

Complex Cathode における常温核融合

荒田 吉明

(近畿大学理工学総合研究所)

張 月 嫦

(大阪大学溶接工学研究所)

(1991年12月2日受理/1992年1月21日改訂原稿受理)

“Cold” Fusion in Deuterated Complex Cathode

Yoshiaki Arata and Yue-Chang Zhang*

(Received December 2, 1991/Revised Manuscript Received January 21, 1991)

Abstract

A new type cathode consisting of a Ni (or Pd) rod with a Pd layer applied by plasma spraying was developed as a complex cathode. The Pd layer was shown to have activated the surface functions of the deuterated cathode, and a reliable evidence was obtained that a new type of heat generation occurred and high reproducible “cold” fusion reaction produced in the complex cathode.

Keywords :

cold fusion N-pattern, complex cathode, plasma sprayed layer, inner cathode temperature, on-off effect,

Fleischman, Pons(F&P)¹⁾, つづいて Jones ら²⁾及び Deninno ら³⁾は常温核融合が重水素化金属内でおこったとしてセンセーショナルな発表を行ったことはよく知られている。しかしその“再現性条件”は極めてきびしいものがあり、現在なお追試に成功したとされる研究者を含めて、これを明らかにした人は誰もいない。むしろ常温核融合は絶対に存在しないと否定している研究者も多い。

(F&P)は初めて重水素化したPd cathodeにおいて大きな発熱現象があるとして、未知の核融合が発生し、それによる“反応熱”であるとした¹⁾。これに対し、筆者らはこの反応熱は新しい現象“on-off effect”(Pdが重水素の爆発的な放出と吸収する現象)によって形成されるものとした^{4,5)}。

Research Institute for Science and Technology, Kinki University, Higashiosaka 341.

*Welding Research Institute, Osaka University, Ibaragi 567.

また, Jones 等は極めて小さな Ti-cathode(これは速やかに安定な重水素化物になる)を用いただけでなく, さらにその表面を速やかに汚染する電解液中で実験を行った²⁾. このような実験条件では重水素の cathode 表面通過を阻止するばかりでなく, その内部での mobility および衝突頻度を極端に小さくするはずである. このような極端な悪条件でなお常温核融合が起こるとすれば, すべての追試者は通常の条件で容易に成功するはずである.

筆者等は Cold fusion の発生は, これまで “micro-defect” の存在が必須の条件であると考え, これを最も適切に含んでいる “溶射層” を持つ Cathode を “complex cathode” として開発し実験を行った⁶⁾. これは “complex cathode” のはじまりであったが, その 1 か月後 Liaw 等⁷⁾ が筆者等とは独立的に Pd-Fe などの “complex cathode” を用い, strong excess heat を発生したと述べている. これは筆者等が発見した発生熱とは異なった種類のものである. complex cathode に存在している defects が cold fusion 発生を惹起する可能性については最近興味ある理論が提案されている. 例えば界面に対する interface model⁸⁾ あるいは lattice defect model⁹⁾ などである.

したがって本論文では桁違いに広い “実表面積” を持ち, 表面凹凸, 界面, 格子欠陥, 転移, クラック, ポロシティ並びに歪み, 応力などの集中した “micro defect” を持つ “Pd 溶射層” を complex cathode として用いることにした. この溶射層は Ni(あるいは Pd) rod ($\phi 20\text{mm} \times 50\text{mm}$) の表面に低真空中で Pd 粉末を $300\ \mu$ の厚さに Plasma coating された. Ni-rod を用いた理由は重水素に対する拡散速度が Pd とほぼ同じであるからである. 筆者らはこのような溶射層を用いた Complex cathode によって, 再現性の高い常温核融合とこれとは無関係に形成されると思われる新しい大きな反応熱の発生を確認することが出来た.

実験 I

本実験装置およびその配置図

についての詳細は図 1 に示した.

Anode は円筒状白金 ($\phi 62\text{mm} \times 50\text{mm}$), Complex Cathode としては, 図 2 に示した Ni(あるいは Pd) rod ($\phi 20\text{mm} \times 50\text{mm}$) の表面を Pd Powder で $300\ \mu$ の厚さに真空プラズマ溶射したものを用いた. これらの Cathode は記号としてそれぞれ Pd(Ni) および Pd(Pd) を用いた. Anode と Cathode の間には無数の小さな穴を持つガラス製円筒 ($\phi 38\text{mm} \times 92\text{mm}$) をセット

