て放射能強度を測定すれば、試料塗着量の 0.05 ml のとき得られる値と等しくなるものと思われる。放射能強度の測定に 256 チャンネルγ線波高分析器を使用するときは、第 3 図のγ線スペクトルからわかるように、この核分裂生成物中のγ線スペクトルで、重複して困るのは ^{95}Zr と ^{137}Cs であり、他の ^{144}Ce , ^{103}Ru のスペクトルとはかなり離れている。本法によればこの 2 つ (^{95}Zr , ^{137}Cs) の分離線は全分離線の両端に位しているため、分離時間は 2～3 分程度でも、定量には支障ないと考えられる。 ^{137}Cs 分離線は ^{137}Cs 単独試料および燃料溶液試料ともに陰極側よりに、隣りの ^{103}Ru の分離線と約 5 cm もはなれて位置し、その位置の再現性はきわめてよい。さらに分離も完全であるため、本法は核分裂生成物中の Cs の迅速定量法として高精度の分離定量が可能である。

本実験は日本原子力研究所 JRR-1 炉の燃料試験の一環として行なわれた。燃料試験の研究計画の立案、その遂行に当っての責任者であった柿原幸二 JRR-1 管理室長および本島健次分析研究室長には、本実験を

行なうに当って多大のご指導ご便宜をいただいた。ここに感謝する。

また、本実験を行なうに際し実験全般にわたり終始ご指導ご鞭撻をいただいた中井敏夫化学部長、焦点クロマトグラフィーについて種々有益なご指導をいただいた大阪大学工学部品川睦明教授に感謝する。

(1961 年 3 月 31 日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) J. C. LANGFORD: *US. AEC Rept.*, HW-49668, 30(1957); P. E. CARTER: *AERE Rept.* No. C/R, 1231, 51-5 Discussion 56-8 (1953).
- (2) 中井敏夫, 矢島聖使, 木村 幹: 第 2 回 原子力シンポジウム報文集, B-26 (1958).
- (3) J. FOUARGE, G. DUYKCAERTS: *Anal. chim. Acta*, **14**, 527 (1956).
- (4) M. SHINAGAWA, Y. KISO, A. OYOSHI: *Bull. Chem. Soc. Japan*, **34**, 137 (1961).
- (5) 品川睦明, 木曾義之: 日 化, **82**, 1019 (1961); 分析化学, **10**, 912 (1961).

研究論文

211. 原子核乾板による JRR-1 炉心よりの漏洩速中性子スペクトルの測定

野 本 昭 二*, 中 村 知 夫*

Measurement of the Leakage Spectrum of Fast Neutrons from JRR-1 Core by the Nuclear Emulsions

By Shoji NOMOTO and Tomoo NAKAMURA

The leakage spectrum of fast neutrons above 0.5 MeV from the JRR-1 core has been measured with nuclear plates.

The plates were exposed to the fast neutron beam extracted through a lead collimator in the No. 1-N experimental hole. The No. 1-N hole is "through tube" and its geometrical condition is rather complicated, so the collimator was made so that only the neutrons suffering single scatterings from its inner surface region could reach the plates.

The effect of neutrons scattered inelastically on the collimator was numerically

* 日本原子力研究所 原子炉物理部 (Div. of Reactor Phys., Japan Atomic Energy Res. Inst.)

estimated and found to be negligible.

Neutron energies were deduced by measuring the lengths of protons which were recoiled in a small angle with respect to the incident beam direction. The method of plate analysis is described in detail, as there had been few papers on the measurement of the reactor spectra with nuclear plates in our country. Plate types used in this experiment were Ilford C2, Fuji ET-6B and Sakura NR-M1.

