中性子減速法による有機溶媒中の非破壊水素定量

石井 大道， 広瀬 陽治， 森 英雄， 加藤 光一*

水素核の中性子に対する大きな減速作用を利用して，有機溶媒中の水素の迅速非破壊定量法を検討した。アメリカウム-ベリリウム中性子源からの速中性子を試料に照射し，生成する熱中性子をフッ化ホウ素計数管で計数すると，その計数率の対数と水素含量の間には，各種有機溶媒の水素含量範囲 60～120 mg/ml では，試料量を 50 ml にしたとき，よい直線関係が成立することがわかった。相対誤差は 1.3% 以下であった。測定配置としては浸せき法が有利であり，また熱中性子反射材としての黒鉛ブロックの使用は，計数効率の増加に有効であることを確かめた。また炭素，酸素などの共存元素による影響は，特に認められなかった。

1 緒 言

有機物の主要構成元素である水素を定量する方法としては，燃焼重量法が一般に使用されている。これは試料を燃焼する破壊法であり，また技術的な熟練と分析の所要時間もかなり必要とする。最近，石油工業などにおける工程管理で，迅速かつ非破壊の水素定量法の開発が要求されてきた。この目的のために， β 線， γ 線，X線および中性子線などの放射線を利用した非破壊法による水素定量法が研究されはじめた。現在までに研究されたこれらに関する定量法のおもなものには，次のようなものがある。

(1) β 線を利用する方法

a) 吸収法：1954年に Smith と Otvos¹⁾ は，はじめてこの方法により炭化水素中の水素の定量を行なった。ついで Jacobs ら²⁾ は，ストロンチウム-90 を用い，窒素，酸素などの共存しているときの水素定量法への影響を述べた。また Umstätter³⁾ も炭化水素の元素分析をストロンチウム-90 を用いてこの方法で行ない，Wiesner⁴⁾ は，メタンフロー型計数管を用いて各種元素の影響を調べた。しかしこれら吸収法においては，特に密度の影響が大きく，厳密な温度制御が必要であった。

b) 後方散乱法：1957年に Müller⁵⁾ は， β 線の後方散乱の原理を述べ，水素における異常性を調べるため，水素を含む化合物についての研究を行なった。1959年に Gray ら⁶⁾ は，この原理を応用し，試料量 26 ml で，あまり温度変化の影響を受けずに炭化水素の分析を行なうことができた。

c) 併用法：1965年になり，Gardner と Dunn

III⁷⁾ は，吸収法と後方散乱法を併用して，炭素，水素，酸素の同時定量を行なった。試料量は 50 ml 程度で，精度は Gray らの方法⁶⁾ よりやや劣った。

(2) X線， γ 線を利用する方法

X線， γ 線のコンプトン散乱を使った定量法も検討され，1961年に Dwiggin⁸⁾ が，X線の干渉性散乱と非干渉性散乱との強度比を使って，石油炭化水素の水素，炭素の定量を行なった。しかしこの方法は，窒素やイオウの影響を受けやすいこともわかった。

(3) 中性子を利用する方法

中性子法は， β 線法から少し遅れて中性子水分計を応用することから始まった。1956年に Taylor と Havens は，透過法による有機化合物の水素定量の可能性を述べた。また Martinelli と Ricci が水分計で水素-炭素比を求めようとしたが，計数値が小さくてうまくゆかなかった。しかしその後，以下に述べるような研究が報告されている。

a) 中性子減速法：これは速中性子を試料中の水素により熱中性子化し，その熱中性子数を測定する方法である。1962年に Tornau と Wachter⁹⁾ は，ラジウム-ベリリウム中性子源を用いて炭化水素の水素-炭素比を求めた。かれらは，40 l 程度の試料を用い，水素定量における炭素の影響を述べた。1964年に Schuricht¹⁰⁾ は，試料量 1 l を用いて酸素・炭素・水素の系について検討し，100 mg/cm³ の炭素濃度変化が 1 mg/cm³ 程度の水素含量の変化に相当し，また酸素も，炭素のそれと比べて無視できぬことなどを述べた。

b) 中性子散乱法：1963年に Finston と Yellin¹¹⁾ は，原子炉からの中性子 (0.0326, 0.070, 0.273 eV) およびプルトニウム-ベリリウム (プルトニウム 85 g)