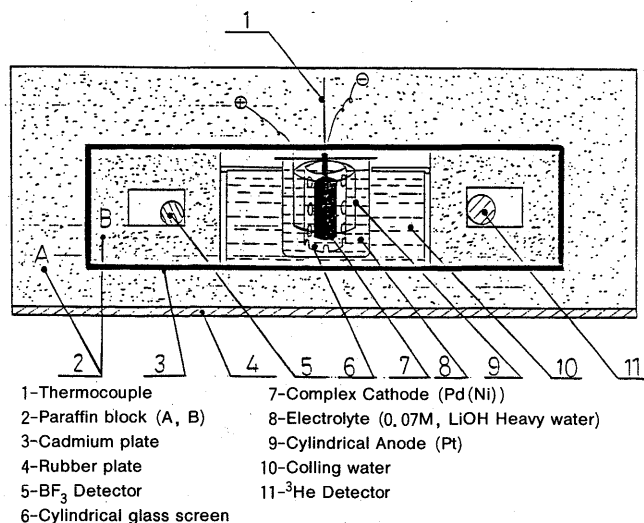


図 1. Schematic of the experimental apparatus.

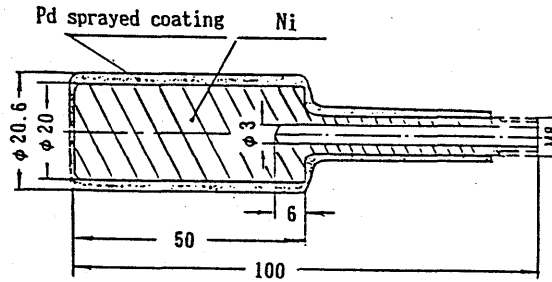


图 2. Schematic of complex cathode.

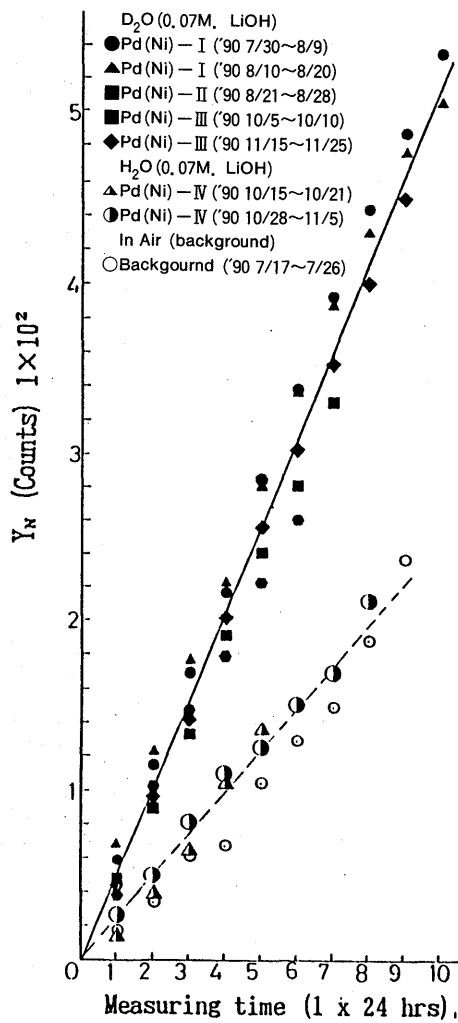


图 3. Comparison between Y_N -characteristics of background, hydrogenated complex cathode and deuterated complex cathode obtained by BF_3 -I detector.

し、これによって両極で発生する gas(O_2 と D_2)の混合するのを防止した。Cathode の内部温度は図2に示した穴($\phi 3\text{mm} \times 55\text{mm}$)の底部にセットされた熱電対によって測定された。

図1に示したパラフィンブロックA及びBはそれぞれセットの内部(Complex Cathode)及び外部から放射された速中性子を熱中性子化する。これはこのブロックA, Bの境界層に置かれたCd板(厚さ1mm)に吸収され、中性子検出器(BF_3 , 3He)に対する Background が出来るだけ小さくなるように構築されている。

我々は、Appendix 1に本実験における計測に関する基本方針及び中性子発生 の認定法について詳述した。図3はこの Appendix にしたがって得た結果である。この実験では4個のPd(Ni)cathdeを用い、これらを電解液(重水; D_2O (0.07M, LiOH)と軽水; H_2O (0.07M, LiOH))の中で重水素化あるいは水素化し、 BF_3 検出器によって中性子発生の有無を究明した。この結果重水素化 Complex Cathode から連続して中性子が発生していることが測定されているが、水素化 cathode からは通電中止の状態 で得られたバックグラウンドとほぼ同じであって、この Cathode からは何も発生していないことが分かった。図4は120時間通電経過後の

