

JAERI-M

9757

アクチノイド核種を用いた
核分裂計数管の製作と特性

1981年10月

大部 誠

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、複製などのお問い合わせは、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.

アクチノイド核種を用いた核分裂計数管の製作と特性

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

大 部 誠

(1 9 8 1 年 9 月 2 5 日 受 理)

高速炉臨界集合体 F C A の一連の体系中で ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm および ^{235}U の中心核分裂率を測定するため, 平行板電極型の核分裂計数管を製作した。計数管は薄いステンレス鋼の本体, 円板集電極および 0.2 mm 厚さの白金板を用いた電着ソースからなっている。封入ガスは, Ar 97% と N_2 3% の混合ガス 1 気圧である。核種の電着質量は, 各核種の α 線比放射能の強さにより調整した。F C A における実験において, 全ての計数管で α 線パイルアップの少ない良好な特性が得られた。各計数管について, α 線分析による核種質量の定量, 核分裂性不純物の補正, 計数管の感度を検討した。実験により, アクチノイド核分裂率が $\pm 2 \sim \pm 5\%$ の誤差内で測定できることが明らかになった。以上の結果は, 本計数管がアクチノイド核種の核断面積の実験的評価に有効に使用できることを示している。

Preparation and Characteristics of Fission Chambers
with Actinide Nuclides

Makoto OBU

Division of Reactor Engineering,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received September 25, 1981)

Fission chambers of parallel-plate type are provided to measure the central fission rates of ^{237}Np , ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am , ^{244}Cm and ^{235}U in a series of the cores in fast critical assemblies FCA. The chamber consists of the body made of a thin stainless steel wall, the collector of a circular disk and the electrodeposited source with a platinum disk of 0.2 mm thick. The gas filled in the chamber is a mixture of 97 % Ar and 3 % N_2 at 1 atmosphere pressure. The weights of deposit are adjusted from strength of α -specific activity for each nuclide. In the test using FCA, characteristics of low α pile-up are obtained for all chambers prepared. The determination of masses by α -assay, correction for fissile impurities and the sensitivity of chambers are examined for the individual chamber. It is shown from the experiment that the actinide fission rates can be measured within errors of $\pm 2 \sim \pm 5\%$. From this result, it concludes that the present chambers are effectively used for the experimental evaluation of nuclear cross sections for the actinide nuclides.

Keywords : Actinide Fission Chamber, Preparation, Characteristics,
Actinide Fission Rate, FCA Assembly, Electrodeposited Source,
 α -Assay, Measured Error Estimation, Actinide Nuclides

目 次

1. まえがき	1
2. 計数管の構造	2
3. 電着ソースの仕様	3
4. 計数管の特性	4
4.1 一般特性	4
4.2 計数管固有の補正量	5
4.3 核分裂率測定の不確かさ	8
5. まとめ	9
謝 辞	9
参考文献	10

Contents

1. Introduction	1
2. Construction of fission chamber	2
3. Method of electrodeposition for fissile source	3
4. Characteristics of fission chamber	4
4.1 General characteristics	4
4.2 Correction factors of individuality for chamber	5
4.3 Uncertainties of fission rate measurement	8
5. Conclusion	9
Acknowledgment	9
References	10

1. ま え が き

核燃料サイクルにおけるアクチノイド核種の生成消滅過程の評価を行うために現在用いられている核データの精度は十分とは言えない。FCAでは、これら核断面積データを積分測定値により評価、修正するため「FCAスペクトル標準炉心実験」^{1)~3)}が行われている。この実験は、FCA集合体の炉心組成を変えることにより中性子スペクトルを系統的にシフトさせた6種の炉心、FCA K-1~K-6を組み、その中でアクチノイド核種の核分裂率比、小試料反応度値測定など一連の積分実験を行おうとするものである。本報告によるアクチノイド核種核分裂計数管は、この実験の一環として絶対核分裂率比を求めるため製作、準備したものである。計数管に使用した核種は ^{235}U 、 ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am および ^{244}Cm である。

従来、高速炉体系における核分裂計数管の使用は、主に燃料中の主要含有核種である ^{235}U 、 ^{238}U 、 ^{239}Pu および一部のPuアイソトープに主点が置かれてきた。アクチノイド核種の核分裂率測定を高速炉体系で行ったのはD. W. Sweet であるが、これは核分裂計数管による8核種の測定をZEBRA (Zero Power Fast Reactor, Winfrith)の炉心中心で行ったものである⁴⁾。しかし、全体的に見ればアクチノイド核種の核分裂率に関する研究は着手されたばかりであり、測定データが少い。

原子炉内の絶対核分裂率比を求めるために使用する小型計数管^{5)~8)}は、電極板に附着させる核分裂性核種(ソース)の原子数が正確に定量されたものでなければならない。このソース定量があるため、計数管の電極構成は平行板型にすることが多い。アクチノイド核種計数管も、計数管設計の基本に関しては、従来の計数管と同様である。しかし、対象とする核種の中に ^{238}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm のごとく α 崩壊の半減期が短かく、従って α 線比放射能の非常に高い核種がある(^{239}Pu の α のおよそ100倍)。これらの核種については、ソースの作製、 α 線分析および α -核分裂片比の問題で、従来より計数管の製作をより難かしくしている。なお、ソースの作製に関しては、電着法による技術と作製について幾つかの文献が報告されている^{9)~11)}。

本報告では、FCAにおけるアクチノイド核分裂計数管の製作とそれらの特性について述べる。計数管は薄いステンレス鋼の壁からなる平行板電極・ガス密封型である。核種は白金板上に電着させ、特に α 比放射能の高い核種については電着量を制限して、 α 線バックグラウンドの量を減らしている。ソース仕様に従い、電着ソースの作製と電着量の α 線スペクトロメトリーによる定量は、原子炉化学部燃焼率測定開発室が行った。FCA K-1 炉心を用いて製作した計数管の特性を求め有効性を検討している。

2. 計数管の構造

製作した核分裂計数管は、壁材としてステンレス鋼 (SUS 304) を用い、その構造は円筒形の本体、集電極円板、アクチノイド核種を電着した白金板陰極からなる平行板電極型である。核分裂計数管の構造を Fig. 1 に示す。ステンレス鋼の壁材による中性子の非弾性散乱がしきい核分裂断面積をもつ核種の測定におよぼす効果を減らすため、壁材の厚さは出来る限り薄くした。本体の壁厚さは電着ソースの密着面で 0.3 mm 、側面で 0.4 mm 、後面が 1.5 mm である。本体の加工は溶接を行わず丸棒を直接切削して仕上げたが、これは加工による形状のひずみとガスもれの確率を少なくするためである。集電極は直径 2.5 mm 、厚さ 0.3 mm のステンレス鋼円板の表面を鏡面仕上げしたものをを用いた。陰極となる電着ソースは、直径 3.6 mm 、厚さ 0.2 mm の研磨した白金板上に、測定する核種を直径 2.5 mm の円形に電着して作製した。電着ソースを本体内に挿入した後、それを本体の背面からピンで押えて本体に密着させた。集電極と陰極の間隔 8 mm は、核分裂片のアルゴン中の飛程-エネルギー¹⁴⁾ 関係¹⁴⁾ を参考にして経験的に定めた。集電極終端のハーメチック・シールは本体壁に半田付けにより封じ外部との気密を保持している。

計数管の封入ガスは Ar 97% と N₂ 3% の混合ガス、1 気圧である。ガスは市販の高純度ガスを使用し、ガス純度は Ar : 99.9995%、N₂ : 99.9995% である。ガス封入は、簡単なガス封入装置を組立てて行い、最初計数管内を真空に引いた後、中間のガストラップより注意してガスを注入した。計数管本体に取付けるガス封入枝管には 2.2 mm の焼もどし軟銅パイプを使い、ガス封入後圧着切断し、その表面を半田仕上げにより封じた。本体の気密は薄い気密フランジとネオプレーン O-リングで封じた。気密をより完全なものにするため、フランジのブレードを通常より長くしてビス止めにより締付けた。計数管に装着した電着ソースは、もし必要があれば、実験終了後に容易に本体から取出し、同位体希釈法により核種質量の再定量を行うことが出来る構造になっている。ここで、計数管をメタルワイヤー圧縮シールで封じる方法は、フランジ部分が肉厚構造になるのであまり受け入れられない。

計数管の本体に続く引出し管 (Extension tube) の長さは約 10 cm にとった。引出し管の用途は、計数管に接続する同軸ケーブルにポリエチレン絶縁ケーブルを使う場合、ポリエチレン中に含まれる水素原子が中性子を減速させる効果が測定に影響することを防ぐためのものである。同効果をさけるためには水素散乱の平均自由行程を考慮するとケーブルを電着ソースから数 cm 以上離さなければならない。もし、ポリエチレン・ケーブルに代えてテフロン・ケーブルを使えば、引出し管は不用である。なお他に、本計数管と同形のガスフロー式計数管も試作したが、特性に関して密封式と同じであるので、これについては以下の章で省略する。

