

JAERI-M

8 4 2 6

高検出効率・高空間分解能中性子検出器
の開発と炉物理実験への応用

1979年9月

東條 隆夫

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合せは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

高検出効率・高空間分解能中性子検出器の開発と
炉物理実験への応用

日本原子力研究所ラジオアイソトープ・原子炉研修所
東 條 隆 夫

(1979年8月15日受理)

中性子増倍体系内の熱中性子検出を目的として、ZnS(Ag), ^6LiF およびポリエチレンからなるシンチレーターを作成し、その特性を明らかにした。このシンチレーターと、アクリル樹脂製の長い光導体によって構成されるシンチレーション検出器を開発し、これをU-H₂O臨界未満実験装置(JAERISA)を用いた次の炉物理実験に応用した。(1)カドミウム比の測定、(2)無限増倍係数の測定、(3)材料バックリングの測定、(4)パルス中性子法による即発中性子寿命の測定。これらの実験を通して、この体系内の中性子は本検出器の優れた特性、すなわち γ 線不感性、高検出効率および高空間分解能によって効果的に測定できることが明らかになった。このことによって非均質炉心の半径方向中性子束分布の方向依存性や中性子寿命の空間依存性などを明確にすることができる、これらを考慮に入れた高精度な炉物理実験を行うことができた。GM計数装置を用いて箔放射化検出器の放射能強度を測定する過程においては、分解時間にかなりの計数率依存性が存在するため、従来の方法では高精度な計数損失の補正が困難であることが指摘された。このため、高精度補正法についての研究を行った。分解時間の正確な測定のために新しい測定法を導入し、これによって分解時間の諸特性を明らかにした。さらに、計数損失の補正がなされた計数率が直読的に得られる新しい原理に基づく補正法を開発した。この補正法によって、高計数率領域においても精度の高い計数損失の補正が可能となり、従来の方法では補正が困難であった高計数率領域においてもGM計数装置の使用が可能となった。

Development of a Neutron Detector with High Detection Efficiency
and High Spatial Resolution and Its Applications to Reactor
Physics Experiments

Takao TOJO

Radioisotope and Nuclear Engineering School, Tokai, JAERI

(Received August 15, 1979)

For detection of thermal neutrons in multiplying systems, a scintillator mixture of ZnS(Ag), ⁶LiF and polyethylene was prepared, and its characteristics were shown. A scintillation detector using the mixture and a long acrylic-resin light guide was developed for measuring thermal neutrons in an U-H₂O subcritical assembly(JAERISA). The detector was applied in the following reactor physics measurements with JAERISA : (1) cadmium ratio, (2) infinite multiplication factor, (3) material buckling, and (4) prompt neutron lifetime by pulsed neutron method. These experiments revealed that neutrons in the assembly are successfully detected by the detector owing to its outstanding characteristics of gamma-ray insensitivity, high detection efficiency and high spatial resolution. In the process of activity measurement of a foil activation detector with a GM counter, it was shown that accurate counting loss correction are difficult by usual method, because of the appreciable resolving time dependence on counting rates. In accurate correction, a new method was introduced for precise measurement of the resolving time ; the dependence was made clear. A new correction method was developed, which enables direct reading of the corrected counting rates, even at high counting rates.

Keywords : Thermal Neutron Scintillator, Light Guide, Subcritical Assembly, Cadmium Ratio, Neutron Multiplication Factor, Buckling, Pulsed Neutron Method, Prompt Neutron Lifetime, GM Counter, Resolving Time, Counting Loss Correction

目 次

| | |
|---|----|
| まえがき | 1 |
| 1. 序 説 | 3 |
| 2. 中性子検出器の開発と炉物理実験 | 6 |
| 2.1 中性子シンチレーターの製作とその特性測定 | 6 |
| 2.1.1 実験目的 | 6 |
| 2.1.2 実験方法 | 8 |
| 2.1.3 特性測定 | 9 |
| 2.1.4 最適なシンチレーターの決定 | 13 |
| 2.1.5 結 論 | 15 |
| 2.2 中性子検出器の製作とその特性測定 | 15 |
| 2.2.1 実験目的 | 15 |
| 2.2.2 中性子検出器の構成 | 16 |
| 2.2.3 特性測定 | 17 |
| 2.2.4 中性子検出器の臨界未満実験装置の熱中性子束分布測定への応用 | 23 |
| 2.2.5 結 論 | 25 |
| 2.3 中性子検出器の中性子増倍体系への適用による炉物理実験 | 25 |
| 2.3.1 U-H ₂ O臨界未満実験装置のカドミウム比の測定 | 25 |
| 2.3.2 U-H ₂ O臨界未満実験装置の無限増倍係数の測定 | 30 |
| 2.3.3 U-H ₂ O臨界未満実験装置の材料バッククリングの測定 | 36 |
| 2.3.4 パルス中性子法を用いた即発中性子寿命測定による 実効増倍係数の測定 | 40 |
| 2.4 GM計数管を用いた放射化検出器の高精度放射能測定 | 46 |
| 2.4.1 GM計数装置の分解時間の特性測定 | 47 |
| 2.4.2 GM計数装置における高精度計数損失自動補正法 | 56 |
| 3. 総合的結論 | 66 |
| 謝 辞 | 66 |
| 参考文献 | 67 |

Contents

| | |
|---|----|
| Preface | 1 |
| 1. Introduction | 3 |
| 2. Development of a neutron detector and its applications to reactor physics experiments | 6 |
| 2. 1 Preparation of neutron scintillators and measurements of the characteristics | 6 |
| 2. 1. 1 Introduction to the experiment | 6 |
| 2. 1. 2 Experimental method | 8 |
| 2. 1. 3 Measurement of the characteristics | 9 |
| 2. 1. 4 Decision on optimum scintillator | 13 |
| 2. 1. 5 Conclusions | 15 |
| 2. 2 Construction of neutron detectors and measurements of the characteristics | 15 |
| 2. 2. 1 Introduction to the experiment | 15 |
| 2. 2. 2 Arrangement of the neutron detector | 16 |
| 2. 2. 3 Measurement of the characteristics | 17 |
| 2. 2. 4 Application of the neutron detector to the measurement of thermal neutron flux distribution in a subcritical assembly | 23 |
| 2. 2. 5 Conclusions | 25 |
| 2. 3 Reactor physics experiments by application of the neutron detector to an U-H ₂ O subcritical assembly | 25 |
| 2. 3. 1 Measurement of cadmium ratios in the U-H ₂ O subcritical assembly | 25 |

| | | |
|-----------------|--|----|
| 2. 3. 2 | Measurement of infinite multiplication factor in the U-H ₂ O subcritical assembly | 30 |
| 2. 3. 3 | Measurement of material buckling of the U-H ₂ O subcritical assembly | 36 |
| 2. 3. 4 | Measurement of effective multiplication factor connected with measurement of prompt neutron life-time by using pulsed neutron method | 40 |
| 2. 4 | Accurate activity measurement of a foil activation detector with a G. M. counter | 46 |
| 2. 4. 1 | Measurements on characteristics of resolving time of G. M. counters | 47 |
| 2. 4. 2 | Accurate and direct reading method of counting loss correction for G. M. counters | 56 |
| 3. | General conclusions | 66 |
| Acknowledgment | | 66 |
| References | | 67 |
| Table Captions | | |
| Figure Captions | | |

まえがき

中性子の存在は 1920 年に E. Rutherford⁽¹⁾ によって示唆され、その後の約 10 年間は中性子の確認のため、数多くの実験が行われたが成功には至らなかった。その後、Li や Be などの軽い原子核を α 粒子で衝撃したときに発生する物質透過能力の高い放射線が W. Bothe⁽²⁾ と H. Becker⁽³⁾ および I. Curie⁽⁴⁾ によって観測され、その本質を究明する努力が H. Webster⁽⁵⁾ および I. Curie⁽⁶⁾ と F. Joliot⁽⁷⁾ らによって行われた。

1932 年 J. Chadwick⁽⁸⁾ は、主として Be 金属を α 粒子で衝撃し、発生した未知の放射線によって水素および窒素原子核が受ける反跳エネルギーを、パルス電離箱とオシロスコープを用いて測定した。この結果、透過能力の強い放射線は原子質量が約 1 の中性粒子と結論し、これを "neutron" と命名した。

中性子はその非荷電性の故に、容易に原子核反応を引き起すことができるため、原子核の構造を解明するための鍵として注目され、今日に至るまでその重要な役割を果しつづけている。

中性子発見の直後から、種々の元素に対して中性子を照射する実験が E. Fermi⁽⁹⁾ をはじめとする先駆者達によって行われるようになり、種々の人工放射性核種が生成された。

これら一連の実験の中で、I. Curie⁽¹⁰⁾ と P. Savitch⁽¹¹⁾ による照射ウラン中の放射性核種の発見が先駆となり、O. Hahn⁽¹²⁾ と F. Strassmann⁽¹³⁾ によってその核種は Ba であると結論づけられた歴史的成果が生れた。

この実験結果は核分裂反応の可能性を示唆するものであり、この結果に基づいて L. Meitner⁽¹⁴⁾ と O. Frisch⁽¹⁵⁾ は、"ウラン原子核自身はあまり安定なものではないので、中性子吸収によって原子核自身がほぼ等しい大きさの 2 個の原子核になる可能性があると思われる" と核分裂反応の定性的説明を行った。

さらに、核分裂反応の理論は N. Bohr⁽¹⁶⁾ と J. Wheeler⁽¹⁷⁾ および J. Frenkel⁽¹⁸⁾ によって包括的に発展され、核分裂反応の存在は、理論と実験の両面において明確になった。

核分裂反応の研究の結果、核分裂によって通常 2 個の重い破片（核分裂片または核分裂生成物）と 2 個または 3 個の中性子が発生し、これに伴って大量のエネルギーが放出されることが明らかになった。

1 個の核分裂による平均 2 個以上の中性子放出は核分裂連鎖反応の可能性を意味し、核分裂生成物から放出される遅発中性子の存在は制御状態での核分裂連鎖反応持続の可能性を与えた。

この可能性は 1942 年シカゴ大学に E. Fermi⁽¹⁹⁾ らによって建設された黒鉛-金属ウラン・酸化ウラン体系の原子炉によって実証された。

連鎖反応の持続には、核分裂による中性子の実効的な再生係数（実効増倍係数）が 1 以上である必要があり、この係数を核燃料、減速材および反射体から主として構成される中性子増倍体系について測定することが基本的に重要となった。ここに、種々な中性子増倍体系における中性子増倍係数を理論的および実験的に研究することを当面の目的として原子炉物理が誕生し、

E. Fermi⁽²⁰⁾ が先駆者の役割を果した。

原子炉物理実験においては、体系内の中性子の挙動が基本的な研究対象となるため、中性子計測が最も基本的な実験手段となり、研究の発展にはこの計測法の発達が不可欠なものとなった。

一方、中性子の発見以来、原子核物理の分野においても中性子が関係する核反応が主要な研究対象となり、これに伴って中性子計測法の発達が研究の発展に不可欠なものとなった。

核分裂中性子を対象とする実験的研究においては、核分裂 γ 線、中性子捕獲 γ 線および核分裂生成物から放出される γ 線および β 線とそれに付随する制動放射線による強いバックグラウンド下での中性子計測が余儀なくされる。この点が、中性子計測を必要とする実験を優れた測定精度で行おうとする際の主要な問題点となっている。

特に、中性子増倍体系内の中性子計測においては、体系の構成を忠実に保持した測定の不可欠性および必要とする空間の大きさの制約上、低 γ 線バックグラウンド化のための遮蔽体の使用は不能となる。したがって、この測定目的のためには、 γ 線に対して非常に低感度で、中性子に対しては高い検出効率を有する検出器が必要となる。

一方、増倍体系内中性子の挙動は、必然的に空間依存的に研究する必要がある。このため、減速材あるいは反射体中における高空間分解能での中性子計測が望まれる。

それ故ここでは、 γ 線に対して不感で、中性子に対して高検出効率・高空間分解能を有する検出器の開発研究を行った。また、その検出器を増倍体系内中性子計測へ適用することによって、中性子増倍係数や中性子寿命などの基礎的物理定数を高精度で測定すること目的とする実験を行った。

一般的に、中性子測定においては、標準的な測定法である放射化検出器を用いた測定結果との比較・検討による吟味が望まれる。しかし、放射化検出器の誘導放射能をGM計数装置を用いて測定する方法には、比較的低計数率においても、正しい測定結果が得られない問題点が存在している。このため、その問題点を明らかにするとともに、その点を解決するための測定原理を創出し、この測定法によって正確な測定が可能であることを明らかにする実験的研究もあわせて行った。

加速器、原子炉およびRa-Beなど、あらゆる中性子源を用いる実験においては、必ず強い γ 線バックグラウンドが伴っている。また、中性子はそれ自身核反応を引き起して γ 線などを発生させる。したがって、 γ 線バックグラウンドを伴わない中性子の場は存在しない。

γ 線不感の中性子検出器は核物理や炉物理実験の分野のみならず、核医学や保健物理などのほか、放射線応用計測などの広い分野においても有効なものとして用いることができると思われる。

また、放射線測定装置として最も多く利用されているGM計数装置に、新しい測定原理を導入し、高計数率領域における測定精度を飛躍的に向上させ、使用計数率範囲を数倍以上拡張できたことは、有意義なこととしてあらゆる分野において広く活用できるものと思われる。

1. 序 説

ウラン-235 の熱核分裂によって、零から最大約 10 MeV におよぶ連続的なエネルギー・スペクトル^{(14),(15)}を有する即発性(10^{-10} 秒以内)の中性子が核分裂あたり平均 2.4 個⁽¹⁶⁾発生する。このエネルギー・スペクトルは、 $0.484 \sinh(2E_n)^{1/2} e^{-E_n}$ (E_n : 中性子エネルギー) で良く近似でき、約 2 MeV の平均エネルギーと 0.85 MeV における最大確率密度 $0.35 (\text{MeV}^{-1})$ をもっている。また、核分裂生成核種の壊変によって遅発性の中性子が発生するが、その発生数は核分裂あたり平均 0.016 個⁽¹⁷⁾である。遅発中性子の遅延時間やエネルギーは核種によって異なり、最長の半減期を有する核種は⁸⁷Br であり、その半減期および中性子エネルギーは 55 秒および 250 keV である。即発および遅発性の高速中性子が、ウラン、減速材および反射材などから構成される中性子増倍体系内で発生した場合、その多くは減速材中で散乱をくり返して熱中性子となり、ついには²³⁵U に吸収されて核分裂を引き起す。その他の熱中性子は他の物質に吸収されたり、体系外へ逃れたりする。

高速中性子の一部は、減速過程において体系外へ逃れたり、あるいは主として²³⁸U に吸収される。²³⁸U に吸収された中性子のうち、高速核分裂を引き起すものはごく一部分であり、多くは (n, γ) 反応を発生させる。

以上のような体系内の中性子のバランスは次式によって表わすことができる。

$$\begin{aligned} k_{\text{eff}} &= k_{\infty} \cdot P_{\text{th}} \cdot P_r \\ &= P_{\text{th}} \cdot P_r \cdot \epsilon \cdot p \cdot f \cdot \eta \end{aligned} \quad (1.1)$$

ただし、 k_{eff} は体系内中性子の実効中性子増倍係数、 k_{∞} は無限大体系の中性子増倍係数（無限増倍係数）、 P_{th} は熱中性子の体系外への非漏洩確率、 P_r は減速過程における共鳴中性子の体系外への非漏洩確率、 ϵ は高速核分裂因子、 p は²³⁸U による共鳴吸収を逃れる確率、 f は熱中性子利用率、 η はウランに吸収された熱中性子あたりの中性子発生数である。

核分裂の連鎖反応は $k_{\text{eff}} = 1$ においてはじめて可能となる。したがって、中性子増倍係数は、炉物理定数の中でも最も基本的なものとなり、この値を種々な増倍体系において測定するための中性子計測が重要となる。

中性子増倍体系の中性子計測における最大の問題点は、 γ 線バックグラウンドによって中性子の計測が妨害される点にある。

核分裂に伴って直接あるいは間接的に発生する γ 線^{*}は、即発 γ 線、遅発 γ 線、中性子捕獲 γ 線、消滅光子および制動放射線に分類することができる。

励起状態の核分裂片から分裂後 10^{-3} 秒以内に放出される γ 線を即発 γ 線と定義すれば、その平均エネルギーは $7.64 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})$ であり、その大部分の $6.51 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})$ ⁽¹⁸⁾ のエネルギーは平均 6.7 個の γ 線によって分裂後 10^{-7} 秒以内に放出される。最も大きいエネルギーを有する即発 γ 線としては、10 MeV のものが測定されている。

* ここでは、消滅光子および制動放射線などを含めて γ 線と呼ぶことにする。

このような高エネルギー γ 線は光子-電子カスケードを形成し、その過程において制動放射線と消滅光子を発生させる。

遅発 γ 線は、核分裂後 10^{-3} 秒以上の時間経過の後に発生する γ 線であり、その平均エネルギーは $7.20 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})^{(18)}$ である。そのエネルギーの大部分の $6.65 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})^{(20),(21)}$ は、分裂後の $1 \sim 10^8$ 秒の間に核分裂生成物から放出される。

核分裂に寄与しない熱中性子の多くは体系内物質に吸収されて(n, γ)反応を起し、この結果平均エネルギー $9.3 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})$ の中性子捕獲 γ 線が発生する。中性子捕獲 γ 線のエネルギーや γ 線の個数は、吸収した原子核によって異なるが、例えば鉄の場合、 $0.118 \sim 10.038 (\text{MeV})^{(22),(23)}$ の広いエネルギー範囲にわたって約70種のエネルギー値をもつ γ 線が、全体として約 $1.8 (\text{個} \cdot \text{capture}^{-1})^{(22),(24)}$ の放出率で放出される。高エネルギー中性子捕獲 γ 線は、相互作用の結果、消滅光子と制動放射線を発生させる。また、(n, γ)反応による生成核種の多くは放射性であり、 β 線や γ 線を放出する。

核分裂生成物によって平均 $6.1 (\text{MeV} \cdot \text{fission}^{-1})^{(18)}$ の β 線エネルギーがウラン燃料中に放出される。高原子番号物質であるウラン中においては、 β 線は放射損失を受けやすく、そのエネルギーのかなりの部分が制動放射線の発生のために消費される。

以上のように、核分裂に伴って多数の γ 線が発生するため、中性子増倍体系内においては、非常に強い γ 線バックグラウンド下での中性子計測が余儀なくされる。

実験装置としての中性子増倍体系内の中性子測定には、殆どの場合、In や Dyなどの放射化検出器が用いられている。^{(25)~(30)}

BF_3 計数管や核分裂計数管は中性子密度の時間的変化を測定する中性子寿命測定などの目的に用いられ、中性子束やその分布を測定する目的には、あまり用いられていない。^{(31),(32)}

放射化検出器が主として用いられる理由としては、(i)検出器の誘導放射能から中性子束を求める原理上、 γ 線バックグラウンドの影響を受けない測定が可能である（光核反応によって生ずる誘導放射能は無視できる）、(ii)箔状検出器の使用によって、中性子束低下効果や減速効果の変化が少ない中性子場を保持できる、(iii)空間分解能の高い測定が可能である、(iv)中性子束の絶対測定が可能である、などが挙げられる。放射化法の難点としては、(i)中性子測定感度が低い、(ii)測定結果が即時に得られない、この結果、(iii)中性子束の時間的変化や統計的揺動の測定ができない、などを挙げることができる。

一方、 BF_3 および核分裂計数管は放射化検出器の難点(i)~(iii)を解決できる利点を有している。しかし、これら計数管は、(i)その構造上放射化検出器のような高空間分解能が得られない、(ii)その使用は、必然的に多量の異物（信号ケーブルを含めて）を体系内に持込むことになり、これによって中性子場の乱れが大きくなる、などの困難性を有している。計数管による中性子場の乱れの要因は、その体積の大部分を占める計数ガス（ボイド）による減速効果の低下に伴うエネルギー・スペクトルの硬化と管壁による中性子の無用な吸収に要約できる。また、大きな体積を占める信号ケーブルによっても、減速材とは異なる中性子の吸収と減速効果がもたらされる。

放射化検出器と中性子計数管の長所を合わせもった検出器を開発すれば、(i) γ 線バックグラウンドの影響を受けない高検出効率・高空間分解能の中性子束分布測定が可能になり、(ii)中性子密度の時間的変化や統計的揺動および中性子計数の事象間の時間分布、などの測定が可能になる。

このことによって、定常中性子源を用いる中性子増倍係数や熱中性子拡散距離などのほか、実効増倍係数に結びつく Rossi- α 法⁽³³⁾や Feynman- α 法⁽³⁵⁾による中性子減衰定数の測定が可能になるのみならず、パルス中性子法による中性子寿命測定なども可能になる。

このように、ここで意図した検出器は、中性子増倍体系を対象とした実験的研究における中性子計測目的をほぼ全面的に満足させることができる。

このような検出器としては、大きなQ値と高い原子密度をもつ中性子変換体と γ 線に低感度な蛍光体からなる中性子シンチレーターを用い、そのシンチレーションを減速材と原子組成が近似した光導体で光電子増倍管に導く方式のシンチレーション検出器が最も目的に合致しやすいと考えられる。

このため、ここでは⁶LiF 中性子変換体、ZnS(Ag) 蛍光体およびポリエチレン結合材からなる中性子シンチレーターの製作と特性研究を行った。また、そのシンチレーターとアクリル樹脂光導体を用いたシンチレーション検出器の開発を試みた。ついで、この検出器を天然ウラン-軽水減速材系の中性子増倍体系内の中性子計測に適用し、その体系の基礎的特性値を明らかにするとともに、一連の実験を通じて本検出器の特性や有効性の検討を試みた。

一方、中性子検出器の検出効率の測定やその検出器による中性子束測定においては、最も信頼性が高い放射化検出器による測定結果との比較検討が不可欠である。しかし、GM計数装置による放射化検出器の誘導放射能測定においては、計数損失補正上に問題点が存在する。このため、この問題点の存在を明確に指摘し、その解決を計り、高精度測定を可能にするための研究も一環として行った。

2. 中性子検出器の開発と炉物理実験

実験は、(i)中性子シンチレーターの製作とその特性測定、(ii)中性子検出器の製作とその特性測定、(iii)中性子検出器の中性子増倍体系への適用による炉物理実験、(iv) GM計数管を用いた放射化検出器の高精度放射能測定、の4部によって構成されている。

2.1 中性子シンチレーターの製作とその特性測定

2.1.1 実験目的

低速・熱中性子用シンチレーターとしては、³He 気体シンチレーター、キシレンやトルエンなどの有機溶媒中に Li や B を混合した液体シンチレーター、LiI (Eu) 結晶、Li や B を含有したガラス、Li または B と NaI (Tl) の混合物、ZnS (Ag) と Li, B および核分裂性核種との混合物などの固体シンチレーターが用いられている。^{47, 48, 49, 50, 51, 52, 53, 54, 55, 56, 57, 58}

これらの中性子シンチレーターに用いられている蛍光体の特性を第1表に示す。

増倍体系内の中性子計測を目的としたシンチレーターは、次の条件を満たすことが望まれる。

- (i) γ 線に対しては著しく低い検出効率を有している、
- (ii) 高い熱中性子検出効率を有している、
- (iii) 高い空間分解能を有している、
- (iv) ²³⁵U の核分裂に殆んど寄与しない速中性子に対して低い検出効率を有している、

47, 59, 60
第1表 各種蛍光体の基礎的特性

| 蛍光体 | 密度 (g/cm ³) | 実効原子 番号 | 蛍光量最大 波長 (nm) | 蛍光効率* (相対値) | 減衰時間 (μs) | α/β^{**} |
|-----------------------|----------------------------|--------------------|------------------|-------------------|---------------|---------------------|
| 気体 (³ He) | 0.03 [†] | 2 | 210~ 600 | 1.8 ⁺⁺ | 0.02~ 3 | ~1 |
| 液体 (キシレン) | 0.87 | 5.6 | 380 | 0.46 | 0.006 | ~0.1 |
| セリウム活性化 シリカガラス | 2.48~ 2.67 | 9.2 ⁺⁺⁺ | 395 | 0.2~ 0.3 | 0.1~ 0.075 | 0.23 |
| ZnS (Ag) | 4.1 | 27 | 450 | 2.0 | 0.04~ 0.1 | 2 |
| NaI (Tl) | 3.67 | 50 | 410 | 2.0 | 0.25 | 0.5 |
| LiI (Eu) | 4.06 | 52 | 440 | 0.7 | 1.1~ 1.3 | 0.95 (n/β) |
| アントラセン | 1.25 | 5.8 | 445 | 1.0 | 0.025 | 0.1 |

* アントラセン蛍光体の電子励起による蛍光効率を 1.0 として求めた相対値

** α : α 粒子励起による蛍光効率、 β : 電子励起による蛍光効率

† 246 kg/cm² の気圧における ³He の密度 (³He : 100%)

++ α 粒子励起によるアントラセン蛍光体の効率を 1.0 としたときの相対値

+++ SiO₂ : 55 w/o, MgO : 4 w/o, Al₂O₃ : 18 w/o, CeO₃ : 4 w/o, Li₂O₃ : 17.1 w/o

からなるガラスの平均原子番号

(V) 中性子場の乱れを少なくするため、中性子吸収における高い経済性（中性子利用効率－中性子吸収あたりの計数）を有している。

(VI) その他、増倍体系に対する適用の容易さ、長時間測定における安定性および取扱の簡便性、などを有している。

これらの条件を最もよく満たすものとしては、ZnS (Ag) 蛍光体と⁶LiF 中性子変換体の組合せによるシンチレーターが考えられる。

ZnS (Ag) 蛍光体を利用する主な理由としては、次の点が挙げられる。

(i) 化学的に安定で、NaI (Tl) のような潮解性がない。

(ii) 実効原子番号が小さいため、低γ線感度が期待できる。

(iii) 蛍光効率が最大で、かつα/β比（α：α粒子励起による蛍光効率、β：電子励起による蛍光効率）が蛍光体中で最大の値2を有しているため、中性子に対して高蛍光効率、γ線に対して低蛍光効率となり、結果としてγ線バックグラウンドを除去しやすくなる。

中性子変換体として⁶LiF が適当である理由としては、次の点が挙げられる。

(i) ⁶Li (n, α)³H 反応は、熱中性子に対して大きな断面積（945 バーン）を有し、そのエネルギー依存性は 1/v 法則によく従う。

(ii) この反応のQ値は 4.78 (MeV) とかなり大きい。

(iii) この反応で生成されるα粒子と三重水素原子核の飛程は、¹⁰B (n, α)⁷Li 反応 (Q値: 2.79 MeV) における生成粒子の飛程より約10倍長いため、蛍光体を励起する確率、したがって中性子検出効率が高くなる。

(iv) LiF は高いLi原子存在比と蛍光に対する高い透過性をもち、化学的性質も安定である。

一方、気体(³He)シンチレーターは高圧化および不断の気体純化の必要性や速中性子に対する比較的大きい吸収断面積の故に不適当である。また、液体シンチレーターは蛍光効率とα/β比の低さの故に、LiI (Eu) と NaI (Tl)－中性子変換体の両シンチレーターは高γ線感度および低α/β比の故に中性子増倍体系内での使用は困難である。

ZnS (Ag)－⁶LiF 混合シンチレーターの検出効率の増加は、ZnS (Ag) と⁶LiF の含有量および ZnS (Ag) または⁶LiF のいずれかの含有率の増加によってもたらされる。しかし、この増加に伴って蛍光の吸収・散乱も増加するため、蛍光出力の減少が起る。このように、検出効率と蛍光出力の間には背反的な関係が存在すると考えられる。この背反性はシンチレーターの厚さの関係においても存在すると思われる。

また、中性子利用効率の面においては、ZnS (Ag) と⁶LiF の間に良好な効率を与えるための適当な存在比があると考えられる。さらに、ZnS (Ag) と⁶LiF の結合材として用いられるアクリル樹脂やポリエチレンなどの存在比においては、この存在比の増加は光導性の向上、換言すれば蛍光出力の増加をもたらすが、この反面、核反応生成粒子の吸収の増加、換言すれば検出効率と中性子利用効率の低下をもたらす。また、結合材の存在比の増加は、(n, p) 散乱による高速中性子感度增加の不都合をもたらす。

したがって、蛍光体、中性子変換体および結合材の相互の存在比の最適化を計ることが重要になる。このため、種々な存在比におけるシンチレーターの基本的特性をそれぞれ明らかにし、それらを体系化することが必要になる。

$ZnS(Ag) - {}^6LiF$ シンチレーターに関しては、R. Stedman⁵⁴ および P. G. Koontz⁵⁵ らによる研究がある。しかし、これらの研究においては、検出効率と蛍光出力の各材料の存在比やシンチレーター厚さ依存性など、最適なシンチレーターを得るために研究が体系的に十分行われておらず、中性子利用効率に対しても考慮がはらわれていない。

このため、ここでは種々な存在比のシンチレーターを製作し、その特性を測定することによって、 $ZnS(Ag) - {}^6LiF$ シンチレーターの特性を体系的に明らかにする実験を試みた。

2.1.2 実験方法

平均粒径がそれぞれ 20 μm および 1 μm の $ZnS(Ag)$ および 6LiF を用いた。これらの粒径は顕微鏡で観測した。

6LiF は、 6Li が 96% に濃縮されたものをオークリッヂ国立研究所（米国）より入手して使用した。

結合材には細断したポリエチレン薄膜を用いた。

シンチレーターの製作方法を次に示す。

適当量の $ZnS(Ag)$ と 6LiF を均一に攪拌する。一方、適量のポリエチレンをるつぼで加熱して軟化させる。このポリエチレンに $ZnS(Ag) - {}^6LiF$ 混合物を加え、約 20 分間加熱状態でこれらを均一に混合させる。この混合物を 2 枚のアルミニウム箔と 120°C 前後に加熱されている 2 枚の鉄板でサンドイッチし、薄板状のシンチレーターに圧延する。シンチレーターの厚さの調節には金属薄板製の円環状のスペーサーを用いた。厚さの均一性を得るために、シンチレーターを回転させながら数回加圧をくり返した。加熱鉄板の冷却後、シンチレーターを取り出し、アルミニウム箔をはぎ取り、適当な寸法に切り取って使用する。

特性測定には、直径 12 mm のシンチレーターを RCA 6810 A 光電子増倍管の窓面中央部にダウ・コーニング社製シリコン・コンパウンドで光学的に接着して用いた。

光電子増倍管の出力信号はカソード・ホロワーに供給され、その出力は TMC 社製 404 型多重波高分析器で分析された。

測定系の安定性は特性測定のたびに、 $NaI(Tl)$ シンチレーターと ${}^{54}Mn$ γ 線源を用いて検査し、一連の測定を通じて測定系の利得を一定に保持した。

熱中性子によるシンチレーターのパルス波高は、 $NaI(Tl)$ と γ 線源を用いて分析器のエネルギー校正を行った関係上、 γ 線の $NaI(Tl)$ におけるパルス波高として表わされている。

パルス波高の弁別電圧は、一連の測定を通じて、250 keV に設定した。この弁別電圧においては、雑音パルスは殆んど観測されなかった。

中性子源としては、 ${}^{241}Am - Be$ (1 Ci) が用いられた。この中性子源は、蒸溜水を満たしたタンク中に固定され、検出器はタンク外壁面に密着するように設置された。

シンチレーターの検出効率を求めるため、検出器を設置したタンク壁面の熱中性子束を、放射化検出器（金箔）によるカドミウム比法によって測定した。放射化検出器の誘導放射能は、 $\beta - \gamma$ 同時計数法によって測定した。

この結果得られた熱中性子束の値は、JAERI の中性子束標準との比較測定による値と良好な一致をみた。この比較測定においては、In 箔が用いられ、熱中性子束はカドミウム比法によって

評価された。放射化検出器の中性子照射においては、シンチレーターの中性子照射と同一条件を保つため、光電子増倍管窓面にAu およびIn 箔を装着した。熱中性子束の測定精度は±20%以内と考えられる。

2.1.3 特性測定

(A) シンチレーターの検出効率

特性測定に用いたシンチレーターのZnS (Ag), ^{6}LiF およびポリエチレンの混合比を第2表に示す。測定に供したシンチレーターの厚さは、約0.1mmから0.7mmにわたっている。