* 名古屋大学工学部：名古屋市千種区不老町

中性子源からの速中性子を重水減速して生成した熱中性子を有機溶媒にあて、透過した熱中性子数から水素定量を行なった。このときの試料量は 2 ml または 5 ml であったが、プルトニウム-ベリリウムを用いたものは、他に比べて感度がわるかった。

c) 熱中性子捕獲即発ガンマ線を使う方法: これは前二法と異なり、熱中性子を試料にあて、水素との核反応 ${}^1\text{H}(n, \gamma){}^2\text{H}$ の際に生ずる即発ガンマ線 (2.22 MeV) を計数することにより水素定量する方法で、われわれ¹²⁾はアメリカシウム-ベリリウム中性子源 (${}^{241}\text{Am}: 1\text{c}$) を使ってこの原理に基づく方法を発表した¹⁾が、試料量は 12 l 程度を要した。

現在までに以上に述べたような放射線を利用した定量法が報告されているが、われわれは、 β 線法に比べて研究の進んでいない中性子減速法の検討を試みた。しかも実用分析的な意味を持った分析法として、原子炉を使わず、使いやすく、比較的安価で入手容易な中性子源として、アメリカシウム-ベリリウム中性子源を用いて研究した。アメリカシウム-ベリリウム中性子源は γ 線をあまり放出せず、しかもフッ化ホウ素計数管は熱中性子のみに感じ、ほとんど γ 線には不感であり、 γ 線による妨害はなくて好つごうであった。さらに従来、このような方法では、じゅうぶんな感度を得るのに、上記のように試料量が数 l ないし数十 l 必要であったので、これをさらに少量にするということをも目的にして研究を行なった。

2 原 理

この水素定量法は、中性子に対する水素核の大きな減速能に基づいている。速中性子の減速は、ほとんど、それが衝突する相手の原子核との弾性散乱によってのみ行なわれるといえる。弾性散乱においては、両者の質量が近ければ近いほど、中性子から相手核に移されるエネルギーは大となり、それだけ中性子の減速は大となる。したがって水素核の減速能は、炭素や酸素に比して高いので、高速中性子が水素を含む溶媒を通るときには、主として水素核によって減速され、その溶媒の水素含量に関係した熱中性子を生成することになる。そこで、この生成した熱中性子の数を測定することにより、試料溶媒中の水素含量が定量される。

3 試薬および装置

3.1 試 薬

市販特級品のベンゼン、トルエン、キシレン、*n*-ヘプタン、酢酸エチル、酢酸 *n*-ブチル、アセトン、メチルエチルケトン、メチル *iso*-ブチルケトン、メタノール、

エタノール、*iso*-プロパノール、*n*-ブタノール、二硫化炭素、四塩化炭素。

3.2 装 置

(1) 中性子源: NUMEC 製アメリカシウム-ベリリウム中性子源, ${}^{241}\text{Am}: 1\text{c}$, $2\text{cm}\phi \times 3\text{cm}$ ステンレスカプセル封入, 中性子発生量: $1.74 \times 10^6 \text{ n/sec}$.

(2) 検出器: 神戸工業製 PR-5035 BF_3 計数管, ${}^{10}\text{B}$ 濃縮 (96%), フッ化ホウ素ガス圧 35 mmHg, $2.5\text{cm}\phi \times 25\text{cm}$, 有効計数管長 12 cm.

(3) 計数装置: 神戸工業製 PA-20 前置増幅器, 神戸工業製 SA-250 計数器.

(4) 黒鉛反射材: 昭和電工製原子炉用黒鉛ブロック ($20 \times 10 \times 5\text{cm}$) 12 個.

