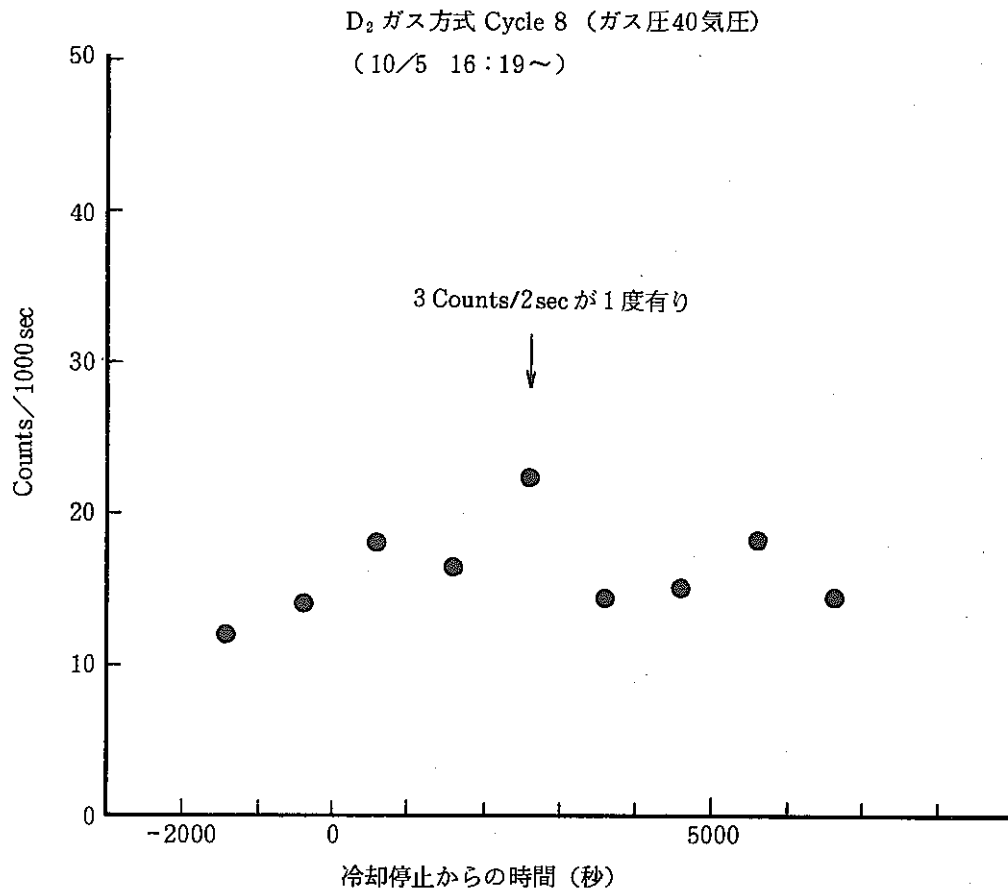


図 5.20 中性子測定結果 (Cycle 8, ガス圧40気圧)

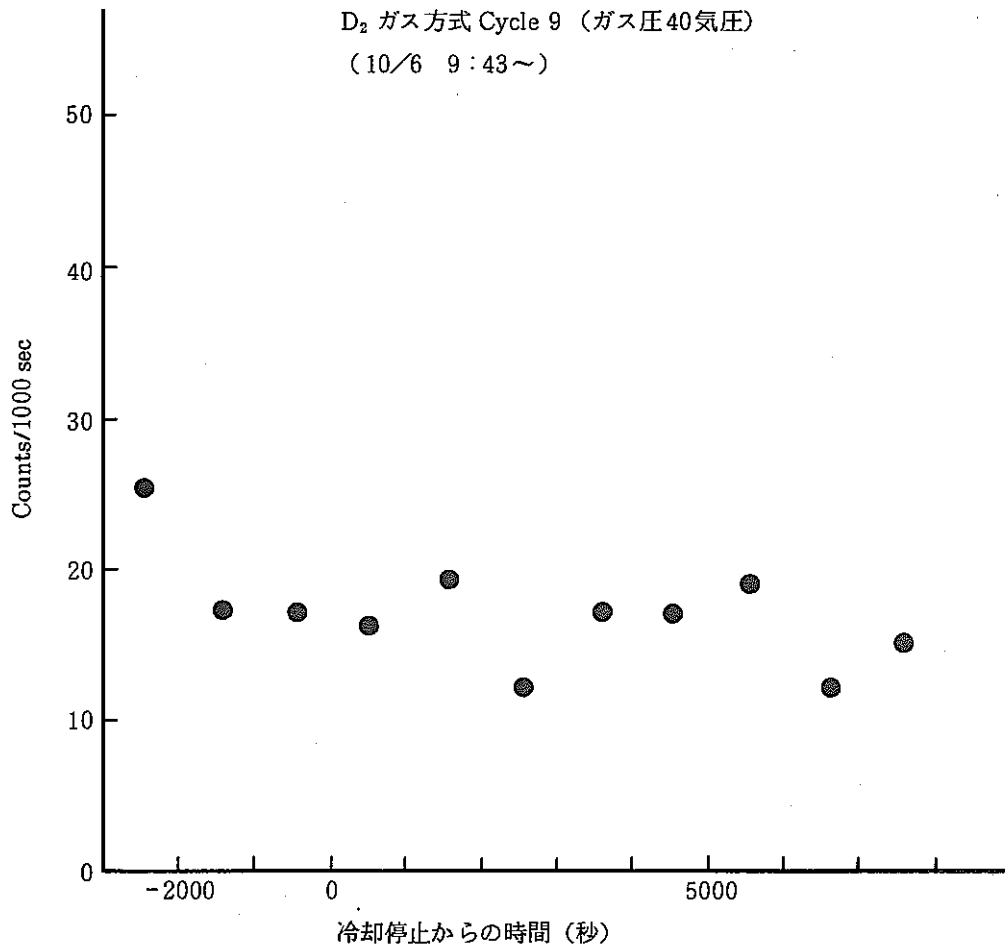


図 5.21 中性子測定結果 (Cycle 9, ガス圧40気圧)

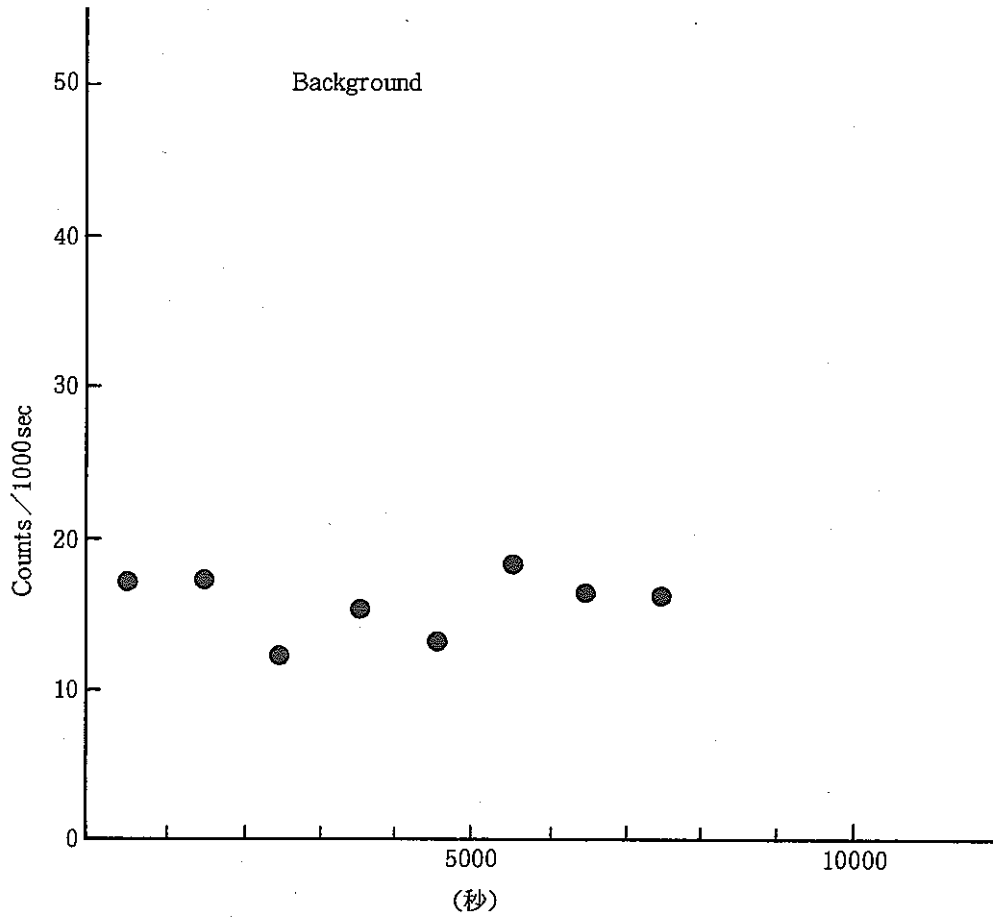


図 5.22 中性子測定結果 (バックグラウンド例)

6. 低温核融合の理論

低温核融合の理論についていろいろと出されているが⁸⁾ ⁹⁾ 確立したものがないので中間報告書では除く。しかし、 $D(d, p)T$ と $D(d, n)He$ のBranching Ratioについては大洗の実験結果の評価に関連するので紹介する。出典はBNL¹⁰⁾ ¹¹⁾のものである。

$PdDx$ における電子は重水素の近くにかたまっている。そして、それらの電子は、オージェ電子プロセスと同じようにFission プロセスにおいても非常に大きなエネルギーを吸収することができる。

重水素が壊れることなく、クーロンバリアーを透過した場合、 4He の複合核が形成される。この低いエネルギー反応においては、p波透過係数はs波透過係数に比べて非常に小さい。これより、重水素のスピンの粒子は、 $0+$ 、 $1+$ 、 $2+$ の複合核が形成される。しかしながら、 4He のGround状態からの23.848MeVのd-d 反応しきい値エネルギーの基では、4つの複合核のみ $E_{ex}=0MeV(0^+, 0)$ 、 $20.1MeV(0^+, 0)$ 、 $21.1MeV(0^-, 0)$ 、 $22.1MeV(2^-, 0)$ が存在する。1個の重水素がs波チャンネルでクーロンバリアーを透過した場合、Ground状態と20.1MeVの第2状態の複合核がパイルアップ電子の放出によって作られる。

$D(d, n)He$ 反応のしきい値エネルギーは 20.578MeV、 $D(d, p)T$ 反応のしきい値エネルギーは 18.815MeVあるため、20.1MeVの複合核状態からは、pとTだけが放出される。

7. ま と め

今回の追試実験結果をまとめると以下の様になる。

- (1) 電気分解方式におけるTの測定結果については、Pd電極中に濃縮又は分離効果以上のTが生成された可能性がある。(70時間電気分解で約10pCi (2×10^8 個T))
- (2) 電気分解方式における中性子測定結果については、一部バックグラウンドと優位な差(1.2倍, 3σ 以上)と認められ結果が得られたが、その後未だ再現したデータは得られていない。
- (3) 重水素ガス方式における中性子測定結果については、40気圧の場合、冷却停止約40分後、温度上昇時に、バックグラウンドより多い計測が数度得られた。

これら追試実験結果より低温核融合の可能性について、次の様な推察ができる。

- (イ) Tの生成から考えて、フライシュマンとポンズの実験のような大量の熱発生はないにしても低温核融合の可能性はあると思われる。
- (ロ) T生成量と比べる中性子発生数は非常に少ないため、 $D(d, p)T$ 反応と $D(d, n)He$ 反応の分岐比 (p/n)が大幅にかたよっていることが必要である。

表6.1に結果のまとめを示す。

表 6.1 低温核融合追試実験結果のまとめ

	電 気 分 解				重水素ガス吸蔵 (冷 却)	
(測定項目)	中 性 子	重 水 中 の T	Pd(Ti)電極中の T	熱	中 性 子	
(測定器)	<ul style="list-style-type: none"> NE213(3" φ, 5" φ)シンチレーションカウンター ³Heカウンター 	液体シンチレーションカウンター	質量分析器	液体シンチレーションカウンター	熱電対	NE213(5" φ)シンチレーションカウンター
(方法)	<ul style="list-style-type: none"> 主にNE213(5" φ)で電極との距離5~10cmで測定 ³He では1ℓの重水, 6電極で測定 	電解前後の重水中のT濃度の分析	電解後, Pd, Tiの電極を切り, 質量分析器でH, D, Tの量を分析	電解後, Pd電極をビンの中でO ₂ と反応させ, T ₂ Oとして回収し, 液シンで測定。	重水の温度変化を連続的に測定。	Ti粉末にD ₂ ガスを吸蔵させ, 液体チッソで冷却し, 室温へ戻す。2秒間隔で測定。
(追試パラメータ)	<ul style="list-style-type: none"> 電極の大きさ (2cm²~50cm²) 電解時間 (24h~7日) 電極種類 (板, 棒) 電解液 (LiOH, Li₂SO₄) 電圧, 電流等 	<ul style="list-style-type: none"> 電極の大きさ 電解時間 電解液等 	<ul style="list-style-type: none"> 電解時間 (14h~48h) 軽水 (T入り) と重水との比較 D₂, H₂ガスでのイオン相互結合のチェック 	<ul style="list-style-type: none"> 電極の大きさ (2cm²~50cm²) 電解時間 (48h~7日) Pd電極の処理 (再使用含) T濃度 	<ul style="list-style-type: none"> 電極の大きさ 電解時間 電圧, 電流 	Ti...200g (粉末) ガス圧...8, 40気圧
(結 果)	<ul style="list-style-type: none"> 大部分の実験ではバックグラウンドと有意な差は見られず 大型Pd板の実験で3σ以上の差有り 	大型電極で長時間電気分解した場合に, 電解後のT濃度大 (濃縮か?)	軽水 (T入り) で電気分解したPd中のTより重水中の方が多。	同左 T濃縮効果よりもPd中のTが多い。	有意な温度上昇見られず	40気圧の場合, 冷却停止約40分後に, バックグラウンドより多い計測がみられた。
(判 定)	△	?	△	○	?	△
(今後の検討課題)	<ul style="list-style-type: none"> 大型Pdでの実験 (長時間) バックグラウンドの低減 	濃縮効果の評価	Pd中のT濃縮効果の実験, 計算による評価 (軽水, 重水)	条件によってTの量が異なる。再試験必要。	熱量計による測定	<ul style="list-style-type: none"> 再現性実験 Pdによる実験

実験結果のまとめ

- 電気分解
 - トリチウムについては, Pd電極中に濃縮又は分離効果以上のトリチウムが生成された可能性がある。
 - 中性子については, 一部バックグラウンドと優位な差が認められる結果が得られたが, 再現性はまだない。
- 重水ガス方式