緒 言

原子核乾板が種々の核物理実験や宇宙線のような高エネルギー現象の解析にその有用性を発揮していることはよく知られている。乾板は現像処理や顕微鏡による解析に長時間の労力を要するが、(1)個々の反応を記録できること、(2)エネルギー的に連続な感度を有すること、(3) β 線や γ 線のバック・グラウンドとの選別が容易なこと、(4)小型のため持ち込んだ体系に与える擾乱が小さいこと等多数の特長を有している。

このため最近諸外国では乾板が中性子検出器として原子炉および臨界集合体内の中性子エネルギー・スペクトルや中性子束分布等の測定⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾に広く用いられ、種類の炉物理的解析がなされている。ことに高速中性子炉では炉内の中性子エネルギー・スペクトルは約数 keV より約 10 MeV 程度まで広がっているが、乾板はちょうどその領域の大部分のエネルギーを直接的に測定できるのでとりわけ有用である。

この論文では JRR-1 炉心から洩れてくる速中性子のエネルギー・スペクトルを原子核乾板内での反跳陽子の飛跡長分布の解析より求めた結果について報告する。

外国においては Nereson⁽⁶⁾ や Rosen⁽⁷⁾ らが高速炉について類似の実験を報告しているが、Water Boiler 型原子炉の速中性子エネルギー・スペクトルに関する実験結果は報告がない。

わが国では実験結果と共に原子核乾板を原子炉実験に用いた報告はない。ここでは乾板の解析技術についてもある程度詳しく述べ、また国産乾板での反跳陽子飛程・エネルギー関係を Ilford のそれと比較した。

I. 乾板の照射

1. 実験配置

実験には JRR-1 の No.1-N 実験孔を用いた。全体の配置図を Fig. 1 に示す。図からわかるようにこの実験孔は炉心を貫通しており、そのため中性子源である炉心の貫通孔内壁から出て乾板に到達する中性子の多くは、そのままでは鋼鉄製実験孔内壁面で何回か非

Fig. 1 Experimental arrangement plan view at JRR-1

弾性散乱を受けてエネルギーが大きく変わってくる。これを避けるために Fig. 1 に示すような鉛とパラフィンよりなるコリメータ系が実験孔内に配置された。このため炉心から鉛のコリメータ表面に直接到達した入射中性子のみが1度微小角弾性散乱をして乾板に到達し、他の散乱中性子は除去されるようになっている。またこの場合の鉛は炉心からの γ 線に対して、パラフィンはコリメータの孔以外からの散乱中性子に対しての遮蔽になっている。

乾板は JRR-1 の出力 40 kW 定常運転中に乾板を貼布した支持用ボックスをコリメータ外端に装着し

た。その位置ぎめは膜面ができた中性子ビームに平行、かつその中央部に含まれるように定められた。乾板が炉心容器の中心を含むコリメータ軸上に正しくおかれたか否かはつぎの方法によって確かめた。

- (1) コリメータ軸と貫通実験孔軸の一致性はコリメータ軸に直角におかれた乾板中の円形黒化部(5 mm 径)の形と円形内中性子強度の一様性より判定した。
- (2) コリメータ軸と乾板の平行性は乾板中を走るビーム幅が一定であることより判定した。

したがって、(1)の判定でコリメータ位置を確かめた後、乾板を照射し、照射乾板中(2)の判定に叶った乾板4枚について解析した。この4枚はビーム幅が調べられてコリメータ軸に対して 2° 以内の精度で配置されている。

2. 照射条件

照射条件は乾板を解析して所要の統計を得る場合にどの程度の飛跡密度が顕微鏡一視野中に見つかれば精度よく測定できるかということによって決ってくる。飛跡密度があまり少なくても、いたずらに解析時間を費すのみで精度は上がらないし、多すぎてもバック・グラウンドとの識別が悪くなって数え落しを生じたり、また測定時の視野移動回数が増えるので、視野復帰の際の誤差が効いて解析面積が不正確となり測定誤差が大きくなる。

従来の経験や予備実験より、一視野中(倍率1,350倍)の飛跡密度は入射方向に一致した飛跡が1~2個程度が一番適当であることがわかった。この選択はつぎの事項を考慮して経験的にきめた。

