

宇宙核物理連絡協議会主催 第2回研究戦略ワークショップ
「日本の核データ～天と地の核エネルギー」

革新的原子力システム開発 のための中性子核データ測定

原田秀郎

Japan Atomic Energy Agency

harada.hideo@jaea.go.jp

序論

革新的原子カシステムと中性子核データ
中性子核データの現状
中性子核データ測定の難しさ

誤差低減に向けた実験的取り組み

— 中性子捕獲断面積測定を中心に —
中性子源
中性子捕獲反応用検出器系
原子炉中性子を用いた測定
独立測定的重要性

今後の展望

革新的原子力システムとは

革新的原子力システム：革新的な原子炉及び核燃料サイクル

現行の軽水炉システムの持つ限界を超える

(1) 核燃料資源の有効利用

高速増殖炉サイクルの実用化

(2) 電力需要及び設備投資に対する柔軟性

小型モジュール炉等

(3) 経済性の大幅な向上

高燃焼度化による燃料サイクル費の低減等

(4) 原子力エネルギーの多様な利用 水素製造等

(5) 優れた安全性

(6) 環境負荷の低減 長寿命核種の核変換等

(7) 核拡散抵抗性の向上 MA/FP等放射性核種の混入 等

各種コンセプト：原子力委員会研究開発専門部会革新炉検討会 平成14年11月7日

どのくらいの精度の中性子核データが求められているのか

OECD/NEA Report (2008), NEA/WPEC-26より
“Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative
Systems using Recent Covariance Data Evaluations”
各革新的原子力システムの開発に求められる
核データ精度についての報告

加速器駆動MA燃焼システムの場合の要求精度例： ^{244}Cm

核種	核データの種 類	重要エネルギー領域	現状精度 (%)	要求精度 (%)
^{244}Cm	中性子捕獲 断面積	9 keV ~ 498 keV	20	6
	核分裂断面積	67 keV ~ 6 MeV	45	2
	核分裂当り中 性子発生数	183 keV ~ 6 MeV	10	1

中性子核データの現状

実験データと評価データの関係

Thermal neutron capture cross section

	References	$^{107}\text{Pd}(n, \gamma)$
Exp	J, NST, 44, 103 (2007)	9.16 ± 0.27 b
Eva 1	Mughabghab(1981)	1.8 ± 0.2 b
	Mughabghab(2006)	2.54 ± 0.20 b
Eva 2	JENDL-3.3 (2002)	2.007 b

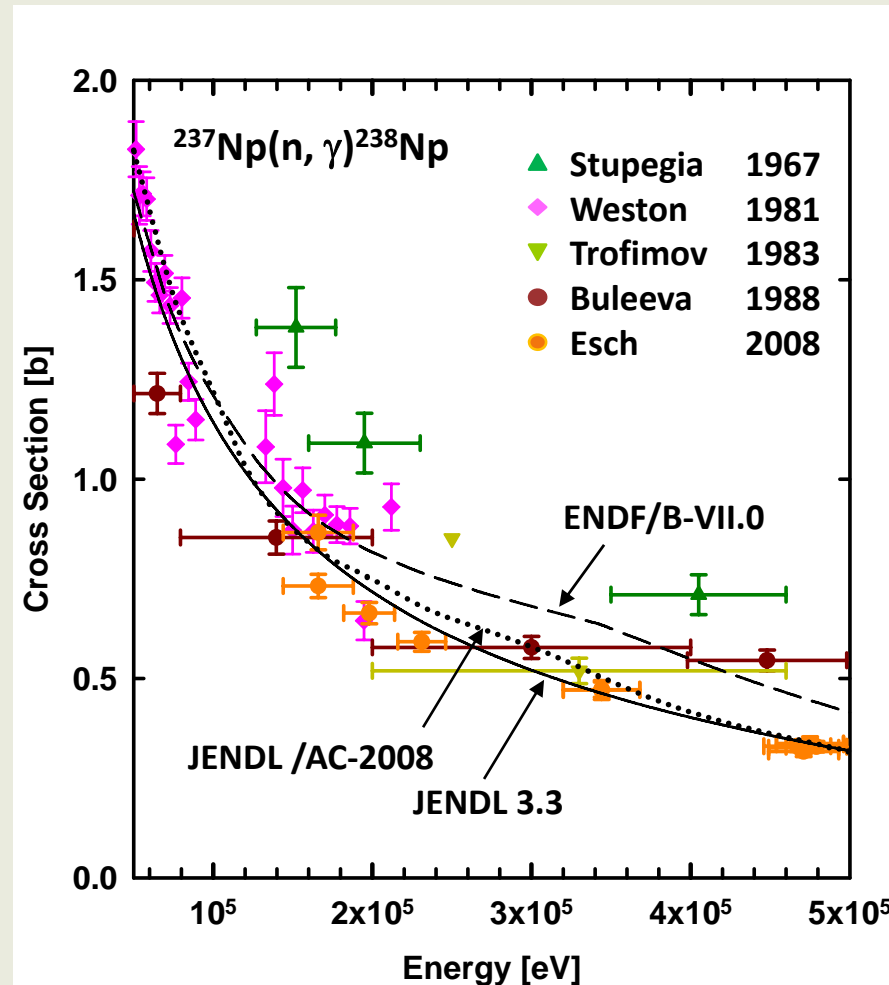
中性子核データの現状

評価データの誤差

References	$^{244}\text{Cm}(n, f)$ 0.5-1.35 MeV	$^{237}\text{Np}(n, \gamma)$ 0.5-1.35 MeV
J. NSE, 146, 13 2004 ANL	40 %	15 %
JENDL-3.3 2002 JAEA	7.7 %	3.4 %