3. 電着ソースの仕様

核分裂計数管に使用するソースは、電極に附着させる測定核種の重量が正確に定量されたものでなければならず、かつ、他の核分裂性同位体不純分の量が明らかなものでなくてはならない。またソースの状態は、核種物質が薄い電極板の一定領域に均一に密着している必要がある。絶対測定用計数管の場合、附着させる核種物質の層の厚みは、 α 線定量の精度と核分裂率測定時の α 線バックグラウンドの低減の問題から、適度な薄さに抑えることが精度よい測定につながるとされている。 ^{239}Pu の場合 $8 \sim 9 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 程度が適切であり、この量を一応の目安とした ($8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ は直径 25 mm の附着面積で約 $40 \mu\text{g}$ ・総重量に当る)。アクチノイド核種のうち ^{244}Cm , ^{238}Pu , ^{241}Am は α 線比放射能が極端に高く、この面から核分裂計数管に用いる重量設定が極めて難かしい核種である。これらの核種の附着量は、各 α 線放射能強度をもとにして経験的に定めた。

電着ソースの作製とそれらの定量については他に報告がある¹⁵⁾ので、ここでは概略のみを述べる。核種の電着方法は、白金攪拌棒を陽極に、また白金電着板を陰極にしてイソプロピルアルコールと約 0.2 N 塩酸溶液を混合した電解液を用いて通電するものである。測定核種は陰イオン交換分離法により精製したのち電着し、ガスバーナで赤熱したものをソースとする。電着核種の定量は、表面障壁型シリコン検出器と波高分析器を用いた α 線スペクトロメトリーにより行っている。また Pu ソースについては質量分析器によるスペクトル分析を行い同位体組成を求めている。 α 線測定器の計数効率、質量スペクトル分析により正確に同位体組成を測定した化学標準プルトニウム (NBS 949C) を用いて標準電着ソースを作製し、それを用いて求めている。即ち化学標準プルトニウムから重量及び同位体組成が既知の試料を分取し、これを用いて上記と同じ手順で電着ソースを作って計数効率値を得る方法である。 α 線スペクトロメトリーから得られるアクチノイド核種の毎秒当りの崩壊数 (dps) と半減期を使って核種の重量を求めることができる。

α 線による定量は、使用する半減期の誤差が定量の不確かさに影響する。半減期には最近 IAEA 国際核データ委員会が誤差評価を行って編集したデータを用いた¹⁶⁾。使用したアクチノイド半減期を Table 1 に示す。但し、 ^{241}Pu の場合は半減期 $14.7 \pm 0.4 \text{ yr}$ の β^- 崩壊が支配的であるので、この半減期を用いて定量している。なお、 ^{244}Cm , ^{246}Cm および ^{248}Cm については α 崩壊の外に、それぞれ半減期 $(1.344 \pm 0.002) \times 10^7 \text{ yr}$, $(1.81 \pm 0.04) \times 10^7 \text{ yr}$ および $(4.113 \pm 0.041) \times 10^6 \text{ yr}$ の自発核分裂があり、 ^{244}Cm の核分裂率測定の際無視出来ない核分裂片バックグラウンドになる。

準備した核分裂計数管に用いた電着ソースの核分裂性電着物の質量および同位体組成を Table 2 に示す。 α 線スペクトロメトリーによる核分裂性質量の定量のみの誤差は、 ^{244}Cm を除くと $\pm 0.5 \sim \pm 0.7 \%$ である。ただし、 ^{244}Cm の場合、その組成中に含まれる ^{246}Cm , ^{248}Cm などの定量の不確かさにより誤差が大きくなる。準備した電着ソースの数が少ないことから、核分裂性電着物の質量に生ずる不確かさを 3σ として算定した。ここで σ は α 線定量

における統計的な標準偏差である。なお、計数管NoU-1の場合、他のウランより不確かさが大きい理由は、 α 線計数のさいの統計的な計数値の低さからきている。Table 2 から集計した各々の電着物の核分裂性同位体の原子数組成を参考のためTable 3 に示す。

4. 計数管の特性

4.1 一般特性

FCA 1X-1 炉心を使用して、アクチノイド核種核分裂計数管の特性を調べた。測定装置はチャージセンシティブ型前置増幅器 (CANBERRA Model 2006)、線型パルス増幅器 (CANBERRA Model 1412)、インテグラル・ディスクリミネータおよびスケーラからなる通常の核分裂計数率測定構成である。線型パルス増幅器の出力端は分岐してマルチチャンネル波高分析器 (MCA) に結線してある。線型パルス増幅器の波形整形モード波形の観測から微分時定数 $0.5 \mu\text{s}$ 、積分時定数 $0.25 \mu\text{s}$ に設定した。ディスクリミネータのバイアス・レベルはプレジジョン・パルスジェネレータの信号とパルス波高分布から定めた。

^{235}U 計数管により求めた計数率・電圧特性曲線の勾配は $0.6\% / 100\text{V}$ であった。この特性とパルス波高分布の観察とから計数管の定常時の動作電圧を 500V とした。電着厚さの異なった ^{235}U 核分裂計数管の α 線成分附近のパルス波高分布を Fig. 2 に示す。使用した核分裂計数管は U-1 ($12.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) と U-3 ($36.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) である。より薄い電着物の方が α 線によるパイル・アップを少なくしている様子が解る。 α 線による成分を除去するため、ディスクリミネータのバイアスを α 線と核分裂片の信号が重なる谷の平坦な部分に設定した。バイアス以下にある核分裂片の信号については、波高分布のバイアス点を零チャンネルまで直線外挿した積分計数 (零外挿計数) により推定した。U-1 および U-3 計数管の零外挿補正量は、総計数 8×10^4 count にたいして、それぞれ 0.45% と 0.60% である。 ^{244}Cm 計数管のパルス波高分布を Fig. 3 a に、また同じ ^{244}Cm 計数管の自発核分裂パルス波高分布を Fig. 3 b に示す。Fig. 4 および Fig. 5 は、それぞれ ^{241}Am と ^{243}Am 計数管のパルス波高分布である。これらの一連のパルス波高分布から、 α 線の成分はいずれの場合にも零外挿補正を行うに十分な分離がなされていることが解る。

なお、パルス波高分布の α 線分離特性を改善する方法として他に i) 電流増幅型前置増幅器と速い増幅器を使って、波形に速いクリップをかける ii) ガス圧を低くする iii) 規定より高い電圧で動作させる、などがある。使用核種の電極塗布量が多い場合、これらの方法の組み合わせは有効である。しかしながら、放射能強度の非常に高い核種を扱う現在の場合、電着量を低減させるのがより実際的である。

製作した計数管の炉出力 (W) にたいする計数感度を求めた、実際の測定において炉出力を大幅に変更することは好ましくないので、殆どどの測定で炉出力は $10 \sim 20\text{W}$ とした。なお、炉出力 1W の運転における炉心中心の測定場所の中性子束は約 $1 \times 10^8 \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。計数管の感度特性を Table 4 に示す。核分裂断面積の大きな ^{235}U と ^{239}Pu の場合、核分

における統計的な標準偏差である。なお、計数管NuU-1の場合、他のウランより不確かさが大きい理由は、 α 線計数のさいの統計的な計数値の低さからきている。Table 2 から集計した各々の電着物の核分裂性同位体の原子数組成を参考のためTable 3 に示す。

4. 計数管の特性

4.1 一般特性

FCA 1X-1 炉心を使用して、アクチノイド核種核分裂計数管の特性を調べた。測定装置はチャージセンシティブ型前置増幅器 (CANBERRA Model 2006)、線型パルス増幅器 (CANBERRA Model 1412)、インテグラル・ディスクリミネータおよびスケーラからなる通常の核分裂計数率測定の構成である。線型パルス増幅器の出力端は分岐してマルチチャンネル波高分析器 (MCA) に結線してある。線型パルス増幅器の波形整形モード波形の観測から微分時定数 $0.5 \mu s$ 、積分時定数 $0.25 \mu s$ に設定した。ディスクリミネータのバイアス・レベルはプレシジョン・パルスジェネレータの信号とパルス波高分布から定めた。

^{235}U 計数管により求めた計数率・電圧特性曲線の勾配は $0.6\% / 100\text{V}$ であった。この特性とパルス波高分布の観察とから計数管の定常時の動作電圧を 500V とした。電着厚さの異った ^{235}U 核分裂計数管の α 線成分附近のパルス波高分布を Fig. 2 に示す。使用した核分裂計数管は U-1 ($12.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) と U-3 ($36.5 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) である。より薄い電着物の方が α 線によるパイル・アップを少なくしている様子が解る。 α 線による成分を除去するため、ディスクリミネータのバイアスを α 線と核分裂片の信号が重なる谷の平坦な部分に設定した。バイアス以下にある核分裂片の信号については、波高分布のバイアス点を零チャンネルまで直線外挿した積分計数 (零外挿計数) により推定した。U-1 および U-3 計数管の零外挿補正量は、総計数 8×10^4 count にたいして、それぞれ 0.45% と 0.60% である。 ^{244}Cm 計数管のパルス波高分布を Fig. 3 a に、また同じ ^{244}Cm 計数管の自発核分裂パルス波高分布を Fig. 3 b に示す。Fig. 4 および Fig. 5 は、それぞれ ^{241}Am と ^{243}Am 計数管のパルス波高分布である。これらの一連のパルス波高分布から、 α 線の成分はいずれの場合にも零外挿補正を行うに十分な分離がなされていることが解る。

