

745. ^{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 γ 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 1月7日 受理)

(1982年 5月17日 再受理)

Measurements of Gamma-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

Gamma 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 and 100 s in the fast neutron source reactor "YAYOI" of the University of Tokyo. Spectral data for γ -ray were obtained at post-irradiation time intervals ranging 11~25,950 s using a NaI(Tl) scintillation detector. The data were processed to the form of γ -ray 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 γ -ray energy release rates. The uncertainties (1σ) of the decay heat data were about 5% for ^{235}U and ^{239}Pu , and about 7% for ^{233}U .

The data obtained from the present experiments are compared with three summation calculations using JNDC, TASAKA and ENDF/B-IV decay data libraries, and with other experimental results. The summation calculation results using the JNDC FP decay data library are in better agreement with the present data than the other calculations.

KEYWORDS: decay heat, gamma decay, uranium 235, uranium 233, plutonium 239, energy spectra, fission products, fast fission, energy-release rate, gamma radiation, comparative evaluations, accuracy, summation calculation, JNDC decay data library, TASAKA decay data library, ENDF/B-IV decay data library

1. 緒 言

核分裂生成物(FP)の崩壊に伴い放出されるエネルギー(崩壊熱)による出力は原子炉停止直後において定格出力の6~7%もあり、徐々に減衰しながらも長期間にわたって維持される。この現象は原子炉の通常停止時あるいは事故時の残留熱除去、使用済み燃料の輸送、貯蔵および再処理における除熱と放射線遮蔽の問題等、原子力利用全般に対して極めて重大な影響を及ぼしている。したがって、崩壊熱の予測精度の向上は原子炉の安全性、信頼性および経済性に極めて密接に

関連している。この観点から、Devillers⁽¹⁾は各核分裂性核種の熱中性子核分裂および高速中性子核分裂により生じるFPからの崩壊熱に対する要求精度を原子炉停止後の冷却時間範囲ごとにと与えている(Table 1)。

高速中性子核分裂によるFPからの崩壊熱の測定実験は、これまでカロリメータ法を用いた Johnston

* 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.)

Table 1 Accuracy required for residual heat emitted by fission products†

Fission	Cooling time							
	1s	10s	100s 1.7m	10 ⁴ s 2.8h	10 ⁵ s 28h	10 ⁶ s 12d	10 ⁷ s 116d	10 ⁸ s 3.2y
Thermal 235U } 239Pu } 233U }	25 (12)	20 (1)	10 (5)			≤ 5		
			10 (5)			≤ 5		
Fast 235U } 239Pu }	integrated (0-24h)		10			≤ 5		

† The accuracy is given in %, with the long term requirements given in parentheses⁽¹⁾.

の実験⁽²⁾と Costa らの実験⁽³⁾, γ 線崩壊熱を測定した Fisher & Engle の実験⁽⁴⁾と Bunney & Sam の実験⁽⁵⁾, および β 線崩壊熱を測定した Murphy らの実験⁽⁶⁾がある。カロリメータ法を用いた2つの実験は、長期間照射された ²³⁹Pu 試料 (Johnston の実験)あるいは ²³⁵U-²³⁹Pu 混合試料 (Costa らの実験)の崩壊熱を Calvet 型マイクロカロリメータを用いて、照射後 40~150 d (Johnston の実験)および 21~86 d (Costa らの実験)の冷却時間範囲において測定したものである。

Murphy らの実験は、ゼロ出力高速炉 Zebra を用いて 10⁵ s 照射した ²³⁵U および ²³⁹Pu 試料からの β 線崩壊熱を、冷却時間 44 s (²³⁵U について)あるいは 14 s (²³⁹Pu について)から 3×10⁷ s の範囲で実験誤差 5% で測定し、その結果は総和計算値と比較的によく一致していた。

Fisher & Engle の実験は、高速パルス炉 Godiva II を用いてパルスの照射された ²³²Th, ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu および ²³⁹Pu 試料からの γ 線崩壊熱を、冷却時間 0.2~45 s の範囲で実験誤差 12% (ただし ²³⁹Pu は 23%) で測定した。

Bunney & Sam の実験は、電子線型加速器による (γ, n) 反応中性子源を用いて ²³⁵U と ²³⁹Pu 試料を照射し、冷却時間 15 min~78 h 間の 9 点で γ 線エネルギースペクトルを測定した。これらのスペクトルを積分することにより γ 線崩壊熱が実験誤差 15~20% で求められた。

これら 2 種類の γ 線崩壊熱の実験値と最近の総和計算値とを比較すると、Fisher & Engle の実験値は計算値より 20~90% 大きく、Bunney & Sam の実験値は計算値より 20~60% 大きい値であった。このように高速中性子核分裂による FP の γ 線崩壊熱のこれまでの実験値の現状は、実験誤差が大きくしかも総和計算値と

の一致もよくない状態にある。

したがって、高速中性子核分裂による FP の γ 線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、Devillers により与えられた要求精度内で実験的に求めること、および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本実験を行なった。実験は東京大学高速中性子源炉「弥生」を用いて照射した ²³⁵U, ²³⁹Pu および ²³⁸U 試料からの γ 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 γ 線崩壊熱を求める放射線計測法により行なった。得られた結果と、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他の実験値との比較検討が行われた。

II. 実験

²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U の高速中性子核分裂による FP からの γ 線崩壊熱を、放射線計測法を用いて測定した。試料の照射は「弥生」を用いて行い、照射後の試料から放出される γ 線を NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて測定した。 γ 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、エネルギーについて積分することにより求められた。核分裂数の測定は Ge 検出器を用いて行なった。実験の詳細について以下に述べる。

1. 試料および照射

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 の大きさで、²³⁵U, ²³⁹Pu あるいは ²³⁸U 金属を約 1.6 mg 均一に電着し、電着面上に厚さ 10 μ g/mm² 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(外径20 mm, 内径14 mm, 厚さ2 mm)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10 μm 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30 μm のポリエチレン袋に入れて密封したものをポリエチレン製カプセルに装着して使用した。

試料の照射は, 「弥生」B運転位置 グレージング孔⁽⁷⁾⁽⁸⁾中心に照射位置をもつ気送管照射装置を用いて行なった。照射位置における中性子エネルギースペクトルの測定値⁽⁹⁾および比較のため, ^{235}U の核分裂中性子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⁽¹⁰⁾とをFig. 1に示す。

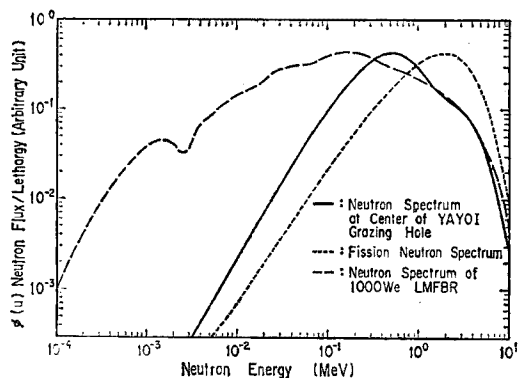


Fig. 1 Neutron energy spectrum at center of grazing hole of "YAYOI" where samples were irradiated

試料を装着したカプセルは, 原子炉が一定出力運転状態のとき約20 m/sの速度で照射位置まで搬送され, 照射終了時に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0.1 sである。

2. γ 線検出器

γ 線エネルギースペクトルの測定は, 直径76.2 mm, 厚さ76.2 mmのNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて行なった。光電子増倍管はRCA-8054を用いた。検出器前面には試料から放出される β 線が検出器に入射するのを防ぐため, 30 mm厚のポリエチレン板が付けられている。環境のバックグラウンド計数を低減す