中性子核データの現状

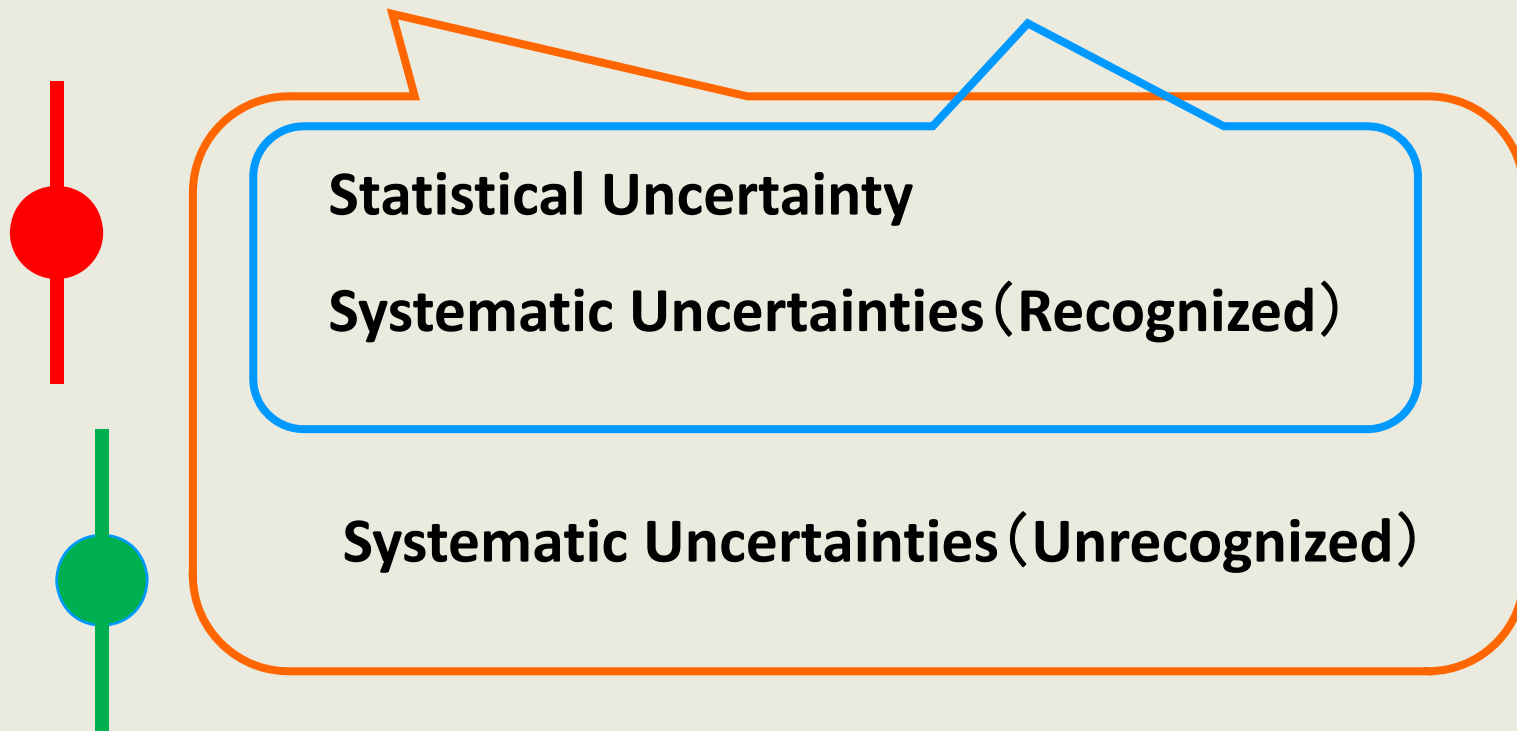
実験データの現状



Uncertainties in Experiments

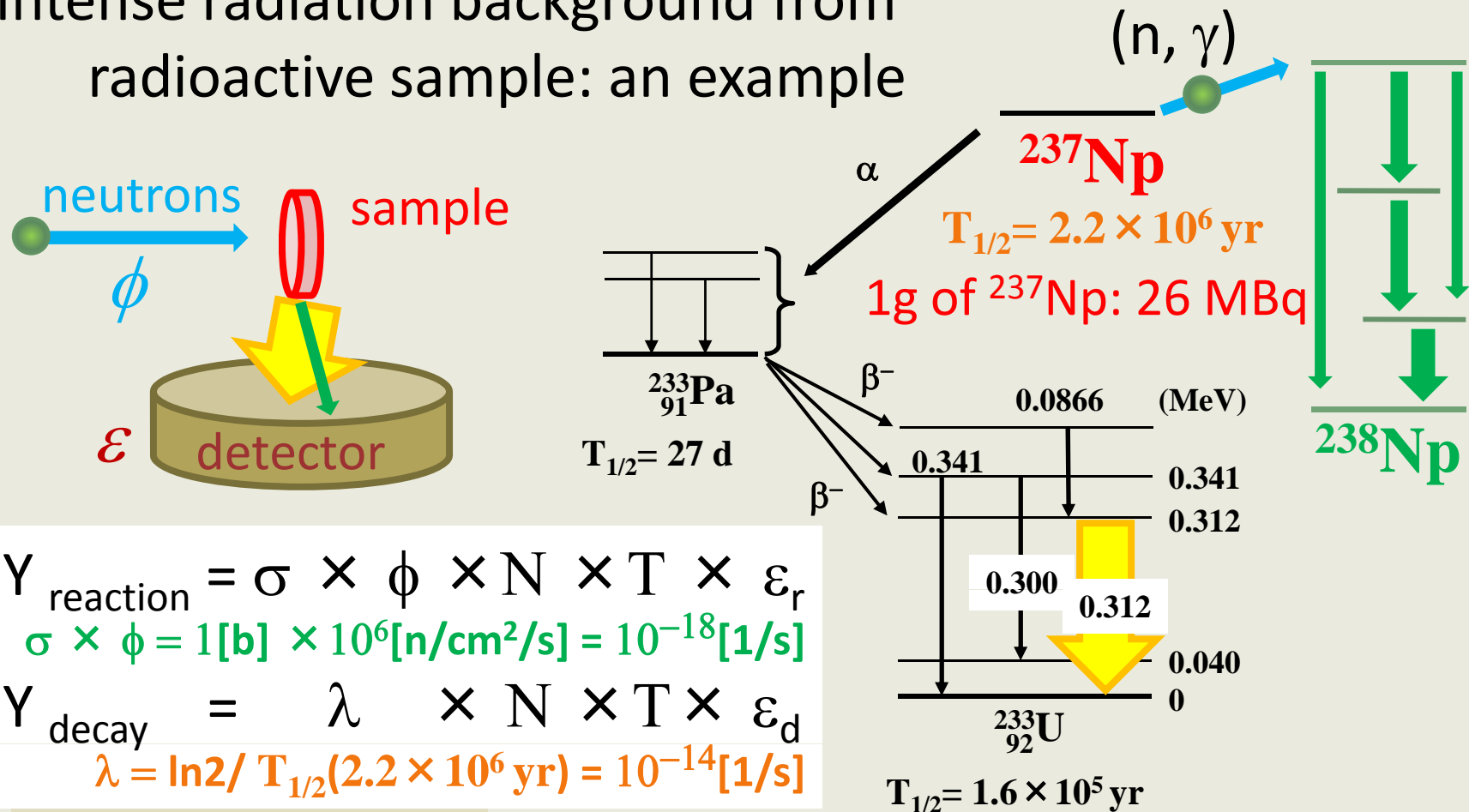
Realistic Uncertainties

Reported Uncertainties



放射性核種の中性子核データ 測定は何故難しいのか

Intense radiation background from
radioactive sample: an example



$$Y_{\text{reaction}} = \sigma \times \phi \times N \times T \times \epsilon_r$$

$$\sigma \times \phi = 1 [\text{b}] \times 10^6 [\text{n/cm}^2/\text{s}] = 10^{-18} [\text{1/s}]$$

$$Y_{\text{decay}} = \lambda \times N \times T \times \epsilon_d$$

$$\lambda = \ln 2 / T_{1/2} (2.2 \times 10^6 \text{ yr}) = 10^{-14} [\text{1/s}]$$

Simplified estimation

宇宙核物理連絡協議会 090729 理研

誤差低減に向けた実験的取り組み — 中性子捕獲断面積測定を中心に —

I Neutron sources

Pulsed neutrons and reactor neutrons

II Detectors

C_6D_6 , NaI, 4π detectors, and new scintillators

III Traditional *and New Methods*

Activation methods

Inverse reactions, Surrogate reactions, ... (略)

Neutron Sources

Accelerator:

Electron beam	⇒	(γ , n) reaction ~0.3n/GeV
High-energy proton beam	⇒	Spallation reaction ~ 25n/GeV
Low-energy proton beam	⇒	^{45}Sc , ^7Li , T(p, n) reactions*

Reactor:

Thermal reactor	}	⇒	High Flux
Fast reactor			

* <http://www3.tokai-sc.jaea.go.jp/rphpwww/senryo/index2.htm>

Pulsed neutron sources used for TOF