4 実 験

4.1 幾何学的配置条件の検討

前述の装置を用いて、できるだけ少量の試料で水素定量を行なうのにつごうのよい測定系をつくることを目的として、まず種々の幾何学的条件を検討した。なお、その場合の線源、試料、計数管の配置は次のように大別される⁹⁾。

(I) 浸せき法: この配置では、線源も計数管も試料によって囲まれる。

(II) 透過法: この配置では、試料は線源と計数管の間にあり、試料によって減速され、そして透過してきた熱中性子のみが計数される。

(III) 反射法: この配置では、試料と計数管の両者が試料と接触しており、試料により減速、反射されてきた熱中性子が計数される。

(IV) 透過・反射法: 以上を兼ねたような形態をとる。

これらの各方法を比較するために、試料として有機溶媒の代わりに、取り扱いの容易な水を用いて、Fig. 1 に示すような配置で測定を行なった。すなわち、上記四つの配置についてそれぞれ $10\text{cm}\phi$ および $8.5\text{cm}\phi$ の二種の円筒容器を用い、各容器の試料量 ($V\text{ml}$) を変化させたときの計数率 ($R_t\text{cpm}$) およびバックグラウンド ($R_b\text{cpm}$) を測定し、次式によって試料 1 ml あたりの計数率 ($R_n\text{cpm/ml}$) を算出し、 V と R_n の関係を Fig. 2 にプロットした。

$$R_n = \frac{R_t - R_b}{V}$$

なお試料量を変化させるにあたっては、計数管の有感部分の中心、線源の中心および試料高さの中心が常に同一水面上にくるようにした。(IV)の配置で、線源は計数管のあるところの端から 4.5 cm の位置に置いた。この

Fig. 1 Experimental arrangements in the hydrogen content determination by neutron method

(I) Immersion, (II) Transmission,
(III) Reflection, (IV) Trans.+Refl.
a: Neutron source, b: Counter, c: Sample

配置でのさらに詳しい検討の結果から、4.5cm のときに計数率の極大が得られることがわかったからである。Fig. 2 より、(II), (III), (IV) の配置では、試料量を増加させたとき、上記の R_H 値はあまり増加しないのに対して、(I) の配置では、大きく増加させることができ、しかも試料量の少ない領域においても、前者に比して大きな値をとることが推定される。このことより、「少量の試料」を目的とするこの実験では、(I) の浸せき法の配置をとることにし、さらに詳しい検討を行なった。

4.2 浸せき法の検討

4.2.1 線源と計数管の相互位置の影響 まず水そう(23cm×36cm×高さ 15cm) に水を満たし、その中央に、鉄板製保護管に入れた計数管を固定し、線源のみをその周囲に移動させて計数率の変化を調べたところ、線源が計数管の有感部分の中央に接触したときに最大値が得られることがわかった。

4.2.2 線源・計数管に対する試料位置の影響 次に、線源を計数管の有感部分の中心に接触させておき、試料

Fig. 2 Comparison between the four arrangements

(I) Immersion, (II) Transmission,
(III) Reflection, (IV) Trans.+Refl.
Sample container: ----- 3.5 cm ϕ , — 10 cm ϕ

Fig. 3 Effects of sample volumes and positions

a: Neutron source, b: BF₃-counter, c: H₂O

位置の変化による計数率の変化を調べた。すなわち、10cm ϕ の二つの円筒を用いて、Fig. 3 の (I), (II) の

ような配置の測定系をつくり, 試料が計数管全体をおおう場合と, 計数管の中央のみをおおう場合とを比較するために, 線源・計数管・試料容器の位置を固定したままで, 試料量のみを変化させたところ, (I) および (II) のグラフが得られた. グラフの立ちあがりには (II) のほうがよく, (I) における 500 ml 以下の試料は中性子減速にあまり有効ではないことがわかった. また (I), (II) のどちらの配置でも, グラフの傾斜が急となりはじめるときの試料量は, ちょうど線源の上端までを試料でおおう高さに相当することもわかった. 以上のことから, 浸せき法で少ない試料を有効に使うには, (II) の形で, 試料は少なくとも線源全体をおおうだけ必要であることがわかった.