るため, 検出器は内寸法 $0.55 \times 0.55 \times 0.50 \text{ m}^3$ で厚さ50 mmの鉛製遮蔽箱内に設置されている。検出器前面から試料までの距離は100 mmである。この条件下での検出器の応答関数は16種の単色 γ 線源(γ 線エネルギー $E_\gamma = 0.088 \sim 4.43 \text{ MeV}$)を用いて測定された。この測定結果を使用して, Heathらにより提唱された内外挿法⁽¹¹⁾⁽¹²⁾を用いて γ 線エネルギー $0.06 \sim 5.0 \text{ MeV}$ の間でエネルギー105群, パルス波高340群の応答関数を作成した。この応答関数のエネルギー群構造をTable 2に, また応答関数の1例をFig. 2に示す。

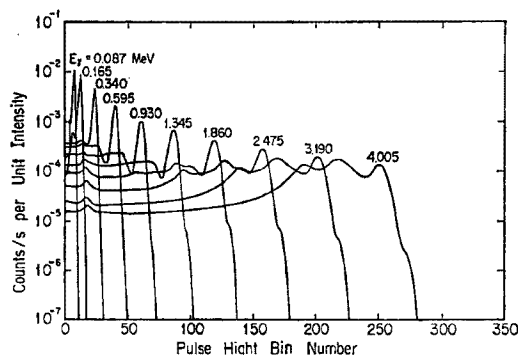


Fig. 2 Examples of responses of NaI(Tl) detector to monoenergetic γ -rays

検出器からの出力信号は主増幅器で増幅, 波形処理された後, 1024チャンネルパルス波高分析器で解析される。この測定系のゲイン調整は ^{137}Cs 標準線源の0.662 MeV γ 線を用いて行われ, 1チャンネル当り5 keVで5 MeVまでの γ 線が測定できるように設定された。

3. 冷却時間依存 γ 線エネルギースペクトルの測定

^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U のそれぞれについて, 10 s照射2回と100 s照射1回の計3回の照射(^{235}U の場合は100 s照射2回で計4回)を行うことにより, 照射後11~25,950 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17~4,395 sの間で1回目の測定の際には待ち時間になっていたところを12回測定した。 ^{235}U の場合は100 s照射を2回行い, 照射後70~21,950 sの間と110~25,950 sの間とで各13回測定を行なった。 ^{239}Pu と ^{233}U については, 100 s照射は1回のみで, 照射後950 s(^{239}Pu の場合), 750 s(^{233}U の場合)から25,950 sの間でそれぞれ17回と18回の測定を行なった。 ^{239}Pu と ^{233}U の100 s照射に対する測定の際には, 各測定の間2 sのデータ転送のための時間が設定さ

Table 2 Energy group structure of response matrix of NaI(Tl) scintillation 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	0.063	0.006	36	0.625	0.03	71	2.220	0.06
2	0.069	0.006	37	0.655	0.03	72	2.280	0.06
3	0.075	0.006	38	0.685	0.03	73	2.340	0.06
4	0.081	0.006	39	0.715	0.03	74	2.405	0.07
5	0.087	0.006	40	0.745	0.03	75	2.475	0.07
6	0.093	0.006	41	0.775	0.03	76	2.545	0.07
7	0.099	0.006	42	0.810	0.04	77	2.615	0.07
8	0.105	0.006	43	0.850	0.04	78	2.685	0.07
9	0.111	0.006	44	0.890	0.04	79	2.755	0.07
10	0.117	0.006	45	0.930	0.04	80	2.825	0.07
11	0.125	0.01	46	0.970	0.04	81	2.895	0.07
12	0.135	0.01	47	1.010	0.04	82	2.965	0.07
13	0.145	0.01	48	1.050	0.04	83	3.035	0.07
14	0.155	0.01	49	1.090	0.04	84	3.110	0.08
15	0.165	0.01	50	1.130	0.04	85	3.190	0.08
16	0.175	0.01	51	1.170	0.04	86	3.270	0.08
17	0.185	0.01	52	1.210	0.04	87	3.350	0.08
18	0.200	0.02	53	1.250	0.04	88	3.430	0.08
19	0.220	0.02	54	1.295	0.05	89	3.510	0.08
20	0.240	0.02	55	1.345	0.05	90	3.590	0.08
21	0.260	0.02	56	1.395	0.05	91	3.670	0.08
22	0.280	0.02	57	1.445	0.05	92	3.750	0.08
23	0.300	0.02	58	1.495	0.05	93	3.830	0.08
24	0.320	0.02	59	1.545	0.05	94	3.915	0.09
25	0.340	0.02	60	1.595	0.05	95	4.005	0.09
26	0.360	0.02	61	1.645	0.05	96	4.095	0.09
27	0.380	0.02	62	1.695	0.05	97	4.185	0.09
28	0.400	0.02	63	1.745	0.05	98	4.275	0.09
29	0.420	0.02	64	1.800	0.06	99	4.365	0.09
30	0.445	0.03	65	1.860	0.06	100	4.455	0.09
31	0.475	0.03	66	1.920	0.06	101	4.550	0.10
32	0.505	0.03	67	1.980	0.06	102	4.650	0.10
33	0.535	0.03	68	2.040	0.06	103	4.750	0.10
34	0.565	0.03	69	2.100	0.06	104	4.850	0.10
35	0.595	0.03	70	2.160	0.06	105	4.950	0.10

れている。このような照射・測定方式により照射後11～25,950 s の間で連続的な時間依存 γ 線エネルギースペクトルが測定された。

試料の照射に先立ち、試料の固有の放射能からの γ 線エネルギースペクトルがあらかじめ測定された。さらに、試料が装着されたポリエチレン製カプセル、試料のTi箔や接着材等の中性子照射に伴う誘導放射能からの時間依存の γ 線エネルギースペクトルを測定するため、核分裂性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製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、測定が行われた。

これらの測定結果を用いて、照射時間 T_R 、待ち時間 T_W 、測定時間 T_C の各組(T_R, T_W, T_C)において、照射試料中のFPからの γ 線による単位時間当りの真のパルス波高分布 $C_{T_W, T_C}^{T_R}(I)$ は、次式のようになる。

$$C_{T_W, T_C}^{T_R}(I) = (Y_{T_W, T_C}^{T_R}(I)/T_{SC} - B(I)/T_{BC}) - (D_{T_W, T_C}^{T_R}(I)/T_{DC} - B(I)/T_{BC}) - (P(I)/T_{PC} - B(I)/T_{BC}) \quad (1)$$

ここで、

$Y_{T_W, T_C}^{T_R}(I)$: (T_R, T_W, T_C)における照射試料からの γ 線によるパルス波高分布

$D_{T_W, T_C}^{T_R}(I)$: (T_R, T_W, T_C)における照射模擬試料からの γ 線によるパルス波高分布

$P(I)$: 照射前の試料の固有の放射能からの γ 線によるパルス波高分布

$B(I)$: 環境のバックグラウンド γ 線によるパルス波高分布

$T_{SC}, T_{DC}, T_{PC}, T_{BC}$: それぞれのパルス波高分布 $Y_{T_W, T_C}^{T_R}, D_{T_W, T_C}^{T_R}, P$ および B を

測定したときの測定系の不感時間
を差し引いた真の測定時間

4. 核分裂数の決定

照射中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特定の FP 核種から放出される γ 線の強度を Ge 検出器を用いて測定することにより求められた。使用した FP 核種は ^{97}Zr の娘核である ^{97}Nb と ^{97m}Nb の 2 核種である。質量数 97 の崩壊系列において、 ^{97}Zr より原子番号の小さい核種の半減期は ^{97}Zr の半減期 ($T_{1/2}=16.9\text{ h}$) に比べて極端に短いので無視し、 ^{97}Nb と ^{97m}Nb の独立収率は $3.4 \times 10^{-3}\%$ と小さいので無視することにより、 $^{97}\text{Zr} \rightarrow ^{97}\text{Nb} (^{97m}\text{Nb}) \rightarrow ^{97}\text{Mo}$ と崩壊系列を単純化することができる。核分裂反応率は照射時間中一定と仮定できるので、 ^{97}Zr を A, ^{97}Nb あるいは ^{97m}Nb を B と表わすと、生成・崩壊の式は次のように与えられる。

$$\frac{dN_A}{dt} = \alpha_A f - \lambda_A N_A \quad (2)$$

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \quad (3)$$

ここで、 N_A, N_B : 核種 A および B の原子数
 λ_A, λ_B : 核種 A および B の崩壊定数
 α_A : 核種 A の累積核分裂収率
 f : 核分裂反応率