- (1) 炉内速中性子(平均エネルギー, 2 MeV 以下)の乾板乳剤中の平均自由行程を考えると、入射中性子強度は乾板の入射端より約1.5 cm 以上の距離では減少する。したがって正確にエネルギー分布を求める場合には乾板の測定範囲を中性子入射端面より平均自由行程内に限らねばならないが、ビーム幅に限定されるので解析面積は一義的にきまってくる。
- (2) したがって、結果の統計をよくするためには飛跡密度の多い方がよいが、あまり多くても上述の欠点や長い飛跡にとらわれて短い飛跡を読み落とす心配もある。
- (3) また、長い照射時間は原子炉の場合必然的に γ 線のバック・グラウンドの増加を伴うので、その意味では短い方がよい。以上の相反した条件を勘案して所要の中性子統計を得るための適当な照射時

間を決定した。結局適当な照射時間は炉出力40 kW において2時間であった。

3. 使用乾板

使用した原子核乾板は Ilford C 2, 富士 ET-6 B, さくら NR-M1 の3種類で寸法は $1'' \times 1''$, 100 μ および 200 μ 膜厚のものを用いた。実際の解析範囲は Fig. 2 のように乾板の入射端より 5 mm 内側の 2 mm $\times$ 10 mm 内に限った。2 mm 幅に選んだのは Fig. 3 に示すように 5 mm 径のコリメータ中の中性子ビーム強度の平坦性を考慮したからで、10 mm に限ったのは速中性子ビームの乳剤中での平均自由行程が約 15 cm 程度であるから、前記 5 mm の除外部と合わせて中性子減

Fig. 2 Position of area analyzed in the plate

Fig. 3 Density distribution measured by photo densitometer vs. distance from the center line of the collimator

衰の影響を避けるためである。周辺部端面を 5 mm 除外したのは現像後の乾板膜厚が平均よりも薄かったりするので、解析面積部の測定条件の同一性を期するためである。

4. 現像処理⁽⁸⁾

現像は Table 1 に示された乾板 No. 1, 2, 3 について二浴現像法⁽⁹⁾, No. 4 についてはアミドール温度現

像⁽⁹⁾ によって行なった。二浴現像液および現像処理方法は Table 2 に示されている小西六写真工業株式会社指定の処方に従った。200 μ 膜厚までの乾板については二浴現像法によった方が処理時間も短く、処理自体も簡単で、特殊な設備も要らず便利である。しかし両者による乾板を比較すると、飛跡の鮮明度は温度現像法によった方がはるかに優れている。

Table 1 Comparison of the four data analyzed by different scanners

Plate No.	Scanners	Plate type & film thickness	Development methods	Irradiation time (hr)	Volume [†] analyzed (cc)	Number of total recoil proton tracks
1	A	NR-M1, 100 μ	Two-bath method	2	0.06	1024
2	A	ET-6 B, 100 μ	"	2	0.06	1113
3	B	ET-6 B, 100 μ	"	1.5	0.069	1570
4	C	C 2, 200 μ	Temperature method	2	0.035	1524

[†] Values in the processed volume

Table 2 Recipe and processing procedure of two-bath development for nuclear emulsions recommended by Konishiroku, Sakura Photo Film Co., Ltd.⁽⁸⁾

Solution A		Procedure		
Methol	1.1 g		100 μ	200 μ
Sodium sulfite	24.0 g	1) Presoak in distilled water	2'	5'
Hydroquinone	4.4 g	2) Solution A (20°C)		
Potassium bromide	2.0 g	(slight agitation)	10'	15'
Distilled water to	2000cc	3) Solution B (20°C)(no agitation)	10'	15'
Solution B		4) Wash in running water	5'	10'
Methol	0.9 g	5) 2% acetic acid (agitation)	5'	10'
Sodium sulfite	38.5 g	6) Wash in running water	3'	5'
Hydroquinone	3.3 g	7) Sakura CFH fixing bath		
Sodium carbonate (anhydrous)	35.0 g	(20°C, slight agitation)	4~5 hr	6~8 hr
Potassium bromide	2.0 g	8) Wash in running water	3 hr	5 hr
Distilled water to	2000cc			

