

CFP 研究の歴史から (5)

— M.C.H. McKubre et al. (1994, 1994) による重水系における最も徹底した過剰熱の測定

常温核融合現象の研究の中で、間接的な証拠と位置づけられる過剰熱の測定は、この現象の最初の論文である Fleischmann-Pons-Howkins の論文 [Fleishmann 1989] でも、最も確度の高いデータとして位置づけられているように、注目度の高い測定であることは、衆目の一致するところでしょう。

これまでに、いろいろな実験系で非常に多くの実験が行われてきましたが、1993年に発表された McKubre et al. の PdD_x系での実験が最も徹底した精緻なものであると言ってよいと思われまます [McKubre 1993]。読者の便宜のために、この論文をこの News site の、このニュースの隣に掲示します。

1. 実験の特徴

McKubre et al. のこの論文 [McKubre 1993] に記された実験と類似の実験の内容は、この時期 (1993–1994 年) の彼らの論文に紹介されています。(e.g. [McKubre 1994a, 1994b]) ここでは、基本的には共通した内容を含むそれらの論文の中から、ICCF3 で発表された論文を中心に解析を行います。また、読者の便宜のために論文 [McKubre 1994a] を CFRL ウェブサイトの CFRL News No. 91 の隣に掲示します。

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/News/news.html>

彼らの実験は、この時までに行われた常温核融合現象の中の過剰熱測定をより精密に行い、その発生条件を明らかにすることによって、Fleischmann et al. [Fleischmann 1989] が仮定した、重水素が固体内核反応を起こす可能性を探求することでした。そのために、彼らの行った準備は次のように記されています：
“Thus a central feature of the experiments described here is the (electrochemical) control, and continual in situ measurement, of the deuterium (and hydrogen) loading during the entire calorimetric experiment. Further, it was decided that the most accurate, and sensitive, thermal measurements would be obtained using a sealed (thermodynamically closed) electrochemical cell (with knowledge at all times of the composition of the reacting system), in combination with a flow calorimeter.” ([McKubre 1994a] 1. Introduction).

ここに記されているように、loading ratio x , electrochemical current i and excess power P を同時に、連続的に測定することによって、過剰熱発生条件

を決定しようとした点に、この実験の一つの特徴があると言えます。(cf. Fig. 3 (Fig.5 of [McKubre 1993]))

彼らの用いた試料は、0.1 cm diameter × 45 cm length Pd cathode と Pt wire anode で、電解質溶液は 1.0 M LiOD + 200 ppm Al を用いました。実験開始から 300 – 780 h の間に、膨大なデータを得ています (cf. {McKubre 1993} Figs. 6 and 7)。

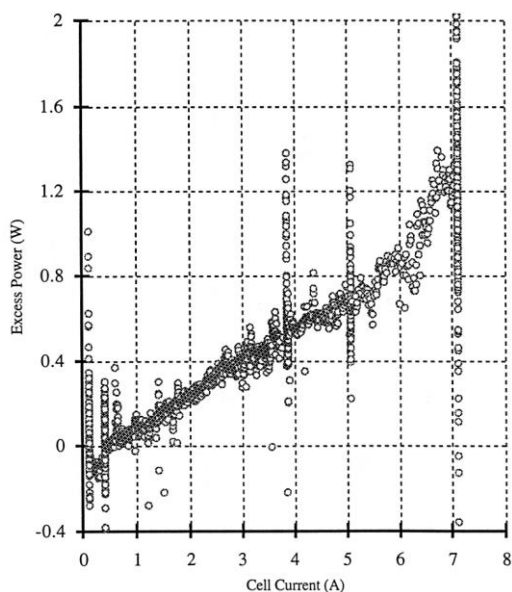


Fig. 1 Variation of excess power with cell current (Fig. 6 of [McKubre 1993])