T_B 時間照射し T_W 時間冷却した後、測定時間 T_C 内に崩壊する核種 A および B の原子数 P_A, P_B は、

$$P_A = \frac{\alpha_A f}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A T_B}) (1 - e^{-\lambda_A T_C}) e^{-\lambda_A T_W} \quad (4)$$

$$P_B = \frac{\alpha_A f \lambda_B}{\lambda_A (\lambda_B - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A T_B}) (1 - e^{-\lambda_A T_C}) e^{-\lambda_A T_W} - \frac{\alpha_A f \lambda_A}{\lambda_B (\lambda_B - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_B T_B}) (1 - e^{-\lambda_B T_C}) e^{-\lambda_B T_W} \quad (5)$$

となる。一方、核種 B の崩壊に伴い放出される γ 線が Ge 検出器で測定されたときのピーク面積 C_B は、 γ 線放出率 (分岐比 \times 内部転換補正係数) b_B および検出器のピーク効率 ε_B を用いて

$$C_B = \varepsilon_B b_B P_B \quad (6)$$

と表わされる。(5), (6) 式を用いて核分裂反応率 n_f は、

$$n_f = C_B (\lambda_B - \lambda_A) / \left[\varepsilon_B b_B \alpha_B \left\{ \frac{\lambda_B}{\lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A T_B}) \cdot (1 - e^{-\lambda_A T_C}) e^{-\lambda_A T_W} - \frac{\lambda_A}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B T_B}) \right. \right.$$

$$\left. \cdot (1 - e^{-\lambda_B T_C}) e^{-\lambda_B T_W} \right\} \quad (7)$$

と求められる。したがって、全核分裂数は $N_f = n_f T_R$ として求められる。ここで、累積核分裂収率は Rider & Meek の評価値⁽¹³⁾を、崩壊定数と γ 線放出率は *Table of Isotopes* (第 7 版)⁽¹⁴⁾ の値を使用した。用いたこれらの値を *Table 3* (a), (b) に示す。また、このようにして得られた核分裂数を *Table 4* (a)~(c) に示す。

Table 3 Parameters used in determination of number of fissions

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

III. 測定結果およびデータ解析

$^{235}\text{U}, ^{239}\text{Pu}, ^{233}\text{U}$ 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 の各組 (T_R, T_W, T_C) ごとに、(1) 式により単位測定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空間に変換して単位核分裂率当りに直した後、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。この有限時間照射崩壊熱を瞬時照射崩壊熱に変換した後、総和計算値および他の実験値と比較した。

1. γ 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。

$$C(I) = \int R(I, E) \phi(E) dE \quad (8)$$

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。(8) 式を解いてエネルギースペクトル $\phi(E)$ を求める操作は unfolding と呼ばれる。(1) 式で得られたパルス波高分布は 1024 チャンネルであるので、まずパルス波高分布を応答関数に合わせるため、3 チャンネルずつ加えて 340 チャンネルのパルス波高分布に直した後、FERDOR コード⁽¹⁵⁾を用いて unfolding を行なった。この結果、最大エネルギー 5 MeV で 105 群に分割された γ 線エネルギースペクトルが得られた。

Table 4 Determination of number of fissions

(a) ²³⁵ U				
Sample No.	U5-16	U5-1	U5-13	U5-19
Irradiation time (s)	10	10	100	100
^{97m} Nb	1.715 ±0.050†	1.956 ±0.072†	1.395 ±0.033††	1.392 ±0.033††
⁹⁷ Nb	1.719 ±0.058	1.884 ±0.081	1.389 ±0.035	1.381 ±0.035
Average number of fissions	1.717 ±0.045	1.920 ±0.077	1.392 ±0.034	1.387 ±0.034
(b) ²³⁹ Pu				
Sample No.	PU-4	PU-7	PU-9	
Irradiation time (s)	10	10	100	
^{97m} Nb	1.847±0.061†	2.528±0.083†	1.664±0.045††	
⁹⁷ Nb	1.873±0.069	2.533±0.096	1.692±0.050	
Average number of fissions	1.860±0.065	2.531±0.090	1.678±0.048	
(c) ²³⁸ U				
Sample No.	U3-9	U3-18	U3-8	
Irradiation time (s)	10	10	100	
^{97m} Nb	2.488±0.136†	3.698±0.200†	2.826±0.130††	
⁹⁷ Nb	2.466±0.155	3.581±0.224	2.737±0.147	
Average number of fissions	2.477±0.146	3.639±0.213	2.781±0.136	

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

2. 崩壊熱の導出

(1) 崩壊熱の定義

崩壊熱には有限時間照射崩壊熱、瞬時照射崩壊熱および無限時間照射崩壊熱の3つの考え方があり、それぞれの定義と関係は以下の通りである。

有限時間照射崩壊熱 $F(T_R, t)$ は、1 fission/s の割合で T_R 時間照射した後の冷却時間 t におけるエネルギー放出率として定義される。瞬時照射崩壊熱 $f(t)$ は、1 核分裂が発生した後の t の関数としてのエネルギー放出率である。無限時間照射崩壊熱 $F(\infty, t)$ は、1 fission/s の割合で無限時間照射した後の t の関数としてのエネルギー放出率である。この3種の崩壊熱の間の関係は次のように与えられる。

$$F(T_R, t) = \int_0^{T_R} f(t+\tau) d\tau \\ = \int_0^{\infty} f(t+\tau) d\tau - \int_{T_R}^{\infty} f(t+\tau) d\tau$$

$$= F(\infty, t) - F(\infty, t+T_R) \quad (9)$$

$$F(\infty, t) = F(T_R, t) + F(\infty, t+T_R) \quad (10)$$

(2) 有限時間照射崩壊熱

照射後試料から放出される γ 線の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-3節で述べた照射・測定方式においては測定時間 T_C は待ち時間 T_W に比べて十分短いので、測定時間 T_C 内での γ 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。この仮定の妥当性は、総和計算コード DCHAIN⁽¹⁶⁾ と結合して使用される γ 線エネルギースペクトル計算用コード FPGAM⁽¹⁷⁾ を用いて計算された γ 線エネルギースペクトルの測定時間 T_C 内での時間変化の結果からもわかる。したがって、前節で得られた各組 (T_R , T_W , T_C) に対する γ 線エネルギースペクトルは、測定時間 T_C の中間点での単位時間当りのスペクトルとみなすことができ、(photons/MeV·s) の次元をもつ。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次式で与えられる。

$$F(T_R, T_W + \frac{1}{2}T_C) = \frac{1}{n_f} \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} E \phi(E) dE \\ = \frac{1}{n_f} \sum_{j=1}^{j_{\max}} E_j \phi(E_j) \Delta E_j \quad (11)$$

ここで、 n_f : 照射時間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、エネルギー幅

$\phi(E_j)$: j 群の γ 線束

$E_{\max}=5 \text{ MeV}, I_{\max}=105$

実際の測定においては、用いたパルス波高分析器の内部バイアスレベルのため100 keV以下の γ 線は計測されないで、エネルギー下限としては $E_{\min}=102 \text{ keV}$ ($I_{\min}=8$) を採用している。(11)式で得られた有限時間照射崩壊熱を次のような使用しやすい形に変換した。

$$E(T_R, T_W + \frac{1}{2}T_C) \\ = T_C F(T_R, T_W + \frac{1}{2}T_C) / T_R \quad (12)$$