II. 解析方法

解析に当っては入射中性子の方向がコリメータによってきまっているので、正面衝突によって生じたと見なせる反跳陽子の飛跡だけに着目すればよい。しかし実際の測定の対象としてはつぎに示す条件(1)のように小角前方散乱の反跳陽子を解析して統計の向上を図った。そして(2)の条件に当てはまるものを選んでその飛跡のビーム入射方向への投影長を読みとった。

条件(1) 現像前の乾板で入射中性子方向に対し左右 10°, 上下 10° 以内の直角錐の中に入った飛跡

条件(2) 現像後の乳剤中の表面および底面より 5 μ を除去した残りの乳剤中で止っている飛跡

条件(1)を適用する理由は、核物理実験で行なわれて

いる (d, T), (d, D) 反応のように高いエネルギー領域の中性子測定では反跳陽子飛跡が長いので ($E_p = 5$ MeV の時 R_p : 約 170 μ), 真の散乱角を求めて個々の真の飛跡長を算出し、逐次中性子エネルギーを算出するいわゆる Individual Calculation Method⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾ によるのが普通である。しかしながら、この方法は炉スペクトルを測定するような低いエネルギー領域(分裂スペクトルの最大値を与えるエネルギーは約 0.78 MeV)では手間のかかる割合に精度は上がらない。すなわち、この領域のスペクトルの大勢は数 μ ~ 10 数 μ の飛程で決まってしまう。顕微鏡の焦点による上下方向の分解能を実際の陽子飛跡について測定すると $\leq 1 \mu$ である。したがってこの程度の飛跡では、個々の飛跡の dip を測って真の散乱角を測定することは難しい。したがって

炉スペクトルを求める場合には、前者の方法に対して、いわゆる Mean Angle Calculation Method⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾ と呼ばれる前記の近似法による方がより適切となる。

この方法は入射方向に反跳された飛跡のみを数えるために測定対象は減少するが、測定自体が非常に簡単になるので有効である。すなわち、実測された投影陽子飛跡長 R_p に対して、平均的に $R_p = R_p' / \overline{\cos\theta}$ として誤差の範囲内で真の陽子飛跡長を求めることができる。この R_p は陽子に対する R_p-E_p 関係式を用いれば、 E_p より次式 $E_n = E_p / \overline{\cos^2\theta}$ によって直ちに中性子エネルギーに変換できる。

$\overline{\cos^2\theta}$ は真の散乱角 θ の余弦の自乗の平均値で、照射前乳剤中における中性子の入射方向に対して上下、左右 10° の角度の直角錐内に放出された反跳陽子の散乱強度を考慮して求められた。この場合入射方向に対する projected angle α と dip angle β の各余弦の自乗の積の平均値として、 $\overline{\cos^2\theta} = \overline{\cos^2\alpha} + \overline{\cos^2\beta}$ の式がなりたつ。

条件(2)は長い飛跡が膜面より外へつきでたものを数える確率をなくすために設定された。

解析可能な範囲は前述のように $2\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ 以内であるが、実際の測定では重複を避けるために 100μ おきに 10 mm の範囲を各乾板ごとに数行解析した。解析した4枚の乾板の全面積は 0.223 cm^2 で、縮小率 $S = 2.54$ を用いて照射時の体積に換算すると $2.03 \times 10^{-3}\text{ cc}$ である。この縮小率は解析面積内の乳剤の厚みを実測して平均をとり現像前の膜厚の比から求めた。

使用した顕微鏡は千代田光学(株)製の LTG bi 型双眼顕微鏡で、測定には接眼鏡倍率 $10\times$ 、対物鏡倍率 $90\times$ 油浸、鏡筒倍率 $1.5\times$ の $1,350$ 倍の倍率で行なった。油はアニゾールを使用した。

