

747. ^{235}U , ^{239}Pu および ^{233}U の高速中性子核分裂による 核分裂生成物からの β 線崩壊熱の測定

秋山 雅胤*, 古田 一雄*,
井田 俊雄**, 坂田 薫*,†, 安 成弘*

(1982年 2月1日 受理)

(1982年 6月8日 再受理)

*Measurements of Beta-Ray Decay Heat of Fission Products
for Fast Neutron Fissions of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U*

By Masatsugu AKIYAMA, Kazuo FURUTA,
Toshio IDA, Kaoru SAKATA and Shigehiro AN

Beta decay heat released from fission products (FPs) has been measured for fast-neutron fissions of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U using the radiation spectrometry method. The sample irradiations were for 10, 60 and 300 s (10 and 100 s for ^{233}U) in the fast neutron source reactor YAYOI of the University of Tokyo. Spectral data for β -ray were obtained at post-irradiation time intervals ranging 11~26,000 s using a plastic scintillation detector combined with a transmission type proportional counter to eliminate γ -ray effects. The data were processed to the form of β -energy release rates per fission for each set of time-interval parameters. The standard representation of the decay heat following fission pulse (in cooling times ranging 19~24,000 s) was provided from the β -energy release rates. The experimental uncertainties (1σ) of the decay heat data were within 5%.

The present results are compared with three summation calculations using JNDC, TASAKA and ENDF/B-IV FP decay data libraries, and with other experimental results. As the results of these comparisons, it appears that the values calculated using JNDC FP decay data library agree very well with the measured values.

KEYWORDS: uranium 235, plutonium 239, uranium 233, decay heat, fission products, fast neutron fission, energy release rate, beta ray, summation calculation, comparative evaluations, energy spectra

I. 緒 言

高速中性子核分裂による核分裂生成物(FP)からの崩壊熱の測定例は少なく、これまでに次の5グループの実験があるにすぎない。放射線計測法を用いた実験として、①Fisher & Engle⁽¹⁾による高速パルス炉 Godiva II においてパルス照射した ^{232}Th , ^{232}U , ^{235}U , ^{238}U および ^{239}Pu 試料からの γ 線崩壊熱を冷却時間0.2~45 s の範囲で測定した実験、②Bunney & Sam⁽²⁾ による電子線型加速器を用いた(γ, n)反応中性子源で照射した

^{235}U と ^{238}U 試料から放出される γ 線エネルギースペクトルを冷却時間 15 min~78 h の範囲で測定した実験、③Murphy ら⁽³⁾によるゼロ出力高速炉 Zebra を用いて 10^5 s 照射した ^{235}U および ^{239}Pu 試料からの β 線崩壊熱を冷却時間 44 s (^{235}U について)あるいは 14 s

* 東京大学工学部附属原子力工学研究施設 (Nucl. Eng. Res. Lab., Fac. of Eng., Univ. of Tokyo)

** 東京大学工学部原子力工学科 (Dept. of Nucl. Eng., Fac. of Eng., Univ. of Tokyo)

† 現在、三菱原子力工業(株) (Mitsubishi At. Power Ind., Inc.)

(^{239}Pu について) $\sim 3 \times 10^7$ s の範囲で測定した実験がある。カロリメータ法を用いた実験としては、④ Johnston⁽⁶⁾ による Dounreay Fast Reactor を用いて 82 および 125 d の間で断続的に照射した ^{239}Pu 試料からの崩壊熱を冷却時間 40~150 d にわたって測定した実験、および ⑤ Costa⁽⁷⁾ による Rapsodie Fast Reactor において 3 年間照射した ^{235}U と ^{239}Pu の混合燃料ピンからの崩壊熱を冷却時間 21~86 d の間で測定した実験がある。しかし、これらの実験データのうち原子炉の安全性上重要な冷却時間範囲で測定精度がよく、しかも最近の総和計算値との一致がよいものは Murphy らの実験値のみである。このように高速中性子核分裂による FP の崩壊熱の実験データは、熱中性子核分裂による FP からの崩壊熱の実験データと比べて、量ともにも不十分な状態である。

高速中性子核分裂による FP からの崩壊熱を原子炉の安全性上重要な冷却時間範囲において、高速炉の安全性上要求される精度⁽⁶⁾ 内で実験的に得ること、その結果を基に総和計算値の評価を行うことを目的として実験を行なった。実験は東京大学高速中性子源炉「弥生」で照射された ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U 試料からの β 線エネルギースペクトルを冷却時間の関数として測定し、それから β 線崩壊熱を求める方法、いわゆる放射線計測法を用いて行なった。これらの実験値と現在国内でよく使用されている 3 種の FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値および Murphy らの実験値との比較検討を行なった。 γ 線崩壊熱の測定結果についてはすでに報告している⁽⁸⁾。

II. 実験

^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U の高速中性子核分裂による FP からの β 線崩壊熱を放射線計測法を用いて測定した。試料は「弥生」の B 運転位置グレージング孔⁽⁹⁾ 内で照射された。照射後の試料から放出される β 線のエネルギースペクトルは β - γ 弁別用透過型比例計数管と、井戸型プラスチックシンチレーション検出器とを組み合わせた β 線スペクトロメータを用いて測定された。 β 線崩壊熱は測定されたパルス波高分布を単位測定時間、1 核分裂当りに規格化したエネルギースペクトルに変換した後にエネルギーについて積分することにより求められた。核分裂数の決定は Ge 検出器を用いて特定の FP 核種から放出される γ 線の強度を測定することにより行われた。

実験で用いた試料、照射および測定の手順、核分裂数の測定方法等は γ 線崩壊熱の測定⁽⁸⁾ の場合と同じであ

る。したがって、 γ 線崩壊熱の測定の場合と同じところは基本的な点のみを記述し、異なる点のみを詳細に述べる。

1. 試料および照射装置

実験に用いた試料は直径 18 mm、厚さ 0.1 mm の Ti 箔上に直径 10 mm の大ききで ^{235}U , ^{239}Pu あるいは ^{238}U 金属を約 1.6 mg 均一に電着し、電着面上に厚さ 10 g/m² のマイラーフィルムをかぶせ、周囲を塩化ビニール製リングで固定したものである。核分裂性物質や FP の飛散、漏洩を防ぐため、これらの試料の電着面にさらに厚さ 32 g/m² のマイラーフィルムをのせて周囲を接着材で固定し、厚さ 26 g/m² のポリエチレン袋に入れて密封した状態で使用した。試料はポリエチレン製カプセルの先端に電着面を外向きにして装着され、照射された。

試料の照射は「弥生」B 運転位置グレージング孔中心に照射位置をもつ気送管照射装置を用いて行われた。照射位置における中性子エネルギースペクトル⁽¹⁰⁾ を核分裂エネルギースペクトルと、1,000 MWe の Na 冷却高速増殖炉の中性子エネルギースペクトル⁽¹¹⁾ と合わせて Fig. 1 に示す。

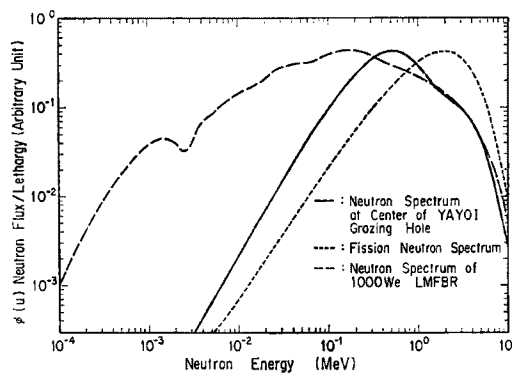


Fig. 1 Neutron energy spectrum at center of grazing hole of YAYOI reactor where samples were irradiated

試料を装着したカプセルは原子炉の定常運転状態のときに約 20 m/s の速度で照射位置まで搬送され、照射終了時には同じ速度で引き戻される。カプセルの反応度は小さいので、カプセルの挿入・引出しに伴う原子炉への外乱は小さく、照射位置での中性子束の変動は無視できる。したがって、試料内で発生する核分裂反応率は照射時間中一定であると仮定できる。照射時間の制御は気送管照射装置の制御装置で行なっているが、カプセルの挿入・引出しは制御装置の信号により電

磁弁を開閉させることで行われるため、照射時間の精度は約 0.1 s である。

2. β 線スペクトロメータとその特性

照射試料から放出される時間依存エネルギースペクトルを大気圧中で測定できる新しい β 線スペクトロメータを開発した。この β 線スペクトロメータは β - γ 弁別用透過型比例計数管と井戸型プラスチックシンチレーション検出器とから構成されている。 β - γ 弁別用透過型比例計数管は1辺が150mmの正方形で厚さ20mmの箱型で、両面の中心に直径60mmの透過窓をもつ形状をしている(Fig. 2)。この箱は2mm厚のAl製で、透過窓には金蒸着が施されたポリパラキシレンの薄膜(厚さ約1.5 g/cm²)が張られている。陽極線は0.05 mm ϕ のタンダステン線で、平行等間隔に5本張られている。この比例計数管はPRガス(Ar 90%+CH₄ 10%)を用いたガスフロー型で、50 keV以上の β 線を計測でき、100 keV以上の γ 線に対する感度は無視できるほど小さい特性をもっている。この比例計数管のバルス間の分解時間の実測値は(9.0 \pm 0.5) μ sである。