Facility Reference	Beam energy	Beam power n Intensity	Beam pulse width Pulse per sec	Flux
IRMM, GELINA ND2007, p.563	Electron 100 MeV	6 kW	1 ns 800 Hz	@ 12 m
ORNL, ORELA ND2007, p.441	Electron 180 MeV	5 kW 10^{13} n/s	8 ns 525 Hz	@ 40 m
Kyoto, e Linac ND2007, p.591	Electron 30 MeV	1 kW	100 ns 100 Hz	@ 10 m
CERN, n-TOF ND2007, p.537	Proton 20 GeV	9 kW 10^{15} n/s	6 ns 0.4 Hz	4×10^5 n/cm ² /s @ 185 m
LANL, Lujan ND2007, p.415	Proton 0.8 GeV	80 kW	135 ns 20 Hz	@ 20 m
J-PARC, MLF (Expected)	Proton 3 GeV	1 MW $\sim 10^{17}$ n/s	~ 100 ns 25 Hz	$\sim 10^9$ n/cm ² /s @ 22 m

Pulsed neutron sources @ J-PARC



MLF, BL04: NNRI (Neutron Nucleus Reaction Instrument)
First Beam: May 30, 2008

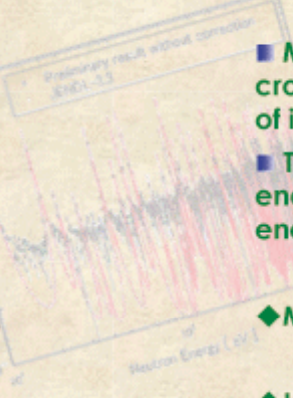
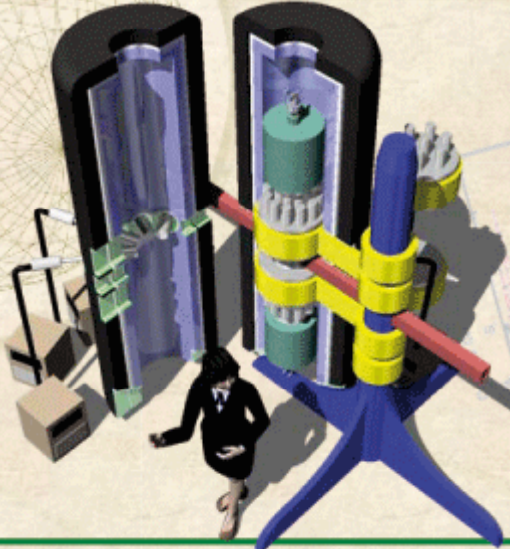
<http://j-parc.jp/index-e.html>

<http://www.ndc.jaea.go.jp/JNDC/ND-news/pdf91/No91-04.pdf>

Nuclear Data Measurements @ J-PARC

- Neutron-Nucleus Reaction Instrument (NNRI) -

BL4, MLF@J-PARC
Contact person: Y. Kiyanagi(kiyanagi@qe.eng.hokudai.ac.jp)



- Measurement of neutron capture cross sections needed for the design of innovative reactors
- The neutron time-of-flight method enables the measurement in a wide energy range
- ◆ Minor actinides
 ^{244}Cm , ^{246}Cm , etc.
- ◆ Long lived fission products
 ^{129}I , ^{99}Tc , ^{93}Zr , etc.

