

新試験研究炉の利用に向けた 核データ測定への期待

日本原子力研究開発機構 核データ研究Gr.

中村詔司、木村 敦

1

発表内容

1. 研究の背景

2. 新試験研究炉の利用で、すべきこと

中性子照射場を用いた断面積測定

①手法概要、②炉照射、③開封-測定、④断面積データ、⑤MASS分析の併用

新試験研究炉に必要な要件

3. 新たな展開 (何ができるか)

3-1 多重捕獲反応

3-2 即発ガンマ線分光法による断面積測定 ①原理、②実験、③結果

3-3 中性子スペクトルを変化させた照射場

3-4 RI試料の製造

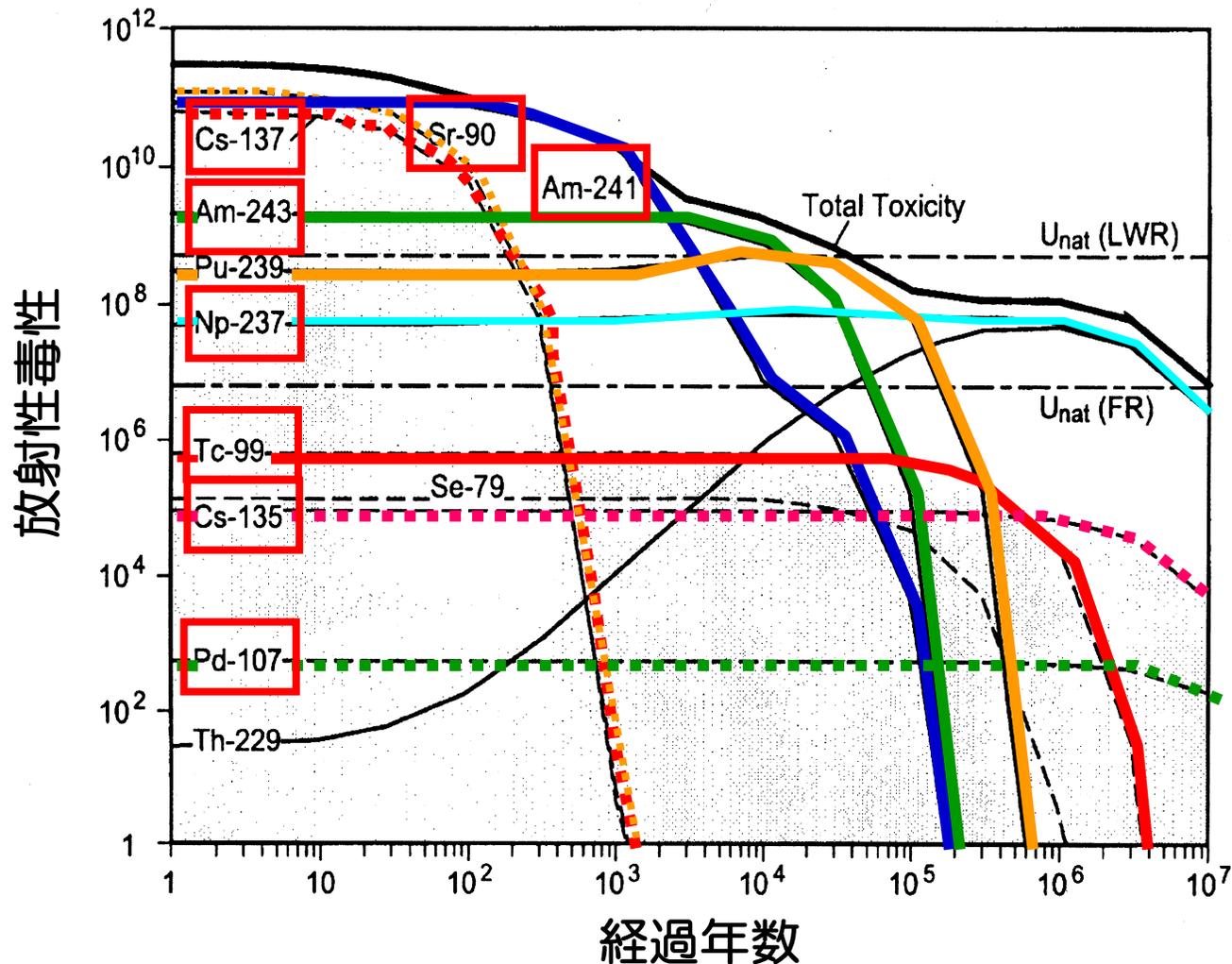
4. まとめ

1. 研究の背景

高レベル放射性廃棄物

長寿命核分裂生成核種 (Fission Product)