それぞれのパルス波高分布(N-Pattern)を示すとともに、さらに比較を容易にするため、重水素化通電をさらに長時間(192時間)継続させたもの並びに同位置に標準中性子源として ^{252}Cf ($2.6 \times 10^3 \text{ n/s}$)を30分間セットした場合の“N-pattern”を示した。図3は図4に示すような実測“N-pattern”より求めた結果であって、これは図3の中に示したように日時を変えて数回実験を繰り返しても、類似の結果を与えるという、“再現性”の良い結果が得られている。

図1に示すように 3He -Detector が BF_3 -Detector とともにセットされ、Appendix IIに従って同時測定が行われた。図5は重水素化Pd(Ni)水素化Pd(Ni)およびバックグラウンドからの Y_N の時間変化を示している。これによって、バックグラウンドと水素化Pd(Ni)の場合はほぼ同じであって、重水素化Pd(Ni)が中性子源になっていることが分かる。さらに最近 two coupled 3He -detectors system によって、中性子信号を測定した。

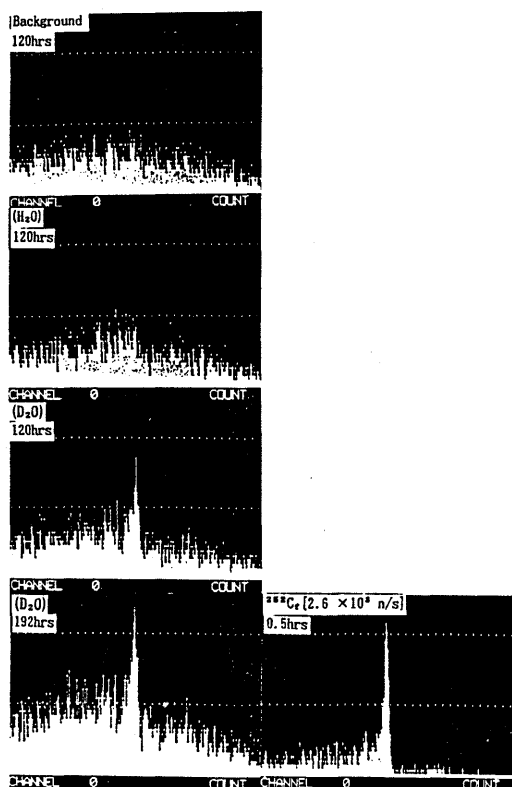


図4. Comparison between the “N-Pattern” of background, hydrogenated complex cathode and deuterated complex cathode (obtained by BF_3 -I detector) note : full scale 64 counts.

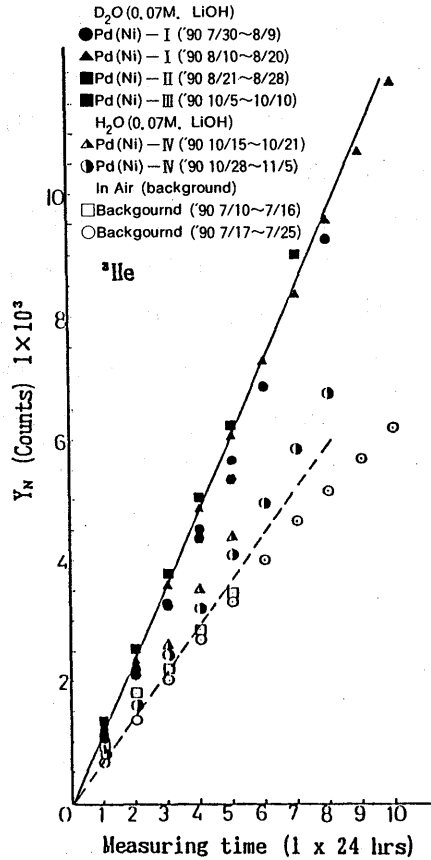


図5. Comparison between Y_N -characteristics of background, hydrogenated complex cathode and deuterated complex cathode obtained by ^3He detector.

図6 (I)は background, 図6 (II)は ^{252}Cf ($2.6 \times 10^3 \text{ n/s}$), 図6 (III)は Pd(Ni)からの中性子信号をパルスカウンタで連続記録した“Time series”である. 図6 (III)は日を変えて, 10回にわたって測定したそれぞれの time series を示す. これらの Peak pulses の中で最大 peak pulse は(’91. 3/26~27)の420counts/5minであって, このCathodeと同じ位置にセットした ^{252}Cf ($2.6 \times 10^3 \text{ n/s}$)からの信号をベースとして計算すると Pd(Ni)からの最大発生率は約 $1.2 \times 10^2 \text{ n/s}$ であった.