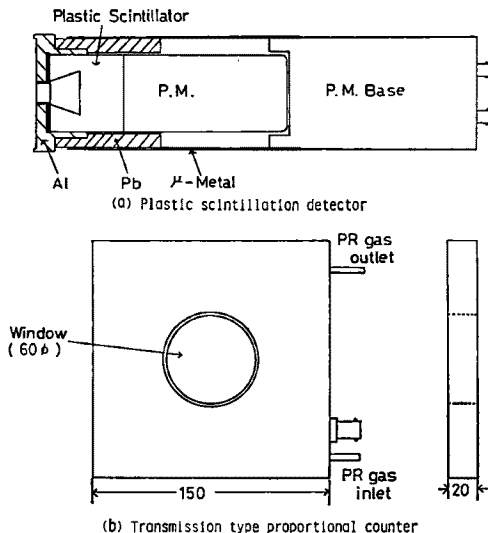


Fig. 2 Well-type plastic scintillation detector and transmission type proportional counter

井戸型プラスチックシンチレータは直径50.8mm、長さ50mmの円柱で、片面中心に入口径16mm、底面径30mmで深さ20mmの井戸をもった形状をしている。井戸の反対面には光電子増倍管(EMI-9813KB)が取り付けられている。光電子増倍管の接着面を除く全面には光反射膜としてVHエナメル白色塗料が0.1mm厚で塗布されている。また、光遮蔽として34 g/cm²厚

の黒色ポリエチレンフィルムが使用されている。シンチレータ前面は直径15mmの入射孔をもつPbで内張りされたAl製遮蔽、側面はPb製遮蔽で覆われている(Fig. 2)。

β - γ 弁別用透過型比例計数管をプラスチックシンチレーション検出器の前面に中心を合わせて密着させて使用する。シンチレーション検出器と反対側の透過窓には直径15mmの入射孔をもつ厚さ9mmのPbで内張りされたAl製コリメータが取り付けられている。照射された試料はコリメータ前面から3mmの位置に止まるように試料受けが設定されている。この状態での試料とプラスチックシンチレータの井戸底面の間にある物質の重さは約240 g/cm²である。両検出器の同時計数をとることにより、 γ 線の効果を除外して β 線のみエネルギースペクトルが測定できる。

β 線スペクトロメータの応答関数は、東京大学原子核研究所の空芯 β 線スペクトロメータ⁽¹²⁾⁽¹³⁾から引き出した単色電子線、標準内部転換電子線源および標準 β 線源を用いて測定された。空芯 β 線スペクトロメータは用いる β 線源の β 線最大エネルギー以下の任意のエネルギーの電子線を非常によいエネルギー分解能で得ることができる。 β 線源として¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr線源を用いて0.3~2.7 MeVの間の15エネルギー点での単色電子線を空芯 β 線スペクトロメータから外部に引き出し、その単色電子線に対する β 線スペクトロメータの応答関数を測定した。この測定結果から、ピーク位置、ピーク成分の半値幅およびピーク成分に対する後方散乱による低エネルギー成分の割合の入射電子エネルギーとの関係が求められた。

ピーク位置と入射電子エネルギーとの関係は1 MeV以上では直線性が成り立ち、1 MeV以下では線源とシンチレータとの間の物質層による吸収のため直線性からずれてくる。ピーク成分の形はガウス関数でよくフィットされ、その半値幅 w は入射電子エネルギー E_e をMeV単位で表わすと、

$$w = \sqrt{2.127 \times 10^{-3} \cdot E_e^2 + 1.972 \times 10^{-2} \cdot E_e} \quad (1)$$

の関係式で表わされる⁽¹⁴⁾。一方、 β 線スペクトロメータの検出効率の絶対値は²⁰⁷Bi, ¹³⁷Cs, ¹¹³Snの標準内部転換電子線源と²⁰⁴Tl, ⁹⁰Sr, ⁹⁰Sr-⁹⁰Y, ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Prの標準 β 線源を用いて決められ、その値は入射電子エネルギーによらず一定で、 4.42×10^{-3} (counts/ β)である。

これらの測定結果を用いて、 β 線エネルギー0.2~8 MeVの間で100群、パルス波高340群の応答関数を作成した。応答関数のエネルギー群構造をTable 1に

示す。また応答関数の1例をFig. 3に示す。 ^{90}Sr - ^{90}Y 標準 β 線源からの β 線の測定されたパルス波高分布をこの応答関数を用いてエネルギースペクトルに変換した結果と計算された β 線エネルギースペクトルとの比較図をFig. 4に示す。実験値と計算値とは1 MeV以上の面積で規格化してある。低エネルギー側で若干の食い違いはあるが、全体として両者はよく一致している。

3. Ti箔による β 線の後方散乱効果の補正

用いた試料は0.1 mm厚のTi箔の上に約1.6 mgの核分裂性物質が電着されている。電着量は非常に少ないので自己吸収の効果は無視できるが、Ti箔による β 線の後方散乱の効果は無視することができない。したがって、 ^{89}Sr , ^{90}Sr - ^{90}Y , ^{144}Ce - ^{144}Pr の3種の標準 β 線源からの β 線のパルス波高分布を線源の裏面に0.1 mm厚Ti箔を置いた場合と置かない場合とで測定した。パルス波高分布をエネルギースペクトルに変換した後、Ti箔を置いた場合と置かない場合とのスペクトルの比をとることにより、後方散乱効果の補正係数を各エネルギー群ごとに次式のよう

$$g_i = \frac{N_i(\text{Ti 箔なしのスペクトルの } i \text{ 群の値})}{N_i'(\text{Ti 箔ありのスペクトルの } i \text{ 群の値})} \quad (2)$$

$i = 1 \sim 100$

3種の β 線源を用いて得た測定結果の平均値として補正係数を得た。この結果をFig. 5に示す。図中で、○印は実験値、実線は実験値をフィットして得た補正係

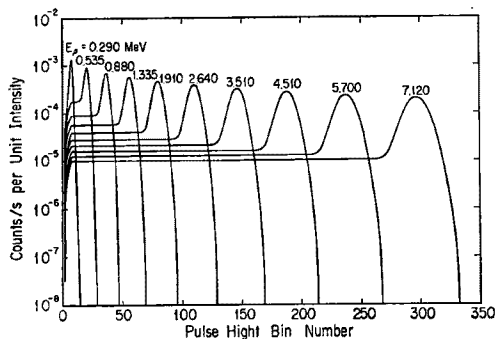


Fig. 3 Examples of responses of β -ray spectrometer to monoenergetic β -rays

Table 1 Energy group structure of response matrix of β -ray spectrometer

Bin No.	Mid-Bin Energy (MeV)	Width (MeV)	Bin No.	Mid-Bin Energy (MeV)	Width (MeV)	Bin No.	Mid-Bin Energy (MeV)	Width (MeV)
1	0.210	0.02	36	1.385	0.05	71	4.110	0.10
2	0.230	0.02	37	1.435	0.05	72	4.210	0.10
3	0.250	0.02	38	1.490	0.06	73	4.310	0.10
4	0.270	0.02	39	1.550	0.06	74	4.410	0.10
5	0.290	0.02	40	1.610	0.06	75	4.510	0.10
6	0.310	0.02	41	1.670	0.06	76	4.620	0.12
7	0.330	0.02	42	1.730	0.06	77	4.740	0.12
8	0.350	0.02	43	1.790	0.06	78	4.860	0.12
9	0.370	0.02	44	1.850	0.06	79	4.980	0.12
10	0.390	0.02	45	1.910	0.06	80	5.100	0.12
11	0.415	0.03	46	1.975	0.07	81	5.220	0.12
12	0.445	0.03	47	2.045	0.07	82	5.340	0.12
13	0.475	0.03	48	2.115	0.07	83	5.460	0.12
14	0.505	0.03	49	2.185	0.07	84	5.580	0.12
15	0.535	0.03	50	2.255	0.07	85	5.700	0.12
16	0.565	0.03	51	2.325	0.07	86	5.830	0.14
17	0.595	0.03	52	2.400	0.08	87	5.970	0.14
18	0.625	0.03	53	2.480	0.08	88	6.110	0.14
19	0.655	0.03	54	2.560	0.08	89	6.250	0.14
20	0.685	0.03	55	2.640	0.08	90	6.390	0.14
21	0.720	0.04	56	2.720	0.08	91	6.530	0.14
22	0.760	0.04	57	2.800	0.08	92	6.670	0.14
23	0.800	0.04	58	2.880	0.08	93	6.810	0.14
24	0.840	0.04	59	2.965	0.09	94	6.960	0.16
25	0.880	0.04	60	3.055	0.09	95	7.120	0.16
26	0.920	0.04	61	3.145	0.09	96	7.280	0.16
27	0.960	0.04	62	3.235	0.09	97	7.440	0.16
28	1.000	0.04	63	3.325	0.09	98	7.600	0.16
29	1.040	0.04	64	3.415	0.09	99	7.760	0.16
30	1.085	0.05	65	3.510	0.10	100	7.920	0.16
31	1.135	0.05	66	3.610	0.10			
32	1.185	0.05	67	3.710	0.10			
33	1.235	0.05	68	3.810	0.10			
34	1.285	0.05	69	3.910	0.10			
35	1.335	0.05	70	4.010	0.10			

数の最適値、破線は実験値のパラッキから推定した誤差範囲である。この図からわかるように、 β 線エネルギーが1.2 MeV以上では後方散乱の効果は無視できる。照射試料からの β 線エネルギースペクトルにこの補正係数を乗じることにより、後方散乱の効果を補正することができる。