40気圧の場合, 冷却停止約40分後に, バックグラウンドより多い計測がみられたが, 再現性実験により今後つめる必要がある。

考 察

- トリチウムの生成から考えて, 低温核融合の可能性も考えられる。
- トリチウムの生成量と比べると中性子数は非常に少ないため, D(d, p)T反応とD(d, n)He反応のBranching Ratio(p/n)が大きい可能性が考えられる。(理論的考察の論文有)

備 考

○印は信頼性ある結果が得られた。
△印は再現性実験を行う必要がある。

8. 今後の課題

低温核融合研究の今後の課題としては、以下の点があげられる。

1. 低レベル中性子測定器の整備

現在PNCが所有している中性子検出器の検出効率は0.3～3%程度(NE213の場合)である。

ロスアラモス研究所では20～30%の検出効率の中性子測定器を所有しており、検出器性能の優劣が結果に大きな影響を及ぼしている。このため以下の低レベル中性子検出器の整備を行う必要がある。

① 検出効率30%程度の³He カウンターシステム(ロスアラモス研究所に相当するもの)。

この検出器は将来PP用としても活用できる。

② 5" φ NE213液体シンチレーションカウンター

現在大洗で所有している5" φ NE213 と同種のものを1台整備し、2台の検出器を組合せて検出効率をあげる。

付録2に詳細な中性子計測計画を示す。

2. 発熱量の測定

低温核融合による発熱量の測定は今まで熱電対による電解液のモニター程度である。熱量計等を整備して十分な精度で測定できるようにする必要がある。

3. 最適システムの検討と実験

発熱量や中性子及びトリチウムの発生量が大きくなる実験システムの検討と実験を行い、将来の実用化に対する可能性を検討する必要がある。特許出願を目指す。

4. 新アイデアによる実験

以下の様な新しいアイデアの実験を行い、新たな可能性を追求する必要がある。

① DをTi, Pd に吸蔵させた後、超高圧, 超高温, 強力磁界での実験

{ レーザー照射→超高温
超音波によるキャビテーション→圧縮破壊→超高圧
超電導コイル→高磁界

② D-T核融合

トリチウム入り重水, トリチウム入り重水素での実験

③ ハイブリット化

核物質 (U, Th) にD₂を吸蔵させて実験

5. 理論研究

低温核融合理論 (反応メカニズム, D(d, n)He, (d, p)T反応のBranching Ratioのメカニズム等) の研究を行う必要がある。

6. 体制, 予算

今後引き続き実施していくために, 大洗のワーキンググループ形式に替わる体制が必要である。

参 考 文 献

- 1) M. Fleishmann and S. Pons, "Electrochemically induced nuclear fusion of deuterium," J. Electroanal. Chem. 261, 301-308 (1989).
- 2) S. Jones, E. Palmer, J. Czirr, D. Decker, G. Jensen, J. Thome, S. Taylor, and J. Rafelski, "Observation of cold nuclear fusion in condensed matter," Nature 338, 737-740 (April 27, 1989).
- 3) A. De Ninno et al., "Evidence of Emission of Neutrons from a Ti-D System," Europhysics Letters.
- 4) F. Scaramuzzi, et al., "Cold Nuclear Fusion Experiments at the Italian Commission for Nuclear and Alternative Energies," Report from Frascati Research Center (April 18, 1989).
- 5) H.O. Menlove et al., "Measurement of Neutron Emission from Ti and Pd in Pressurized D₂ Gas and D₂O Electrolysis Cells," LA-UR-89-1974.
- 6) K. Wolf et al., Santa Fe Cold Fusion Workshop, May 23-25 (1989).
- 7) P. Iyengar et al., "Cold Fusion Results in Barc Experiments," Fifth International Conf. on Emerging Nuclear Energy Systems (ICENES-V), July 3-6, 1989.
- 8) J. Rafelski, et al., "Theoretical Limits of Cold Fusion in Condensed Matter," AZPH-TH/89-19.
- 9) M. Rabinowitz & D.H. Warledge, "A Theoretical Framework for Cold Fusion Mechanisms," EPRI J. July/Aug., 42-44 (1989).
- 10) H. Takahashi, "Fusion Rate of Accelerated Deuteron on PdD_x and Screening of Potential by Deuteron," BNL NET3-1989.
- 11) H. Takahashi, "The Cold Fusion Rate of d-d in PdD_x Deuteride and Branching Ratio of He-4 to (p, n) Production" APS Meeting at Baltimore May 1989.

謝 辞

本追試実験を実施するにあたり、企画部 佐久間実氏、藤田雄二氏、安孫子進朗氏に御協力、御助言をいただいたことに深く感謝します。また、重水の借用、分析に御協力いただいた臨界工学試験室、福村室長、清野室長代理に深く感謝します。NE-213検出器については、大洗工学センターに使用経験者がいなかった為、東京工業大学工学部の関本助教授の指導を得た。又、NE-213を含む放射線計測全般について、東京大学原子核研究所の上蓑博士から多くの知見を得た。更に、NE-213の電子回路の調整については、日本放射線エンジニアリング(株)の道川博士の協力を得た。謝意を表す。

付録1 予備実験

1. その他の電解実験

低温核融合追試実験では、大型パラジウム電極を電解実験を始める前に、表1に示す26ケースの電解実験を行っている。その結果、以下のことを確認した。

(1) 中性子の検出

① 電解中明らかな中性子発生は検出されなかった。核反応が起こっていないか、起こっていたとしてもごく微量であると推定された。

(2) 四重極質量分析計によるパラジウム電極中のトリチウム分析

① 電解液の種類にかかわらず、重水を電解したパラジウム電極からトリチウムが検出された。

② 重水中に浸漬しただけのパラジウムからはトリチウムは検出されなかった。

③ 重水と同程度のトリチウムを含む軽水を電解したパラジウム電極からもトリチウムが検出された。しかし、その量は重水電解の場合に比べ少ないものと判断された。

(3) 液体シンチレーションカウンターによる電極液中のトリチウム分析

① 電解前後の電解液中のトリチウム濃度の変化は微量であり、有意なトリチウム濃度の変化は認められなかった。

(4) 液体シンチレーションカウンターによるパラジウム電極中のトリチウム分析

① 電解後のパラジウム電極を加熱し、パラジウム中の水素・重水素・トリチウムを追い出し、酸化銅と反応させ、水を回収、その回収水のトリチウム量を測定した。

② トリチウムが検出されたり、検出されなかったりした。トリチウムの回収法に問題が多いものと推定された。

(5) 電解液の温度測定

① 電解中、熱電対により電解液の温度変化を監視した。電解による温度上昇は認められたが、異常な温度上昇は認められなかった。

(6) パラジウム電極の発熱

① 電解後のパラジウム電極を大気中に放置すると、発熱する(350℃程度)ことがあった。

② 表面のきれいな電極がよく発熱した。

③ 発熱の原因は、パラジウムから出てくる水素・重水素・トリチウムが大気中の酸素と結合するためであり、反応により水が生成された。

2. パラジウム電極中のトリチウムの定量化予備試験

電解後のパラジウム電極は大気中の酸素と反応し、水を生成することが明らかとなったため、この現象を利用してパラジウム電極から重水または軽水を回収し、その中に含まれるトリチウムを定量することを試みた。

図4.1.1に示す電解装置(A)で電解後、パラジウム電極をバイアル(液体シンチレーションカウンターで使用する分析用のサンプル瓶)に入れ、1~2日放置するとバイアル内に水が回収された。その回収水にシンチレーターを加え、回収水に含まれるトリチウム量を液体シンチレーションカウンターによって定量した。結果一覧を表2に示す。トリチウムの分析値は0.5~2.3pCiとほとんどバックグラウンドレベルであり、トリチウムが検出されたかどうか、はっきりしなかった。しかし、重水を電解した場合のトリチウム分析値と重水と同程度のトリチウム(約50pCi/ml)を含む軽水を電解した場合のトリチウム分析値を比較すると、わずかではあるが重水電解の方が値が大きかった。そこで、回収水を増やせばトリチウムが定量可能になると考え、大型のパラジウム電極を使用した電解を行うことにした。

なお、回収水の量の酸化反応前後の試料重量及び試料+水重量を測定し、重量として求めた。1~3回目の試験では水の回収がうまくいかず、41~95mgの水しか回収できなかったが、4~6回目の試験では107~184mgと倍以上の反応水を回収できるようになった。4回目の試験では、酸化反応後の試料+水重量4.107gから酸化反応前の試料重量3.962gを引くと0.145gとなるが、これを18/16(水の分子量/酸素の原子量)倍すると0.163gとなり重量測定だけから求めた回収水の重量158mgとほぼ一致(5mgの差)する。上手に反応水を回収した場合、パラジウムから放出される水素、重水素、トリチウムをほぼ全量回収しているものと考えられる。

表 1(1) 低温核融合追試実験ケース一覧 (1/3)

ケース 番号	開始時刻 終了時刻	重水量	電極種類 (形状)	PH	塩 類	測定器 L : 液シン N : 中性子 M : マススペ クトル	備 考
1 (予備)	4/3 16:12 } 4/3 20:12	160ml	陽 Pt(板状) 陰 Pd(板状)	約 3 (PH 試験)	FeSO ₄ 0.2g NiSO ₄ 0.2g CaCO ₃ 0.2g LiCO ₃ 0.2g Na ₂ SO ₄ 0.2g K ₃ Fe(CN) ₆ 0.01g	L : 電解液中 N : レムカウ ンター M :	ビーカー (オープン)
2 (D ₂ O)	4/4 17:08 }(45hr) 4/6 14:00	400ml	陽 Au(板状) 陰 Pd(板状)	2.52 (HNO ₃)	な し	L : 電解液中 N : レム M : 17, 40hr	大型ビーカー (3口)
3 (BY大)	4/4 22:30 } 4/5 14:18	60ml	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(短冊状)	2.2 } 2.0 (リスト マス紙)	FeSO ₄ , Na ₂ SO ₄ NiCl ₂ , NaH ₂ (PO ₄) ₂ PdCl ₂ , CaCO ₃ Li ₂ SO ₄ 以上を0.2g, AuCNを0.01g, 以上 を160mlに溶解	L : 電解液中 N : (³ He) M : 4, 17.5hr	小型ビーカー (4口) ケース3の前 に1時間電解 を実施 (Ptと Pdの接触のた め溶液作り直 し)
4 (Ti)	4/5 19:41 } 4/7 9:20	ケース3 のもの使 用	陽 Pt(コイル状) 陰 Ti(棒状)	ケース3 と同じ	ケース3と同じ	L : 電解液中 N : (³ He) M : 未実施	陰極チタン
5 (逆電)	4/6 20:40	ケース2 のもの使 用	←	←	←	L : 電解液中	逆電解
6 (H ₂ O)	4/8 14:20 }(41.5hr) 4/10 7:50	90ml	陽 Pt(コイル状) (100cm×2本) 陰 Pd(99.9%) (1cm×4cm)	約1.5	LiOH 0.24g (180ml中)	N : (³ He) M : 4, 41.5hr L : Pd加熱	H ₂ O+ 65pCi ³ T/cc 300mA, 8V
7	実施せず						H ₂ O+D ₂ O (微量)
8 (Utah)	4/8 13:20 }(42.5hr) 4/10 7:50	90ml	陽 Pt 陰 Pd (ケース6と同じ)	約2.0	LiOH 0.24g (215ml中)	N : (³ He) M : 4, 42.5hr L : Pd加熱	D ₂ O 300mA, 12V
9 (長期)	①4/10 14:40 ~4/10 21:10 ②4/12 11:20 ~4/19 17:10	90ml	陽 Pt 陰 Pd (ケース6と同じ)	約2.0	LiOH 0.24g (215ml中)	N : (³ He) M : 147hr L : Pd加熱	D ₂ O ①2A, 25V ②300mA, 8V
10	4/19 21:07 } 4/21 9:16	75ml	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(1×2cm 板 状, 面積4cm ²)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	N : (³ He) M : 36hr L : Pd加熱	D ₂ O 320mA, 7V

表 1 (2) 低温核融合追試実験ケース一覧 (2/3)

ケース番号	開始時刻 終了時刻	重水量	電極種類 (形状)	PH	塩類	測定器 L:液シン N:中性子 M:マスペクトル	備考
11 (D ₂ O)	4/22 12:45) 4/24 9:33 (44hr48min)	75ml (ケース 10の再 使用)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(1×2.5cm 板状, 0.3mmt)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	N: (³ He) M: L: Pd加熱	D ₂ O 300mA, 7V
12 (H ₂ O)	4/22 12:45) 4/24 11:45 (46hr)	75ml (H ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(1×3.7cm 板状, 0.3mmt)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	L: Pd加熱	H ₂ O 300mA, 6V
13 (D ₂ O)	4/24 16:40) 4/26 7:47	75ml (ケース 10再使 用)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	D ₂ O 300mA, 6V
14 (D ₂ O)	4/24 16:40) 4/26 7:47	75ml (D ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	D ₂ O 300mA, 6V
15 (H ₂ O)	4/24 19:49) 4/26 7:47	75ml (H ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	D ₂ O 300mA, 5.8V
16 (大容量)	4/25 12:07	1000ml	陽 Pt(板状, 2×3cm) 陰 Pd(2×3cm, 板状) 6組	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 13g LiOH 0.4g	N: (³ He)	2A, 8V 中性子検出用
17 (D ₂ O)	4/28 19:56) 5/1 17:30 (69.5hr)	75ml (D ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×1.7cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	340mA, 7.5V
	4/28 20:00) 5/1 9:00 (61hr)	75ml (D ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(1.3×2.2cm 板状, 0.3mmt)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	D ₂ O 380mA, 8V
18 (H ₂ O)	4/29 13:26) 5/1 16:00 (50hr24min)	75ml (H ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(板状, 0.3mmt)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	H ₂ O 300mA, 5.5V
19 (H ₂ O)	4/28 20:16) 5/1 9:00	75ml (H ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(1.4×2.8cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	H ₂ O 390mA, 6V

表 1 (3) 低温核融合追試実験ケース一覧 (3/3)