マイナーアクチノイド (Minor Actinide)



処分の軽減
環境への負荷低減

核変換

核反応率を評価
するための精度の高い
核断面積データが不足
WRENDA: World Request
List for Nuclear Data

重要度の高いFP、MA
核種を選別
High Priority Request List

2. 新試験研究炉の利用で、すべきこと

■ JAEA核データ研究G

核データ測定@原子炉、J-PARC

⇒ 評価済みライブラリへ反映

Japan Evaluated Nuclear Data Library(JENDL)

J-PARCと研究炉で、中性子断面積測定を実施してきている

利用先：

原子炉の設計

放射性廃棄物の核変換の検討

廃止施設の放射化量評価

など



J-PARC MLF ANNRI@BL04



JRR-3



KUR



弥生炉(廃止)

しかしながら、研究炉での測定を継続するにあたり、

JMTR(2017年)廃止、KUR (2025年5月)廃止予定

⇒ 必要な照射場を失う

⇒ RIのデータの取得ができない!

(JRR-3ではRI照射不可、2サイクル以上の照射は現状では、設備、開封場所の許可などで難しい)

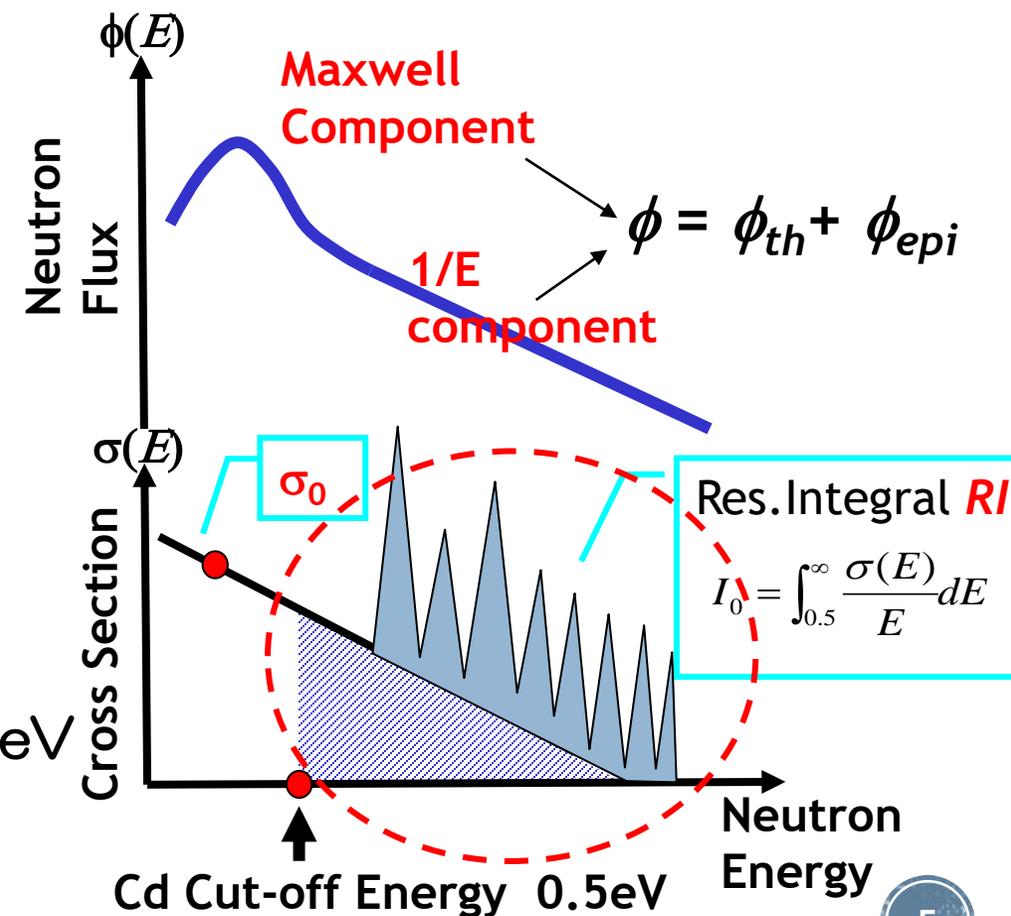
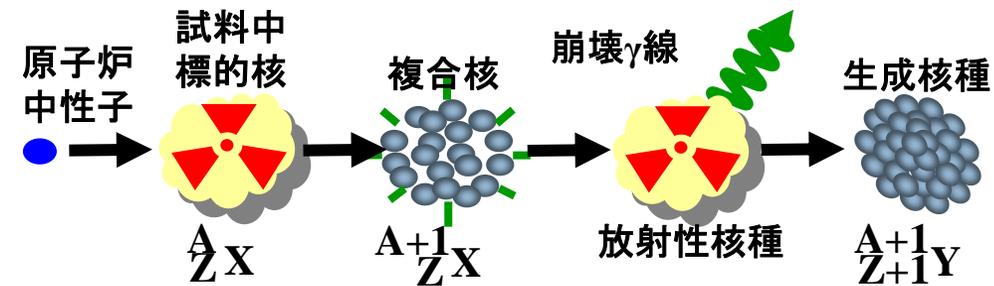
中性子照射場を用いた断面面積測定