第2表 ZnS (Ag), ^{6}LiF およびポリエチレンの混合比

| 混合物 番号 | 混合比(重量) | | |
|-----------|----------|------------------|--------|
| | ZnS (Ag) | ^{6}LiF | ポリエチレン |
| 1 | 2.00 | : 1.40 | : 1.00 |
| 2 | 2.00 | : 1.00 | : 1.00 |
| 3 | 3.00 | : 1.00 | : 1.00 |
| 4 | 4.00 | : 1.00 | : 1.00 |
| 5 | 5.00 | : 1.00 | : 1.00 |
| 6 | 4.00 | : 1.00 | : 2.00 |
| 7 | 5.00 | : 2.00 | : 2.00 |
| 8 | 5.00 | : 1.00 | : 4.00 |

種々な混合比のシンチレーターに対して測定した検出効率の厚さ依存性を第1図に示す。

第1図の結果は、検出効率 ϵ (%) と厚さ t (mm) の間に、次式で示される関係が存在することを示している。

$$\epsilon = at - bt^2 \quad (2.1)$$

ただし、a および b は定数である。

実験データを最小二乗法でフィットして求めた定数 a および b を第3表に示す。同表には、それぞれの混合比における最大の検出効率 ϵ_m (%) とその効率を与えるシンチレーターの厚さ t_m (mm) が合わせて示されている。

第1図に示されている実線は、第3表の定数を (2.1) 式に用いて得た関係式が示す曲線であり、 t_m および ϵ_m はこの関係式から求めた計算値である。

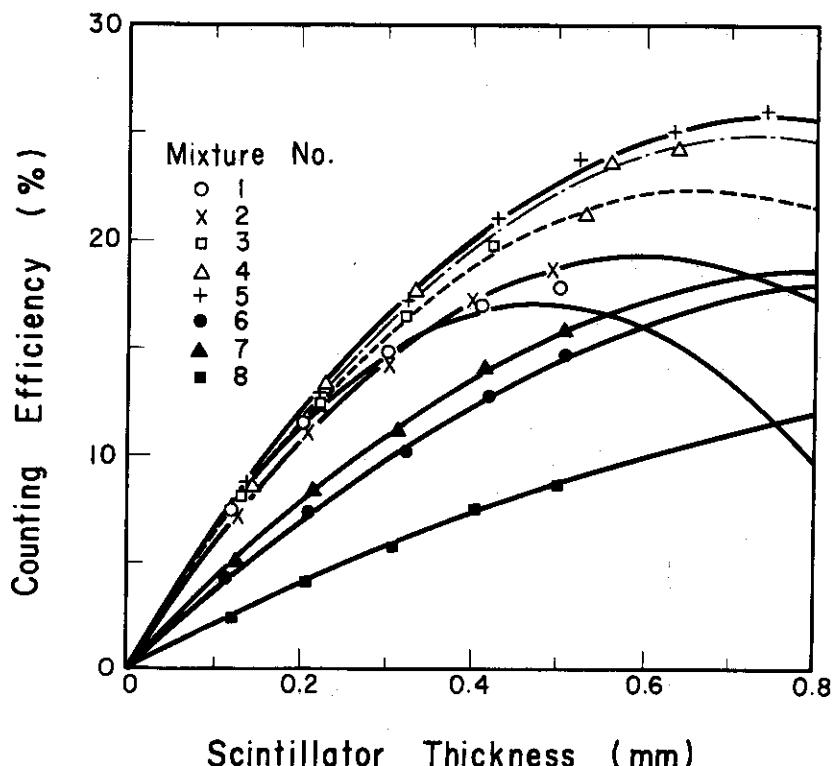
第1図の結果は次の点を明らかにしている。

- (i) 検出効率はシンチレーターの厚さとともに放物線を画いて変化する。
- (ii) 最も高い検出効率は、ZnS (Ag) : ^{6}LiF : ポリエチレン = 5 : 1 : 1 の重量比において得られ、 ϵ (%) と t (mm) の関係は次式で表わされる、

$$\epsilon = 67.64 t - 44.55 t^2 \quad (2.2)$$

- (iii) 検出効率は、ZnS (Ag) / ^{6}LiF の比とともに増加する。

* 単位熱中性子束あたりの計数率と定義した。



第1図 種々な混合比におけるシンチレーター厚さと検出効率の関係
(混合物番号と混合比の関係は第2表に示されている。)

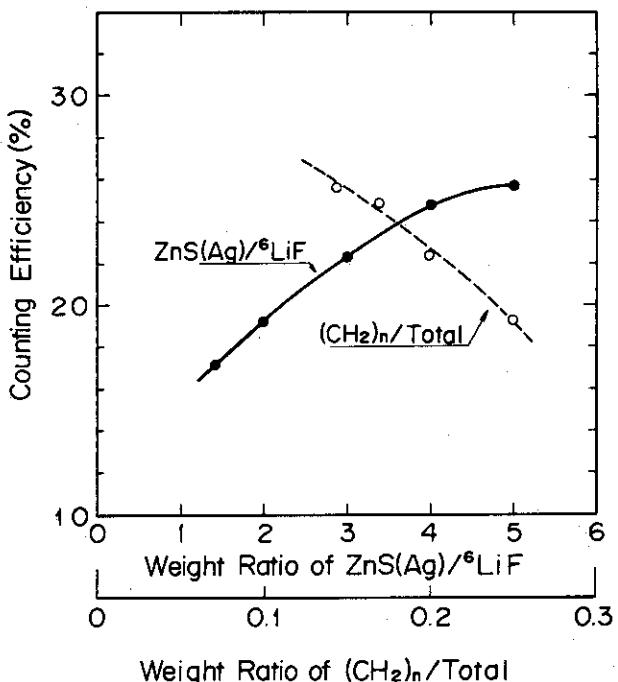
第3表 定数a, b および最大検出効率 ϵ_m とそれを示す
シンチレーター厚さ t_m

| 混合物 番 号 | a | b | ϵ_m (%) | t_m (mm) |
|------------|-------|-------|---------------------|---------------|
| 1 | 70.46 | 72.62 | 17.2 | 0.49 |
| 2 | 63.95 | 53.10 | 19.3 | 0.60 |
| 3 | 67.10 | 50.20 | 22.4 | 0.67 |
| 4 | 67.35 | 45.65 | 24.9 | 0.74 |
| 5 | 67.64 | 44.55 | 25.7 | 0.76 |
| 6 | 38.66 | 19.93 | 18.9 | 0.97 |
| 7 | 44.55 | 26.43 | 18.7 | 0.84 |
| 8 | 21.62 | 8.46 | 13.9 | 1.29 |

(iv) ポリエチレンは α および ${}^3\text{H}$ 粒子を吸収するため、その存在比の増加に伴って検出効率は低下する。

以上のうち(iii)および(iv)は、熱中性子利用効率が $\text{ZnS}(\text{Ag})$ の存在比の増加、ポリエチレンの存在比の減少に伴って向上することを示している。この重要な点を明らかにするため、検出効率の重量比、 $\text{ZnS}(\text{Ag})/{}^6\text{LiF}$ およびポリエチレン/全材料、に対する依存性を第2図にプロットし

た。第2図の結果は、No.5混合物の中性子変換体あたりの検出効率、すなわち中性子利用効率が最大で、その効率が飽和状態に近いことを示している。



第2図 $ZnS(Ag)/{}^6LiF$ およびポリエチレン/全材料の比と検出効率の関係(比は重量比で表わされている。)

(B) シンチレーターのパルス波高

種々の厚さのシンチレーター(No.5混合物)の熱中性子に対するパルス波高分布を第3A~3C図に示す。同図から明らかなように、このシンチレーターは幅広いパルス波高分布をもっている。これは、励起エネルギーあたりの蛍光量の統計的揺動や結合材中における励起荷電粒子のエネルギー損失量のバラツキなどによるが、その主な原因是、シンチレーター中における蛍光の吸収および散乱に伴う減衰にあると思われる。

このような広い分布の故に、このシンチレーターのパルス波高は、次のように定義される平均パルス波高 P_{av} を用いて表わす必要がある。

$$P_{av} = \int N(p) pdp / \int N(p) dp \quad (2.3)$$

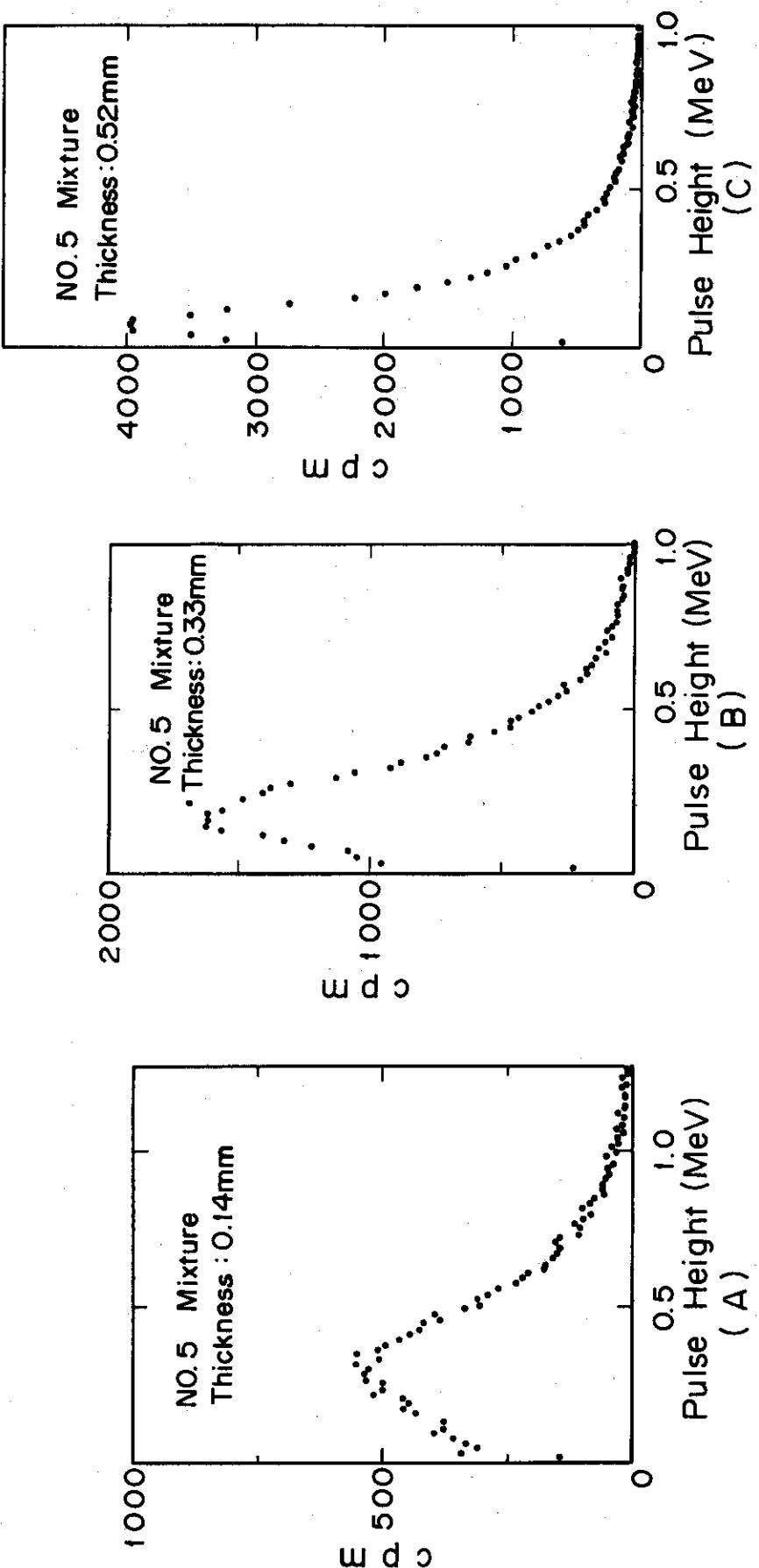
ただし、 $N(p)$ はパルス波高 p を有するパルスの計数率である。

平均パルス波高のシンチレーター厚さ依存性を、最大の検出効率を示したNo.5混合物と、そのポリエチレン混合比を4倍に増加させたNo.8混合物のシンチレーターについて測定した。その結果を第4図に示す。

第4図の結果から、 P_{av} は厚さの増加に伴って指数関数的に減衰し、その傾向は次式で表わせることができた。

$$P_{av}(t) = P_0 \exp(-\mu t) \quad (2.4)$$

ただし、 P_0 は厚さ t (mm) が零のときの P_{av} [MeV, NaI(Tl)- γ 線スケール]、 μ は蛍光に対する吸収係数 (mm^{-1}) である。



第3図 種々な厚さのシンチレーターの熱中性子に対するパルス波高分布
(シンチレーターには混合物番号5のものが用いられ、パルス波
高は NaI(Tl) - γ 線スケールで表わされている。)

No. 5 混合物のシンチレーターに対しては、次の結果が最小二乗法によって求められた。

$$P_{av}(t) = 0.655 \exp(-1.85 t) \quad (2.5)$$

第4図の結果から明らかなように、ポリエチレンの含有率の高いNo. 8 混合物においては、透明度が改善され、吸収係数はNo. 5 混合物より小さくなっている。

(C) シンチレーターの γ 線不感性

シンチレーターの γ 線不感性のテストには、検出効率がほぼ最高であるNo. 5 混合物の0.64 mm厚のものが用いられた。

用いたシンチレーターの直径は光電子増倍管の光電陰極に等しく、43 mmである。

γ 線源としては ^{226}Ra を用い、これをシンチレーター前方に同軸状に配置した。この結果、シンチレーターは5 R/hの線量率で照射された。

測定の結果、 γ 線に起因する計数率として、単位シンチレーター面積あたり約3 cpmが記録された。一方、光電子増倍管自身に起因するパルスは、照射前および照射中を問わず、殆んど記録されなかった。

以上のテストによって、このシンチレーターの著しい γ 線不感性が実証された。

(D) その他の特性

(i) 光学反射体のパルス波高における効果

シンチレーターにAl箔、 Al_2O_3 および TiO_2 などの反射体を用いることによって、パルス波高の向上を試みた。この結果、シンチレーター表面を光沢のあるAl箔で軽く覆ったものが最も反射効率が高く、パルス波高は1.3倍に、検出効率は1.2倍に増加した。粉末状の Al_2O_3 および TiO_2 も反射体として有効であり、パルス波高と検出効率は、それぞれ約15%増加した。

(ii) ZnS (Ag) 蛍光体の残光性

ZnS (Ag) 蛍光体の残光性はよく知られている。この点をテストするため、直径25 mmのシンチレーターを日光で1時間照射し、照射終了5分後から測定を行った。この結果、ここでの測定条件下においては、ZnS (Ag) の残光性によるパルスは明確には記録されなかった。

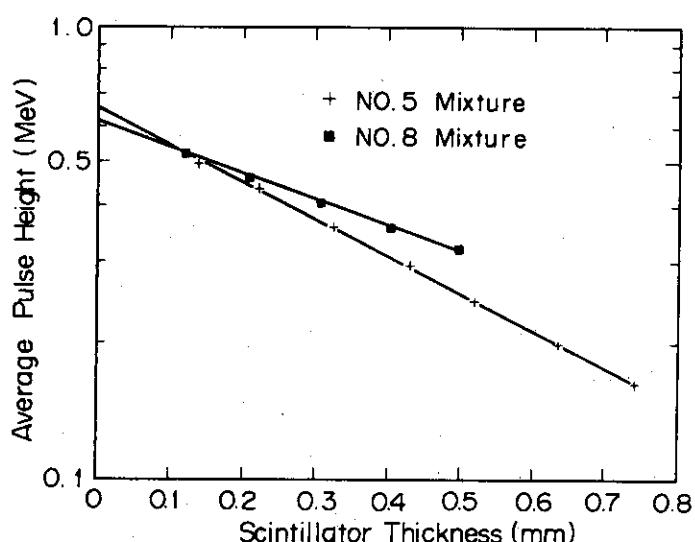
2.1.4 最適なシンチレーターの決定

特性測定の結果、No. 5 混合物が最も高い検出効率と中性子利用効率を示した。検出効率はシンチレーターの厚さとともに増加し、0.76 mmにおいて最大値に達する。一方、パルス波高はシンチレーターの厚さとともに指數関数的に減少する。

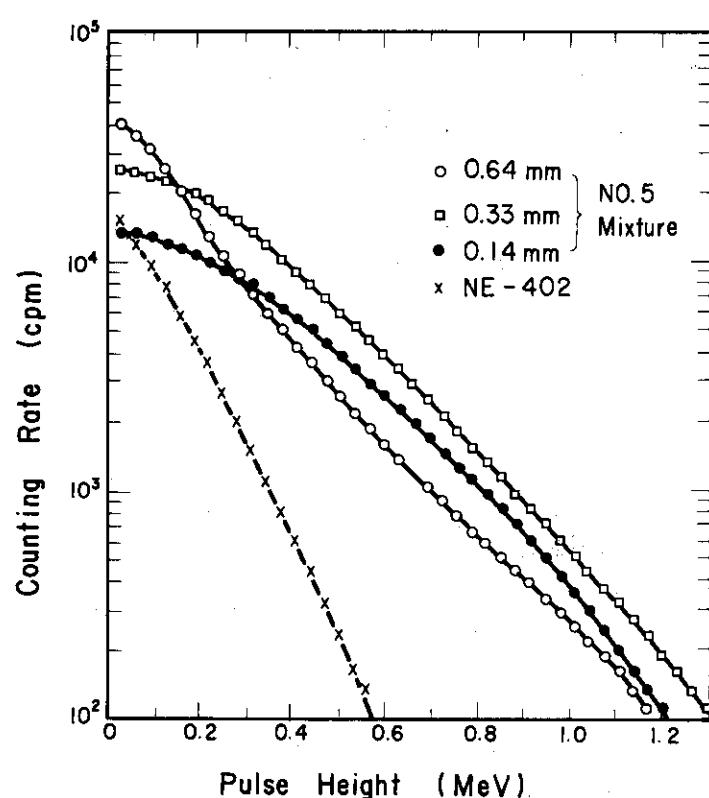
以上のように、高検出効率と高パルス波高の特性は両立しないため、適当な厚さのシンチレーターを選定する必要がある。この選定基準はシンチレーターの使用目的によって異なるが、検出効率を第一義的に考えた場合、0.65 mm厚のNo. 5 混合物を適当なシンチレーターとするのが妥当と思われる。その根拠は、0.65 mm厚における検出効率は0.76 mm厚の98%であるが、その平均パルス波高は0.76 mmの120%にも達する点にある。

No. 5 混合物の種々な厚さのシンチレーターの積分パルス波高分布を第5図に示す。同図には参考のため、NE 402シンチレーター^{*}の分布がともに示されている。

* ホウ素ガラスとZnS (Ag) からなるシンチレーターであり、 ^{10}B は90%に濃縮され、熱中性子に対して約30%の検出効率（公称）を有している。



第4図 シンチレーター厚さと熱中性子に対する平均パルス波高の関係
(混合物番号5および8のシンチレーターが用いられ、パルス
波高はNaI(Tl)- γ 線スケールで表わされている。)



第5図 種々な厚さのシンチレーターの積分パルス波高分布 (混合物番号5
のシンチレーターが用いられ、参考のためにNE402シンチレーター
($^{10}\text{B} + \text{ZnS}(\text{Ag})$) の分布も合わせて示されている。パルス波高は
NaI(Tl)- γ 線スケールで表わされている。)

第5図の分布の傾向は、高検出効率のシンチレーターでは測定の安定性が低下し、低検出効率のものでは安定性が向上することを示しており、実験目的によるシンチレーター選択の必要性を示している。

一方、NE 402 は、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ 反応の低いQ値と短い生成粒子の飛程の故に、パルス波高がNo.5混合物の約50%に低下し、検出効率および測定の安定性の点においても、No.5混合物にはおよばないことが示されている。

2.1.5 結論

$\text{ZnS}(\text{Ag})$, ^6LiF およびポリエチレン混合シンチレーターの製作と特性測定の結果、検出効率と中性子利用効率の混合比依存性、検出効率とパルス波高のシンチレーター厚さ依存性など、このシンチレーターの基本的特性を体系的に明らかにすることができた。これによって、測定目的に適したシンチレーターの仕様が容易に決定できるようになった。

- (i) 最も優れた検出効率と中性子利用効率を有するシンチレーターの混合比(重量)としては次の結果が得られた。 $\text{ZnS}(\text{Ag}) : ^6\text{LiF} : \text{ポリエチレン} = 5 : 1 : 1$
- (ii) シンチレーターの検出効率 ϵ (%)と厚さ t (mm) の間には、次の関係があり、厚さ 0.76 mmにおいて最大の効率 26% ($\text{counts}/\text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) が得られることが明らかになった。

$$\epsilon = 67.64 t - 44.55 t^2$$

- (iii) シンチレーターの平均パルス波高 P_{av} [MeV, $\text{NaI}(\text{Tl}) - \gamma$ 線スケール] は厚さ t (mm) の増加に伴って、次式に示す指數関数に従って減衰することが明らかになった。

$$P_{av}(t) = 0.655 \exp(-1.85 t)$$

- (iv) シンチレーター(0.64 mm厚)の γ 線(^{226}Ra 線源)に対する不感性をテストした結果、 5R/h において約3 cpm(単位シンチレーター面積あたり)が得られ、著しい γ 線不感性が明らかになった。

以上の結果から、このシンチレーターを増倍体系内の中性子計測へ適用し得る可能性を見出すことができた。

2.2 中性子検出器の製作とその特性測定

2.2.1 実験目的

増倍体系内の中性子をシンチレーション検出器を用いて測定するためには、光導体の使用が不可欠である。その理由として、光電子増倍管の寸法が被測定空間に比べて大きすぎる、光電子増倍管の体系への挿入は、望ましくない中性子吸収物質とボイドを持ち込む、などが挙げられる。

光導体による中性子場の乱れを少なくするには、減速材物質に近似した核的特性を有する物質を光導体に用いる必要がある。一方、光学的見地からは、(i) 蛍光に対する高い透過度、(ii) 内部反射による光導効率を高めるための高い屈折率、(iii) 萤光の光電陰極への高い伝達効率を得るために蛍光体と光電陰極面ガラスに対する屈折率の整合性、などが光導体物質に要求される。

代表的な光導体物質としては、石英、^{62,63} ポリスチレン⁶⁴ およびアクリル樹脂などがある。

中性子に対する核的特性を含めたこれらの物質の基礎的特性を、軽水減速材の特性とともに

^(59,67)
第4表に示す。同表に示されている ξ は、中性子の散乱あたりの平均エネルギー減少率を対数で表わした対数エネルギー減少率、 Σ_a および Σ_s は、それぞれ巨視的吸収および散乱断面積である。また、 $\xi \Sigma_s$ は減速能、 $\xi \Sigma_s / \Sigma_a$ は減速率であり、これらは減速材の有効性を表わす尺度として用いられている。

第4表 光導体物質の基礎的特性

| 物 質 | 密 度 (g/cm ³) | 平均原 子番号 | 屈 折 率 (波長, nm) | Σ_a (cm ⁻¹) | Σ_s (cm ⁻¹) | $\xi \Sigma_s$ | $\xi \Sigma_s / \Sigma_a$ |
|--------|-----------------------------|------------|-------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|----------------|---------------------------|
| 石 英 | 2.65 | 10 | 1.56(404.7) | 0.0043 | 0.27 | 0.014 | 3.2 |
| ポリスチレン | 1.07 | 3.5 | 1.62(435.8) | 0.017 | 2.12 | 1.92 | 112.9 |
| アクリル樹脂 | 1.19 | 3.6 | 1.50(435.8) | 0.017 | 2.10 | 2.05 | 120.8 |
| 軽 水 | 0.997 | 3.3 | 1.34(540.0) | 0.022 | 2.67 | 2.47 | 112.3 |

第4表は、軽水减速型中性子増倍体系の場合、ポリスチレンかアクリル樹脂が光導体物質として適當であることを示している。両者のうち、屈折率が高いポリスチレンの方が高い光導効率が期待できる。⁽⁴⁷⁾しかし、ポリスチレンは微弱な蛍光を発生する性質がある。この性質は、連続パルス波高分布のパルスを発生させるシンチレーターを用いることでの測定においては致命的な欠点となる。

一方、アクリル樹脂にはこのような性質はないといわれている。⁽⁶⁶⁾このため、ここではアクリル樹脂を光導体物質として用いることにした。

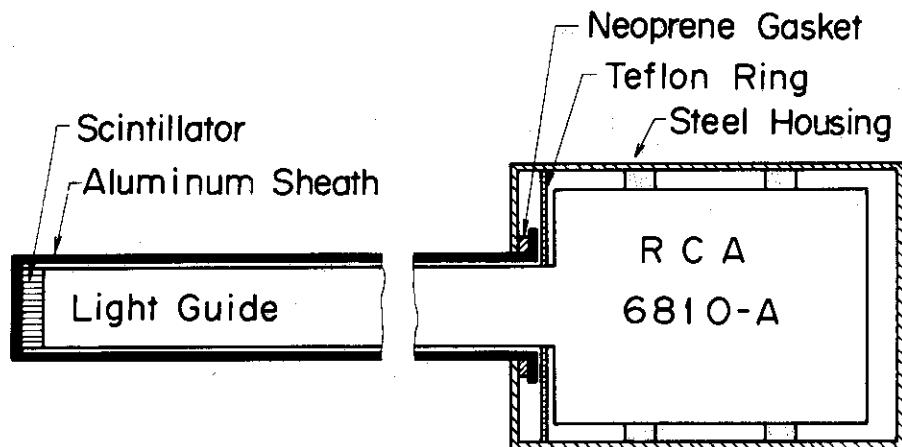
ここで測定対象としている中性子増倍体系の構造上、光導体は 1050 mm の長さが必要であり、その直径は、最大の U/H₂O 体積比の体系の場合 8 mm に、最小の U/H₂O 比の場合 24 mm に制約される。このような光導体においては、著しい光導効率の低下が予測される。

このため、ここでは光導体の光導効率の測定にはじまり、光導体とシンチレーターを組み合わせた検出器による増倍体系の熱中性子束分布測定に至る一連の実験を行った。⁽³⁹⁾

2.2.2 中性子検出器の構成

中性子検出器の構成を第6図に示す。アクリル樹脂製光導体の先端には ZnS(Ag)-⁶LiF 混合シンチレーターが、他端には RCA 6810 A 型光電子増倍管が装着され、これらは互いにダウ・コーニング社製 C-2-0057 シリコン・コンパウンドで光学的に接着されている。光導体はアルミニウム製のさやに、光電子増倍管（電圧分割回路などを含む）は鉄製の容器に入れ、両者をネオプレン製ガスケットを介して接合した。光導体とさやを光学的に絶縁するため、テフロン薄板製のリングをスペーサーとして用いた。

光導体としては、直径がそれぞれ 8, 12, 16 および 24 mm で、長さが 1050 mm のものを用いた。これらの寸法は、日本原子力研究所の非均質天然ウラン・軽水减速型臨界未満実験装置 (JAERISA) に適合するものである。



第6図 $\text{ZnS}(\text{Ag})-\text{LiF}$ シンチレーターとアクリル樹脂製光導体を用いた
シンチレーション検出器の構成

2.2.3 中性子検出器の特性測定

(A) 光導効率の測定

光導効率の測定には、それぞれの直径について3本の光導体を用いた。これらの光導体は全て鏡面研磨が施されている。

パルス化光源としては、 $\text{CsI}(\text{Tl})$ 結晶(直径8mm, 厚さ1mm)と $0.1\mu\text{Ci}$ の $^{241}\text{Am}\alpha$ 線源(白金板上に線源溶液を滴下して乾固させたもの)から構成されるものを製作した。

光パルサーのパルス波高分布を参考のため第7図に示す。同図に示した分布は、プラスチック・シンチレーターを含めて製作した約10個の中で、5.48 MeVの α 粒子に対して最も優れたエネルギー分解能を示した光パルサーによって得られたものである。

光導効率はパルス波高分布のピーク位置(チャンネル番号)の変化をTMC404型多重波高分析器で測定する方法によって求めた。光導効率は、光パルサーを光電子増倍管に直接装着したときに行なわれた波高値に対する比として求めた。

光導効率の測定結果を第5表に示す。同表の結果は、細い光導体ほど表面からの光の漏洩が多くなるため、光導効率が低下し、同一直径の光導体においても、吸光度の個体差によって効率にかなりの差が生ずることを示している。

光導効率には、光導体の表面状態が大きく寄与するため、表面状態と光導効率の関係を測定した。測定結果を第6表に示す。この測定においては、表面効果を強調するため、直径8mmの光導体を用いた。

第6表は、鏡面研磨の表面が最も優れた効率を示し、これとほぼ同等の効率が、アルミニウム箔でゆるやかにカバーした状態で得られることを示している。

第5表 アクリル樹脂光導体の光導効率*

| 光導体直径 (mm) | 光導体番号 | 光導効率 (%) | 平均光導 効率 (%) |
|---------------|-------|-------------|----------------|
| 8 | 1 | 13.0 | 16.3 |
| | 2 | 15.5 | |
| | 3 | 20.5 | |
| 12 | 1 | 22.8 | 21.0 |
| | 2 | 14.1 | |
| | 3 | 26.2 | |
| 16 | 1 | 23.4 | 35.9 |
| | 2 | 46.9 | |
| | 3 | 37.5 | |
| 24 | 1 | 40.0 | 38.4 |
| | 2 | 32.3 | |
| | 3 | 43.0 | |

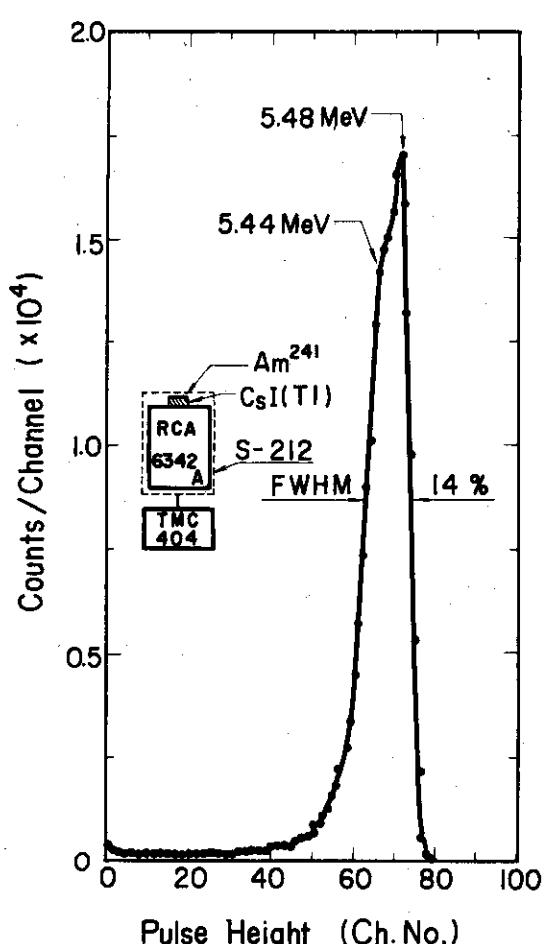
* 光導体の長さ：1050 mm

光パルサー : CsI(Tl) + α (^{241}Am)

第6表 光導体の表面状態と光導効率の関係*

| 光導体の表面状態 | 光導効率 (相対値) |
|------------------------------------|---------------|
| 全面鏡面研磨 | 1.00 |
| 光沢のあるアルミニウム箔で光導体をできるだけ緊密に巻いた | 0.39 |
| 光沢あるアルミニウム箔で光導体をゆるやかに巻いた | 0.99 |
| α アルミナ粉末を光導体とシースの間に緊密につめ込んだ | 0.35 |
| 光導体側面を AA-100 級の紙やすりで荒くした | パルスの雑音との識別不能 |

* 光導体の直径：8 mm, 長さ：1050 mm

第7図 CsI(Tl)蛍光体と ^{241}Am α 線源からなる光パルサーのパルス波高分布

以上の結果に基づき、全面鏡面研磨した光導体をアルミニウム製のさやに入れて用いることにした。

(B) 光導体との組合せによる最適シンチレーター厚さの選択

ZnS(Ag)-⁶LiF混合シンチレーターは、熱中性子に対して連続パルス波高分布を示すため、検出効率は光導体の光導効率に依存する結果になる。

このため、それぞれの光導体の光導率に適した特性のシンチレーターの使用によって、検出効率と中性子利用効率の最適化を図る必要がある。

このことを目的とした実験には、最小および最大の光導効率をもつ直径 8 mm および 24 mm の光導体を使用した。

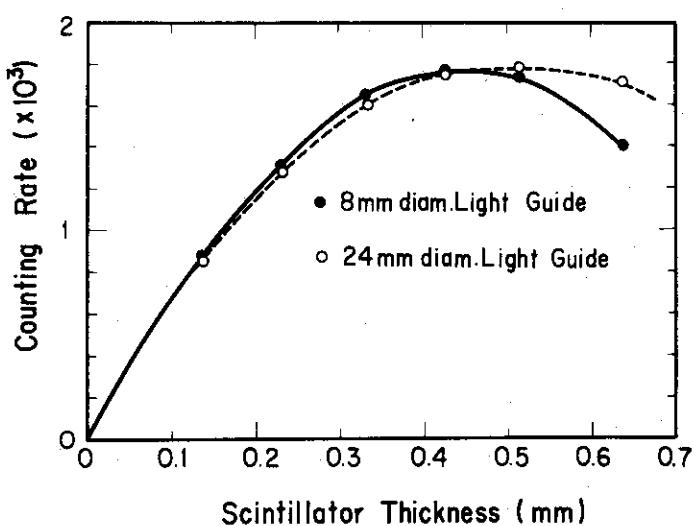
シンチレーターには直径が 8 mm で、厚さが 0.13 mm から 0.63 mm にわたるもの 6 種類を使用した。