飛程の測定に用いた十字マイクロスケールの1目盛は 0.98μ で標準スケールによって校正した。左右の角度の選別には中心線に対して左右 10° に線の入った角度測定用目盛を用いて中心線をビームの方向に合わせた。上下 10° の選別は視野中の飛跡がはじめの 15μ の範囲で水平に見えるもののみを選んだ。これは顕微鏡の焦点深度による分解能を飛跡より実測してきめられた。 $\overline{\cos^2\theta}$ の値で 15μ 以上は約3%の補正を与える。それ以下の飛跡に対しては 5μ までのおおの値に対して15%以下の補正を行なった。

II. R_p-E_p 関係の校正

Ilford 社製 C2 乾板の R_p-E_p 関係式として Rotblat⁽¹²⁾ の式がよく使われている。C2 乾板に関しては

古くからよく検討され、最近では Nereson⁽¹³⁾ が Van de Graaff を用いて約 200 keV までの低エネルギー測定 の限界と可能性について報告している。わが国でも Nonaka ら⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾ が NR-M1, ET-2E 乾板について行なっているが、 2 MeV 以下については行なわれていない。したがって、本実験を行なう前に C2 乾板相当品である富士 ET-6B 乾板についてつぎの2つの目的で校正実験を行なった。

(1) 富士 ET-6B の解析に C2 の E_p-R_p 関係式を適用することの妥当性

(2) 富士 ET-6B のエネルギー分解能の測定

方法は実測して得られた飛程から Rotblat の式を使って換算した E_p のエネルギーを、理論的に求められている E_p の値と比較した。

実験は日本原子力研究所の High Voltage 社製の 2 MeV Van de Graaff によって Titanium に吸着させた Tritium ターゲットを用い $^3\text{T}(p,n)^3\text{He}$ 反応の中性子エネルギーの角度依存性を利用して乾板を照射した。乾板はターゲットより 10 cm 離れた同一弧状の 0° , 30° , 60° の各方面の各点に垂直に並べて照射された。

角度に対応する中性子エネルギーの理論値は、陽子ビーム・エネルギーの $E_p = 2\text{ MeV}$ 場合、それぞれ 1.201 , 1.054 , 0.726 MeV である。実験点を Rotblat の R_p-E_p 曲線と比較した結果は Fig. 4 に示されているよう

Fig. 4 Comparison between range-energy curve for proton in Ilford C2 plates by Rotblat and the measured values for Fuji ET-6B plates. a, b and c are the measured values at the neutron energy of 1.2 , 1.05 and 0.73 MeV , which correspond to the angles $\theta = 0^\circ$, $\theta = 30^\circ$ and $\theta = 60^\circ$ with the direction of incident proton beam respectively.

によく合っている。また測定されたエネルギーの分解能は Table 3 に示されている。分解能はエネルギー分布における最大中性子数に対応するエネルギーとその半値幅の比で定義されている。

Table 3 R_p - E_p relation and resolution for Fuji ET-6B plates measured by the use of ${}^3T(p, n){}^3He$ reaction and the comparison with the results calculated from Rotblat's range-energy relation. The JAERI Van de Graaff machine was used in this experiment.

E_p † (MeV)	θ (°)	Theoretical value E_n (MeV)	Range measured R_p (μ)	Resolution measured (%)	E_p †† (MeV)	Width at half maximum (keV)
2	0	1.201	18.5	9.1	1.20	105
2	30	1.054	16.2	7.4	1.11	80
2	60	0.726	9.0	13.8	0.74	100

† Proton beam energy

†† Recoil proton energy estimated from Rotblat's range-energy relation

IV. 実験結果と考察

1. 反跳陽子飛跡分布

Table 1 に示されているように 4 枚の乾板が 3 人の

測定者によって解析された。おのおののデータを合計した全反跳陽子飛跡数は 5,231 本で、その飛跡数分布を Fig. 5 に示す。図の横軸には第 1 段に顕微鏡のマイクロスケールの読取值、第 2 段には読取值を飛程に換算した値、第 3 段には R_p - E_p 関係によって求めた反跳陽子エネルギーの値が示されている。