4.2.3 試料量が水素定量検量線に及ぼす影響

Fig. 3 の (II) の配置をとるときに, 試料の形と量の変化により, その水素の検量線がどのように影響を受けるかを調べるために, 8.5 cm ϕ , 7.0 cm ϕ , 6.2 cm ϕ , 5.2 cm ϕ の 4 種類の円筒容器を用い, それぞれ Fig. 4 のような配置とし, ベンゼン, トルエン, キシレン, 酢酸 *n*-ブチル, エタノールを試料として用い, 種々の試料量で水素検量線を作成した (1 本の検量線には上記試料の各一定量が用いられた). 計数管の位置は, 8.5 cm ϕ および 7.0 cm ϕ の容器では, Fig. 4 の (I) のように, 試料容器の中央であったが, 6.2 cm ϕ および 5.2 cm ϕ の容器では, 線源の大きさのために, Fig. 4 の (II) のように中央からずれた. 横軸に水素含有量を mg/ml 単位で, 縦軸に計数率の対数をとると, Fig. 4 のように, 常に直線性が成立することがわかった. 実際の水素定量に有効なのは, この直線の傾きであり, その傾斜が大であるほど好つごうである. Fig. 4 においては容器の直径や試料量を (8) $\rightarrow$ (1) のように減少させても, 検量線の傾斜の減少はあまり認められないことから, さらに試料量を減少させても, 検量線の傾斜の変化がそれほど顕著でないと推定された.

4.2.4 試料容器の作製

前述のことから, 試料がちょうど線源全体をおおうような小さな試料容器 (Fig. 5-e) を作製した. この容器に入れうる試料量は 50 ml であった. この容器の作製にあたっては, 試料の取り替えを容易にすること, ならびに幾何学的配置の再現性をよくすることに注意を払った. すなわち, Fig. 5 の左の分解図に示したように, 下端を固定した計数管 (b) の有感部分の中央に線源が固定できるようにした. 測定にあたっては, 試料 (c) を入れた鉄製容器 (e) を上端から滑降させることにより, 常に一定位置に装んでけるようにした.

Fig. 4 Effects of sample containers and sample volumes on calibration curves

a: Neutron source, b: BF₃-counter, c: H₂O

Exp. no.	Exp. arrangement	Sample volume (ml)	r (cm)	h (cm)
1	II	100	5.2	6.7
2	II	100	6.2	4.3
3	I	100	7.0	3.3
4	I	200	7.0	6.2
5	I	200	8.5	4.0
6	I	370	7.0	11.3
7	I	400	8.5	7.9
8	I	645	8.5	12.6

4.2.5 検量線への黒鉛反射材の影響

Fig. 5 の試料容器を用い, 別に反射材を置かずに検量線を求めたところ, Fig. 7 の (I) に示すような直線が得られた. しかし, 同じ配置であってもさらに熱中性子を効率よく計数することができれば, よりよい結果が得られることが考えられる. そこでわれわれは, 原子炉用黒鉛を熱中性子の反射材として用いて検討した. すなわち, アメリカンウームベリウム中性子源からの速中性子を水で減速して, フッ化ホウ素計数管で計数するとき, 計数管の後方に置かれた黒鉛の厚さが計数率に及ぼす影響を調べたところ, 黒鉛厚さが 10 cm 以上では, 計数率はほぼ一定の飽和値となることがわかった (Fig. 6). このことより, Fig. 5 の右図のように測定容器の周囲を厚さ 10 cm の黒鉛でおおって検量線を作成したところ, Fig. 7 の (II)

Fig. 5 Arrangement for hydrogen determination

a : Am-Be neutron source,
b : BF_3 -counter, c : Sample,
d : Source holder, e : Sample container,
f : Graphite reflector

Fig. 6 Effect of graphite reflector

a : Neutron source, b : BF_3 -counter,
c : H_2O , d : Graphite reflector

Fig. 7 Effect of reflector on calibration curve

(I) No reflector, (II) Graphite reflector
1 : *n*-Heptane, 2 : Ethanol, 3 : *n*-Butanol,
4 : Xylene, 5 : Toluene, 6 : Benzene