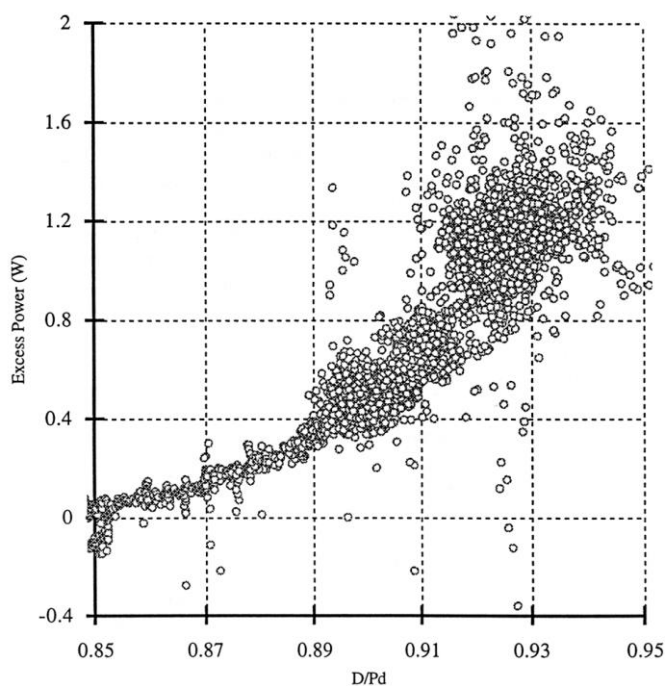


Fig. 2 Variation of excess power with loading (Fig. 7 of [McKubre 1993])

実験の概略を示すために、論文 [McKubre 1993] から Figs. 1 and 2 を引用します。(Figs. 6 and 7 of [McKubre 1993])

Fig. 1 の横軸は電解電流 i , 縦軸は単位時間あたりの過剰熱 (過剰熱率) $P(i)$ (W) を表します。電解電流 i が threshold value i_0 を越すと過剰熱が発生し、その平均値は $(i - i_0)^\alpha$ ($\alpha \sim 1$) に比例して増加するが、平均値からのずれは非常に大きいことが分かります。

Figure 2 の横軸は PdD_x の平均吸蔵率=平均組成比 (Loading ratio) $x \equiv D/Pd$ を、縦軸は過剰熱率 (Excess power) $P(x)$ (W) を表します。平均組成比 loading ratio x は、これまでの研究で明らかにされた電気抵抗から the known resistance-loading variations data を用いて決定され、陰極電極線に吸蔵された重水素の平均的な分布を示すと考えられます。組成比 loading ratio x が threshold value x_0 を越すと過剰熱が発生し、その平均値は $(x - x_0)^\beta$ ($\beta \sim 2$) に比例して増加するが、Fig. 6 の場合と同様に、平均値からのずれは非常に大きいことが分かります。

Figures 1 and 2 が示すように、McKubre et al. の extensive data は、過剰熱率の平均値が何らかの法則性を示しているのに、その平均値からのズレは非常に大きいことが分かります。

しかし、このズレの大きさにもかかわらず、この実験は、疑う余地なく過剰熱の発生を示していると客観的に評価されており、そのことは DOE Report 2004 からの、次の引用文からも分るでしょう:

“Electrolytic experiments are extremely difficult to conduct properly and are not geometrically compatible with many detectors for radiation or nuclear particles. This explains the shift to non-electrochemical approaches, which should continue. Emphasis should be placed on developing theories that explain existing data and guide future experimental work. New experiments that test the underlying principles of the theory should be performed. The body of work that has resulted from LENR investigations is formidable and worthy of attention of the broader scientific community.” ([DOE 2004], Comment #9)

McKubre et al. は、過剰熱率 P の電界電流 i と組成比 x に対する依存性の克明な測定に加えて、Fig. 3 に示すように、過剰熱発生 of 動的ふるまいを測定しています。

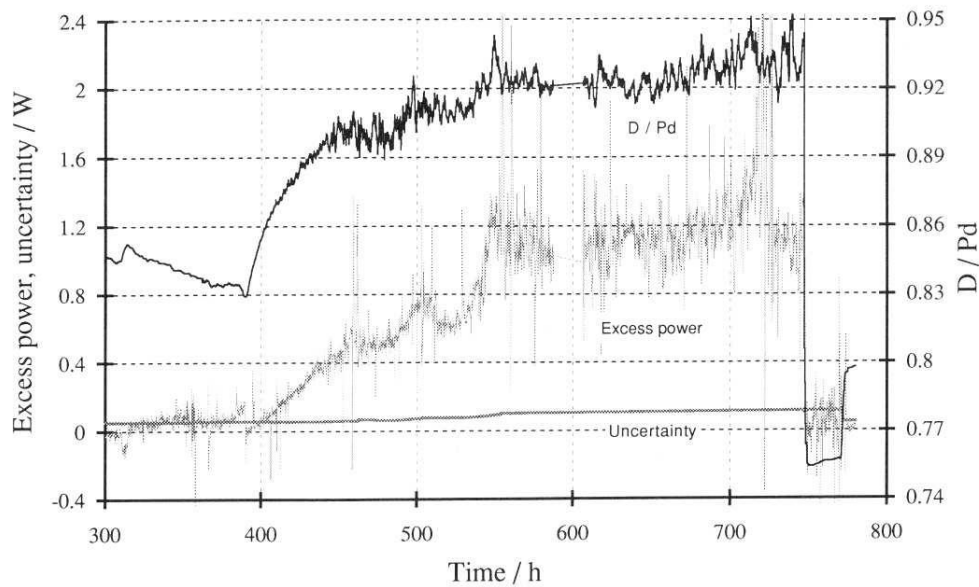


Fig.3 Variation of excess power, uncertainty and loading (Fig. 5 of [McKubre 1993])