実験 II

重水素が Cathode に侵入あるいは排出するときに, カソードの表面およびその近傍の物理的, 化学的特性から大きな影響を受ける. Complex cathode の表面層を構成している溶射層は重水素の通過・凝集機能を著しく高め, 強力な“触媒機能”が出現し, 常温核融合を惹起するのに良い状態を与えるものと考え, この実験を計画した. ここにこのような溶射層によって惹起した新しい現象について述べる.

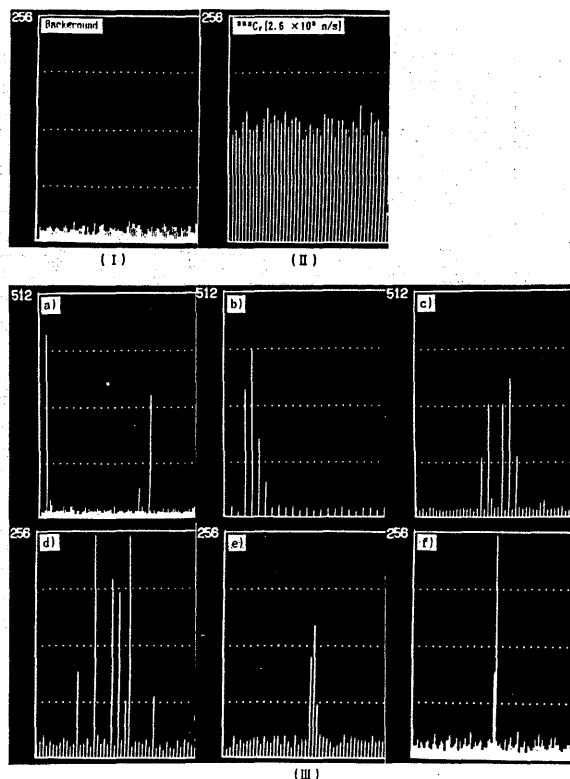


図 6. Comparison between Time series of the counts from background, ^{252}Cf and during the "cold" fusion experiment (Pd(Ni) cathode) obtained by two coupled ^3He detectors,
 (I) Background (Time interval : 5 mins) ('91, 4/4)
 (II) ^{252}Cf ($2.6 \times 10^3 \text{ n/s}$) (Time interval : 5 sec)
 (III) Pd(Ni) cathode (Time interval : 5 mins)
 (a) '91. 3/26 (b) '91. 3/28 (c) '91. 3/31
 (d) '91. 3/29 (e) '91. 3/30 (f) '91. 4/5.

例えば, 図 7 は 240 時間かけて重水素化した Pd(Ni) を電解液中から大気中に引き上げた場合の大きな“発熱現象”を示したものである. この場合の発熱エネルギーは約 2 KJoule であり, Cathode は 81°C まで上昇した. 図 8 は Pd(Pd) の場合であって, 更に大きな発熱現象を伴い, Cathode の温度は実に 360°C を越え, 発熱エネルギーは 20 KJoule に達している.

図 9 は Pd(Ni) の場合電解液からその cathode を大気中に 1 分間引き上げ, その発熱現象を確認してから, 直ちに 10 分間 Ar 気流中に投入し, 発熱現象がストップしていることを確認した後, さらに大気中に戻すと直ちに発熱するという新しい現象の出現状況を示している. この場合の発生エネルギーは約 1 KJoule であり, 図 7 とほぼ同じであった. このように重水素化した溶射層を持つ Complex cathode は大気中では発熱し, Ar 中では発熱がストップしたので, この発熱は cathode 表面から排出する重水素の酸化反応によるものと考えられる. 水素化 Pd(Ni) の場合でも重水の場合ほど強力ではなかったが, 類似の発熱現象があっ

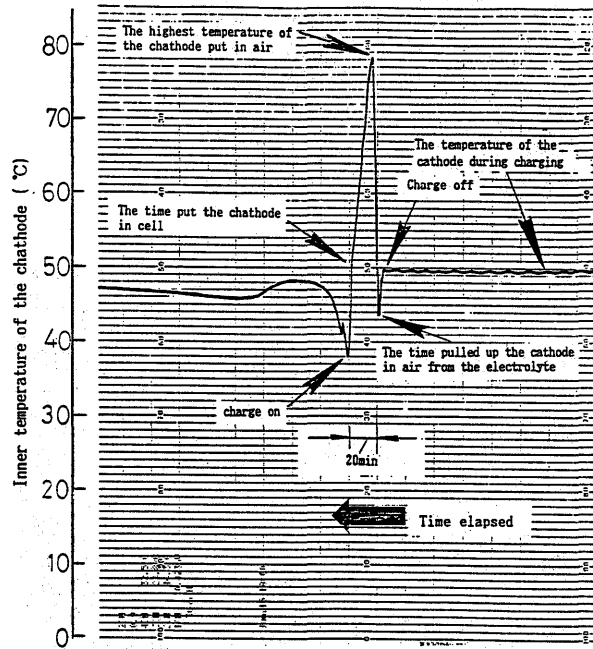


图7. The inner temperature change of the Pd(Ni) during charging off and cooling in air.