なお、パルス波高分布の α 線分離特性を改善する方法として他に i) 電流増幅型前置増幅器と速い増幅器を使って、波形に速いクリップをかける ii) ガス圧を低くする iii) 規定より高い電圧で動作させる、などがある。使用核種の電極塗布量が多い場合、これらの方法の組み合わせは有効である。しかしながら、放射能強度の非常に高い核種を扱う現在の場合、電着量を低減させるのがより実際的である。

製作した計数管の炉出力 (W) にたいする計数感度を求めた、実際の測定において炉出力を大幅に変更することは好ましくないので、殆どどの測定で炉出力は $10 \sim 20\text{W}$ とした。なお、炉出力 1W の運転における炉心中心の測定場所の中性子束は約 $1 \times 10^8 \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。計数管の感度特性を Table 4 に示す。核分裂断面積の大きな ^{235}U と ^{239}Pu の場合、核分

裂計数感度は他の核種に比べて特に高い。しかし他の核種についても、 ^{244}Cm 以外は、10～20Wの炉出力において1000秒程度の測定時間をとれば、統計的に十分な計数が得られることが解る。一方、 ^{244}Cm 計数管の場合は実測値で3.96 cps/ μg の自発核分裂の比計数率をもっており、これを測定バックグラウンドとして差引かなければならない。それ故、差引きの誤差を少なくするために、より高い炉出力の運転を必要とする。即ち、炉出力200Wにおける測定でさえ、総核分裂計数の中に占める自発核分裂計数の割合は約18%を占める。 ^{244}Cm の場合は、強い α 線比放射能に加えて自発核分裂の大きな影響があるので、最も計数管の製作と測定の難かしい核種であると言える。

4.2 計数管固有の補正量

計数管から得られる核分裂率の測定値にたいして、使用した計数管に特有な幾つかの補正を行う必要がある。補正の内容として

- a) 零外挿計数補正
- b) 電着物の層の厚みによる核分裂片の損失
- c) 核種の定量後、長期間を経過した時点で半減期の短い核種の崩壊・生成に伴う同位体組成の修正
- d) 核分裂性同位体不純物から生ずる計数の除去

がある。以下、順を追って検討する。

a) 零外挿計数

パルス波高分布特性は、 α 線と核分裂片の信号の分離の状態が良好な程、零外挿補正量が少なくなるので望ましいとされる。しかしこの補正量は一方、炉出力に依存する量であり、炉出力を上昇させて α -核分裂率片の比を改善することによっても減少する。それ故ここでは実際の測定に側する炉運転状態として、前述の計数感度試験の炉出力時の補正量を調べた。ここで零外挿補正量を、零外挿計数を加えた全核分裂計数に対するバイアス・レベル以上の計数の割合を百分率で表示するものとする。

結果は、零外挿補正量の最も大きい ^{241}Am 計数管で補正量が1.4%であった。 ^{238}Pu と ^{244}Cm 計数管では、それぞれ0.9%と0.7%である。他の計数管については0.7～0.3%程度である。以上のごとく、大抵の計数管で補正量が1%以下となり、満足すべき結果が得られた。

b) 電着物質中の核分裂片損失

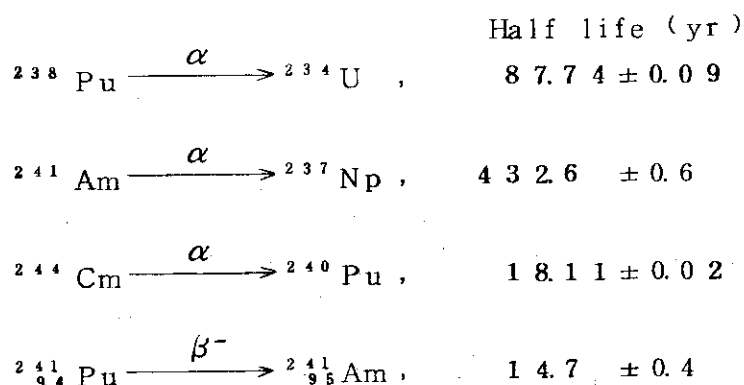
電着核種の層の厚さを t (mg/cm^2)とすると、電着物質を透過するさいの核分裂片の損失は $t/2R$ で表わすことができる。ここで R (mg/cm^2)は電着物質中の核分裂片の平均飛程である。ウラン電着物については、P. H. White が U_3O_8 中の飛程を求めている¹⁷⁾。J. A. Grundle は U_3O_8 で求められた飛程を UO_2 の飛程に換算して用いている⁵⁾。実際、ウラン電着物の場合、加熱温度により化学形が変わるので、それにより飛程も幾分変ると思われる。ここ

では全てのアクチノイド核種について二酸化物であると仮定する。また、ウラン中の飛程は J. A. Grundleの方法により $R = 7.74 \pm 0.90 \text{ mg U}_3\text{O}_8 / \text{cm}^2$ を UO_2 に換算して求める。 U_3O_8 と UO_2 の酸素の差は飛程-エネルギーの式から R が $A^{1/2} = \sum n_i A_i / \sum n_i A_i^{1/2}$ である。ただし A_i は酸化物を構成する物質の各々の原子量、 n_i はその組成である。以上の方法で求めた二酸化ウラン中の平均飛程は $8.29 \text{ mg UO}_2 / \text{cm}^2$ であった。

ウラン以外のアクチノイド物質中の飛程については、 UO_2 の値を近似的に用いる。また、電着核種の層の厚さは二酸化物の厚さ t' (mg/cm^2) を用いる。 UO_2 の電着物厚さ、それぞれ $10 \mu\text{g UO}_2 / \text{cm}^2$ 、 $20 \mu\text{g UO}_2 / \text{cm}^2$ および $50 \mu\text{g UO}_2 / \text{cm}^2$ について求めた核分裂片の損失は、 0.06% 、 0.12% および 0.3% であった。ここで計数管に使用した最も厚い電着ソースは NaU-3 であるが ($41.5 \mu\text{g UO}_2 / \text{cm}^2$)、その核分裂片の損失は 0.25% に過ぎない。また NaU-2 については 0.17% である。補正の対象を約 0.2% 以上に限るとすれば、他のアクチノイド電着ソースの場合、厚さが $20 \mu\text{g deoxide}/\text{cm}^2$ 以下であるので損失量はいずれも 0.1% かそれ以下となり、損失の補正として無視できる程小さい。

c) 核種の崩壊・生成による定量値の修正

計数管に使用している電着ソースの主要核種と同位体について、特に半減期の短い核種を選ぶと次のように壊変する。



計数管を長い期間にわたって使用する場合、これら親核種の崩壊と娘核種の生成が無視できなくなる。この場合、最初の定量値と同位体組成(前述 Table 2 参照)を使用時点で修正しなければならない。この点に関して、核種定量時から1年および2年経過後の崩壊と生成の補正量を見積ってみる。

親核種の崩壊と娘核種の生成量は、次のよく知られている逐次崩壊式で表わすことが出来る。即ち、親核種をA、娘核種をBと記し、各々の原子数を N_A および N_B とする。 $t=0$ のとき親核種が N_0 個あったとすると、 $t=t'$ 経過後の N_A および N_B は、放射性核種の崩壊式より次のごとく導かれる。

$$N_A = N_0 e^{-\lambda_A t} \tag{1-a}$$

$$N_B = N_0 \lambda_A (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) / (\lambda_B - \lambda_A) \tag{1-b}$$

$$\text{if } \lambda_B \ll \dots, N_B = N_0(1 - e^{-\lambda_A t}) \quad (1-c)$$

ここで λ_A と λ_B は親核種と娘核種の崩壊定数である。(1)-a ~ (1)-c 式を使って t' 後の N_A および N_B を求めることが出来る。

既知定量値の修正のためには崩壊および生成に関する補正係数、それぞれ N_A/N_0 および N_B/N_0 が得られればよい。各々の核種の λ_A と λ_B は前述の半減期 (Table 1 参照) を用いた。対象とした主要核種のうちで最も半減期の短かい ^{244}Cm の補正に興味をもてる。結果は、定量時より 1 年後の崩壊の補正係数が 0.962 であり、生成については 1.038 である。2 年後にこれらはそれぞれ 0.926 および 1.074 に増加する。 ^{238}Pu については 2 年後の崩壊と生成の補正係数は、それぞれ 0.983 と 1.017 である。また ^{241}Am の場合、前 2 核種に比べると補正ははるかに少なく、2 年後に崩壊で 0.997、生成で 1.003 に過ぎない。 ^{241}Pu については半減期からして ^{244}Cm より補正量は大きい、現在、主要核種として使用していないので、不純物同位体のみ補正となるので影響は小さい。

d) 核分裂性不純物による計数の補正

電着物質の組成に主要核種以外の核分裂性不純物が存在すると、測定から得られる核分裂計数の中にはこれら不純物からの計数も含まれることになる。それ故、総核分裂計数に対する不純物による計数の寄与を正確に見積って除去することは重要である。これらの寄与は基本的に測定体系の中性子スペクトルに依存するものである。ここでは FCA 1X-1 炉心における測定のさいの不純物計数の補正量を求めて参考とする。