パルス波高分析器の波高弁別閾は、実験を通じて約 10 keV に固定された。

検出器有感部を JAERISA の中心部に挿入し、光導体とシンチレーターの種々な組合せによる中性子の測定を行った。このとき、JAERISA の底面中央部には、²⁴¹Am-Be 中性子源が置かれた。

種々なシンチレーター厚さに対する計数率の測定結果を第 8 図に示す。同図から、0.45 mm 以上のシンチレーター厚さでは、低光導効率の直径 8 mm 光導体使用の検出効率は最大値を示し、高光導効率の直径 24 mm 光導体の場合でも、効率はほぼ飽和値を示すことが明らかになっている。

以上の結果から、光導体を用いる場合には、その直径に関係なく、0.45 mm 厚のシンチレーターが最大の検出効率を与えると判断できる。



第 8 図 光導体を用いた場合のシンチレーター厚さと熱中性子計数率の関係
(光導体には長さが 1050 mm のアクリル樹脂を用いた。)

(C) 他の中性子検出器との特性の比較

このシンチレーション検出器の特性を他の中性子検出器のそれと比較するための実験を行った。

比較のためには、セリウム活性化リチウムガラス中性子シンチレーターとBF₃計数管が用いられた。

ガラス・シンチレーターは、NE 905 (7.3% Li, ⁶Li : 96%) と NE 906 (7.9% Li, ⁷Li : 99.99%) をそれぞれ直径 10 mm, 厚さ 2 mm に成形して用いた。また、BF₃ 計数管としては、20 th Century Electronics 社製の 12 EB 40 型および日立製作所製の EB 215 B-4 型を用いた。

直径がそれぞれ 10 mm の ZnS (Ag) - ⁶LiF シンチレーター (厚さ 0.42 mm) とガラス・シンチレーターの熱中性子に対するパルス波高分布を第 9 図に示す。この分布は、直径 16 mm の光導体を用いた JAERI SA 内の中性子測定によって得たものである。

(i) 検出効率

ZnS (Ag) - ⁶LiF シンチレーター、ガラス・シンチレーターおよび BF₃ 計数管の検出効率を第 7 表に示す。同表には、後で述べるように、検出効率向上のために製作した同筒型シンチレーターに対する結果も合わせて示されている。また、 ϵ_n / R_s [ϵ_n : 中性子検出効率, R_s : 空間分解能 (検出器有感体積)] と定義した検出器の性能指数 (figure of merit) も合わせて示されている。

第 7 表 ZnS (Ag) - ⁶LiF シンチレーター、ガラス蛍光体および BF₃ 計数管の検出効率と性能指数の比較

| 検出器 | 有感寸法 (mm) | 検出効率 (相対値) | 性能指数 (相対値) |
|----------------------------------|---------------------|---------------|---------------|
| ZnS (Ag) - ⁶ LiF | 10(直径) × 0.42(厚) | 0.36 | 154 |
| ZnS (Ag) - ⁶ LiF | 16(直径) × 0.42(厚) | 0.93 | 155 |
| ZnS (Ag) - ⁶ LiF* | 8(直径) × 20(高) | 2.33 | 32.6 |
| ZnS (Ag) - ⁶ LiF** | 18(直径) × 30(高) | 7.39 | 11.5 |
| NE 905 ガラス蛍光体 | 10(直径) × 2(厚) | 1.19 | 107 |
| BF ₃ 計数管 (12EB 40) | 25(直径) *** × 120(長) | 5.13 | 1.22 |
| BF ₃ 計数管 (EB 215 B-4) | 16(直径) *** × 70(長) | 1.00 | 1.00 |

* 円筒形のシンチレーター

** 24mm(直径) × 1050 mm(長) の光導体を使用

*** 外径

BF₃ 計数管は長い有感長をもっているため、効率測定にあたっては、長さ方向の中性子束分布の一定性を保持することが重要である。このため、検出効率の測定においては、中性子源を除去し、平坦な空間分布を示す自発核分裂による中性子を利用した。

それぞれ 10 mm の直径の ZnS (Ag) - ⁶LiF とガラス・シンチレーターの比較においては、前者の検出効率は後者のそれの約 $1/3$ であり、直径 16 mm の ZnS (Ag) - ⁶LiF と BF₃ 計数管 (70 mm 長)

* 外径 : 25 mm, 有感長 : 120 mm, ガス圧 : 40 cmHg, ¹⁰B 濃縮度 : 90% 以上, 感度 : 3.0 カウント/ $n \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$

** 外径 : 16 mm, 有感長 : 70 mm, ガス圧 : 40 cmHg, ¹⁰B 濃縮度 : 96%

の比較においては、両者はほぼ同程度の効率を有していることが第7表に示されている。

$ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターの検出効率を一層向上させることを目的として、薄板状のシンチレーターを円筒型に成形し、面積の増加に伴う効率の増加を図ったものが、第7表中に示されている円筒型シンチレーターである。この型のシンチレーターにおいては、空間分解能を犠牲にせざるを得ないが、これによって効率の大幅な増加が達成できたことが第7表に示されている。

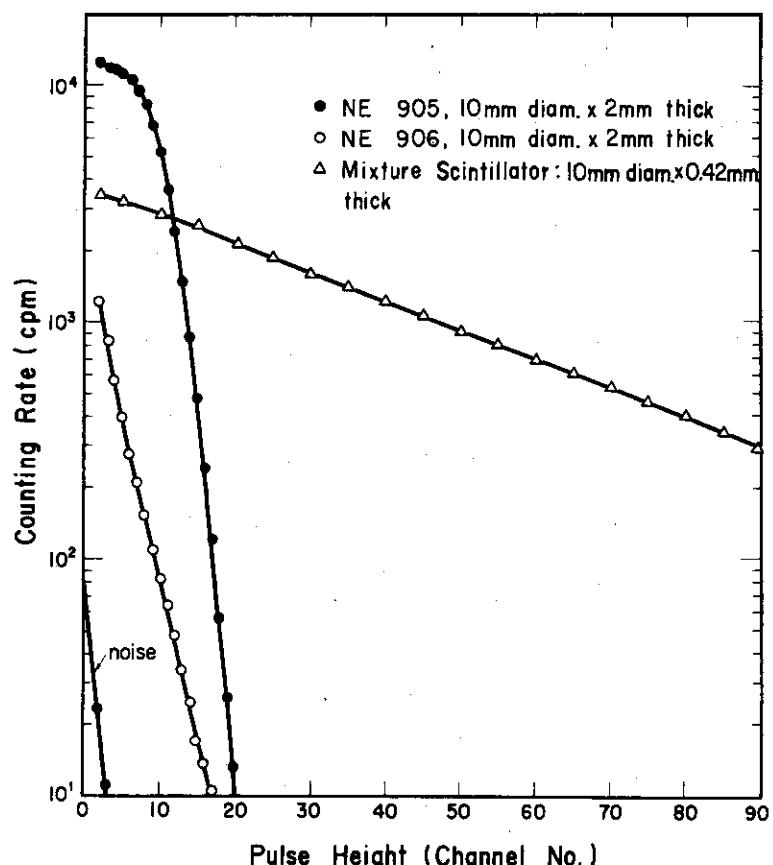
検出効率のほか、空間分解能を考慮に入れた性能指標においては、円板状の $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターが最も優れた値を示し、 BF_3 計数管に比べて2桁、円筒型シンチレーターの場合でも、1桁大きい値を示している。

(ii) パルス波高

第9図に示されている $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ およびNE 905ガラス・シンチレーターのパルス波高分布を、計数率 1 cpm まで外挿して、最大パルス波高値を求めた。この結果、 $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ に対する NE 905 の相対波高値として 0.081 が得られた。

このように、 $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ は蛍光出力が大であるため、回路雑音の影響を殆んど受けない測定が可能になっている。

一方、NE 906 には、 7Li が 99.99% の Li が用いられているため、NE 906 のパルス波高分布は、 γ 線によって発生したものである。NE 906 によって測定された γ 線エネルギーの最大値は、第9図の測定結果と第1表の α/β ($= n/r$ とする) 比から約 1.1 MeV と求められる。このようなガラス・シンチレーターの γ 線波高弁別性能の低さは、ガラス・シンチレーターの低 α/β 比に基づくものである。



第9図 $NE 905$ (6Li 含有ガラス蛍光体), $NE 906$ (7Li 含有ガラス蛍光体)
および $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ 混合シンチレーターのパルス波高分布

(iii) γ 線に対する感度

$ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターの γ 線不感性を、中性子増倍体系内においてテストするため、シンチレーター中の 6LiF を 7LiF (7Li : 99.99 %) で置換したものを製作した。 $ZnS(Ag)-{}^7LiF$ シンチレーターを用いた測定の結果、波高弁別閾 10 keV において有意な計数が得られなかった。これによって、このシンチレーターは、 γ 線に対してほぼ完全に不感であることが実証された。

一方、第9図のNE 906のパルス波高分布から明らかなように、ガラス・シンチレーターは γ 線に対してかなりの感度を有している。NE 906のパルス波高値が零における外挿計数率は、NE 905による計数率の約20%が γ 線によることを示している。また、 γ 線の弁別を十分行うために、弁別閾を上昇させた場合、NE 905の検出効率は $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ のそれと同程度、或いはそれ以下になってしまうことも示されている。

以上の結果から、ガラス・シンチレーターによる増倍体系内の中性子計測は困難であり、 $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターがこれを可能にする最も優れたシンチレーターであることが明らかになった。

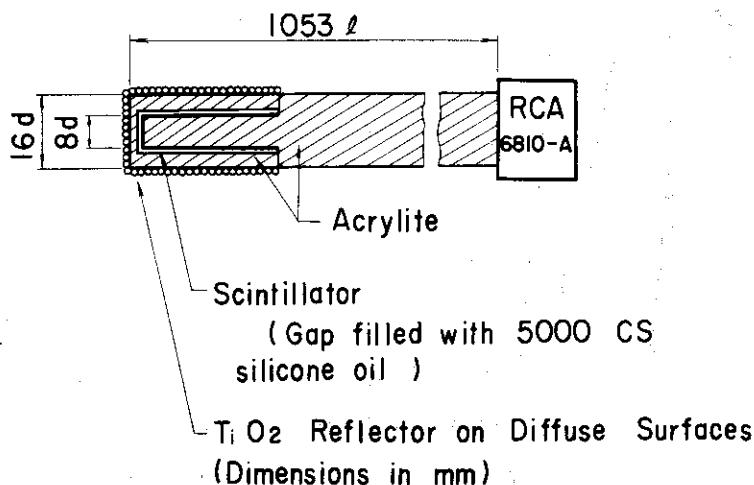
(D) $ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターの検出効率増加対策

$ZnS(Ag)-{}^6LiF$ シンチレーターの検出効率の向上は、その不透明性からくる厚さの制約上、面積の増加によってのみ可能となる。

このため、シンチレーターを円筒型に成型する面積増加法を先ず試みた。

円筒型シンチレーターの特性測定のため、一端開放の内径 8 mm の茶筒状シンチレーターを 0.42 mm 厚の素材を用いて製作した。このシンチレーターは、直径 16 mm の光導体の先端部に同軸状に埋め込まれた。これによって、発生した蛍光が光導体内に閉じ込められ、優れた集光効率が得られるようになった。一方、シンチレーターで光導体を取り巻く構造の場合には、側面部で発生した蛍光に対する集光効率の著しい低下によって、有意な検出効率の向上は認められなかった。

円筒型シンチレーターを用いた検出器の構成を第10図に示す。同図に示されているように、集光効率を高めるため、光導体の中性子有感部の側面は紙ヤスリで粗にし、その面に光学反射材 TiO_2 ペイントが塗布された。また、シンチレーターと光導体の隙間にはシリコン・グリースを満たして屈折率の整合を図った。



第10図 円筒型シンチレーターを用いた検出器の構成

円筒型シンチレーターの長さを変化させながら検出効率を測定した。この結果、2 cm 長のものが最大の効率を示し、これ以上の長さにおいては、光導効率の低下によって、効果的な効率の増加は認められなかった。

第11図に、直径 16 mm、長さ 1050 mm の光導体と、16 mm (直径) × 0.42 mm (厚) の円板型および 8 mm (内径) × 20 mm (高) の円筒型シンチレーターを用いて測定した積分パルス波高分布を示す。円筒型シンチレーターによって、検出効率は円板型より 2.5 倍増加した。しかし、平均パルス波高は円板型の約 2 倍に低下した。パルス波高値のこの程度の低下は、測定に重大な支障をきたさないと思われる。また、円筒型による 2.75 倍の面積増加に伴う 2.5 倍の検出効率の増加は、円筒型シンチレーターが中性子利用効率の点でもほぼ満足できる結果を与えていていることを示している。

シンチレーターの面積を増加させる他の方法としては、光導体の先端部を円錐にし、その面にシンチレーターをマウントする方法が考えられる。頂角がそれぞれ 120° , 90° および 80° の光導体に対してこの方法を試みたが、集光効率の低下によって、有効な検出効率の増加を得ることはできなかった。

同筒型シンチレーターによる検出効率の増加は、測定値の統計精度の向上をもたらす反面、空間分解能の低下をもたらす。しかし、ここで用いた程度の寸法の検出器であるならば、比較的高い空間分解能が要求される実験においても、使用し得ることが多いと思われる。

第7表に示された同筒型シンチレーターの特性から明らかなように、このシンチレーターは検出効率と空間分解能の両面において、 BF_3 計数管よりかなり優れた特性を有している。

2.2.4 中性子検出器の臨界未満実験装置の熱中性子束分布測定への応用

$\text{ZnS}(\text{Ag}) - {}^6\text{LiF}$ シンチレーターを用いた検出器の有効性をテストするため、JAERI SA の垂直方向の熱中性子束分布測定を行った。比較のため、2種の BF_3 計数管 (12EB 40型および EB 215B-4型) を用いた測定も合わせて行った。

この実験装置の詳細は 2.3.1 において示すが、この装置は、軽水が満たされたタンク中に、25.4 mm (直径) × 820 mm (長) の金属ウランが三角格子 (格子間隙 : 44 mm) 状に約 500 本並べられたものである。

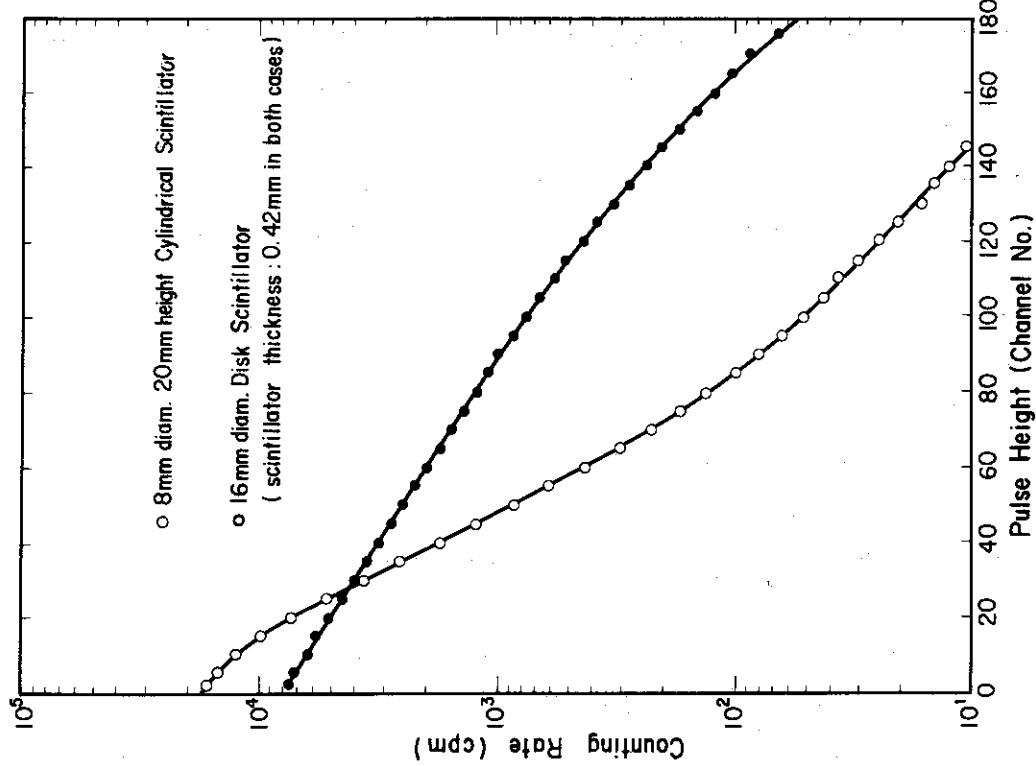
検出器を燃料格子の中間に挿入し、垂直位置を変化させながら測定した熱中性子束分布を第12図に示す。

この測定では、 ${}^{241}\text{Am}-\text{Be}$ 中性子源 (1.5 Ci) が装置の底面中央部に置かれているため、底面からの距離の増加に伴って、熱中性子束が指數関数的に減少する傾向がみられている。

燃料領域を過ぎた反射体領域においては、熱中性子束のピーキングが $\text{ZnS}(\text{Ag}) - {}^6\text{LiF}$ シンチレーション検出器によって明確に測定されている。一方、両 BF_3 計数管による場合には、このピーキングは測定されていない。

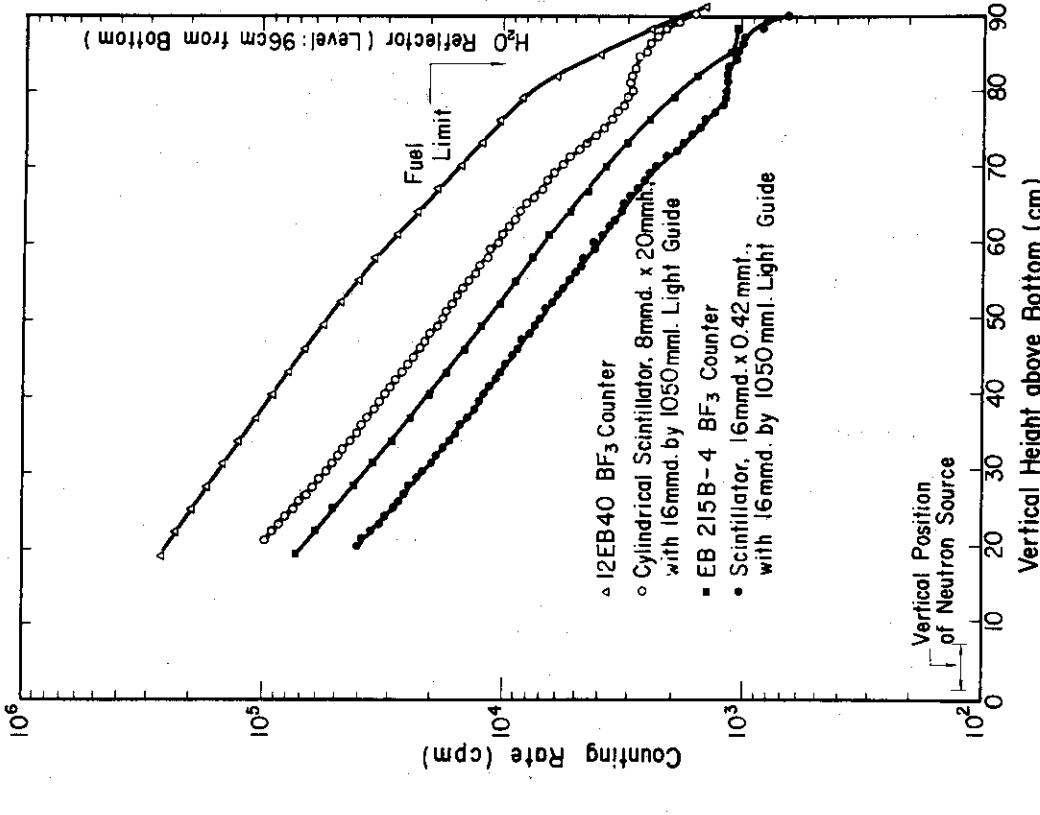
このピーキングは核分裂中性子の反射体中での減速の結果発生するものである。このピーキングの確認は、シンチレーション検出器の高空間分解能によるものである。

円板型シンチレーターと円筒型シンチレーターの両検出器によるピーキングの形状を比較した場合、円筒型によるものは円板型によるものに比べて、幾分平滑化された傾向がみられるが、統計精度が高くなっている利点を考慮すれば、円板型とともに有効に利用し得ると判断できる。



第11図

円板型および円筒型シンチレーターを用いた検出器の積分パルス波高分布〔円板型には16 mm(直径) × 0.42 mm(厚)の、円筒型には0.42 mm厚のシンチレーターで製作した8 mm(直径) × 20 mm(高)のシンチレーターを用いた。光導体には16 mm(直径) × 1050 mm(長)のアクリル樹脂を用いた。〕



第12図

天然ウラン-軽水減速型臨界未満実験装置の垂直方向の熱中性子束分布の種々な検出器による測定例 [ZnS(Ag)-⁶LiFシンチレーション検出器を用いた場合、軽水反射体中の熱中性子束分布のピーキングが測定されている。]

2.2.5 結論

$ZnS(Ag) - {}^6LiF$ シンチレーターと長さが 1050 mm のアクリル樹脂製の光導体を用いた中性子検出器を製作し、その特性を測定した。また、これを中性子増倍体系内の熱中性子束分布測定に応用し、この検出器の有効性をテストした。

- (i) 光導体の光導効率はその直径に大略比例し、直径 8 mm の場合は約 16%，直径 24 mm の場合は約 38% になった。
 - (ii) 光導体の直径には関係せず、0.45 mm 厚のシンチレーターが最も優れた検出効率と中性子利用効率を示した。
 - (iii) 7LiF で置換した $ZnS(Ag) - {}^7LiF$ シンチレーターを用いて、この検出器の中性子増倍体系内における γ 線不感性をテストし、ほぼ完全な不感性を実証した。また、ガラス・シンチレーターは、 γ 線に比較的有感であり、ここでの目的に対しては不適当であることが明らかになった。
 - (iv) 円筒型シンチレーターは、検出効率向上のために有効であり、円板型に比べて 2 倍以上の効率が得られた。
 - (v) 円筒型シンチレーター [8 mm (直径) × 20 mm (高)] を用いた検出器は、ガラス・シンチレーター [10 mm (直径) × 2 mm (厚)] および BF_3 計数管 [有感寸法：16 mm (直径) × 70 mm (長)] の両者に対して、約 2 倍の検出効率を示した。
 - (vi) シンチレーション検出器の高空間分解能の故に、軽水反射体中における熱中性子束分布のピーキングが明確に確認できた。一方、 BF_3 計数管では全く確認できなかった。
- 以上の結果から、高検出効率、高空間分解能および γ 線不感性によって、中性子増倍体系内の中性子計測に、本シンチレーション検出器が有効であることが明らかになった。

2.3 中性子検出器の中性子増倍体系への適用による炉物理実験

2.3.1 $U-H_2O$ 臨界未満実験装置のカドミウム比の測定

熱中性子束の評価には Cd 比法が一般的に用いられ、放射化検出器（箔）には Au, In および Dy などが用いられている。

Cd 比、 R_{cd} は次のように定義されている。

$$R_{cd} \equiv N_b / N_{cd} \quad (2.6)$$

ただし、 N_b は Cd フィルター（カバー）を用いない箔の放射能の計数率 (cps)， N_{cd} はカバーを用い、 N_b と同一の照射・測定条件において得た箔の放射能の計数率である。

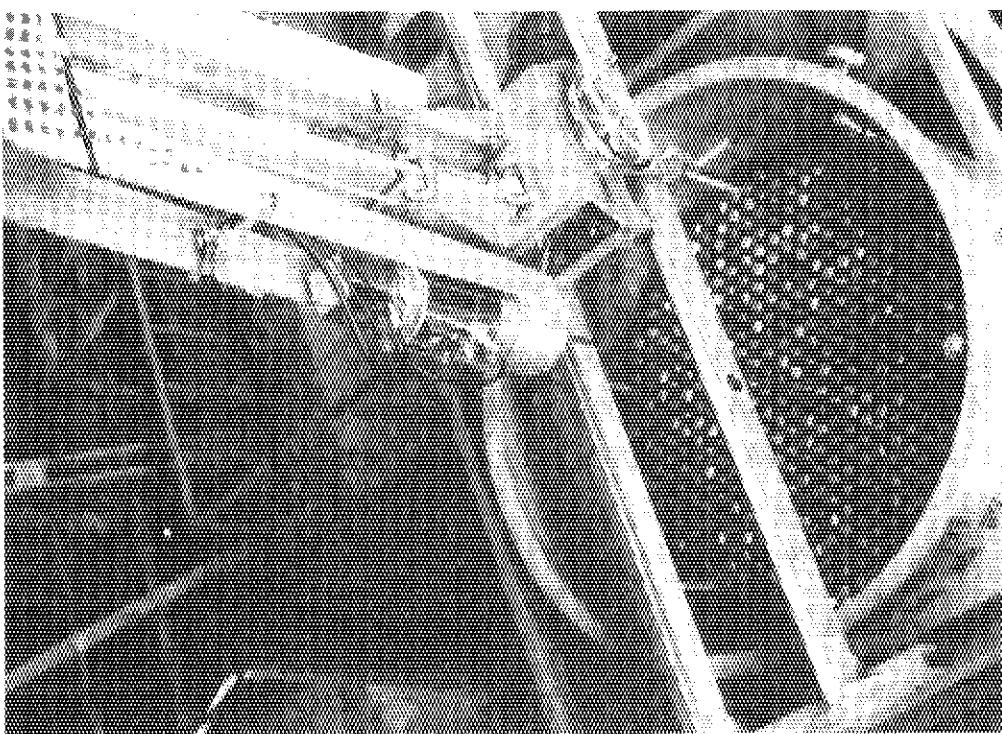
熱中性子によって生じた誘導放射能の計数率 N_{th} は次のように求められる。

$$\begin{aligned} N_{th} &= N_b - N_{cd} \\ &= N_b \left(1 - \frac{1}{R_{cd}}\right) \end{aligned} \quad (2.7)$$

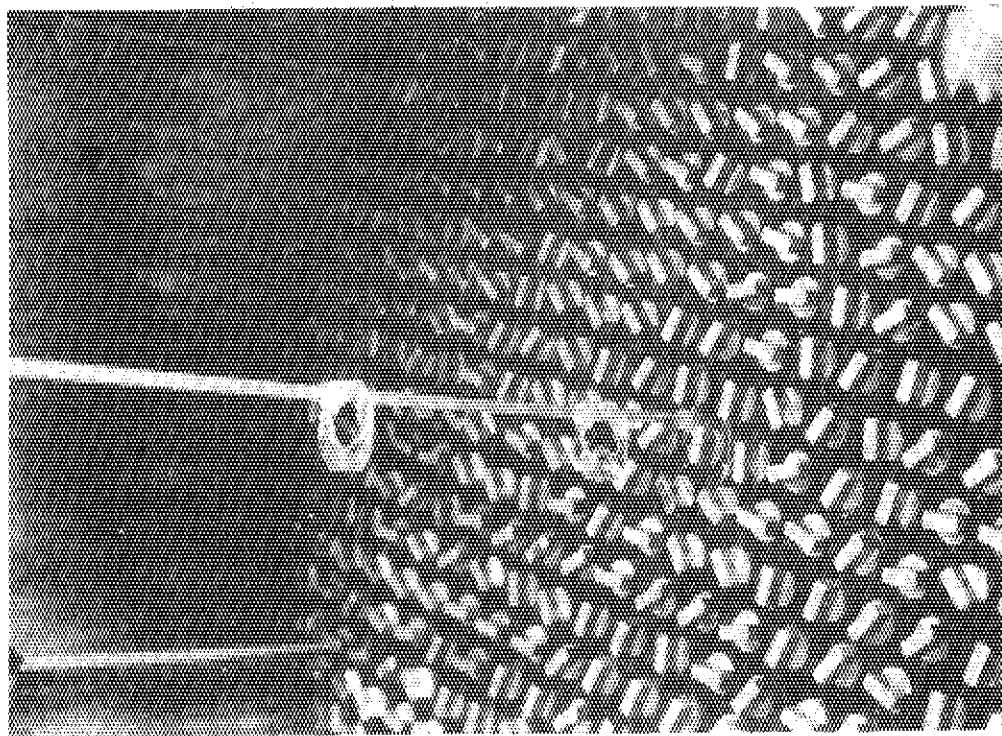
熱中性子による誘導放射能 A_{th} (dps) と N_{th} の間には次の関係がある。

$$A_{th} = \frac{N_{th}}{\epsilon_{int} \cdot \epsilon_g \cdot R_b \cdot f_a \cdot f_s} \quad (2.8)$$

* Cd は熱中性子に対して大きい吸収断面積をもつので、 N_{cd} は熱外中性子以上のエネルギーを有する中性子による誘導放射能の計数率となる。



第13A図 U-H₂O臨界未満実験装置の斜め上からみた外観図 (検出器はX-Y-Z方向可動型の保持具に固定され, その先端(有感)部は燃料棒体系のはば中央部に挿入されている。)



第13B図 U-H₂O臨界未満実験装置の燃料棒配達 (アクリル樹脂製の放射化検出器の保持具が燃料棒格子間隙に挿入されようとしている。燃料棒の配置図は第26図に示されている。)

ただし、 ϵ_{int} は個有 (intrinsic) 検出効率、 ϵ_g は幾何学的効率である。また、 R_b は注目した放射線の壊変あたりの放出率、 f_a は放射線の線源中や検出器窓などにおける吸収の補正係数、 f_s は散乱補正係数である。

熱中性子束 ϕ_{th} は、次式の関係から求めることができる。

$$\phi_{th} = \frac{A_{th} \cdot e^{\lambda t}}{N \cdot \sigma_{ac} (1 - e^{-\lambda T})} \quad (2.9)$$

ただし、N は箔中の標的原子核数、 σ_{ac} は放射化断面積 (バーン)、 λ は放射性核種の壊変定数 (s^{-1})、T および t はそれぞれ、箔の照射時間 (s) および冷却時間 (s) である。

Cd 比は、熱中性子束の評価に關係する基本的な値であり、中性子の熱化の程度を示す指標として一般的に用いられている。しかし、低中性子束の実験装置において、Cd 比を高精度で測定することは、微弱な誘導放射能の故に、困難が伴う。

しかし、箔状の ZnS (Ag) - ^{6}LiF シンチレーターの特色を活用すれば、放射化箔と同程度の空間分解能で、高精度の測定が可能となる。

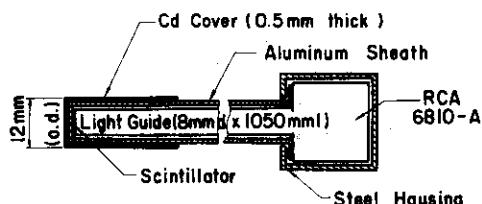
この点を明らかにするため、増倍体系の Cd 比測定にシンチレーション検出器を適用する最初の実験を試みた。

(A) 実験装置

中性子増倍体系としては、U-H₂O 系の臨界未満実験装置 (JAERISA) を用いた。この実験装置は、517 本の燃料棒 (4399 kg の天然金属ウラン) を円柱状 (実効半径: 52.52 cm) に軽水減速材中に組み立てたものである。その燃料集合体は、実効的に無限の厚さを有する軽水反射体によって取り囲まれている。燃料棒は 25.4 mm (直径) × 820 mm (高) で、肉厚 1.2 mm の Al 製の被覆管に密封されている。燃料棒は、格子間隙 44 mm の三角格子状に配置され、このときの U/H₂O (体積比) は 2.02 である。