ケース 番号	開始時刻 終了時刻	重水量	電極種類 (形状)	PH	塩 類	測定器 L : 液シン N : 中性子 M : マススペ クトル	備 考
20 (D ₂ O)	5/1 19:06 5/4 10:47	75ml (D ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml)	発熱測定	D ₂ O 300mA, 6.5V
21 (D ₂ O)	4/24 19:49 5/4 10:47	75ml (D ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	LiOH	発熱測定	D ₂ O 300mA, 13V
22 (H ₂ O)	5/1 19:03 5/4 12:00	75ml (H ₂ O)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 2.6g (200ml中)	発熱測定	H ₂ O 300mA, 5.8V
23 (中性子)	5/2 20:27 5/6 9:40 (85hr13min)	75ml (D ₂ O) (3台) + 1台	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状) (3台)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 5.2g (400ml中)	N : NE213 (3インチ) 1 : 電極 2 個	D ₂ O 300mA, 6V 追加の1台は 5/4 12:45 か らスタート
24 (中性子)	5/10 20:25 5/12 12:25	75ml (D ₂ O) (4台)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状), (4 個) 陰 Pd1個はケース 23の再使用	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O 5.2g (400ml中)	N : NE213 (3インチ)	D ₂ O 300mA, 5V 再使用Pdは発 熱させてD ₂ を 追い出してい る。
25 (H ₂ O)	5/11 15:30 5/14 15:00	75ml (H ₂ O) (2台)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状), (2 個)	約2.0	LiOH	L : TのBG評 価	H ₂ O 300mA, 12.5V T : 65pCi
26 (中性子)	5/14 11:57 5/14 11:57	75ml (H ₂ O) (5台)	陽 Pt(コイル状) 陰 Pd(2×3cm, 板状), (4 個) 陽 Pt(板状) 陰 Pd(2×3cm, 板状), (1 個)	約2.0	Li ₂ SO ₄ ・H ₂ O	N : NE213 (3インチ)	300mA, 6V 再使用Pdは発 熱させてD ₂ を 追い出してい る。(4台)

表2 予備試験結果一覧(1)

回	電 極	電 解 条 件			酸化反応前 の試料重量	酸化反応後 の試料+水 重 量	酸化反応に より生成さ れた水重量	トリチウム量 分 析 結 果
		電 解 液	電解時間	停止直前の値				
1	+ : Pt線 コイル状	H ₂ O+LiOH (T含む)	60 h	I : 330mA V : 約18V	4.294 g	4.378 g	95 ¹⁾ mg	0.5±1.7pCi
	- : Pd板 約2×3 cm	H ₂ O+LiOH (T含む)	60 h	I : 330mA V : 約17V				
2	+ : Pt線 コイル状	D ₂ O+LiOH	60 h	I : 310mA V : 約8.2V	4.358 g	4.419 g	76 ²⁾ mg	1.6±1.9pCi
	- : Pd板 約2×3 cm	D ₂ O+LiOH	60 h	I : 300mA V : 約8.1V				
3	+ : Pt線 コイル状	D ₂ O+Li ₂ SO ₄	60 h	I : 310mA V : 約4.8V	6.508 g	4.541 g	41 ³⁾ mg	2.3±1.1pCi
	- : Pd板 約2.5×3.5cm	D ₂ O+Li ₂ SO ₄	60 h	I : 310mA V : 約6.1V				

・酸化反応により生成された水の重量は、以下の計算から推定した。

	計 算 式	分子量	原子量
1)	$(4.378-4.294) \times (18/16) \times 1000$ [mg]	H ₂ O : 18	0 : 16
2)	$(4.419-4.358) \times (20/16) \times 1000$ [mg]	D ₂ O : 20	0 : 16
3)	$(6.541-6.508) \times (20/16) \times 1000$ [mg]	D ₂ O : 20	0 : 16

表2 予備試験結果一覧(2)

回	電 極	電 解 条 件			酸化反応前 の試料重量	酸化反応後 の試料+水 重 量	酸化反応後 の試料重量	酸化反応に より生成さ れた水重量	トリチウム量 分 析 結 果
		電 解 液	電解時間	開始直後の値					
4	+ : Pt線 コイル状	H ₂ O+LiOH (T含む)	41 h	I : 300mA V : 約18V	3.962 g	4.107 g	3.949 g	158mg	0.4±1.6pCi
	- : Pd板 約2×3 cm	H ₂ O+LiOH (T含む)	41 h	I : 300mA V : 約17V					
5	+ : Pt線 コイル状	D ₂ O+LiOH	41 h	I : 300mA V : 約7.0V	3.760 g	3.836* ¹ g	3.729 g	107mg	1.8±1.5pCi
	- : Pd板 約2×3 cm	D ₂ O+LiOH	41 h	I : 300mA V : 約6.4V					
6	+ : Pt線 コイル状	D ₂ O+Li ₂ SO ₄	41 h	I : 300mA V : 約5.5V	3.827 g	3.985 g	3.801 g	184mg	1.6±1.3pCi
	- : Pd板 約2×3 cm	D ₂ O+Li ₂ SO ₄	41 h	I : 300mA V : 約5.2V					

• 酸化反応により生成された水重量は重量差から求めた。

*水回収後、大気中で反応による再発熱が見られたため、必ずしも正確な値ではない。

付録2 低温核融合追試実験における中性子計測計画

1. 目的と概要

国内外の低温核融合に関する実験例から、反応の有無を確認する上で、1時間当たり数個の非常に微弱な中性子を測定することが必要となっている。このような微弱中性子を計測するためには、中性子検出器のS/N比を向上させ検出感度を高めるとともに、安定度の高いものとする必要がある。さらに、他の中性子成分（バックグラウンド中性子）との弁別を確証するために、そのエネルギーを確認する必要がある。

現在、低温核融合実験として実施されているものには、重水の電気分解によるものと、重水素を用いた実験とがある。電気分解による実験は、長時間にわたる測定を必要とし、重水素を用いた実験では数百マイクロ秒程度の間に出される中性子を測定する必要がある。両者で、中性子検出器に必要とされる特性は異なるが、市販の放射線検出システムで基本的には併用可能であると考えられる。

そこで、以上のような条件を具備した中性子計測システムを製作するために、以下の3段階で行うこととしたい。

まず、第1段階として、追試実験により中性子が発生したかどうかを確認するための高感度、高安定中性子計測装置の開発・製作を行う。そして、第2段階としては、それとともに検出原理の異なる計測装置を併用し、中性子の発生を確証する。さらに、第3段階として、中性子エネルギースペクトルの測定評価を行う。

以下に、各項目に分けて従来の経験を下に中性子計測に必要な事項をまとめる。

2. 施設

計測システムの調整、感度特性試験等の実施に線源校正を行う実験室が必要となる。

大洗工学センターには、校正に必要な中性子線源、校正用機器が扱える場所が少なく、現在借用している実験室ではガンマ線源すら取り扱えない。また、線源や機器が揃っている安全管理棟・校正室では、定常業務を有しているため、必ずしも実験に十分な時間と場所が確保できるとは言いがたい。

中性子検出器は高い感度を得るためには、電氣的・機械的な安定性の確保、並びに精度良い校正を行う必要があるが、校正試験後の移動は好ましくない。従って、測定の信頼性を確保するためには、校正用線源の使用できる場所での実験が不可欠となろう。

3. 実験要員

上記の計測システムの調整・試験を行い、実験に供するためには、中性子計測に十分な経験を持つ実験者が少なくとも1名必要である。本実験に必要な他の作業と兼務することは可能であるが、電気分解のように長時間にわたる実験では、常駐が必要であり、他の業務との兼務は不可能のように思われる。

4. 中性子検出器

1. で述べたように

- ・ 第一段階（中性子が発生している可能性が有ることを確認）
- ・ 第二段階（中性子の発生を確証，論文として公表できる程度）
- ・ 第三段階（中性子のエネルギースペクトルの測定）

に分けて、中性子検出器システムを検討する。第二段階と第三段階で必要となる機器は同一であるが、第三段階ではエネルギースペクトルを求める為のプログラムの整備・開発が必要である。具体的には大学等の協力を必要とする。

最終的に必要となる中性子検出システムの機器構成は別添の通りである。高速中性子を測定（スペクトルも測定可能）するNE-213システムと、全エネルギー領域の中性子を測定するHe-3検出器システムの2システムを使用する。その他に、中性子バックグラウンドの低減を実現するための、遮蔽容器が必要である。

必要な費用の概算は、以下の通りである。（千円）

・ NE-213システム

検出器（NE-213，光電子増倍管，プリアンプ）	@ 1,000×2	2,000
高圧電源	@ 500×2	1,000
電子回路		
リニアアンプ，波形分析器，データ処理装置等，一式		5,000

He-3検出器システム

検出器有効長（20cm，10気圧）	@ 250×8	2,000
電子回路		
プリアンプ，リニアアンプ等，一式		5,000
波高分析器	@ 2,500×2	5,000

・ 遮蔽箱等

3,000

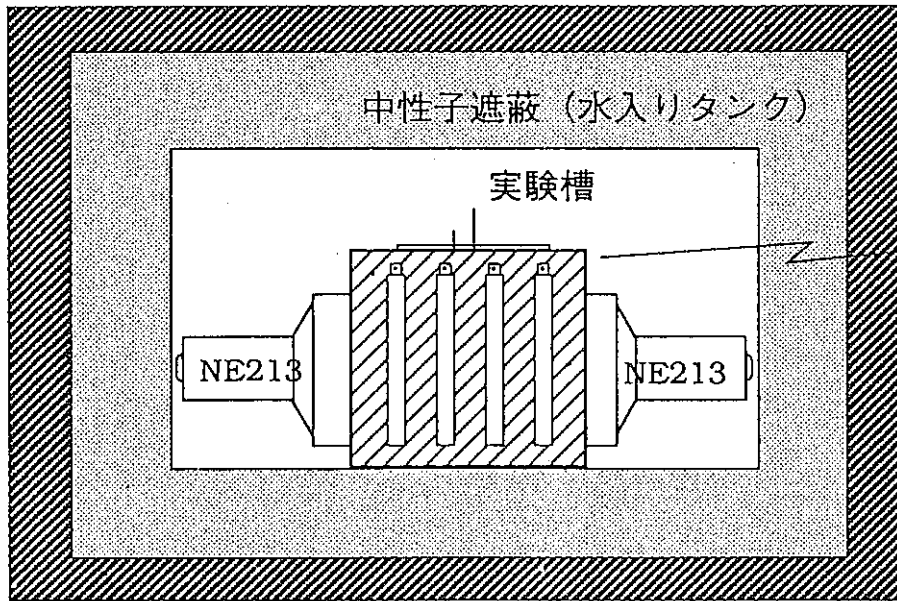
（合計） 23,000

第一段階の電気分解および重水素ガスによる実験で、中性子の発生の可能性のみを確認するには、上記NE-213システムのみ、合計8,000千円を必要とする。

第二段階，第三段階の，物理実験として意味のある実験を実施するためには，検出器システムだけで，23,000千円を必要とする。

[断面図]

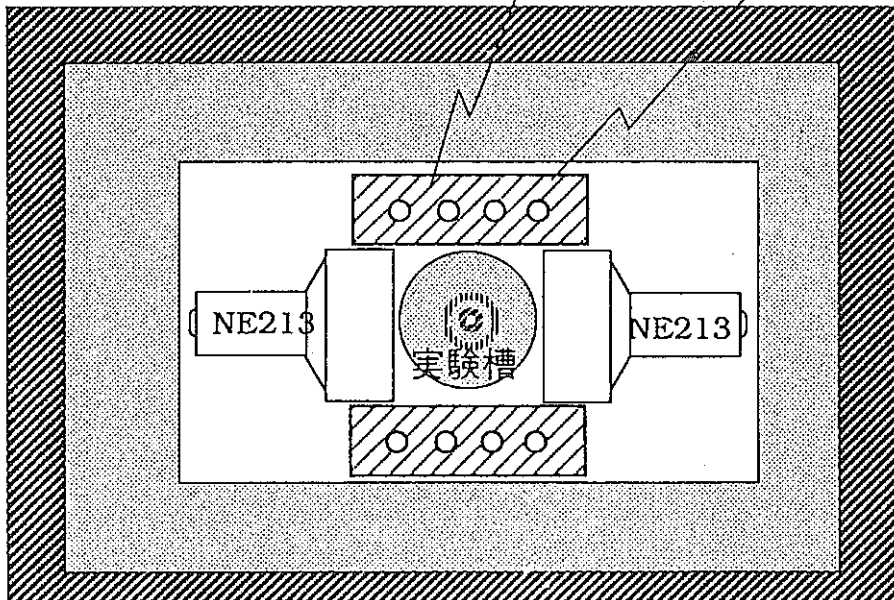
鉄(鉛)遮蔽



[平面図]

Polyethylene(PE)

HE3 Detector



中性子検出器配置図

実験用中性子計測システム仕様

1. NE-213システム

(1) 検出器

- ・5"φ×3"検出器 (PA内蔵) : 2個

(2) エレクトロニクス

- ・高圧電源 (ORTEC) : 2個
- ・Delay Line Amp. (ORTEC)
- ・Rise Time to Pulse Height Converter (OKEN)
- ・AD Converter (NAIG) : 2個
- ・2次元MCA(SEIKO EG&G)

(3) データ処理装置

- ・パソコン (NEC/EPSON)

2. He-3検出器

(1) 検出器

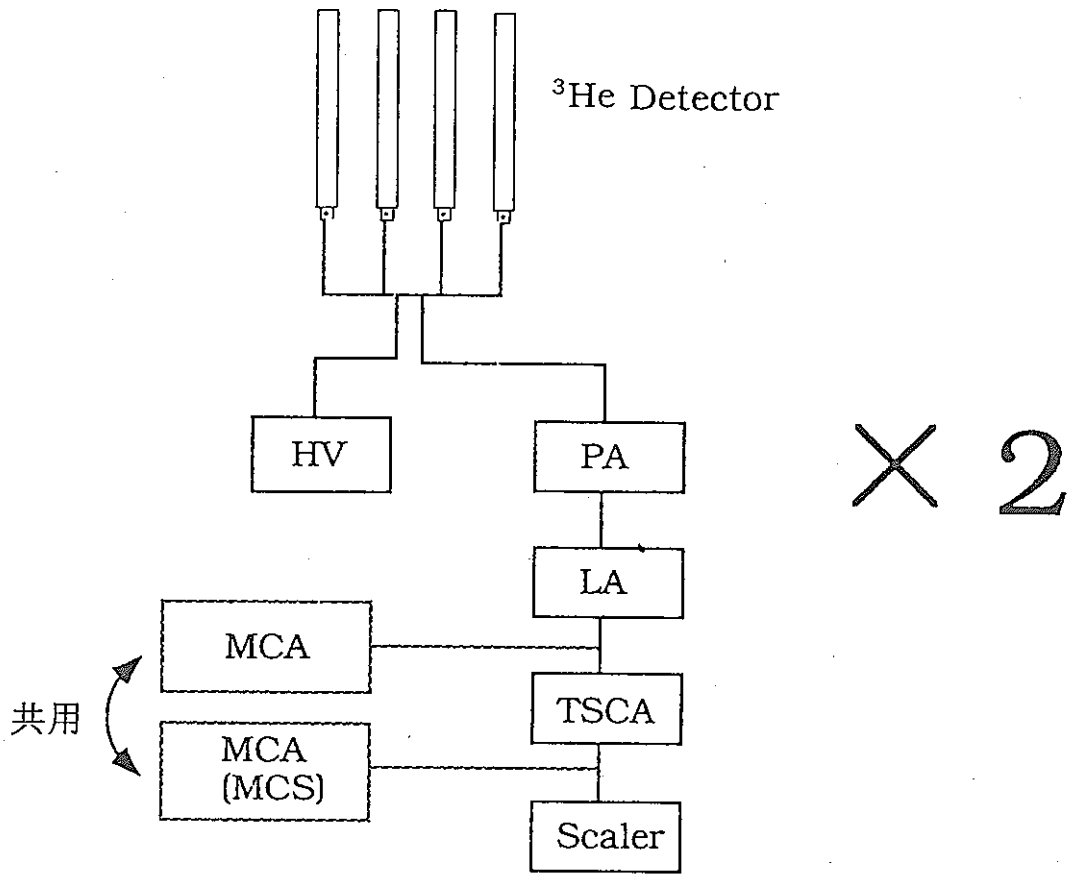
- ・円筒型He-3検出器 (有効長: ~20cm, ガス圧: 10気圧) : 8本