用いた補正の方法は電着物の組成中に共通する i 種の核種を含む i 個の計数管を使って、体系中の同一場所において測定したそれぞれの核分裂計数率をもとに、 i 次の連立方程式を解くものである。ここで使用する計数管はいずれも同一の幾何学的効率をもつものと仮定する。測定場所の中性子束強度の時間的な変動を監視するため、他の一定場所に設置したモニター計数管を用い、測定より得られる核分裂計数率をモニター計数率で規格化した。

以下に ^{238}Pu 、 ^{239}Pu および ^{242}Pu の 3 組の計数管を用いた場合の補正を例として述べる。先ず ^{238}Pu 、 ^{239}Pu および ^{242}Pu 計数管の核分裂性同位体組成の中に 3 者に共通な 5 種の核種が含まれていることに着目する (前出, Table 2 参照)。ただし、 ^{242}Pu 計数管のみに含まれる ^{241}Am については組成中の原子比が小さく、また計数感度も低いことから簡単のため無視する。今、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu および ^{242}Pu 計数管を、それぞれ添字 1, 2, 3 で区別し、また各計数管のモニター計数率あたりの実測核分裂計数率を C_1 (238), C_2 (239) および C_3 (242) と記すことにする。このとき、 C_1 (238), C_2 (239) および C_3 (242) は次の連立方程式で表わすことが出来る。

$$\begin{aligned} C_1(238) &= n_1^{28} F^{28} + n_1^{29} F^{29} + n_1^{40} F^{40} + n_1^{41} F^{41} + n_1^{42} F^{42} \\ C_2(239) &= n_2^{28} F^{28} + n_2^{29} F^{29} + n_2^{40} F^{40} + n_2^{41} F^{41} + n_2^{42} F^{42} \\ C_3(242) &= n_3^{28} F^{28} + n_3^{29} F^{29} + n_3^{40} F^{40} + n_3^{41} F^{41} + n_3^{42} F^{42} \end{aligned} \quad (2)$$

ここで

F_i : 電着物における核分裂性組成中の i 種の核種の原子 1 個あたり、モニター計数率あたりの核分裂率 (fission / atom · monitor)

n_j^i : j 種の計数管の電着物における核分裂性組成中の i 種の原子数

である。

^{240}Pu と ^{241}Pu については、現在、計数管の主要核種として使用していない。それ故、(2) 式を整理するために測定場と同じ体系について計算した核分裂率比の値、 $F^{40}/F^{29} = a$ および $F^{41}/F^{29} = b$ を使って(2)式の F^{40} と F^{41} を F^{29} に置換する。計算による F^{40} と F^{41} を(2)式に代入して整理すると、

$$\begin{cases} C_1(238) = n_1^{28} F^{28} + (n_1^{29} + a n_1^{40} + b n_1^{41}) F^{29} + n_1^{42} F^{42} \\ C_2(239) = n_2^{28} F^{28} + (n_2^{29} + a n_2^{40} + b n_2^{41}) F^{29} + n_2^{42} F^{42} \\ C_3(242) = n_3^{28} F^{28} + (n_3^{29} + a n_3^{40} + b n_3^{41}) F^{29} + n_3^{42} F^{42} \end{cases} \quad (3)$$

F^{28} 、 F^{29} および F^{42} は、測定により求めんとする体系の核分裂率であり、 n_j^i は既知の定量値である。それ故、(3)式の連立方程式は F^{28} 、 F^{29} および F^{42} について容易に解く事ができる。最後に核分裂性不純物による計数の総計数に対する寄与は $n_j^i F^i / C_j(u)$ 、(ただし u は主要核種名) で表わすことができる。なお(3)式の $C_3(242)$ の右辺に、先に無視した ^{241}Am について、 ^{241}Am 計数管により独立に得られる実測値を加えればより正確な補正量が得られよう。

Am と Cm の核分裂性不純物の補正については、 ^{243}Am 計数管と ^{244}Cm 計数管の 2 本の組合せによる測定値から連立方程式を解いて求めた。また、 U 中の ^{238}U 不純物の補正は電着量(原子数)の異なる 2 本の ^{235}U 計数管を用いて、同様に連立方程式を解いて求めた。使用した各々の計数管について、総核分裂計数に対する核分裂性不純物の計数の割合を百分率で表わした結果を Table 5 に示す。ただし、この表中で 0.1% 以下の寄与は小さいものとして無視した。

4.3 核分裂率測定の不確かさ

製作したアクチノイド計数管を使用する場合、核分裂率の測定値に生ずる不確かさの要因となる主なものは、a) 電着物中の核種の定量誤差、b) 測定における計数の統計誤差、c) 核分裂性不純物の計数の補正に生ずる不確かさ、である。これらの要因のうち a) についてはすでに 3. で述べた。b) については、前述 4.1 の炉出力状態における測定結果を調べる。計数は各々の計数管感度に従って $1.4 \times 10^4 \sim 8 \times 10^4$ count の十分な計数をとった。これらの測定を数回行った結果を平均してその標準偏差を求めた。c) については、補正のさい、計数値の誤差と原子数の不確かさが補正式を通じて誤差伝播するものとして算定した。

同じ主要核種をもつ 2 または 3 個の計数管を用いて測定した核分裂率間のばらつきを Table

6に示す。測定におけるモニター計数あたりの核分裂計数率の誤差は $\pm 0.3 \sim \pm 0.4\%$ である。同じ主要核種にたいする各計数管の間の核分裂率のばらつきは、 ^{237}Np を除いて、算定誤差範囲内にある。Table 7 にその他のアクチノイド核種の核分裂率を示す。 ^{238}Pu 、 ^{243}Am および ^{244}Cm については、不純物による計数の補正の不確かさが核分裂率の結果に大きく影響する。

その他の補正量として、零外挿補正および Cm の自発核分裂計数の補正はかなり正確にできるので核分裂率の測定誤差におよぼす影響は小さい。

5. ま と め

アクチノイド核種の積分実験に使用する重要な8核種について、核種が定量された核分裂計数管を製作し、それらの特性を求めた。使用核種のうち、一部の核種は極めて α 線比放射能の高い性質を有するため、計数管の設計、製作に大きな制約となる。本報告では核種の電着量について、核分裂率測定標準核種である ^{239}Pu の電着量を絶対測定に有利な $\sim 40 \mu\text{g}$ に調整した。特に α 線比放射能の高い ^{238}Pu 、 ^{241}Am および ^{244}Cm については、電着量を $10 \mu\text{g}$ 以下に抑えて測定の実用レベルまで α 線バックグラウンドを低減している。結果として、計数管のパルス波高分布は“零外挿補正”の少ない非常に良好な特性が得られている。

実験により、殆どどの核種の計数管は $10\text{W} \sim 20\text{W}$ の炉出力により使用に十分な計数が得られる感度を有していることが確認できた。しかし ^{244}Cm の場合は、自身のもつ自発核分裂が実験上無視できない程大きいので、炉出力を 200W に上昇して自発核分裂性バックグラウンドを約 20% 以下の補正に抑えている。

本計数管を用いて測定する核分裂率の主な誤差源は、電着核種の定量誤差、測定のさいの計数の統計的ばらつきおよび核分裂性不純物による計数の補正に関する不確かさより生ずる。これらの誤差の総合は ^{244}Cm 、 ^{243}Am 、 ^{238}Pu などが大きい。なお、計数管の核種の定量後、時間を経過した場合の親核種の崩壊と娘核種の生成の補正に関しては、 α 崩壊の半減期の短い ^{244}Cm と ^{238}Pu がほぼ1年後に補正の対象となることに注意を要する。

核分裂計数管の特性を検討した結果、約 $\pm 2 \sim \pm 5\%$ の誤差範囲でアクチノイド核分裂率の測定が可能であることが明らかになった。本計数管による測定値は、アクチノイド核断面積データの評価、修正に有効に利用できるものである。