この実験装置の斜め上からみた外観を第13A 図に、燃料配置の状況を第13B 図に示す。第13A 図には、保持具に固定された検出器が、燃料棒間隙に挿入された状況が示されている。第13B 図には、燃料棒の配列とともに、燃料棒間隙に放射化検出器の保持具が挿入されようとしている状況が示されている。

検出器の原理上、箔状シンチレーターの全面を Cd 板でカバーすることができないため、第14図に示すように、筒状の Cd カバーでシンチレーターの前面および側面をカバーした。Cd 板としては、0.5 mm 厚のものを用いた。Cd は、熱中性子に対して大きな吸収断面積 (Σ_a : 153.6 cm⁻¹) をもつので、この厚さのカバーに対する熱中性子の透過率は、 4.6×10^{-4} である。このように、この Cd カバーはほぼ完全な熱中性子吸収体とみなすことができる。



第14図 カドミウム比測定用シンチレーション検出器の構成

シンチレーターとしては、8 mm(直径) × 0.43 mm(厚)のものを、光導体としては、8 mm(直径) × 1050 mm(長)のものを用いた。

(B) Cd 比の測定

Cd カバーの熱中性子吸収効果を調べるため、カバーの長さと中性子計数率の関係を測定し、その結果を第15図に示す。この測定においては、JAERISA の中心燃料棒を除去した中空の燃料被覆管内に検出器を挿入した。検出器有感部は、JAERISA の中間高さ(底面より約 40 cm 上方)に位置するようにし、ほぼ平坦な分布を示す自発核分裂による中性子を利用した。

第15図の結果は、カバーの長さの増加に伴い、急激な計数率の低下を示している。カバーの長さ 5 cm 以上においては、一定の計数率が得られている。この傾向は、Cd カバーによって殆んどの熱中性子が吸収され、熱外以上のエネルギーを有する中性子によるものが一定の計数率として測定されていることを示している。

第15図の結果に基づき、6 cm 長の Cd カバーを用いて、JAERISA の垂直方向の Cd 比の分布を測定し、その結果を第16図に示す。この測定においては、JAERISA の底面中央部に $^{241}\text{Am-Be}$ (1.5 Ci) 速中性子源が用いられた。

第16図に黒丸で示した結果は、中心の燃料棒を含む単位格子(第26図参照)の減速材中の Cd 比の分布であり、底面から 20 ~ 70 cm の範囲においては、10.3 のほぼ一定値が得られている。底面より 72 cm 以上の領域においては、急激な Cd 比の増加が認められている。これは、燃料棒上部の反射体によって熱化された中性子の拡散によるものである。

第16図の白丸は、中心の燃料棒に隣接する燃料棒を検出器で置換して測定したものである。燃料による熱中性子吸収の低下に伴い、Cd 比が一段と大きくなり、中心高さ付近においては、16.7 のほぼ一定値が得られている。

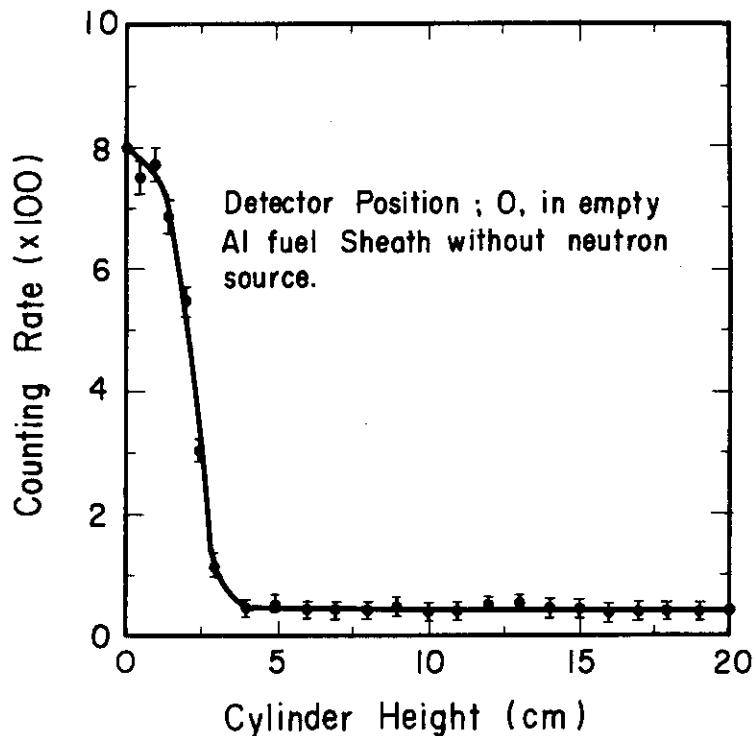
底面(線源)からの距離の増加に伴う Cd 比の増加は、軽水の速中性子に対する減速効果によるものである。

(C) 検討および結論

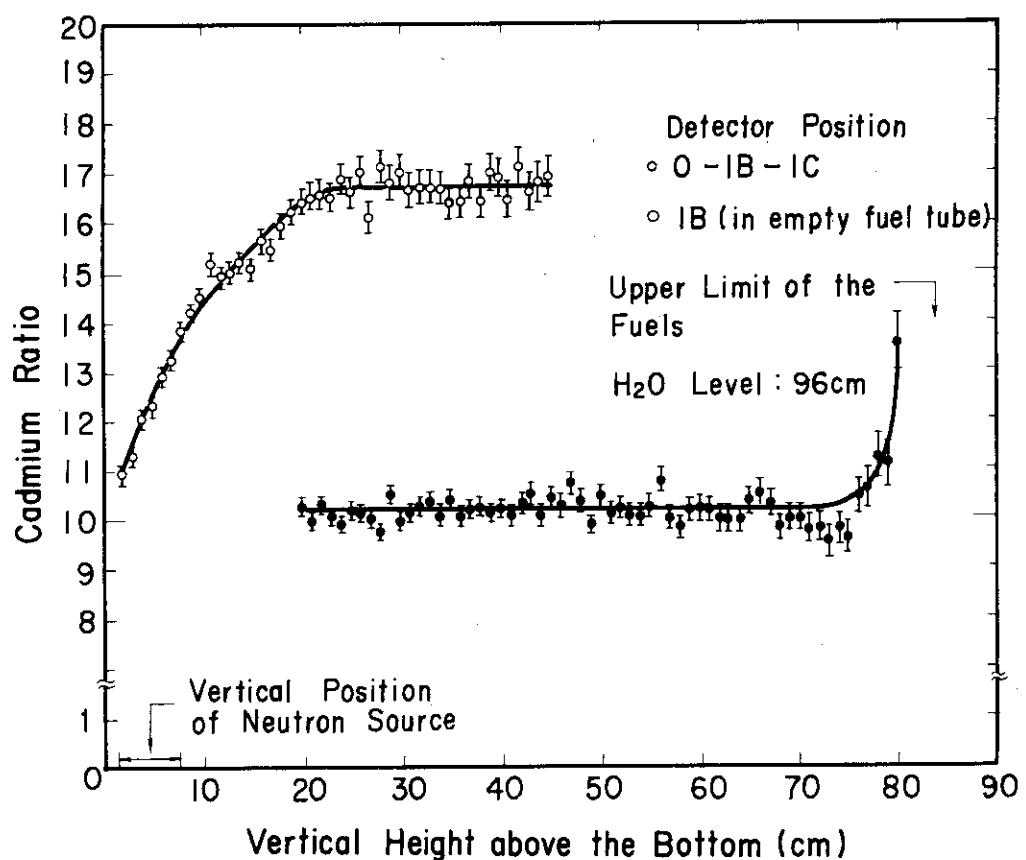
実験装置としての増倍体系では、一般的に中性子束が低いため、放射化箔による熱中性子束測定には、大きい断面積をもつ In(σ_a : 194 バーン) や Dy(σ_a : 940 バーン) が用いられている。

しかし、放射化箔では、第16図に示されているような約 5 % の精度での測定(N_b の計測時間: 1 分)は困難である。例えば、第16図に黒丸で示した Cd 比を JAERISA の中心部で In 箔(8 mm(直径) × 0.5 mm(厚)) を用いて測定する場合、ほぼ飽和放射能に達する時間(半減期の 3 倍、162 分)照射し、その放射能を 50 % の計数効率を有する GM 計数装置で測定すると、約 420 cpm の計数率 N_b が得られる。一方、シンチレーション検出器による N_b としては約 2500 cpm が得られる。したがって、Cd 比が 10 の位置における測定を 10 分間^{*}で行った場合、放射化箔法による Cd 比の測定精度は約 10 %、シンチレーション検出器による場合は約 4 % となる。このように、シンチレーション検出器は、放射化箔法より 2.5 倍高精度な測定を 1/30 以下の測定時間において可能にする。さらに、第12図から明らかのように、燃料上端部の中性子束は中心部の 1/10 程度になる。このような位置における放射化箔の放射能の計数率は、バックグラウンドと同程度になり測定が困難になる。

* 計数率の平方根に比例して計測時間を配分した。



第15図 円筒状カドミウム・カバーの長さと中性子計数率の関係



第16図 U-H₂O臨界未満実験装置内の垂直方向のカドミウム比の分布
 (白丸は中心に位置する燃料棒に隣接する燃料棒を検出器で置換して測定し、黒丸は中心の燃料棒を含む単位格子の減速材中で測定したものである。)

一方、シンチレーション検出器を用いると、燃料上端部においても 200 cpm 以上の十分の計数率が得られ、その低バックグラウンド性とあいまって、Cd 比測定が十分可能である。

以上の実験結果から、(i) ZnS (Ag) - ^{6}LiF シンチレーション検出器は、低中性子束の場における Cd 比の迅速で高精度な測定を可能ならしめ、これによって、(ii) 速中性子源や反射体の影響を受けない炉心領域を明確に決定できることが明らかになった。

2.3.2 U-H₂O 臨界未満実験装置の無限増倍係数の測定

反射体をもった非均質臨界未満実験装置の無限増倍係数 k_{∞} は、炉心からの中性子のもれを考慮に入れて、R. Persson⁽⁶⁹⁾ によって測定された。この測定精度は、(i) 測定した炉心の境界が明確な実験結果に基づいて決定されていない、(ii) 反射体中における測定点が少ない、などの理由で、十分なものではなかった。

この難点を解決するため、T. W. T. Burnett⁽⁷⁰⁾ らは、熱中性子束分布測定によって、中性子の一群拡散理論が成立する境界を明確にし、その領域内の無限中性子束体積積分 (infinite flux volume integral) を測定した。この方法によって、正確な k_{∞} の測定が可能になった。

しかし、T. W. T. Burnett らは、半径方向の中性子束分布の角度依存性を考慮していないため、この依存性が存在する場合には、これに起因する誤差が含まれることになる。

R. Persson および T. W. T. Burnett らの測定法の難点を解決するためには、半径方向の角度依存性を考慮した詳細な中性子束分布を測定し、拡散理論が明確に成立する領域内での中性子束体積積分を行う必要がある。

このような目的には、高空間分解能と高検出効率を有する ZnS (Ag) - ^{6}LiF シンチレーション検出器が最適と考えられる。

以上の理由によって、ここではシンチレーション検出器を用いた測定によって、非均質炉心における半径方向の中性子束分布に角度依存性が存在することを実証するとともに、この点を考慮に入れた k_{∞} 測定法を確立することを目的とした実験⁽⁴²⁾ を試みた。

(A) 実験装置

非均質中性子増倍体系としては、2.3.1において用いた JAERISA が用いられた。

検出器としては、円筒型シンチレーター [8 mm (内径) × 20 mm (高)] を光導体 [16 mm (直径) × 1050 mm (長)] の先端部にマウントしたものが用いられた。

また、中性子源 ($^{241}\text{Am-Be}$, $2.45 \times 10^6 \text{n/s} \pm 2\%$) は、体系の中心に位置する燃料棒の中間高さの位置に設置された。

中性子検出器の感度 ϵ_p は、実験に先立ち、放射化法を用いて校正され、 $\epsilon_p = 3.30 \pm 0.07 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cps}$ が得られた。

ここでの ϵ_p は、減速材中に置かれた検出器による計数率あたりの単位格子の平均熱中性子束として定義されている。

(B) 無限増倍係数の決定法

外部中性子源をもった定常状態の無限増倍体系においては、毎秒あたりに発生する熱中性子の全数 Q は毎秒あたりの吸収数に等しい。

$$Q = \frac{S \cdot \epsilon' \cdot \epsilon \cdot p}{1 - k_{\infty}} = \bar{\Sigma}_a I_{inf} \quad (2.10)$$

ただし、 S は中性子源強度 (n/s)、 ϵ' は核分裂中性子の寄与を表わす係数、 $\bar{\Sigma}_a$ は平均熱中性子吸收断面積、 I_{inf} は無限媒質全体にわたる熱中性子束の体積積分、 $\int \phi(r) dr$ である。その他の記号は (1.1) 式に同じである。

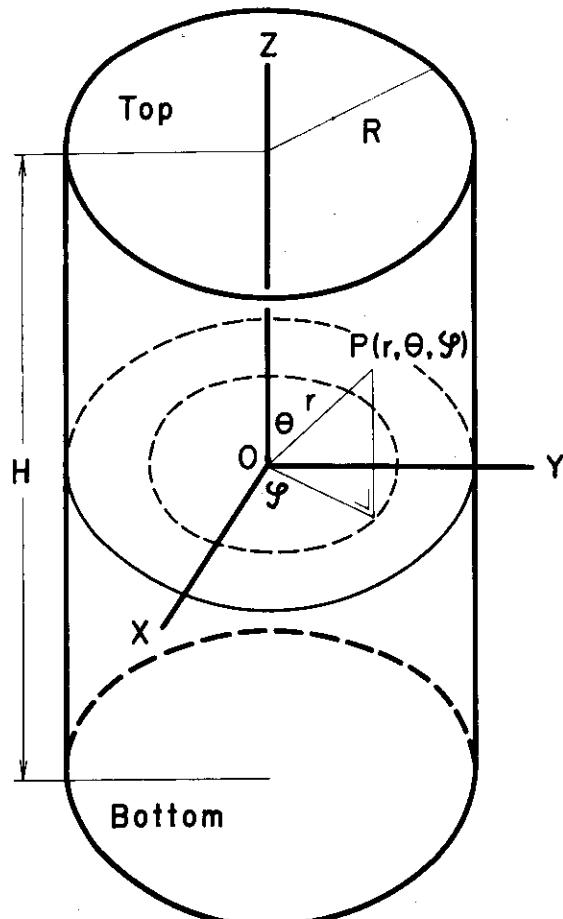
式 (2.10) は、(1.1) 式に示されている k_{∞} と四因子の関係を用いて、次のように表わすことができる。

$$I_{inf} = C \frac{S}{\bar{\Sigma}_a \cdot f} \cdot \frac{k_{\infty}}{1 - k_{\infty}} \quad (2.11)$$

ただし、 $C = \frac{\epsilon'}{\eta}$ は線源と燃料物質に依存する定数である。

式 (2.11) に実験的に求めた I_{inf} と既知の $\bar{\Sigma}_a$ 、 S および f を用いれば、 k_{∞} を求めることができる。

非均質増倍体系では、中性子束が半径方向によって変化すると考えるならば、拡散領域の体積積分、 $(I_{inf})_{dif}$ は、第 17 図に示す座標においては、次のように表わすことができる。



第 17 図 円柱炉心の極座標

$$\begin{aligned}
 (I_{\text{inf}})_{\text{dif}} &= [\int \phi(r) dr]_{\text{dif}} \\
 &= \int_{r_s}^{\infty} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} \phi(r, \theta) r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi \\
 &= 4\pi \int_0^{\frac{\pi}{2}} f(\theta) d\theta
 \end{aligned} \tag{2.12}$$

ただし、 $f(\theta) = A(\theta) \sin \theta \frac{e^{-r(\theta)r_s}}{[r(\theta)]^2} [1 + r(\theta)r_s]$

$$(2.13)$$

式(2.13)における $A(\theta)$ および $r(\theta)$ は、(2.14)式に示す一群中性子拡散方程式において、それぞれ中性子束の強さ(振幅)およびその減衰を表わす定数であり、中性子源と媒質によって定まる。

$$\phi(r, \theta) = \frac{A(\theta)}{r} \cdot e^{-r(\theta)r} \quad r > r_s \tag{2.14}$$

また、 r_s は中性子源に最も近い拡散領域の境界までの距離である。

式(2.13)をガウス積分公式によって展開すれば次式が得られる。

$$(I_{\text{inf}})_{\text{dif}} = 4\pi n \sum_{i=1}^n a_i f(\theta_i) \tag{2.15}$$

ただし、 a_i はガウスの公式の展開係数、 θ_i はそれぞれの u_i に対応して次式によって与えられる θ である。

$$\begin{aligned}
 \theta_i &= \frac{(\pi/2)-0}{2} u_i + \frac{(\pi/2)+0}{2} \\
 &= \frac{\pi}{4} (1 + u_i) \text{ rad} \quad [\text{または}, \quad 45 (1 + u_i) \text{ deg}]
 \end{aligned}$$

中性子源領域における中性子束分布も θ に依存し、その積分 $(I_{\text{inf}})_{\text{ns}}$ は次式によって与えられる。

$$\begin{aligned}
 (I_{\text{inf}})_{\text{ns}} &= \int_0^{r_s} \int_0^{\pi} \int_0^{2\pi} \phi(r, \theta) r^2 \sin \theta dr d\theta d\varphi \\
 &= 4\pi \int_0^{r_s} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \phi(r, \theta) r^2 \sin \theta dr d\theta, \quad r < r_s
 \end{aligned} \tag{2.16}$$

全中性子束体積積分 I_{inf} は次のようにして求められる。

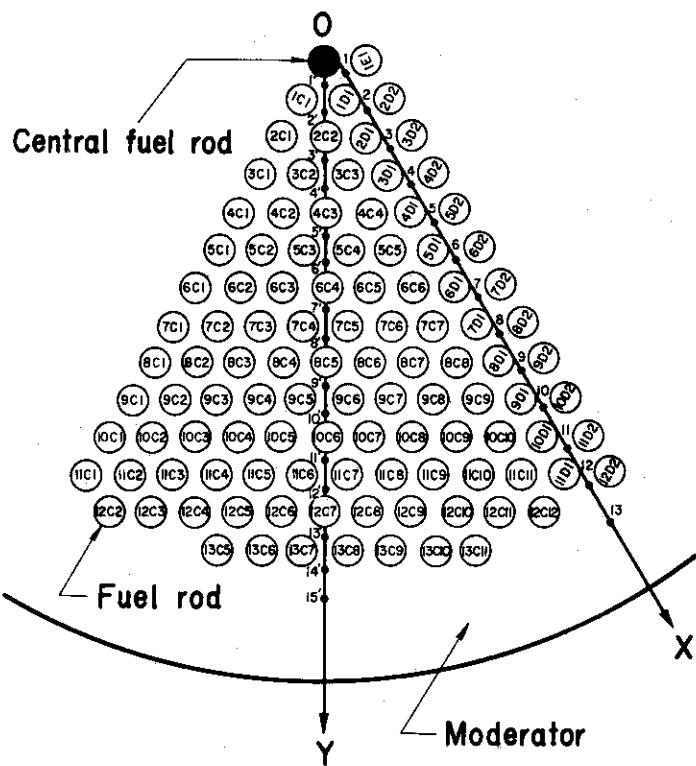
$$I_{\text{inf}} = (I_{\text{inf}})_{\text{dif}} + (I_{\text{inf}})_{\text{ns}} \tag{2.17}$$

得られた I_{inf} を(2.11)式に用いることによって、中性子束分布の角度依存性を考慮に入れた k_∞ が求められる。

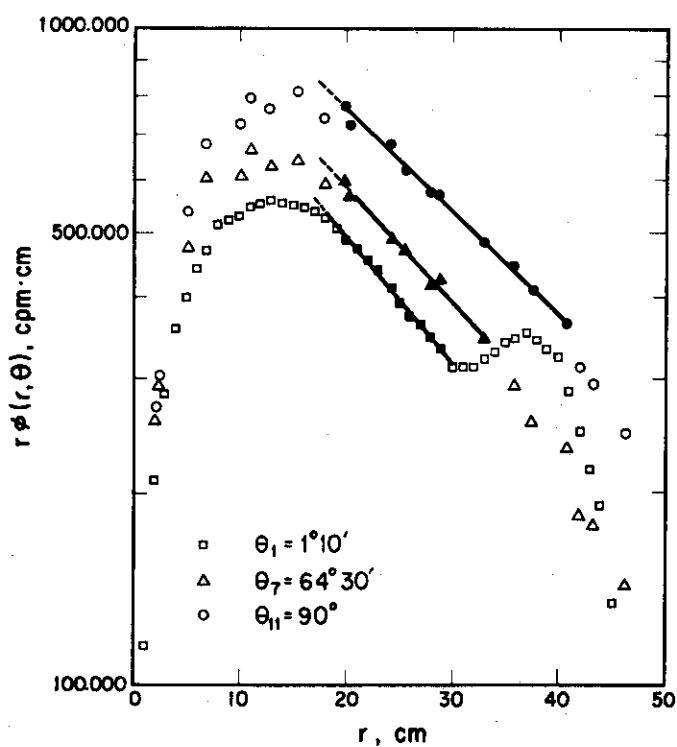
(C) 実験

第18図に示したOX軸上の1から13の位置と、OY軸上の1'から15'の位置において中性子束を測定した。

半径方向の中性子束分布を種々な θ について測定した。その典型的な例として、 θ が $1^\circ 10'$ 、 $64^\circ 30'$ および 90° の場合の測定例を第19図に示す。同図の縦軸の値は、中性子計数率 $N(r, \theta)$ に ϵ_p を乗じて得た $\phi(r, \theta)$ に、さらに r を乗じた形になっている。これは、(2.14)式が成立する拡散領域を確認しやすくするためのものである。



第18図 中性子束体積積分を求めるために行った中性子束測定位置（OX軸上の1～13の位置とOY軸上の1'～13'の位置で測定を行った。）



第19図 θ が $1^\circ 10'$, $64^\circ 30'$ および 90° の場合の r と $r\phi(r, \theta)$ の関係

片対数方眼紙上にプロットされた第19図の各曲線の直線部分は、拡散領域の存在を明確に示している。

第19図の結果は、 $r > 20$ (cm) の場合には、 θ に関係なく (2.14) 式が成立することを示しており、この結果から中性子源領域の半径 r_s として 20 cm が得られた。

$A(\theta)$ および $\gamma(\theta)$ は、第19図の直線部分を最小二乗法でフィットすることによって求められる。得られた $A(\theta)$ および $\gamma(\theta)$ の結果をそれぞれ第 20 図および第 21 図に示す。

これらの図は、 θ の増加に対して振幅 A は増加するが、空間減衰定数 γ はそのような傾向をもっていないことを示している。

第 20 図および第 21 図の結果を用いれば、(2.13) 式および (2.15) 式から $(I_{inf})_{dif}$ を求めることができ、 $(I_{inf})_{dif}$ として、 $(1.17 \pm 0.02) \times 10^9$ cm/s が得られた。

一方、 $(I_{inf})_{ns}$ を求めるため、 $r < r_s$ の範囲において、 $r^2 \phi(r, \theta_i)$ を求め、これを r に対してプロットし、この結果にシンプソンの積分公式を適用して、積分 $\int_0^{r_s} \phi(r, \theta_i) r^2 dr$ を求めた。さらに、この積分に $\sin \theta_i$ を乗じ、この結果を θ_i に対してプロットした。式 (2.16) の 2 重積分は、こうして得られた曲線に対して積分公式を適用することによって求めた。この結果、 $(I_{inf})_{ns}$ として、 $(8.3 \pm 0.1) \times 10^7$ cm/s が得られた。

以上の結果、(2.17) 式の関係から、 I_{inf} としては、 $(1.25 \pm 0.02) \times 10^9$ cm/s が得られた。

式 (2.11) から k_∞ を求めるために必要な f の値は、金箔を用いた放射化法によって測定し、 0.8161 ± 0.0080 を得た。この結果は、THERMOS コードによる計算値、0.8131 と良い一致を示した。

また、燃料と線源に依存する定数 C も一般的に用いられている方法によって計算し、⁽⁷⁰⁾ 0.827 ± 0.08 が得られ、 Σ_a も 0.136^{-4} と計算された。

これら全ての値を用いて求めた k_∞ の値を第 8 表に示す。同表には、この値との比較検討のために、材料バックリング B_m^2 の測定値を次の臨界方程式に用いて求めた k_∞ の値も合わせて示されている。

$$B_m^2 = \frac{k_\infty - 1}{M^2}$$

ただし、 M^2 は中性子の移動面積である。

第 8 表 本法と材料バックリング法によって得られた無限増倍係数

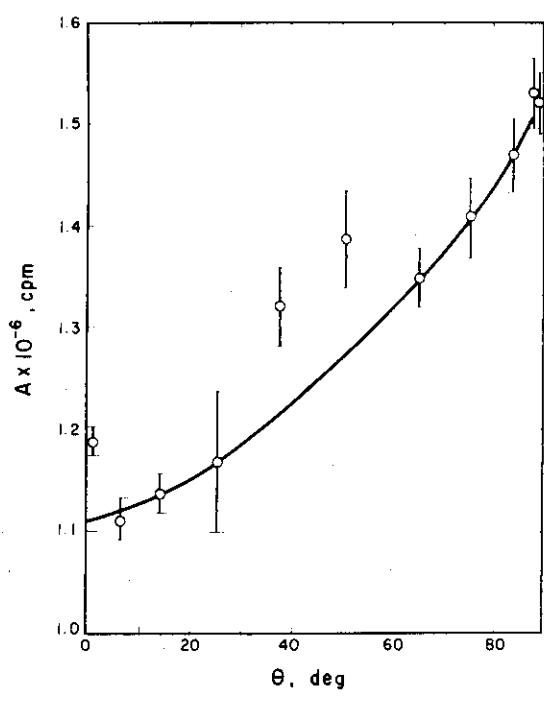
| 測定法 | 無限増倍係数 |
|-----------|-----------------|
| 本法 | 0.98 ± 0.03 |
| 材料バックリング法 | 0.982 |

第 8 表に示した両法による k_∞ の値は、良い一致を示している。

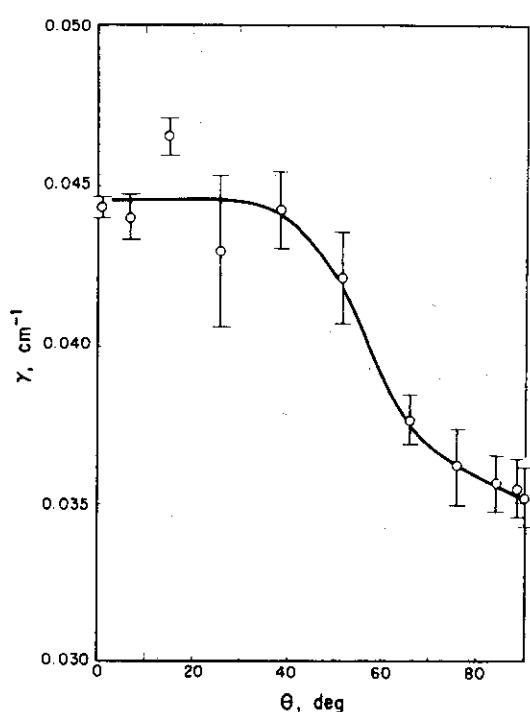
さらに、T. W. T. Burnett らの方法による結果と比較するため、(2.11) 式と θ 依存性を考慮に入れない (2.12) 式、すなわち、

$$(I_{inf})_{dif} = \int_{r_s}^{\infty} \phi(r) 4\pi r^2 dr$$

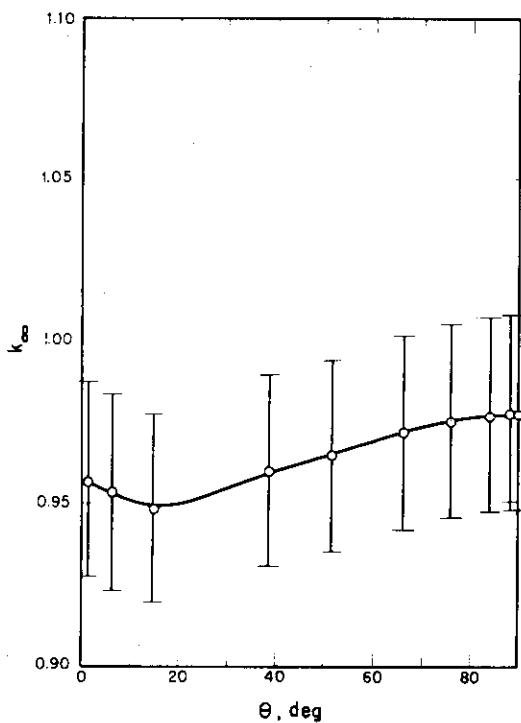
$$= 4\pi \frac{A}{r^2} e^{-r r_s} (1 + r r_s) \quad (2.18)$$



第20図 中性子拡散領域における θ と振幅 $A(\theta)$ の関係



第21図 中性子拡散領域における θ と空間減衰定数 $\gamma(\theta)$ の関係



第22図 無限増倍係数 k_∞ の θ 依存性

に各 θ において測定した定数を用いて得た $(I_{inf})_{dif}$ を使って k_∞ を求めた。この結果を θ に対してプロットしたものを第 22 図に示す。同図には、 θ が $75^\circ \sim 90^\circ$ の範囲の k_∞ の値は、中性子束分布の角度依存性を考慮に入れた本法による値とよく一致することが示されている。

しかし、非均質炉心においては、 θ とともに I_{inf} が減少するため、小さな θ の領域では k_∞ が小さくなる傾向があることが明らかになっている。

(D) 結論

ZnS(Ag)- ^{6}Li Fシンチレーション検出器の特質を活用した測定によって、(i)非均質炉心の半径方向中性子束分布に方向依存性が存在することを実証し、この結果、(ii)この依存性を考慮に入れた無限増倍係数測定の必要性が明らかになった。また、中性子束の空間分布測定においては、(iii)検出器の高空間分解能の故に、中性子源領域および拡散領域を明確に決定でき、境界の不明確性に基因する実験誤差を排除することができた。

2.3.3 U-H₂O臨界未満実験装置の材料バックリングの測定

臨界未満実験装置を対象とした測定において最も重要なものは材料バックリング B_m^2 である。これは炉心の材料組成の見地から臨界寸法を決定する中性子増倍体系のパラメーターであり、次の臨界方程式が満足されたとき、はじめて連鎖反応が持続する。⁽⁷¹⁾

$$\frac{ke^{-B_m^2 \cdot \tau}}{1 + L^2 B_m^2} = 1 \quad (2.19)$$

ただし、 k は中性子増倍係数、 τ はフェルミ年令、 L は熱中性子の拡散距離である。

材料バックリングは増倍体系の中性子束空間分布測定によって求められる。円柱形の体系において、線源、強い吸収体および境界から十分離れた場所の円筒座標における中性子束分布 $\phi(r,z)$ は次式のように表わせる。

$$\phi(r,z) = \sum_{n=1}^{\infty} A_n J_0(\alpha_n r) \sinh \gamma_n (H-z) \quad (2.20)$$

ただし、 n は高調波の項の型を定める整数、 A_n は中性子密度に依存する定数で、 n 型高調波項に対するものである。 α_n は j_n/R 、ただし j_n は $J_0(x) = 0$ の n 番目の根であり、 R は体系の外挿半径、 H は底面から測った外挿高さである。また、 γ_n は n 型高調波の減衰距離の逆数である。

材料バックリングは次式の関係をもっている。

$$B_m^2 = \alpha_n^2 - \gamma_n^2 \quad (2.21)$$

高調波を基本モードの項だけで表わせば、(2.21) 式は次のように表わせる。

$$B_m^2 = \alpha_1^2 - \gamma_1^2 = (2.4048/R)^2 - \gamma_1^2 \quad (2.22)$$

中性子束分布形状法（束形法）に基づく一般的な B_m^2 の測定法においては、炉心内で中性子源からの 1 次中性子の影響がなく、かつ熱中性子束分布は基本項のみによって正確に表わされるような領域を選び得ると仮定している。したがって、このような領域があれば、半径方向の中性子束分布を測定し、それをゼロ次ベッセル関数にフィットすることによって α_1 を求め得る。また、