Specification

- Coupled moderator (liquid H_2)
- Flight Path: $L_1 = 22$ m(4π Ge spectrometer)
 $L_1 = 28$ m(NaI scintillator)
 $L_1 = 29$ m(Neutron monitor)
- Neutron Energy: $0.01\text{ eV} < E_n < 100$ keV
- T_0 chopper: at 13 m
- Disk chopper: at 15 m

γ -ray detectors

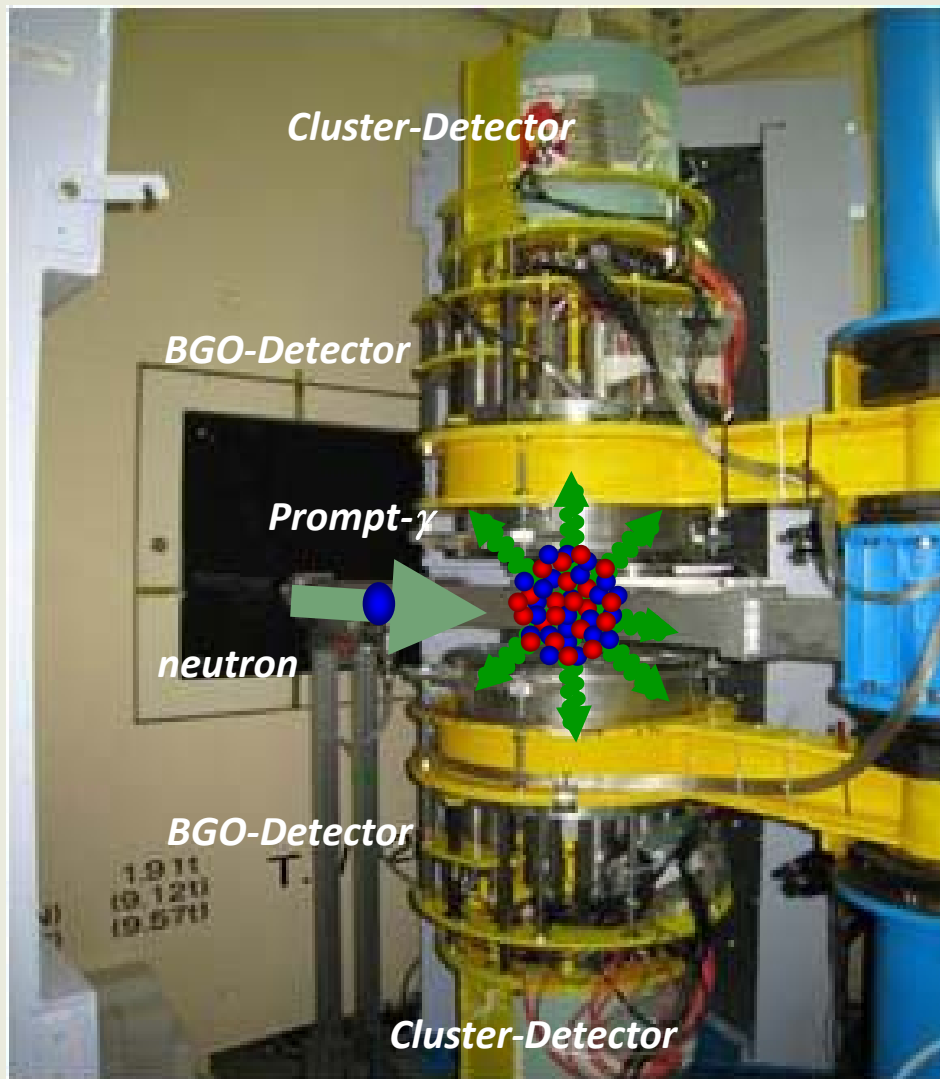
To deduce neutron capture cross sections, prompt γ -rays after the neutron capture reaction are measured with ...

- High energy-resolution 4π Ge spectrometer
*Energy resolution: $E_\gamma/\Delta E_\gamma = 1,000$
*Detection efficiency: 10-15% at 1 MeV
- Fast NaI scintillation detector

This study was the result of "Study on nuclear data by using a high intensity pulsed neutron source for advanced nuclear system" entrusted by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan (MEXT).

<http://j-parc.jp/MatLife/en/instrumentation/bl04/BL04.html>

Nuclear Data Measurements @ J-PARC



^{244}Cm , $T_{1/2}=18.1$ years
0.6 mg, 1.8 GBq
Beam Power 20kW

略

^{244}Cm のTOFスペクトル

本研究は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、北海道大学が実施した平成21年度「高強度パルス中性子源を用いた革新的原子炉用核データの研究開発」の成果です。

Detectors for Capture

Detectors for Capture in combination

with Pulse Height Weighting Technique

C_6D_6	⇒	low neutron sensitivity
NaI	⇒	good energy resolution
Ge	⇒	high energy resolution, γ spectroscopy

Detectors for Capture : 4π type detector

BaF ₂	⇒	high efficiency, highly segmented
BGO	⇒	high efficiency
Ge	⇒	high energy resolution, γ spectroscopy