これは $(1/T_R)$ fission/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である。²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U についての(12)式の形の測定結果をそれぞれ Table 5(a)~(c)に示す。表には γ 線放出量と γ 線平均エネルギーも合わせて載せてある。ここで、 γ 線放出量は次式で与えられる。

Table 5(a)~(c) γ -ray energy release and yields from fission products created by fast-neutron fission of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U

Table 5 (a) ^{235}U

Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling ^a Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (photons/fission)	Average Photon Energy (MeV/photon)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(1.717 \pm 0.054) \times 10^7$ fissions					
11	6	19	0.213 \pm 0.010	0.215 \pm 0.009	0.990 \pm 0.038
25	10	35	0.195 \pm 0.009	0.196 \pm 0.008	0.994 \pm 0.038
45	10	55	0.126 \pm 0.007	0.123 \pm 0.005	1.025 \pm 0.048
75	20	90	0.150 \pm 0.007	0.146 \pm 0.006	1.026 \pm 0.042
115	40	140	0.180 \pm 0.008	0.177 \pm 0.007	1.021 \pm 0.038
195	60	230	0.146 \pm 0.007	0.147 \pm 0.006	0.996 \pm 0.040
315	80	360	0.116 \pm 0.006	0.123 \pm 0.005	0.947 \pm 0.040
495	100	550	0.0916 \pm 0.0045	0.102 \pm 0.004	0.901 \pm 0.039
795	200	900	0.115 \pm 0.005	0.132 \pm 0.005	0.870 \pm 0.032
1395	400	1600	0.132 \pm 0.005	0.154 \pm 0.006	0.858 \pm 0.026
2195	500	2450	0.103 \pm 0.005	0.122 \pm 0.005	0.847 \pm 0.034
3195	600	3500	0.0807 \pm 0.0038	0.0952 \pm 0.0038	0.848 \pm 0.035
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(1.920 \pm 0.077) \times 10^7$ fissions					
17	8	26	0.208 \pm 0.011	0.208 \pm 0.010	0.998 \pm 0.036
35	10	45	0.153 \pm 0.008	0.150 \pm 0.007	1.019 \pm 0.040
55	20	70	0.198 \pm 0.010	0.190 \pm 0.009	1.037 \pm 0.036
95	20	110	0.118 \pm 0.007	0.115 \pm 0.005	1.023 \pm 0.052
155	40	180	0.128 \pm 0.007	0.127 \pm 0.006	1.007 \pm 0.040
255	60	290	0.109 \pm 0.006	0.112 \pm 0.005	0.971 \pm 0.039
395	100	450	0.112 \pm 0.006	0.121 \pm 0.006	0.931 \pm 0.035
595	200	700	0.145 \pm 0.007	0.163 \pm 0.007	0.891 \pm 0.027
995	400	1200	0.170 \pm 0.008	0.198 \pm 0.009	0.856 \pm 0.022
1795	400	2000	0.102 \pm 0.005	0.119 \pm 0.006	0.856 \pm 0.030
2695	500	2950	0.0813 \pm 0.0046	0.0956 \pm 0.0045	0.850 \pm 0.038
3795	600	4100	0.0650 \pm 0.0039	0.0757 \pm 0.0036	0.859 \pm 0.043
(3) Irradiation Time = 100s, Number of Fissions = $(1.392 \pm 0.034) \times 10^8$ fissions					
70	40	140	0.195 \pm 0.006	0.184 \pm 0.005	1.056 \pm 0.016
150	60	230	0.151 \pm 0.004	0.150 \pm 0.004	1.009 \pm 0.016
270	80	360	0.116 \pm 0.003	0.122 \pm 0.004	0.950 \pm 0.016
450	100	550	0.0924 \pm 0.0027	0.102 \pm 0.003	0.908 \pm 0.015
750	200	900	0.114 \pm 0.003	0.131 \pm 0.004	0.869 \pm 0.013
1350	400	1600	0.129 \pm 0.004	0.152 \pm 0.004	0.846 \pm 0.012
2150	500	2450	0.103 \pm 0.003	0.122 \pm 0.004	0.845 \pm 0.012
3150	600	3500	0.0822 \pm 0.0023	0.0961 \pm 0.0028	0.855 \pm 0.014
4350	800	4800	0.0746 \pm 0.0021	0.0860 \pm 0.0025	0.868 \pm 0.014
5950	1000	6500	0.0627 \pm 0.0018	0.0711 \pm 0.0021	0.881 \pm 0.015
7950	2000	9000	0.0808 \pm 0.0023	0.0900 \pm 0.0026	0.898 \pm 0.014
11950	3000	13500	0.0659 \pm 0.0019	0.0729 \pm 0.0021	0.904 \pm 0.016
17950	4000	20000	0.0461 \pm 0.0014	0.0525 \pm 0.0016	0.877 \pm 0.018
(4) Irradiation Time = 100s, Number of Fissions = $(1.387 \pm 0.034) \times 10^8$ fissions					
110	40	180	0.136 \pm 0.004	0.132 \pm 0.004	1.037 \pm 0.017
210	60	290	0.111 \pm 0.003	0.113 \pm 0.003	0.981 \pm 0.017
350	100	450	0.112 \pm 0.003	0.121 \pm 0.004	0.927 \pm 0.015
550	200	700	0.144 \pm 0.004	0.162 \pm 0.005	0.890 \pm 0.012
950	400	1200	0.171 \pm 0.005	0.199 \pm 0.006	0.859 \pm 0.011
1750	400	2000	0.101 \pm 0.003	0.119 \pm 0.004	0.848 \pm 0.012
2650	500	2950	0.0828 \pm 0.0023	0.0967 \pm 0.0028	0.857 \pm 0.014
3750	600	4100	0.0672 \pm 0.0019	0.0777 \pm 0.0023	0.866 \pm 0.015
5150	800	5600	0.0602 \pm 0.0017	0.0687 \pm 0.0020	0.875 \pm 0.015
6950	1000	7500	0.0515 \pm 0.0015	0.0575 \pm 0.0017	0.897 \pm 0.016
9950	2000	11000	0.0599 \pm 0.0017	0.0663 \pm 0.0020	0.903 \pm 0.016
14950	3000	16500	0.0475 \pm 0.0015	0.0530 \pm 0.0016	0.895 \pm 0.019
21950	4000	24000	0.0352 \pm 0.0011	0.0413 \pm 0.0013	0.852 \pm 0.020