端末効果を受けない領域において測定した垂直方向の中性子束分布の対数を z に対してプロットした勾配から α_1 を求め得る。

このようにして求めた α_1 と r_1 の値を用いて (2.22) 式から B_m^2 を求めるのが一般的な束形法である。

この方法は、強力で均一な熱中性子平面線源を用いる場合には典型的なものであるが、速中性子点状線源を用いる場合には問題がある。何故ならこの場合は、線源を含むペデスタル（減速材ベース）上面における中性子束密度分布の均一性が良くないため、高調波効果がより大になり、また体系内の平均中性子束密度も一般的に用いられる放射性同位元素利用中性子源ではかなり小さくなるからである。特に中性子束密度の増加を図るために線源をペデスタル上面（炉心下部）に置く場合、1次中性子の減速用に炉心底部附近を一部測定対象外にせざるを得ないことから、 B_m^2 測定用の有効領域はさらに減少し、その上高調波の寄与もより大きくなる。

速中性子点状線源を用いる方法におけるこの難点を解決するため、ベッセル関数の正規直交性に基づいた中性子束分布の新しい補正法を高調波効果の解明と消去に適用することを試みた。また、範囲が狭められた有効領域にもかかわらず、中性子束分布の高空間分解能による測定を可能にするシンチレーション検出器の利用によって、高速点状線源における B_m^2 ⁽⁴⁴⁾ を、強い熱中性子面線源の場合と同様な精度で測定する実験を試みた。

中性子増倍体系としては、469本の燃料棒（3992 kg の金属ウラン）を装荷した JAERISA を用い、その底面中央部に中性子源（Am-Be, 3.8×10^6 n/s）を置いた。

検出器としては、直径 16 mm、厚さ 0.5 mm の ZnS- ^{6}LiF シンチレーターと 16 mm (直径) × 1050 mm (長) の光導体からなるものを用いた。

(A) 外挿半径の測定

2.3.1 で行った Cd 比の測定においては、 z が 20 から 70 cm の領域の Cd 比はほぼ一定値（標準偏差： $\pm 2\%$ ）になり、この領域は速中性子源効果や端末効果を受けていないことが明らかになった。このことから、この領域では B_m^2 の測定にあたって (2.20) 式を適用できることがわかる。しかし、一層精度の高い測定を目的とするまでの測定では、高調波の影響をできる限り避けるため、測定領域を z が 35 から 55 cm の領域に限定した束形法を試みた。このような狭い測定領域においても、シンチレーション検出器の高空間分解能によって多数点のデータが得られるため測定精度の低下はもたらされないとと思われる。

第23図に半径方向の中性子束分布の測定例を示す。この分布は $z = 48$ cm において測定したものであり、点線で示されたものは基本項のみを仮定してフィットさせた計算曲線を示す。これに対し、実線で示された曲線は、中性子束分布に対してベッセル関数の正規直交性に基づく補正法によって補正を施したものであり、便宜的に縦軸は $\phi_m(r_i, z)$ ではなく、 $\phi_m(r_i, z)/m$ で表わされている。ただし、 $\phi_m(r_i, z)$ は測定で得た中性子束 $\phi(r_i, z)$ より第 2 次高調波（式 (2.20) の $n=2$ に対応する項）から第 m 次高調波までの寄与項分を正規直交関係で除去した残りの部分であり、基本項 ($n=1$) の近似式である。このように、 m は中性子束分布が受ける高調波寄与の補正をくり返し行うためのパラメーター（インデックス）であり、 $m=0$ は (2.20) 式が基本モードのみから成り立つと仮定する従来の手法に対応し、また $m \rightarrow \infty$ は測定した中性子束分布から全ての高調波を完全に除去した純粹の基本モードを示す。第23図には m が 0 および $m=2$

～5にわたる分布曲線が示されている。これらの結果から得られた外挿半径を第24図に示す。同図に示されている外挿半径は、種々なzにおける半径方向の中性子束分布測定結果から得たものの加重平均値 \bar{R}_m であり、mが3以上の領域では一定値に収斂することが示されている。この結果第3次高調波以上の寄与は、測定した高さ領域では無視し得ることが明らかになるとともに、従来の束形法では約20%の外挿半径の過少評価がもたらされることが明らかになった。

(B) 減衰距離の逆数 r_1 の測定

中性子束分布 $\phi(r, z)$ をz軸に沿って測定し、zに対する $\ln \phi(r, z)$ の直線減少勾配γを種々なグリッド点 (r_i) について求めた。その結果を r_i との関係において第25図に示す。同図には高調波に対する補正をしない [$r(r_i)$] は r_i の増加に伴って直線的に減少し、半径位置に依存することが示されている。これはz方向 (Cd比がほぼ一定の領域) に空間依存の高調波効果が現れたためである。

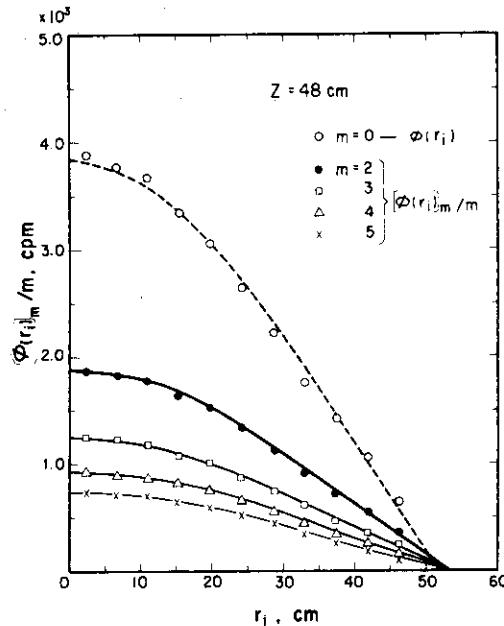
一方、異った3垂直方向の半径中性子束分布の比較から新しく導入した手法によって基本モードに対応する r_1 を抽出して得た結果は、 $(r_1)_{\text{corrected}} = 5.26 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ と求められた（この値は、半径方向の2次高調波消失位置における r_1 の測定値にはほぼ等しい）。この $(r_1)_{\text{corrected}}$ の値と外挿半径 \bar{R}_m の第24図における飽和値（この値を外挿半径 R として用いた）およびこれらの値を(2.22)式に用いて得た B_m^2 の値を第9表に示す。同表には、本法の改良された束形法による結果のほか、従来の束形法および最も標準的な B_m^2 の測定法とされている燃料装荷量可変法による結果も合わせて示されている。ただし、後者は熱平面源ではなく、Am-Be点状線源を用い、基本項の r_1 を装荷半径の関数として得た結果を標準的な手法で処理して B_m^2 を求めている。従来の束形法では、外挿半径の位置依存性の補正が行われていないなどの理由から、3種の方法の中で最も低い B_m^2 の値が得られた。一方、本法では燃料装荷量可変法のそれに近い B_m^2 の値が得られた。

第9表 材料パックリングの測定結果

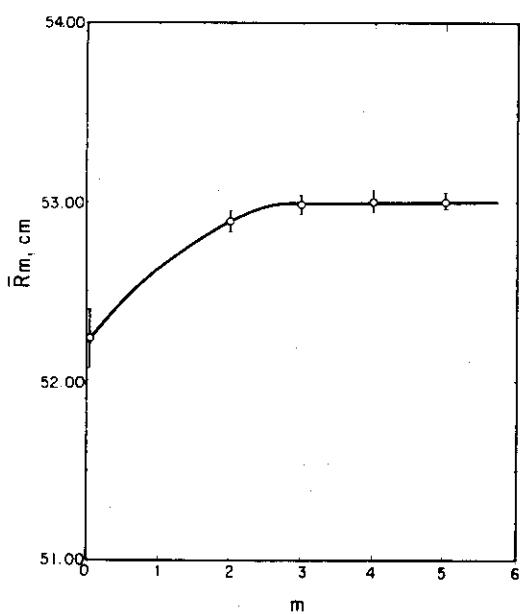
| 測定法 | 外挿半径 $R(\text{cm})$ | 減衰距離の逆数 (cm^{-1}) | 材料パックリング $B_m^2(\text{cm}^{-2})$ |
|-----------|------------------------|----------------------------------|-------------------------------------|
| 本法 | 53.00 ± 0.05 | $(5.26 \pm 0.08) \times 10^{-2}$ | $-(7.08 \pm 0.23) \times 10^{-4}$ |
| 中性子束分布形状法 | 52.23 ± 0.17 | $(4.87 \pm 0.17) \times 10^{-2}$ | $-(2.52 \pm 0.19) \times 10^{-4}$ |
| 装荷量可変法 | 可変 | 可変 | -10.53×10^{-3} |

(C) 結論

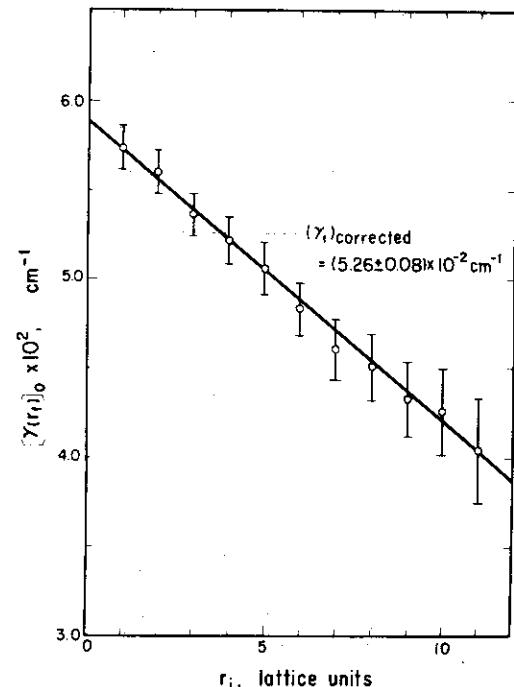
シンチレーション検出器の高検出効率によって、点状高速中性子源を用いたにもかかわらず⁽⁷²⁾ 3%の精度で B_m^2 を測定することができた。この精度は、強い平面熱中性子源を用いた実験の精度1～2%と同程度の良好な結果である。また、検出器の高空間分解能によって、外挿半径や空間減衰定数の空間依存性を明らかにすることができ、このことが適当な測定空間領域の正確な決定をもたらした。⁽⁷³⁾ この結果、大きなBF₃計数管を使用したR.E.Uhrigらの測定精度（この中には高調波の影響がかなり含まれている）約5%よりもかなり高精度の測定が可能になった。



第23図 半径方向の中性子束分布の測定例（測定は底面より 48 cm の炉心のほぼ中間の高さ位置において行われた。 $m = 0$ の分布は基本モードのみと仮定してフィットしたものであり、他は高調波の寄与の補正が行われている。）



第24図 高調波の寄与の補正パラメーター
(除去した高調波の最大次数)
 m に対する平均外挿半径の依存性



第25図 減衰距離の逆数 γ の半径方向依存性
(直線的に減少する白丸で示された値
は、高調波補正を行わないものであ
り、 γ_1 は補正して求めた基本モード
に対応する γ である。)

2.3.4 パルス中性子法を用いた即発中性子寿命測定による実効増倍係数の測定

定的な中性子源、例えば²⁴¹Am-Be線源を用いた臨界未満実験装置を対象とした実験においては、拡散距離、無限増倍係数および材料パックリングなど主として臨界の大きさに関連した量が測定できる。しかし、炉心内の時間的変動に関連した量、例えば中性子寿命や即発増倍係数などの測定には別の測定法が必要になる。この新しい方法として N.G. Sjöstrand⁽⁷⁴⁾ がはじめて臨界未満実験装置に応用したパルス中性子法がある。この方法は増倍体系のみならず、非増倍体系に対しても適用され、拡散係数や吸収断面積の高精度な測定を可能ならしめ、今日では最も有効かつ標準的なものとみなされるようになった。

即発中性子の実効増倍係数 k_p は種々な物理量と次の関係を有している。

$$k_p = 1 - \frac{1}{(v/\alpha)(\Sigma_a + DB_g^2)} \quad (2.23)$$

ただし、 v ：中性子速度（マクスウェル分布では平均速度）

α ：即発中性子の減衰定数

Σ_a ：平均速度に対応する熱中性子の巨視的断面積であり、燃料と減速材に対する吸収断面積をそれぞれ $(\Sigma_a)_F$ 、 $(\Sigma_a)_M$ とすれば、 $\Sigma_a = (\Sigma_a)_F + (\Sigma_a)_M$ で与えられる。

D：熱中性子拡散係数 ($= \Sigma_a L^2$ 、L：拡散距離)

B_g^2 ：幾何学的パックリング

即発増倍係数 k_p と実効増倍係数 k_{eff} の間には次の関係が成立する。

$$k_p = k_{eff} (1 - \beta) \quad (2.24)$$

ただし、 β は中性子中に占める遅発中性子の割合である。

即発中性子の減衰定数 α は、中性子密度の指數関数的な時間的減衰曲線を測定し、その勾配を計算することによって求められる。

即発中性子の減衰定数 α の逆数は、次の (2.25) 式の関係から有限増倍体系中の熱中性子寿命 ℓ に比例する。したがって、 ℓ は便宜上即発中性子の平均寿命とよばれている。

$$\frac{1}{\alpha} = \frac{\ell_0}{1 + L^2 B_g^2} \cdot \frac{1}{(1 - k_p)} \propto \ell \quad (2.25)$$

ただし、 ℓ_0 は無限大体系における熱中性子寿命 $\ell/v \Sigma_a$ であり、 ℓ は $\ell_0 / (1 + L^2 B_g^2)$ である。

即発中性子の平均寿命測定は、(2.23) 式の関係から即発実効増倍係数の測定に、(2.24) 式の関係から実効増倍係数の測定に結びついている。

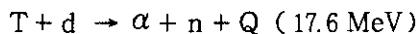
ここでは、パルス化された一群の中性子を増倍体系内に打ち込み、熱中性子密度の時間的变化をシンチレーション検出器を用いて測定し、得られた即発中性子寿命と種々な炉物理定数から実効増倍係数を求める実験を行った。

(A) パルス中性子実験法

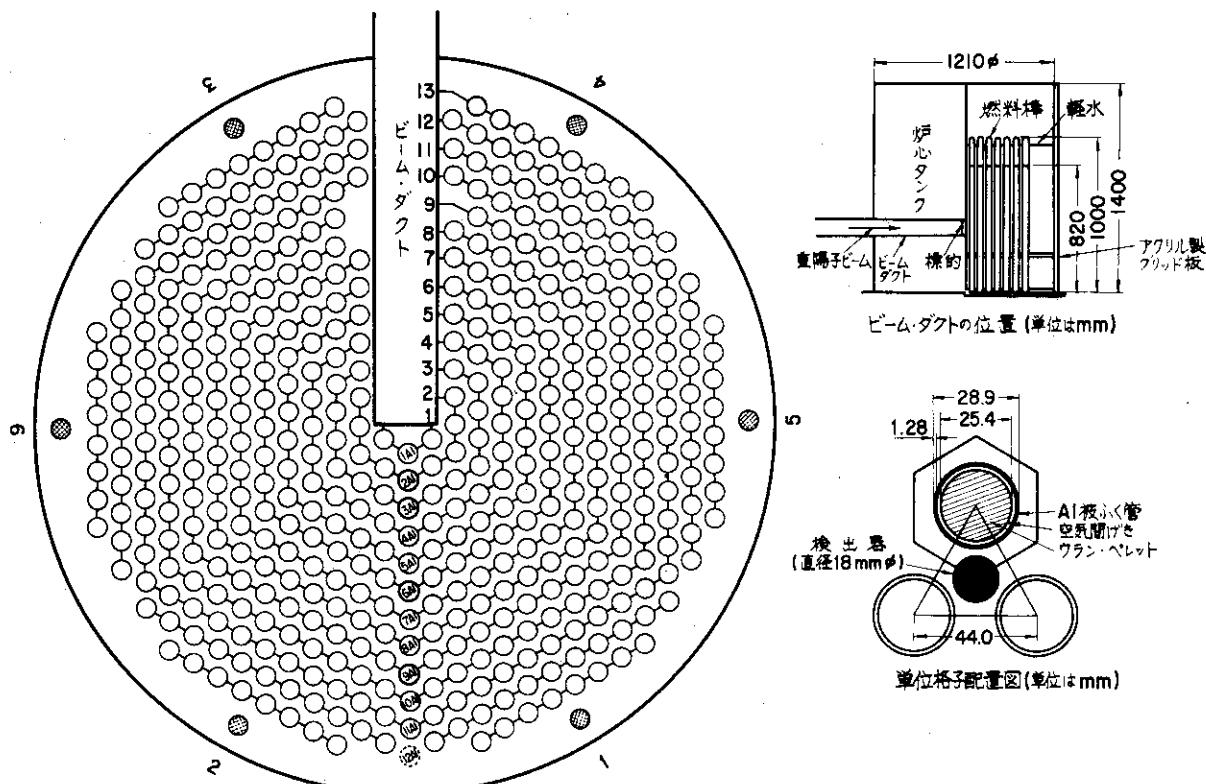
中性子増倍体系としては、定的な中性子源をもたない臨界未満実験装置 (JAERI SA) が用いられた。

検出器としては、特に高い検出効率を得るため、内径 18 mm、高さ 30 mm の円筒型 ZnS (Ag) - ^{6}LiF シンチレーター (厚さ: 0.42 mm) と 24 mm (直径) × 1050 mm (長) の光導体からなるものを用いた。この検出器の相対効率は第 7 表に示されている。

JAERISA の燃料棒と加速器ビーム・ダクトの配置図とともに、実験装置の概略構成図および単位格子 (セル) 配置図を第26図に示す。ビーム・ダクトの先端部にはジルコニウムに吸着されたトリチウム標的が取り付けられ、次の d-T 反応によって中性子が発生させられた。



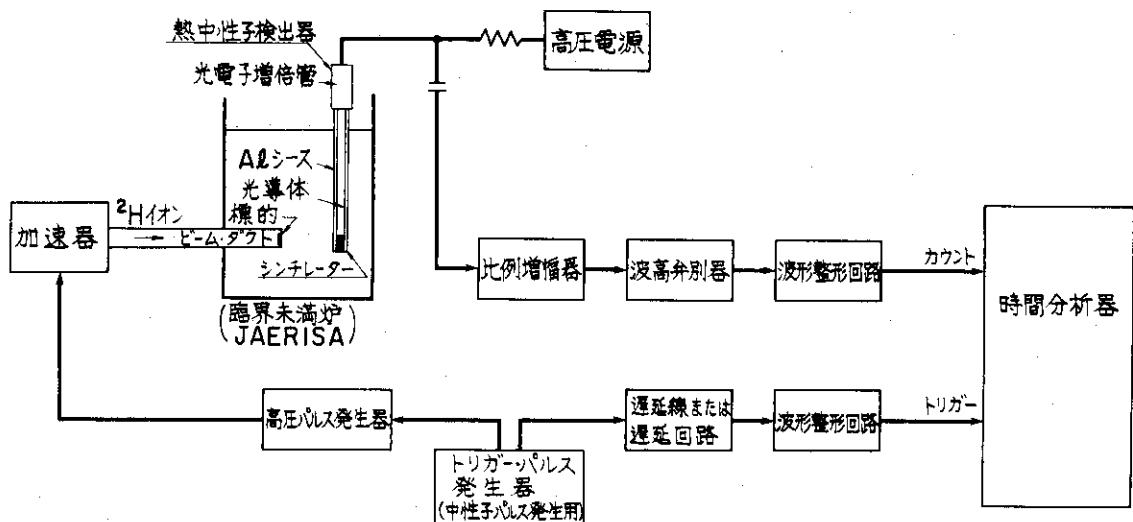
荷電粒子加速器としてはコックロフト型が用いられた。この加速器の最大加速電圧、平均電流および中性子発生量はそれぞれ、200 kV、1 μA および 10^8 n/s (d-T 反応) である。



第26図 中性子増倍体系とビーム・ダクトの配置図および単位格子配置図

パルス中性子法実験のためのブロックダイヤグラムを第27図に示す。トリガー・パルス発生器の出力パルスによってトリガーされた高圧パルス発生器の出力パルスを用いて加速管（イオン源の出口部）に設けられたグリッドを制御してパルス化された重陽子を発生させ、これで標的を衝撃することによってパルス的な一群の中性子を発生させた。ここでの実験においては、パルス幅 20 μs 、パルス率 50 (s^{-1}) の条件 (duty ratio : 1/1000) で加速器を運転した。運転中の中性子発生量の時間的变化は、JAERISA の内壁に設置された BF_3 計数管を検出器とした中性子測定装置によって監視された。

時間分析器は時間間隔分析 (time interval analysis) モードまたは飛行時間分析 (time-of-flight analysis) モードとして一般的に用いられている。



第27図 パルス中性子法実験のためのブロックダイヤグラム

バックグラウンド・パルスの計数率分布はポアソン分布に従い、それらパルスの時間間隔 t をもつ確率密度 $P(t)$ は、時間間隔分析モードにおいては、次式のように指数法則に従った形で測定される。

$$P(t) = n e^{-nt}$$

ただし、 n はバックグラウンド計数率である。

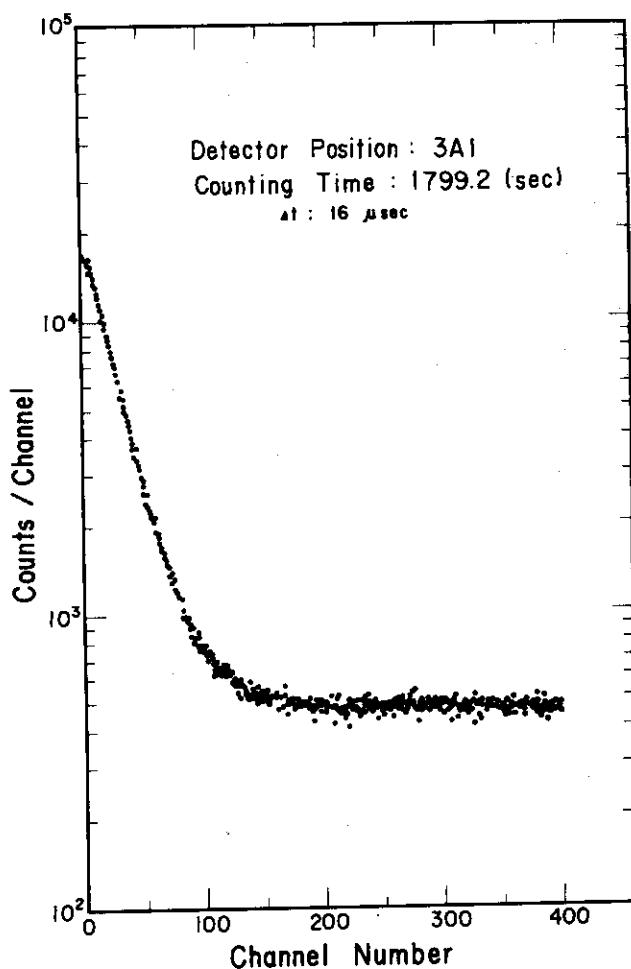
一方、飛行時間分析モードにおいては、トリガー・パルスからの時間経過に伴って各経過時間において発生したパルスがそれぞれの経過時間に対応して記録される。したがって、測定中における時間的減衰が無視できる遅発中性子によるバックグラウンドは、時間軸に対して平行な直線的分布として記録される。このように、飛行時間分析モードにおけるバックグラウンドの評価は時間間隔分析モードに比べて容易になる。このような理由によって、ここでは飛行時間分析モードで時間分析器を使用した。

時間分析器のトリガー（スタート）パルスには、ビームのパルス化に用いたパルス発生器の出力パルスを整形して用いた。また、時間分析器のチャンネル幅としては $16 \mu s$ が標準として用いられた。

(B) 即発中性子寿命の測定

パルス中性子法による熱中性子密度の時間的变化を検出器位置 3A1 (第26図参照)において測定した結果を第28図に示す。同図においては、熱中性子密度の時間的变化が経過時間 (チャンネル番号) の増加に伴う片対数方眼紙上での直線的な減衰として記録され、遅発中性子によるバックグラウンドは水平な分布として記録されている。

減衰定数 α は、バックグラウンドを除去して得たデータを単純な指数関数にフィットさせることによって求めた。



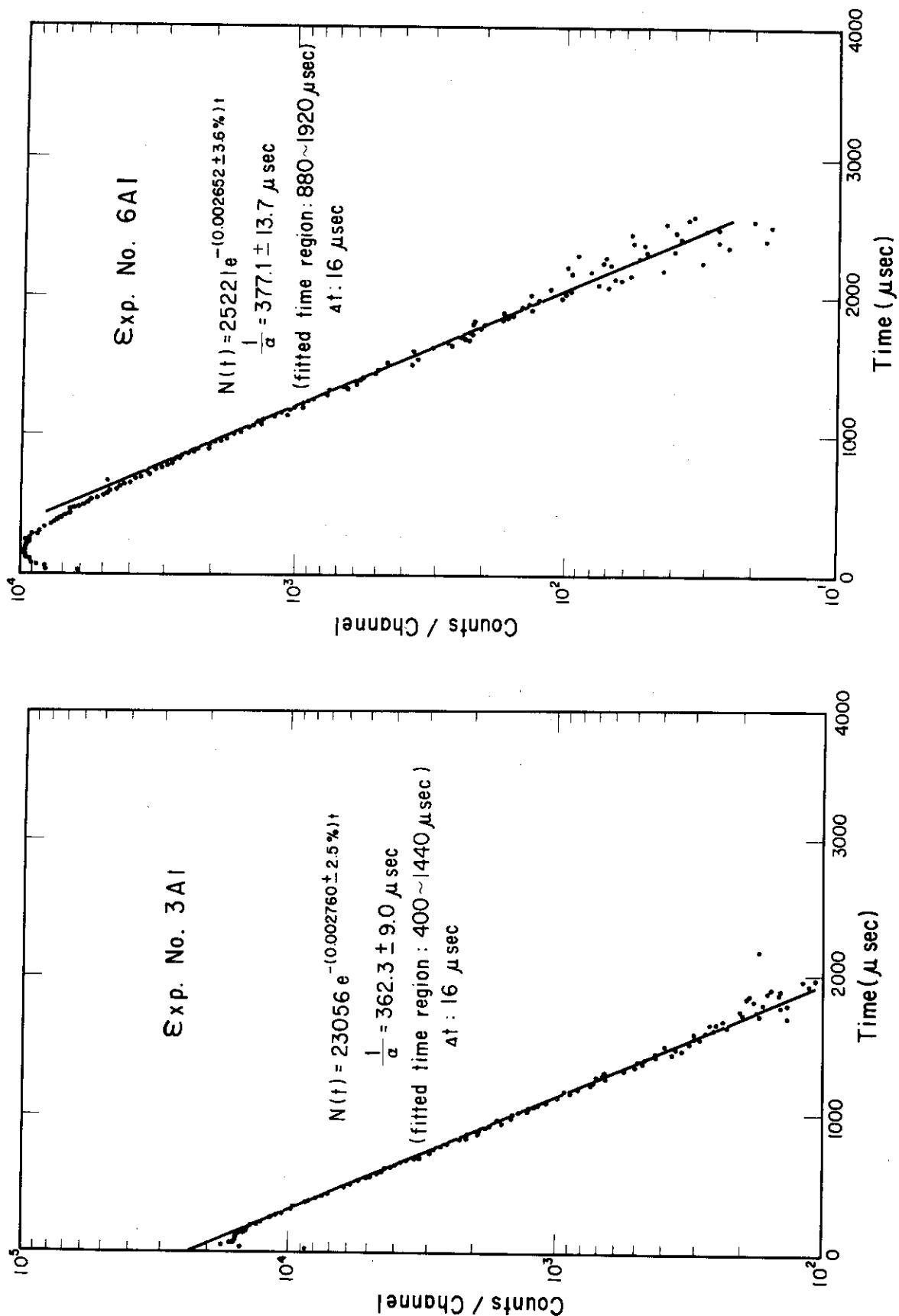
第28図 パルス中性子法による熱中性子密度の時間的変化の測定例〔横軸に水平な分布は遅発中性子によるバックグラウンドを示している。検出器位置(3 A 1)は第26図に示されている。〕

炉心内検出器位置 3A 1 および 6A 1 における即発中性子減衰曲線の測定例を第29A～29B 図に示す。これらの図には、中性子密度の減衰式とともに中性子寿命 $1/\alpha$ 、チャンネル幅およびフィットを行った時間領域も合わせて示されている。

第29A～29B 図において、中性子密度が直線的に減衰する領域は、パルス中性子の打込み直後に現れる過渡的状態が終結し、高調波の寄与がない基本モードだけが残った領域である。

検出器位置 6A 1 における中性子寿命の測定結果と第26図に示した単位セルに対する種々な物理量(第10表参照)を(2.23)式に代入して k_p を求めた。この結果、即発中性子の実効増倍係数として、 0.859 ± 0.001 が得られた。この値と遅発中性子の割合 β (0.0065)を(2.24)式に用いた結果、実効増倍係数 k_{eff} として、 0.865 ± 0.001 が得られた。

中性子増倍体系内の種々な位置に検出器を配置した即発中性子寿命の測定を行い、中性子寿命の空間依存性を求めた。この結果を第30図に示す。同図は即発中性子寿命に明確な空間依存性が存在することを示している。

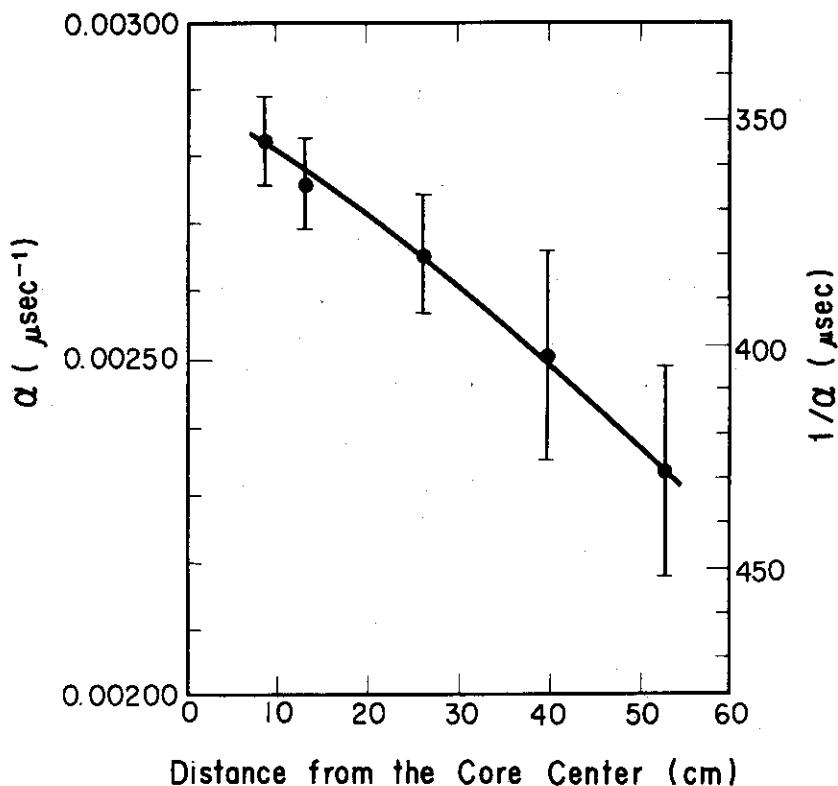


第29A図 即発中性子の減衰曲線（検出器位置：3A 1）

第29B図 即発中性子の減衰曲線（検出器位置：6 A 1）

第10表 即発中性子による実効増倍係数を求めるために用いた
炉物理量の計算値と即発中性子寿命の測定値

| 物理量 | 値 |
|------------|-------------------------|
| v | 2200 m/s |
| Σ_a | 0.0847 cm ⁻¹ |
| D | 0.275 cm |
| B_g^2 | 0.0034 cm ⁻² |
| $1/\alpha$ | 377.1 μ s |



第30図 即発中性子減衰定数 α および即発中性子寿命 $1/\alpha$ の検出器位置
依存性

(C) 結 論

パルス中性子法の実験を通じて、ZnS (Ag) - ^{6}Li Fシンチレーターを使用した検出器の高検出効率、高空間分解能、 γ 線不感性および計数損失が少くなる早い計測特性によって、中性子密度の時間的変化を精度よく測定できることが明らかになった。

パルス中性子法による実験においては、BF₃計数管が一般的に用いられている。しかし、ここで用いた検出器は、例えば R.W.Page⁽⁷⁶⁾ が用いた計数管 (5EB / 13型) と同程度の空間分解能 (シンチレーターに対する計数管の有感体積比 : 0.87) であるにもかかわらず、検出効率は約 8

倍に達している。また、中性子密度の時間的減衰が単純な指數関数によくフィットでき、バックグラウンドの時間分布が時間軸に対して平行になった測定結果は、R. E. Sund⁽⁷⁷⁾らによって報告されているような即発 γ 線の時間的減衰（核分裂後 0.1 ms で 8 γ /fission・s, 1 ms で 0.8 γ /fission・s）などの影響を受けていないことを示している。