New scintillators

⇒ **LaBr₃(Ce), LaCl₃(Ce)**

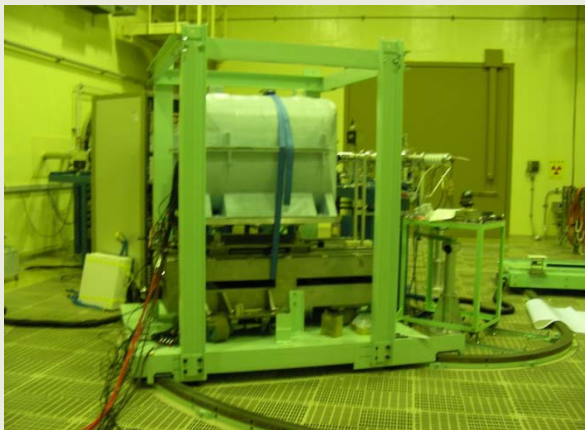
Detectors for Capture in combination with Pulse Height Weighting Technique

C_6D_6 \mapsto low neutron sensitivity

J.L. Tain (n-TOF): "Accuracy of the pulse height weighting technique for capture cross-section measurements", n_TOF Internal Note IFIC-2000-1

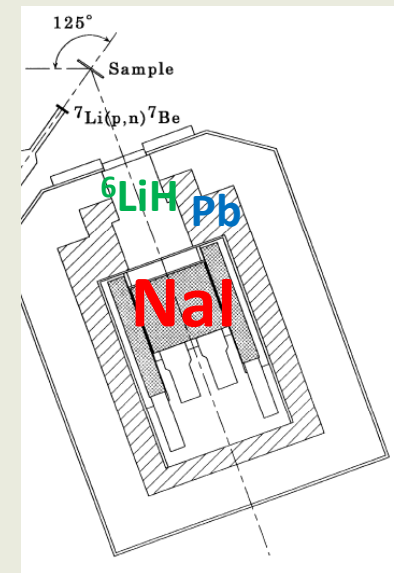
A. Borella et al.(IRMM): "The use of C_6D_6 detectors for neutron induced capture cross-section measurements in the resonance region", NIM A577 (2007) 626. \mapsto σ_{cap} can be deduced with an uncertainty of 2 %

NaI \mapsto good energy resolution
low background



${}^7Li(p, n){}^7Be$ 10-100 keV
($E_p=1.905MeV$) available
at JAEA Tokai

[http://www1.bipm.org/cc/CCRI\(III\)/Allowed/15/CCRI\(III\)03-07.pdf](http://www1.bipm.org/cc/CCRI(III)/Allowed/15/CCRI(III)03-07.pdf)



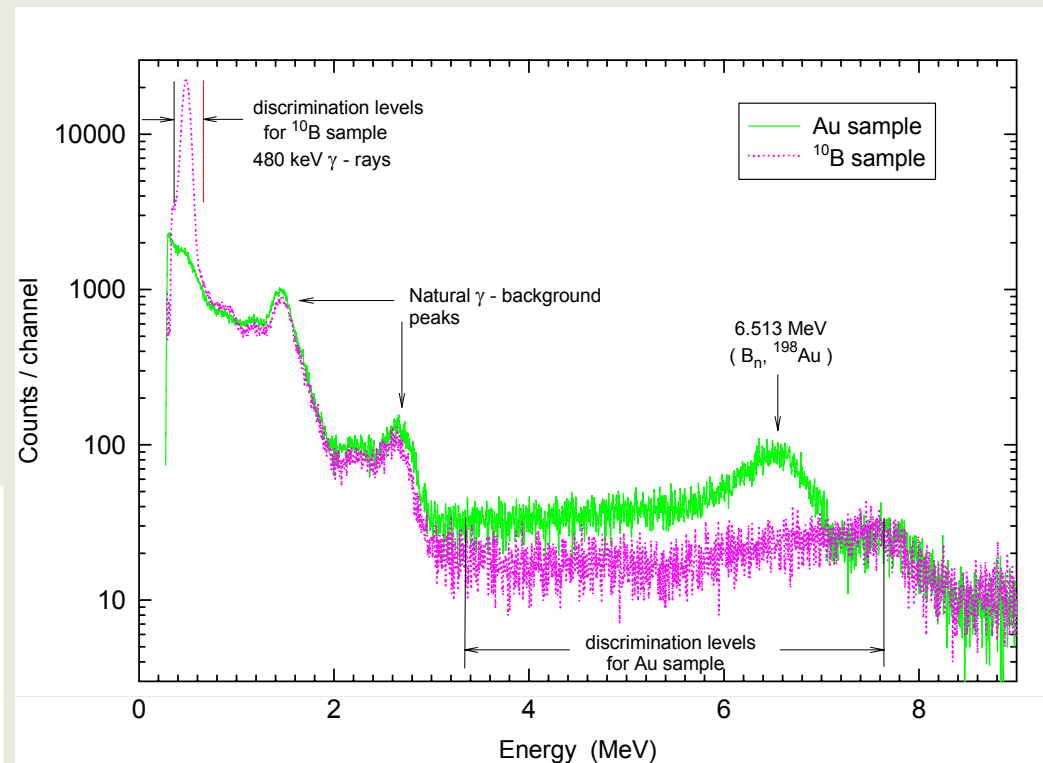
See also M. Igashira et al., ND2007, p.616, p.1299 (Tokyo Tech.)

