にとっている。 $(\delta U)_{\max,0}$ は操作の極限において到達し得る最大値であるが、 $(\delta U)_{\max}/(\delta U)_{\max,0}$ を0.8程度にとどめるなら $p_2 r$ は約1,700 (cmHg $\cdot\text{\AA}$) にしなければならない。そのときの $(p_1 r)_{\text{opt.}}$ は Fig. 2 より大体17,500 (cmHg $\cdot\text{\AA}$) で入口側では $r > \lambda$ となっている。孔径の大きい隔膜を使用しなければならない場合は、 p_2 の値には技術上とり得る最低限度があるから $p_2 r$ は上記の値より大きくなり、最大分離パワの比はさらに低くならざるを得ない。 $p_2 r$ の選択にあたっては装置の気密保持の点とにらみ合わせて、この曲線が一応の目安を与えるであろう。

Fig. 3 Relation between maximum separative power and exit condition

IV. 結 言

多孔性隔膜を使用する気体拡散分離装置の分離パワ

を隔膜孔内の気体の流れに Present-deBethune のモデルを適用して解析した。分離パワは(入口側圧)×(孔径)と(出口側圧)×(孔径)との関数であるが、後者を一定値に保った場合の前者の変化による分離パワの変化を、フッ化ウランガス中の ^{235}U の濃縮を例にとりて計算すると、分離パワに最大値が現われた。したがって、濃縮分離カスケードの所要分離要素数を最小にするには、この最大値に應ずる(入口側圧)×(孔径)が入口側操作条件の最適値となる。最適状態を表わす入口側条件と出口側条件との組み合わせは1本の曲線で示すことができる。

本解析には Present-deBethune の流れのモデルを用いており、隔膜孔壁へ吸着された気体分子の移動いわゆる表面流の影響については考えていない。この点に関しては後日に論じたい。

また、入口側圧と出口側圧の組み合わせの選定にあたっては分離パワと同時に実際問題としてカスードの段間に設けられる圧縮機の圧縮比にも考慮を払う必要がある。

数値計算には京都大学電子計算機(KDC-1)を使用した。

(1962年 5月31日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) R. D. PRESENT, A. J. DEBETHUNE : *Phys. Rev.*, **75**, 1050 (1949).
- (2) 原子力委員会核燃料専門部会 第2次中間報告.

研究論文

225. 中性子温度測定用ガドリニウム・フィルタの研究

新井 栄一*, 湯本 鑠三**

Study on Gadolinium Filter for the Neutron Temperature Measurement

By Eiichi ARAI and Ryoza YUMOTO

For the study of the low energy neutron spectrum by the integral method, it is important to develop sensitive neutron temperature detectors. The non- $1/v$ property of

the effective cross-sections of ^{239}Pu or ^{176}Lu has been used for this purpose. If the non- $1/v$ property of the neutron detector is varied artificially, a very useful technique for the study would be obtained.

Gadolinium has a large absorption cross-section in the low energy region; the cross-section decreases rapidly with increase of neutron energy. Thus, the neutrons filtered through a Gd foil will be devoid of the low energy part in the spectrum. It would be sharply cut-off at the energy of $0.1 \sim 0.5$ eV. With this sharp cut-off filter, the shift of Maxwellian distribution of thermal neutrons would be detected very precisely.

Two BF_3 -counters were located at the same geometries. One of them was bare and the other was covered with the Gd-filter. The ratio of their count-rates will be defined as the Gd-ratio and is very sensitive to the neutron temperature.

The neutron temperatures were varied by re-thermalization in a water tank at different temperatures. The pure Maxwellian thermal neutrons were introduced into the tank from the thermal column of the JRR-1 reactor. The temperature of the tank was varied very slowly between the range of $15^\circ \sim 85^\circ\text{C}$. The resolving power of the neutron temperature detector was found to be 2°C .