(2) エレクトロニクス

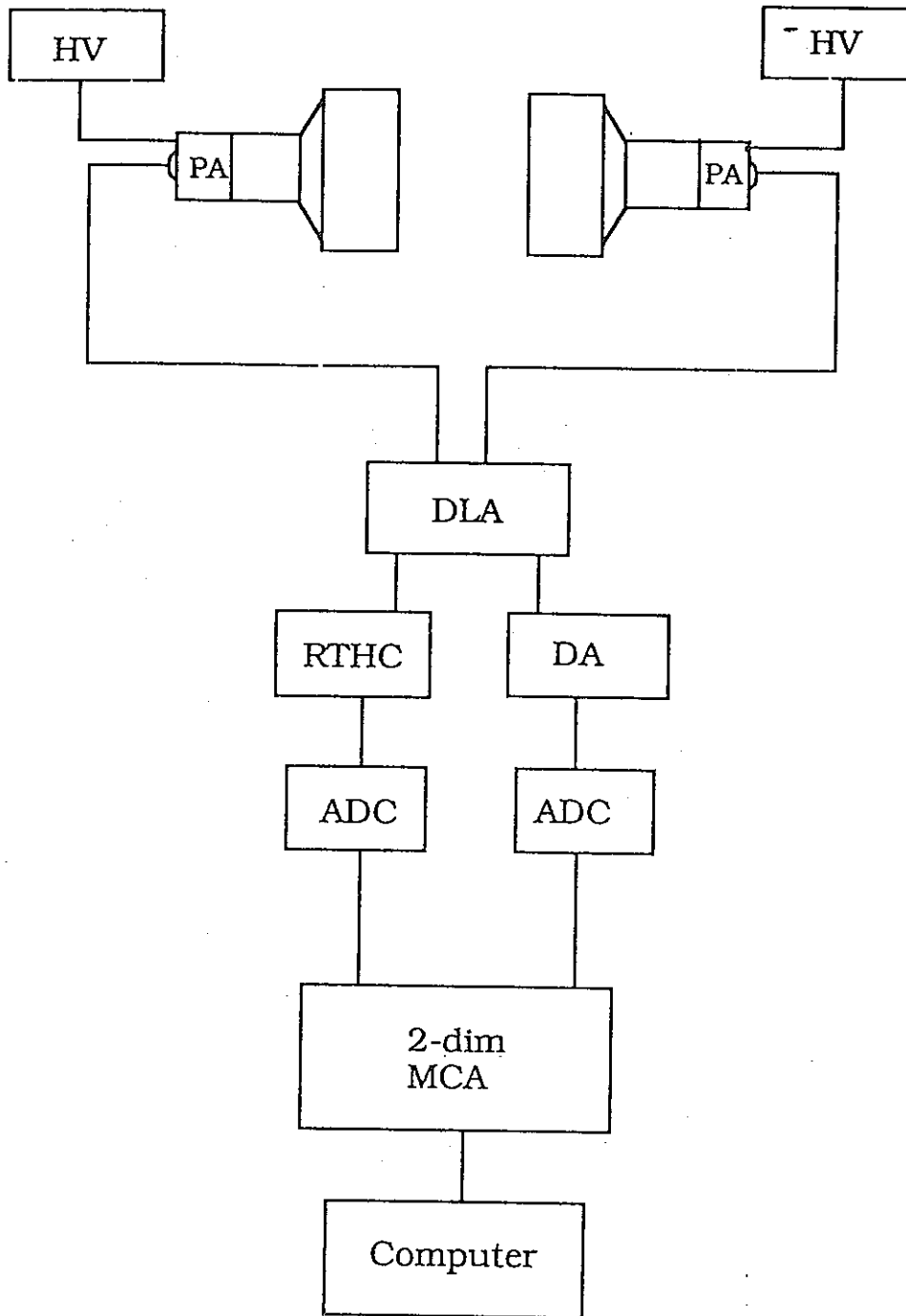
- ・高圧電源 (ORTEC) : 2個
- ・Pre Amp. (ORTEC 142PC) : 2個
- ・Linear Amp. (OKEN) : 2個
- ・Timing SCA (ORTEC) : 2個
- ・Timer/Scaler (OKEN) : 2個
- ・MCA (NAIG 560A) : 2個

3. その他

- ・実験用箱 (鉄架台+鉛ブロック)
- ・ポリタンク (水入れ用)



^3He SYSTEM



NE213 SYSTEM

付録3 Dイオン注入方式による実験計画

D-D 反応を強制的に行わせれば14MeV の中性子が発生することは、RTNS (Rotating Neutron Source) 装置が米国ロスアラモス研究所で中性子源として稼働していることから既に実証されている。ここでは、10～50V という比較的低電圧の電界場において、上記D-D 反応が生ずるか否かを実験する計画を立案した。

現在図1に示す装置を製作中であり、本年末には実験に着工できる予定である。ターゲット電極としては、 TiD_2 、 ZrD_2 等が考えられ、これに D^+ イオンを打込み、D-D反応を強制的に生じさせようとする装置である。ターゲット電極はヒーターにより約300°C程度に加熱可能としている。

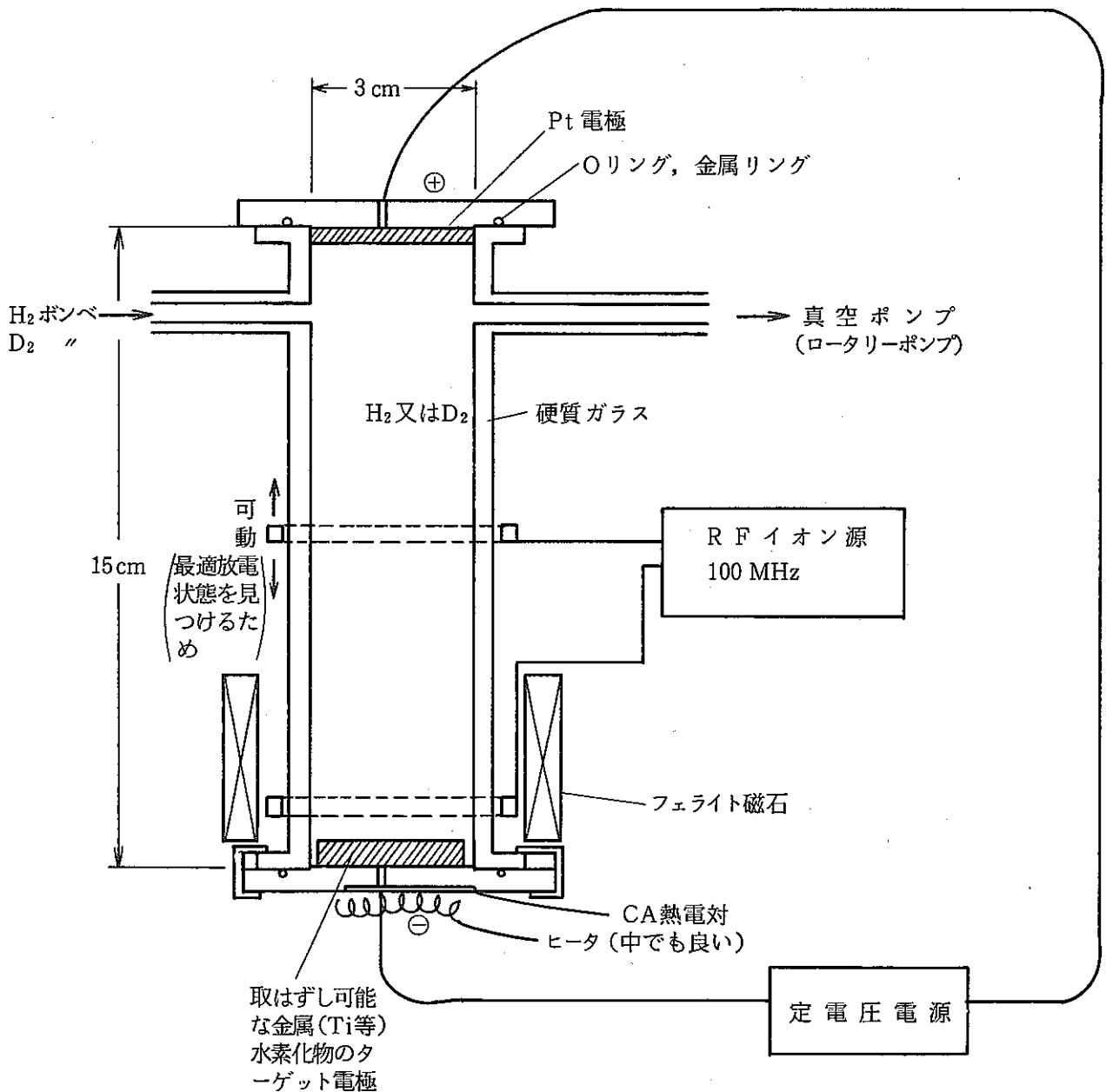


図1 水素イオン加速打込み装置概略

- 【主な仕様】 本体寸法 : 高さ 15~30 cm, 直径 3~10 cm
 P F イオン源 : 100 MHz, 1~2 kV, 200 mA程度
 磁 石 : 約 100 Gauss
 定電圧電源 : 10~50 V
 ヒータ : 最高加熱温度 約 300 °C
 真空度 : 最高 約 10^{-3} Torr
 水素ガス圧 : 1 気圧以下
 ターゲット電極材質 : 陽極 Pt 固定, 陰極 Ti 等交換可能型

付録4 低温核融合関連主要論文の和訳

低温核融合フィーバーの引き金となった2つの論文 (FleischmannとPons, 及びJones)の和訳を示す。論文の和訳は材料室 飯沢氏が行ったものである。

Electrochemically Induced Nuclear Fusion Deuterium
電気化学的に誘起された重水素の核融合

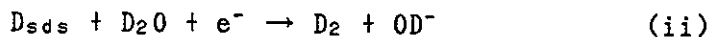
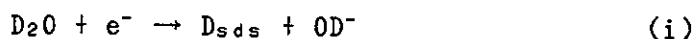
Martin Fleischmann

Department of Chemistry, The University Southampton, Hantz, 509 5NH, England
Stanley Pons

Department of Chemistry, University of Utah, Salt Lake City, UT 84112, USA

序 論

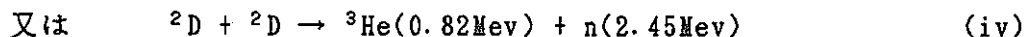
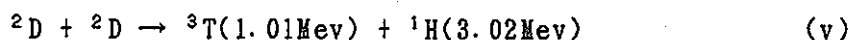
パラジウムに溶け込んだ電気分解水素の奇妙な振舞いが、100年間にわたって随分と研究されて来た。最近ではこれ等の挙動が、重水素とトリチウムに迄拡大されて来ている [1]。アルカリ性重水溶液からの重水素の解放に対して、次のような反応段階を考慮しなければならない。



水素が可逆的な段階（水素化物を形成せず固溶している）にあり、電位が-から+50mVの間では、格子はβ相になっている。軽水素の場合は陽子（H⁺）の形であり（電場での移動によって示されるように）、非常に動き易い（拡散係数 = 10⁻⁷ cm²/s 但し300° Kでのα相に対して）。

D₂発生反応全体のパスは、ステップ(i)と(ii)である。従って、溶け込んでいるD⁺の化学ポテンシャルは、普通には、これ等2つのステップの相対的速度によって決定される。パラジウム膜電極の界面の入口側に於ける水素射出により、界面の出口側に過剰電位 (overpotential) が生ずる事は（これは(i)から(iv)の全ステップのバランスにより決定されるのだが）、化学ポテンシャルが高い値に上昇出来る事を実証している。パラジウムの拡散チューブを用いた我々自身の実験は、0.8ev程度の値が容易に達成され得る事を示している（2ev程度の値が達成される得るかも知れない）。この値が天文学的に大きな値である事は容易に理解出来る。即ち、D₂の圧縮（ステップ(iv)）を通してこのレベルを達成しようとするならば、10¹⁴気圧以上の圧力が必要となるだろう [化学ポテンシャルの高い重水素を生成する電気化学的手法とは、一種の化学圧縮 (コンプレッサー) に相当している]。このように高い圧縮にも拘らずD₂は形成されない。即ち、原子核周りの電子密度のS-特性（S波動的な性質）は非常に小さく、むしろ電子は全系のバンド構造部を形成する。特に興味深く、また現在の研究を動機づけているのは、吸収された水素、重水素に対する、非常に高いH/D分離ファクターである（文献[2]）の図. 4を見よ）。もし格子中のH⁺とD⁺が古典的な振動子として振舞うとすれば（おそらく非局在的な物質種として）、非常に浅いポテンシャル壁中にあるはずであり、その場合にのみこの高いH/D分離ファクターを説明

出来るのである。このように、溶解した種が非常に強く圧縮され、移動性を有すると云う観点に立てば、おびただしい数の近接衝突が生ずるに違いなく、次のような難問を発生して困らせる事が出来る。即ち、次の反応