この反跳陽子飛跡分布を次式に従って変換すれば速中性子のエネルギー分布が求められる。

$$F(E_n)dE_n = \frac{N(E_p)dE_p}{n_H \sigma_{n-p} p(l) v t} \cdot \frac{\pi}{\cos \theta \Omega} \quad (1)$$

$F(E_n)$: エネルギー E_n における単位エネルギー当りの中性子束

$N(E_p)$: エネルギー E_p における単位エネルギー当りの反跳陽子数

n_H : 乾板中の単位体積中の水素原子数

σ_{n-p} : n - p 散乱断面積

$p(l)$: 長さ l の反跳陽子が乾板中に止る確率

v : 解析した乾板の照射時の体積(cc)

t : 照射時間(秒)

$\pi / \cos \theta \Omega$: 立体角 Ω による反跳陽子数の補正項
補正項⁽¹⁰⁾ $p(l)$ の値は 2.7 MeV までの飛跡に対しては無視できる。4 MeV までは飛跡長に応じて 4 % 以下の補正になる。

Fig. 5 Range distribution of recoil proton tracks

2. コリメータによる散乱の影響

黒鉛反射材や実験孔物質で多重散乱を受けエネルギーの変化した炉心からの非直接的な中性子が、コリメータの幾何学的条件によって乾板への入射中性子からほとんどすべて除外されていることはすでに述べた。しかしこの実験で測定された中性子スペクトルは、コリメータ系で必ず1度散乱された中性子を検出したものであるから、これが炉心からきた本来の漏洩スペクトルと同一であることを確かめなくてはならない。すなわち、検出された入射中性子が鉛コリメータの弾性散乱によるもので、(1)非弾性散乱による影響と、(2)パラフィンによる影響とが無視できることがわかればよい。

第1の問題についてはコリメータ物質鉛による弾性散乱と非弾性散乱の微分断面積(Fig. 6)とを比較するとわかるように、小角散乱中性子に対しては弾性散乱の断面積が非弾性散乱に比べて2桁以上大きいので、乾板に入射する中性子は弾性散乱によるものが圧倒的に多いと考えられる。

Fig. 6 Comparison of the angular distribution of 2.2 MeV neutrons elastically scattered and inelastically scattered from lead which is enriched to 88% ^{208}Pb . (These data were measured by Landon⁽¹⁷⁾.)

いま、炉心からの入射中性子ビームのコリメータ孔への入射角度が $\sim 15'$ より $\sim 40'$ の間の微小角となり、鉛物質中での速中性子平均自由行路が約100 mmであることを考えると、入射中性子の散乱に寄与する鉛物質は厚さ ~ 4 mmの中空間筒部分のみとみなすことが

できる。

したがって、この部分全体で散乱が起こったと考えて、弾性散乱と非弾性散乱による乾板への入射中性子スペクトルを求めた。

コリメータへの入射中性子スペクトルは分裂スペクトルであると仮定(a)し、 $0 \sim 10$ MeVまでを非弾性散乱の励起レベルに従って22群に分けて計算した。弾性散乱の断面積はFig. 6の値⁽¹⁷⁾の外挿値を用い、非弾性散乱の値はDay⁽¹⁸⁾による各励起レベル値を使った。2.62 MeVのレベルに対する断面積は0.05 barnを仮定した。また非弾性散乱断面積の値(Table 4)は閾値エネルギー以上で一定であると仮定(b)した。

Tabl 4 Cross sections and energy of excited levels for γ rays from neutron inelastic scattering on a lead. These cross sections have been obtained at a neutron energy of 2.56 MeV by Day⁽¹⁸⁾.