パルス中性子源を用いた時間分析測定法においては、時間相関を有しない、または非常に長い減衰定数を有するバックグラウンドは容易に評価できる。このため、 γ 線感度が高い⁶LiI(Eu)^{(78),(79)}シンチレーション検出器も使用されている。しかし、この方法で中性子束の空間分布を求めるためには、注目した時間領域の計数を積分し、それに対応するバックグラウンドを評価して差し引く必要があるため、データ処理が複雑になる。したがって、 γ 線有感な検出器と時間分析法を用いる中性子束空間分布測定は、加速器や時間分析器の必要性とあいまって非現実的なものとなる。

一方、 γ 線不感の本検出器は定常中性子源を用いる各種実験に使用できるのみならず、パルス中性子法にも有効に使用できる広い適用性を有していることが明らかになった。

2.4 GM計数管を用いた放射化検出器の高精度放射能測定

中性子束測定においては、放射化法が標準的な測定法として用いられている。放射化法によって熱中性子束を求める過程は、(i)検出箔の中性子照射、(ii)検出箔からの放射線の計測、(iii)種々な補正係数の評価とその評価値を用いた放射能強度と熱中性子束の計算、の3段階に大別することができる。

補正係数には、検出箔の中性子自己遮蔽効果、箔の存在によってその周辺媒質中に生じる中性子束低下効果およびCdカットオフ効果など、中性子物理に関するものがある。また、放射能測定に関するものとしては、計数損失や放射線の吸収・散乱などに対する補正係数がある。

検出箔の放射能測定には、 $\beta-\gamma$ 同時計数法や定立体角法が一般的に用いられている。^{(61),(83)}

$\beta-\gamma$ 同時計数法は、次式によって放射能強度 A (dps) を求める方法であり、 β 線と同時に γ 線を放出する核種に対して適用できる。

$$A = \frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_{co}}$$

ただし、 N_β 、 N_γ および N_{co} はそれぞれ、 β 線、 γ 線および $\beta+\gamma$ 同時計数率 (cps) である。

この方法では、検出効率や吸収・散乱補正係数と無関係に放射強度を求め得る利点がある。しかし、その反面、複雑な壊変形式をもつ核種に適用するには、測定精度上に問題がある、計数効率が小さくなるため、放射能測定感度が低くなる、などの難点がある。

一方、定立体角法は、(2.8)式に示されている関係から放射能強度を求める方法である。実際の測定にあたっては、(2.8)式の分母の補正係数は、定量された検出箔（標準線源）を用いて、(計数率/壊変) の形で括して求められる場合が多い。

中性子束空間分布測定においては、 β 線に注目した定立体角法が次の理由で適当と考えられる。

- (i) Au, In, Dyなどの代表的な箔物質は、放射化によって β 線を放出する。
- (ii) 検出器の β 線に対する固有検出効率は、高くすることが容易で、100%近くにすることも可能

である。

(iii) β 線検出器を用いた場合のバックグラウンドは低く、放射能測定感度が高くなる；

(iv) 同時計数法に比べて、測定装置が簡略化される。

β 線検出器としては、GM計数管、比例計数管およびアントラセン蛍光体などを用いたシンチレーション検出器が広く用いられている。

これらのなかで、GM計数管は次の点において、他の検出器より優れている。

(i) 計数特性にプラトーが存在するため、安定な測定ができる。

(ii) 計数特性に閾値依存性が殆んどないため、外挿によって真の計数率を求める必要がない。

(iii) 検出器出力信号が大きいため、信号の処理が簡単になり、測定装置が簡便になる。

しかし、GM計数管はその分解時間が他の検出器に比べ非常に長いため、計数損失が顕著になる難点を有している。

このため、GM計数管を用いた測定においては、分解時間を測定し、これを用いて計数損失の補正を行うことが不可欠となる。

計数損失の補正式としては、次式が一般的に用いられている。

$$N = \frac{n}{1-n\tau} \quad (2.26)$$

ただし、Nは計数損失の補正を行った計数率、nは実測計数率、τは分解時間である。

式(2.26)には、分解時間の計数率依存性は考慮に入れられていない。しかし、計数率の増加に伴って、GM計数管出力パルス波高が減少する現象から、分解時間には計数率依存性が存在することが十分考えられる。

したがって、ここでは正確な放射能強度測定を目的として、分解時間の計数率依存性の存在を明確にし、従来の補正式では正確な計数損失の補正が困難であることを明らかにする実験を試みた。⁽⁴⁵⁾

また、正確に補正された計数率が高計数率領域においても直読的に得られ、これによってGM計数管の使用可能計数率範囲を飛躍的に拡大させ、この計数管の欠点をかなり緩和させる新しい原理に基づく測定法に関する実験も行った。⁽⁴⁶⁾

2.4.1 GM計数装置の分解時間の特性測定

GM計数管は、陽極付近の電界が非常に強い状態で使用される。このため、入射放射線の電離作用で発生した電子によって放電が誘発され、大きい電流が外部回路に流れる。電子の易動度は大きく、電子は放電後約1μs以内に陽極に到達する。一方、陽イオンの易動度は、電子の10⁻⁴程度であるので、放電直後の陽極は、陽イオンのさやに囲まれた状態になる。このような状態では、静電遮蔽効果による陽極付近の電界の低下によって、放電が起らなくなる。この結果、GM計数管は作動できずこのため計数損失が発生する。しかし、時間の経過に伴って、陽イオンは陽極から遠ざかり、電界は次第に回復し、放射線の検出が可能な状態になる。

放電発生後の放射線検出が全く不可能な時間は、不感時間と呼ばれる。

GM計数管の放電電流の大きさ（パルス波高）は電界強度に比例する。パルス波高弁別闘に等

しい波高のパルスを発生させ得る状態に電界強度が回復したとき、はじめて放射線の計数が可能となる。このような状態に達するまでに要する放電後からの時間は、分解時間と呼ばれる。

また、電界は、陽イオンが陰極に到達したときにもとの状態に回復し、このとき電界強度低下の影響を受けないパルス（主パルス）が放電後はじめて発生する。主パルスがはじめて発生するようになるまでの不感時間後からの経過時間は、回復時間と呼ばれる。

過渡的な電界強度は、放電の大きさ（パルス波高）と放電後の経過時間に依存する。また、電界が回復途上にある時間帯に放射線が入射する確率は、計数率に依存する。

この結果、GM計数管の出力パルス波高分布は計数率依存性を示す。この依存性は、電界強度（静電遮蔽効果）の計数率依存性を意味するので、分解時間も計数率依存性を示すものと考えられる。

分解時間の計数率依存性が存在し、それが無視できない場合、(2.26)式を用いて計数損失を正しく補正することができなくなる。

分解時間の計数率依存性を考慮に入れて、正しく補正された計数率 N' を求めるためには、計数率に依存する分解時間 $\tau(n)$ を用いた次式を用いる必要がある。

$$N' = \frac{n}{1 - n \tau(n)} \quad (2.27)$$

そのためには、分解時間の計数率依存性の測定が必要になる。

分解時間の測定法としては、H.G. Stever や Van Gemert ⁽⁸⁴⁾ ⁽⁸⁵⁾ らによって行われたオシロスコープを用いる方法がある。簡単で敏速なこの方法は、今日では最も広く用いられている。その他の測定法としては、2線源法、多線源法および短半減期核種法などがある。

分解時間の計数率依存性については、G.A. Brinkman ⁽⁸⁶⁾ による2線源法、多線源法および短半減期核種法による実験によって、その存在が示された。しかし、H. Lindeman ⁽⁸⁷⁾ らによる 2×10^5 cpmにおよぶ計数率範囲における実験では、 $10 \mu\text{s}$ の測定誤差の範囲内で、この依存性は認められなかった。

G.A. Brinkman や H. Lindeman らによって用いられた測定法は、ランダム・パルスの統計的揺動に支配される。このため、測定精度が低く、特に低計数率領域における依存性の測定は困難である。

したがって、広い計数率範囲にわたる高精度な依存性の測定には、統計的揺動に直接支配されない新しい測定法の導入が必要となる。

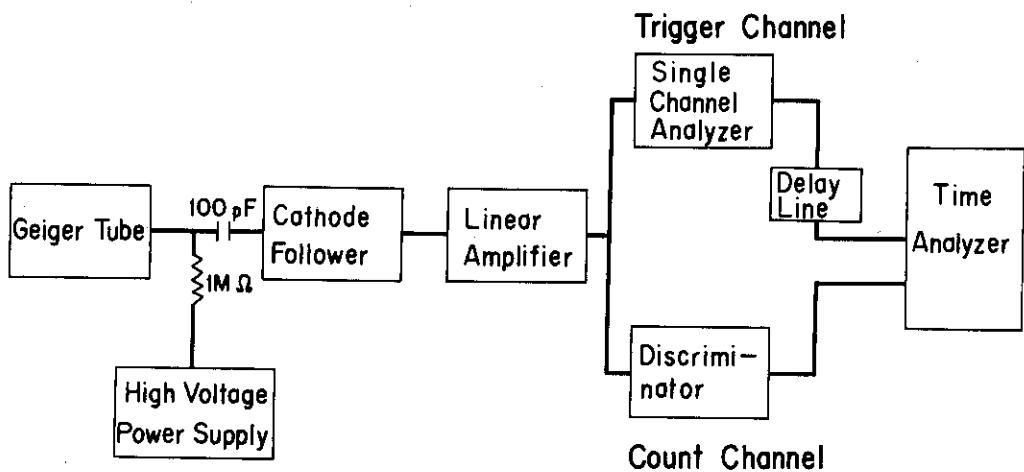
ここでは、時間分析器を利用する測定法を導入した。この測定法を用いて、分解時間の計数率依存性のみならず、印加電圧や波高弁別闘依存性などをも正確に測定し、分解時間の諸特性を明らかにする実験を試みた。

(A) 測定法

分解時間測定のための回路構成を第31図に示す。同図における時間分析器は、飛行時間分析モードで使用された。時間分析器はシングル・チャンネル・アナライザ（SCA）の出力パルスによってトリガーされ、波高弁別回路（PHD）の出力パルスがトリガー後の経過時間に応じて分析・記録された。トリガー・チャンネルには、遅延線が用いられているため、トリガー・パルスと同

一のPHD出力パルスは記録されない。

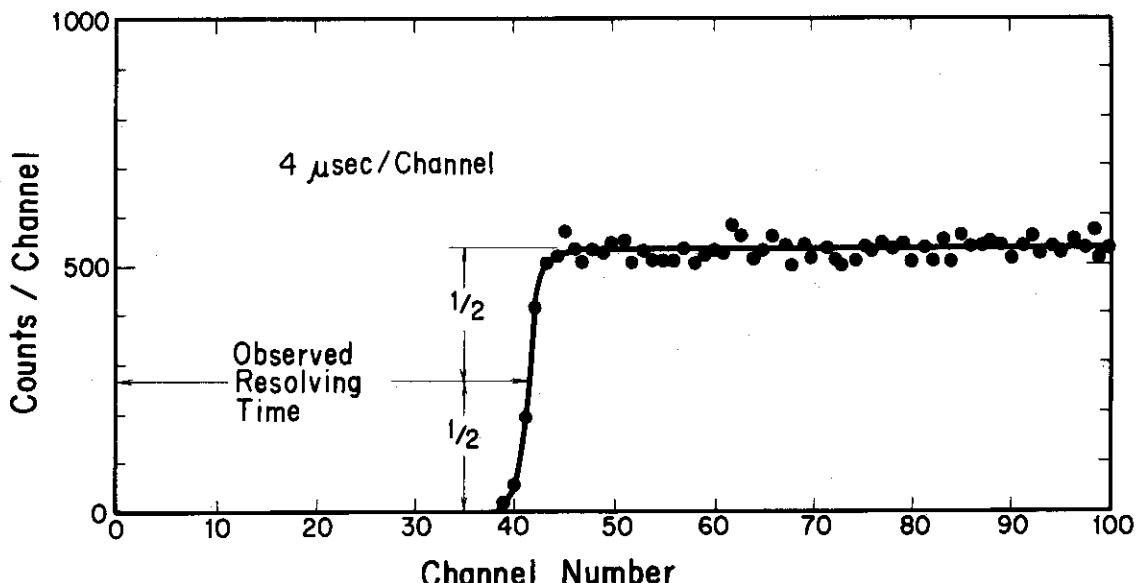
第31図においては、高精度な測定を目的としたため、時間分析器が用いられている。しかし、精度が5%程度の測定においては、時間分析器の代りに、オシロスコープを用いることができる。このときは、SCAの出力パルスはオシロスコープの外部同期入力に、PHDの出力パルスは、垂直軸入力に供給される。



第31図 GM計数装置の分解時間測定法のブロックダイヤグラム

GM計数管としては、アルゴン計数ガスと有機消滅ガスを封入したB 2N および132 A型が用いられた。

本法による測定結果の一例を第32図に示す。この測定においては、半減期28年の⁹⁰Sr (⁹⁰Y) 線源が用いられたため、計数値は時間軸（チャンネル番号）に平行な分布として記録されている。また、分解時間以内に入射した放射線の計数損失によって、トリガー・パルス発生後の一定時間帯には、パルスが全く計数されていないことも明確に示されている。



第32図 時間分析器による分解時間の測定例

実測分解時間は、第32図に示されているように、平均計数値の1%の計数値が得られるまでの経過時間と定義し、これに遅延時間を加えたものを分解時間とした。

第11表に本法とオシロスコープ法による分解時間の測定結果を示す。同表の本法による結果は主パルスのみによってトリガーして測定したものである。また、オシロスコープ法では、写真撮影によって得たトレースから分解時間を求めた。

本法は、オシロスコープ法に比べて、数倍優れた測定精度を有していることが、第11表から明らかになっている。

第11表 GM計数管の分解時間

| 計数管型式 | B2N | | | 132A | | |
|-------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|---------------|
| 製品番号 | 674937 | 674986 | 674999 | 3769 | 3802 | 3803 |
| 印加電圧(V) | 1365 | 1403 | 1334 | 1220 | 1170 | 1360 |
| 本測定法による 分解時間(μs) | 182.8 ±0.8% | 170.0 ±0.9% | 195.6 ±0.8% | 114.0 ±1.3% | 131.2 ±1.1% | 91.2 ±1.5% |
| オシロスコープ法に よる分解時間(μs) | 179 ±4.8% | 168 ±4.9% | 189 ±4.6% | 110 ±7.2% | 121 ±6.1% | 89 ±7.6% |

(B) 分解時間の計数率依存性の測定

GM計数管の分解時間は、先行パルスの波高に依存し、先行パルスの波高は、計数率に依存する。したがって、分解時間 τ と計数率の関係は、次のようにして求めることができる。

(i)種々な計数率において、パルス波高分布を測定する。

平均パルス波高 \bar{p} は次式から求められる。

$$\bar{p} = \int n(p) pdp / \int n(p) dp$$

ただし、 $n(p)$ はパルス波高 p を有する計数率である。

(ii)種々な波高を有するパルスでトリガーすることによって、分解時間のトリガー・パルス（先行パルス）波高に対する依存性を測定する。この結果、 $n(p)$ は $n(\tau)$ で置換できるようになる。

(iii)ある計数率における平均分解時間 $\bar{\tau}$ は、次式から求められる。

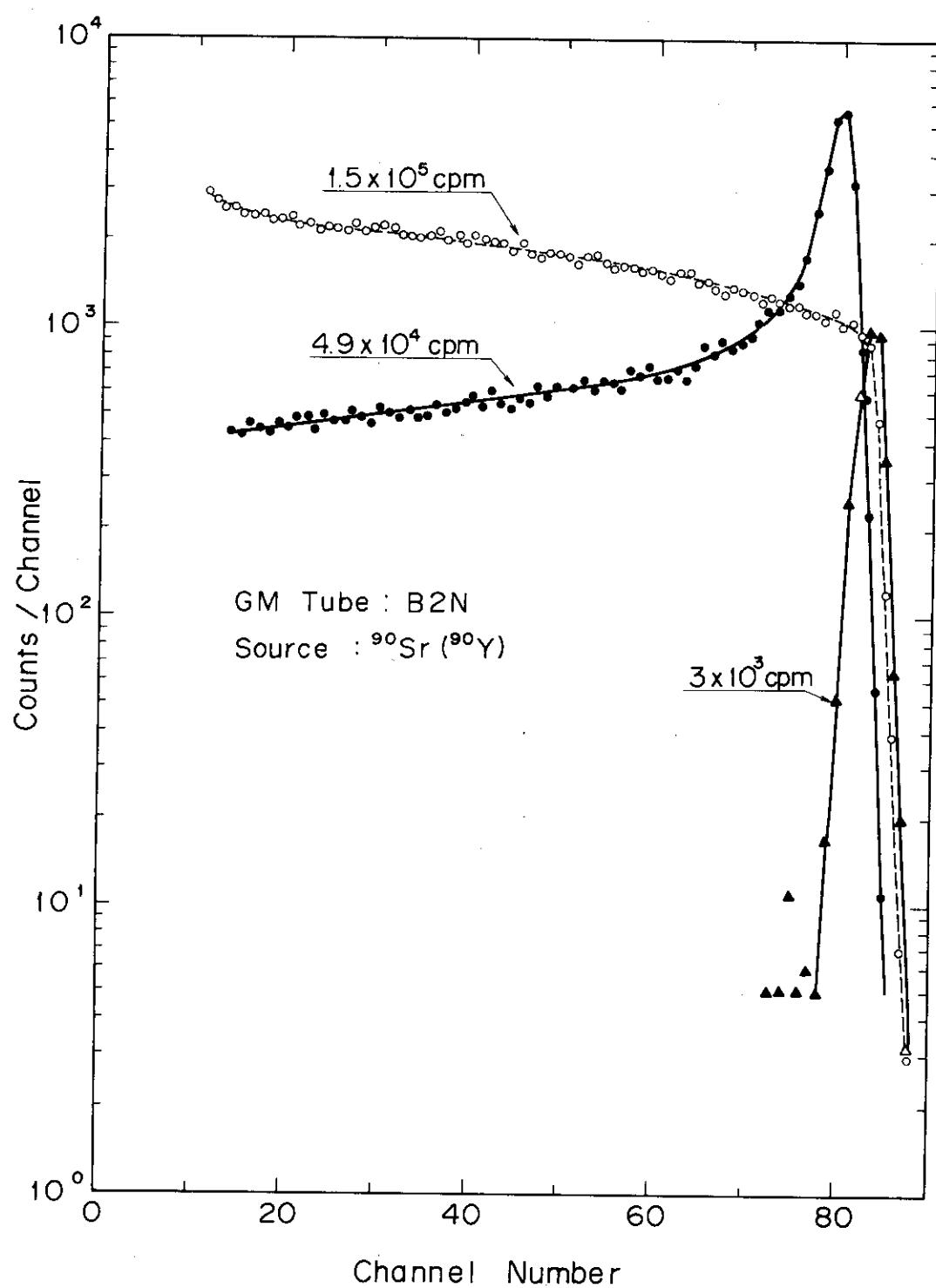
$$\bar{\tau} = \int n(\tau) \tau d\tau / \int n(\tau) d\tau$$

種々な計数率におけるGM計数管のパルス波高分布の測定例を第33図に示す。計数率の増加に伴い、低いパルス波高領域に分布するパルスが増加することが示されている。

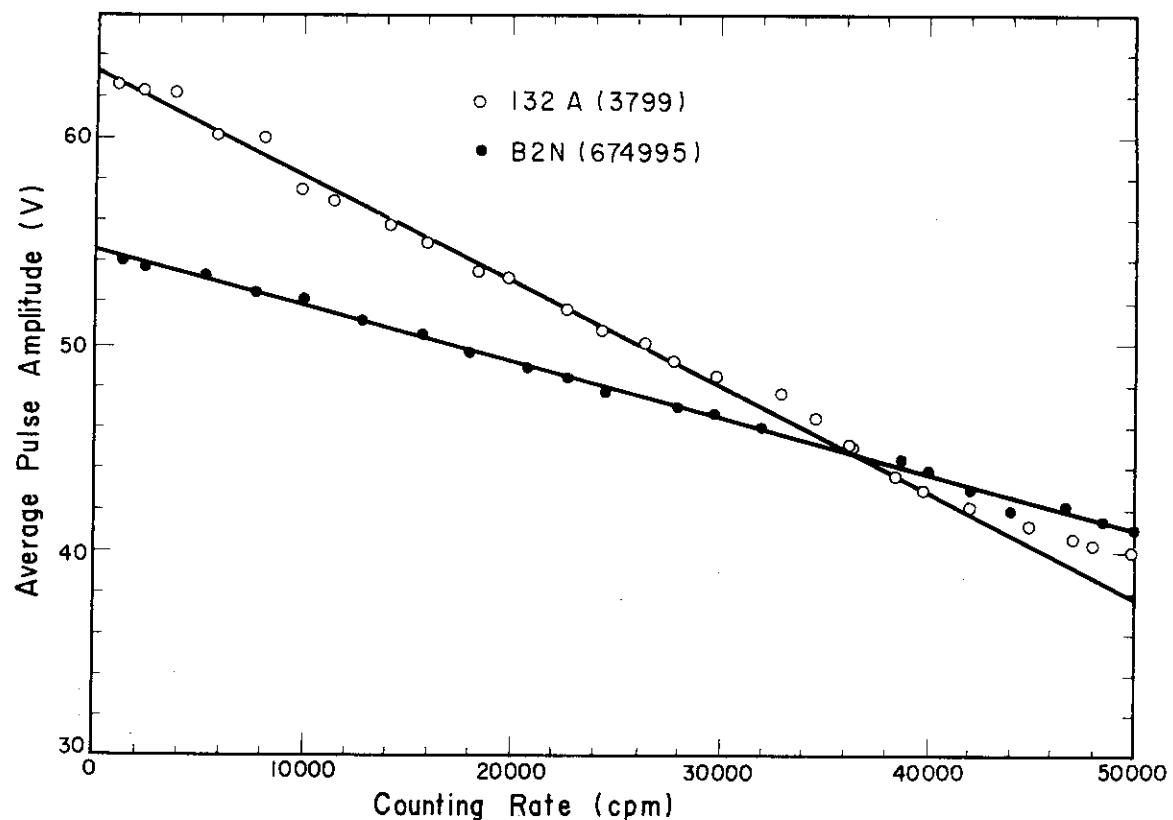
平均パルス波高の計数率依存性を第34図に示す。平均パルス波高が計数率の増加に伴って、両型式の計数管とも、直線的に減少する傾向が示されている。

分解時間のトリガー・パルス波高に対する依存性を第35図に示す。同図は、低波高領域において、波高の増加に伴う分解時間の急激な増加がみられるが、その後は徐々に増加し、ついにはほぼ一定値に近づく傾向を示している。

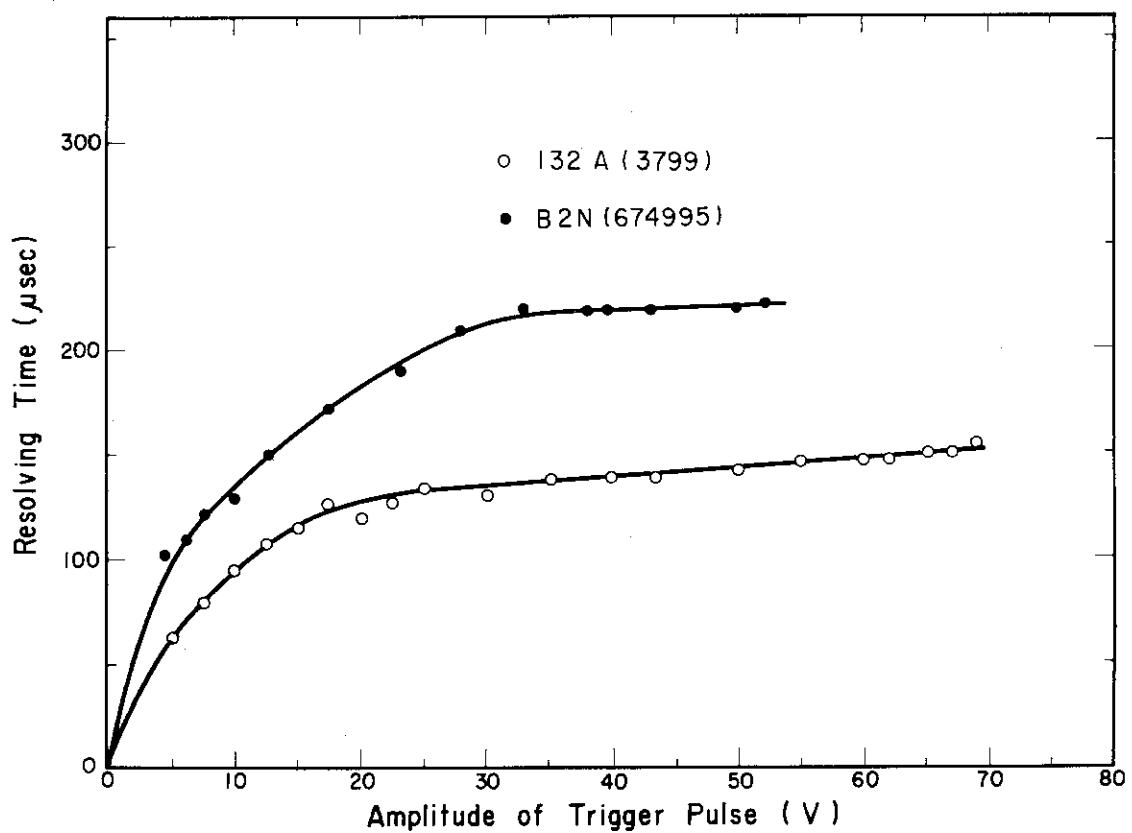
第34図と第35図の結果から得られた平均分解時間の計数率依存性を第36図に示す。同図は、計数率の増加に伴って、平均分解時間がほぼ直線的に減少する明確な依存性を示している。この依



第33図 GM計数管出力パルス波高分布の計数率依存性



第34図 平均パルス波高値の計数率依存性



第35図 分解時間のトリガー・パルス波高依存性

存性は、 5×10^4 cpm における分解時間が、計数率零 cpm における外挿値より 6% (132 A型) および 11% (B 2N型) 小さくなる結果を与える。

この依存性の測定は、他の計数管を用いて数回くり返されたが、いずれにおいても第36図と同様な結果が得られた。

以上の結果から、低計数率領域においても、分解時間には計数率依存性が存在すると結論できる。

この結論は、H. Lindeman⁽⁸⁷⁾ らによる結論とは一致しない。この理由として、彼らの測定法がこの依存性の検出に十分な感度をもっていなかったことが挙げられる。

(C) 分解時間の波高弁別闘依存性の測定

波高弁別闘を変化させながら、分解時間を測定し、その結果を第37図に示す。測定結果は、分解時間の強い弁別闘依存性を示している。第37図には、B 2N型計数管に対応する曲線に対して、不感時間 t_d および回復時間 t_r が示されている。定義から明らかに t_d は弁別闘が零において、 t_r は主パルスに等しい波高弁別闘において得られたものである。132 A型の依存性が単調な傾向を示さない点は、オシロスコープによっても確認された。

(D) 分解時間の印加電圧依存性の測定

分解時間の印加電圧依存性の測定結果を第38図に示す。この測定では、増幅器の利得および波高弁別闘は一定に保持された。同図の結果は、印加電圧の増加に伴って、分解時間が顕著に減少することを示している。このような傾向を示す理由として、(i)印加電圧の増加に伴うパルス波高の増加は、相対的には波高弁別闘の低下を意味し、第37図の結果から明らかのように、分解時間が減少する、(ii) D. H. Wilkinson の理論⁽⁸⁸⁾によって示されているように、イオンの移動速度が電界強度に比例する本質的な理由によって分解時間が減少する、などが挙げられる。

この理由(ii)を検証するため、印加電圧のみに依存する分解時間の測定を行った。

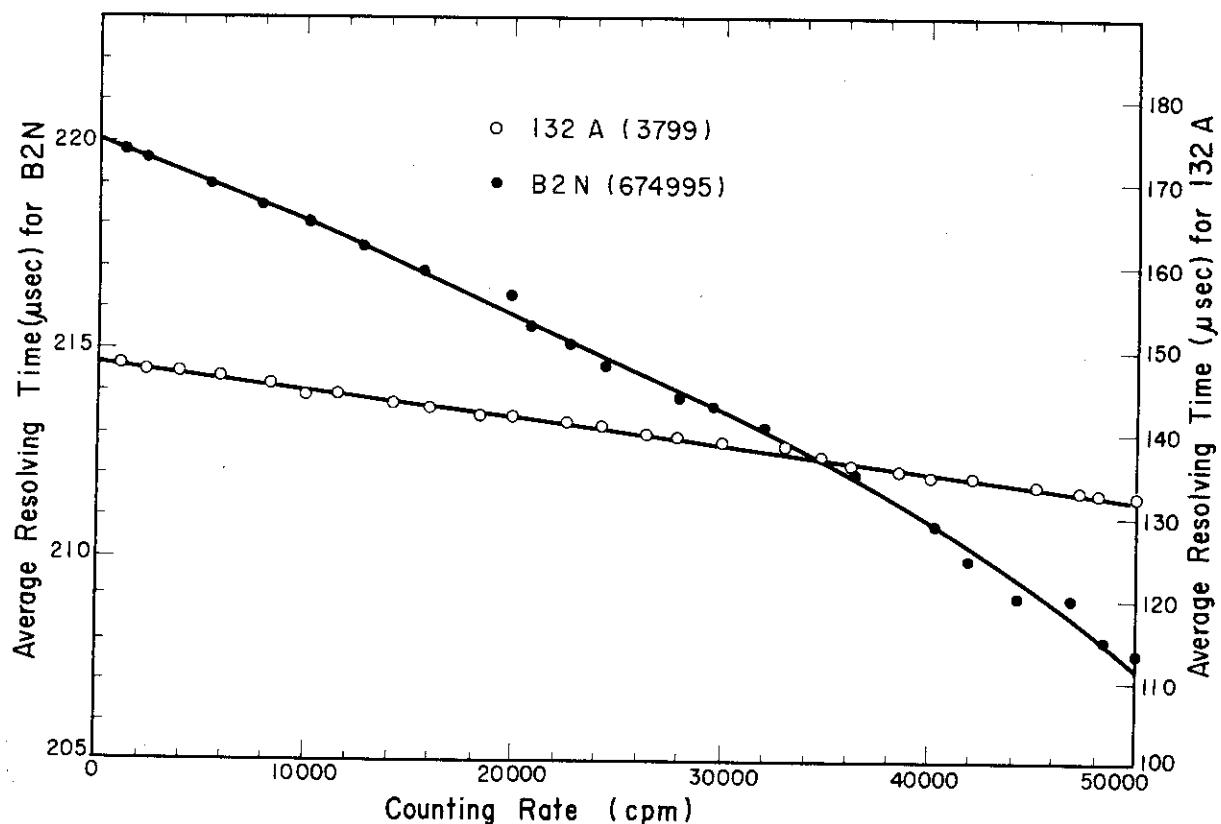
この測定においては、増幅器入力パルス波高は、減衰器の使用によって一定に保たれた。また弁別闘の値も一定値に固定された。これによって、分解時間の測定条件依存性は除外された。