のようなD⁺の核融合が、これ等の条件のもとで成立し得るであろうか・・・？

[おそらく、重水素を全体的に「閉じこめる」役割を果たすパラジウムは、強い格子結合をしているので、D⁺が格子ポテンシャルの中を運動中も、格子と重水素の散乱は弾性散乱に近いものであり、発生時の活発なD⁺の運動力が熱として拡散され、失われる事が少ないのではないか、しかもパラジウム格子は電子をバンド構造部に取り上げ、Dの形成を許さない、通常まず最初に原子の近接が分子距離までに限定されるのは、原子核のクーロン障壁というよりは、軌道電子の存在による障壁である]

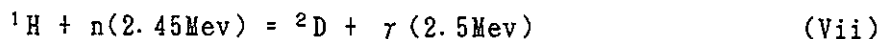
実 験

ここに報告した研究に於ては、Pdのシート、板、立方体中へ、0.1M LiOHの99.5%D₂O + 0.5%H₂O 溶液から、電池化学反応 (galvanostatically) により、D⁺が圧縮された。電極電位は、 α - β 相が化学平衡するように充填されたPd-D標準電極に対して測定された。我々はここで数種類の実験について報告する。

1) 低電流密度(～1.6mA/cm²)での熱バランスの測定が、大きなPtシートの電極で囲われた2mmx8cmx8cm Pd シート陰極を用いて行われた。測定は、大きな恒温水浴(300° K)中に保持された、ジュワーセル中で実施された。セルの内部と水浴の温度は、Beckman サーモメータを用いてモニターされた。ジュワーとその内容物に等価である重水素量と冷却損失のニュートン則の程度が、熱いD₂Oを加えて冷却曲線を追いかける事により、決定された。

2) 高電流密度での熱量測定は、白金網電極によって囲われた、直径1,2,4mm長さ10cmのPdを用いて実行された。冷却損失のニュートン則を決定するために、ジュワーが電気抵抗ヒータの上に設置された。温度は較正されたサーミスターを用いて測定された。直径2cmまでのロッドを用いた実験は、別途報告されるだろう。これ等の実験に於て、電解槽の攪拌は(1以下の全ての実験で同様)、必要に応じて、電気分解で生成するD₂ガスにより、ガスパーキングする事により実施された。ここで報告した最大の電流密度(512 mA/cm²)での測定は、長さ1.25cmのロッドを用いて実施された。表. 1には、最終的に長さ10cmのロッドに対するものとなったのだが、それ等の結果を与えた。

3) (n, γ) 反応、



によって放出された γ 線スペクトルが、NaIシンチレーション検出器とNuclear Data ND-6 高エネルギースペクトルアナライザーを用いて決定された。スペクトルは、平衡に向けて水素注入が行われている0.8x10cm Pd ロッド陰極を、直接に浸している水の上で測定

された。このスペクトルは、水浴から10m離れた水溜（ここには全く同じ遮蔽材が入っていた）周りのスペクトルを差し引く事により、バックグラウンドに対して補正された。

0.4cmx10cm のPdロッド電極を有するセルからの中性子は、Harwell Neutron Dose Equipment Rate Monitor Type 95/0949-5 を用いて測定された。この Bonner-ipbcrc type 測定器の2.5MeV中性子の計数効率は、 $\sim 2.4 \times 10^{-4}$ であると推定されたが、これは配置が良くなかったために、ファクター100だけ小さくなり損をしている（電極と検出器は向かい合っていたのだが）。バックグラウンドカウントは、実験を行った部屋から50m離れたところで測定し、決定された。これ等の位置は両方も、新しい建屋の地階にあり、その上にはコンクリート作りの5つの階がある。計数率が低いので、50時間の測定が行われた。電流密度 64mA/cm^2 で 0.4x10cm ロッド電極のRUNに対する測定は、バックグラウンド上回ること3倍の中性子カウントを与えた。

4) トリチウムの生成と蓄積の速度は、直径 1mmx10cmのPdロッド電極を有する同様のセル（パラフィンでシールされたチューブであるが）を用いて測定された。D/T分離ファクターに関する測定は、直径1mmx10cmのPt電極を有する全く同一のセルを用いて、別途に単独で行われた（この測定はブランクとして役にたったが、PdとPtに関するH/D分離ファクターは非常に似ていることが解る）。1mlの電解質サンプルが、2日間隔で採取され、カリウム水素フタル酸塩で中和された。またトリチウムの計数は、普通の液体シンチレーションカクテルとBeckman LS 5000 計数システムを用いて決定された。計数効率はトリチウム測定用標準サンプルを用いて、約50%と決定された。 β 崩壊のスペクトルのシンチレーションスペクトルは、この計測システムを用いて決定された。

これ等の実験に於て、サンプリングに引続き、標準的には1mlの量の電解質溶液の追加を行った。これ等の実験とここに述べた他の全ての実験に於て、電気分解の結果生ずるD₂Oの損失は、D₂Oだけを用いて補充された。補充したD₂Oの容量の記録は、全ての実験に対して実施されている。

ここで報告した全ての実験で使用した、全てのコネクションはKCl・F（充填）キャップに収容され、キャップはパラフィルムを使用してガラス容器に封入された。

発生したガスの質量分析の結果と全ての測定に関する完全な実験の詳細は、別途に報告されるだろう。

結 果

1) 及び 2)

熱量測定実験に於いては、反応(i), (ii), (iii)が、陽極反応



と、あるいは(i), (ii), (iv)の逆反応と、バランスしているかどうかによって、ジュール加

熱速度に関する下限と上限を知ることが出来る。前者の場合〔陽極反応とバランスする場合〕には、ジュール加熱は単純にセル電流にセル電圧1.54Vを掛けたものである。ここで1.54Vは、反応(i), (ii), (iv)が(viii)とバランスし、熱的に中立である時の電圧である。電極反応に於ける不可逆度合とオーム抵抗損失は、ジュール加熱に対して、全く同一の効果を有している。しかし、もし反応(i), (ii), (iv)が陽極で逆転され、また同様に、反応(iii)の逆転が陰極過程に寄与するとすれば、我々はジュール加熱の上限を得ることになるのだが、これは単にセル電流と電圧の積である。

長持続実験に於いて、定容積を維持するために必要とされるD₂Oのセルへの補充率は、反応(viii)にバランスする反応(i), (ii), (iv)のためのものであることを、我々は確認した。更に、Ptの大きな陽極を有するセルに於いて、溶液中でのオーム電圧損失を差し引くと、D₂Oの電気分解が主要な過程であることが示される。即ち、我々はジュール加熱が下限に近いと仮定しなければならないのである。

表. 1は、電解質のジオメトリー、電極の寸法、電流密度（あるいは過剰電圧）、運転方法等の効果が押さえられるように計画された、実験結果を与えている。それ等の特性と大なることは、次のような観察から良く理解出来る。

a) 過剰エンタルピー生成は、適用された電流密度（即ち化学ポテンシャルのシフトの大きくなる）に顕著に依存しており、電極の容積に比例する。即ち我々はPd電極のバルク中の現象を扱っているのである。

b) パラジウム電極のエンタルピー生成は、10W/cm³を超える事が出来、これは120時間以上の実験時間の間維持され、この間に典型的な場合に於いて、電極容積で4MJ/cm³以上の熱が解放された。核反応過程以外の何かに依ってこうなる事が出来るとは、想像も及ばない。

c) 熱核融合の研究では、その効果を表すのにブレイクイブツン (breakeven: 投入エネルギーと出力エネルギーがバランスし損得がない) に対するパーセンテージで表される。ここで、100%ブレイクイブツンと云うことは、熱出力が入力と等しい事を意味している（但しここで、この装置を動かすために必要な動力を無視している）。電気化学実験で、更に考慮しておくべき事は、ブレイクイブツンはジュール熱又はセルに供給された全エネルギーに基づくべきであると言う事である。更に後者の場合、供給エネルギーは陽極反応の特性に依存する。表. 2はそのような3つのメリットの図をあげているが、我々は既に100%までは合理的な計画を策定出来るのである。スケールアップにとって重要なファクターの幾つかは、表. 1と2から既に明かである。

d) これまでその効果はD₂O単独で用いて決定されてきた。従って適切なるD₂O/DTO/T₂Oの混合物に対して実施する場合は（融合研究で普通に行われているように）、10³から10⁴%の範囲の熱の過剰を生ずると期待されるだろう（スピン分極がなくても）。この場合10KW/cm³以上のエンタルピー放出を伴うであろう。我々はここで次の事を報告しておか

なければならない。D₂O単独に用いる場合ですら、最後の実験条件下では、陰極の相当な部分(a substantial portion)が溶け(融点1554°C)、その一部は蒸発した。またセルと内容物及びその実験を行ったフュームキャブボード(fume cupboard:ドラフト?)の一部が破壊されたのである。

3) 電気分解セル近傍の水浴上部領域で記録されたγ線スペクトルを、図. 1 Aに例示する。このスペクトルは、2.45Mevの中性子が、反応(vi)によって電極中に誘起され、生成した事を確認するものである。これ等のγ線は、反応(vii)によって発生する。スペクトルの強度は弱く、この事と一致するのだが、線量計から計算された中性子束は、電流密度64mA/cm²で、0.4%分極された10cmのロッド電極の場合で、4x10⁴/sのオーダーである事に、我々は注目する。

4) この低い中性子束と一致する傾向なのだが、電解質中でのトリチウムの蓄積も又反応(v)の割合が低い事を示す(この反応は、高エネルギー実験に於いて、(v)より幾分か早くなる事が見い出されている)。溶媒中のトリチウム分率の時間依存性は、次式のようになる。

$$\alpha_T = \gamma_T \exp \frac{(1 + \lambda S_{DT})Rt}{\lambda S_{DT}N} + [(1 + \lambda)\gamma_T + \beta/R] \frac{S_{DT}}{(1 + \lambda S_{DT})} \left[1 - \exp \frac{-(1 + \lambda S_{DT})Rt}{\lambda S_{DT}N} \right] \quad (1)$$

ここで、 γ_T は電解質/溶媒中のT分率、 λR (原子T/s, ここで 4×10^{11} 原子/s)は、サンプリング速度で、時間に対して連続であると仮定された、Nはジュワー中のDの総数(1.46×10^{21}), S_{DT} はD/Tの分離ファクター、 β は核反応(V)率(頻度/s)、Rは電気分解速度で、D原子/sで表される(ここで 1.24×10^{11} 原子/s)、最後に α_T の値は、白金電極を有するセルに対して(この電極の場合 $\beta=0$ と仮定する)、次式のようになる。

$$-\alpha_T = [(1 + \lambda)\gamma_T + \beta/R] \frac{S_{DT}}{(1 + \lambda S_{DT})} \quad (2)$$

Pt陰極を用いるブランク実験(これはPdと大変良く似た分離ファクターを持っている)は、DT0の蓄積が少ししかない事を示し、 $S_{D,T}$ は我々の実験条件下では1に近い。Pd陰極を用いるセル中では、電解質ml当りで、約100dpm/mlの程度までDT0が蓄積する。図. 1 Bはたまった物質種が実際にトリチウムである事を示している。そして方程式(2)を用いると、反応(v)は 1.2×10^4 原子/sの程度まで起こる事が示される。 放射線の違いを念頭におけば、この値は中性子束の測定と一致している。一方、エンタルピー生成に関するデータは、反応(v)と(vi)が $10^{11} \sim 10^{14}$ 原子/sの範囲の速度である事を要求する。 従って反応(v)と(vi)は全反応スキームの極一部分なのであって、他の核反応過程が含まれている事は明らかである。

考 察

我々は、ここで報告した結果が、解答を与えると言うよりはむしろもっと多くの疑問を惹起する事を覚悟しているし、このトピックに関して、これから遙かにもっと仕事が必要とされる事についても然りである。Pd陰極中で電気化学的に圧縮されたD⁺からの、中性子とトリチウムの発生の観測は、それ自体誠に驚くべき事である。明らかに、そのようなホストラティス(host lattice)中の電子と重水素の量子力学を再考する必要がある。

特に次の事を問わなければならない：重水素のクラスター(clusters)（おそらくオクタヒドラルラティス(octahedral lattice)中に存在しているのだろう）に対して、典型的なエネルギーであるlevで、反応(v)と(vi)の融合率が 10^{-19} /sに達する事が可能なのだろうか？ 等方的に置換されていて(isotopically substituted)良く構造が解っている水素化物に対する実験が、この疑問に対してうまく答えてくれるかもしれない。

しかしながら、我々の結果の最も驚くべき特徴は、反応(v)と(vi)が全反応スキームの極一部に過ぎず、エネルギー放出の大部分は、今のところ未知である一つあるいは複数の核的過程（これもまたおそらく重水素のクラスターによっているのだろう）によっていると云う事である。ここで再び、図. 2の閉じこめのパラメータが演ずる、その効果の極めて大きな大きさに注目して戴きたい。閉じこめのパラメータの値が、通常の（熱核）融合研究（高い粒子密度と $10^3 \sim 10^4$ 年の寿命）に比べて極端に高い事、一方これ等通常の実験に於て、化学ポテンシャルがそれに等価なパラメータ（温度T）に比べると大変に低い事に、我々は気づくのである。電気化学的実験に対するこの種のダイアグラムは、その結果が電極容積（電流密度の増加は垂直方向に於て、その点を置き換えれば良い）に著しく依存するから、3次元に拡張される必要がある事は明かである。既に実施した実験は、ブレイクイブン点に近いと言う事実に、我々は注目しておきたい。電極のディメンジョンを拡大するための（及びエンタルピー解放に責任のある過程の本性を明確なものとするために）更に進んだ研究を実施中である。最後に我々は、そのような実験に於いては大変な注意を払う必要がある事を、力説したい。Pd立方体電極を用いる実験は燃焼にそなえるためであると言え、納得して戴けるのではなからうか。表. 1と2の値をもっと極端な条件へ伸ばして見ると、これが実際にありそうだと云う事を示している。

REFERENCES

- 1 W.M. Mueller, J.P. Blackledge and G.G. Libowitz, *Metal Hydrides*, Academic Press, New York, 1968; G. Bampakadis (Ed.), *Metal Hydrides*, Plenum Press, New York, 1981.
- 2 B. Dandapani and M. Fleischmann, *J. Electroanal. Chem.*, 39 (1972) 323.
- 3 A.N. Frumkin and N.A. Aladzhilova, *Acta Physicochim. U.R.S.S.*, 19 (1944) 1.
- 4 M. Fleischmann and S. Pons, unpublished results.
- 5 M. Fleischmann, M. Hawkins and S. Pons, *J. Electroanal. Chem.*, to be submitted.