Pb isotopes	Excited levels E (MeV)	Cross section of inelastic scattering (barn)
208	2.62	(0.05) assumed
206	1.73	0.048
206	1.43	0.032
207	0.888	0.143
206	0.802	0.344
206	0.661	0.069
207	0.570	0.215
206	0.533	0.143

Abundance : $^{202}\text{Pb} < 4 \times 10^{-4}\%$, ^{204}Pb 1.4%; ^{206}Pb 23.6%, ^{207}Pb 22.6%; ^{208}Pb 52.3%.

計算は1回の非弾性散乱効果のみを考えた。各群ごとにその効果を求めて累積した。Fig. 7にその結果を入射分裂スペクトルと比較して示す。これには鉛の厚さによる中性子の減衰や角度分布の補正がなされている。

これらの計算に用いた(a),(b)の仮定は、計算に選んだ幾何学的条件と共に結果の過大評価になっているにもかかわらず、非弾性散乱の効果は弾性散乱による入射中性子スペクトルに対して4%以下となり、統計誤差内に止る。鉛の弾性散乱断面積はそのエネルギー依存性⁽¹⁹⁾を考えると、2 MeVの上下のエネルギー範囲で大きくなるのでこの効果はさらに小さくなる。断面積の角度依存性の情報が不確かでこの点に関する評価はできなかった。

第2のパラフィンのコリメータによる場合にも表面で散乱を受けた中性子は鉛以上に小角散乱となるので、入射中性子のエネルギー変化は無視できる。またパ

Fig. 7 Energy spectra of neutrons inelastically scattered once in lead assuming the fission spectrum as the initial incident neutrons. Effect of the second collision is neglected.

ラフィン中に入ってしまった中性子も充分熱中性子化され、乾板へ到達以前にカドミウム板で吸収されてしまうので影響はない。

3. 誤差

実際の中性子束 $F(E_n)$ は(1)式によって反跳陽子飛跡数 $N(E_p)$ より変換されるものであるから、式中の各因子について入り得る系統誤差について評価しておかねばならない。

(1) 解析体積の誤差

諸因子の中で一番大きいと考えられる因子は解析体積算出に伴う誤差である。解析時の面積は顕微鏡の1視野($98\mu \times 98\mu$)を順次接続することによってきまるので1%程度、乾板での上下方向の深さの決定は各視野での値を平均して決めたが約2%の誤差がある。測定の際表面および底面より5 μ を解析体積より除いたが、底面部の除外操作時に数%の誤差は免れない。また照射時の体積算出の時の縮小率の誤差が約2%あるので、体積算出時の誤差は10%近いと推定される。

(2) 飛程測定時の誤差

つぎに飛程測定時の実験誤差であるが、1目盛が0.98 μ のマイクロスケールを使用したので、すべての飛程に対して5%程度の誤差が入り得る。5 μ 以下の飛程では銀粒子直径は $\leq 0.4\mu$ であるから、制動輻射

と銀粒子損失による影響は大きい。低エネルギー領域では顕微鏡の焦点深度を考えると実際の測定の選択角度は10°以上になる。5 μ の飛跡に対してその補正は実測陽子数の約1/2となる。

(3) その他の誤差

以上の他に顕微鏡自体の誤差、乳剤の湿度による影響、乾板乳剤中の水素の均一性等数%以内での誤差が考えられる。照射の際、乾板着脱に要する時間は無視できる。

(4) 測定時の個人差

測定は3人によって行なわれたので、得られた4つのデータ相互間の信頼度を累計する前に検討した。方法は4つのデータを、(1)全飛跡数で規格化した場合と、(2)分布の最高値で規格化した場合との各データによるスペクトルの形を比較した。結果はTable 5に示すように4つのデータはよい一致を示した。

Table 5 Comparison of the four data analyzed by different scanners

Plate No.	Number of total neutrons N_t	Number of neutrons at peak value N_p	Ratio of N_p to N_t	Ratio of N_p to N_t normalized to third date
1	4170	636	0.153	1.01
2	4550	747	0.164	1.08
3	6933	1052	0.152	1.00
4	6784	989	0.145	0.96