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

Table 5 (b) ^{239}Pu

Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling ^a Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (photons/fission)	Average Photon Energy (MeV/photon)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(1.860 \pm 0.065) \times 10^7$ fissions					
11	6	19	0.163 ± 0.008	0.177 ± 0.008	0.923 ± 0.036
25	10	35	0.148 ± 0.008	0.156 ± 0.007	0.949 ± 0.048
45	10	55	0.0984 ± 0.0055	0.101 ± 0.005	0.970 ± 0.048
75	20	90	0.118 ± 0.006	0.124 ± 0.005	0.953 ± 0.039
115	40	140	0.143 ± 0.007	0.152 ± 0.006	0.936 ± 0.034
195	60	230	0.117 ± 0.006	0.133 ± 0.006	0.881 ± 0.040
315	80	360	0.101 ± 0.005	0.116 ± 0.005	0.874 ± 0.034
495	100	550	0.0878 ± 0.0042	0.101 ± 0.004	0.868 ± 0.033
795	200	900	0.114 ± 0.005	0.134 ± 0.006	0.850 ± 0.029
1395	400	1600	0.135 ± 0.006	0.161 ± 0.007	0.838 ± 0.024
2195	500	2450	0.109 ± 0.006	0.128 ± 0.005	0.851 ± 0.035
3195	600	3500	0.0840 ± 0.0041	0.0988 ± 0.0042	0.850 ± 0.033
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fissions = $(2.531 \pm 0.090) \times 10^7$ fissions					
17	8	26	0.156 ± 0.007	0.166 ± 0.007	0.940 ± 0.032
35	10	45	0.118 ± 0.006	0.121 ± 0.005	0.971 ± 0.038
55	20	70	0.152 ± 0.007	0.157 ± 0.007	0.967 ± 0.031
95	20	110	0.0919 ± 0.0046	0.0970 ± 0.0041	0.947 ± 0.039
155	40	180	0.104 ± 0.005	0.113 ± 0.005	0.916 ± 0.033
255	60	290	0.0905 ± 0.0043	0.103 ± 0.004	0.878 ± 0.032
395	100	450	0.102 ± 0.005	0.117 ± 0.005	0.875 ± 0.028
595	200	700	0.140 ± 0.006	0.162 ± 0.007	0.863 ± 0.023
995	400	1200	0.174 ± 0.007	0.204 ± 0.008	0.852 ± 0.020
1795	400	2000	0.106 ± 0.005	0.125 ± 0.005	0.847 ± 0.024
2695	500	2950	0.0834 ± 0.0042	0.0975 ± 0.0041	0.856 ± 0.033
3795	600	4100	0.0652 ± 0.0032	0.0753 ± 0.0032	0.866 ± 0.033
(3) Irradiation Time = 100s, Number of Fissions = $(1.678 \pm 0.048) \times 10^8$ fissions					
950	400	1200	0.173 ± 0.005	0.208 ± 0.007	0.830 ± 0.011
1350	400	1600	0.131 ± 0.004	0.159 ± 0.005	0.823 ± 0.011
1750	400	2000	0.104 ± 0.003	0.126 ± 0.004	0.821 ± 0.012
2150	500	2450	0.103 ± 0.003	0.126 ± 0.004	0.818 ± 0.012
2650	500	2950	0.0822 ± 0.0026	0.100 ± 0.003	0.820 ± 0.012
3150	600	3500	0.0799 ± 0.0025	0.0970 ± 0.0032	0.823 ± 0.012
3750	600	4100	0.0650 ± 0.0021	0.0784 ± 0.0026	0.828 ± 0.014
4350	800	4800	0.0707 ± 0.0022	0.0845 ± 0.0028	0.838 ± 0.013
5150	800	5600	0.0563 ± 0.0018	0.0670 ± 0.0022	0.839 ± 0.014
5950	1000	6500	0.0566 ± 0.0018	0.0671 ± 0.0022	0.843 ± 0.014
6950	1000	7500	0.0455 ± 0.0015	0.0538 ± 0.0018	0.846 ± 0.015
7950	2000	9000	0.0702 ± 0.0022	0.0823 ± 0.0027	0.852 ± 0.013
9950	2000	11000	0.0515 ± 0.0016	0.0607 ± 0.0020	0.850 ± 0.014
11950	3000	13500	0.0557 ± 0.0018	0.0664 ± 0.0022	0.838 ± 0.014
14950	3000	16500	0.0409 ± 0.0014	0.0494 ± 0.0016	0.828 ± 0.017
17950	4000	20000	0.0402 ± 0.0013	0.0501 ± 0.0018	0.802 ± 0.018
21950	4000	24000	0.0309 ± 0.0011	0.0397 ± 0.0014	0.779 ± 0.022

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

$$N(T_R, T_W + \frac{1}{2} T_C) = \frac{T_C}{n_f T_R} \sum_{j=\min}^{j=\max} \phi(E_j) \Delta E_j \quad (13)$$

また、 γ 線平均エネルギーは(12)式と(13)式の値の比として与えられる。

(3) 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、(9)式を用いて任意の照射時間における崩壊熱を計算できること、照射時間の異

なる他の実験値あるいは計算値と比較し易くすること、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FP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

Table 5 (c) ²³⁸U

Waiting Time (s)	Counting Time (s)	Cooling Time (s)	Energy Release (MeV/fission)	Yield (photons/fission)	Average Photon Energy (MeV/photon)
(1) Irradiation Time = 10s, Number of Fission = (2.477±0.146)×10 ⁷ fissions					
11	6	19	0.151 ±0.010	0.150 ±0.010	1.008±0.042
25	10	35	0.154 ±0.011	0.147 ±0.010	1.047±0.044
45	10	55	0.102 ±0.007	0.0941±0.0060	1.082±0.042
75	20	90	0.127 ±0.009	0.116 ±0.008	1.094±0.044
115	40	140	0.154 ±0.011	0.147 ±0.009	1.053±0.042
195	60	230	0.130 ±0.009	0.130 ±0.008	0.997±0.043
315	80	360	0.110 ±0.008	0.113 ±0.007	0.975±0.039
495	100	550	0.0892±0.0062	0.0961±0.0061	0.928±0.039
795	200	900	0.114 ±0.007	0.125 ±0.008	0.910±0.029
1395	400	1600	0.127 ±0.008	0.144 ±0.009	0.882±0.030
2195	500	2450	0.101 ±0.008	0.113 ±0.007	0.896±0.045
3195	600	3500	0.0810±0.0084	0.0906±0.0070	0.894±0.088
(2) Irradiation Time = 10s, Number of Fission = (3.639±0.213)×10 ⁷ fissions					
17	8	26	0.162 ±0.012	0.158 ±0.010	1.028±0.050
35	10	45	0.126 ±0.008	0.119 ±0.008	1.057±0.039
55	20	70	0.166 ±0.011	0.156 ±0.010	1.063±0.035
95	20	110	0.103 ±0.007	0.0965±0.0061	1.070±0.040
155	40	180	0.115 ±0.008	0.112 ±0.007	1.027±0.037
255	60	290	0.103 ±0.007	0.105 ±0.007	0.981±0.032
395	100	450	0.110 ±0.007	0.117 ±0.007	0.948±0.029
595	200	700	0.145 ±0.009	0.159 ±0.010	0.912±0.022
995	400	1200	0.177 ±0.011	0.197 ±0.012	0.897±0.020
1795	400	2000	0.104 ±0.007	0.116 ±0.007	0.896±0.025
2695	500	2950	0.0847±0.0061	0.0948±0.0060	0.893±0.041
3795	700	4100	0.0699±0.0050	0.0764±0.0049	0.915±0.042
(3) Irradiation Time = 100s, Number of Fission = (2.781±0.139)×10 ⁸ fissions					
750	200	900	0.116 ±0.006	0.128 ±0.007	0.902±0.013
950	400	1200	0.178 ±0.009	0.199 ±0.011	0.894±0.013
1350	400	1600	0.133 ±0.007	0.150 ±0.008	0.886±0.013
1750	400	2000	0.105 ±0.005	0.119 ±0.006	0.883±0.013
2150	500	2450	0.105 ±0.005	0.119 ±0.006	0.884±0.013
2650	500	2950	0.0850±0.0044	0.0960±0.0051	0.886±0.014
3150	600	3500	0.0833±0.0043	0.0937±0.0050	0.888±0.014
3750	600	4100	0.0688±0.0036	0.0769±0.0041	0.895±0.015
4350	800	4800	0.0755±0.0039	0.0833±0.0044	0.906±0.015
5150	800	5600	0.0623±0.0032	0.0683±0.0036	0.913±0.016
5950	1000	6500	0.0645±0.0033	0.0703±0.0037	0.918±0.015
6950	1000	7500	0.0535±0.0029	0.0576±0.0031	0.928±0.022
7950	2000	9000	0.0836±0.0045	0.0896±0.0047	0.933±0.021
9950	2000	11000	0.0635±0.0033	0.0679±0.0036	0.935±0.016
11950	3000	13500	0.0700±0.0036	0.0748±0.0042	0.937±0.025
14950	3000	16500	0.0523±0.0031	0.0569±0.0034	0.919±0.040
17950	4000	20000	0.0522±0.0028	0.0578±0.0034	0.903±0.030
21950	4000	24000	0.0396±0.0022	0.0455±0.0028	0.871±0.033