謝 辞

本報告書をまとめるにあたり、小川弘伸氏（現炉物理施設管理室）には計数管の製作に多大な助力をいただいた。また、燃焼率測定開発室の岡崎修二、河野信昭、篠原伸夫の諸氏には電着ソースの作製と定量を担当していただき本計数管の製作に大きな援助をいただいた。ここに、これらの諸氏に深く感謝いたします。本研究の遂行にあたり終始御支援をいただいた高速炉物

6に示す。測定におけるモニター計数あたりの核分裂計数率の誤差は $\pm 0.3 \sim \pm 0.4\%$ である。同じ主要核種にたいする各計数管の間の核分裂率のばらつきは、 ^{237}Np を除いて、算定誤差範囲内にある。Table 7 にその他のアクチノイド核種の核分裂率を示す。 ^{238}Pu 、 ^{243}Am および ^{244}Cm については、不純物による計数の補正の不確かさが核分裂率の結果に大きく影響する。

その他の補正量として、零外挿補正および Cm の自発核分裂計数の補正はかなり正確にできるので核分裂率の測定誤差におよぼす影響は小さい。

5. ま と め

アクチノイド核種の積分実験に使用する重要な8核種について、核種が定量された核分裂計数管を製作し、それらの特性を求めた。使用核種のうち、一部の核種は極めて α 線比放射能の高い性質を有するため、計数管の設計、製作に大きな制約となる。本報告では核種の電着量について、核分裂率測定の標準核種である ^{239}Pu の電着量を絶対測定に有利な $\sim 40 \mu\text{g}$ に調整した。特に α 線比放射能の高い ^{238}Pu 、 ^{241}Am および ^{244}Cm については、電着量を $10 \mu\text{g}$ 以下に抑えて測定の実用レベルまで α 線バックグラウンドを低減している。結果として、計数管のパルス波高分布は“零外挿補正”の少ない非常に良好な特性が得られている。

実験により、殆どどの核種の計数管は $10\text{W} \sim 20\text{W}$ の炉出力により使用に十分な計数が得られる感度を有していることが確認できた。しかし ^{244}Cm の場合は、自身のもつ自発核分裂が実験上無視できない程大きいので、炉出力を 200W に上昇して自発核分裂性バックグラウンドを約 20% 以下の補正に抑えている。

本計数管を用いて測定する核分裂率の主な誤差源は、電着核種の定量誤差、測定のさいの計数の統計的ばらつきおよび核分裂性不純物による計数の補正に関する不確かさより生ずる。これらの誤差の総合は ^{244}Cm 、 ^{243}Am 、 ^{238}Pu などが大きい。なお、計数管の核種の定量後、時間を経過した場合の親核種の崩壊と娘核種の生成の補正に関しては、 α 崩壊の半減期の短い ^{244}Cm と ^{238}Pu がほぼ1年後に補正の対象となることに注意を要する。

核分裂計数管の特性を検討した結果、約 $\pm 2 \sim \pm 5\%$ の誤差範囲でアクチノイド核分裂率の測定が可能であることが明らかになった。本計数管による測定値は、アクチノイド核断面積データの評価、修正に有効に利用できるものである。

謝 辞

本報告書をまとめるにあたり、小川弘伸氏（現炉物理施設管理室）には計数管の製作に多大な助力をいただいた。また、燃焼率測定開発室の岡崎修二、河野信昭、篠原伸夫の諸氏には電着ソースの作製と定量を担当していただき本計数管の製作に大きな援助をいただいた。ここに、これらの諸氏に深く感謝いたします。本研究の遂行にあたり終始御支援をいただいた高速炉物

6に示す。測定におけるモニター計数あたりの核分裂計数率の誤差は $\pm 0.3 \sim \pm 0.4\%$ である。同じ主要核種にたいする各計数管の間の核分裂率のばらつきは、 ^{237}Np を除いて、算定誤差範囲内にある。Table 7 にその他のアクチノイド核種の核分裂率を示す。 ^{238}Pu 、 ^{243}Am および ^{244}Cm については、不純物による計数の補正の不確かさが核分裂率の結果に大きく影響する。

その他の補正量として、零外挿補正および Cm の自発核分裂計数の補正はかなり正確にできるので核分裂率の測定誤差におよぼす影響は小さい。

5. ま と め

アクチノイド核種の積分実験に使用する重要な8核種について、核種が定量された核分裂計数管を製作し、それらの特性を求めた。使用核種のうち、一部の核種は極めて α 線比放射能の高い性質を有するため、計数管の設計、製作に大きな制約となる。本報告では核種の電着量について、核分裂率測定標準核種である ^{239}Pu の電着量を絶対測定に有利な $\sim 40 \mu\text{g}$ に調整した。特に α 線比放射能の高い ^{238}Pu 、 ^{241}Am および ^{244}Cm については、電着量を $10 \mu\text{g}$ 以下に抑えて測定の実用レベルまで α 線バックグラウンドを低減している。結果として、計数管のパルス波高分布は“零外挿補正”の少ない非常に良好な特性が得られている。

実験により、殆どどの核種の計数管は $10\text{W} \sim 20\text{W}$ の炉出力により使用に十分な計数が得られる感度を有していることが確認できた。しかし ^{244}Cm の場合は、自身のもつ自発核分裂が実験上無視できない程大きいので、炉出力を 200W に上昇して自発核分裂性バックグラウンドを約 20% 以下の補正に抑えている。

本計数管を用いて測定する核分裂率の主な誤差源は、電着核種の定量誤差、測定のさいの計数の統計的ばらつきおよび核分裂性不純物による計数の補正に関する不確かさより生ずる。これらの誤差の総合は ^{244}Cm 、 ^{243}Am 、 ^{238}Pu などが大きい。なお、計数管の核種の定量後、時間を経過した場合の親核種の崩壊と娘核種の生成の補正に関しては、 α 崩壊の半減期の短い ^{244}Cm と ^{238}Pu がほぼ1年後に補正の対象となることに注意を要する。

核分裂計数管の特性を検討した結果、約 $\pm 2 \sim \pm 5\%$ の誤差範囲でアクチノイド核分裂率の測定が可能であることが明らかになった。本計数管による測定値は、アクチノイド核断面積データの評価、修正に有効に利用できるものである。

謝 辞

本報告書をまとめるにあたり、小川弘伸氏（現炉物理施設管理室）には計数管の製作に多大な助力をいただいた。また、燃焼率測定開発室の岡崎修二、河野信昭、篠原伸夫の諸氏には電着ソースの作製と定量を担当していただき本計数管の製作に大きな援助をいただいた。ここに、これらの諸氏に深く感謝いたします。本研究の遂行にあたり終始御支援をいただいた高速炉物

理研究室長黒井英雄氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) Kuroi H. : "Tentative Program of FCA Assembly 1X (Integral Measurements of Actinide elements), private communication
- 2) Mukaiyama T. et al. : "Evaluation of Actinide Cross Sections by Integral Measurements in Fast Critical Assembly FCA", Proc. of Intern. Conf. on Nuclear Cross Sections for Technology, ED3, Knoxville, (1979)
- 3) 向山武彦 : "アクチニド核種断面積の積分測定による評価", 日本原子力学会・炉物理連絡会会報, 炉物理の研究, 29, 6月(1980)
- 4) Sweet D. W. : "Actinide Fission Rate Measurements in ZEBRA", AEEW-R 1090 (1977)
- 5) Grundle J. A. et al. : "Measurement of Absolute Fission Rates", Nucl. Technol., [25], P. 237, (1975)
- 6) Sweet D. W. : "The Calibration of Fission Chambers for Fast Reactor Experiments", AEEW-R936, (1974)
- 7) Stevenson J. M. and Broomfield A. M. : "Measurement and Calculations of Ratios of Effective Fission Cross-Section in the Zero Power Fast Reactor, ZEBRA", AEEW-R526, (1967)
- 8) Amundson P. I. et al. : "An International Comparison of Fission Detector Standards", ANL-7320, P. 679, (1966)
- 9) Aumann D. C. and Mullen G. : "Preparation of Targets of Ca, Ba, Fe, La, Pb, Tl, Bi, Th and U by Electrodeposition from Organic Solutions", Nucl. Instr. and Methods, [115], P. 75 (1974)
- 10) Mullen G and Aumann D. C. : "Preparation of Targets of Np, Pu, Am, Cm and Cf by Electrodeposition from Organic Solution", 同上, [128], P. 425, (1975)
- 11) 岡崎修二, 河野信昭, 篠原伸夫 : 放射化学討論会, 2A04 (1980)
- 12) Johnson R. H. et al. : "Heterogeneity Effects on Reaction Rates Measured in the Advanced Fuels Program Oxide", ANS Trans. Vol. 30, P. 704 (1978)
- 13) Davey W. G. and Curran R. N. : "An experimental investigation of some source of errors in the measurement of absolute fission ratios in fast reactors (1961)
- 14) Littmark U. and Ziegler J. F. : Handbook of Range Distributions