この図から分かるように、過剰熱率 P と組成比 x は複雑な時間変化を示しており、この振る舞いは偶発的なものと考えべきものではなく、常温核融合現象の本質に基づく複雑性 complexity の表れであると思われま (cf. Section 1-3)

2. 平均値のふるまい

元論文のデータと著者らの説明とから、過剰熱率 P の平均値 $\langle P \rangle$ 、平均組成比 x 、電界電流 i の間に、次のような関係式が成り立つと仮定することができます；

$$\langle P \rangle = M(T, /dx/dt/)(i - i_0)^{\alpha} (x - x_0)^{\beta}, \quad (1)$$

ここで、 $M(T, /dx/dt/)$ は温度 T 、組成比の時間変化率 $/dx/dt/$ 、その他のパラメータに依存する係数です。 i_0 と x_0 は i と x の臨界値で、 α と β は定数でそれぞれ $\alpha \sim 1$ および $\beta \sim 2$ と取ることができます。臨界値は $i_0 \sim 0.2$ mA/cm² と $x_0 \sim 0.85$ 考えられます。

過剰熱率 P の dx/dt にたいする依存性は簡単には決められないようで、彼らの結論も一定していません：

“iii) changes in the excess power level are usually associated with departures from the electrochemical steady-state, caused primarily by varying the current.” [McKubre 1993, Sec. Phenomenological model]

“Excess power generation was observed when a minimum of three criteria

were met: - - - ; the maintenance of high loading for considerable period of time relative to the time scale of the diffusional processes involving deuterium within the metal: - - -” [McKubre 1994a, Subsection 4].

一応、実験式 (1) を書き表しましたが、この式の定数は必ずしも独立ではなく、 i_0 は変数 x と、 x_0 は変数 i と無関係ではないと考えるべきものです。また、その後のいくつかの実験から、定数 $M(T, /dx/dt/)$ は温度とともに増加すると考えられますが、その依存性は明らかにされていないようです(e.g. [Kozima 2007])。

3. 分散の意味するもの

前節で、過剰熱率 P の平均値 $\langle P \rangle$ の、平均組成比 x と電界電流密度 i に対する依存性を示す実験式を導きました。しかし、平均値を中心とした P の分散は非常に大きく(cf. Figs. 1 and 2)、それが偶然の結果だと考えたり、実験装置の欠陥によると考えるのは、事実が示す内容を的確に捉えていないことになるでしょう。彼らの state-of-the-art apparatus による結果を、次のように総括しているのも参考になるでしょう：

“It is worth noting, however, that excess power in these four experiments (P13 – P16) was not produced in exactly the same amounts, or at exactly the same times, in response to the same stimuli.” ([McKubre 1994] Section 4).

次節で論ずるように、この分散は常温核融合現象の本質に根差した特性であると考えるのが、正しい見方であると思われます。

4. 解析

これまでに我々が得ている核変換生成物の分布の局在から、常温核融合現象における核変換は表面や境界の幅数 μm の層で起こると考えられます。この事実 に立脚して、TNCF モデルでは捕獲中性子の反応が幅 l_0 ($\sim 1 \mu\text{m}$) の表面層で起こると仮定してきました。

McKubre et al. が、次のように述べていることは、上に述べた表面層との関連で、非常に興味のあることです：

“This observation raises the interesting possibility that one or more species, other than deuterium, are required to be present in the cathode in order to observe excess power, species which are not present initially and are thus required to diffuse into the cathode, presumably from the electrolyte. Analyses of used cathodes have revealed the presence of several light elements in the near-surface region (to a depth of several microns); in particular, lithium.” ([McKubre 1993], Section Phenomenological model).