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

る。すなわち、

$$f\{T_W + \frac{1}{2}(T_R + T_C)\} \approx F(T_R, T_W + \frac{1}{2} T_C) / T_R \quad (14)$$

が成り立つ。一方、 $T_W \leq (T_R + T_C)$ の範囲においては(14)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、

$$f\{T_W + \frac{1}{2}(T_R + T_C)\} = \eta F(T_R, T_W + \frac{1}{2} T_C) / T_R \quad (15)$$

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を照射時間で割った値との比として次式のように求めた。

$$\eta = \frac{f_{cal}\{T_W + \frac{1}{2}(T_R + T_C)\}}{F_{cal}(T_R, T_W + \frac{1}{2} T_C) / T_R} \quad (16)$$

補正量は $(T_R, T_W, T_C) = (10 \text{ s}, 11 \text{ s}, 6 \text{ s})$ の場合が最も

Table 6(a)-(c) γ -ray decay power after one fast-neutron fission of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U

Cooling Time (s)	(a) ^{235}U			(b) ^{239}Pu			(c) ^{233}U		
	Experiment $f(t)$ (MeV/s per fission)	Calculation b	Ratio of Experiment / Calculation	Experiment $f(t)$ (MeV/s per fission)	Calculation b	Ratio of Experiment / Calculation	Experiment $f(t)$ (MeV/s per fission)	Calculation b	Ratio of Experiment / Calculation
1	3.47-02 ⁶	3.41-02	1.02±0.05	2.66-02	2.58-02	1.03±0.05	2.48-02 ⁷	2.42-02	1.03±0.07
2	2.57-02	2.56-02	1.00±0.05	1.93-02	1.96-02	0.98±0.05	2.01-02	1.88-02	1.07±0.08
3	1.94-02	1.96-02	0.99±0.05	1.48-02	1.52-02	0.97±0.06	1.54-02	1.48-02	1.04±0.07
4	1.53-02	1.56-02	0.98±0.05	1.18-02	1.22-02	0.96±0.05	1.26-02	1.21-02	1.00±0.07
5	1.26-02	1.29-02	0.98±0.05	0.92-02	0.95-02	0.97±0.05	1.02-02	1.02-02	1.00±0.07
6	7.48-03	7.71-03	0.98±0.05	7.59-03	8.04-03	0.95±0.04	8.28-03	8.17-03	1.01±0.07
7	9.86-03	10.1-03	0.97±0.05	9.91-03	10.4-03	0.96±0.05	10.3-03	10.3-03	0.99±0.07
8	5.87-03	6.11-03	0.96±0.06	6.11-03	6.48-03	0.95±0.05	6.34-03	6.38-03	0.99±0.07
9	4.51-03	4.55-03	0.99±0.05	4.59-03	4.85-03	0.95±0.05	5.16-03	5.15-03	1.00±0.07
10	3.20-03	3.30-03	0.97±0.05	3.56-03	3.59-03	0.99±0.05	3.86-03	3.92-03	0.98±0.07
11	2.44-03	2.40-03	1.02±0.05	2.60-03	2.60-03	1.00±0.05	2.89-03	2.90-03	0.98±0.07
12	1.82-03	1.79-03	1.02±0.06	1.95-03	1.90-03	1.03±0.06	2.16-03	2.15-03	1.00±0.07
13	1.45-03	1.38-03	1.05±0.05	1.51-03	1.43-03	1.05±0.05	1.71-03	1.63-03	1.05±0.07
14	1.12-03	1.07-03	1.05±0.06	1.27-03	1.13-03	1.12±0.06	1.37-03	1.27-03	1.08±0.07
15	9.16-04	8.70-04	1.05±0.05	1.02-03	9.03-04	1.13±0.05	1.10-03	1.00-03	1.10±0.07
16	7.22-04	6.88-04	1.05±0.04	8.78-04	7.53-04	1.17±0.06	8.92-04	8.19-04	1.09±0.08
17	5.72-04	5.46-04	1.05±0.04	7.00-04	6.16-04	1.14±0.05	7.46-04	6.51-04	1.11±0.07
18	4.26-04	4.22-04	1.01±0.04	5.71-04	5.03-04	1.14±0.05	5.73-04	5.18-04	1.11±0.07
19	3.26-04	3.26-04	1.00±0.04	4.33-04	3.97-04	1.09±0.04	4.43-04	4.00-04	1.11±0.06
20	2.54-04	2.64-04	0.96±0.04	3.32-04	3.09-04	1.08±0.04	3.25-04	3.09-04	1.05±0.06
21	2.06-04	2.16-04	0.95±0.04	2.61-04	2.50-04	1.05±0.04	2.61-04	2.51-04	1.04±0.06
22	1.66-04	1.78-04	0.93±0.03	2.06-04	2.02-04	1.02±0.03	2.11-04	2.05-04	1.03±0.05
23	1.37-04	1.48-04	0.93±0.03	1.64-04	1.64-04	1.00±0.03	1.70-04	1.70-04	1.00±0.05
24	1.12-04	1.23-04	0.91±0.03	1.33-04	1.34-04	1.00±0.03	1.39-04	1.41-04	0.98±0.05
25	9.32-05	1.02-04	0.91±0.03	1.08-04	1.10-04	0.98±0.03	1.15-04	1.19-04	0.97±0.05
26	7.52-05	8.48-05	0.89±0.03	8.84-05	8.31-05	0.99±0.03	9.44-05	9.94-05	0.95±0.05
27	6.27-05	7.02-05	0.89±0.03	7.03-05	7.22-05	0.98±0.03	7.79-05	8.30-05	0.94±0.05
28	5.15-05	5.83-05	0.88±0.03	5.66-05	5.85-05	0.97±0.03	6.45-05	6.95-05	0.93±0.05
29	4.04-05	4.56-05	0.89±0.03	4.55-05	4.76-05	0.96±0.03	5.35-05	5.83-05	0.92±0.05
30	2.99-05	3.43-05	0.87±0.03	3.51-05	3.63-05	0.97±0.03	4.18-05	4.63-05	0.90±0.05
31	2.20-05	2.52-05	0.87±0.03	2.58-05	2.68-05	0.96±0.03	3.18-05	3.55-05	0.89±0.05
32	1.58-05	1.85-05	0.86±0.03	1.86-05	1.95-05	0.95±0.05	2.34-05	2.68-05	0.87±0.05
33	1.15-05	1.36-05	0.85±0.03	1.36-05	1.42-05	0.96±0.03	1.74-05	2.01-05	0.87±0.05
34	8.80-06	1.03-05	0.86±0.03	1.06-05	1.06-05	0.95±0.03	1.31-05	1.51-05	0.86±0.05
				7.74-06	8.07-06	0.96±0.04	9.91-06	1.15-05	0.86±0.05

a: $T_{\text{cool}} = T_{\text{wait}} + 0.5 \times (T_{\text{irrad}} + T_{\text{count}})$; b: Calculation was carried out using the DCHAIN code and INDC decay data library; c: Read as 3.47×10^{-2}

大きく、約2.5%であった。

瞬時照射崩壊熱に変換する際、10 s 照射と100 s 照射の有限時間照射崩壊熱からの結果を冷却時間1,000 s 付近の点数は平均をとり、それより短冷却時間領域では10 s 照射からの結果を、長冷却時間領域では100 s 照射からの結果を用いることにより、冷却時間19~24,000 s の範囲の34点での γ 線瞬時照射崩壊熱を得た。 ^{235}U , ^{239}Pu , ^{233}U に対する瞬時照射崩壊熱の結果をTable 6(a)~(c)に示すとともにFig. 3(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。

(4) 誤差評価

Table 5(a)~(c)に示した γ 線エネルギー放出量等の測定誤差およびTable 6(a)~(c)に示した瞬時照射崩壊熱の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、③核分裂数の誤差、④照射時間の誤差、⑤測定時間の誤差を考慮した。このうち①と