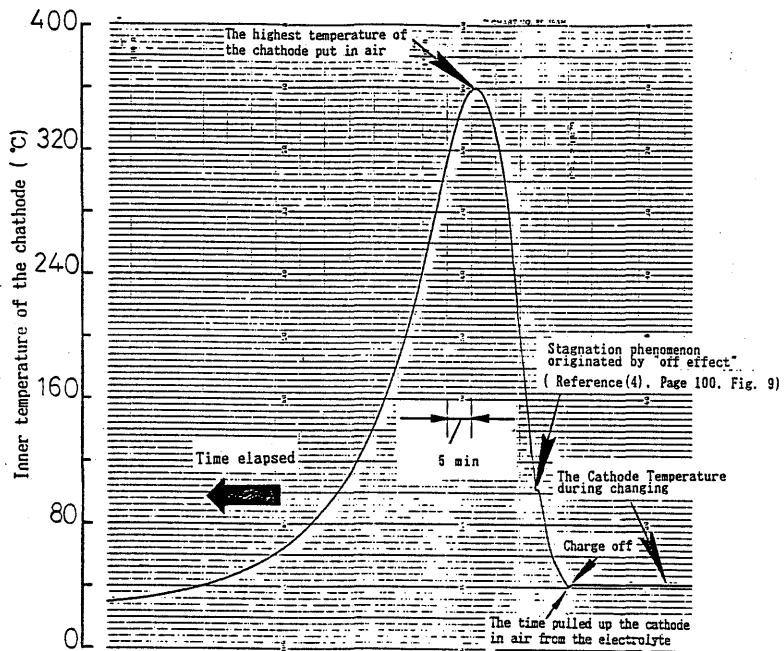


图8. The inner temperature change of the Pd(Pd) during charging off and cooling in air.

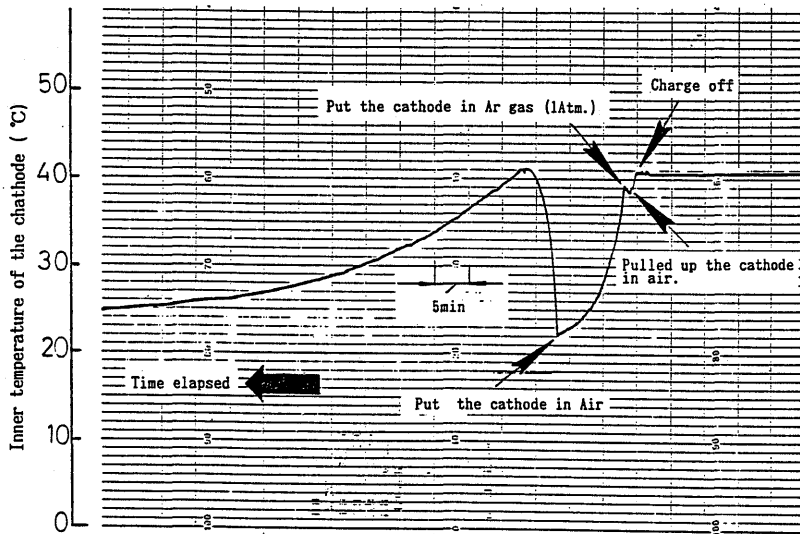


図9. The inner temperature change of the Pd(Ni) during charging off and cooling in Ar gas and in air.

た. Pd(Ni)と同一サイズの溶射層を持たないPd Cathodeでは発熱現象はないが, 溶射層を持つPd(Ni)あるいはPd(Pd)では大きな発熱反応があり, これは溶射層がいかに“活性化状態”にあるかを示す重要な根拠を提示している. Pd表面をSand blastして微細な表面凹凸を作ると, 溶射層ほど強くはないが, 類似の傾向を示した.

図10は溶射層の断面写真であるが, 無数の微小欠陥の存在を見ることが出来る. これは溶射層を活性化状態にする重要な因子のように見える.

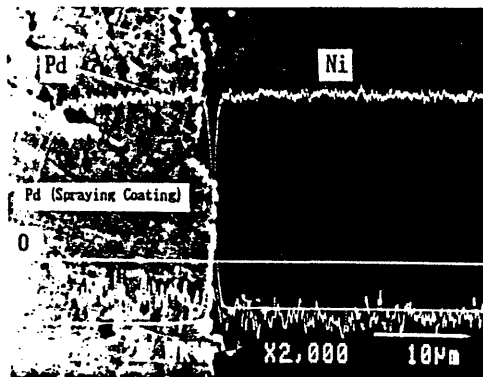


図10. SEM microstructure and distribution of Pd, Ni and O in section of the Pd(Ni).