以上の事柄を踏まえて、McKubre et al. の実験データを解析しようと思いません。

4-1 過剰熱率の平均的様相

初期の TNCF モデルによる実験式 (1) の解釈は、すでに *Cold Fusion* の論文 [Kozima 1996] および著書 [Kozima 1998] で与えられていますが、そこでは係数 $M(T, /dx/dt/)$ を $M(T)$ としており、現在の視点からは単純化しすぎていたと考えざるをえません。次の機会に、進化したモデルの視点から解釈をし直す必要があると思っております。

その際に注意すべきことは、係数 $M(T, /dx/dt/)$ が $M(T, /dx/dt/, \xi)$ として他のパラメータ ξ に依存することを明示する必要があることです。パラメータ ξ は、系の温度 T および $/dx/dt/$ 以外の変数を表し、実験式 (1) が単純な関数関係でないことを示します。

4-2 平均値からの大きなずれ—複雑性

過剰熱率の平均値 $\langle P \rangle$ の組成比 x と電界電流 i にたいする依存性が一応 TNCF モデルで理解できるとして、それでは平均値の周りの分散をどう解釈すべきなのかが次の問題になります。

上記のように、実験誤差や装置の不安定性で説明することは McKubre et al. の実験をないがしろにすることになるでしょう。また、他の実験家のいろいろな実験結果が同じような測定値のバラツキを示すことを考えると、Figs. 1 and 2 で示された実験値の分散が現象の本質に根差したものと考えらるべきであろうという結論に達します。

実験で、Pd 陰極に重水素を添加して PdD_x にする過程を考えると、その原子過程は非平衡状態における確率過程であることに思い至ります。重水素 D の分布は一様でなく、その格子内位置も 4 面体位置と 8 面体位置に分かれ、温度によって分布は異なります。ある程度の組成比が実現した状態では、自己形成によって規則格子が局所的に形成される可能性もあるでしょう。McKubre et al. も言っているように、Li などの少量不純物の表面層への侵入と PdLi_x 形成があります。これらの原子過程を考えると、常温核融合現象に複雑性の科学が関係することは明らかだと思われまます。

非線形力学で明らかにされたように、複雑性の科学は本質的に非線形性を含む現実にかかる現象の本質を理解するために不可欠な視点を提供しています。我々が端緒的に取り扱ったように、McKubre et al. のデータの分散は複雑性の特徴の一つである「逆べき法則」を表しており、精密な実験データが現象の科学を明らかにする一例を示していると言えるでしょう [Kozima 2006 (Sec. 2.12),

2012 (Sec. 2.2)].

また、Fig. 3 (Fig.5 of [McKubre 1993]) に示した現象の時間的変化のデータは、常温核融合現象が示すカオス的ふるまいの一例として取り扱うことができることを明らかにしました[Kozima 2012, Sec. 2.3].

5. 結語

McKubre et al. [McKubre 1993, 1994a, 1994b] の精密で包括的な実験データは、過剰熱率 P の平均値の電界電流 i と平均組成比 x への依存性の法則性と P の過剰エネルギー発生メカニズムの複雑性とを明らかにしました。この複雑性は、測定値のバラツキが現象の本質に根差したものであって、測定系の不完全さなどによるものでないことを明らかにし、常温核融合現象における実験結果の「再現性問題」を考え直すべきことを示しています。

付言すれば、McKubre et al.の軽水系 PdH_x での実験結果(P13 of [McKubre 1994a])は、これまでの News で述べてきたエピソード(Pons の場合 (cf. *CFRL News* No. 89, Sec. 1) と Jones et al. の場合(cf. *CFRL News* No. 90, Sec. 1.2)) と矛盾するものでないことを指摘しておきます。McKubre et al. は実験を 30 °C で行っています。既に何回か指摘していますが、Pd における H と D の拡散速度は温度によって逆転し、低温では D が、高温では H が大きくなります(cf. e.g. [Kozima 2014, Appendix A3]). したがって、我々のモデルによると、低温では PdH_x 系の常温核融合現象は起こりにくく、30 °C に温度を制御した実験では過剰熱発生を測定できないのが正常だと思われるのです。

McKubre et al.の優れた実験データを他の核変換および中性子放射のデータと併用することによって、我々は常温核融合現象の統一的な描像を描くことが可能となったと思われます。それは、CF materials における中性子の振る舞いの重要性と、TNCF モデルにおける cf-matter の形成に複雑性が大きな役割を果たすだろうということを示しています。

References

[DOE 2004] “*Report of the Review of Low Energy Nuclear Reactions.*” December 1, 2004.

http://www.science.doe.gov/Sub/Newsroom/News_Releases/DOE-SC/2004/low_energy/CF_Final_120104.pdf. This report is posted at the *New Energy Times* website:

<http://newenergytimes.com/v2/government/DOE2004/7Papers.shtml>

[Fleischmann 1989] M, Fleischmann, S. Pons and M. Hawkins, "Electrochemically induced Nuclear Fusion of Deuterium," *J. Electroanal.*

Chem., 261, 301 – 308 (1989), ISSN: 1572-6657.