(5) 漏洩速中性子スペクトル

結局、上記の考察より系統誤差の範囲内で得られた速中性子スペクトルは炉心より出た漏洩スペクトル自体を示している。(1)式に従って求められた速中性子束分布をFig. 8に示す。図中に示されている測定点の誤差は統計誤差のみが示されている。0.5 MeV以下のデータについては測定誤差が大きいので結果より除外した。得られたエネルギー分布の最高値に対応するエネルギーは0.85 MeV、0.5 MeVより3 MeVまでの領域のスペクトルから求められた平均エネルギーは1.1 MeVで、この領域での速中性子の積分値として $2.3 \pm 0.2 \times 10^5 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ が算定された。

この報告を終えるに当たり、終始貴重な示唆と助言をいただいた日本原子力研究所・原子炉物理第二研究室の能沢正雄氏、検討していただいた飯島 勉、富岡偉郎各氏に深く感謝する。Van de Graaff での校正実験に

Fig. 8 Leakage spectrum of the fast neutron from the JRR-1 core

当っては原子核物理研究室の西村和明氏、原子炉物理第二研究室の飯泉 仁氏に手伝っていただいた。また乾板の低温現像に際しては原子核物理研究室の竹腰英子氏に手伝っていただいた。乾板の Scanning は、当時茨城大学文理学部学生であった武田文子氏に手伝っていただいた。実験を支援していただいたこれらの方々に深く感謝の意を表する。

(1962年 5月10日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) J. L. CAMPAN, P. P. CLAUZON, C. P. ZALESKI: *SM-18/2g Conf. of the fast reactor physics in Wien* (1961).
- (2) M. P. HAYDON, E. B. JOHNSON, J. L. MEEN: *CF-53-8-146*, (1953).
- (3) N. NERESON: *LA-1192*, (1950).
- (4) J. H. HALL: *LAMS-727*, (1948).
- (5) W. C. REDMAN, J. H. ROBERTS: *2nd Geneva Conf.*, P/597 (1958).
- (6) N. NERESON, J. CARLSON, J. ERICKSON: *LA-1123*, (1950).
- (7) L. ROSEN: *2nd Geneva Conf.*, P/582 (1958).
- (8) A. HIRATA: Part 1: 日本写真学会会誌, **22**, No. 3, 151~160 (1959); Part 2: 同上, **22**, No. 4, 202~208 (1959).
- (9) C. C. DILWORTH, *et al.*: *Nature*, **162**, 102 (1948).
- (10) R. S. WHITE: "Fast Neutron Physics", Part 1, Chap. **11** D, 297~334 (1960), Intersci. Publ., N. Y.
- (11) L. ROSEN: Part 1: *Nucleonics*, **11**, No. 7, 32 (1953); Part 2: *ibid.*, **11**, No. 8, 38 (1953).
- (12) J. H. ROTBLAT: *Rev. Sci. Instrument*, **28**, 677 (1957).
- (13) N. NERESON: *ibid.*, **21**, 534~545 (1950).
- (14) I. NONAKA, *et al.*: *J. Phys. Soc. Japan*, **11**, 1~7 (1956).
- (15) I. NONAKA, *et al.*: *ibid.*, **12**, 841~845 (1957).
- (16) N. NERESON: *LA-1078*, (1950).
- (17) H. H. LANDON, *et al.*: *Phys. Rev.*, **112**, 1192~1200 (1958).
- (18) R. B. DAY: *ibid.*, **102**, 767~787 (1954).
- (19) R. J. HOWERTON: *UCRL-5226*, (1958), Tabulated Neutron Cross Section.

研究論文

212. 放射滴定による比放射能の推定

亀谷 富士夫*, 木村 幹**, 片岡 晃**

Estimation of the Specific Activity of Radioactive Product by Radiometric Titration

By Fujio KAMETANI, Kan KIMURA and Akira KATAOKA

As is well known, the specific activity of a radioactive material is usually expressed as the ratio: activity in curie divided by the amount of the element of the radioactive