I. ま え が き

熱中性子スペクトルの測定手段を大別すると、現在のところ2つの方法がある。1つはモノクロメータ、またはチョッパを用いたデフレンシャルな方法であり、他の1つは実効的な中性子温度をインテグラルにて求める方法である。後者は特に吸収の少ない体系において適当である。

後者の方法によって中性子スペクトルを解析する場合に、測定される量として重要なものは Maxwell 分布の最高値のエネルギー、すなわち中性子温度と Maxwell 分布をしている中性子密度に対する $1/E$ 領域の中性子密度の割合である。後者の決定法は $1/v$ 検出器のカドミウム比から計算するという有力な手段がある。前者の中性子温度を感度よく測定できる検出器として従来からいろいろ提案されている。例えば ^{239}Pu の 0.3 eV 付近の共鳴吸収により、核分裂の割合が中性子温度と共に増大する性質を用いた中性子温度検出器⁽¹⁾とか、 ^{176}Lu の 0.142 eV の共鳴吸収を利用した Lu 同位体の放射化比による方法⁽²⁾などが報告されている。プルトニウムよりもルテシウムによる方法が感度がよいとされている。

ここに報告するガドリニウム・フィルタの方法によると ^{239}Pu および ^{176}Lu を利用した検出器よりもさらに感度のよい中性子温度検出器ができる。

II. 原 理

ガドリニウムの中性子断面積は第1図⁽³⁾に示されるように、 0.01 eV から 1.0 eV にわたって急速な下降を

第1図 中性子断面積

示し、カドミウムおよびホウ素などとは異なった特徴をもつ。ガドリニウムでフィルタを作り、検出器にかけてフィルタを透過した中性子を検出すれば、傾向として断面積とは逆の形をした中性子感度をもつ検出器が得られることになる。この検出器が減速材温度の変化による Maxwell 分布の移動に対して敏感に働くこと

* 東京工業大学 原子炉研究施設 (Res. Lab. Nucl. Reactor, Tokyo Inst. Technology)

** 原子燃料公社 (Atomic Fuel Corp.)

いう原理に本報は基づいている。中性子の実効的なカットオフのエネルギーはガドリニウムの厚さで定まる。これに反してカドミウムの場合は0.178 eVの共鳴吸収のため、フィルタを薄くしてもあまり低エネルギーでのカットオフが不可能になる。いま連続的エネルギー分布をもったパンクロな中性子をいろいろな厚さのガドリニウム・フィルタを通過させると、そのカットオフが厚さと共にどのように変化するかを第2図に示した。厚さ d は金属ガドリニウムに換算した厚さである。図から明らかなようにフィルタが厚い場合には鋭いエネルギーのカットオフを生ずるが、薄くなって0.05 mmになると10%の透過率を示す中性子エネルギーは0.09 eVとなって立上りもかなり緩やかになる。

第2図 ガドリニウムのフィルタ効果

中性子検出器として BF_3 カウンタのような $1/v$ 特性を有する検出器で、フィルタを通過した中性子を検出すると、中性子の検出感度は中性子エネルギーに対して第3図のような特性となる。この検出感度は検出器中のホウ素の反応率に比例する。中性子を等方入射として、反応率を数式的に示すと次式のようにになる。

(カウンタの反応率)/(単位ホウ素原子)

$$= \phi(E) \exp(-\sigma_{\text{Gd}}(E)Nd) \sigma_{\text{B}}(E) \quad (1)$$

ここに、 $\phi(E)$: 中性子束

$\exp(-\sigma_{\text{Gd}}(E)Nd)$: ガドリニウム・フィルタによる中性子の透過する割合

$\sigma_{\text{B}}(E)$: E eV の中性子に対するホウ素の (n, α) 反応の断面積

第3図 Gd-BF_3 カウンタの感度

d : 中性子の等方入射による効果を考慮に入れた等価的なガドリニウムの厚さ⁽⁴⁾

このカウンタの反応率(ホウ素1原子当り)を中性子温度をパラメータとしてグラフに示したのが第4図である。カウンタの計数率は反応率をエネルギーについて積分したものに比例する。ガドリニウム・フィルタの

第4図 Gd-BF_3 カウンタの純 Maxwell 分布における感度

実験を行なうに先立ち、フィルタの適当な厚さを選定する必要がある。第5図はフィルタの厚さをパラメータとして、ガドリニウム比の逆数が中性子温度と共にどのように変化するかを示した。この図から勾配をあまり少なくすることなしに、しかもなるべく小さなガドリニウム比を得るには約0.05 mmの厚さが適当である。第5図はまた中性子温度検出器の理論的な感度であり、この0.05 mm程度のガドリニウム・フィルタを使用すると、従来から使用されている ^{239}Pu および ^{176}Lu