理研究室長黒井英雄氏に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) Kuroi H. : "Tentative Program of FCA Assembly 1X (Integral Measurements of Actinide elements), private communication
- 2) Mukaiyama T. et al. : "Evaluation of Actinide Cross Sections by Integral Measurements in Fast Critical Assembly FCA", Proc. of Intern. Conf. on Nuclear Cross Sections for Technology, ED3, Knoxville, (1979)
- 3) 向山武彦 : "アクチニド核種断面積の積分測定による評価", 日本原子力学会・炉物理連絡会会報, 炉物理の研究, 29, 6月(1980)
- 4) Sweet D. W. : "Actinide Fission Rate Measurements in ZEBRA", AEEW-R 1090 (1977)
- 5) Grundle J. A. et al. : "Measurement of Absolute Fission Rates", Nucl. Technol., [25], P. 237, (1975)
- 6) Sweet D. W. : "The Calibration of Fission Chambers for Fast Reactor Experiments", AEEW-R936, (1974)
- 7) Stevenson J. M. and Broomfield A. M. : "Measurement and Calculations of Ratios of Effective Fission Cross-Section in the Zero Power Fast Reactor, ZEBRA", AEEW-R526, (1967)
- 8) Amundson P. I. et al. : "An International Comparison of Fission Detector Standards", ANL-7320, P. 679, (1966)
- 9) Aumann D. C. and Mullen G. : "Preparation of Targets of Ca, Ba, Fe, La, Pb, Tl, Bi, Th and U by Electrodeposition from Organic Solutions", Nucl. Instr. and Methods, [115], P. 75 (1974)
- 10) Mullen G and Aumann D. C. : "Preparation of Targets of Np, Pu, Am, Cm and Cf by Electrodeposition from Organic Solution", 同上, [128], P. 425, (1975)
- 11) 岡崎修二, 河野信昭, 篠原伸夫 : 放射化学討論会, 2A04 (1980)
- 12) Johnson R. H. et al. : "Heterogeneity Effects on Reaction Rates Measured in the Advanced Fuels Program Oxide", ANS Trans. Vol. 30, P. 704 (1978)
- 13) Davey W. G. and Curran R. N. : "An experimental investigation of some source of errors in the measurement of absolute fission ratios in fast reactors (1961)
- 14) Littmark U. and Ziegler J. F. : Handbook of Range Distributions

for Energetic ions in All Elements, Vol. 6, Pergamon Press.

- 15) 岡崎修二, 河野信昭, 篠原伸夫: "アクチノイド核種を用いた核分裂計数管・その(2), 電着ソースの作製", 日本原子力学会, 昭和56年秋の分科会, C44, (出版中), (1981)
- 16) Lorenz A., ed.: "Proposed Recommended List of Transactinium Isotope Decay Data, Part I. Half-lives", INDC(NDS)-121/NE, IAEA, (1980)
- 17) White P. H.: "Measurements of the ^{235}U Neutron Fission Cross Section in the Energy Range 0.04-14 MeV", J. of Nucl. Ener. parts A/B, Vol. 19, P. 325 (1965)
- 18) Kahn S. et al: "Energy Distributions of Fission Fragments from Uranium Dioxide Films", Nucl. Sci. Eng., 23, P. 8 (1965)

Table 1 α half-lives of fissile isotopes

Isotope	Half-life (years) [†]	Isotope	Half-life (years) [†]
²³⁴ U	(2.446 ± 0.007) × 10 ⁵	²⁴² Pu	(3.76 ± 0.02) × 10 ⁵
²³⁷ Np	(2.14 ± 0.01) × 10 ⁶	²⁴¹ Am	(432.6 ± 0.6)
²³⁸ Pu	(87.74 ± 0.09)	²⁴³ Am	(7.38 ± 0.04) × 10 ³
²³⁹ Pu	(2.411 ± 0.003) × 10 ⁴	²⁴⁴ Cm	(18.11 ± 0.02)
²⁴⁰ Pu	(6.55 ± 0.02) × 10 ³	²⁴⁵ Cm	(8.5 ± 0.1) × 10 ³
²⁴¹ Pu ^{††}	(6.00 ± 0.25) × 10 ⁵	²⁴⁶ Cm	(4.73 ± 0.1) × 10 ³

† From Ref. (16)

†† For ²⁴¹Pu, a half-life of 14.7 ± 0.4 years from β⁻ decay is used for isotopic analysis.

Table 3 Isotopic content of materials used for deposited foils in FCA

Principal isotope	atom %		Principal isotope	atom %	
U235	U234	1.081	Am243	Am241	0.02
	U235	93.335		Am243	99.64
	U236	0.203		Cm244	0.35
	U238	5.381			
Np237	Np237	100	Am241	Am241	100
	(Pu239	1.3x10 ⁻⁷)			
Pu238	Pu238	79.04		Pu240	1.51
	Pu239	17.12		Am243	1.06
	Pu240	3.28	Cm244	Cm244	91.38
	Pu241	0.40		Cm245	—
	Pu242	0.15		Cm246	6.06
				Cm248	—
Pu239	Pu238	0.009		Pu238	0.003
	Pu239	96.767		Pu239	0.019
	Pu240	3.154	Pu242	Pu240	0.084
	Pu241	0.071		Pu241	0.054
	Pu242	0.003		Pu242	99.834
				Am241	0.002

Table 2 Composition of fissile isotopes in deposits used in fission chambers

Chamber number	Principal isotope	Total fissile mass of metal (μg)*	Number of atoms in isotopes** ($\times 10^{15}$)						Date of measurement
			²³⁴ U	²³⁵ U	²³⁶ U	²³⁸ U	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am	
U-1	²³⁵ U	61.4 \pm 2.1%	1.7	146.9	0.3	8.5			25, Jun. '80
U-2	²³⁵ U	121.1 \pm 1.5%	3.4	289.5	0.6	16.7			"
U-3	²³⁵ U	179.2 \pm 1.5%	5.0	428.2	0.9	24.7			"
			²³⁷ Np						
Np-2	²³⁷ Np	77.85 \pm 1.5%	197.8	<3 $\times 10^{-7}$					10, Apr. '80
Np-3	²³⁷ Np	85.05 \pm 1.5%	216.1	<3 $\times 10^{-7}$					"
			²³⁸ Pu						
Pu-1	²³⁸ Pu	2.424 \pm 1.5%	4.843	1.049	0.201	0.025	0.009	0.009	12, Aug. '79
Pu-2	²³⁹ Pu	40.15 \pm 1.5%	0.01	97.86	3.19	0.07	0.003	0.003	20, Aug. '80
Pu-3	²³⁹ Pu	40.68 \pm 1.5%	0.01	99.16	3.41	0.07	0.003	0.003	20, Aug. '80
Pu-5	²⁴² Pu	37.11 \pm 1.5%	0.002	0.02	0.08	0.05	92.20	0.002	20, Apr. '79
Pu-6	²⁴² Pu	80.80 \pm 1.5%	0.005	0.04	0.17	0.11	200.7	0.004	20, Apr. '79
			²⁴¹ Am						
Am-1	²⁴¹ Am	10.91 \pm 1.5%	27.25	—	—	—	—	—	19, Aug. '80
Am-2	²⁴³ Am	44.89 \pm 1.5%	0.02	110.8	0.4				"
			²⁴⁰ Pu						
Cm-1	²⁴⁴ Cm	1.612 \pm 3.0%	0.060 \pm 20%	0.042 \pm 30%	3.634	<0.025	0.241 \pm 4%	246Cm	21, Aug. '80
					244Cm	245Cm	246Cm	248Cm	

* Percent errors are estimated as 3 σ .

** Uncertainties of principal isotopes is nearly equal to percent error of total fissile masses listed.

Table 4 Fission chamber sensitivities at the center of FCA IX-1 core

Chamber No.	Principal isotope	Fission counts [†] (cps)	Reactor power (W)	Fission counts ^{††} (cps/W)
U-1	²³⁵ U	212.4	10	21.2
U-2	²³⁵ U	421.4	10	42.1
Np-2	²³⁷ Np	56.6	10	5.7
Pu-1	²³⁸ Pu	14.0	20	1.4
Pu-2	²³⁹ Pu	137.5	10	13.8
Pu-5	²⁴² Pu	20.3	10	2.0
Am-1	²⁴¹ Am	14.7	20	1.5
Am-2	²⁴³ Am	23.3	10	2.3
Cm-1	²⁴⁴ Cm	34.5 ^{†††}	200	0.14
Spontaneous fission of ²⁴⁴ Cm		6.38	—	—

† Total counts from fissile isotopes

†† Reactor power of 1 W is of the order of neutron flux $\sim 1 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$

††† Including spontaneous fission events

Table 5 Contribution of fissile isotopes to total fission counts for FCA IX-2 core