②の誤差はFERDORコード内で評価され、結果はエネルギースペクトルの信頼区間としての上下限值として与えられる。エネルギースペクトルの各群間には相関がないと仮定することにより、各群の誤差の2乗和の平方根として①と②の誤差が与えられ、その値は1.5~3.5%である。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の和であり、2~6%の範囲である。一方、照射時間の誤差は0.1 s、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最終的な実験誤差を得た。この結果、実験誤差は ^{235}U と ^{239}Pu に対して5%、 ^{233}U に対して7%以内であった。なお、これらの実験誤差として1標準偏差(1 σ)の値を採用している。

IV. 総和計算値および他の実験値との比較

崩壊熱の計算は総和計算コードDCHAINを使用し、現在国内で使用されている3種の独立なFP崩壊

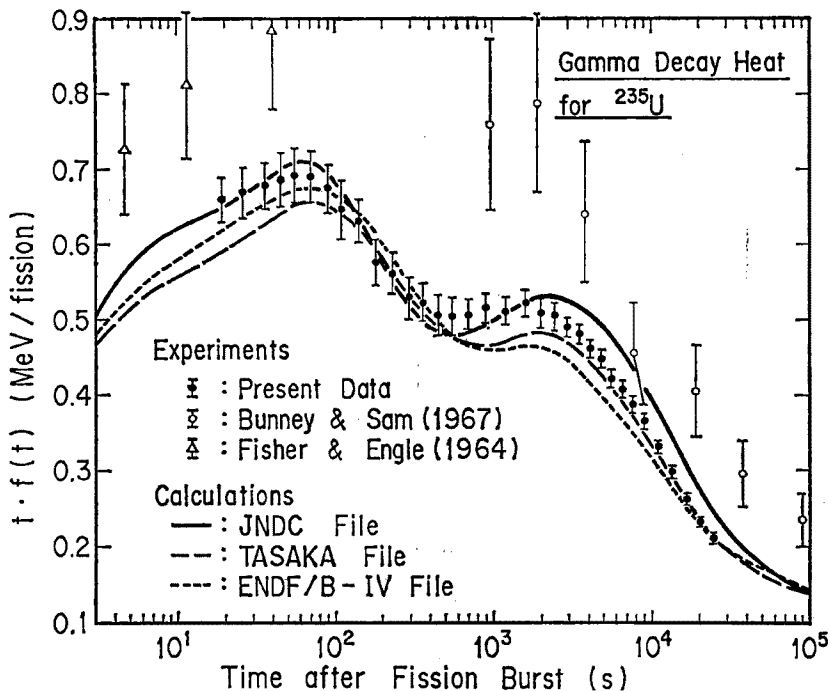
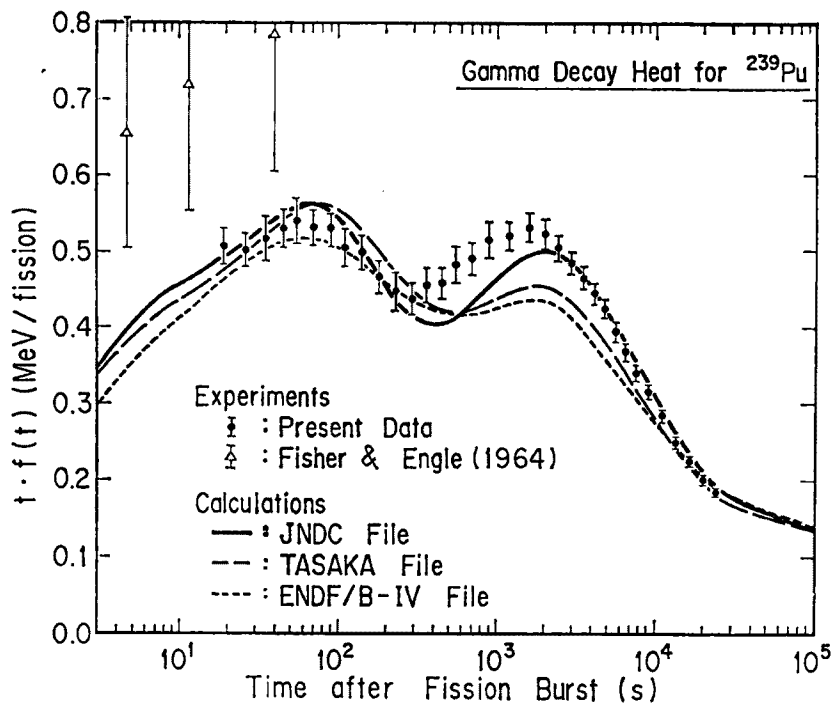
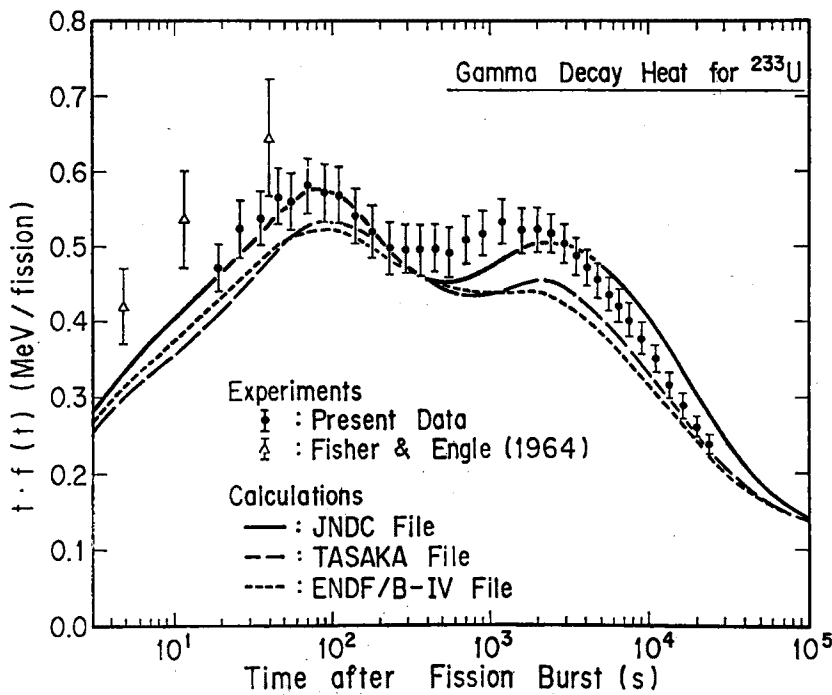


Fig. 3(a) ^{235}U

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

Fig. 3(a)~(c) γ -ray energy emission rate following instantaneous pulse of fast-neutron fissions of ^{235}U , ^{239}Pu and ^{233}U

Fig. 3 (b) ^{239}Pu Fig. 3 (c) ^{235}U

データライブラリーを用いて行なった。すなわち、JNDC FP 崩壊データライブラリー^{(18)~(20)}、TASAKA FP 崩壊データライブラリー⁽²¹⁾および ENDF/B-IV FP 崩壊データライブラリー⁽²²⁾である。崩壊熱の計算において、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スペクトル依存性として取り扱われる。3種のFP崩壊データライブラリーは10種の核分裂タイプに対する核分裂収率が内蔵されている。²³⁵U については熱中性子、核分裂中性子、14 MeV 中性子の、²³⁹Pu については熱中性子と核分裂中性子の、²³⁸U については熱中性子の、それぞれ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る。

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性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、²³⁵U と ²³⁹Pu についての計算では核分裂中性子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用い、²³⁸U についての計算では熱中性子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用いた。しかし、²³⁵U と ²³⁹Pu に対して、熱中性子と核分裂中性子エネルギースペクトルの核分裂収率を用いた2つの総和計算値は、今回測定を行なった冷却時間範囲においては最大3.5%の差しかなく、中性子エネルギースペクトルの崩壊熱に及ぼす影響は小さい。したがって²³⁸U の場合、熱中性子エネルギースペクトルに対する核分裂収率を用いたことによる影響は小さいと思われる。