①手法概要

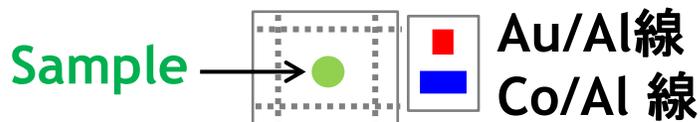
■ 中性子放射化法

生成された放射性娘核からの放射線を測定して、定性分析、**定量分析**を行う。

⇒ 「分析」を、中性子捕獲反応断面面積に適用
Cd (Gd)比(差)法



○ 試料のみ

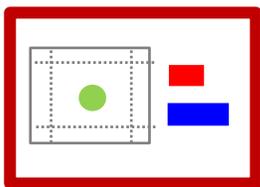


$$\Phi = \Phi_{th} + \Phi_{epi}$$

$$R = \sigma_0 \cdot \Phi_{th} + RI \cdot \Phi_{epi}$$

○ 試料 + Gdフィルタ

Gd箱



$$R' = RI \cdot \Phi_{epi}$$

Gd箱 25 μ mt
Cut-off Energy 0.133eV

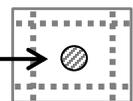
Filterで、人為的に中性子束スペクトルを変化させる。

中性子照射場を用いた断面積測定

②炉照射

■照射例@KUR

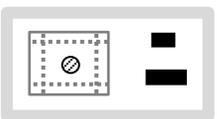
Cs-137 sample
1kBq order



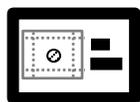
Au/Al alloy monitor
Co/Al alloy monitor



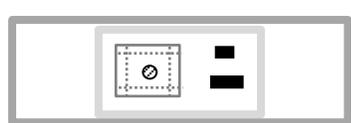
Wrap with
FEP film



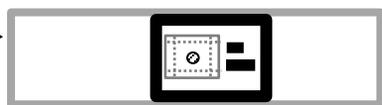
Chemical filter
paper



Wrap with
Gd foil



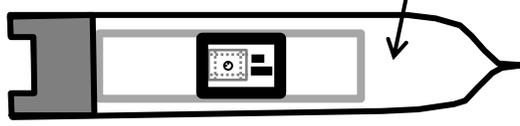
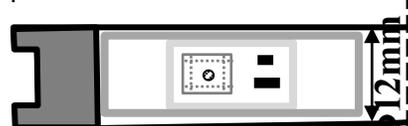
Wrap with
Al foils



50~55mm

Al Inner capsules

He gas replacement



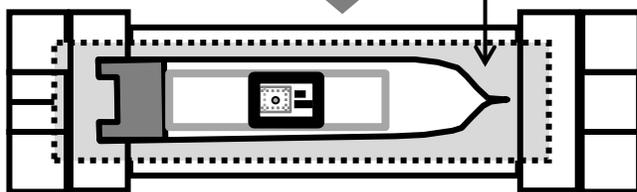
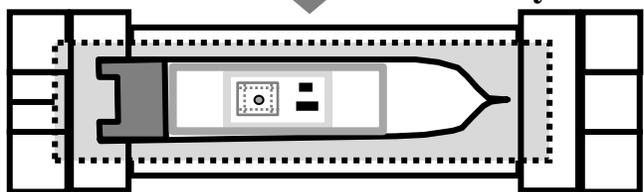
Max 70mm