4. 冷却時間依存 β 線エネルギースペクトルの測定

^{235}U と ^{239}Pu に対しては10 s照射2回、60 s照射1回、300 s照射1回の計4回の照射を、 ^{235}U に対しては10 s照射2回と100 s照射1回の計3回の照射を行うことにより、照射後11~26,000 sの範囲における34点で測定を行なった。1回目の10 s照射では照射後11~3,795 sの間で12回、2回目の10 s照射では照射後17~4,395 sの間で1回目の測定の際に待ち時間になっていた部分を12回測定した。 ^{235}U と ^{239}Pu の場合は60 s照射後170~7,970 sの範囲で18回(^{235}U)、170~11,970 sの範囲で20回(^{239}Pu)の測定と、300 s照射後1,250~25,850 sの範囲で16回の測定を行なった。 ^{235}U の場合

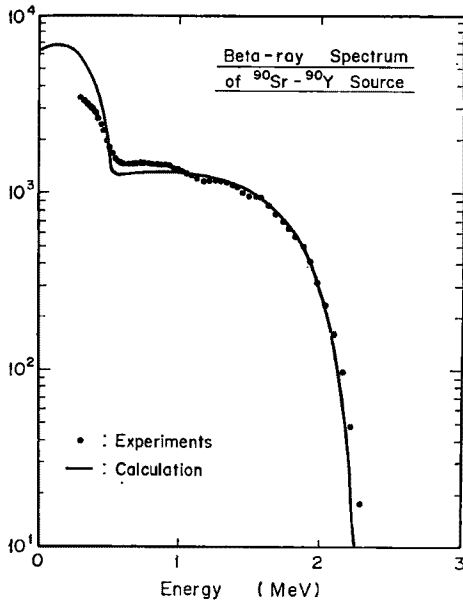


Fig. 4 Comparison between measured and calculated ⁹⁰Sr-⁹⁰Y β-ray spectra

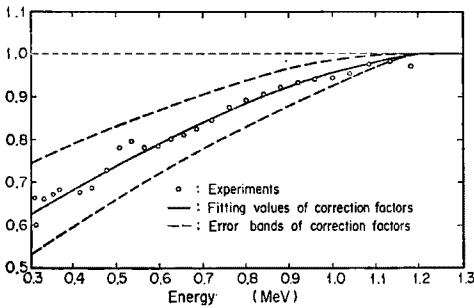


Fig. 5 Energy dependent correction factors for β-ray backscattering effect by Ti backing foil

100 s 照射後 150~25,950 s の範囲で24回の測定を行った。60, 300, 100 s の照射後の測定の場合は各測間に 2 s のデータ転送に必要な待ち時間が設定されている。このような照射・測定方式により照射後11~10,000 s の範囲で連続的な時間依存 β線エネルギースペクトルが測定された。

照射に先立ち、各試料の固有の放射能からの β線エネルギースペクトルの測定を行なった。さらに、試料が着されたポリエチレン製カプセル、試料の Ti 箔や接材等の中性子照射に伴う誘導放射能からの時間依存 β線エネルギースペクトルを測定するため、核分裂物質が電着されていないことを除けばすべて同一条

件で作成された模擬試料を用いて、前述の照射・測定方式に基づいて照射し、測定を行なった。

これらの測定結果を用いて、照射時間 T_R 、待ち時間 T_W および測定時間 T_C の各組 (T_R, T_W, T_C) に対して、照射試料中の FP からの β線による単位時間当りの真のパルス波高分布が求められた。

5. 核分裂数の決定

照射中に試料内で発生した核分裂数は照射後適当な冷却時間をおいた後に ⁹⁷Zr の娘核である ⁹⁷Nb と ^{97m}Nb から放出される γ線の強度を Ge 検出器で測定することにより求められた。質量数97の崩壊系列において、⁹⁷Zr より原子番号の小さい核種はその半減期が ⁹⁷Zr の半減期 ($T_{1/2}=16.9$ h) に比べて極端に短いので無視し、⁹⁷Nb と ^{97m}Nb の独立収率は $3.4 \times 10^{-8}\%$ と小さいので無視することにより、⁹⁷Zr → ⁹⁷Nb(^{97m}Nb) → ⁹⁷Mo と崩壊系列を単純化することができる。核分裂反応率 n_f は照射時間中一定と仮定でき、⁹⁷Zr を A, ⁹⁷Nb あるいは ^{97m}Nb を B と表わすと、次式で与えられる。

$$n_f = C_B(\lambda_B - \lambda_A) / \left\{ \epsilon_B \cdot b_B \cdot \alpha_A \cdot \left[\frac{\lambda_B}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A \cdot T_R}) (1 - e^{-\lambda_A \cdot T_C}) e^{-\lambda_A \cdot T_W} - \frac{\lambda_A}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B \cdot T_R}) (1 - e^{-\lambda_B \cdot T_C}) e^{-\lambda_B \cdot T_W} \right] \right\} \quad (3)$$

- ここで、 T_R : 照射時間, T_W : 待ち時間
- T_C : 測定時間
- C_B : 目的の γ線のピーク面積
- ϵ_B : 目的の γ線エネルギーに対する Ge 検出器のピーク効率
- b_B : 目的の γ線放出率(分岐比と内部転換補正係数の積)
- λ_A, λ_B : 核種 A, B の崩壊定数
- α_A : 核種 A の累積核分裂収率

したがって、全核分裂数は $N_f = n_f \cdot T_R$ として与えられ、⁹⁷Nb と ^{97m}Nb とから得られた値の平均値として求めた。ここで、累積核分裂収率は Rider & Meek の評価値⁽¹⁵⁾を、崩壊定数と γ線放出率は *Table of Isotopes* (第7版)⁽¹⁶⁾の値を使用した。用いたこれらの値を Table 2 に、得られた核分裂数を Table 3 に示す。

III. 測定結果およびデータ解析

²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U のそれぞれの試料に対して、照射時間 T_R 、待ち時間 T_W 、測定時間 T_C の組 (T_R, T_W, T_C) ごとに単位時間当りのパルス波高分布が得られた。このパルス波高分布をエネルギースペクトルに変換し、

Table 2 Parameters used in determination of number of fissions

(a) Decay data			
Nuclide	^{97m} Nb	⁹⁷ Nb	
Half-life	60±8 s	72.1±0.7 m	
γ-ray energy (MeV)	0.743	0.658	
γ-ray branching (%)	92.8±0.3	98.2±0.1	
(b) Fission yields of ⁹⁷ Zr			
Nuclide	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²³³ U
Fission yield (%)	5.947±0.042	5.273±0.053	5.457±0.055

Table 3 Determination of number of fissions

(a) ²³⁵ U				
Sample No.	U5-11	U5-1	U5-13	U5-10
Irradiation time (s)	10	10	60	300
^{97m} Nb	1.261 ±0.004†	1.480 ±0.051†	8.728 ±0.225†	4.113 ±0.099††
⁹⁷ Nb	1.235 ±0.040	1.468 ±0.047	8.720 ±0.219	4.166 ±0.099
Average number of fissions	1.248 ±0.042	1.474 ±0.049	8.724 ±0.222	4.140 ±0.099
(b) ²³⁹ Pu				
Sample No.	PU-2	PU-9	PU-3	PU-4
Irradiation time (s)	10	10	60	300
^{97m} Nb	1.660 ±0.063†	1.745 ±0.061†	1.279 ±0.038††	4.386 ±0.127††
⁹⁷ Nb	1.580 ±0.050	1.693 ±0.055	1.306 ±0.034	4.439 ±0.119
Average number of fissions	1.620 ±0.057	1.719 ±0.058	1.293 ±0.036	4.413 ±0.123
(c) ²³³ U				
Sample No.	U3-1	U3-2	U3-5	
Irradiation time (s)	10	10	100	
^{97m} Nb	2.846±0.112†	3.378±0.129†	3.104±0.085††	
⁹⁷ Nb	3.008±0.108	3.486±0.113	3.040±0.071	
Average number of fissions	2.927±0.110	3.432±0.121	3.072±0.078	

† Multiply by 10⁷ to get the number of fissions†† Multiply by 10⁸ to get the number of fissions

単位核分裂率当りに規格化した後、エネルギーについて積分することにより有限時間照射崩壊熱を得た。さらに、これらの有限時間照射崩壊熱を瞬時照射崩壊熱の形に変換した。

1. β線エネルギースペクトルの導出

パルス波高分布 $C(I)$ とエネルギースペクトル $\phi(E)$ とは、次式で関係づけられる。

$$C(I) = \int R(I, E) \cdot \phi(E) dE \quad (4)$$

ここで、 $R(I, E)$ は第 II-2 節で述べた検出器の応答関数である。(4) 式を解いてエネルギースペクトル $\phi(E)$ を求めるのに FERDOR コード⁽¹⁷⁾ を用いた。このようにして得られたエネルギースペクトルに、(2) 式で得られた Ti 箔による後方散乱補正係数を乗じることにより、最大エネルギー 8 MeV で 100 群に分割された β 線エネルギースペクトルを得た。

β-γ 弁別用透過型比例計数管のパルス間の分解時間の実測値は第 II-2 節で述べたように (9.0±0.5) μs であった。一方、シンチレーション検出器の分解時間は比例計数管のものに比べると非常に短く、β 線スペクトロメータの分解時間は (9.0±0.5) μs と考えてよい。照射試料からの β 線の測定の際、β-γ 弁別用透過型比例計数管の計数率は最大 2×10⁴ cps になるので、その不感時間の補正が必要となる。β-γ 弁別用透過型比例計数管とシンチレーション検出器とは同時計数測定を行なっているので、β-γ 弁別用透過型比例計数管の不感時間分だけシンチレーション検出器の計数値が減少する。しかし測定されたエネルギースペクトルの形は変化しない。したがって、この不感時間に伴う補正係数 P は β-γ 弁別用透過型比例計数管の計数率の測定時間内の平均値を n 、分解時間を τ とすると、

$$P = (1 - n \cdot \tau)^{-1} \quad (5)$$

となる。この補正係数 P を (4) 式を解いて得たエネルギースペクトルに、後方散乱補正係数を乗じて得た前述のエネルギースペクトルに乗じることにより、真の β 線エネルギースペクトルが得られる。