²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U について、それぞれ3つの総和計算値と今回の実験値との比較を Fig. 3(a)~(c) に示した。²³⁵U については Fisher & Engle および Bunney & Sam の実験値、²³⁹Pu と ²³⁸U については Fisher & Engle の実験値も合わせて図示してある。

²³⁵U の場合、今回の実験値は冷却時間 100 s 以内では JNDC と TASAKA FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値と実験誤差の範囲で一致し、100~600 s の範囲では3つの総和計算値と比較的よく一致し、600~2,000 s の範囲では JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値と一致し、それより長い冷却時間においては TASAKA FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値に近づいてくる傾向にある。一方、Fisher & Engle の実験値は今回の実験値より約30%も大きな値を示しており、Bunney & Sam の実験値は今回の実験値より20~60%も大きな値を示し

ている。

²³⁹Pu の場合、今回の実験値は冷却時間300 s 以内では3つの総和計算値のほぼ中間の値を示し、300~2,000 s の範囲では3つの総和計算値はどれも実験値を過小評価し、2,000 s より長い冷却時間では実験値は JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値とよく一致している。一方、Fisher & Engle の実験値は今回の実験値より約50%大きい値を示している。

²³⁸U の場合、今回の実験値は冷却時間300 s 以内で JNDC FP は崩壊データライブラリーを用いた総和計算値と一致し、300~2,000 s の範囲では3つの総和計算値はどれも実験値を過小評価し、それより長い冷却時間においては実験値は TASAKA FP 崩壊データライブラリーを用いた計算値に近づいてくる傾向にある。一方、Fisher & Engle の実験値は今回の実験値より約20%大きい値を示している。

以上の比較において、冷却時間の全領域にわたって今回の実験値をよく再現する総和計算値はないが、JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値が他の2つの総和計算値よりも全体として今回の実験値をよりよく再現していることがわかる。JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた総和計算値および実験値と総和計算値の比を Table 6(a)~(c) に合わせて載せてある。これによると JNDC FP 崩壊データライブラリーを用いた計算値は±15%の範囲で実験値と一致している。一方、どの FP 崩壊データライブラリーを使用しても冷却時間300~2,000 s の範囲で実験値を過小評価することが一般的傾向としてわかった。

V. 結 論

²³⁵U, ²³⁹Pu, ²³⁸U の高速中性子核分裂による FP からの γ 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(1 σ)は ²³⁵U と ²³⁹Pu に対して5%、²³⁸U に対して7%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今回の実験値との比較検討の結果、JNDC FP崩壊データライブラリーを用いた総和計算値がよりよく実験値を再現することがわかった。しかし、どのFP崩壊データライブラリーを使用しても総和計算値は冷却時間約300~2,000 s の範囲で実験値を過小評価する一般的傾向があることが確認された。

高速中性子核分裂による FP からの γ 線崩壊熱の他

の2つの実験値は、今回の実験値および総和計算値よりも大きな値を示し、実験誤差も大きいため信頼性に疑問がある。したがって、今回の実験値は原子炉の安全性上重要となる冷却時間範囲で、崩壊熱の値に要求されている精度を満たす唯一の実験値である。

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。大谷暢夫氏初め関係の方々に感謝いたします。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ついてのご協力を、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) DEVILLERS, C.: *Proc. Second Advisory Group Meeting on Fission Product Nuclear Data*, Petten, 1977, IAEA-213, (1978).
- (2) JOHNSTON, K.: *J. Nucl. Energy*, **19**, 527 (1965).
- (3) COSTA, L., *et al.*: *ibid.*, **26**, 431 (1972).
- (4) FISHER, P.C., ENGLE, L.B.: *Phys. Rev.*, **134**, B796 (1964).
- (5) BUNNEY, L.R., SAM, D.: *Nucl. Sci. Eng.*, **29**, 432 (1967).
- (6) 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).
- (7) AN, S., *et al.*: *Proc. Int. Symp. on Physics of Fast Reactors, Tokyo, 1973*, (1973).
- (8) AN, S., OKA, Y., SAITO, I.: Present status and future program of YAYOI as a fast pulse reactor, *UTNL-R-0061*, (1978).
- (9) 中沢正治, 関口 晃: 「弥生」線量測定データ集(I), *UTNL-R-0037*, (1976).
- (10) OKRENT, D.: *Power Reactor Technol.*, **7**, 107 (1964).
- (11) HEATH, R.L., *et al.*: The calculation of gamma-ray shapes for sodium iodide scintillation spectrometers, *IDO-17017*, (1965).
- (12) AKIYAMA, M., *et al.*: *J. Fac. Eng. Univ. Tokyo(B)*, **35**, 235 (1979).
- (13) RIDER, B. F., MEEK, M. E.: Compilation of fission product yields, *NEDO-12154-2 (D)*, (1977).
- (14) LEDERER, C.M., *et al.*: "Table of Isotopes", (7th Ed.), (1978), John Wiley & Sons.
- (15) KENDRICK, H., *et al.*: An introduction to the principles and use of the FERDOR unfolding code, *GA-9882*, (1970).
- (16) 田坂完二: DCHAIN; 放射性ならびに安定核種の生成崩壊解析コード, *JAERI-1250*, (1977).
- (17) 同上: FPGAM; 核分裂生成物の γ 線スペクトル計算プログラム, *JAERI-M 6898*, (1977).
- (18) YAMAMOTO, T., *et al.*: JNDC FP decay data file, *JAERI-M 9357*, (1981).
- (19) YOSHIDA, T., NAKASIMA, R.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **18**(6), 393(1981).
- (20) IHARA, H., *et al.*: JNDC FP decay and yield data, *JAERI-M 9715*, (1981).
- (21) TASAKA, K.: Nuclear data library of fission products for decay power calculation, *NUREG/CR-0705, TR EE-1325*, (1979).
- (22) ENGLAND, T.R., SCHENTER, R.E.: ENDF/B-IV fission-product files; Summary of major nuclide data, *LA-6116-MS*, (1975).

○(昭和57年度)金属材料技術研究所研究発表会○

「構造材料と環境」

- 日時 11月12日(金) 13:30~17:00
 会場 金属材料技術研究所 大会議室
 (交通)東横線・地下鉄日比谷線 中目黒駅下車 徒歩10分
- 挨拶 所長 荒木 透
 (座長 原子炉材料研究部長 内山 郁)
1. 極低温技術を支える構造材料
 極低温機器材料研究グループ
 第5研究グループリーダー 石川圭介
 2. 海洋構造物用材料としての高張力鋼
 強力材料研究部第1研究室長 角田方衛
 (座長 エネルギー機器材料研究グループ総合研究官 山崎道夫)
 3. 軽水炉構造材料の腐食問題と対策
 腐食防食研究部主任研究官 石原只雄
 4. 耐熱材料の高温腐食とクリープの相互作用
 腐食防食研究部長 新居和嘉
 5. 高温構造材料の10万時間クリープ破断性質
 クリープ試験部長 横井 信
- (聴講自由)

日本工学会・記念講演会

「わが国工学の将来と使命」

日時 昭和57年11月18日(木) 13:30~17:00
 会場 工学院大学講堂
 東京都新宿区西新宿1-24-2 (Tel. 03-342-1211)
 国電・地下鉄とも新宿駅下車。西口徒歩5分

講演

国際社会におけるわが国工学の将来の条件
 IBM Research Center 江崎玲於奈氏
 科学技術と人間

原子力委員長代理・前東京大学総長 向坊 隆氏
 科学技術の、人類の福祉向上への寄与と、好ましくない影響との両面について論ずる。

わが国の技術開発とその将来

日産自動車技術顧問 中川良一氏
 演者自身の現在までの体験についてふりかえり、
 大きな転換点にある将来について展望する。

—来聴歓迎—

主催 (社)日本工学会
 東京都中央区銀座8-5-4 日本鉱業会館内(Tel. 03-574-6176)