の直線が得られた。これを黒鉛のない場合の直線 (I) と比較すれば、(II) では、黒鉛による速中性子の減速も起こるために、全体のバックグラウンドが大きくなるが、検量線の傾斜が大となる。このことより、試料容器の周囲に 10cm 厚みの黒鉛反射材を用いることは有効であることがわかった。

4.3 水素検量線

以上の検討の結果より、Fig. 5 の右図のような配置を用いて水素検量線を作成した。ここでは、酸素、炭素などの共存元素の影響や、化学結合の種類の影響をも調べるために、アルカン、エステル、ケトン、アルコール、水などの 14 種類を用いた。試料の各 50 ml をメスフラスコで正確にとり、その密度も測定したのち、試料容器に移した。1 試料については、10分間の計数を行ない、その計数値の対数を、水素含量 (mg/ml) に対してプロットして Fig. 8 を得た。ここで用いた 14 種の試料をも含めて、通常の有機溶媒では、その水素含量は、60~120 mg/ml の範囲に含まれるが、この範囲では、Fig. 8 のように、共存する炭素や酸素の量や化学結合の種類にも関係なくよい直線性が成立することがわかった。これらの測定値から水素検量線を最小二乗法で定め、各試料

Table I Analytical data of organic solvents

Sample	Density 20°C (g/ml)	C-content $C_{calc.}$ (mg/ml)	O-content $O_{calc.}$ (mg/ml)	H-content		
				$H_{calc.}$ (mg/ml)	$H_{obs.}$ (mg/ml)	Relative error (%)
Benzene	0.878	809.8	0	68.0	68.3	0.4
Toluene	0.867	789.8	0	75.7	76.3	0.8
Xylene	0.863	781.0	0	82.0	83.0	1.2
Ethyl acetate	0.869	490.2	328.6	32.3	32.1	-0.2
Acetone	0.795	493.4	219.1	82.8	82.7	-0.1
Methyl ethyl ketone	0.804	535.4	178.3	89.8	89.9	0.1
Butyl acetate	0.900	558.3	247.9	93.7	92.5	1.3
Methyl <i>iso</i> -butyl ketone	0.800	575.0	127.8	96.8	96.8	0.0
Methanol	0.789	245.6	393.7	99.2	98.4	-0.8
Ethanol	0.792	413.0	275.3	104.0	103.3	-0.7
<i>iso</i> -Propanol	0.783	469.0	208.5	105.1	105.4	0.3
<i>n</i> -Heptane	0.683	572.9	0	109.9	110.7	0.7
<i>n</i> -Butanol	0.809	524.4	174.7	110.0	110.6	0.5
H ₂ O	0.996	0	884.8	111.5	111.5	0.0

$C_{calc.}$, $O_{calc.}$, $H_{calc.}$: Calculated values from the components of the samples.

$H_{obs.}$: Obtained values from the calibration curve.

Fig. 8 Calibration curve for hydrogen determination

Sample volume: 50 ml; Graphite reflector was used.

○ Alkanes—1: Benzene, 2: Toluene, 3: Xylene, 4: *n*-Heptane

△ Esters—5: Ethyl acetate, 6: *n*-Butyl acetate

□ Ketones—7: Acetone, 8: M. E. K., 9: M. I. B. K.

× Alcohols—10: Methanol, 11: Ethanol,

12: *iso*-Propanol, 13: *n*-Butanol

▲ 14: H₂O

の 10 分間の計数値に相当する水素含量をこの検量線から求めて $H_{obs.}$ とし, 各試料の組成より計算した水素含量 ($H_{calc.}$) からの相対誤差を求めて 試料組成とともに Table I に示した。

Table I から, この水素定量法における相対誤差は, 水素にして 1.3% 以下であることがわかった。

4.4 低水素濃度領域における検量線

次に 60 mg/ml 以下の水素濃度領域での 検量線を調べるために, 水素を含まない溶媒で有機物および有機溶媒を希釈した試料を用いることにした。この目的にかなう希釈剤としては, 二硫化炭素や四塩化炭素が考えられるが, 塩素の熱中性子吸収断面積 (31.6 barn) が炭素の 0.0045 barn, 水素の 0.328 barn に比べて大きいので, 生成した熱中性子を一部吸収して, 誤差の原因になる。他方, イオウのそれは 0.49 barn であり, 水素のそれと大差がないので, 二硫化炭素を希釈剤として用い, Table II の組成の試料をつくった。なおこの混合溶媒系では, 混合時における体積変化は認められなかった。