TABLE 1

Generation of excess enthalpy in Pd cathodes as a function of current density and electrode size

Electrode type	Dimensions /cm	Current density /mA cm ⁻²	Excess rate of heating/W	Excess specific rate of heating/W cm ⁻³
Rods	0.1×10	8	0.0075	0.095
		64	0.079	1.01
		512 ^a	0.654 ^a	8.33
	0.2×10	8	0.036	0.115
		64	0.493	1.57
		512 ^a	3.02 ^a	9.61
	0.4×10	8	0.153	0.122
		64	1.751	1.39
		512 ^a	26.8 ^a	21.4
Sheet	0.2×8×8	0.8	0	0
		1.2	0.027	0.0021
		1.6	0.079	0.0061
Cube	1 × 1 × 1	125	WARNING! IGNITION? See text	
		250		

^a Measured on electrodes of length 1.25 cm and rescaled to 10 cm.

TABLE 2

Generation of excess enthalpy in Pd rod cathodes expressed as a percentage of break-even values. All percentages are based on ²D+²D reactions, i.e. no projection to ²D+³T reactions

Electrode type	Dimensions /cm	Current density /mA cm ⁻²	Excess heating/% of break-even		
			a	b	c
Rods	0.1×10	8	23	12	60
		64	19	11	79
		512	5	5	81
	0.2×10	8	62	27	286
		64	46	29	247
		512	14	11	189
	0.4×10	8	111	53	1224
		64	66	45	438
		512	59	48	839

^a % of break-even based on Joule heat supplied to cell and anode reaction $4 \text{OD}^- \rightarrow 2 \text{D}_2\text{O} + \text{O}_2 + 4 \text{e}^-$.^b % of break-even based on total energy supplied to cell and anode reaction $4 \text{OD}^- \rightarrow 2 \text{D}_2\text{O} + \text{O}_2 + 4 \text{e}^-$.^c % of break-even based on total energy supplied to cell and for an electrode reaction $\text{D}_2 + 2 \text{OD}^- \rightarrow 2 \text{D}_2\text{O} + 4 \text{e}^-$ with a cell potential of 0.5 V.

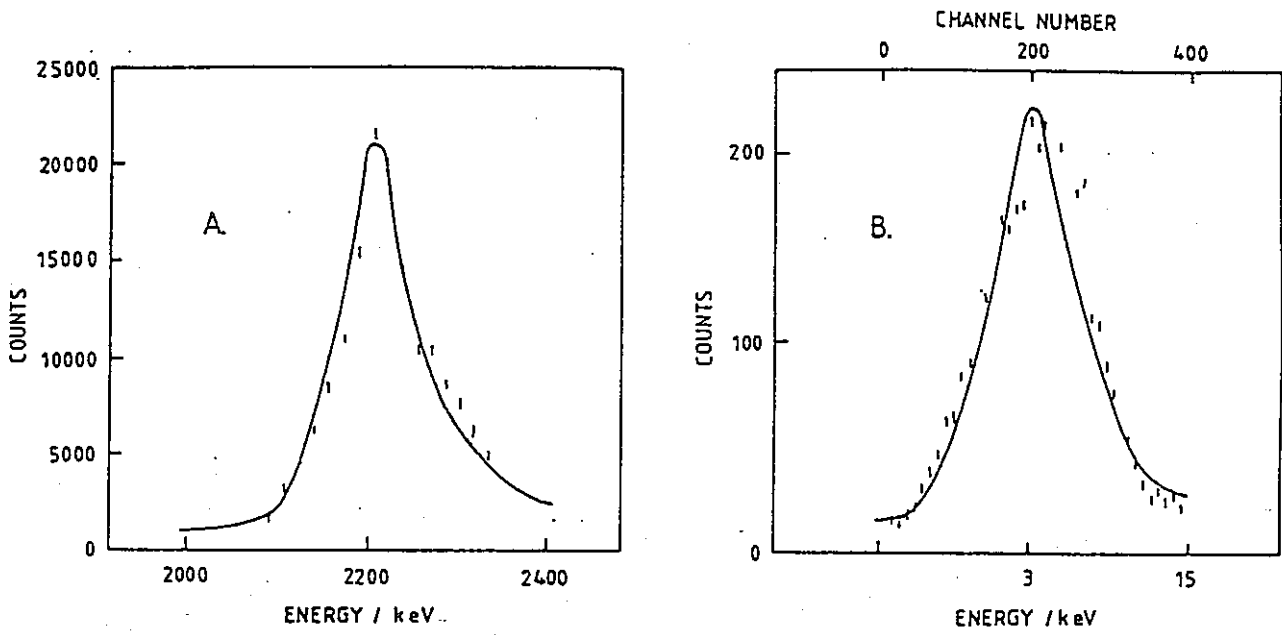


Fig. 1. (A) γ -ray spectrum recorded above the water bath containing the rod cathodes. Measurements carried out with a sodium iodide crystal scintillation detector and a Nuclear Data ND-6 High Energy Spectrum Analyzer. The spectrum shown is the difference between that over the water bath and a sink 5 m from the experiment containing identical shielding materials; spectrum accumulation times: 48 h. (B) β -ray disintegration scintillation spectrum measured with a Beckman LS5000TD counter-spectrometer.

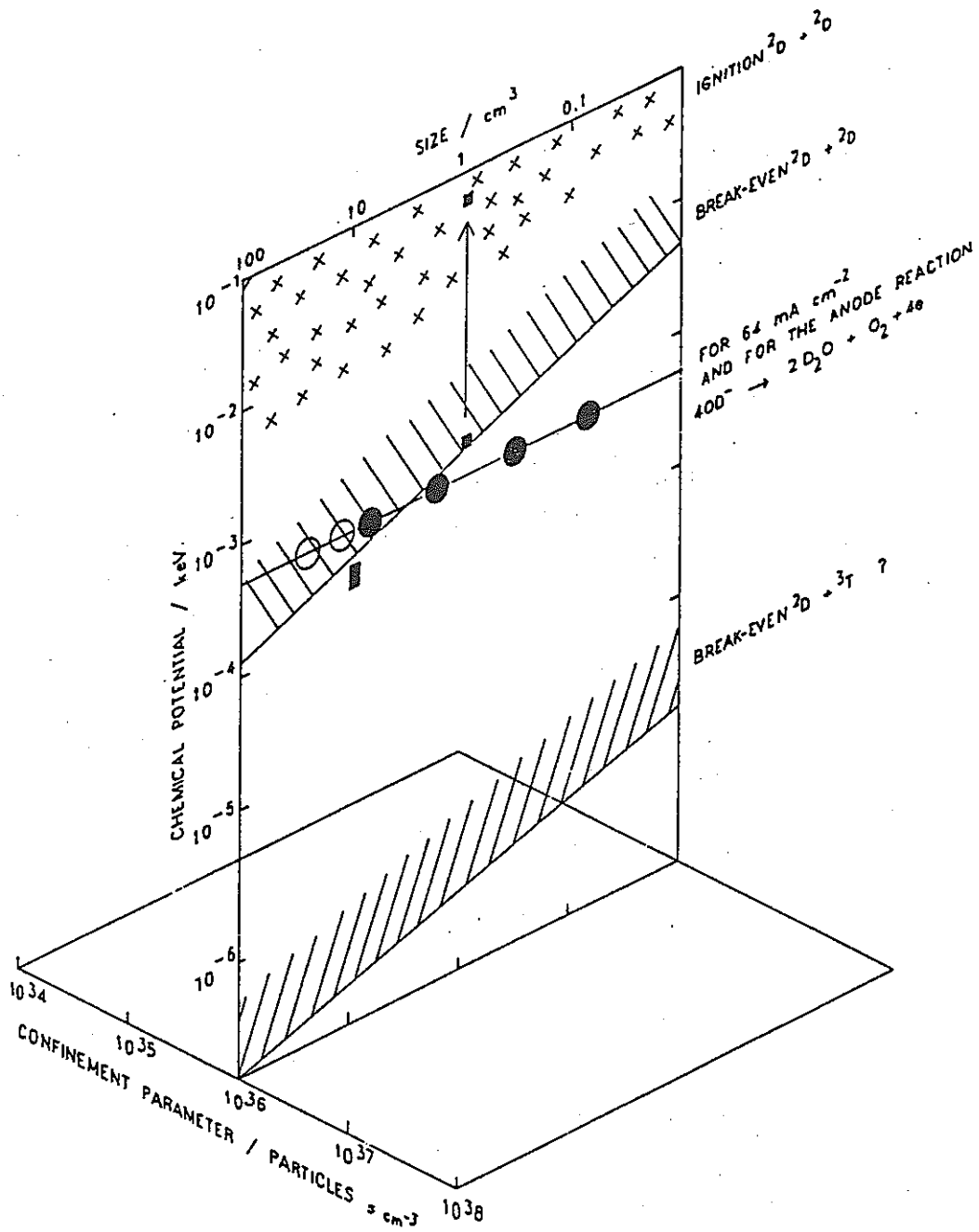


Fig. 2. Confinement parameter-chemical potential-size diagram for ${}^2\text{D}+{}^2\text{D}$ fusion reaction in Pd cathodes; projection to the ${}^2\text{D}+{}^3\text{T}$ reaction. Open circles: systems currently being investigated.

Observation of Cold Nuclear Fusion in Condensed Matter

凝縮物質中に於ける冷核融合の観測

S. E. Jones, E. P. Palmer, J. B. Cizirr, D. L. Decker, G. L. Jensen, J. M. Thorns, S. E. Taylor
Department of Physics and Chemistry, Brigham Young University, Provo, Utah 84602
and J. Rafelski

Department of Physics, University of Arizona, Tucson, Arizona 85721

March 23, 1989

水素同位体原子核の融合は、高温の星の内部に於てエネルギーを生産している基本的な方法である。比較的冷たい地球の条件に於いては、原子核は電子の衣をまとっており、分子のクーロン障壁によって許容される以上には互いに近接する事はない。水素分子に於ける核融合の速度は、障壁の量子力学的くぐり抜け (quantum-mechanical tunneling)、あるいはこれと同等な事なのだが、2つの原子核を同一の場所で見出す確率によって決定される。重水素分子では、重水素原子核 (D) 間の平衡距離は0.74 Åであり、D-D融合速度は著しく低く、約 10^{-70} / D₂分子 / 秒である [1]。

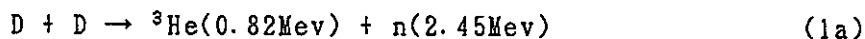
水素分子の電子をもっと重い荷電粒子で置き換えると、核融合速度は大きく増大する。ミューオン触媒核融合では、原子核相互の距離はファクターで約200だけ減少し (ミューオンの電子に対する質量比)、核融合速度はこれに対応してざっと80のオーダーの大きさ (10^{80}) だけ増加する [1]。ミューオン触媒融合は、低温の水素同位体混合物中で融合反応を急速に引き起こす有効な方法である事が実証されて来ている [2]。

電子の二三倍の質量の仮想的な準粒子の場合は、冷核融合速度は容易に測定可能なレベルである約 10^{-20} 融合 / D₂分子 / 秒 [1] まで増加する。我々の結論は、準粒子の場合と等価である原子核相互の水素波動関数の歪みが、水素同位体原子核が金属結晶格子やその他の形の凝縮物質中に入れ込まれる時に、ある条件下で実現され得る事を意味している。

我々は高温あるいは放射性ミューオンのどちらをも利用せずに、核融合を引き起こす方法を発見した。我々は冷核融合の存在に対する地質学上の間接的証拠はもちろん、直接的な実験結果を提供するであろう。

冷融合中性子の検出

我々は、室温で金属チタニウムあるいはパラジウム電極中に低電圧電気分解による重水素を注入中に、D-D融合を観察した。融合反応、



は、明らかに D⁺ として触媒されており、金属イオンが陰極で (そして中へ) 電解質から析出する。約2.5Mevのエネルギーを持つ中性子は、感度の良い中性子スペクトロメータ

ではつきりと検出される。実験のレイアウトが図. 1に素描されている。並行反応である

$$D + D \rightarrow P(3.02\text{Mev}) + T(1.01\text{Mev}) \quad (1b)$$

を示す結果を、我々はまだ得ていない。これは別の測定方法を必要とする。しかしながら反応(1b)は、通常の場合と同様に、反応(1a)とほとんど等しい割合で起こると推定され得る。

過去二三年にわたって Brigham Young University で開発されてきた中性子検出器が[3]、この冷核融合過程の同定にとって決定的であった。この検出器は直径12.5cmのガラスシリンダーに収納された液体有機シンチレータ(BC-505)から構成されており、その中には3枚のリチウム-6ドープガラスシンチレータ板が組み込まれている。中性子は衝突を通して液体シンチレータ中にエネルギーを落とし、その結果により生ずる発光がエネルギーの情報を生み出す。さてこれ等の低エネルギー中性子は、ガラス板中のリチウム-6によって一掃される。ガラス板中では $n + {}^6\text{Li} \rightarrow T + {}^4\text{He}$ 反応によりガラス中に蛍光を生ずる。2つの媒質からの波形は相違しており、それ等別個の信号は2本の光電子増倍管によって捕捉される(これ等の信号は加算される)。2つの媒質からの時間幅20 μsec 以内での同時計数は、中性子である事を判別する。

スペクトロメータのエネルギー較正は、2.9と3.2Mevの中性子を用いて行われた。この中性子は、D-D反応によりヴァンデグラフ加速器からのビームに対して、それぞれ90°と0°の角度に於いて、得られたものである。観測されたエネルギースペクトルはなだらかな構造を示し、これは2.45Mevの中性子が、マルチチャンネルアナライザー スペクトルの45~150チャンネルに現れる事を意味している。検出システムの安定性は、カルフォルニウム-252線源のブロードスペクトル核分裂中性子に対する計数率を測定する事により、データランの間でチェックされた。我々は、我々の中性子カウンタが、この波高範囲では熱中性子のような他の放射線源によるものでない事を示す、他の沢山のテストを実施した。

中性子カウンタのバックグラウンド計数率は、2.5Mevの中性子が期待されるエネルギー領域では、約 $10^{-3}/\text{s}$ である。ガンマ及び中性子線源からのエネルギースペクトルを比較する事により、殆ど全てのバックグラウンドは、ガンマ線原因の偶発同時計数から生じていると、我々は決定した。遮蔽の改良とガンマ線除去は実験期間を通して続けられ、その結果バックグラウンドレベルの著しい低下が達成された。

適切な触媒物質を探す間に、我々は次の様な電気分解セルの処方箋(最適化されたものと云う訳ではない)を開発した。電解質は~160gの重水(D_2O)プラス各々~0.2gの幾種類かの金属塩の混合物である： $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, PdCl_2 , CaCO_3 , $\text{LiSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{NaSO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$, $\text{CaH}_4(\text{PO}_4)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, $\text{TiOSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ 及び極少量の AuCN (我々の証拠では陰極に於ける重水素と金属イオンの共析の重要性を示す)。pHは HNO_3 により $\text{pH} \leq 3$ に調節される。チタニウムとパラジウムが、実験の最初に水素保持と水素化物形成に対する大きな能力の故に選択されたが、これ等は効果的な陰極である事が見い出された。