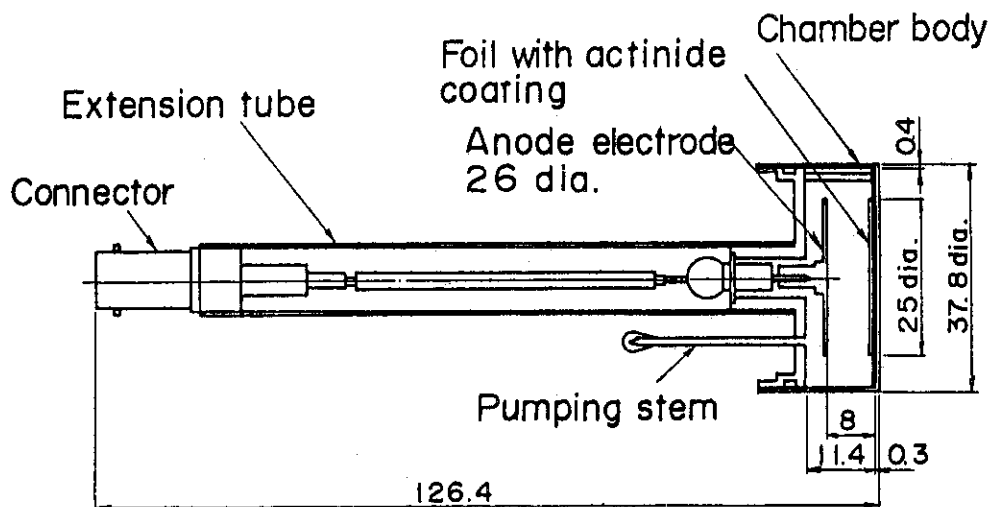
Principal isotope in chamber	Percent contribution from each isotope (%)				
	²³⁵ U	²³⁸ U			
²³⁵ U	99.8	0.2			
	²³⁸ Pu	²³⁹ Pu	²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu	²⁴² Pu
²³⁸ Pu	77.6	20.8	0.9	0.6	—
²³⁹ Pu	—	99.2	0.7	0.1	—
²⁴² Pu	—	0.1	0.1	0.5	99.3
	²⁴³ Am	²⁴⁴ Cm	²⁴⁰ Pu	²⁴⁶ Cm	
²⁴³ Am	99.4	0.6	—	—	
²⁴⁴ Cm	0.6	93.4	1.4	4.5	

Table 6 Uncertainty of fission rate introduced by individuality of chambers

Chamber number	Principal isotope	Fission counts per monitor	Contribution of principal isotope	Number of atoms ($\times 10^{17}$)	Fission rate / (atom·monitor) ($\times 10^{-17}$)
U-1		1.124 \pm 0.3%		1.469 \pm 2.1%	0.7636 \pm 2.1%
U-2	^{235}U	2.226 \pm 0.3%	0.998	2.895 \pm 1.5%	0.7674 \pm 1.5%
U-3		3.253 \pm 0.2%		4.282 \pm 1.5%	0.7582 \pm 1.5%
Np-2	^{237}Np	0.2988 \pm 0.3%	1.000	1.978 \pm 1.5%	0.1511 \pm 1.5%
Np-3		0.3208 \pm 0.4%		2.161 \pm 1.5%	0.1484 \pm 1.6%
Pu-2	^{239}Pu	0.7268 \pm 0.4%	0.992	0.979 \pm 1.5%	0.7365 \pm 1.6%
Pu-3		0.7266 \pm 0.4%		0.992 \pm 1.5%	0.7266 \pm 1.6%
Pu-5	^{242}Pu	0.1073 \pm 0.3%	0.993	0.922 \pm 1.5%	0.1156 \pm 1.5%
Pu-6		0.2349 \pm 0.3%		2.007 \pm 1.5%	0.1162 \pm 1.5%

Table 7 Fission rate per atom normalized to counts of power monitor

Chamber number	Principal isotope	Fission counts per monitor	Contribution of principal isotope	Number of atoms ($\times 10^{17}$)	Fission rate / (atom·monitor) ($\times 10^{-17}$)
Pu-1	^{238}Pu	0.03718 \pm 0.5%	0.776	0.0484 \pm 1.5%	0.5960 \pm 3.6%
Am-1	^{241}Am	0.03905 \pm 0.4%	1.000	0.2725 \pm 1.5%	0.1433 \pm 1.6%
Am-2	^{243}Am	0.1231 \pm 0.2%	0.994	1.108 \pm 1.5%	0.1086 \pm 4.5%
Cm-1	^{244}Cm	0.02657 \pm 0.8%	0.934	0.0363 \pm 3.0%	0.1911 \pm 3.8%



Dimensions in mm

Fig. 1 Configuration of fission chamber

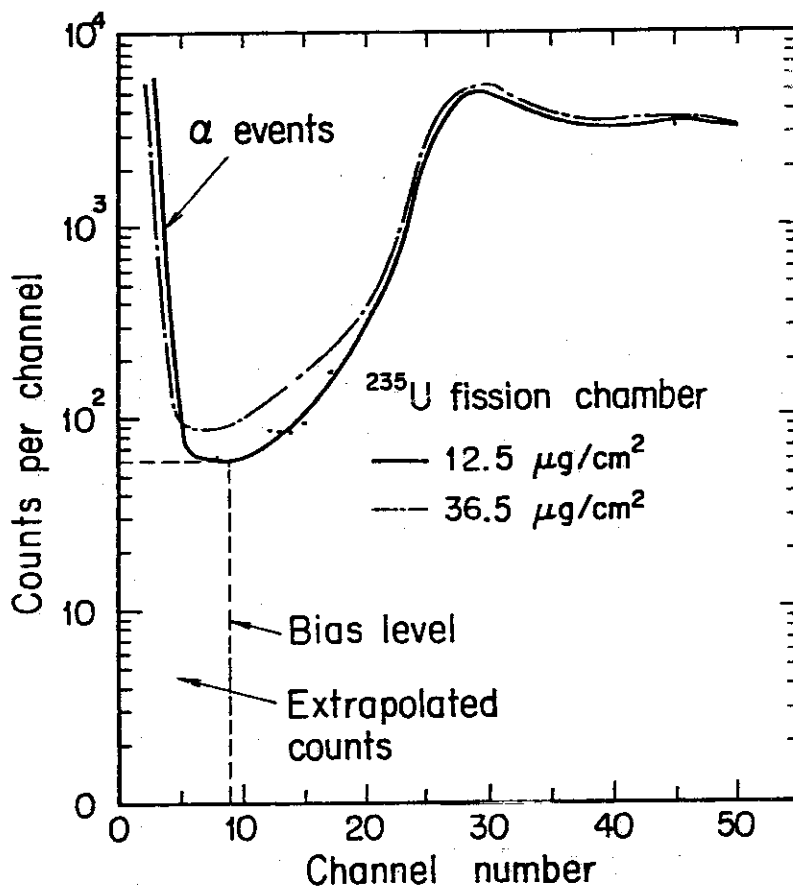


Fig. 2 Fission pulse height distributions near bias level for ^{235}U deposits with different thicknesses