第5図 Gd BF_3 カウンタの中性子温度による感度依存性

第6図 各中性子温度測定法の比較

の非 $1/v$ 特性による反応率の温度係数 $q(T)$ に比較して、かなりよい感度をもつことが示される。 ^{239}Pu および ^{176}Lu を用いた検出器による感度とガドリニウム・フィルタによる感度の比較は第6図に示した。

Ⅲ. フィルタの製作

フィルタは実験に使用した BF_3 マイクロカウンタに合わせるため直径 1.3 cm、長さ 15 cm の円筒形を試みた。ガドリニウムを円筒形にするには、金属ガドリニウムが入手できないので、 Gd_2O_3 の粉末を用いて簡便な方法を考えた。まず、 Gd_2O_3 粉末を結合させるために、スーパーベッカミン-J-820 と Beckasol solution-1307 EL の結合剤を使用した。溶媒は Xylene および Butanol が適当である。混合方法は Gd_2O_3 粉末の適量を乳鉢に入れてよくすりつぶし、結合剤 J-820 および 1307 EL を 1 対 3 の割合で加えて練り混ぜる。ガドリニウムを円筒形に固定させるためにアルミニウムの薄板 (0.05 mm 厚) であらかじめ円筒を作り、それをロータで回転させながら結合剤と混ぜ合わせた Gd_2O_3 を刷毛で薄く塗りあげ、乾燥器中において 80°C 前後で乾燥させた。さらに塗りおよび乾燥を何度か繰返しながら希望する厚さにして、 120°C の乾燥雰囲気中で仕上げた。フィルタの厚さをきめるには結合剤に入れるガドリニウムの量で調節した。

フィルタはガドリニウム金属の厚さとして、0.0611 mm, 0.0460 mm, 0.00893 mm, 0.0893 mm の厚さのもの 4 種類を試作した。

Ⅳ. 中性子温度の測定

中性子温度はガドリニウム・フィルタをかけない BF_3 カウンタとフィルタをかけた BF_3 カウンタを同一の場所に置いて、カウンタの計数の比として測定する。 BF_3 カウンタは $1/v$ 特性とみてさしつかえない。この計数率の比をガドリニウム比と定義すると、これは (2) 式のように表わされる。

ガドリニウム比 (R_{Gd})

$$R_{\text{Gd}} = \frac{\int_0^\infty (E/kT)^{1/2} e^{-E/kT} dE}{\int_0^\infty (E/kT)^{1/2} e^{-(E/kT + \Sigma_{\text{Gd}} d)} dE} \quad (2)$$

ここに、 k : Boltzmann 定数

T : 中性子温度

E : 中性子エネルギー

$\Sigma_{\text{Gd}}(E)$: ガドリニウムの中性子断面積

d : 中性子の等方入射による効果を考慮に入れた等価的なガドリニウムの厚さ

一方、実験から得られる2本のカウンタの計数率の比は、フィルタの効果のほかにカウンタ自身の計数効率の相違および各場所による中性子束強度のわずかな違いが関係してくる。したがって、そのような因子を考慮してはじめて理論的なガドリニウム比と一致するわけである。実験では中性子温度50℃で規格した相対的な値としてのガドリニウム比に対し中性子温度を校正した。

中性子温度の校正はつぎのようにして行なった。中性子源は1/E領域を含まない純粋に Maxwell 分布をした中性子束を用いる必要がある。これには JRR-1 の熱中性子柱を使用した。中性子温度を変化させるのには熱中性子の再熱化を利用した。すなわち、熱中性子柱からの熱中性子を減速材体系としての水のタンクに導いて、その水で中性子を再熱化した。水の温度は15℃から85℃まで連続的に変化した。水の容積は再熱化に充分な大きさが必要であるが、この実験では $25 \times 27 \times 35 \text{ cm}^3$ で、これは充分な大きさである⁽¹⁾。実験に用いた装置を第7図に示す。水の温度はタンクの中心において熱電対および抵抗線温度計で測定した。中性子源であるJRR-1は1回の運転が5時間であるため、水温を5時間で15℃から85℃まで上げた。時には3時間で上げて2時間で下げたりした。その間、