予備試験を受けている他の金属は、ランタン、ニッケル、鉄、銅、ジルコニウム、タantal及びリチウム-アルミニウム水素化物を包含している。個々の電極は、約3gのペレット形状の純化溶解チタニウム、あるいは0.5g, 0.25mm厚のパラジウム箔、あるいは5gの古くなったPdである。典型的な4~8個のセルが同時に使用された。パラジウム片は、洗浄し希酸あるいは研磨剤により表面を粗くしてから何回も再使用された。水素気泡は、電気分解の数分後にのみ、パラジウム箔上に形成することが観察された。これは箔中への重水素の急速な吸収を示唆している。一方酸素気泡は陽極に直ちに形成する。金箔が陽極に用いられた。DC電源は、10~500 mAの電流で各々のセルに対して3~25Vの電圧を供給した。融合速度と電圧、電流密度あるいは金属陰極の表面特性との間の関係はまだ確立されていない。

概略寸法 高さ 4cm X 直径 4cm の小さな容器に、~20 ml の電解質が入れられた。電気分解セルは中性子カウンタの上あるいは側面に図. 1に示すように置かれた。セルは単純で且つ現時点では最適なものからは隔たっており十分なものとは言えない。しかしながら高い完成度の中性子スペクトロメータと我々のセルとの現在の組合せは、同位体水素を電気分解により金属中への注入している間の冷核融合の現象を、確認するには十分なものである。

図. 2は、上に述べた条件下で得られたエネルギースペクトルを、バックグラウンドスペクトルと並べて示している。バックグラウンドからの全ての偏差が統計的変動であると保守的に仮定して、全エネルギー範囲にわたりフォアグラウンドカウントに合わせるために、バックグラウンドカウントをファクター0.46だけ率に応じて動かす(図. 2)。チャンネル 45~150 のスペクトルの形は、まだほぼ4標準偏差分だけ上回っている。これは我々の仮定が保守的である事、又この構造は本当の物理的効果を表す事を意味する。この特徴の外側の領域でフォアグラウンドレベルに合わせるために、バックグラウンドをファクター0.44だけ再度動かすことによつて、別のプロットが得られる(図. 3)。それは、5標準偏差にわたって統計的に意味のある、チャンネル100に中心のあるしっかりとした信号を示している。このピークにガウスフィットするとチャンネル101に中心があり、1シグマが28チャンネルである。これは2.5Mev融合中性子が、我々の較正に従いスペクトル中に現れるはずの位置である。意味のある信号が、D-D融合中性子に対する正しいエネルギー(~2.5Mev)を持ってバックグラウンドを上回って現れたと言う事実は、室温核融合が我々の電気分解触媒セル中で実際に起こっていると言うことの強力な証拠を提供するものである。

融合速度の決定

先に検討した結合データの中に入って来る14の個々のラン(RUN)を、綿密に吟味してみることは教育的である。図. 4は、各ランに対して得られたバックグラウンド計数率による、各のランに対する2.5Mevエネルギー領域での比を示している。バックグラウンド計数率は実験期間中に改善されたので、計数率の絶対値でよりはむしろフォアグラウ

ンドのバックグラウンドの比によりデータをプロットする。

ラン6は特に注目すべきで、これはバックグラウンドを上回って約5標準偏差の統計的意味を有している。溶解チタニウムペレットは陰極として用いられ、全重量約3gである。中性子発生率は電気分解の約1時間後に増加した。約8時間後には、それは次のラン7で示すように劇的に低下した。この時チタン電極の表面は暗灰色に覆われていた。マイクロプローブ付きの電子顕微鏡を用いた分析は、その表面皮膜は殆どが鉄で、陰極で重水素と一緒に生じたものである。約8時間の運転の後に中性子信号が低下するという同様の現象が、ラン13, 14と云う続けて行ったランでも現れている。ラン13, 14は同じ8個のセルを用いているが、陰極は二三時間の電気分解後に皮膜に覆われ始めた。これ等の観察は冷融合過程に対する表面条件の重要性を示すものである。

実際、電気化学的セル運転中に、表面条件が数多くのイオン種のために広範囲に変化する事が予想される。これ等の変化は図. 4で明かな信号レベルの変動を説明するであろう。特に~8時間後に観察された信号の「停止」はラン1や3の低い信号対バックグラウンドの比を説明するだろう。これ等のランでは、二三時間の信号は長時間(~20時間)の運転後にはバックグラウンドの中に埋没していたかもしれないのである。

ラン10が実質的にバックグラウンドを上回って開始した時、我々はランを止め、電気化学的セルの半分を試験的に取り払ってみた。中性子発生率は予想したように低下した(ラン11)。データの統計的有意さを決定する際に、ラン1, 3, 7, 11及び13を含めた。これ等のデータについては、上に説明したように低いフォアグラウンドバックグラウンド比に対する系統的原因が認められるにもかかわらず、そうしたのである。ラン8は、図. 4に示すように、不注意から磁気記録デバイスから失われてしまい、図. 2, 3に含む事は出来なかった。しかしこれは我々の結論を変えることはない。

様々のガンマ及び中性子線源を用いて、まがいものの中性子信号を作るために、いろんな試みをやってみた。補助装置を作動させたり、止めたりもしてみた(但し、バンデグラフは停止したままで)。遮蔽を動かし、電子回路を遮蔽箱詰めにし、更に取り替えしてみても、信号は持続したのである。電気化学セルを動かしながら、上述と同様に、但しH₂OをD₂Oに変えて取ったバックグラウンドランは、特徴のあるものではなかった。電流を流さず標準セルを用いた場合、バックグラウンドを上回る正味の計数は全くなかった。

電気化学的融合中の冷融合率は、ラン6を特定して、これに対して次のように推定された。

$$\text{融合速度/重水素対} = (R/\epsilon) / (M \times D / 2M) \quad (2)$$

ここで、観測された融合速度は $R = (4.1 + 0.8) \times 10^{-3}$ 融合/秒；中性子検出効率、幾何学的効率も含めて、モンテカルロ中性子・光輸送コードを用いて計算され、 $\epsilon = (1.0 + 0.3) \%$ である；3gのチタニウムに対する $M \approx 4 \times 10^{22}$ チタニウム原子数；

金属イオン当りの重水素対の比 $D/2M=1$ は、チタニウム結晶格子の殆ど全てのテトラヒドラルサイトは埋まっており、 γ -TiD₂重水素物を形成している、と云う仮定に基づくものである。こうして推定された冷核融合率は方程式(2)により、

$$\lambda_f \sim 10^{-23} \text{ 融合/重水素/秒} \quad (3)$$

となる。殆どの融合が表面近傍で起こっており、あるいはチタニウム格子が重水素飽和から隔たつていゝとするならば、あるいは融合に取つて好ましい条件が断続的に起つていゝとするならば、推測される融合率ははるかに大きいに違ひなく、多分 10^{-20} 融合/D-D/秒であらう。

そのような核融合速度は、分子中の普通の原子間距離(0.74Å)の半分にまで、重水素が「圧縮される」事により達成され得るだろうと言う事に、我々は注目する。そのような割合が凝縮物質中で今や観察されたと言う事は、解釈としては「ピエゾ核」融合を示唆している[1](piezo=圧)。一つの可能な原因は、重水素化金属格子中の準電子形(フォーン)は、自由電子の二三倍の実効質量を持っていると云う事である。水素同位体は金属格子中の欠陥に蓄積する事が知られており[5]、局部的に高濃度の水素イオンがピエゾ核融合に導いたのかもしれない。平衡状態にあつて、重水素化した、金属あるいは化合物(例えばメチルアミン-D₂重水素塩化物あるいはアンモニウムD₄塩化物)中で、核融合の何等かの証拠を我々は見た訳ではないから、我々は非平衡条件が本質的であると結論する。電気分解は平衡から遠く離れた条件を造る一つの方法である。

例えば圧力、熱、電磁場と言つた外部パラメータ変える事によつて、融合の実効速度に影響を与える事が出来る事に、注意しておくべきと思われる。しかしそのような効果は別の形の冷核融合(ミューオン核融合)に於て確認される[6]。そのような変化には地質学的環境下でも遭遇する。ここでは熱、圧力、接触ポテンシャルが極めて顕著な非平衡条件を生ずるであらう。

地質学的考察

実験室に於ける冷D-D融合の証拠の観察は、深遠なる地球物理学的含意を持っている。地球内部の熱効果や³Heやトリチウムの分布は、部分的には融合反応(1)と



によつて説明出来る。重水素は地球にその創生時に取り込まれた。海中の現在の存在比は約 1.5×10^{-1} 重水素/軽水素(7.07%)である。水はプレートとマントルが会合する所での地球上部マントル中へと運び込まれる。海水は広い領域で Moho と同じくらい深く輸送されるのである。水の減少についての推定は、大洋の質量と等しい水の質量が、約10億年の間にマントルを通過して循環すると云う事を示唆している[7]。こうして 1.4×10^{43} 原子の重水素が 3×10^{18} 秒の間にマントルを通過して循環する事を示唆している。各々のP-D融合は 5.4Mev (8.6×10^{-13} J) のエネルギーを放出するから、もし水の潜り込みに見合つて供給される速度で全ての重水素が融合するとすれば、その結果として、地球全体で平均すると 750mW/m^2 の熱フラックスとなるだろう。この値は実際の

フラックスの推定である 60 mW/m^2 より10倍は大きい[8]。従って、地質学的 P-D 融合は、観測された熱フラックス、地球コアの高温に対して多分寄与出来、またプレートテクトニクスのエネルギー源を提供出来るであろう。

外国のデータを用いて地質学的な核融合速度定数 λ_f を計算できる。P-D 融合に対して第1近似の方程式を $dN = \lambda_f N dt$ 、即ち $\lambda_f = (dN/N) / dt$ と仮定する。分率 (dN/N) は生起している融合数の利用可能な原子数に対する比である。それは重水素の供給率で除した融合速度でもある。従って、 dN/N は地球からの実際の熱フラックスを可能な熱フラックスで割ったものに等しい。そこで、

$$\lambda_f = (60/750) / 3 \times 10^{18} \text{ 秒} = 3 \times 10^{-23} \text{ 秒} \quad (5)$$

次に潜り込み地帯での局地的な火山性の熱が、融合によって与えられると云う可能性について考察しよう。マグマの中へ岩石を持ち込むためには、 10^6 J/kg 程度のエネルギーが必要とされ、これは局地的なエネルギー源から供給されなければならない。潜り込みつつある岩石は約3%の水[7]、即ち 3×10^{20} 重水素/kgを含んでいる。融解に利用できる時間は、プレートが 2.5 cm/年 のスピードで 700 Km の傾斜距離を下降するのに必要とされる時間、約 10^{13} 秒に等しい。核融合速度の推測値は、

$$\begin{aligned} \lambda_f &= (10^6 \text{ J/Kg}) / (3 \times 10^{20} \text{ D/Kg} \times 8.6 \times 10^{-13} \text{ J/融合} \times 10^{13} \text{ 秒}) \\ &= 4 \times 10^{-13} \text{ 融合/D/秒} \end{aligned} \quad (6)$$

である。これは利用可能な核燃料の約0.3%だけ必要とするだけである。従って、利用可能な熱に関する限界は、燃料の希少性と云うよりはむしろ融合速度定数である。

地球の熱の幾分かは、数種の熱源から引き出されているに違いないのだが、「冷」地質学的核融合は、地球の内部に於けるおびただしい熱と ^3He の定常的な生成を説明できるだろう。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比の高い値が、火山からの岩石、液体、ガス中及び他の活発なテクトニック (tectonic) 地帯で見出すことが出来る[9]。もちろん、初源的な ^3He が地球の創生時から存在するであろう[9]。しかし幾分かは地球での核融合によって生成されたのかも知れないのである。地質学的熱データから導出されたものと同様な速度定数を持った、実験室での冷核融合の発見は、我々の仮説を支持するものである。

この新しい概念に基づいて、我々は幾分かトリチウムが地球のD-D融合によって生成されるものと予測する(方程式1を見よ)。トリチウムは12年の半減期で $T \rightarrow ^3\text{He} + \beta$ に従って崩壊するから、火山放出中のトリチウムの検出は、トリチウムの冷核融合生成をほのめかすものである。これは次のような観測によって支持される。トリチウムモニタリングステーションが、ハワイ島 マウナ ロア で、1971年8月から1977年末まで運転された。我々は、マウナ ロア で検出したトリチウムとこの期間内での近辺の火山活動の間に、強い相関関係がある事を見出した。図. 4は、1972年にマウナ ロア 観測所で測定されたHTガスについて、Ostlund がまとめたデータを示す[10]。フロリダのマイアミで取られた同様のデータが比較のために示されている。トリチウムレベルの強烈な上下動 (striking spike) が1972年2月~3月のマウナ ロア データに於て、明ら

かに認められる。これ等数週間にわたる注目すべきトリチウムの記録は、以前には理解されていなかったと（特に、ピークのタイミングも形も5カ月前のロシアの水爆実験とは一致しないので）、Ostlund は注意を喚起している[10]。しかしながらこの信号は南東40kmのマウナウル火山の主な噴火と一致している[11]。更に1972年3月には、マウナロア観測所に向けて又200km離れたホノルルに向けて、風が火山性ガスを北西に運んだ。「貿易風は（北西から吹く）めったに起こらない。それに代わって南から吹く風が、しばしばハワイ島の噴火からの火山害でその州を押し包んだ・・・ホノルルでの沢山の粒子状の物質の測定は、ハワイ島のマウナウル火山噴火からの害の北方への広がりを確証した」[12]。

このような極めて注目すべき一連の状況は、1972年の2月から3月のマウナウルの噴火の間に放出されたトリチウムの量の推定を、我々に可能にしてくれる。マウナロア観測所までの距離と平均8 m/hの風[12]に基づいて、我々は1日当り平均100Ciのトリチウムが30日間放出されたと推定する。付近の無人島で、数週間にわたって、これだけの量の人工トリチウムが事故で放出されたと言う事は、極めてありそうにない。我々はこの火山噴火が地質学的核反応によって生成されたトリチウムを解放したと結論する。

マウナロア観測所からの他のHTデータ、例えば1972年後半の高い値の記録は、トリチウム放出の水爆実験もロシアで8月下旬にあったのだが、火山活動とも一致している。1974年12月から1975年6月のハワイ近傍で観測された大気中HTの主なスパイクは、ハワイ島での他の大きな火山噴火と一致している。しかしその意味はまたもや水爆実験であいまいにされる。最後に1976年あるいは1977年にはHTの記録に有意なずれは全く認められない。これ等の年には、どんな火山活動も、1977年9月17日のキラアウでの緩やかな活動を除けば、全く認められない。