[Kozima 1996] H. Kozima, "Excess Energy Data in a Pd/D System Examined," *Cold Fusion* 17, 12 – 14 (1996), ISSN: 1074-5610. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)* 15-3, 1 – 6 (February, 2015):

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 1998] H. Kozima, *Discovery of the Cold Fusion Phenomenon* (Ohtake Shuppan Inc., 1998), ISBN: 4-87186-044-2. (cf. Section 6.1b McKubre et al. and Section 11.3b Data obtained by M. McKubre et al.). For convenience of the readers, the Sections relevant to this analysis are posted at following pages of the CFRL Website:

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Books/bookse/bookse01.html>

The "References" in this book [Kozima 1998] is posted at the Cold Fusion Research Laboratory (CFRL) Website;

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Books/bookse/bookse.html>

[Kozima 2005] H. Kozima, "The Cold Fusion Phenomenon as a Complexity (1) – Complexity in the Cold Fusion Phenomenon," *Proc. JCF6*, pp. 72 – 77 (2005), ISSN: 2187-2260. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 7-1, pp. 1 – 7 (December, 2007):

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 2006] H. Kozima, *The Science of the Cold Fusion Phenomenon*, Elsevier Science, 2006. ISBN-10: 0-08-045110-1. (cf. Section 2.12 *The inverse power law for occurrence of events in the CFP*)

[Kozima 2007] H. Kozima, W.-S. Zhang, and J. Dash, "Precision Measurement of Excess Energy in Electrolytic System Pd/D/H₂SO₄ and Inverse-Power Distribution of Energy Pulses vs. Excess Energy," *Proc. ICCF13*, pp. 348 – 358 (2008). And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 11-5, pp. 1 – 14 (January, 2011):

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 2008] H. Kozima, "Complexity in the Cold Fusion Phenomenon," *Proc. ICCF14*, pp. 613 – 617 (2010), ISBN: 978-0-578-06694-3. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 8-1, pp. 1 – 22 (August, 2008):

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 2011] H. Kozima, "Localization of Nuclear Reactions in the Cold Fusion Phenomenon," *Proc. JCF11* pp. 59 – 69 (2011), ISSN: 2187-2260. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 11-2, pp. 1 – 20

(January, 2011):

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 2012] H. Kozima, "Three Laws in the Cold Fusion Phenomenon and Their Physical Meaning," *Proc. JCF12*, pp. 101 – 114 (2012), ISSN: 2187-2260. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 11-6, 1 – 14 (April, 2011).

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[Kozima 2014] H. Kozima, "The Cold Fusion Phenomenon – What is It?" *Proc. JCF14: 14-16*, pp. 203 – 230 (2014), ISSN 2187-2260. And also *Reports of CFRL (Cold Fusion Research Laboratory)*, 14-4, 1 – 29 (March, 2014).

<http://www.geocities.jp/hjrfq930/Papers/paperr/paperr.html>

[McKubre 1993] M.C.H. McKubre, S. Crouch-Baker, A.M. Riley, S.I. Smedley and F.L. Tanzella, "Excess Power Observed in Electrochemical Studies of the D/Pd System," *Proc. ICCF3* (Oct. 21 – 25, 1992, Nagoya, Japan), pp. 5 - 19, Universal Academy Press, Inc., Tokyo, 1993, ISBN: 4-946443-12-6.

[McKubre 1994a] M.C.H. McKubre, S. Crouch-Baker, R.C. Rocha-Filho, S.I. Smedley, F.L. Tanzella, T.O. Passell and J. Santucci, "Isothermal Flow Calorimetric Investigations of the D/Pd and H/Pd Systems," *J. Electroanal. Chem.*, 368, 55 – 66 (1994), ISSN: 1572-6657

[McKubre 1994b] M. C. H. McKubre, S. Crouch-Baker, F. L. Tanzella, S. I. Smedley, M. Williams, S. Wing, M. Maly-Schreiber, R. C. Rocha-Filho, P. C. Searson, J. G. Pronko and D. A. Kohler, *Development of Advanced Concepts for Nuclear Processes in Deuterated Metals, TR-104195*, 1994, Electric Power Research Institute. This book is available here: http://my.epri.com/portal/server.pt?Abstract_id=TR-104195