Detectors for Capture : 4π type detectors

- BaF₂** \mapsto high efficiency, highly segmented
TAC (n-TOF) ND2007, p.595, p.627
DANCE (LANL) ND2007, p.415, p.491, p.607
- BGO** \mapsto high efficiency
- Ge** \mapsto high energy resolution, γ spectroscopy



The 8.54 l BGO 16-section scintillation detector: NIM A517 (2004) 269
Used for $^{237}\text{Np}(n, \gamma)$: JNST 42 (2005) 135



LaBr₃(Ce)を用いた中性子捕獲断面積測定用 スペクトロメータの基盤技術開発

3" × 3" LaBr₃(Ce)検出器の基礎特性試験

⁴⁸Ti(n, γ)反応の即発ガンマ線
波高スペクトル

略

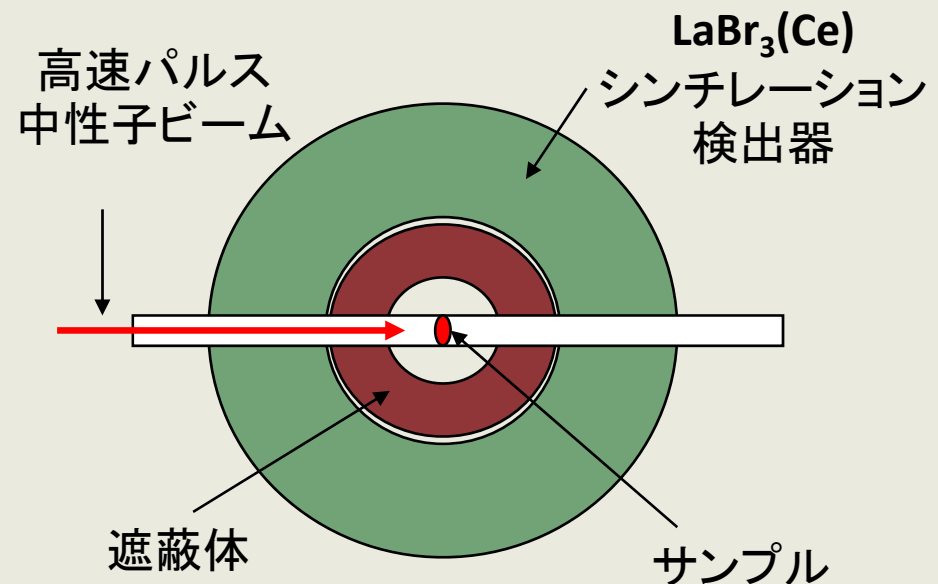


本研究は、科学研究費補助金(基盤研究(B))「核変換研究のための高速中性子捕獲微分断面積の高精度測定技術の開発」の成果です。

LaBr₃(Ce)を用いた中性子捕獲断面積測定用 スペクトロメータの基盤技術開発

エネルギー分解能の測定結果

略

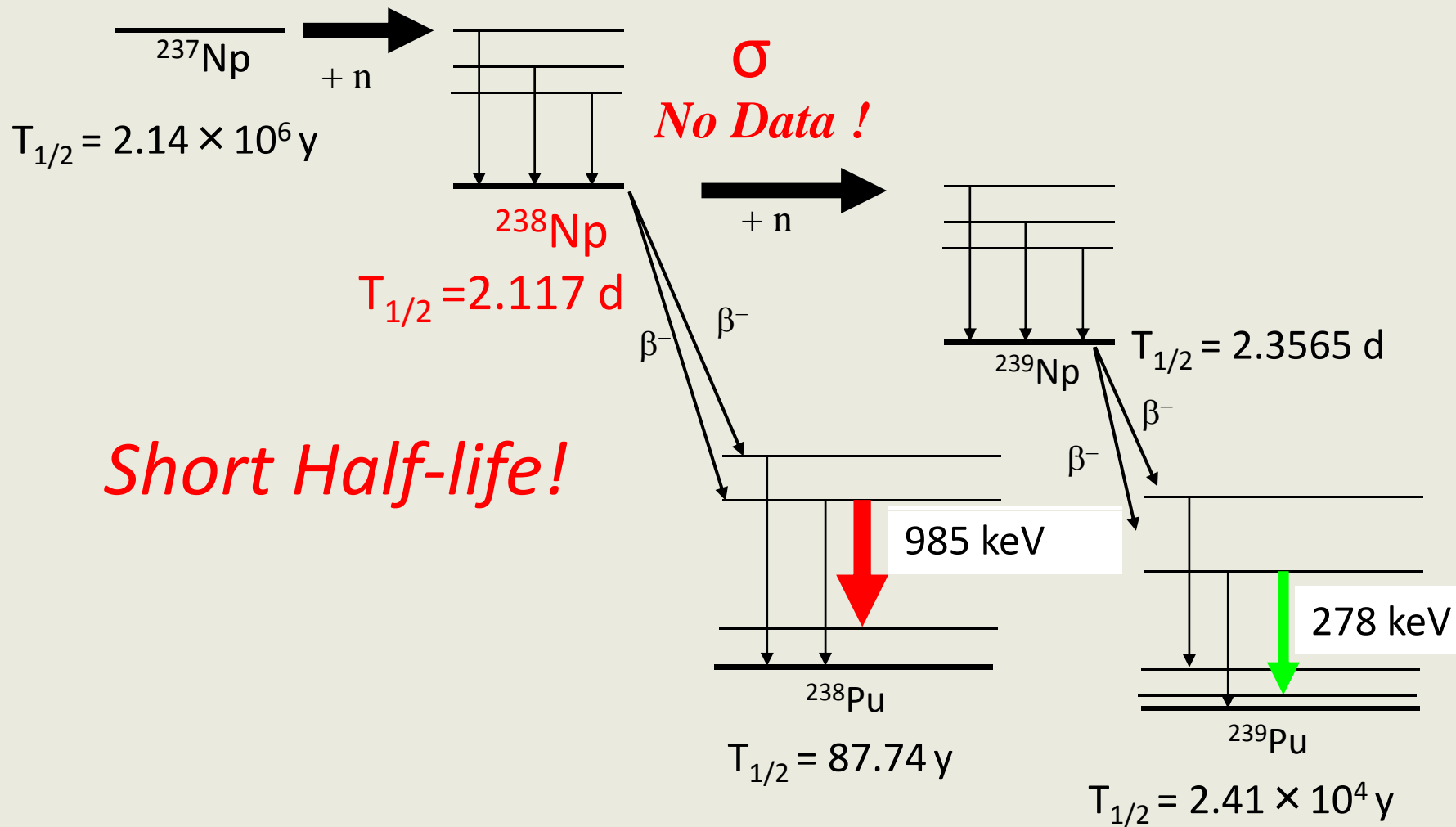


詳細シミュレーション

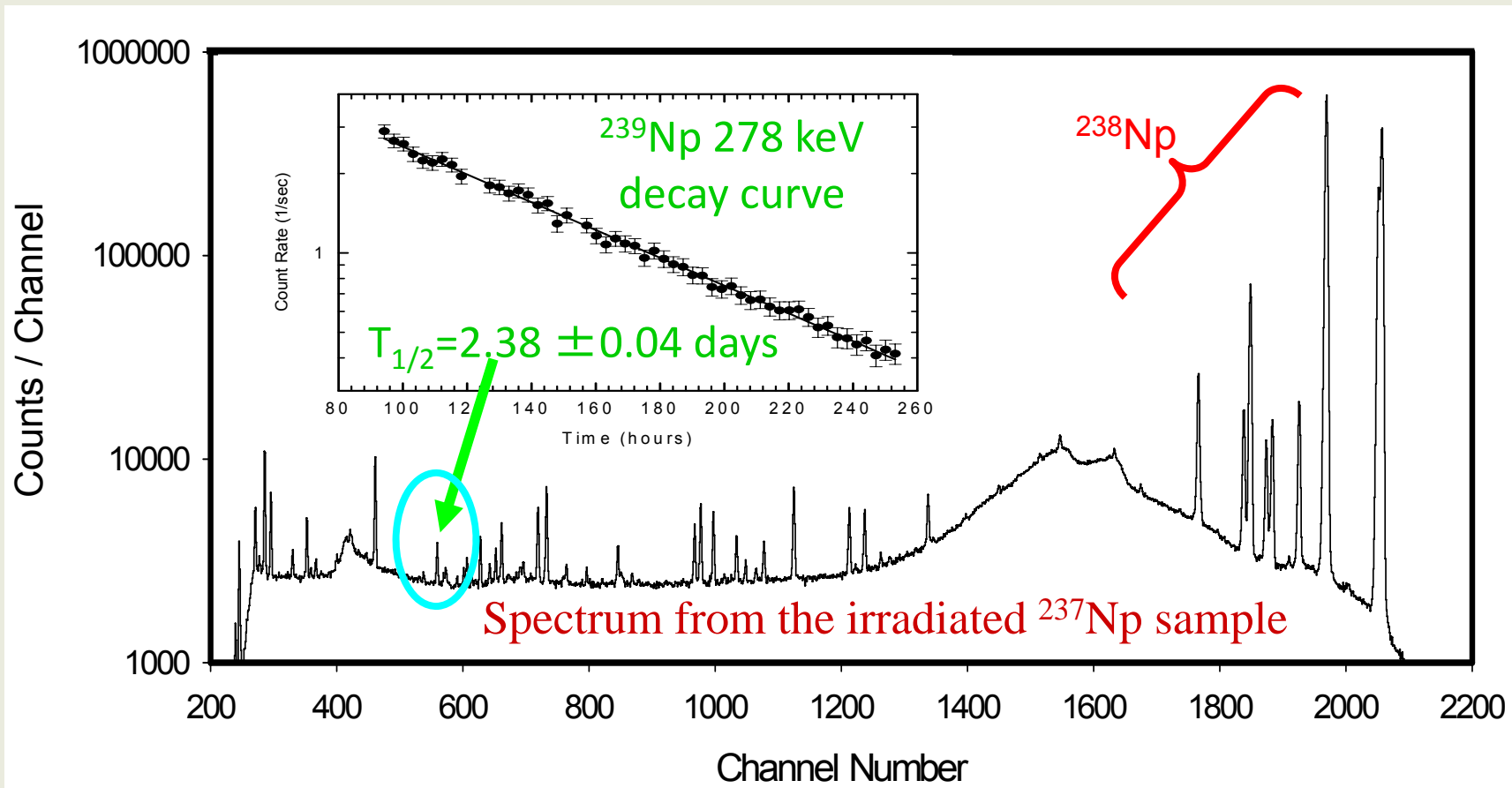
本研究は、科学研究費補助金(基盤研究(B))「核変換研究のための
高速中性子捕獲微分断面積の高精度測定技術の開発」の成果です。