このようにして測定した結果を第39図に示す。同図に示されているように、分解時間は印加電圧とともに増加して最大値に達し、その後に減少する傾向をもっている。

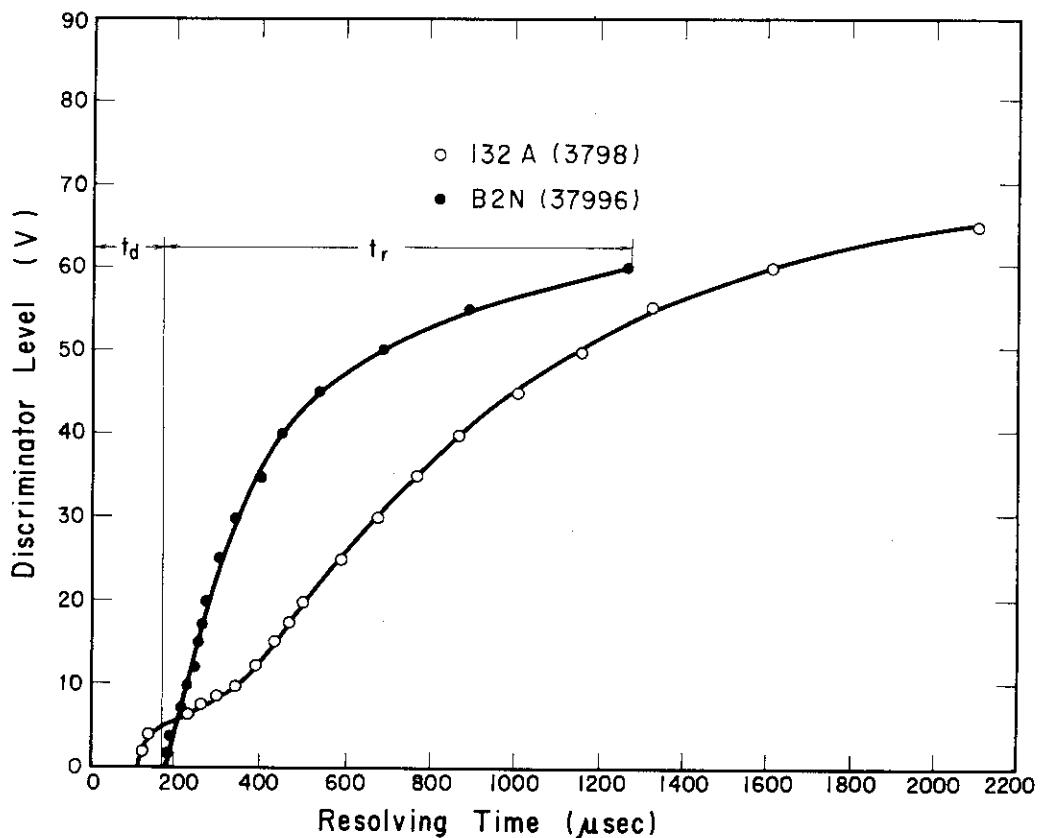
この測定におけるガイガーパルス波高分布は、132 A型に対しては 1180V が、B 2N型に対しては 1200V が得られた。しかし、これらの電圧値における計数管出力パルス波高分布は、より高い印加電圧において得られた分布に比べて、幅が広いものとなった。

それ故、最大値に達するまで増加しつづける領域の分解時間は、制限比例領域 (region of limited proportionality) に対するものと考えられる。

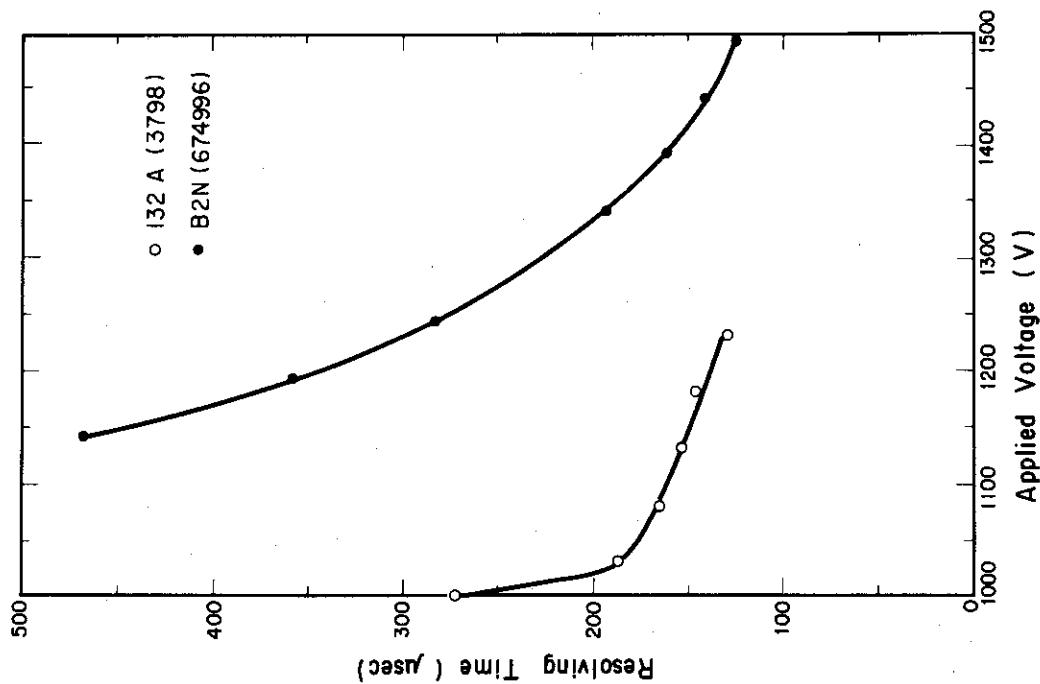
以上の結果、GM計数管領域においては、印加電圧の増加に伴って分解時間が減少し、制限比例領域においては、D. H. Wilkinson の理論が適用できないことが明らかになった。



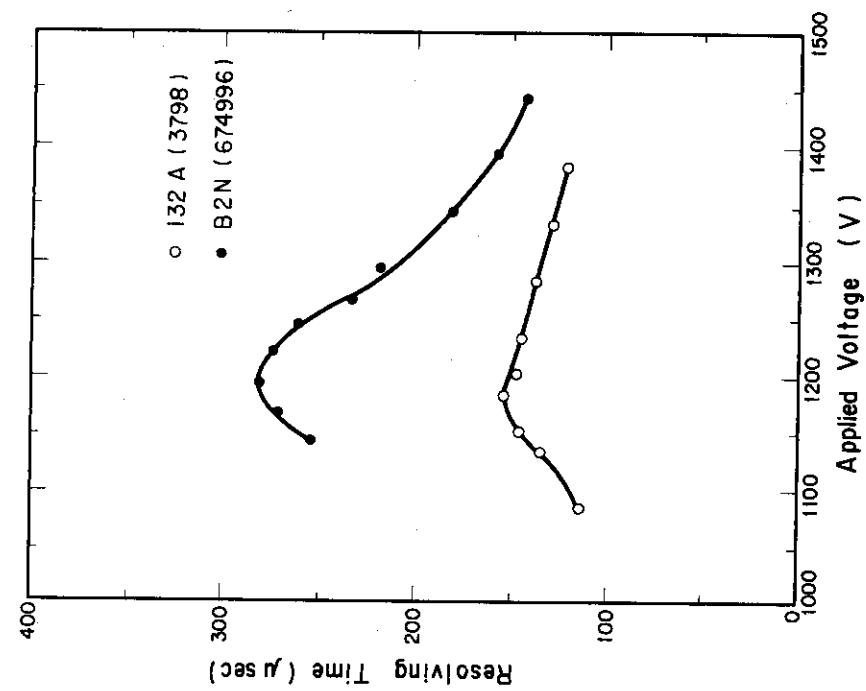
第36図 平均分解時間の計数率依存性



第37図 分解時間の波高別閾依存性



第38図 分解時間の印加電圧依存性（測定回路の増幅度や波高弁別閾を一定に保って測定した。）



第39図 分解時間の印加電圧依存性（増幅器の入力パルス波高を一定に保つように調節することによって、印加電圧以外の因子に対する分解時間の依存性を除去して測定した。）

(E) 結論

- (i) 分解時間の高精度測定が可能な新しい測定法を導入することによって、分解時間の計数率依存性をはじめて明確に示すことができた。
- (ii) この依存性は、計数率の増加に伴って、ほぼ直線的に減少する傾向をもつため、正確な計数損失補正のためには、低計数率領域においても、依存性を考慮に入れた補正式を使用する必要性が明らかになった。
- (iii) 分解時間の印加電圧および波高弁別閾に対する依存性も明らかになった。

2.4.2 GM計数装置における高精度計数損失自動補正法

計数損失が正確に補正された計数率をGM計数管を用いて得るために、分解時間の計数率依存性を考慮した補正式を使用する必要性が明らかになった。

しかし、短半減期核種法などによる分解時間の計数率依存性の測定では、補正に使用し得る程の精度でこれを広い計数率範囲にわたって測定することは困難である。

また、新しく導入した測定法では、高精度な依存性の測定が可能であるが、時間分析器やパルス波高分析器が必要になる。

したがって、依存性の測定結果を(2.27)式に用いて行う補正法は、GM計数装置の主要な特長である簡便性を害するため、あまり実際的な方法とはなり難い。

この点を解決するため、計数損失の補正が、高計数率領域においても、比較的正確かつ自動的に行える簡単な測定法を見出し、それを実証することを試みた。⁽⁴⁶⁾

(A) 計数損失補正法の原理

この補正法は、偶然の同時計数が計数回路に与える正の効果と、計時回路に与える負の効果に注目したものである。

* 分解時間に等しい一定の時間幅を有する波高弁別回路出力パルスを用いて、計数回路および実効計数時間(live time)モードの計時回路を非同時計数法において制御すれば、次のような計数特性が得られると考えられる。

- (i) 偶然の同時計数が問題とならない低計数率領域においては、(2.26)式が成立し、この補正式に従った計数率が得られる。
- (ii) GM計数装置は、長い分解時間 τ をもつので、 τ の計数率依存性を考慮する必要のある計数率領域では、偶然の同時計数が多くなる。偶然の同時計数によって、計数回路の計数値は増加するが、計時回路では計数時間が短縮される。
- (iii) 偶然の同時計数による計数回路における正の効果と、計時回路における負の効果が、広い計数率範囲にわたって、互いに相殺すれば、補正された計数率が直読的に得られる。

(B) 実験方法

本補正法による計数損失補正型GM計数装置のブロックダイヤグラムを第40図に示す。同図においては、波高弁別回路の出力パルスと一緒に発生させたゲート・パルスが2台の非同時回路の入力にそれぞれ供給される。これによって、計時回路はライブ・タイム・モードになる。また、

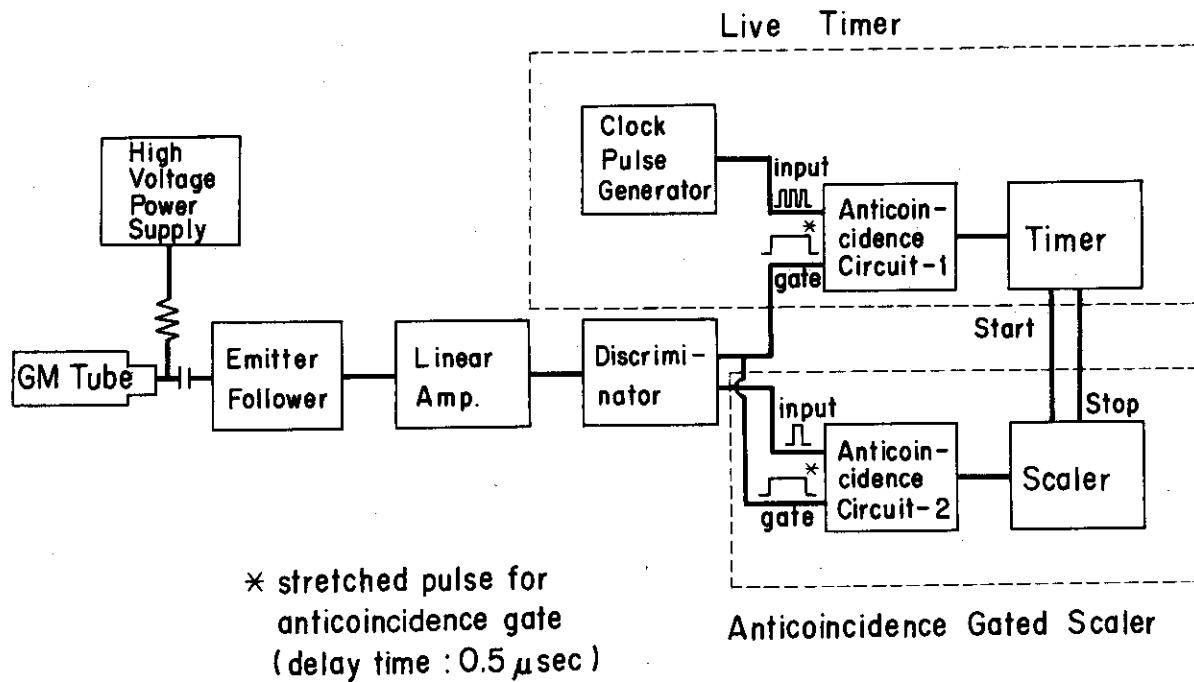
* 分解時間の計数率依存性を考慮していない(2.26)式を用いて補正するために、従来から用いられている分解時間

計数回路は、ゲート・パルスと同時性を有するパルスを計数しない非同時ゲート・モードになる。

ゲート・パルスは、波高弁別回路出力パルスより $0.5 \mu\text{s}$ 遅延され、そのパルス幅はオシロスコープで測定した主パルスに対応する分解時間 τ に等しく調節された。

一連の測定を通じて、比例増幅器の出力パルス波高は、約 6.5 V に調節され、波高弁別回路の閾値は、約 300 mV に設定された。

第40図において、ゲート・パルスが各非同時回路に供給されなかった場合、この測定回路系は通常の GM 計数装置として作動する。



第40図 GM 計数装置の計数損失補正法のブロックダイヤグラム

実験には、特性が著しく異なる 2 種の GM 計数管、一つは有機ガス消滅型 (B 2 N 型)、他はハロゲンガス消滅型 (B 2 H 型) が用いられた。B 2 N 型は、内径 27 mm の陰極と 0.05 mm (直径) $\times 20 \text{ mm}$ (長) の陽極を有し、通常の分解時間および回復時間はそれぞれ約 $180 \mu\text{s}$ および約 1.5 ms である。また、B 2 H 型は、内径 27 mm の陰極と 2 mm (直径) $\times 25 \text{ mm}$ (長) の陽極を有し、通常の分解時間および回復時間はそれぞれ約 $120 \mu\text{s}$ および約 $300 \mu\text{s}$ である。B 2 N 型の封入ガスとしては、アルゴンと蟻酸エチルの混合ガスが約 300 mmHg で用いられ、B 2 H 型に対しては、ネオン、臭素およびアルゴンの混合ガスが用いられている。

(C) 計数損失補正原理の実験的検証

本補正原理を実証するため、第40図の非同時回路 - 2 の出力パルスに対して時間間隔の分析を行い、次式で示される計数率 N_n および N_c を測定した。

* アルゴン：蟻酸エチル = 30 : 1 (体積比)

** ネオン (150 mmHg)、臭素 (0.15 mmHg)、アルゴン (約 1 %)

$$N_n = \int_0^\tau m(t) dt$$

$$N_c = \int_\tau^\infty m(t) dt$$

ただし、 $m(t)$ は先行パルスにつづいて時間間隔 τ をもって発生したパルス数である。

計数値 N_c は、本測定法（非同時ゲート法）において当然計数されるべきものである。一方、 N_n は先行パルスの後で時間以内に発生したパルスであるにもかかわらず、偶然の同時計数によって、非同時ゲート・パルスが発生しなかったために計数されたものである。したがって、 N_n は本測定法においては余分な計数値になる。したがって、本測定法における計数値 N_g は、 N_n と N_c の和となる。

先行パルスからで時間以内に発生するパルス数および偶然の同時計数によって失われるゲート・パルス数は、計数率とともに増加する。この結果、 N_n は計数率とともに増加する。

一方、偶然の同時計数に起因するゲート・パルス数の減少は、タイプ・タイムに対応して計算される計測時間 T に比べて、実際の計測時間 T_e が短くなる効果をもたらす。このため、計数率の増加について、 T_e/T は増々 1 よりも小さくなる。

補正原理が所期の通り作動するならば、次の関係が成立する。

$$\begin{aligned} \frac{N_g \cdot T_e}{N_c \cdot T} &= \left(\frac{N_c + N_n}{N_c} \right) \left(\frac{T - T_\ell}{T} \right) \\ &= \left(1 + \frac{N_n}{N_c} \right) \left(1 - \frac{T_\ell}{T} \right) \\ &= 1 \end{aligned} \quad (2.28)$$

ただし、 T_ℓ は損失した計測時間 ($= T - T_e$) である。

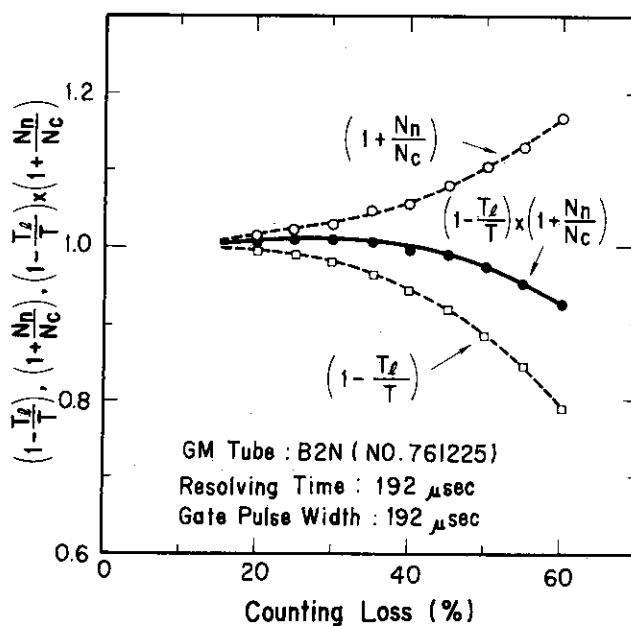
B 2N型計数管を用いて、(2.28) 式で表わされる関係を種々な計数率 n において調べるための測定を行い、その結果を第41A図に示す。また、第41B図には、B 2H型計数管を用いて得た同様な測定結果を示す。

これらの図における横軸は、計数率 n の代りに、計数損失の割合 [$n\tau \times 100\%$] で示されている。

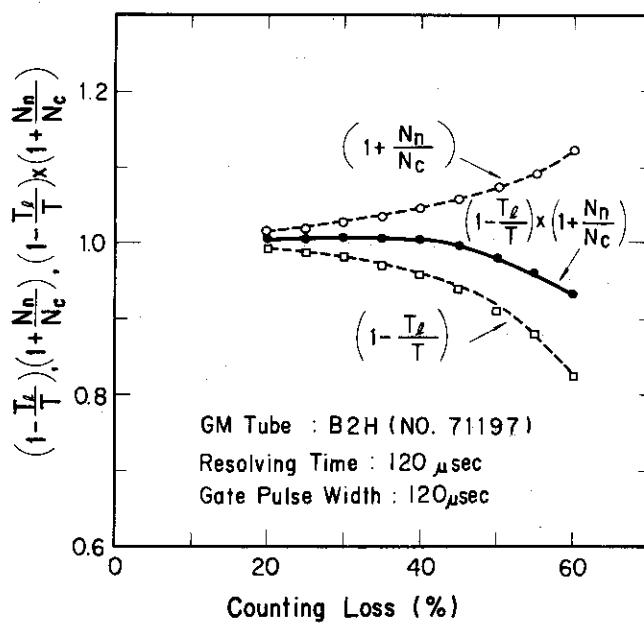
測定結果は、両型の計数管に対して、偶然の同時計数によるゲート・パルス数の減少が計数回路と計時回路にもたらす正と負の効果を明らかにし、(2.28) 式で表わされる補正原理がほぼ成立していることを示している。

(D) 計数損失補正特性の測定一分解時間の計数率依存性を考慮した補正法との比較検討
一本補正法による計数率を、(2.27) 式を用いて得られる補正計数率と比較することによって、本法の補正特性を明らかにする測定を行った。

⁹⁰Sr (⁹⁰Y) 線源の線源距離を変化させることによって実現した種々な計数率 n において、計数率 N 、 N' および N_g を測定した。計数率 n の測定は通常の測定法で行い、 N を求めるためには、オシロスコープによって測定した分解時間を用いた。この分解時間は、本法による計数率 N_g の測定におけるゲート・パルス幅としても用いられた。



第41A図 有機ガス消滅型GM計数管(B2N型)を用いた場合の計数損失補正原理を実証する特性測定〔 N_n :先行パルスにつづいて分解時間以内の時間間隔をもって発生したパルス数, N_c :分解時間以上の時間間隔をもって発生したパルス数, T :ライブ・タイムに対応する実計測時間(true time), T_ℓ :損失計測時間〕



第41B図 ハロゲン・カウンター(B2H型)を用いた場合の計数損失補正原理を実証する特性測定〔 N_n :先行パルスにつづいて分解時間以内の時間間隔をもって発生したパルス数, N_c :分解時間以上の時間間隔をもって発生したパルス数, T :ライブ・タイムに対応する実計測時間(true time), T_ℓ :損失計測時間〕

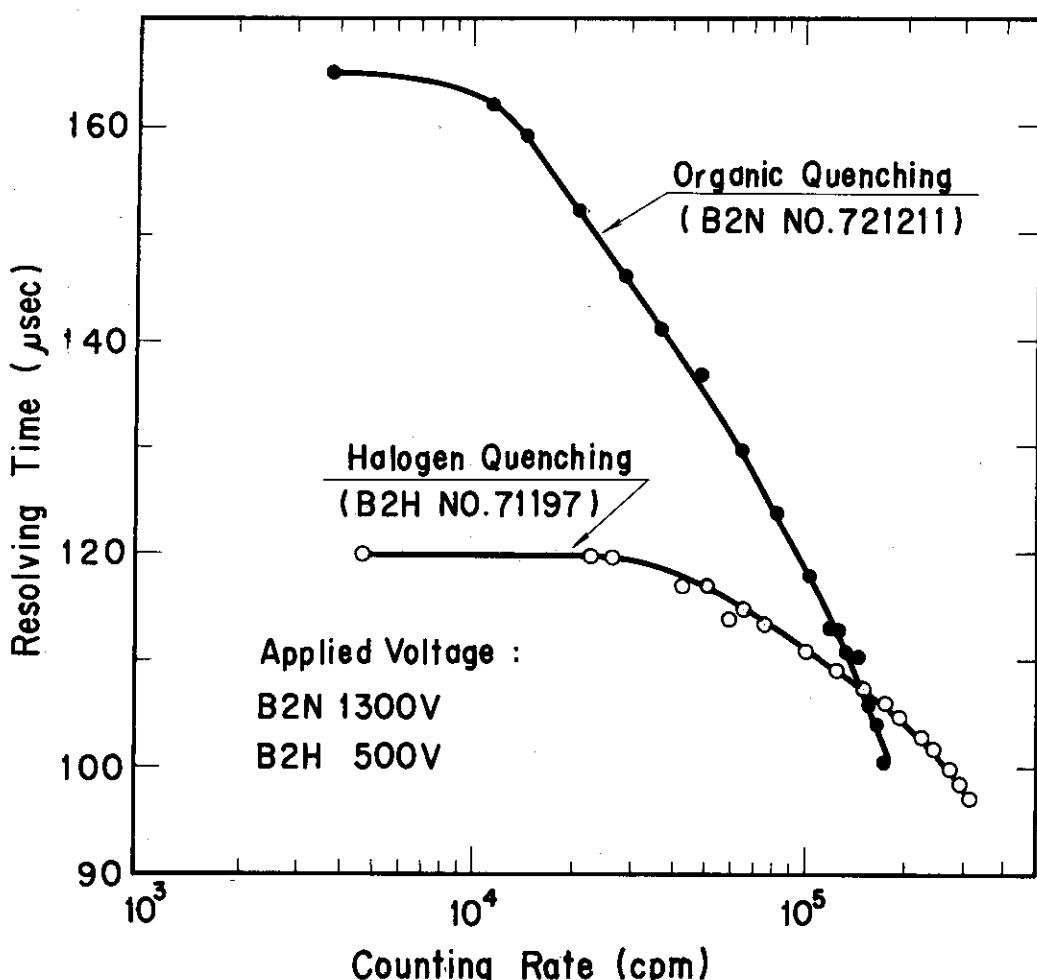
また、計数率 N' を求めるためには、計数率に依存する分解時間を時間分析器を用いる方法で測定した。分解時間の計数率依存性の測定例を第42図に示す。⁽⁴⁵⁾

もし、計数率 N および N_g が正しく補正されているならば、 N/N' および N_g/N' は1になるはずである。この関係を、種々な計数率において、180 μs の分解時間を有する有機ガス消滅型計数管(B2N型)を用いて測定した。その結果を第43A図に、ハロゲン・カウンター(B2H型)を用いた同様な測定結果を第43B図に示す。

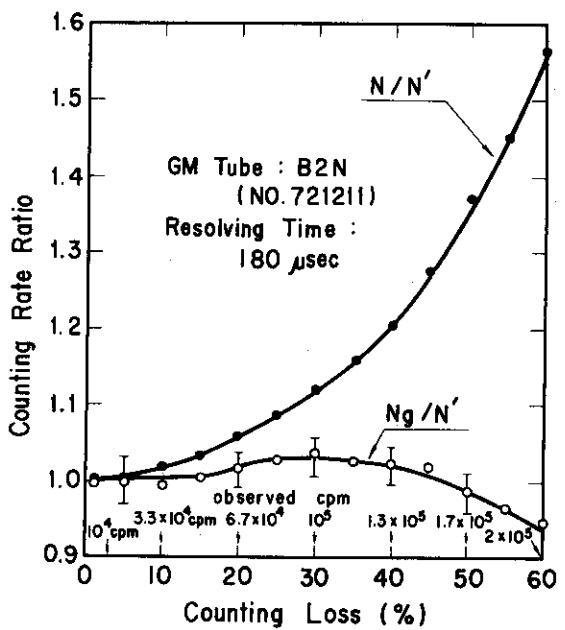
両図とも、 N/N' は計数率の増加に伴って顕著に1より大きくなることを示し、従来の補正法の高計数率領域への適用が不適当であることを示している。

一方、第43A図の N_g/N' は比較的1に近い領域に存在し、計数損失50% ($N_g : 3.4 \times 10^5 \text{ cpm}$)までの最大偏差は、±0.02となっている。このことは、本法の有効性を示すものである。また、 N_g/N' の曲線の傾向は、第41A図に実線で示された曲線の傾向とよく一致し、これによっても、本法の計数特性が明らかになっている。

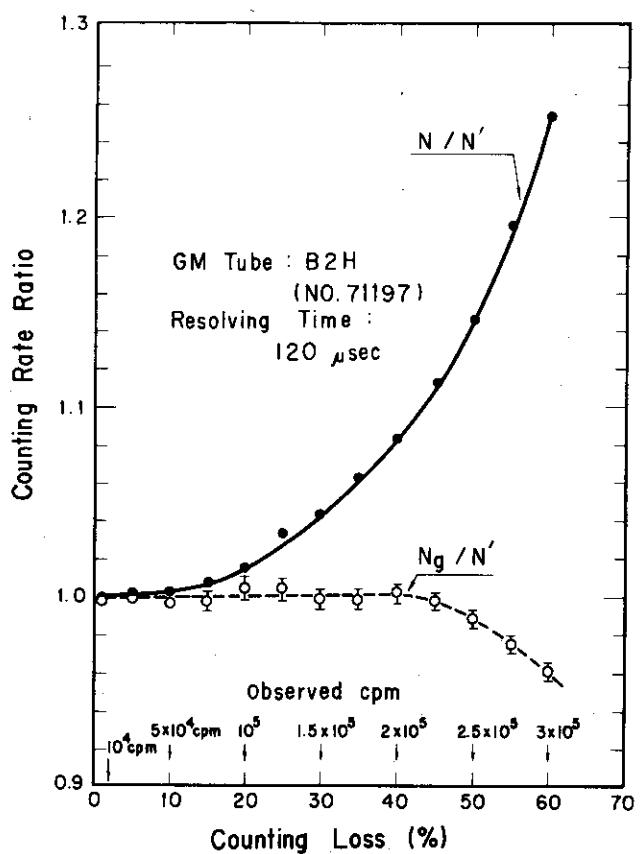
有機ガス消滅型に比べ、短い分解時間と早い回復時間をもつハロゲン・カウンターを用いた第43B図においても、本補正法の有効性が示されている。



第42図 有機ガス消滅型GM計数管(B2N型)およびハロゲン・カウンター(B2H型)の分解時間の計数率依存性の測定例



第43A図 従来の補正法と本補正法の計数損失補正特性〔GM計数管：有機ガス消滅型（B2N型）〕



第43B図 従来の補正法と本補正法の計数損失補正特性〔GM計数管：ハロゲン・カウンター（B2H型）〕

(E) 計数損失補正特性の測定—短半減期核種法との比較による補正特性の検討—

本法の補正特性をさらに検証することを目的として、短半減期核種法による測定を行った。

放射性核種としては、代表的な熱中性子測定用放射化検出器である In_n および Dy_y において (n, γ) 反応で生成される $^{116m^1}In$ および ^{165g}Dy が用いられた。

放射化にあたっては、 $^{241}Am-Be$ 中性子源および原子炉が用いられた。

これらの核種を生成させる放射化断面積はかなり大きいので、放射化学的純度の高い試料が容易に得られる。

照射試料としては、高純度の金属 In 箔および ORNL より供給された Dy_2O_3 (^{164}Dy 濃縮度 : 70.3 a/o) とポリエチレンの混合箔が用いられた。

測定に先立って、 ^{116}In , $^{116m^2}In$, $^{165m^1}Dy$ および $^{165m^2}Dy$ などの寄与を少なくするため、30分以上の冷却時間がとられた。

測定の前後においては、低バックグラウンド Ge (Li) γ 線スペクトロメーター⁽⁸⁹⁾ を用いて核種分析を行った。この結果、これら試料には目的核種以外の核種によるピークは確認されなかった。

一連の測定において得られた $^{116m^1}In$ の減衰曲線の一例を第44A図に示す。この測定においては、分解時間 $165\mu s$ のB2N型計数管が使用された。同図においては、本補正法による計数率 (N_g) は白丸で、従来の補正法による計数率 (N) は黒丸で示されている。

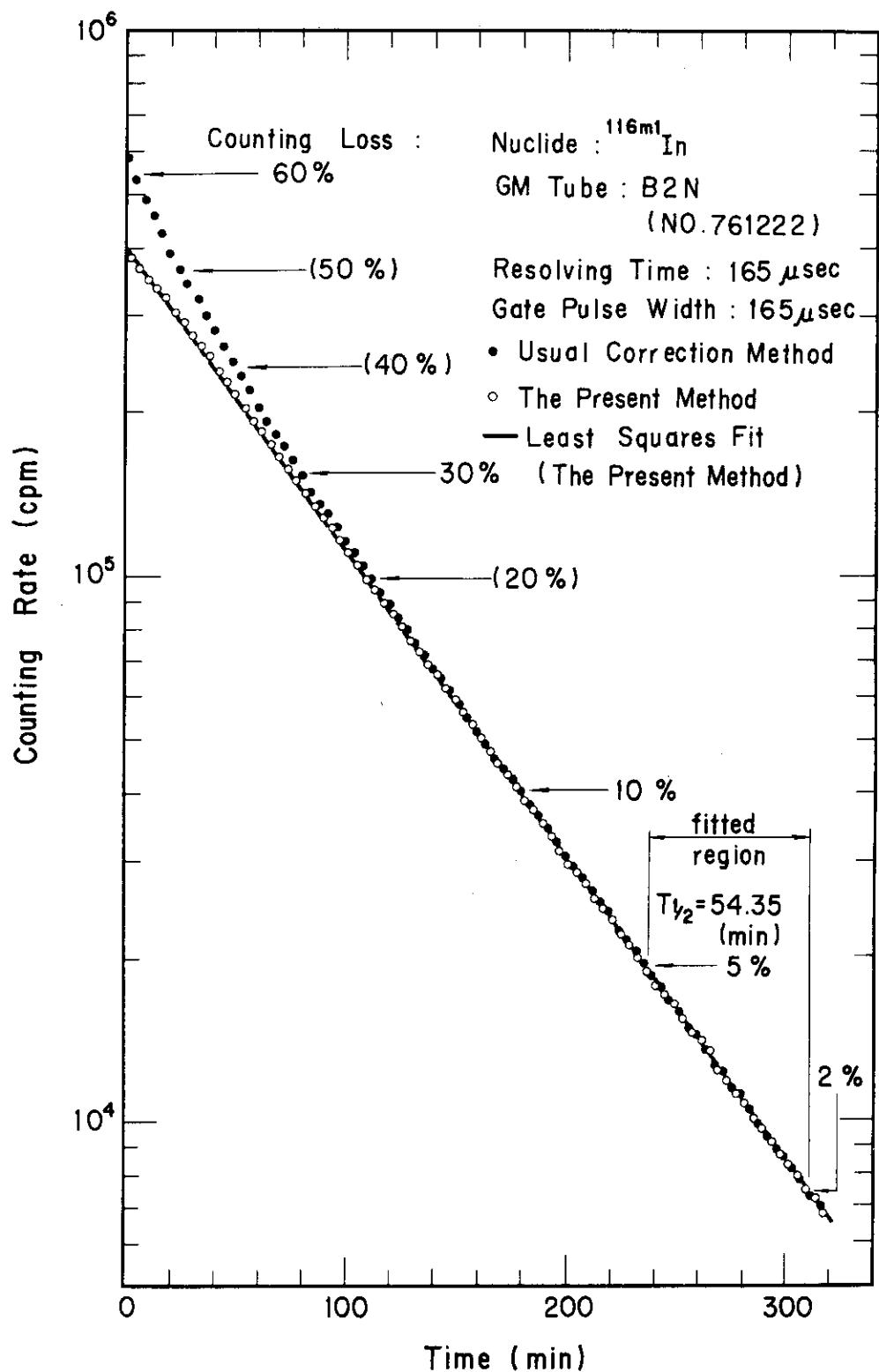
正確に補正された計数率としては、系統誤差が無視し得る計数損失領域 2 ~ 5 % の本法によるデータを最小二乗法で指数関数にフィットさせて得たものを用いた。これによって得た計数率は図中に実線で示されている。