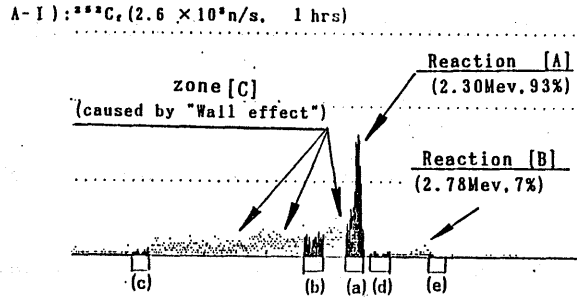
Conclusion :

本報告では complex cathode として溶射層を有する Pd(Ni) および Pd(Pd) を開発した。これを用いて繰り返し実験を行った結果、中性子源 ^{252}Cf をベースとして比較することにより、高い再現性を持って常温核融合が発生していることが確認された。また溶射層は重水素の吸収・放出に対し、活性化状態として強力な“触媒”作用が機能し、その放出時大気中では際立った“発熱現象”が出現した。これは溶射層における重水素の酸化反応熱ではないかと考えられる。

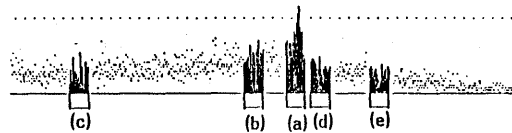
Appendix : I

常温核融合発生中の Complex cathode : Pd(Ni) より放出される中性子は 2.45 MeV のエネルギーを有しているはずである。しかしこれらカソードは通常重水、あるいはさらにこれを冷却する軽水で囲まれているので、一部は熱中性子化され、実際測定されるエネルギーはかなり分散されているはずである。従って、電解液中での常温核融合による真の中性子エネルギーの測定は考えているよりはるかに困難である。このエネルギー分散は実験条件によってかなり変わってくるので、エネルギーの測定にはこの点に細心の留意が必要である。また、標準中性子源とされる ^{252}Cf より放出される中性子エネルギーは 1 ~ 10 MeV 程度に分散しているが、やはりカソードと同一場所の軽水中にセットし測定されるので、カソードの場合と同様にその分散がそれ以上に広がるはずである。

そこで、中性子発生の有無及び発生率を知る確実な方法の一つは、いろいろのエネルギーに分散している大部分の速中性子を“熱中性子”化し、その特性を活用することである。すなわち ^{252}Cf 、Complex cathode あるいはバックグラウンドよりの速中性子を“熱中性子”とし、例えば BF_3 検出器を用いるときは、この熱中性子 ^1_0n が検出器内の $^{10}_5\text{B}$ と核反応 “ $\text{B}(\text{n}, \alpha)\text{Li}$ ” を形成し、反応 [A] (2.30 MeV, 93%) 及び反応 [B] (2.78 MeV, 7%) の 2 種の反応エネルギーを持つ運動粒子 (α, Li) が出現する。したがって、 BF_3 検出器とマルチチャンネルアナライザーによって、実際に得られる“測定パターン”は図 A - I に示すように反応 [A], [B] のエネルギースペクトルに対応した「パルス波高分布」となる。さらに、反応 [A] に対する検出器の“Wall effect”によって分散したエネルギー分布 [C] ゾーンが形成される。このようなパルス波高分布を簡単のため“中性子パターン”あるいは“N-Pattern”と呼ぶ。図 A は図 1 の Cathode の位置に標準中性子源として、 ^{252}Cf あるいは Complex Cathode として Pd(Ni) をセットした場合のそれぞれの“N-Pattern”である。この ^{252}Cf “N-Pattern”をベースとして、Pd(Ni) “N-Pattern”及びバックグラウンド “N-Pattern”を比較すれば、“cold” fusion 発生の有無を確定することが出来る。そこで“N-Pattern”の「定量的評価」を行うため、図 A に示すように ROI (Region of Interest) として、それぞれ 34 チャンネルで構成されている領域 (a), (b), (c), (d), (e) を設定した。(a) は反応 [A] を含む領域であり (b) 及び (c) はそれぞれ [C] ゾーンの内側と外側における適当な領域、さらに (d) 及び (e) は反応 [B] の左側と右側で、その反応の影響を受けない領域(あるいは極めて少ない領域)に選定されており、それぞれ ROI のパルス波高



A-II): Complex Cathode (Pd(Ni) 192hrs)



Definition: $Y_N = (a) - Y_b$

$$Y_b = \frac{(c) + (d) + (e)}{3}$$

Where:

(a)	the counts in 500~533th channel	
(b)	"	430~463 "
(c)	"	137~170 "
(d)	"	543~543 "
(e)	"	640~673 "

図A. Definition of Y_N and Y_b , in terms of 34-channel regions-of-interest (a) through (e) of the "N-pattern" of the deuterated Pd(Ni) cathode, obtained by using a BF_3 detector and multichannel analyzer (MCA-7800, 1024 channels). Horizontal axis is channel number, vertical axis is pulse height.