Crimping



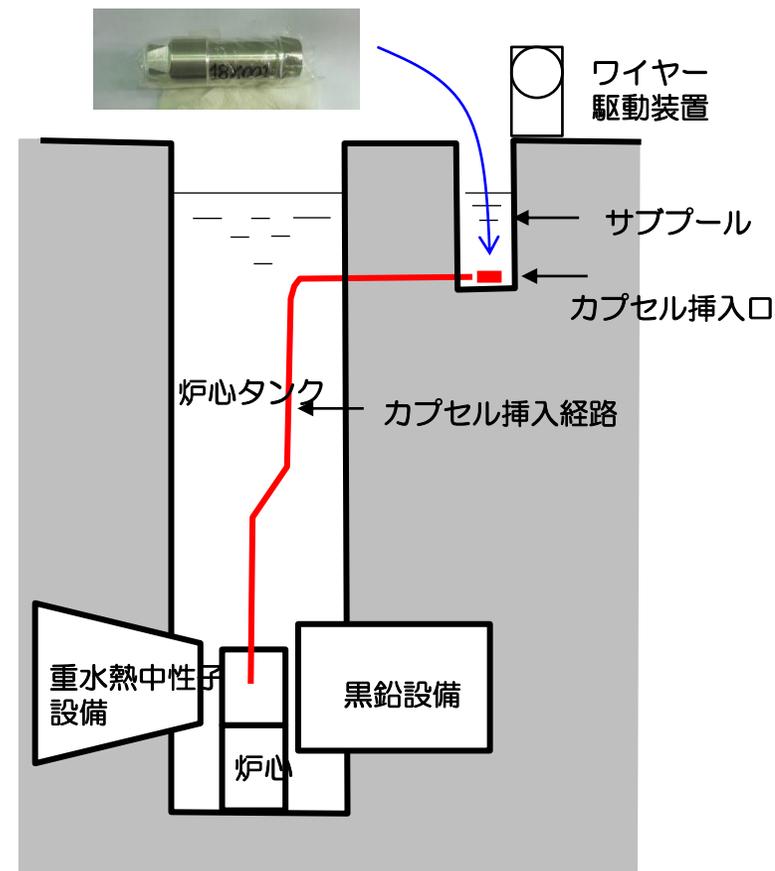
Irradiation capsules
for hydraulic transfer tube

Ion exchanged
water



(a) Bare target

(b) Gd shielded target

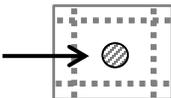


中性子照射場を用いた断面積測定

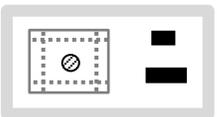
②炉照射

■照射例@KUR

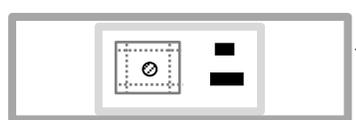
Cs-137 sample
1kBq order



Chemical paper



Wrap with
FEP film



Wrap with
Al foils

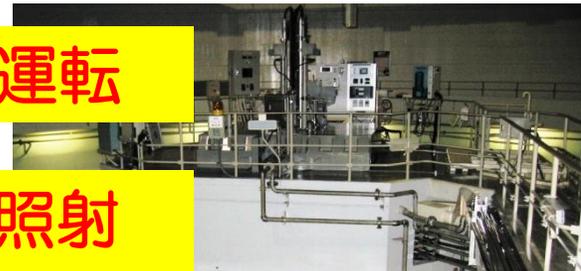
高稼働率、長期安定運転

連続運転orサイクル照射
例) 30日/サイクル
6サイクル/年

高い中性子束
 10^{13} n/cm²s 以上
例) JMTR 10^{14}

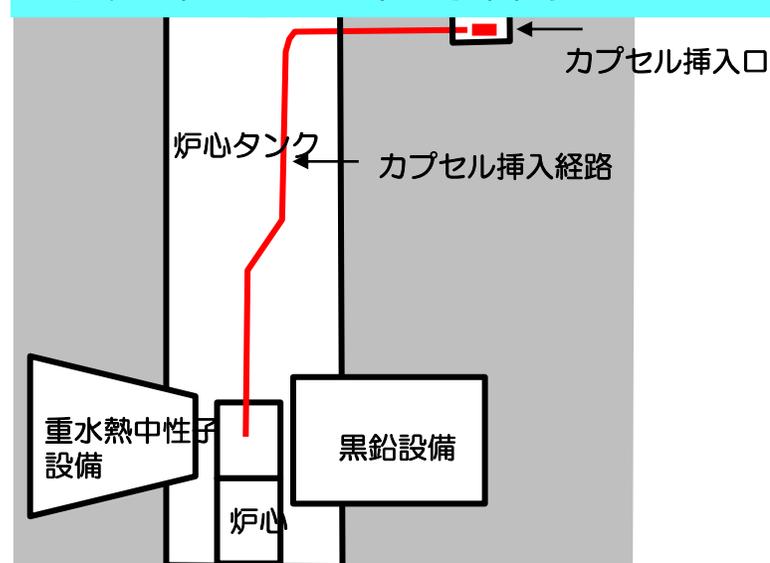
中性子スペクトルを変化
させて照射できる環境

RI試料の照射の許認可

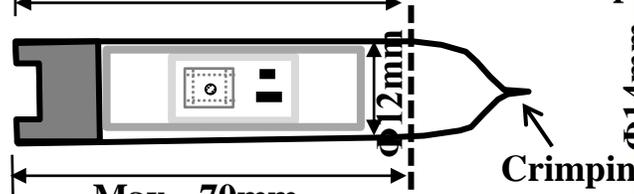


RI製造 (医薬、研究用RI)