第44A図にみられるように、白丸のデータは高計数率領域においても実線上によく乗っているが、黒丸は大きく直線からずれ、補正過多になることを示している。白丸の直線からの偏差は、本法の補正特性を示すものである。計数損失30%付近の領域で幾分計数過多になり、50%以上の領域で計数過少になる傾向は、第43A図に示した本法の補正特性と一致している。

本補正特性を詳細に検討するため、第44A図に示された各計数損失領域ごとに、データをフィットさせて半減期を求めた。その結果を第12表に示す。この結果は、幾分補正過少になる高計数率領域では半減期が長く、補正過多の傾向を示す中間の計数率領域では半減期が短く測定されることを示している。

第12表 種々な計数損失領域ごとにデータを最小二乗法で
フィットして求めた $^{116m^1}In$ の半減期

| 計数損失 領域 | 半減期(分) | |
|------------|------------------|------------------|
| | 従来の補正法 | 本補正法 |
| 62% ~ 30% | 41.74 ± 1.08 | 55.36 ± 0.38 |
| 30% ~ 10% | 51.48 ± 0.19 | 53.22 ± 0.20 |
| 10% ~ 5% | 53.47 ± 0.32 | 53.42 ± 0.68 |
| 5% ~ 2% | 53.52 ± 0.48 | 54.35 ± 0.68 |



第44A図 短半減期核種法による計数損失補正特性測定のための減衰曲線の測定例 [GM計数管:有機ガス消滅型(B 2 N型), 線源核種: $^{116\text{m}1}\text{In}$]

一方、従来の補正法では、計数率が高い領域ほど、半減期が短く測定されている。

ハロゲン・カウンター(B 2H型)を用いて測定した^{165g}Dy の減衰曲線の一例を第44B図に示す。この測定においては、分解時間 $120 \mu\text{s}$ の計数管が用いられた。同図の結果は、本補正法がハロゲン・カウンターを用いた場合にも有効であることを示している。

有機ガス消滅型計数管については、分解時間が $165 \sim 265 \mu\text{s}$ のものを数本使用して^{116m1}In および^{165g}Dy の減衰曲線を 9 回測定した。また、ハロゲン・カウンターについては、最大 $130 \mu\text{s}$ の分解時間の範囲内で 5 回測定した。これらの結果は、いずれも第44A図および第44B図の傾向と一致した。

低計数率領域における本補正法と従来の補正法の比較を行うため、^{116m1}In および^{165g}Dy の半減期を測定した。その結果をこれら核種に対する評価値とともに第13表に示す。これらの半減期は、計数損失が $2 \sim 5\%$ の範囲にあるデータをフィットすることによって求めた。^{116m1}In に対しては 9 回の、^{165g}Dy に対しては 5 回の測定によって得た結果の加重平均値が示されている。

計数損失 5% 付近においては、第43A図および第43B図から明らかなるごとく、本補正法の系統誤差は無視できるが、従来の補正法では幾分補正過多になる。この傾向は、第13表における従来の補正法による半減期が評価値より短かく測定された結果となって現われている。

第13表 ^{116m1}In と^{165g}Dy の半減期の測定値(加重平均値)と評価値

| 核種 | 測定値(分) | | 評価値(分) |
|---------------------|-------------------|-------------------|------------------------|
| | 従来の補正法 | 本補正法 | |
| ^{116m1} In | 53.93 ± 0.09 | 54.11 ± 0.09 | $54.15 \pm 0.06^*$ |
| ^{165g} Dy | 138.99 ± 1.01 | 139.73 ± 0.60 | $139.41 \pm 0.78^{**}$ |

* (90) Nuclear Data Sheets による評価値

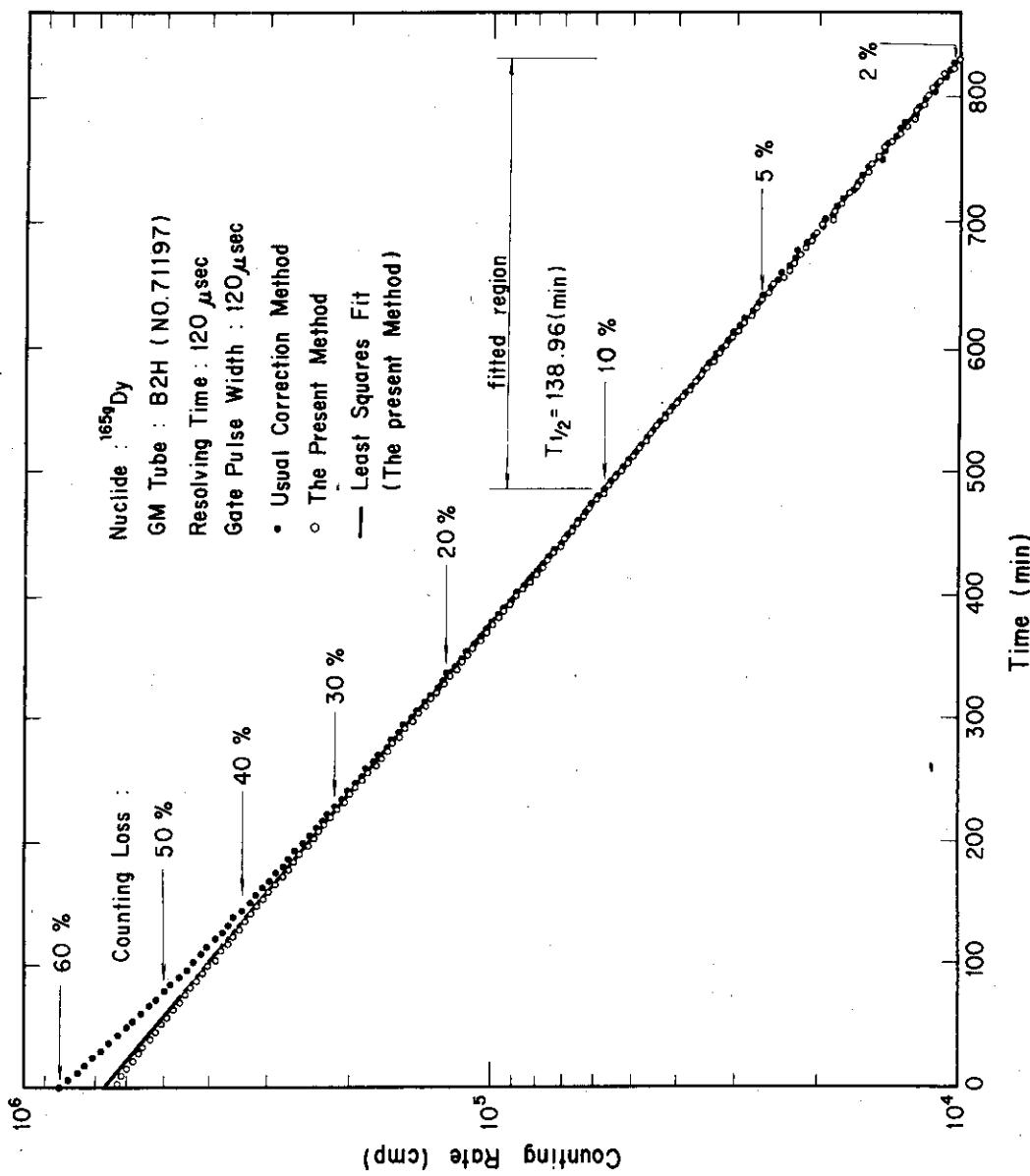
** 参考文献(91)～(96)のデータを用いた筆者による評価値

一方、本補正法による^{116m1}In の半減期は、2.4秒(0.07%)の偏差で、^{165g}Dy のそれは19.2秒(0.2%)の偏差で評価値と一致している。

ここで得られた^{116m1}In に対する半減期 54.11 ± 0.09 (分) および^{165g}Dy に対する半減期 139.73 ± 0.60 (分) は、これら核種に対する新しい測定値として十分な意義をもっていると考えられる。

(F) 結論

- (i) 本補正法を用いれば、従来の方法では補正できなかった高計数率領域においても、正確に計数損失が補正された計数率を直読的に得ることができる。
- (ii) 補正誤差 $\pm 2\%$ 以内での補正が可能な計数率領域の上限は、 $5 \times 10^5 \text{ cpm}$ (ハロゲン・カウンター) および $3.4 \times 10^5 \text{ cpm}$ (有機ガス消滅型) に達し、この補正精度におけるGM計数管の使用可能計数率領域を、従来より 5 ～ 7 倍拡張することができた。
- (iii) 本補正法は、ハロゲン・カウンターと有機ガス消滅型の両者に適用し得る一般性を有している。
- (iv) 従来の補正法では、計数損失が 5% 程度の場合でも、補正過多の傾向がみられる。
- (v) ^{116m1}In および^{165g}Dy に対してそれぞれ新しい半減期の測定値、 54.11 ± 0.09 (分) および 139.73 ± 0.60 (分) が得られた。



第44B図 短半減期核種による計数損失補正特性測定のための減衰曲線の
測定例 [GM計数管：ハロゲン・カウンター, 線源核種： ^{165}Dy]

3. 総合的結論

- (1) ZnS(Ag), ^{6}LiF およびポリエチレンからなる混合型中性子シンチレーターの製作と特性測定を行い、検出効率、中性子利用効率および蛍光出力などの基本的特性を、混合比やシンチレーター厚さの関係において、体系的に明らかにすることができた。
- (2) ZnS(Ag)- ^{6}LiF シンチレーターとアクリル樹脂製光導体を組み合せたシンチレーション検出器は、中性子増倍体系の γ 線に対して殆んど不感であることが明らかになった。
- (3) この検出器によって、種々な中性子検出器の難点、すなわち一般的に用いられているシンチレーション検出器の γ 線に対する有感性、BF₃ 計数管の低空間分解能、および放射化検出器の不時間応答性、を克服することができた。
- (4) 本シンチレーション検出器の高検出効率・高空間分解能特性によって、速中性子源や反射体の影響を受けない増倍体系領域の明確な把握と詳細な中性子束空間分布測定が可能になり、実験精度が向上した。
- (5) GM計数装置による放射能測定においては、分解時間の計数率依存性を考慮することの必要性を明らかにし、このことによって正確に補正された計数率が得られることを実証した。
- (6) GM計数装置の計数損失補正值が直読的に得られる測定法の原理を創出した。この方法によって、従来の補正法では正確に補正し得なかった高計数率領域においても、正確な補正が可能になった。この結果、GM計数装置の適用計数率範囲が従来より 5 ~ 7 倍拡大し、この装置の有用性が増大した。

謝　　辞

本研究にあたり、研究課題に対する示唆、実験方法に対する助言、問題点の指摘などについて終始御指導賜わりました立命館大学・加藤隆平教授に深く感謝致します。中性子検出器の炉物理実験への適用に際して、炉物理理論面において指導的に実験を推進された中島雅博士（現在神戸商船大学）ならびに有益な示唆を与えて下された葛西峯夫教授（現在弘前大学付属医療技術短大）に感謝の意を表します。また、一連の実験に際して、多大な協力を戴いた近藤真、山口博司（現在高エネルギー物理研究所）の各氏に感謝致します。本研究を継続して行うため不断の激励と助言ならびに便宜を与えて下さりました本島健次博士（現在日立製作所エネルギー研究所）、石森富太郎博士、川口千代二教授（現在新潟大学）および山崎弥三郎博士に深謝致します。

3. 総合的結論

- (1) ZnS(Ag), ^{6}LiF およびポリエチレンからなる混合型中性子シンチレーターの製作と特性測定を行い、検出効率、中性子利用効率および蛍光出力などの基本的特性を、混合比やシンチレーター厚さの関係において、体系的に明らかにすることができた。
- (2) ZnS(Ag)- ^{6}LiF シンチレーターとアクリル樹脂製光導体を組み合せたシンチレーション検出器は、中性子増倍体系の γ 線に対して殆んど不感であることが明らかになった。
- (3) この検出器によって、種々な中性子検出器の難点、すなわち一般的に用いられているシンチレーション検出器の γ 線に対する有感性、BF₃ 計数管の低空間分解能、および放射化検出器の不時間応答性、を克服することができた。
- (4) 本シンチレーション検出器の高検出効率・高空間分解能特性によって、速中性子源や反射体の影響を受けない増倍体系領域の明確な把握と詳細な中性子束空間分布測定が可能になり、実験精度が向上した。
- (5) GM計数装置による放射能測定においては、分解時間の計数率依存性を考慮することの必要性を明らかにし、このことによって正確に補正された計数率が得られることを実証した。
- (6) GM計数装置の計数損失補正值が直読的に得られる測定法の原理を創出した。この方法によって、従来の補正法では正確に補正し得なかった高計数率領域においても、正確な補正が可能になった。この結果、GM計数装置の適用計数率範囲が従来より 5 ~ 7 倍拡大し、この装置の有用性が増大した。

謝　　辞

本研究にあたり、研究課題に対する示唆、実験方法に対する助言、問題点の指摘などについて終始御指導賜わりました立命館大学・加藤隆平教授に深く感謝致します。中性子検出器の炉物理実験への適用に際して、炉物理理論面において指導的に実験を推進された中島雅博士（現在神戸商船大学）ならびに有益な示唆を与えて下された葛西峯夫教授（現在弘前大学付属医療技術短大）に感謝の意を表します。また、一連の実験に際して、多大な協力を戴いた近藤真、山口博司（現在高エネルギー物理研究所）の各氏に感謝致します。本研究を継続して行うため不断の激励と助言ならびに便宜を与えて下さりました本島健次博士（現在日立製作所エネルギー研究所）、石森富太郎博士、川口千代二教授（現在新潟大学）および山崎弥三郎博士に深謝致します。

参考文献

- (1) E. Rutherford, Proc. Roy. Soc. (London), A97, 374 (1920).
- (2) W. Bothe and H. Becker, Z. Physik, 49, 1 (1928).
- (3) I. Curie, Compt. rend., 193, 1412 (1931).
- (4) H. C. Webster, Proc. Roy. Soc. (London), A136, 428 (1932).
- (5) I. Curie and F. Joliot, Compt. rend., 194, 273 (1932).
- (6) J. Chadwick, Proc. Roy. Soc. (London), A136, 692 (1932).
- (7) E. Fermi, Nature, 133, 898 (1934). : E. Fermi, E. Amaldi, O. D'agostino, F. Rasetti and E. Segrè, Proc. Roy. Soc. (London), A146, 483 (1934).
- (8) I. Curie and P. Savitch, J. Physique Radium, 8, 385 (1937).
- (9) O. Hahn and F. Strassmann, Naturwissenschaften, 27, 11 (1939).
- (10) L. Meitner and O. R. Frisch, Nature, 143, 239 (1939).
- (11) N. Bohr, Phys. Rev., 55, 418 (1939). : Nature, 143, 330 (1939). : N. Bohr and J. A. Wheeler, Phys. Rev., 56, 426 (1939).
- (12) J. Frenkel, Phys. Rev., 55, 987 (1939). : J. Physics (Moscow), 1, 125 (1939).
- (13) E. Fermi, Science, 105, 27 (1947).
- (14) N. Nereson, Phys. Rev., 85, 601 (1952).
- (15) H. Werle and H. Bluhm, J. Nucl. Energy, 26, 165 (1972).
- (16) D. J. Hughes and R. B. Schwartz, BNL-325, 28 (1958).
- (17) G. R. Keepin, Nucl. Technology, 13, 53 (1972).
- (18) J. P. Unik and J. E. Gindler, ANL-7748 (1971).
- (19) V. V. Verbinski, H. Weber and R. E. Sund, Proc. 2nd IAEA Symp. Phys. Chem. Fission, Vienna, 1969, IAEA, Vienna, p.929 (1969).
- (20) P. Zigman and J. Mackin, Helth Physics, 5, 79 (1961).
- (21) V. N. Sakharov and A. I. Malofeev, Soviet J. At. Energy, 3, 1161 (1957).
- (22) L. V. Groshev, A. M. Demidov, G. A. Kotelnikov and V. N. Lutsenko, Nucl. Phys., 58, 465 (1964).
- (23) N. F. Fiebiger, W. R. Kane and R. E. Segel, Phys. Rev., 125, 2031 (1962).
- (24) R. C. Greenwood and J. H. Reed, IITRI-1193-53, 1 (1965).
- (25) H. Kouts, BNL-1783 (1953).
- (26) C. R. Richey, AECD-3675 (1954).
- (27) G. A. Price, BNL-1992 (1954).
- (28) A. Z. Kranz, WAPD-134 (1955).
- (29) J. A. Dejuren, T. E. Stewart and E. R. Specht, NAA-SR-9803 (1964).
- (30) R. W. Campbell, R. K. Paschall and V. A. Swanson, Nucl. Sci and Eng., 20, 445 (1964).

- (31) R. W. Page, J. Nucl. Energy, 21, 403 (1967).
- (32) F. A. Valente, "A Manual of Experiments in Reactor Physics", The MacMillan Co., New York, p.253 (1963).
- (33) J. D. Orndoff, Nucl. Sci. and Eng., 2, 450 (1957).
- (34) W. A. Abson, P. G. Salmon and S. Pyrak, Pro. Inst. Electr. Eng., 105, Part B, No. 22 (1958).
- (35) J. H. Manley, L. J. Haworth and E. A. Luebke, Phys. Rev., 61, 152 (1942).
- (36) J. Bengstron et al., "Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", A/CONF. 15/P/1783 (1958).
- (37) R. P. Feynman, F. de Hoffmann and R. Serber, J. Nucl. Energy, 3, 64 (1956).
- (38) T. Tojo and T. Nakajima, Nucl. Instr. and Meth., 53, 163 (1967). :
T. Tojo, T. Nakajima and M. Kondo, "Preparation of Thermal Neutron Scintillators Based on a Mixture of ZnS(Ag), LiF and Polyethylene", Internal report (1966).
- (39) T. Tojo, T. Niwa, T. Nakajima and M. Kondo, J. Nucl. Sci. Technol., 4, 512 (1976). : "A Neutron Scintillation Detector for Reactor Physics Experiments", Internal report (1966).
- (40) T. Tojo, T. Niwa, T. Nakajima and M. Kondo, J. Nucl. Sci. Technol., 4, 314 (1967).
- (41) T. Nakajima, T. Tojo and M. Kondo, J. Nucl. Sci. Technol., 5, 1 (1968). : "Measurement of Material Buckling of U-H₂O Assembly", Internal report (1966).
- (42) T. Nakajima, T. Tojo and M. Kondo, J. Nucl. Sci. Technol., 8, 218 (1971).
- (43) T. Nakajima, T. Tojo, H. Yamaguchi and M. Kondo, J. Nucl. Sci. Technol., 12, 491 (1975).
- (44) 成田正邦, 小沢保知, 大友詔雄, 沢村貞史, 東條隆夫, 三角智久, 北海道大学工学部研究報告第86号, 9 (昭和53年)。
- (45) T. Tojo, T. Nakajima and M. Kondo, Nucl. Instr. and Meth., 89, 39 (1970).
- (46) T. Tojo, Nucl. Instr. and Meth., 154, 367 (1978).
- (47) J. B. Birks, "The Theory and Practice of Scintillation Counting", The MacMillan Co., New York, p.570 (1964).
- (48) L. M. Bollinger and G. E. Thomas, Rev. Sci. Instr., 28, 489 (1957).
- (49) J. Schenck, Nucleonics, 10 (8), 54 (1952). : Nature, 171, 518 (1953).

- (50) K. P. Nicholson and G. F. Snelling, Brit. J. Appl. Phys., 6, 104 (1955).
- (51) L. Bollinger, G. E. Thomas and R. J. Ginther, Rev. Sci. Instr., 30, 1135 (1959).
- (52) F. W. K. Firk and G. G. Slaughter, Nucl. Instr. and Meth., 13, 313 (1961).
- (53) R. Hofstadter, BNL-I-7 (1948).
- (54) R. Stedman, CRRP-931 (1960). : Rev. Sci. Instr., 31, 1156 (1960).
- (55) P. G. Koontz, G. R. Keepin and J. E. Ashley, Rev. Sci. Instr., 26, 352 (1955).
- (56) K. H. Sun, P. R. Malmberg and F. A. Pecjak, Nucleonics, 14 (7), 46 (1956).
- (57) V. N. Chernyshevich and L. I. Korotkov, AEC-tr-4702 (1960).
- (58) K. H. Sun and W. E. Shoupp, Rev. Sci. Instr., 21, 395 (1950).
- (59) 三浦功, 菅浩一, 俣野恒夫, 放射線計測学, 裳華房, 東京, p. 96 (1960).
- (60) G. J. Hine and G. L. Brownell Ed., " Radiation Dosimetry ", Academic Press Inc., New York, p.250 (1956).
- (61) Kai Siegbahn Ed., " Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy ", North-Holland Publishing Co., Amsterdam, Vol. 1, p.443 (1974).
- (62) W. H. Jordan and P. R. Bell, Nucleonics, October, 30 (1949).
- (63) P. A. Tove, Rev. Sci. Instr., 27, 143 (1956).
- (64) K. D. Timmerhaus, E. B. Giller, R. B. Duffield and H. G. Drickamer, Nucleonics, June, 37 (1950).
- (65) G. M. Ettinger, Rev. Sci. Instr., 26, 763 (1955).
- (66) E. Verondini, Nucl. Instr. and Meth., 48, 42 (1967).
- (67) R. N. MacDonald and H. H. Baucom, Jr., Nucleonics, 20 (8), 158 (1962).
- (68) K. H. Beckurts and K. Wirtz, Reactor Sci. Tech., 16 (6), 291 (1962).
- (69) R. Persson, Nucleonics, 12 (10), 26 (1954).
- (70) T. W. T. Burnett and T. G. Williamson, Nucl. Sci. Eng., 21, 201 (1965).
- (71) S. Glasstone and M. C. Edlund, 原子炉の理論 (伏見康治, 大塚益比古共訳), みすず書房, 東京, p. 171 (昭和 36 年).
- (72) H. Kouts and R. Sher, BNL-486 (1957).
- (73) R. E. Uhrig, Nucl. Sci. Eng., 6, 530 (1959).
- (74) N. G. Sjöstrand, " Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy ", Geneva, 1955, United Nations, New York, 5, 52 (1956).
- (75) 中島雅, 東條隆夫, 山口博司, 近藤眞, 未公開資料 (1971)。

- (76) R. W. Page, J. Nucl. Energy, 21, 403 (1967).
- (77) R. E. Sund and R. B. Walton, Phys. Rev., 146, 824 (1966). : Phys. Rev., 178, 1894 (1969).
- (78) E. C. Campbell and P. H. Stelson, ORNL-2076 (1956). : ORNL-2204 (1956).
- (79) O. C. Kolar and F. A. Kloverstrom, Nucl. Sci. Eng., 10, 45 (1961).
- (80) L. C. Schmid, " Critical Assemblies and Reactor Research ", Wiley-Interscience, New York, p.246 (1971).
- (81) G. R. Dalton and R. K. Osborn, Nucl. Sci. and Eng., 9, 198 (1961).
- (82) K. H. Beckurts and K. Wirtz, " Neutron Physics ", Springer-Verlag, Berlin, p.273 (1964).
- (83) W. J. Price, " Nuclear Radiation Detection ", McGraw-Hill, New York, p.127 (1964).
- (84) H. G. Stever, Phys. Rev., 61, 38 (1942).
- (85) A. G. M. Van Gemert, M. Den Hartog and F. A. Muller, Physica, 9, 556 (1942).
- (86) G. A. Brinkman, Radiochimica Acta, 2, 41 (1963).
- (87) H. Lindeman and E. Mornel, Physica, 30, 969 (1964).
- (88) D. H. Wilkinson, " Ionization Chambers and Counters ", Cambridge U. P. (1950).
- (89) 東條隆夫, 近藤真, JAERI - M 6555 (1976)。
- (90) ORNL Nuclear Data Group, Nucl. Data Sheets, 14, 278 (1975).
- (91) L. Persson, R. Hardell and S. Nilsson, Arkiv Fysik, 23 (1963).
- (92) A. Hashizume, T. Takahashi, Y. Tendo and Y. Enomoto, J. Phys. Soc. Japan, 15, 2175 (1960).
- (93) R. G. Wille and R. W. Fink, Phys. Rev., 118, 242 (1960).
- (94) R. Sher, H. T. Kouts and K. W. Downes, Phys. Rev., 87, 523 (1952).
- (95) H. Slätis, Arkiv Math. Astron. Fysik, 33A (17) (1946).
- (96) E. R. Mayquez, An Real Soc. Espan. Fis. Quim., 50A (1954).
- 本論文の執筆にあたり、本文中には引用しなかったが、筆者は下記の文献に助けられたことが大であった。また、本文中に引用した入手困難な文献の多くは下記の文献を通して引用した。
- (97) R. D. Evans, " The Atomic Nucleus ", McGraw-Hill Book Co. Inc., New York, (1955).
- (98) 日本原子力学会臨界実験専門委員会編, " 原子炉物理実験 ", コロナ社, 東京, (1964)

Table Captions

- Table 1 Basic properties of scintillators
- Table 2 Mixture proportion of ZnS(Ag), ^6LiF and polyethylene
- Table 3 Constants a, b and scintillator thickness t_m at which maximum detection efficiency ϵ_m is obtained
- Table 4 Basic properties of materials used for light guide
- Table 5 Light transmission efficiencies for acrylic light guides of 1050 mm long
- Table 6 Relation between surface conditions of light guide and light transmission efficiency
- Table 7 Comparisons of detection efficiency and figure of merit between ZnS(Ag)- ^6LiF scintillator, glass scintillator and BF_3 counter
- Table 8 Infinite multiplication factors obtained with present method and material buckling method
- Table 9 Results of material buckling measurements with various methods
- Table 10 Calculated physics constants and measured prompt neutron lifetime used for obtaining effective multiplication factor
- Table 11 Resolving time of G. M. tubes
- Table 12 Typical measured half-lives of ^{116m}In obtained by the least squares fits for various counting loss regions
- Table 13 Weighted average of measured half-lives of ^{116m}In and ^{165g}Dy

Figure Captions

- Fig. 1 Counting efficiency vs. scintillator thickness for various mixture proportions.
- Fig. 2 Weight ratios of ZnS(Ag)/⁶LiF and polyethylene/total vs. counting efficiency.
- Fig. 3 Pulse height distribution of thermal neutrons for no. 5 mixture scintillators with various thicknesses.
Pulse height : gamma-rays on NaI(Tl) scale.
- Fig. 4 Average pulse height vs. scintillator thickness for no. 5 and no. 8 mixtures. Pulse height : gamma-rays on NaI(Tl) scale.
- Fig. 5 Integral pulse height distributions of scintillators.
Pulse height : gamma-rays on NaI(Tl) scale. NE-402 : the scintillator based on glass with ZnS(Ag) and boron.
Boron : enriched in ¹⁰B to 90 %. Available from Nuclear Enterprises LTD..
- Fig. 6 Arrangement of the scintillation detector using ZnS(Ag)-⁶LiF scintillator and light guide made of acrylic resign.
- Fig. 7 Pulse height distribution of the light pulser consisting of CsI(Tl) scintillator and alpha-particle source of ²⁴¹Am.
- Fig. 8 Counting rate vs. scintillator thickness when using light guides, 1050 mm long.
- Fig. 9 Pulse height distributions of NE-905, NE-906 and the ZnS(Ag)-⁶LiF mixture scintillators tested in an U-H₂O subcritical assembly. Light guide of 16 mm dia. x 1050 mm long is used for each scintillator. NE-905 : ⁶Li containing glass scintillator, NE-906 : ⁷Li containing glass scintillator.
- Fig. 10 Arrangement of the detector with cylindrical scintillator.
- Fig. 11 Integral pulse height distributions of disk and cylindrical scintillators with light guide of 16 mm dia. x 1050 mm long.
- Fig. 12 Vertical distributions of thermal neutron flux in the U-H₂O subcritical assembly measured with various detectors.
- Fig. 13A Exterior view of the U-H₂O subcritical assembly. Detector is held by holder (movable to X-Y-Z directions) and sensitive part of the detector is inserted between fuel rods.

- Fig. 13B Exterior view of arrangement of fuel rods of the U-H₂O subcritical assembly.
- Fig. 14 Arrangement of the detector for measuring cadmium ratio.
- Fig. 15 Length of cylindrical cadmium cover vs. neutron counting rate.
- Fig. 16 Cadmium ratios along vertical axis of the U-H₂O subcritical assembly. Open circles indicate the data taken by replacement of the center fuel rod by the detector, and closed circles the data taken in H₂O moderator neighbouring the center fuel rod.
- Fig. 17 Polar coordinates for cylindrical assembly.
- Fig. 18 Lattice positions taken for flux measurement.
- Fig. 19 $r\phi(r, \theta)$ vs. r for $\theta = \theta_1, \theta_7$ and θ_{11} .
- Fig. 20 Amplitude $A(\theta)$ vs. θ in diffusion region.
- Fig. 21 Spatial decay constant $\gamma(\theta)$ vs. θ in diffusion region.
- Fig. 22 Dependence of infinite multiplication factor k_∞ on θ derived from equations (2. 11) and (2. 18).
- Fig. 23 Observed and corrected radial flux distributions. Higher mode correction ; $m = 0$: not corrected, $m = 2 \sim 5$: corrected until 2nd ~ 5th orders.
- Fig. 24 Effect of higher mode correction on the average extrapolated radii \bar{R}_m . m ; the highest order of higher mode corrected.
- Fig. 25 Slope of the plot of $\ln \phi(r, z)$ against z as a function of the position of grid point. Higher mode correction is not made for open circles. $(\gamma_1)_{\text{corrected}}$ indicates the decay constant for fundamental mode.
- Fig. 26 Position of beam duct in the U-H₂O subcritical assembly, and arrangement of the unit cell of the assembly.
- Fig. 27 Block diagram for pulsed neutron experiment.
- Fig. 28 Typical representation of decay curve of thermal neutron density in pulsed neutron experiment. Flat distribution shows background due to delayed neutrons. Detector position : 3Al (shown in fig. 26).
- Fig. 29A Decay curve of prompt neutrons. Detector position : 3Al
- Fig. 29B Decay curve of prompt neutrons. Detector position : 6Al
- Fig. 30 Detector position dependence on prompt neutron decay constant α and prompt neutron life-time $1/\alpha$.

- Fig. 31 Block diagram of the method for measuring resolving time of G. M. counters.
- Fig. 32 Typical example of the resolving time measurement.
- Fig. 33 Dependence of pulse amplitude distribution on counting rate.
- Fig. 34 Counting rate vs. average pulse amplitude.
- Fig. 35 Amplitude of trigger pulse vs. resolving time.
- Fig. 36 Counting rate vs. average resolving time.
- Fig. 37 Resolving time as a function of discriminator level.
- Fig. 38 Resolving time as a function of applied voltage. (Method of constant sensitivity of apparatus.)
- Fig. 39 Resolving time as a function of applied voltage. (Method of constant amplitude.)
- Fig. 40 Block diagram of the method for counting loss correction of G. M. counters.
- Fig. 41A Counting characteristics of an organic quenching tube for experimental verification of the principle of the present method. N_n : number of events appeared within resolving time followed after a preceding event, N_c : number of events appeared after elapsed time of resolving time, T : true time, T_ℓ : loss time of measurement time.
- Fig. 41B Counting characteristics of a halogen counter for experimental verification of the principle of the present method. N_n : number of events appeared within resolving time followed after a preceding event, N_c : number of events appeared after elapsed time of resolving time, T : true time, T_ℓ : loss time of measurement time.
- Fig. 42 Typical representations of resolving time dependences on counting rates of G. M. tubes used in this work.
- Fig. 43A Comparison of characteristics of counting loss correction between the usual method and the present method. G. M. tube : organic quenching (B2N).
- Fig. 43B Comparison of characteristics of counting loss correction between the usual method and the present method. G. M. tube : halogen quenching (B2H).
- Fig. 44A Decay curve of ^{116}mIn with the present method and the usual method. G. M. tube : organic quenching (B2N).

Fig. 44B Decay curve of ^{165g}Dy with the present method and the usual method. G. M. tube : halogen quenching (B₂H).