値(カウント数)を示している。

従って検出器に対し、各種“じょうらん”(各種のノイズ及びバックグラウンド“N-Pattern”発生)がなければ(c) = (d) = (e) = zeroである。

しかし、このような“じょうらん”があるとき、通常(c) ≃ (d) ≃ (e) ≠ 0であり、これらの値は時間とともにほぼ比例して増大するはずである。そこで任意の中性子源から放射される中性子強度を実測された“N-Pattern”から定量的に評価するためには上記各種“じょうらん”に基づく“バックグラウンド”を考慮しなければならない。この“バックグラウンド”を Y_b とし、次のように定義した

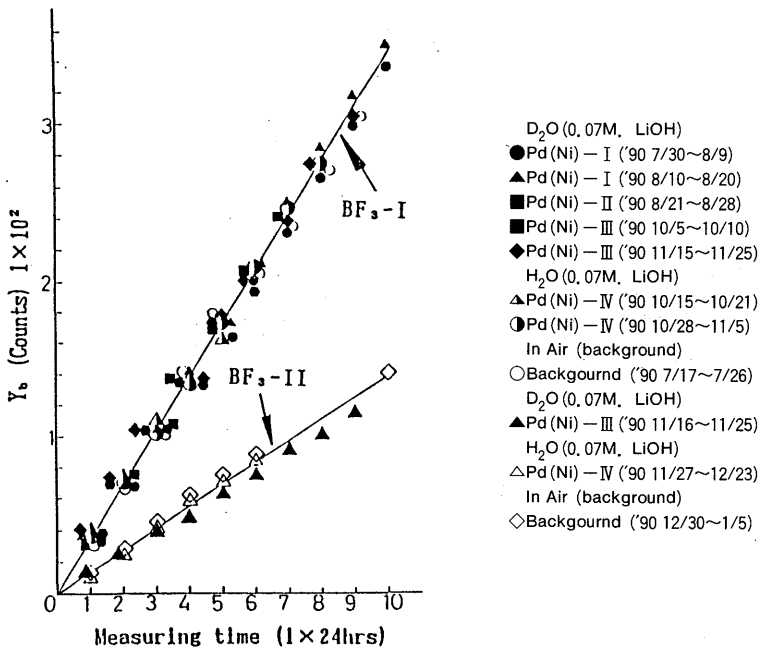
$$Y_b = \frac{(c) + (d) + (e)}{3} \dots\dots\dots(1)$$

さらに中性子発生を確認できる最もシンボリックな事象が反応 [A] を含む(a)領域であることに着目し、その強度(カウント数)を同じく(a)で表示すれば、中性子発生の“評価値”として Y_N を与えることができる。

$$Y_N = (a) - Y_b \dots\dots\dots(2)$$

$T_N \approx 0$ であれば、中性子源の存在はないし、 Y_N が有意の大きさを持つとすれば中性子の発生を認めることになる。

さて Y_b 特性は BF_3 検出器の特性(感度と精度)と密接に関連しており、中性子発生の有無を確認するための重要なベースパラメータとなる。 Y_b 特性は図Bに示すように BF_3 検出器が同一会社、同一規格(BF_3 -I, BF_3 -II)でも一致するとは限らない。しかし極めて大切なことはそれぞれの検出器で得られた測定値が電解液として重水; D_2O (0.07M, LiOH) 軽水; H_2O (0.07M, LiOH) および空気中(background)においてもほとんど有意差のないことである。そしてこれらの測定値は測定時間とともに比例して増大している。図Bより BF_3 -I が BF_3 -II より高感度であることが分かったので、本報告では BF_3 -I によって得られた結果を示した。もちろん BF_3 -II によっても類似結果が得られている。しかし測定値を比較するときは同一検出器によるのが絶対に必要条件であることが分かる。