第7図 JRR-1熱中性子柱断面および装置の概要

計数の比と水温は連続的に記録した。この程度の速で水温を上昇するときの温度おくれは少ない。水のタンクは第7図に示すように中心に貫通孔を有し、ここにフィルタをかけた BF_3 カウンタと裸の BF_3 カウンタを図に示すように入れた。なお、モニタ用にも1本の BF_3 カウンタをタンクの外に置いて、全部でチャンネルで中性子計数を行なった。ガドリニウム・フィルタの厚さが0.046 mm および0.0611 mm の場合について、実験から得られた計数比と理論値が第8、図に比較して示した。縦軸はガドリニウム比の逆数を用いた。これは ^{239}Pu および ^{176}Lu などの g 因子と比較を容易にするためである。規格化は50℃で行な

第8図 ガドリニウム比の温度依存性

第9図 ガドリニウム比の温度依存性

たが、これは測定範囲の両端は温度ラグが多いのでその中間をとった。図が示すようにガドリニウム比の温度係数は理論的に計算した値と大変よく一致している。ガドリニウム比の絶対値はフィルタの厚さにもよるが30~60くらいになる。この値はなるべく小さい方が望ましい。その理由は計数回路にはその計数率の最高の範囲がある。すなわち最大限は回路の最大計数率でおさえられ、最小値は雑音やバック・グラウンドでおさえられる。ガドリニウム比をあまり大きくすると、2本のカウンタの計数率がこの範囲に入らなくなるおそれがある。また、フィルタを薄くすればするほどガドリニウム比は小さくなるが、これは中性子エネルギーのカットオフを低くすることであり、カットオフが低いと中性子温度の変化に対してガドリニウム比の温度係数を鈍らせることになる。フィルタの厚さはこのような条件の下で決められるもので、この実験で用いた厚さは常温より100℃の温度範囲に対して適当である。

V. 結 論

このような実験結果および計算から原理的には中性子温度検出器として感度のよいものができ上がった。しかしこれを原子炉物理的な実験の測定器として実用化するにはまだいろいろな問題が残されている。これらの問題について少し検討してみる。

1. 再熱化減速材としての水の温度と中性子温度との不一致の問題

中性子温度の校正として、この実験で用いたような再熱化を利用すると必ずこの問題につきあたる。減速材温度と中性子温度の関係については Poole^⑨らの論文で詳しく論じているのでここでは立ち入らない。しかし、不一致の原因は水の吸収によるスペクトルの硬化によるのみではなく diffusion heating または cooling の問題が影響して、単純に吸収の少ない物質を用いれば解決されるとは考えられない。ガドリニウム比の絶対値から中性子温度を計算するということも考えられるが、これはフィルタの実効的な透過率の計算と計数効率を実験的に決定するという2つの問題が残されている。

2. カウンタ自身の温度特性

この実験では中性子温度を上げるために水の温度を上昇させると、それにつれてカウンタ自身の温度も上がる。BF₃ カウンタのなかには管の温度と共に計数効率が変化するものがある。このような現象は BF₃ カウンタのメーカーによってほとんど無視できるものもあるので、本実験ではカウンタ自身の温度特性のないもの

を選んで行なった。

3. ガドリニウム・フィルタの吸収によるスペクトルの変化

フィルタに用いたガドリニウムは大きな吸収断面積を有する。フィルタは薄いとはいえ、数gのガドリニウムを含むので、これを中心に含んだ系は少なからず中性子流に歪みを与える。測定の際には裸のカウンタにこの影響を少なくするために、しかも同一の幾何学的条件にするため第7図のような配置にした。また系の中心に検出器を置かないで、系から流出する中性子流で実験するのもこれを避ける1つの方法であるが、実際行なうにはまわりから散乱される中性子流もあって困難はつきまとう。

4. 1/E 領域に対する考慮

この実験では熱中性子柱を用いたので純 Maxwell 分布のスペクトルとして取り扱うことができる。それは BF₃ カウンタのカドミウム比が400であることから裏づけられる。今回は主として1/E領域の少ない体系について取り扱ったので、1/E領域を多く含む場合については詳しく説明できないが、実験によるとカドミウム比が約20の体系のときに温度効果の勾配が2.5分の1程度に鈍くなることがわかった。

以上のようにいろいろな問題はあるが、最大の長所は温度1℃の変化に対する計数率の変化が非常に大きく、温度変化2℃は完全に区別できる点である。もう1つの長所はフィルタの厚さを変えれば中性子温度の広い範囲にわたって高い温度係数を保つことである。例えば ²³⁹Pu では熱中性子の低エネルギー領域で鈍くなり、¹⁷⁶Lu では高エネルギー領域で鈍くなるが、ガドリニウム・フィルタの場合には温度係数の鈍化はフィルタの厚さでかなり補える。