2. 崩壊熱の導出

(1) 有限時間照射崩壊熱

照射後の試料から放出される β 線エネルギースペクトルは冷却時間とともに変化している。しかし、第 II-4 節で述べた照射・測定方式においては、測定時間 T_0 は待ち時間 T_w に比べて十分短く、測定時間 T_0 内の β 線エネルギースペクトルはその形は変化せず、強度のみが時間とともに直線的に減少するものと仮定できる。したがって、前節で得られた各 (T_B , T_w , T_0) ごとの β 線エネルギースペクトルは、 T_0 内での平均の単位時間当りのスペクトルとみなすことができ、(betas/MeV·s) の次元をもつ。したがって、冷却時間 t として照射終了時点から測定時間の中間点までの時間

($T_w + \frac{1}{2}T_c$)をとると、有限時間照射崩壊熱は

$$\begin{aligned}
 F(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) &= \frac{1}{n_j} \int_0^{E_{max}} E \cdot \phi(E) dE \\
 &= \frac{1}{n_j} \sum_{j=I_{min}}^{I_{max}} E_j \cdot \phi(E_j) \cdot \Delta E_j \\
 &\quad + \frac{1}{n_j} \int_0^{E_{min}} E \cdot \phi(E) dE
 \end{aligned} \tag{6}$$

ここで、 n_j : 照射中に試料内で発生した単位時間
当りの核分裂数

$E_j, \Delta E_j$: j 群の中心エネルギーとエネルギー幅
 $\phi(E_j)$: j 群の β 線束

と与えられる。(6)式の右辺第1項は測定されたエネルギースペクトルから計算される部分であり、第2項は測定されたエネルギースペクトルのエネルギー下限値以下のエネルギーをもつ β 線からの寄与分である。このエネルギー下限値は用いた測定系の内部バイアスレベルによって決まり、その値は300 keVであった。したがって、 $E_{max}=8$ MeV ($I_{max}=100$), $E_{min}=300$ keV ($I_{min}=6$)である。300 keV以下のエネルギースペクトルは測定されたエネルギースペクトルを0エネルギーまで外挿して求め、それを積分してエネルギー下限値以下のエネルギーをもつ β 線による有限時間照射崩壊熱への寄与分を計算した。この寄与分の有限時間照射崩壊熱全体に対する割合は1.5~4%の範囲である。(6)式で得られた有限時間照射崩壊熱を次式で与えられるエネルギー放出量、つまり($1/T_R$) fissions/sの割合で T_R 時間照射した後の T_w から($T_w + T_c$)時間内に放出されるエネルギー

$$E(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) = T_c \cdot F(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) / T_R \tag{7}$$

に変換した。 ^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U について(7)式の形にした測定結果をそれぞれTable 4(a)~(c)に示す。表には β 線放出量と β 線平均エネルギーも合わせて載せてある。ここで、 β 線放出量は次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 N(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) &= \frac{T_c}{n_j \cdot T_R} \int_0^{E_{max}} \phi(E) dE \\
 &= \frac{T_c}{n_j \cdot T_R} \sum_{j=I_{min}}^{I_{max}} \phi(E_j) \cdot \Delta E_j \\
 &\quad + \frac{T_c}{n_j \cdot T_R} \int_0^{E_{min}} \phi(E) dE
 \end{aligned} \tag{8}$$

また、 β 線平均エネルギーは(7)と(8)式の値の比として与えられる。

(2) 瞬時照射崩壊熱

実験で得られた有限時間照射崩壊熱を瞬時照射崩壊

熱に変換しておくことは、任意の照射条件における崩壊熱をそれから計算できること、照射条件の異なる他の実験値あるいは計算値との比較をし易くすることなどのため有意義である。

照射時間内で核分裂反応率が一定で、生成されたEPの中性子反応の効果が無視できる場合、待ち時間 T_w が照射時間 T_R と測定時間 T_c の和より十分長い、つまり $T_w \gg (T_R + T_c)$ が成り立つ場合は、有限時間照射崩壊熱を照射時間で割った値は、冷却時間 $t = T_w + \frac{1}{2}(T_R + T_c)$ での瞬時照射崩壊熱とみなすことができる。つまり

$$f\{T_w + \frac{1}{2}(T_R + T_c)\} = F(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) / T_R \tag{9}$$

が成り立つ。一方、 $T_w \leq (T_R + T_c)$ の範囲においては(9)式が成り立たないので、この範囲では補正係数 η を導入して、

$$f\{T_w + \frac{1}{2}(T_R + T_c)\} = \eta \cdot F(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) / T_R \tag{10}$$

により瞬時照射崩壊熱に変換した。ここで、補正係数 η は瞬時照射条件で冷却時間 $t = T_w + \frac{1}{2}(T_R + T_c)$ における総和計算値と、照射時間 T_R 、冷却時間 $t' = T_w + \frac{1}{2}T_c$ における有限時間照射条件での総和計算値との比として、次式により求めた。

$$\eta = \frac{f_{cal}\{T_w + \frac{1}{2}(T_R + T_c)\}}{F_{cal}(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) / T_R} \tag{11}$$

補正量は(T_R, T_w, T_c)=(10 s, 11 s, 6 s)の場合が最大で、約2.5%であった。このようにして得た ^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U の β 線瞬時照射崩壊熱をそれぞれTable 5(a)~(c)に示すとともにFig. 6(a)~(c)に図示する。瞬時照射崩壊熱は冷却時間の逆数にはほぼ比例するので、冷却時間を横軸に、瞬時照射崩壊熱と冷却時間との積を縦軸として図示してある。

(3) 誤差評価

測定誤差の要因として、①パルス波高分布の統計誤差、②パルス波高分布をエネルギースペクトルに変換する際に生じる誤差、③Ti箔による後方散乱補正係数の誤差、④ β - γ 弁別用透過型比例計数管の不感時間の補正に伴う誤差、⑤低エネルギー部へ外挿されたスペクトルの推定誤差、⑥核分裂数の誤差、⑦照射時間の誤差、⑧測定時間の誤差を考慮した。①, ②, ③の誤差はFERDORコード内で評価され、その結果が崩壊熱に与える誤差は1~2.5%の範囲である。④の誤差は2.5%以下である。⑤の推定スペクトルには10%の誤差を与えているが、その結果が崩壊熱に与える誤差は

Table 4(a)~(c) β -ray energy release and yields from fission products
created by fast-neutron fission of ^{235}U , ^{239}Pu , ^{238}U