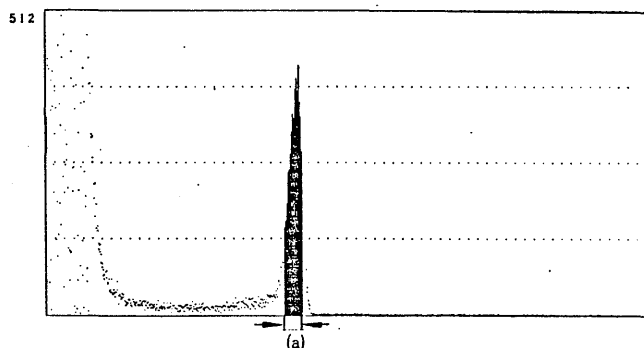


図B. Y_b characteristics obtained by detectors BF_3 -I and BF_3 -II. The detectors are identical models manufactured to the same standards (Mitsubishi ND-8534-30; 25mm×348mm; gas pressure 300 torr; applied voltage 1.7 kV; half-bandwidth 2.5-4%; neutron sensitivity 2.5 cps/nv; amplification factor 15). They nevertheless have different sensitivities, as indicated by the differing Y_b measurements, and hence for comparative purposes it is necessary to use data from only the same single detector.

Appendix : II

図1に示すように、中性子測定はBF₃-Detectorと同時に³He-Detectorによってなされた。³He-Detectorはよく知られているように、熱中性子に対し、高感度で測定でき、background “N-pattern” でさえ、容易に観測される。さらにバックグラウンド、²⁵²CfおよびPd(Ni)からの “N-pattern” のパターンは同じであって、区別出来るのは量的なパラメータだけである。そこで、図Cは200時間経過後のPd(Ni) “N-pattern” であるが、そのROIとしてzone(a); (peak channelを中心とする402th~434th channelの33Channels)を選定し、そのtotal countsをY_Nとし、その時間的変化を求めた。そこで重水化および軽水素化Pd(Ni)並びにバックグラウンド(discharging current off)に対するY_Nの時間変化を比較すれば、重水素化Pd(Ni)が中性子源であるかどうかを判定することが出来る。

さらに、³He-Detectorは図6に示すように、中性子信号に対する一定時間間隔のパルス波高値(カウント数)を連続的に記録(“Time series”)することが出来るので発生時期の解明に役立つ。



図C. Region-of-interest (a) in N-pattern of deuterated Pd(Ni) cathode, obtained by a ³He detector (RS-P4-1614-210 proportional counter filled with helium-3).

謝 辞

本研究は文部省科学研究費および日本学士院学術研究奨励金の下に行われた。トーカロ株式会社第一メテコ株式会社および田中貴金属工業株式会社より試料等が提供された。本研究遂行にあたり絶えざる激励を頂いた日本学士院会員今井勇之進先生および永宮健夫先生に深謝します。また、核融合研究所池上輝雄教授並びに大阪大学溶接工学研究所のスタッフの方々のご協力に対し謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) M. Fleischmann and S. Pons, *Electrochemically Induced Nuclear Fusion of Deuterium*, J. Electroanal. Chem., **261** (1989) 301.
- 2) S.E. Jones *et al.* : *Observation of Cold Nuclear Fusion in Condensed Matter*, Nature, **338** (1989) 737.
- 3) A. DeNinno *et al.* : *Evidence of Emission of Neutron from a Ti-D System*, Europhys. Lett., **9** (1989) 221.
- 4) Y. Arata and Y.C. Zhang : *Achivement of Intense Cold Fusion Reaction*, Fusion Technol., **18** (1990) 95.
- 5) 荒田吉明, 張 月嫦 : 核融合研究 **62** (1989) 398.
- 6) Y. Arata and Y.C. Zhang : *Corroborating Evidence for "Cold" Fusion Reaction*, Proc. of The Japan Academy, Vol. 66, Ser. B, No. 6 (1990).
- 7) B.Y. Liaw, P.L. Tao, P. Turner and B.E. Liebert : *Elevated Temperature Excess Heat Production Using Molten-Salt Electrochemical Techniques*, Special Symp. Proc. Cold Fusion at World Hydrogen Conf. No. 8 Hawaii, July 22-27, 1990 (Hawaii Natural Energy Institute Press, Univ. Hawaii, 1990) p.49-60.
- 8) H. Hora, G.H. Miley, M. Ragheb and A. Schermann : *Surface Models for Cold Fusion and the Possibility of Multilayered Cells for Energy Production*, Special Symp. Proc. Cold Fusion at World Hydrogen Conf. No. 8 Hawaii July 22-27, 1990 (Hawaii Natural Energy Institute Press, Univ. Hawaii, 1990) p.169-180.
- 9) S. Ichimaru, S. Ogata and A. Nakano : *Rates of Nuclear Fusion in Metal Hydrides*, J. Phys Soc. Jpn. **59** (1990) 3904.