この研究は原研の大学共同利用に関する費用で行なわれたものである。実験に際し、いろいろご協力下さった原研 JRR-1 管理課の皆様および原子炉物理部第2研究室の方々に対してこの機会に厚く御礼申し上げます。この実験がこれまでに至ったのは武田栄一教授の適切なご指導によるためであり、ここに深く感謝の意を表します。

(1962年 5月1日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) C. B. BIGHAM : *Nucl. Sci. Engng.*, **6**, 379 (1959).
- (2) L. C. SCHMID, W. P. STINSON : *HW-66319*,

- (1960).
 (3) D. G. HUGHES, *et al.* : BNL-325, (1958),
 (4) R. W. STOUGHTON, *et al.* : Nucl. Sci. Engng.,
 6, 441 (1959).

- (5) M. J. POOLE, M. S. NELKIN, R. S. STONE :
 'The Measurement and Theory of Reactor Spectra', *Progress in Nuclear Energy*, Ser. I, Vol.
 I, 91~164 (1958), Pergamon Press.

研究論文

226. UC, (U,Zr)C, ZrC の熱電子放出特性

高田 義彦*, 井本 正介*, 佐野 忠雄*

Thermionic Properties of UC, (U,Zr)C and ZrC

By Yoshihiko TAKADA, Shosuke IMOTO and Tadao SANO

With relation to thermionic power conversion, thermionic emission measurements have been carried out on carbide-coated tungsten filaments in the temperature range of 1,400°~2,100°K. Carbide coating was done by electrophoresis in *n*-butyl alcohol suspending carbide powder. From the Schottky plots for d.c. field as high as $6 \cdot 10^5$ V/m, thermionic saturation currents were estimated. Richardson plots showed that Richardson constant A and work function ϕ was 160 A/cm²·deg², 3.8 V for UC; 420 A/cm²·deg², 4.2 V for U_{0.5}Zr_{0.5}C; and 360 A/cm²·deg², 4.2 V for ZrC, respectively. The result for ZrC rather agreed with the result by Pidd, *et al.*, but an abnormally large A value which Pidd, *et al.*, had obtained for UC and (U,Zr)C was not observed from our measurements. Thermionic characteristics of UC was seemed to be complex.

I. 緒 言

いままでわれわれはウラン炭化物に関するいろいろの研究を行ってきたが、UC の性質を利用して熱を可動部分なしに直接電気にかえる、いわゆる熱電子型直接発電方式が最近注目され始めた。これは仕事関数の大きい電極を加熱して電子を放出させ、これを仕事関数の小さい電極で受けてその仕事関数の差だけのポテンシャルを外へとり出そうとするものである。この方式により Pidd ら⁽¹⁾は高温電極(emitter)材料として ZrC と UC との固溶体を用い、セシウムプラズマで空間電荷を中和して、2,620°K で短絡電流 62 A/cm² という大きな電流密度を得た。この時の出力密度は 30 W/cm²、熱効率は 15 %に達した。彼らはこのように大きな効率が得られた理由は、このような炭化物が陰極材料としてすぐれているからであるとし、その利点を 3つあげている。すなわち、

- (1) 融点が高いので高温まで使用できる。
- (2) セシウム雰囲気中で安定である。
- (3) 熱電子放出特性がよい。

である。このうち熱電子放出特性については Pidd ら⁽²⁾は別に Schottky 効果による方法で、ZrC, (U,Zr)C, UC の飽和電流を測定し、上記の短絡電流は飽和電流と一致することを実験的に示したが、この際、飽和電流を Richardson-Dushman の式

$$J_0 = AT^2 \exp(-e\phi/kt) \quad (1)$$

で表わし、Richardson 定数 A と仕事関数 ϕ について Table 1 のような値を得た。

Richardson 定数 A は自由電子近似では 120 A/cm²·deg² であり、多くの物質の A はこの近くにあることが知られているが、Table 1 によれば Pidd らが得た UC

* 大阪大学 工学部原子力工学科 (Dept. Nucl. Engng., College of Engng., Osaka Univ.)