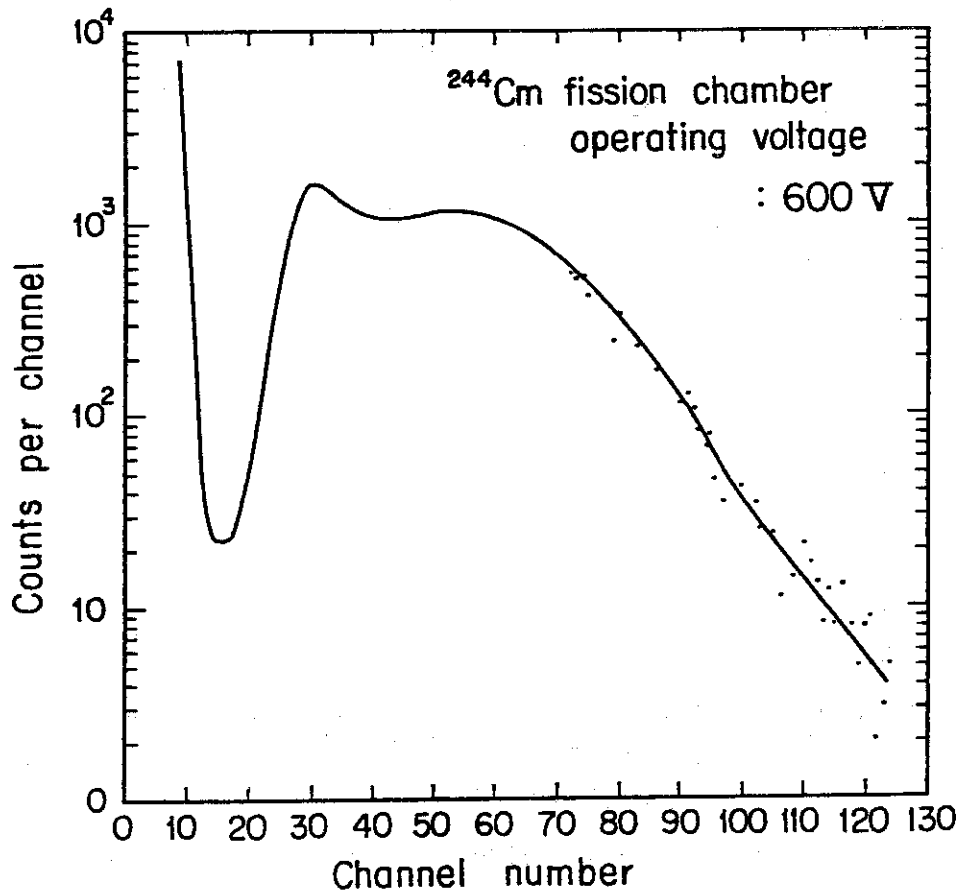


Fig. 3a Fission pulse height distribution of ^{244}Cm

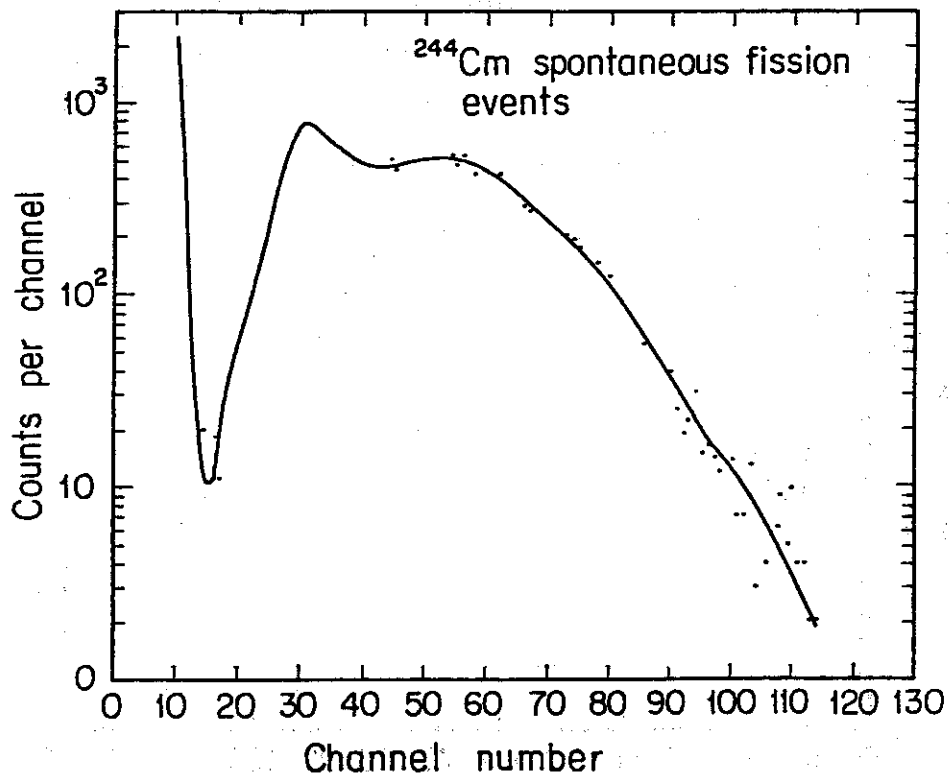


Fig. 3b Pulse height distribution of ^{244}Cm spontaneous fission from chamber

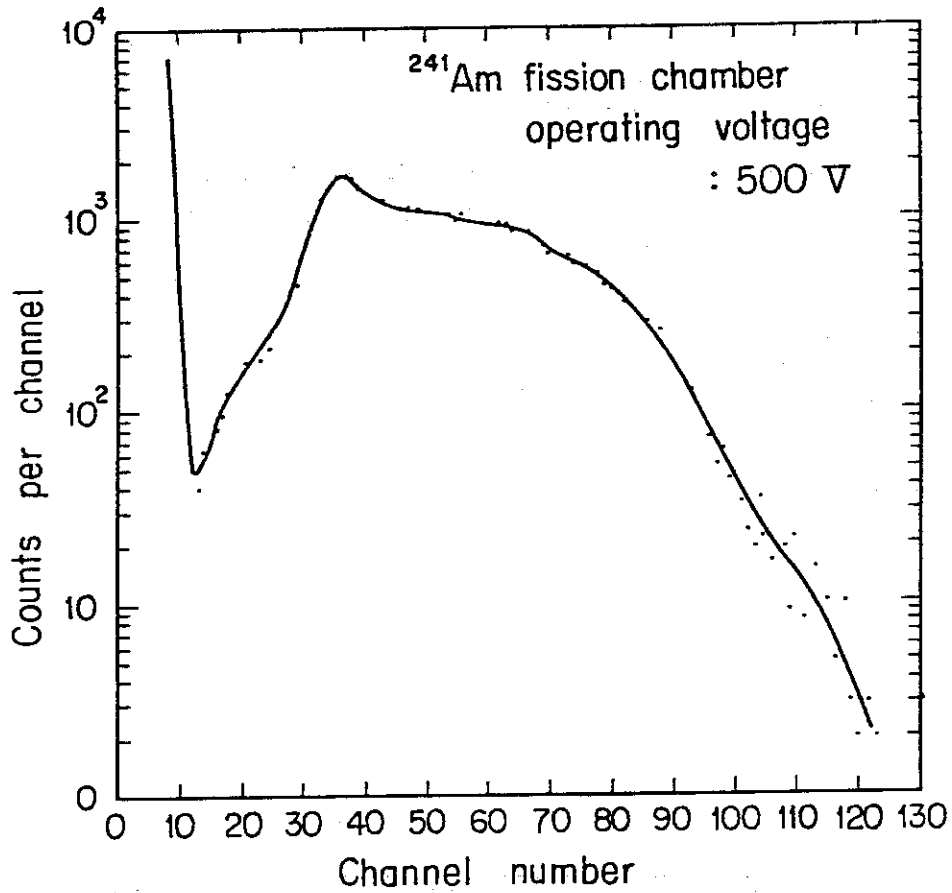


Fig. 4 Fission pulse height distribution of ^{241}Am

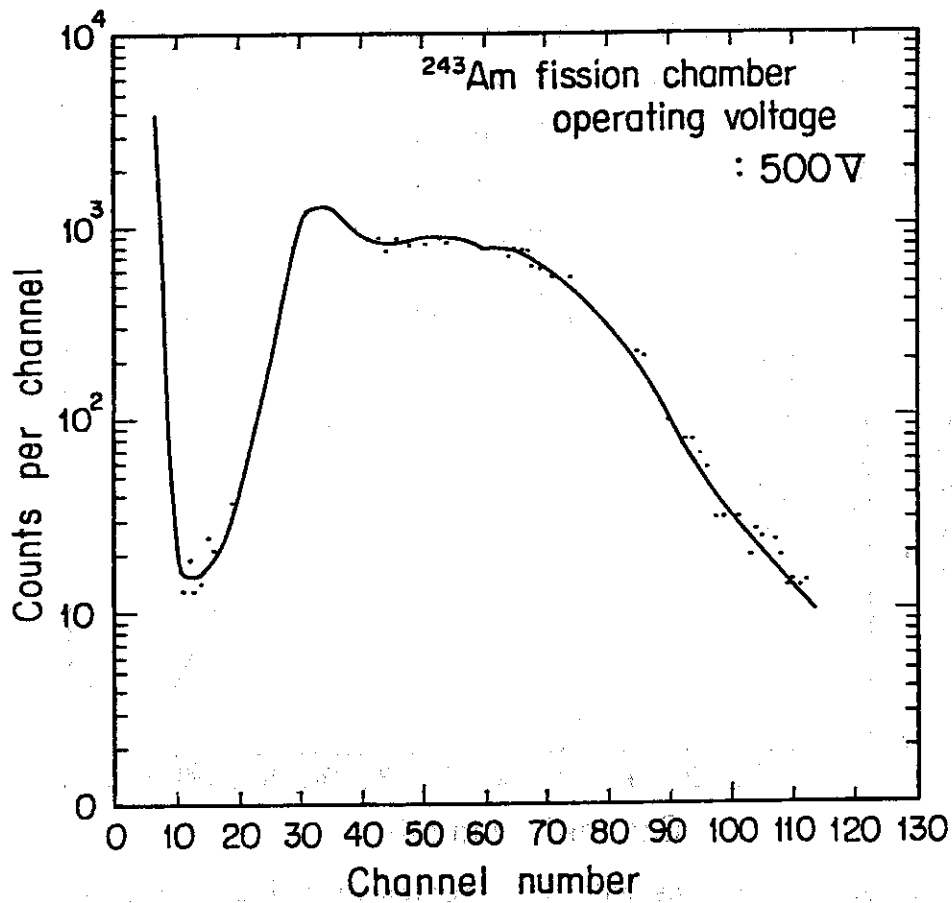


Fig. 5 Fission pulse height distribution of ^{243}Am