Table 4(a) ^{235}U

Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling ^a Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (betas/fission)	Average Beta Energy (MeV/beta)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(1.248 \pm 0.042) \times 10^7$ fissions					
11	6	19	0.246 ± 0.012	0.169 ± 0.010	1.455 ± 0.062
25	10	35	0.198 ± 0.009	0.150 ± 0.008	1.323 ± 0.060
45	10	55	0.115 ± 0.005	0.0926 ± 0.0052	1.237 ± 0.061
75	20	90	0.130 ± 0.006	0.108 ± 0.006	1.201 ± 0.059
115	40	140	0.154 ± 0.007	0.132 ± 0.007	1.167 ± 0.056
195	60	230	0.125 ± 0.005	0.111 ± 0.006	1.132 ± 0.056
315	80	360	0.103 ± 0.005	0.0915 ± 0.0052	1.125 ± 0.059
495	100	550	0.0852 ± 0.0039	0.0743 ± 0.0042	1.146 ± 0.061
795	200	900	0.0974 ± 0.0043	0.0928 ± 0.0053	1.049 ± 0.055
1395	400	1600	0.109 ± 0.005	0.106 ± 0.006	1.030 ± 0.053
2195	500	2450	0.0831 ± 0.0039	0.0811 ± 0.0047	1.025 ± 0.057
3195	600	3500	0.0638 ± 0.0032	0.0630 ± 0.0037	1.013 ± 0.061
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(1.474 \pm 0.049) \times 10^7$ fissions					
17	8	26	0.227 ± 0.010	0.168 ± 0.009	1.348 ± 0.059
35	10	45	0.147 ± 0.006	0.118 ± 0.007	1.249 ± 0.060
55	20	70	0.178 ± 0.007	0.146 ± 0.008	1.224 ± 0.056
95	20	110	0.103 ± 0.004	0.0872 ± 0.0047	1.186 ± 0.057
155	40	180	0.113 ± 0.005	0.0963 ± 0.0052	1.173 ± 0.056
255	60	290	0.0931 ± 0.0040	0.0810 ± 0.0044	1.149 ± 0.057
395	100	450	0.0974 ± 0.0042	0.0874 ± 0.0049	1.115 ± 0.057
595	200	700	0.127 ± 0.005	0.117 ± 0.007	1.086 ± 0.056
995	400	1200	0.148 ± 0.006	0.141 ± 0.008	1.047 ± 0.053
1795	400	2000	0.0847 ± 0.0038	0.0824 ± 0.0047	1.029 ± 0.057
2695	500	2950	0.0663 ± 0.0032	0.0638 ± 0.0036	1.040 ± 0.059
3795	600	4100	0.0543 ± 0.0030	0.0518 ± 0.0030	1.048 ± 0.069
(3) Irradiation Time = 60s, Number of Fissions = $(8.724 \pm 0.222) \times 10^7$ fissions					
170	60	230	0.112 ± 0.004	0.103 ± 0.005	1.085 ± 0.050
230	60	290	0.0880 ± 0.0031	0.0820 ± 0.0043	1.073 ± 0.051
290	80	360	0.0920 ± 0.0032	0.0868 ± 0.0046	1.059 ± 0.050
370	100	450	0.0898 ± 0.0031	0.0857 ± 0.0045	1.049 ± 0.050
470	100	550	0.0730 ± 0.0025	0.0710 ± 0.0037	1.027 ± 0.049
570	200	700	0.115 ± 0.004	0.113 ± 0.006	1.016 ± 0.049
770	200	900	0.0903 ± 0.0030	0.0889 ± 0.0046	1.016 ± 0.048
970	400	1200	0.137 ± 0.005	0.139 ± 0.007	0.983 ± 0.047
1370	400	1600	0.0996 ± 0.0033	0.105 ± 0.006	0.953 ± 0.047
1770	400	2000	0.0772 ± 0.0026	0.0827 ± 0.0044	0.933 ± 0.046
2170	500	2450	0.0757 ± 0.0026	0.0829 ± 0.0045	0.912 ± 0.047
2670	500	2950	0.0591 ± 0.0020	0.0642 ± 0.0034	0.921 ± 0.047
3170	600	3500	0.0557 ± 0.0019	0.0625 ± 0.0034	0.891 ± 0.046
3770	600	4100	0.0465 ± 0.0016	0.0524 ± 0.0028	0.888 ± 0.046
4370	800	4800	0.0494 ± 0.0017	0.0556 ± 0.0030	0.887 ± 0.046
5170	800	5600	0.0406 ± 0.0015	0.0457 ± 0.0025	0.889 ± 0.047
5970	1000	6500	0.0402 ± 0.0014	0.0461 ± 0.0025	0.873 ± 0.046
6970	1000	7500	0.0341 ± 0.0013	0.0396 ± 0.0022	0.862 ± 0.047
(4) Irradiation Time = 300s, Number of Fissions = $(4.140 \pm 0.099) \times 10^8$ fissions					
1250	400	1600	0.103 ± 0.004	0.108 ± 0.006	0.952 ± 0.047
1650	400	2000	0.0795 ± 0.0027	0.0865 ± 0.0047	0.919 ± 0.047
2050	500	2450	0.0772 ± 0.0026	0.0854 ± 0.0046	0.904 ± 0.047
2550	500	2950	0.0603 ± 0.0020	0.0685 ± 0.0037	0.880 ± 0.046
3050	600	3500	0.0572 ± 0.0018	0.0652 ± 0.0035	0.877 ± 0.045
3650	600	4100	0.0460 ± 0.0015	0.0533 ± 0.0028	0.863 ± 0.045
4250	800	4800	0.0498 ± 0.0016	0.0587 ± 0.0032	0.849 ± 0.044
5050	800	5600	0.0403 ± 0.0013	0.0476 ± 0.0026	0.848 ± 0.044
5850	1000	6500	0.0411 ± 0.0013	0.0483 ± 0.0026	0.852 ± 0.044
6850	1000	7500	0.0344 ± 0.0011	0.0402 ± 0.0021	0.856 ± 0.044
7850	2000	9000	0.0550 ± 0.0018	0.0644 ± 0.0034	0.853 ± 0.044
9850	2000	11000	0.0434 ± 0.0014	0.0516 ± 0.0028	0.841 ± 0.044
11850	3000	13500	0.0522 ± 0.0017	0.0605 ± 0.0032	0.862 ± 0.044
14850	3000	16500	0.0421 ± 0.0013	0.0486 ± 0.0026	0.865 ± 0.045
17850	4000	20000	0.0455 ± 0.0014	0.0522 ± 0.0028	0.871 ± 0.045
21850	4000	24000	0.0371 ± 0.0012	0.0431 ± 0.0023	0.860 ± 0.045

a: $T_{\text{cool}} = T_{\text{wait}} + 0.5 \times (T_{\text{irrad}} + T_{\text{count}})$

Table 4(b) ²³⁹Pu

Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling ^a Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (betas/fission)	Average Beta Energy (MeV/beta)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = (1.620±0.057)×10 ⁷ fissions					
11	6	19	0.183 ±0.009	0.130 ±0.008	1.408±0.060
25	10	35	0.161 ±0.007	0.125 ±0.007	1.283±0.058
45	10	55	0.0989±0.0046	0.0795±0.0045	1.244±0.059
75	20	90	0.113 ±0.005	0.0946±0.0052	1.193±0.054
115	40	140	0.136 ±0.006	0.117 ±0.006	1.163±0.053
195	60	230	0.111 ±0.005	0.0967±0.0053	1.146±0.053
315	80	360	0.0940±0.0042	0.0831±0.0047	1.131±0.055
495	100	550	0.0749±0.0036	0.0677±0.0040	1.106±0.060
795	200	900	0.0911±0.0041	0.0833±0.0047	1.094±0.055
1395	400	1600	0.0996±0.0045	0.0938±0.0054	1.062±0.054
2195	500	2450	0.0762±0.0036	0.0755±0.0045	1.009±0.057
3195	600	3500	0.0553±0.0028	0.0551±0.0032	1.003±0.060
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = (1.719±0.058)×10 ⁷ fissions					
17	8	26	0.176 ±0.008	0.137 ±0.008	1.283±0.059
35	10	45	0.120 ±0.006	0.0966±0.0054	1.242±0.057
55	20	70	0.153 ±0.007	0.133 ±0.007	1.157±0.053
95	20	110	0.0903±0.0040	0.0806±0.0045	1.120±0.054
155	40	180	0.101 ±0.004	0.0919±0.0052	1.096±0.053
255	60	290	0.0862±0.0038	0.0791±0.0045	1.090±0.055
395	100	450	0.0873±0.0038	0.0820±0.0046	1.065±0.053
595	200	700	0.118 ±0.005	0.111 ±0.006	1.060±0.052
995	400	1200	0.136 ±0.006	0.139 ±0.008	0.980±0.052
1795	400	2000	0.0750±0.0034	0.0782±0.0046	0.959±0.053
2695	500	2950	0.0556±0.0026	0.0616±0.0037	0.902±0.054
3795	600	4100	0.0462±0.0027	0.0468±0.0028	0.986±0.069
(3) Irradiation Time = 60s, Number of Fissions = (1.293±0.036)×10 ⁸ fissions					
170	60	230	0.108 ±0.004	0.101 ±0.006	1.071±0.049
230	60	290	0.0819±0.0032	0.0771±0.0042	1.062±0.049
290	80	360	0.0877±0.0033	0.0824±0.0045	1.064±0.049
370	100	450	0.0867±0.0032	0.0829±0.0045	1.046±0.049
470	100	550	0.0701±0.0026	0.0680±0.0037	1.031±0.050
570	200	700	0.112 ±0.004	0.109 ±0.006	1.036±0.049
770	200	900	0.0886±0.0033	0.0881±0.0048	1.006±0.049
970	400	1200	0.133 ±0.005	0.136 ±0.008	0.980±0.048
1370	400	1600	0.0968±0.0036	0.101 ±0.006	0.963±0.047
1770	400	2000	0.0741±0.0027	0.0787±0.0044	0.942±0.047
2170	500	2450	0.0714±0.0026	0.0775±0.0043	0.922±0.047
2670	500	2950	0.0557±0.0021	0.0621±0.0034	0.897±0.046
3170	600	3500	0.0523±0.0019	0.0587±0.0033	0.891±0.046
3770	600	4100	0.0412±0.0015	0.0469±0.0026	0.878±0.046
4370	800	4800	0.0429±0.0016	0.0491±0.0027	0.874±0.045
5170	800	5600	0.0339±0.0013	0.0396±0.0022	0.858±0.045
5970	1000	6500	0.0337±0.0012	0.0398±0.0022	0.846±0.045
6970	1000	7500	0.0273±0.0010	0.0325±0.0018	0.841±0.046
7970	2000	9000	0.0421±0.0016	0.0505±0.0028	0.834±0.045
9970	2000	11000	0.0315±0.0012	0.0385±0.0022	0.819±0.045
(4) Irradiation Time = 300s, Number of Fissions=(4.413±0.123)×10 ⁸ fissions					
1250	400	1600	0.0948±0.0036	0.0982±0.0055	0.965±0.047
1650	400	2000	0.0720±0.0027	0.0762±0.0042	0.945±0.047
2050	500	2450	0.0689±0.0026	0.0750±0.0042	0.918±0.046
2550	500	2950	0.0535±0.0020	0.0590±0.0033	0.907±0.045
3050	600	3500	0.0506±0.0019	0.0570±0.0032	0.888±0.045
3650	600	4100	0.0397±0.0015	0.0454±0.0025	0.873±0.044
4250	800	4800	0.0415±0.0015	0.0484±0.0027	0.857±0.044
5050	800	5600	0.0331±0.0012	0.0390±0.0022	0.847±0.044
5850	1000	6500	0.0330±0.0012	0.0394±0.0022	0.838±0.044
6850	1000	7500	0.0263±0.0010	0.0318±0.0018	0.829±0.044
7850	2000	9000	0.0408±0.0015	0.0500±0.0028	0.816±0.043
9850	2000	11000	0.0302±0.0011	0.0379±0.0022	0.797±0.042
11850	3000	13500	0.0350±0.0013	0.0450±0.0026	0.778±0.043
14850	3000	16500	0.0275±0.0010	0.0354±0.0020	0.778±0.042
17850	4000	20000	0.0295±0.0011	0.0382±0.0022	0.774±0.043
21850	4000	24000	0.0238±0.0009	0.0314±0.0018	0.759±0.042