Table II Compositions of low hydrogen content samples

Sample No.	CS ₂ (ml)	Organic compounds	H-content (mg/ml)
1		0 g	0
2	50	Naphthalene 9.185 g	12.3
3		14.85 g	18.7
4	30	Benzene 20 ml	27.2
5	20	30 ml	40.8
6	10	40 ml	54.5
7		Toluene 40 ml	60.5
8	10	Xylene 40 ml	65.6
9		<i>n</i> -Heptane 40 ml	88.0

これを用いて, 前と同様にして作成した検量線を Fig. 9 に示す。これにより, 低濃度領域では検量線は直線か

Fig. 9 Calibration curve in low hydrogen content

a : Benzene, b : Toluene, c : Xylene,
d : *n*-Butyl acetate, e : Ethanol, f : *n*-Heptane

らしいにはずれ、わん曲することがわかった。

5 考 察

本法は、取り扱いの容易なアメリカウム-ベリリウム中性子源を用いて、50 ml の比較的少量の試料で、非破壊水素の定量を可能にした。ここで試料量を 50 ml にしたのは、使用した線源および計数管が比較的大きな容積を占めたためであった。したがって、細い線源や計数管を使えば、試料量をさらに減少させることが可能である

う。また中性子束の大きい線源や熱中性子計数効率の高い計数管の使用も、試料量減少に役だつと考えられる。

次に、この方法では、共存する炭素の量および酸素の量の影響は特に認められなかったが、これは次のような理由によるものと考えられる。すなわち、1 MeV の速中性子が、水素、炭素および酸素核との弾性散乱により減速される場合を考えると、熱中性子化に必要な衝突回数はそれぞれ、17.5 回、112 回、146 回と計算される¹⁰から、減速能の比は、1 原子あたり、1 : 17.5/112 : 17.5/146 となる。他方、各核種が同質量存在するときの原子数の比は、1 : 1/12 : 1/16 となる。したがって、同重量の水素、炭素および酸素の 1 MeV 速中性子に対する減速能の比は、

$$1 : \left(\frac{17.5}{112} \times \frac{1}{12} \right) : \left(\frac{17.5}{146} \times \frac{1}{16} \right) = 1 : 0.013 : 0.0075$$

と計算される。したがって、同一減速能を得るために必要なそれぞれの重量比は、1 : 77 : 133 となる。用いられた試料中の炭素および酸素の重量を上記のことから、同一減速能に相当する水素重量に換算して、 H_C および H_O として表現し、Table III を得た。

次に、Table III をもとにして、 H_h に対して H_{C+O} 、 H_h 、 H_{C+O+h} をプロットして、Fig. 10 の ①、②、③ のグラフを得た。①のグラフからわかるように、一般に炭化水素類および含酸素化合物類の有機溶媒では、 H_h の値の変化に対して、 H_{C+O} の値はほぼ直線的に変化し、特にとび離れた値をとることはありえない。②のグラフは、縦軸も横軸も H_h であるから、傾斜が 45° の直線となる。そして③のグラフは①と②の直線の和となっており、やはり直線を与える。したがって、 H_h は H_{C+O+h}