冷融合の他の証拠

凝縮物質中での冷核融合のもっと別の証拠は、ダイヤモンドや金属中の ^3He 及び ^4He の研究から来る。ダイヤモンドのレーザ細断によって、H. Craig は ^4He と ^3He 両方の絶対濃度を測定した（私信）。 ^4He はあたかもそれが環境から由来したかの様に、結晶全体にわたって滑らかに分布している事が見出された。一方、 ^3He はスポット中に濃縮されている事が見出され、これはその場所での生成をほのめかすものである。冷ピエゾP-DあるいはD-D核融合は、これ等のデータのもっともらしい説明を与えるのである。

^3He の濃度異常は金属箔中でも報告されている[14]。 ^3He のスポット状の濃縮は観察された ^3He の起源が冷ピエゾ核融合である事を示唆するものである。重水素を含む水中での金属の電気分解精製が冷核融合の条件を与えることが出来るものであったと言う事に注目しよう。幾つか可能な説明の一つとして、著者はミューオン触媒の類似を示唆している[14]。我々はそれ等が狙いに近かったと考える！

冷核融合は地球の外の他の天体に於て重要となるかも知れない。例えば、木星はそれが太陽から受け取る熱の約2倍の熱を放射している[1]。木星のコア（これはおそらく金属水素プラス珪素化鉄だろう）に於ける冷核融合が、過剰の熱を説明できるかどうかを考えてみることは興味深い。熱は約 10^{12} Wの速度で放射される。これは 10^{20} /秒の速度で起こるP-D融合によって生成され得るものである[1]。優勢である水素核の半径を 4.3×10^9 cm、密度を ~ 10 g/cm³、重水素/軽水素の比を大ざっぱに 10^{-1} と仮定して、必要な核融合速度は $\lambda_f \sim 10^{-19}$ 融合/重水素/秒であると推論する。これは地球の条件で見出された冷融合速度と極めて良く一致するものである。

結 論

新しい型の冷核融合が重水素の金属中への電気分解注入中に観察された。電気化学的以外の手法もうまくゆくかも知れないが、平衡から離れた条件の必要性が我々のデータからはつきりと示される。我々はイオン注入と地質学的条件をまねた高圧高温の利用を探索し始めている。D-D融合が触媒され得るならば、D-T融合反応が、そのはるかに大きな核反応断面積の故に、おそらく好まれるであろう。かくしてこれまでに観測された融合速度が小さい間は、凝縮物質中の冷核融合の発見は、少なくとも融合エネルギーへの新しい道の可能性を開くものである。

1. Van Siclen, C. D. & Jones, S. E. *J. Phys. G.* **12**, 213-221 (1986).
2. Jones, S. E. *Nature* **321**, 127-133 (1986).
3. Rafelski, J. & Jones, S. E. *Scient. Am.* **257**, 84-89 (July 1987).
4. Craig, H., Lupton, J. E., Welhan, J. A. & Poreda, R. *Geophys. Res. Lett.* **5**, 897-900 (1978).
5. Lupton, J. E. & Craig, H. *Science* **214**, 13-18 (1981).
6. Mamyrin, B. A. & Tolstikhin, L. N. *Helium Isotopes in Nature* (Elsevier, Amsterdam, 1984).
7. Craig, H. & Lupton, J. E. in *The Sea* Vol. 7 (ed. Emiliani, C.) Ch. 11 (Wiley, New York, 1981).
8. Mamyrin, B. A., Khabarin, L. V. & Yudenich, V. S. *Soviet Phys. Dokl.* **23**, 581-583 (1978).
9. Jensen, G. L., Dixon, D. R., Bruening, K. & Czirr, J. B. *Nucl. Instrum. Meth.* **220**, 406-408 (1984).
10. Hess, W. N., Patterson, H. W. & Wallace, R. *Phys. Rev.* **116**, 445-457 (1959).

11. *MCNP: Monte Carlo Neutron and Photon Transport Code*, CCC-200 (Version 3) (Radiation Shielding Information Center, Oak Ridge Natn. Lab., 1983).
12. Bowman, R. C. Jr in *Metal Hydrides* (ed. Bambakides, G.) 109-144 (Plenum, New York, 1981).
13. Jones, S. E. et al. *Phys. Rev. Lett.* **51**, 1757-1760 (1983).

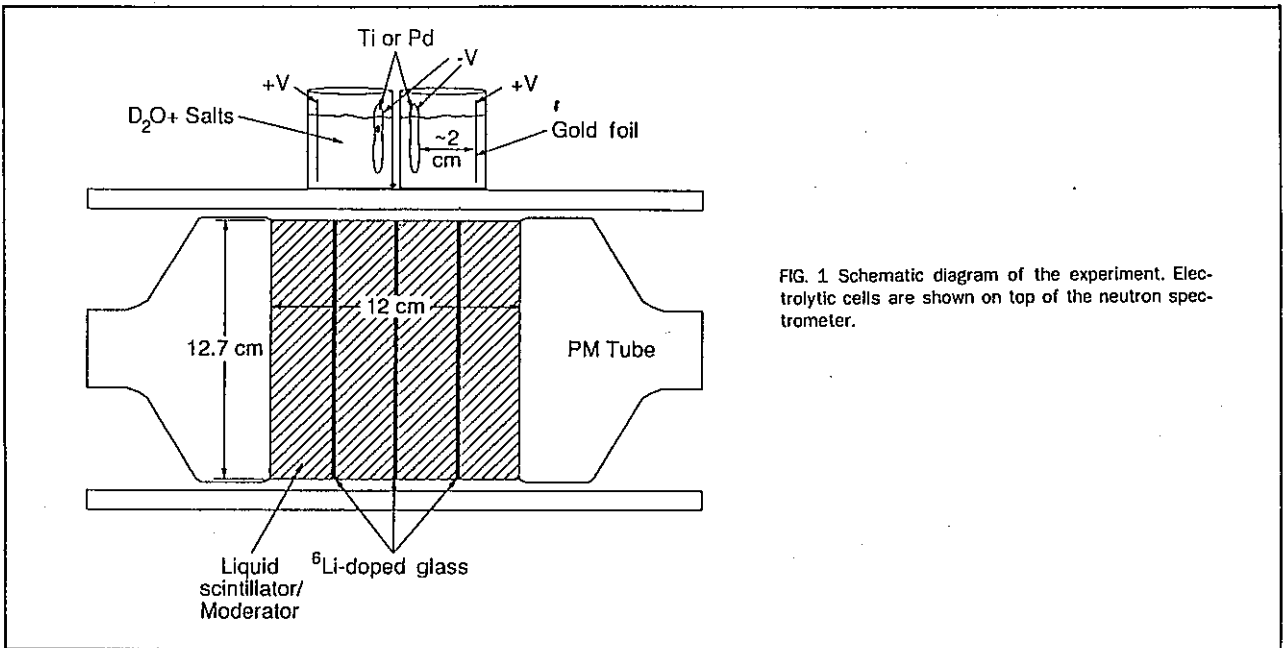


FIG. 1 Schematic diagram of the experiment. Electrolytic cells are shown on top of the neutron spectrometer.

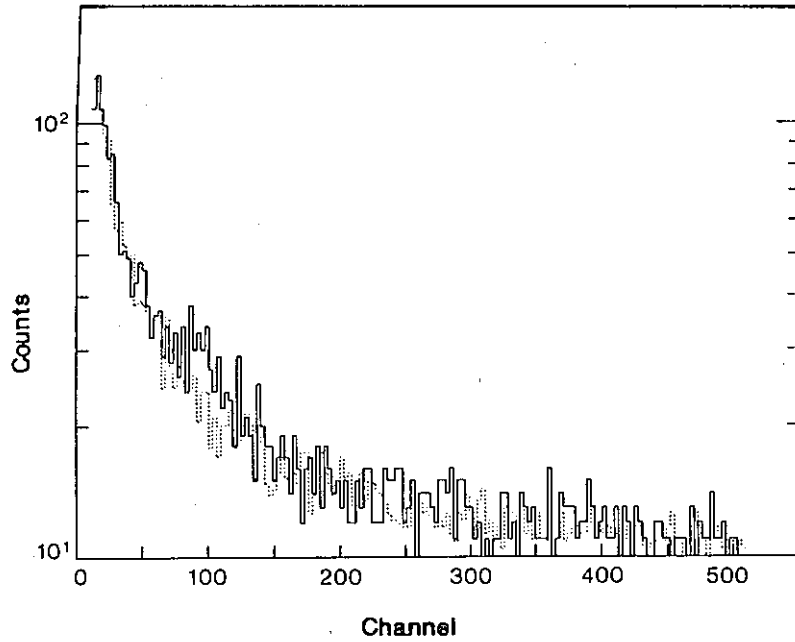


FIG. 2 Foreground (solid) and background (dashed) counts as a function of pulse height (corresponding to neutron energy) in the neutron spectrometer. Ten counts have been added to each three-channel bin for clarity of presentation.

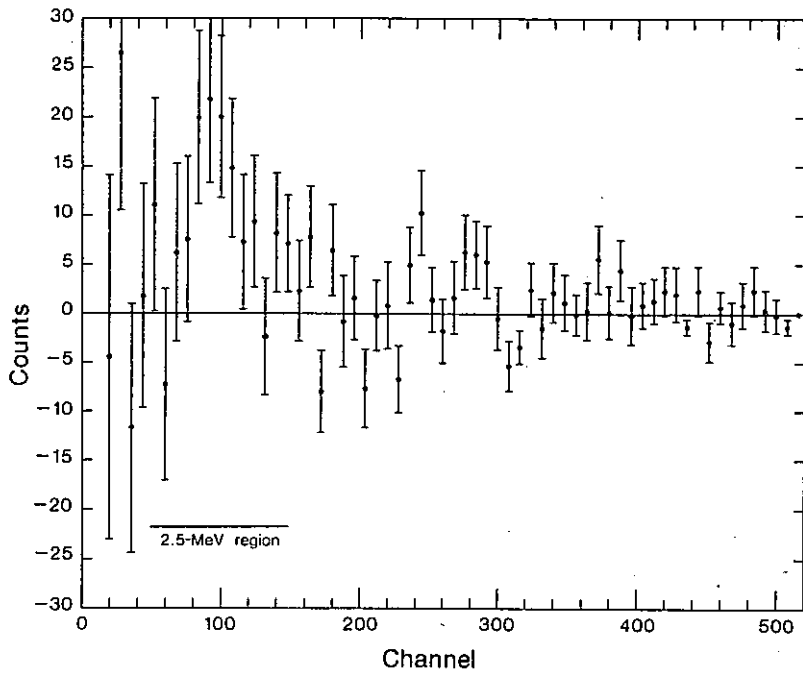


FIG. 3 Difference spectrum obtained by subtracting scaled background from the foreground. Statistical errors ($\pm 1\sigma$) are shown for each eight-channel bin.

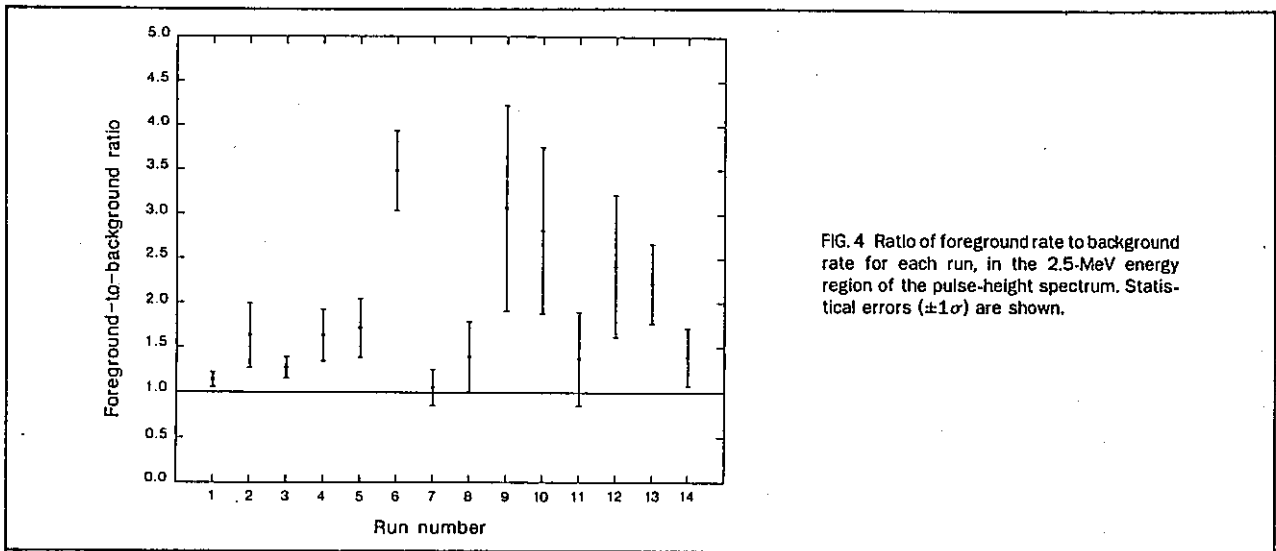


FIG. 4 Ratio of foreground rate to background rate for each run, in the 2.5-MeV energy region of the pulse-height spectrum. Statistical errors ($\pm 1\sigma$) are shown.

付録5 執筆者及びワーキンググループメンバー

執筆者(アイウエオ順)

池田 真輝典	(機器室)	(4.3章)
大谷 暢夫	(プラント室)	(4.2章及び5章)
鳥居 建男	(安全部)	(4.2章)
根本 昌明	(技術課)	(4.3.1章)
野村 茂雄	(A D S)	(4.3.2章)
小野瀬 庄二	(M M S)	(4.3.2章)
若林 利男	(プラント室)	

大洗低温核融合追試ワーキンググループメンバー(アイウエオ順)

池田 真輝典	(機器室)
伊藤 正彦	(研管室)
飯沢 克幸	(材料室)
大谷 暢夫	(プラント室)
大戸 敏弘	(技術課)
小野瀬 庄二	(M M S)
加納 茂機	(材料室)
塩月 正雄	(W M S)
斉藤 正樹	(前炉安)
佐久間 和彦	(技術課(検査開発))
曾根 徹	(技術課)
立辺 和明	(A D S)
飛田 和則	(放管課)
鳥居 建男	(安全部)
中村 寿	(機器室)
根本 昌明	(技術課)
野村 茂雄	(A D S)
両勝 勝文	(A G S)
若林 利男	(プラント室)