a: $T_{cool} = T_{wait} + 0.5 \times (T_{irrad} + T_{count})$

Table 4(c) ^{235}U

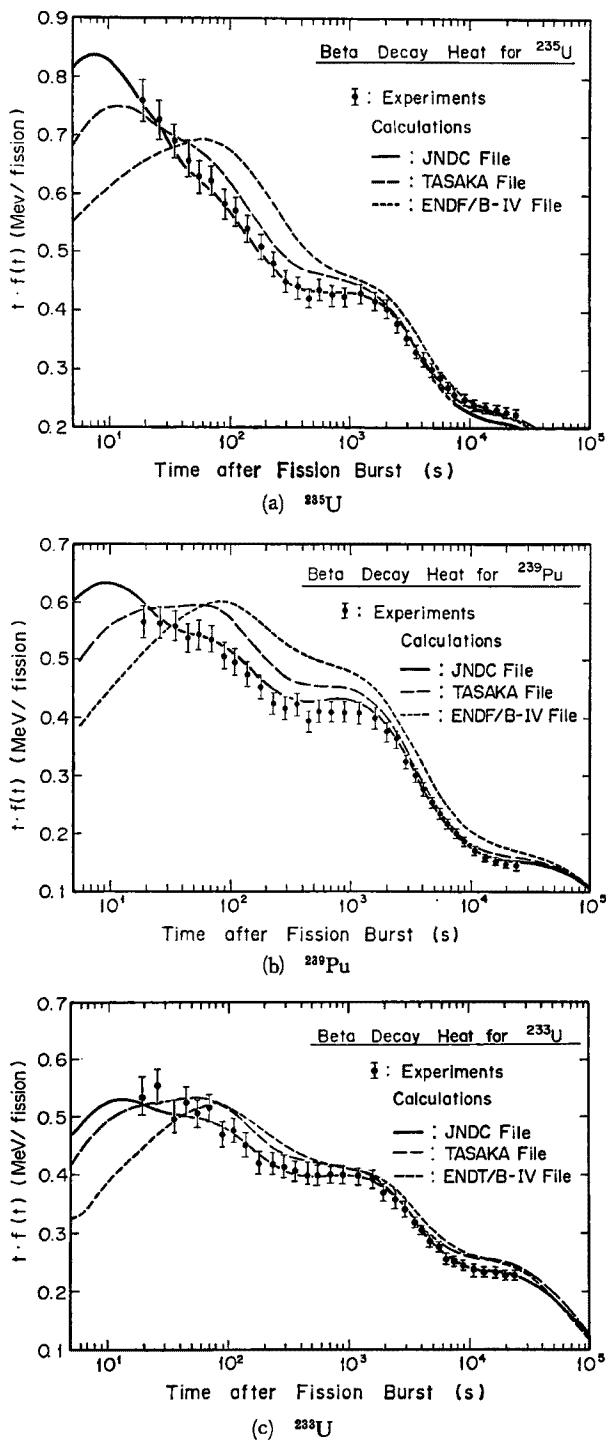
Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling ^a Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (betas/fission)	Average Beta Energy (MeV/beta)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(2.927 \pm 0.110) \times 10^7$ fissions					
11	6	19	0.173 ± 0.010	0.127 ± 0.009	1.368 ± 0.059
25	10	35	0.143 ± 0.007	0.116 ± 0.007	1.236 ± 0.056
45	10	55	0.0923 ± 0.0044	0.0778 ± 0.0046	1.186 ± 0.055
75	20	90	0.105 ± 0.005	0.0888 ± 0.0052	1.177 ± 0.054
115	40	140	0.129 ± 0.006	0.113 ± 0.007	1.140 ± 0.053
195	60	230	0.109 ± 0.005	0.0994 ± 0.0058	1.100 ± 0.053
315	80	360	0.0883 ± 0.0039	0.0818 ± 0.0048	1.080 ± 0.054
495	100	550	0.0717 ± 0.0032	0.0682 ± 0.0040	1.051 ± 0.053
795	200	900	0.0894 ± 0.0039	0.0871 ± 0.0051	1.027 ± 0.051
1395	400	1600	0.0995 ± 0.0045	0.102 ± 0.006	0.973 ± 0.052
2195	500	2450	0.0735 ± 0.0033	0.0789 ± 0.0048	0.932 ± 0.050
3195	600	3500	0.0566 ± 0.0027	0.0634 ± 0.0039	0.892 ± 0.051
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(3.432 \pm 0.121) \times 10^7$ fissions					
17	8	26	0.172 ± 0.009	0.132 ± 0.009	1.305 ± 0.057
35	10	45	0.117 ± 0.006	0.0955 ± 0.0056	1.229 ± 0.055
55	20	70	0.148 ± 0.007	0.123 ± 0.007	1.204 ± 0.053
95	20	110	0.0868 ± 0.0038	0.0725 ± 0.0040	1.197 ± 0.054
155	40	180	0.0937 ± 0.0040	0.0831 ± 0.0047	1.128 ± 0.053
255	60	290	0.0815 ± 0.0035	0.0734 ± 0.0041	1.110 ± 0.053
395	100	450	0.0866 ± 0.0036	0.0805 ± 0.0046	1.076 ± 0.053
595	200	700	0.114 ± 0.005	0.109 ± 0.006	1.042 ± 0.051
995	400	1200	0.134 ± 0.006	0.134 ± 0.008	0.999 ± 0.051
1795	400	2000	0.0733 ± 0.0031	0.0769 ± 0.0045	0.953 ± 0.050
2695	500	2950	0.0582 ± 0.0026	0.0611 ± 0.0036	0.952 ± 0.052
3795	600	4100	0.0425 ± 0.0020	0.0493 ± 0.0030	0.863 ± 0.051
(3) Irradiation Time = 100s, Number of Fissions = $(3.072 \pm 0.078) \times 10^8$ fissions					
150	60	230	0.119 ± 0.006	0.105 ± 0.006	1.131 ± 0.051
210	60	290	0.0893 ± 0.0038	0.0804 ± 0.0047	1.111 ± 0.051
270	80	360	0.0928 ± 0.0037	0.0848 ± 0.0048	1.094 ± 0.050
350	100	450	0.0914 ± 0.0035	0.0852 ± 0.0047	1.073 ± 0.050
450	100	550	0.0735 ± 0.0027	0.0696 ± 0.0038	1.056 ± 0.050
550	200	700	0.115 ± 0.004	0.110 ± 0.006	1.048 ± 0.049
750	200	900	0.0884 ± 0.0031	0.0850 ± 0.0045	1.039 ± 0.049
950	400	1200	0.131 ± 0.005	0.129 ± 0.007	1.015 ± 0.048
1350	400	1600	0.0964 ± 0.0033	0.0967 ± 0.0051	0.997 ± 0.048
1750	400	2000	0.0745 ± 0.0025	0.0747 ± 0.0039	0.997 ± 0.047
2150	500	2450	0.0725 ± 0.0024	0.0739 ± 0.0038	0.981 ± 0.046
2650	500	2950	0.0573 ± 0.0019	0.0589 ± 0.0031	0.973 ± 0.046
3150	600	3500	0.0546 ± 0.0018	0.0568 ± 0.0030	0.961 ± 0.046
3750	600	4100	0.0442 ± 0.0015	0.0465 ± 0.0024	0.951 ± 0.046
4350	800	4800	0.0475 ± 0.0016	0.0502 ± 0.0026	0.947 ± 0.046
5150	800	5600	0.0392 ± 0.0013	0.0417 ± 0.0022	0.939 ± 0.046
5950	1000	6500	0.0395 ± 0.0013	0.0429 ± 0.0023	0.919 ± 0.046
6950	1000	7500	0.0333 ± 0.0011	0.0353 ± 0.0018	0.943 ± 0.046
7950	2000	9000	0.0542 ± 0.0018	0.0576 ± 0.0030	0.940 ± 0.046
9950	2000	11000	0.0424 ± 0.0014	0.0457 ± 0.0024	0.927 ± 0.046
11950	3000	13500	0.0519 ± 0.0018	0.0564 ± 0.0030	0.920 ± 0.046
14950	3000	16500	0.0421 ± 0.0014	0.0458 ± 0.0024	0.921 ± 0.046
17950	4000	20000	0.0455 ± 0.0015	0.0488 ± 0.0025	0.933 ± 0.045
21950	4000	24000	0.0380 ± 0.0013	0.0416 ± 0.0022	0.913 ± 0.046

$$a: T_{\text{cool}} = T_{\text{wait}} + 0.5 \times (T_{\text{irrad}} + T_{\text{count}})$$

Table 5(a)-(c) β -ray decay power after one fast-neutron fission of ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu

No.	Cooling Time α (s)	(a) ^{235}U			(b) ^{239}Pu			(c) ^{241}Pu		
		Experiment f(t) (MeV/s per fission)	Calculation ^b (JNDC)	Ratio of Experiment /Calculation	Experiment f(t) (MeV/s per fission)	Calculation ^b (JNDC)	Ratio of Experiment /Calculation	Experiment f(t) (MeV/s per fission)	Calculation ^b (JNDC)	Ratio of Experiment /Calculation
1	19	4.00-02 ²	3.97-02	1.01±0.05	2.98-02	3.15-02	0.95±0.05	2.82-02	2.75-02	1.03±0.06
2	26	2.80-02	2.71-02	1.03±0.05	2.17-02	2.20-02	0.99±0.05	2.13-02	1.97-02	1.08±0.06
3	35	1.97-02	1.90-02	1.04±0.05	1.60-02	1.58-02	1.01±0.05	1.47-02	1.44-02	1.02±0.05
4	45	1.46-02	1.42-02	1.03±0.05	1.20-02	1.21-02	0.99±0.05	1.17-02	1.11-02	1.05±0.05
5	55	1.14-02	1.13-02	1.01±0.05	9.67-03	9.83-03	1.00±0.05	9.20-03	9.06-03	1.02±0.05
6	70	8.89-03	8.63-03	1.03±0.04	7.66-03	7.63-03	1.00±0.04	7.36-03	7.05-03	1.04±0.05
7	90	6.47-03	6.44-03	1.01±0.04	5.64-03	5.81-03	0.97±0.04	5.22-03	5.37-03	0.97±0.05
8	110	5.17-03	5.06-03	1.02±0.04	4.52-03	4.63-03	0.98±0.04	4.34-03	4.28-03	1.01±0.05
9	140	3.86-03	3.75-03	1.03±0.04	3.49-03	3.49-03	0.97±0.04	3.23-03	3.24-03	1.00±0.04
10	180	2.83-03	2.75-03	1.03±0.04	2.52-03	2.60-03	0.97±0.04	2.34-03	2.41-03	0.97±0.04
11	230	2.09-03	2.04-03	1.03±0.04	1.85-03	1.96-03	0.94±0.04	1.82-03	1.82-03	1.00±0.04
12	290	1.55-03	1.55-03	1.00±0.04	1.44-03	1.51-03	0.93±0.04	1.42-03	1.40-03	1.01±0.04
13	360	1.22-03	1.22-03	1.00±0.04	1.17-03	1.20-03	0.98±0.04	1.13-03	1.11-03	1.02±0.04
14	450	9.36-04	9.62-04	0.97±0.04	8.73-04	9.51-04	0.92±0.04	8.90-04	8.84-04	1.01±0.04
15	550	7.91-04	7.83-04	1.01±0.04	7.49-04	7.80-04	0.96±0.05	7.26-04	7.22-04	1.01±0.04
16	700	6.07-04	6.15-04	0.99±0.04	5.88-04	6.17-04	0.95±0.04	5.73-04	5.67-04	1.01±0.04
17	900	4.69-04	4.79-04	0.98±0.04	4.55-04	4.80-04	0.95±0.04	4.45-04	4.41-04	1.01±0.04
18	1200	3.56-04	3.57-04	1.00±0.04	3.40-04	3.55-04	0.96±0.04	3.31-04	3.29-04	1.01±0.04
19	1600	2.60-04	2.62-04	0.99±0.04	2.49-04	2.55-04	0.98±0.04	2.45-04	2.43-04	1.01±0.04
20	2000	2.01-04	2.02-04	1.00±0.04	1.88-04	1.93-04	0.97±0.04	1.85-04	1.88-04	0.98±0.04
21	2450	1.53-04	1.56-04	0.98±0.03	1.48-04	1.46-04	1.01±0.04	1.46-04	1.47-04	0.99±0.04
22	2950	1.19-04	1.21-04	0.98±0.03	1.10-04	1.12-04	0.98±0.04	1.16-04	1.16-04	1.00±0.04
23	3500	9.41-05	9.53-05	0.99±0.03	8.60-05	8.60-05	1.00±0.04	8.10-05	8.22-05	0.99±0.03
24	4100	7.71-05	7.57-05	1.02±0.03	6.74-05	6.69-05	1.01±0.04	6.37-05	6.42-05	0.99±0.03
25	4800	6.20-05	6.01-05	1.03±0.04	5.28-05	5.20-05	1.02±0.04	5.94-05	5.98-05	0.99±0.03
26	5600	5.04-05	4.82-05	1.05±0.03	4.19-05	4.07-05	1.03±0.04	4.90-05	4.87-05	1.01±0.03
27	6500	4.11-05	3.91-05	1.05±0.03	3.34-05	3.23-05	1.03±0.04	3.95-05	4.01-05	0.99±0.03
28	7500	3.44-05	3.22-05	1.07±0.03	2.68-05	2.61-05	1.03±0.04	3.33-05	3.36-05	0.99±0.03
29	9000	2.75-05	2.55-05	1.08±0.04	2.07-05	2.02-05	1.03±0.04	2.71-05	2.71-05	1.00±0.03
30	11000	2.17-05	2.01-05	1.08±0.04	1.54-05	1.55-05	0.99±0.04	2.12-05	2.17-05	0.98±0.03
31	13500	1.74-05	1.59-05	1.09±0.04	1.17-05	1.21-05	0.97±0.04	1.73-05	1.74-05	0.99±0.03
32	16500	1.40-05	1.27-05	1.10±0.04	9.17-06	9.63-06	0.95±0.04	1.40-05	1.41-05	0.99±0.03
33	20000	1.14-05	1.03-05	1.11±0.04	7.39-06	7.79-06	0.95±0.04	1.14-05	1.14-05	1.00±0.03
34	24000	9.27-06	8.46-06	1.10±0.04	5.96-06	6.40-06	0.93±0.04	9.49-06	9.39-06	1.01±0.03

a: $T_{\text{cool}} = T_{\text{wait}} + 0.5 \times (T_{\text{read}} + T_{\text{count}})$, b: Calculation was carried out using the DCHAIN code and JNDC decay data file, c: Read as 4.00×10^{-4}



Comparison of the experimental results with three summation calculations using the DCHAIN code.

Fig. 6(a)~(c) β energy emission rate following an instantaneous pulse of fast-neutron fissions of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U

約1%である。⑥の核分裂数の誤差は測定上の誤差と使用した核データの誤差との和であり、2.5~4%の範囲である。一方、照射時間の誤差は0.1s、測定時間の誤差は1%と推定した。

上記の各誤差要因から生じる実験誤差はすべて独立と考え、各誤差の2乗和の平方根として全実験誤差を得た。この結果、全実験誤差は1標準偏差(1 σ)の値で5%以内であった。

IV. 総和計算値および他の実験値との比較

1. 総和計算との比較

崩壊熱の計算は総和計算コードDCHAIN⁽¹⁰⁾を使用し、現在国内でよく使用されているJNDC FP崩壊データライブラリー^{(11)~(12)}、TASAKA FP崩壊データライブラリー⁽¹³⁾およびENDF/B-IV FP崩壊データライブラリー⁽¹⁴⁾の3種の独立なライブラリーを用いて行なった。崩壊熱の計算において、生成されたFPの中性子反応の効果が無視できる条件の場合、核分裂を起こす中性子のエネルギースペクトルの効果は核分裂収率の中性子エネルギー依存性として取り扱われる。しかし、熱中子と核分裂中子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用いた総和計算値の間には大きな差はない⁽¹⁵⁾。一方、試料を照射した場の中性子エネルギースペクトルはFig. 1に示したように核分裂中子エネルギースペクトルより若干軟かい特性をもっている。したがって、 ^{235}U と ^{239}Pu についての計算では核分裂中子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用い、 ^{233}U については用いたFP崩壊データライブラリーには核分裂中子エネルギースペクトルに対する核分裂収率が内蔵されていないので、熱中子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用いた。

^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{233}U について、それぞれ3つの総和計算値は実験値とともにFig. 6(a)~(c)に図示してある。 ^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{233}U のいずれの場合も3つの計算値間で食い違いがあり、特に短い冷却時間において食い違いが大きい。また、JNDC FP崩壊データライブラリーを用

いた総和計算値が全冷却時間領域にわたって実験値を非常によく再現している。このことはTable 5(a)~(c)に載せてある実験値と JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値との比較において、²³⁵U において 7,500 s 以上の冷却時間範囲で総和計算値が若干過小評価する傾向があることを除けば、実験誤差の範囲で総和計算値と実験値とが一致していることからわかる。