Table III Effect of carbon and oxygen

Sample	H_h (mg/ml)	H_C (mg/ml)	H_O (mg/ml)	H_{C+O} (mg/ml)	H_{C+O+h} (mg/ml)
Benzene	68.0	10.5	0	10.5	78.5
Toluene	75.7	10.3	0	10.3	86.0
Xylene	82.0	10.2	0	10.2	92.2
Ethyl acetate	82.3	6.4	2.5	8.9	91.2
Acetone	82.8	6.4	1.6	8.0	90.8
Methyl ethyl ketone	89.8	7.0	1.3	8.3	98.1
Butyl acetate	93.7	7.3	1.9	9.1	102.7
Methyl <i>iso</i> -butyl ketone	96.8	7.5	1.0	8.5	105.3
Methanol	99.2	3.2	3.0	6.2	105.4
Ethanol	104.0	5.4	2.1	7.5	111.5
<i>iso</i> -Propanol	105.1	6.1	1.6	7.7	112.8
<i>n</i> -Heptane	109.9	7.5	0	7.5	117.4
<i>n</i> -Butanol	110.0	6.8	1.3	8.1	118.1
H_2O	111.5	0	6.6	6.6	118.1

Carbon and oxygen contents were converted to the values of hydrogen that have the same slow-down effect on the fast neutrons and showed as H_C and H_O .

Fig. 10 Effect of carbon and oxygen

の値に1対1に対応することになる。以上のことより、われわれが用いた比較的小容積の測定系においては、4・3のように、検量線の横軸に H_{C+O+H} の代わりに H_h の値を用いたとしても、ほとんど炭素や酸素の影響を考えなくてもよいことがわかる。しかし、試料中に塩素などの熱中性子吸収断面積が大のものが存在するときには、その影響を考慮する必要がある。

(昭和41年4月2日，日本化
学会第19年会において発表)

文 献

- 1) V. N. Smith, J. W. Otvos : *Anal. Chem.*, **26**, 359 (1954).
- 2) R. B. Jacobs, L. G. Lewis, F. J. Piehl : *ibid.*, **28**, 324 (1956).

- 3) H. Umstätter : *Brennstoff-Chemie*, **37**, 109 (1956).
- 4) L. Wiesner : *ibid.*, **40**, 273 (1959).
- 5) D. G. Müller : *Anal. Chem.*, **29**, 975 (1957).
- 6) P. R. Gray, D. H. Clarey, W. H. Beamer : *ibid.*, **31**, 2065 (1959).
- 7) R. P. Gardner, J. W. Dunn III : *ibid.*, **37**, 528 (1965).
- 8) C. W. Duggins : *ibid.*, **33**, 67 (1961).
- 9) R. Tornau, K. H. Waechter : *Chemie-Ing.-Techn.*, **34**, 35 (1962).
- 10) W. Schuricht : *Kernenergie*, **7**, 42 (1964).
- 11) H. L. Finston, E. Yellin : *Anal. Chem.*, **35**, 336 (1963).
- 12) 石井大道，広瀬陽治，森 英雄：本誌，**15**，601 (1966).
- 13) 野中 到編：“核実験装置”，I (核物理学講座，7)，p. 44 (1964)，(共立出版)。

☆

Non-destructive determination of hydrogen in organic solvents by neutron slow-down process.
Daido ISHII, Yoji HIROSE, Hideo MORI and Koichi KATO (Faculty of Engineering, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya)

A rapid non-destructive method based on the slowing-down process of neutrons by hydrogen nucleus was investigated for determination of hydrogen content in organic solvent. Fast neutrons from an Am-Be neutron source were moderated by the sample to thermal neutrons, which were then measured by a BF_3 -counter. The logarithm of the counting rate was found to be directly proportional to the content of hydrogen in the range 60~120 mg/ml using 50 ml sample. The immersion-arrangement was suitable for this determination and some graphite-blocks were used effectively as the thermal neutron reflector. The influence of co-existing carbon and oxygen content upon the calibration curve was not perceptible. The application of the method into the range of lower hydrogen content, such as 0~100 mg/ml, was also examined.

(Received June 3, 1966)

銀 ろ う 中 の リ チ ウ ム の 定 量

須藤 恵美子，小原 祥子*

銀ろうにリチウムを入れることによりすぐれた性能を持つ銀ろうができることが知られている。このリチウム入り銀ろう中のリチウムの吸光光度法の定量について研究した。主成分ならびに妨害元素の大部分を磁気水銀陰極電解によって除き，トリンにより錯塩をつくらせ 456 m μ で吸光度を測定してリチウムを定量する。

* 金属材料技術研究所：東京都目黒区中目黒2丁目