原子炉中性子を用いた測定例

High Flux \rightarrow multiple neutron capture reactions

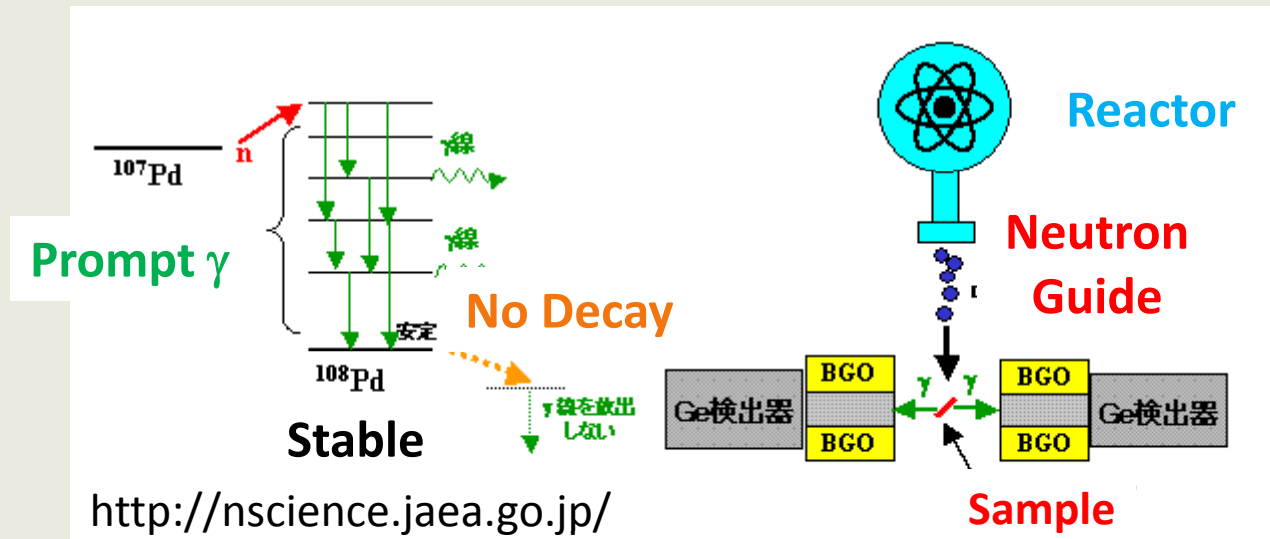


Example: Advantage of reactor neutrons multiple neutron capture reactions



$\sigma = 479 \pm 24$ [b] : $^{238}\text{Np}(n, \gamma)$ for thermal neutrons
H. Harada et al., J. Nucl. Sci. Technol., 41 (2004) 1.

Prompt γ spectroscopy using reactor neutrons



20 MW JRR-3 @ JAEA
Thermal & Cold neutron
Guide lines available

1 MW Kyoto reactor
will be also available

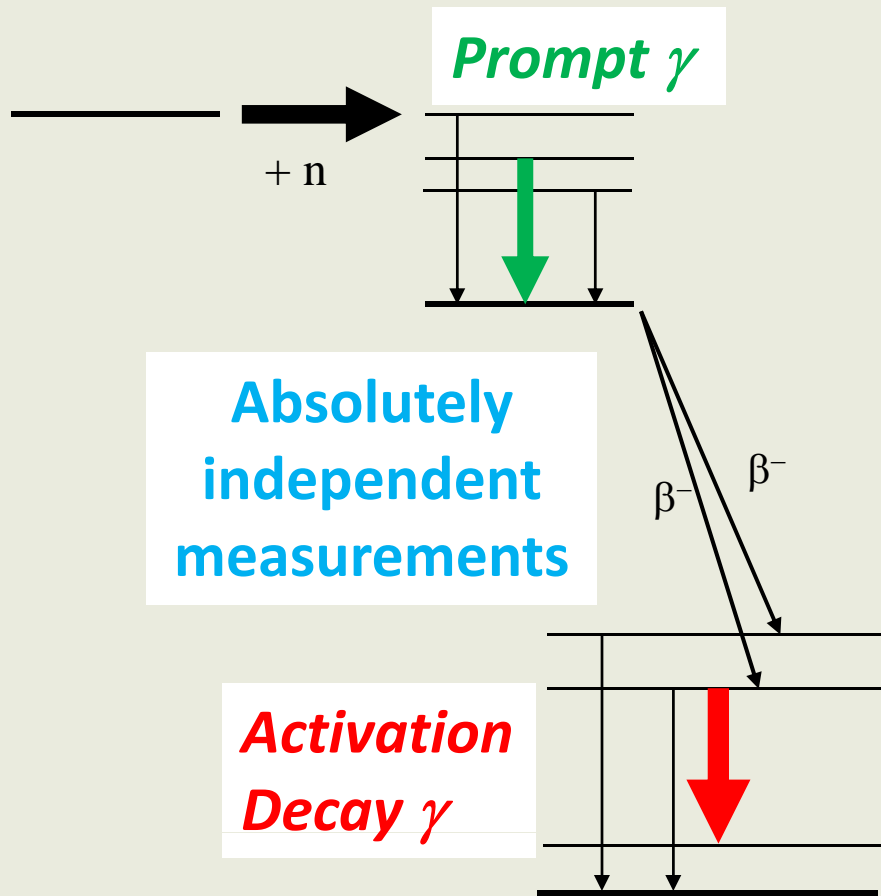
	Half life	Previous data	JAEA data	References
^{93}Zr	$1.53 \times 10^6 \text{ y}$	$1.3 < \sigma_0 < 4 \text{ b}$ (Pomerance 1952)	$\sigma_0 = 0.63 \pm 0.02 \text{ b}$ (Lower Limit)	<i>JNST, 44, 21 (2007)</i>
^{107}Pd	$6.5 \times 10^6 \text{ y}$	$1.8 \pm 0.2 \text{ b}$ (Mughabghab 1981)	$\sigma_0 = 9.16 \pm 0.27 \text{ b}$ (Lower Limit)	<i>JNST, 44, 103 (2007)</i>

See also T. Belgya et al., ND2007, p.631 for ^{129}I ,
J.L. Weil et al., ND2007, p.611 for ^{99}Tc

} Budapest
Hungary

独立測定的重要性

Pulse Height Weighting 法と
4 π type detectorを利用した測定
の相互比較



Neutron capture cross section of ^{237}Np for thermal neutrons

Authors (year)	σ_0 (b)	Methods
Harada et al. (2006)	169 ± 4	Activation, α & γ
Katoh et al. (2003)	141.7 ± 5.4	Activation, γ
Kobayashi et al. (1994)	158 ± 3	Activation, γ
Jurova et al. (1984)	158 ± 4	Activation, γ
Schuman et al. (1969)	185 ± 12	Activation, α
Tattersall et al. (1960)	169 ± 3	Pile Oscillation
Smith et al. (1957)	170 ± 22	$\sigma_{\text{TOT}} - \sigma_{\text{SCA}}(\text{CAL})$
Brown et al. (1956)	172 ± 7	Activation, α

今後の展望

大強度中性子源、革新的検出器群、精密シミュレーション技術、独立測定相互比較により、統計誤差、系統誤差を絞り込み、MA,FPを中心に中性子核データの高精度化を達成することが、当該分野の挑戦的課題である。