2. 他の実験値との比較

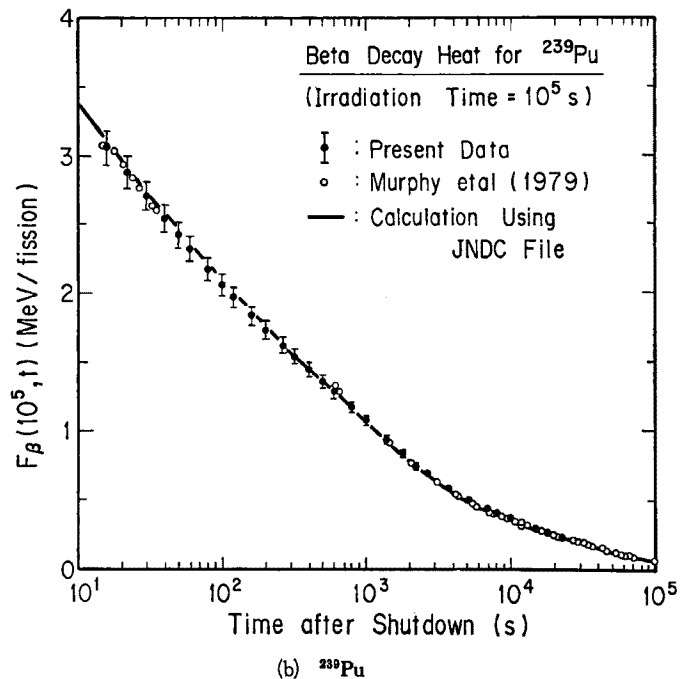
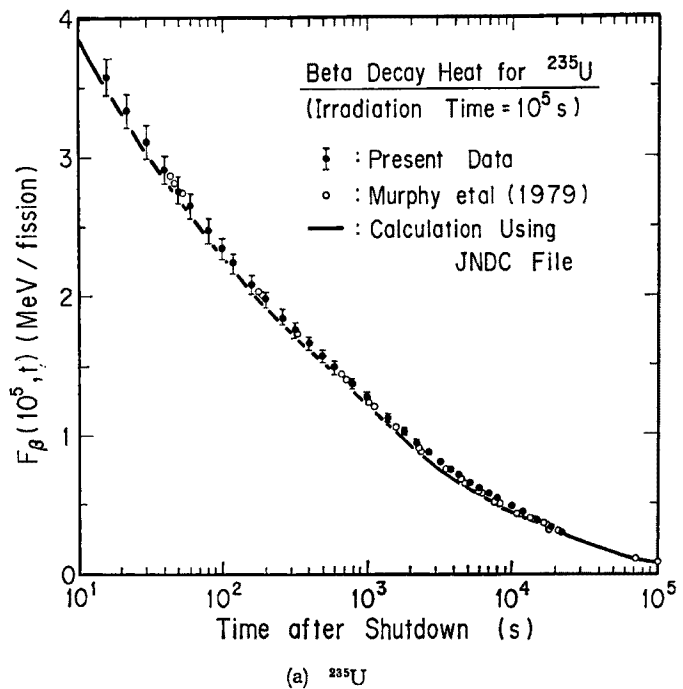
第 I 章で述べた Murphy らによる 10⁵ s 間一定核分裂反応率で照射した後、数 10 s ~ 10⁷ s の冷却時間において測定された β 線崩壊熱の実験値と今回の実験値とを比較するため、今回の実験値を 10⁵ s 照射した場合の有限時間照射崩壊熱の値に以下に述べる方法で変換した。一定核分裂反応率での照射で FP の中性子反応が無視できる場合、T_R 時間照射後 T_w から (T_w + T_c) までの時間内に FP から放出されるエネルギーと、T_c 時間照射後 T_w から (T_w + T_R) までの時間内に FP から放出されるエネルギーとは等しい。つまり

$$T_R \cdot E(T_R, T_w + \frac{1}{2}T_c) = T_c \cdot E(T_c, T_w + \frac{1}{2}T_R) \quad (12)$$

が成り立つ。したがって、(7)と(12)式の関係から、Table 4(a)~(c)に示したエネルギー放出量は測定時間の欄に示した時間 T_c を照射時間とし、待ち時間の欄に示した時間 T_w と照射時間の欄に示した時間 T_R を用いた (T_w + 1/2 T_R) を冷却時間とする有限時間照射崩壊熱とみなすことができる。一方、照射時間 (t₃ - t₁)、冷却時間 t₁ の有限時間照射崩壊熱 F(t₃ - t₁, t₁) は瞬時照射崩壊熱 f(t) を用いて次のように表わされる。

$$F(t_3 - t_1, t_1) = \int_{t_1}^{t_3} f(t) dt \quad (13)$$

ここで、t₁ < t₂ < t₃ の関係にある時刻 t₂ を用いて



Comparison of the present results with other experimental results and the summation calculation using JNDC FP decay data library.

Fig. 7(a), (b) β energy emission rate for 10⁵ s irradiation of ²³⁵U and ²³⁹Pu at constant fission rate without neutron capture in fission products

$$F(t_3 - t_1, t_1) = F(t_2 - t_1, t_1) + F(t_3 - t_2, t_2) \\ = \int_{t_1}^{t_2} f(t) dt + \int_{t_2}^{t_3} f(t) dt \quad (14)$$

となる。したがって、照射時間 $t_3 - t_1 = 10^5$ s とし、 $t_1 = 22,000$ s、 $t_2 = 26,000$ s とすると、(14)式の値は

$$F(10^5, 22,000) = \int_{22,000}^{85,000} f(t) dt + \int_{26,000}^{122,000} f(t) dt \quad (14')$$

となる。(14')式の右辺第1項は Table 4 (a)~(c) に示したエネルギー放出量の最下段の値に相当する。第2項は今回の実験値からは得られない値であり、JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算から求めた。 $F(10^5, 18,000)$ の値は $t_1 = 18,000$ s、 $t_2 = 22,000$ s として、Table 4 (a)~(c) の下より2段目の値と $F(10^5, 22,000)$ の値との和として与えられる。この手順を繰り返すことにより、今回の実験値を 10^5 s 照射に対する冷却時間 11~26,000 s の範囲での有限時間照射崩壊熱に変換した。

^{235}U と ^{239}Pu について、今回の実験値を 10^5 s 照射の有限時間照射崩壊熱に変換した値と、Murphy らの実験値および JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値とを比較した図を Fig. 7 (a), (b) に示す。Murphy らの実験値の誤差は約 5% である。 ^{235}U 、 ^{239}Pu ともに2つの実験値は非常によく一致している。一方、総和計算値との比較では、 ^{235}U の場合は総和計算値が若干過小評価する傾向にあるが実験誤差の範囲で一致しており、 ^{239}Pu の場合は総和計算値は実験値とよく一致している。

V. 結 論

^{235}U 、 ^{239}Pu 、 ^{238}U の高速中性子核分裂による FP からの β 線崩壊熱を冷却時間 19~24,000 s の範囲における瞬時照射崩壊熱の形で得た。それらの実験誤差 (1σ) は 5% 以内であった。JNDC, TASAKA, ENDF/B-IV の3種の FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値と比較検討の結果、JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値が、 ^{235}U の場合 7,500 s 以上の冷却時間範囲における若干過小評価の傾向にあることを除けば、非常によく今回の実験値を再現することがわかった。また、今回の実験値は照射時間の異なる他の実験値とも非常によく一致することが確認された。

今回の実験値は高速中性子核分裂による FP からの β 線崩壊熱を瞬時照射条件に近い照射時間で照射した後、広い冷却時間範囲にわたって測定した唯一の実験値であり、先に報告した γ 線崩壊熱の実験値と合わせて、高速増殖炉の安全性評価上必要とされる精度を充

分に満たした崩壊熱の実験値を得ることができた。

本研究の一部は動力炉・核燃料開発事業団からの受託研究として行われた。大谷暢夫氏初めご関係の方々には感謝いたします。東京大学原子核研究所の川上宏金、藤田雄三、中村尚司、小佐古敏荘の各氏には空芯 β 線スペクトロメータを用いた実験におけるご協力を、日本原子力研究所の田坂完二、井原 均の両氏には総和計算コードの使用におけるご協力を、東京大学工学部原子力工学研究施設の岡 芳明、中沢正治、橋倉宏行、此村 守、柳沢一郎(現、三菱原子力工業(株))の各氏および同研究施設原子炉本部の方々には貴重なご助言、ご協力を頂きました。ここに感謝の意を表します。

—参考文献—

- (1) FISHER, P.C., ENGLE, L.B.: *Phys. Rev.*, **134**, B796 (1964).
- (2) BUNNEY, L.R., SAM, D.: *Nucl. Sci. Eng.*, **29**, 432 (1967).
- (3) MURPHY, M.F., et al.: Experiments to determine the rate of beta energy release following fission of ^{239}Pu and ^{235}U in fast reactor, AEEW-R1212, (1979).
- (4) JOHNSTON, K.: *J. Nucl. Energy*, **19**, 527 (1965).
- (5) COSTA, L., et al.: *ibid.*, **26**, 431 (1972).
- (6) DEVILLERS, C.: *Proc. Second Advisory Group Meeting on Fission Product Nuclear Data, Petten, 1977, IAEA-213*.
- (7) 秋山雅胤, 他: ^{235}U 、 ^{239}Pu および ^{238}U の高速中性子核分裂による核分裂生成物からの γ 線崩壊熱の測定, 原子力誌, **24**(9), 709 (1982).
- (8) AN, S., et al.: *Proc. Int. Symp. Physics of Fast Reactors, Tokyo, 1973*.
- (9) AN, S., OKA, Y., SAITO, I.: Present status and future program of YAYOI as a fast pulse reactor, UTNL-R 0061, (1978).
- (10) 中沢正治, 関口 晃: 「弥生」線量測定データ集 (1), UTNL-R 0037, (1976).
- (11) OKRENT, D.: *Power Reactor Technol.*, **7**, 107 (1964).
- (12) 久武和夫: 原子核研究, **13**, 21 (1968).
- (13) 藤岡 学, 久武和夫: *INS TL-89*, (1966).
- (14) 秋山雅胤, 他: 崩壊熱曲線評価実験 (IV), UTNL-R 0083, (1980).
- (15) RIDER, B.F., MEEK, M.E.: Compilation of fission product yields, NEDO-12154-2 (D), (1977).
- (16) LEDERER, C.M., et al.: "Table of Isotopes", (7th ed.), (1978), John Wiley & Sons.
- (17) KENDRICK, H., et al.: An introduction to the principles and use of the FERDOR unfolding code, GA-9882, (1970).
- (18) 田坂完二: DCHAIN, 放射性並びに安定核種の生成崩壊解析コード, JAERI 1250, (1977).
- (19) YAMAMOTO, T., et al.: JNDC FP decay data file, JAERI-M 9357, (1981).
- (20) YOSHIDA, T., NAKASIMA, R.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **18**(6), 393 (1981).
- (21) IHARA, H., et al.: JNDC FP decay and yield data, JAERI-M 9715, (1981).
- (22) TASAKA, K.: Nuclear data library of fission products for decay power calculation, NUREG/CR-0705, TREE-1325, (1979).
- (23) ENGLAND, T.R., SCHENTER, R.E.: ENDF/B-IV fission-product files; Summary of major nuclide data, LA-6116-MS, (1975).