材料照射、半導体製造



50~55mm Al Inner cap



Max 70mm

Irradiation capsule
for hydraulic transfer

(a) Bare target

(b) Gd shielded target

中性子照射場を用いた断面積測定 ③開封～測定

照射カプセル開封から計測までの工程

ホットラボ

設備の充実さ

使い勝手の良さ

施設間の連結性



炉室から冷却プールへ



ホットセル

Cell

2018/08/24

セル内にカプセルを搬入



マニピュレータにて開封



インナーカプセルの切断

気送管
→ フード



照射済み試料開封

排気付き化学フード



化学処理



例) ガンマ線測定(長時間)

照射後試験
化学処理、分析
各種放射線計測
MASS分析など

中性子照射場を用いた断面積測定

④断面積データ

Nuclide	Past Data (Author, Year)	JAEA Data
^{90}Sr	$\sigma_{\text{eff}}=0.8\pm0.5\text{ b}$ (Zeisel 1966)	$\sigma_0=10.1\pm1.3\text{ mb}$ $I_0=104\pm16\text{ mb}$ (2001)
^{99}Tc	$\sigma_0=20\pm2\text{ b}$ $I_0=186\pm16\text{ b}$ (Lucas 1977)	$\sigma_0=22.9\pm1.3\text{ b}$ $I_0=398\pm38\text{ b}$ (1995)
^{129}I	$\sigma_0=27\pm2\text{ b}$ $I_0=36\pm4\text{ b}$ (Eastwood 1958)	$\sigma_0=30.3\pm1.2\text{ b}$ $I_0=33.8\pm1.4\text{ b}$ (1996)
^{137}Cs	$\sigma_{\text{eff}}=0.11\pm0.03\text{ b}$ (Stupegia 1960)	$\sigma_0=0.25\pm0.02\text{ b}$ $I_0=0.36\pm0.07\text{ b}$ (1990、1993)
^{135}Cs	$\sigma_0=8.7\pm0.5\text{ b}$ $I_0=61.7\pm2.3\text{ b}$ (Baerg 1958)	$\sigma_0=8.3\pm0.3\text{ b}$ $I_0=38.1\pm2.6\text{ b}$ (1997) $\sigma_0=8.57\pm0.25\text{ b}$ $I_0=45.3\pm3.2\text{ b}$ (2019)
^{134}Cs	$\sigma_{\text{eff}}=134\pm12\text{ b}$ (Bayly 1958)	$\sigma_{\text{eff}}=141\pm9\text{ b}$ (1999)

Nuclide	Past Data (Author, Year)	JAEA Data
^{237}Np	$\sigma_0=158\pm3\text{ b}$ $I_0=652\pm24\text{ b}$ (Kobayashi 1994)	$\sigma_0=141.7\pm5.4\text{ b}$ $I_0=862\pm51\text{ b}$ (2003) $\sigma_0=169\pm6\text{ b}$ (2006) $\sigma_0=186.9\pm6.2\text{ b}$ $I_0=1009\pm90\text{ b}$ (2019) $\sigma_0=173.8\pm4.7\text{ b}$ (2022)
^{238}Np	No Data	$\sigma_{\text{eff}}=479\pm24\text{ b}$ (2004)
^{241}Am	$\sigma_{0g}=768\pm58\text{ b}$ $I_{0g}=1694\pm146\text{ b}$ (Shinohara 1997)	$\sigma_{0g}=628\pm22\text{ b}$ $I_{0g}=3.5\pm0.3\text{ kb}$ (2007)
^{243}Am	$\sigma_{0m}=80\text{ b}$, $\sigma_{0g}=4.3$ $\sigma_{0m+g}=84.3\text{ b}$ (Ice 1966)	$\sigma_{\text{eff}}=174.0\pm5.3\text{ b}$ (2006) $\sigma_{0g}=4.73\pm0.27\text{ b}$ $I_{0g}=96.5\pm8.9\text{ b}$ $\sigma_{0m+g}=88.5\pm4.0\text{ b}$ $I_{0m+g}=2.30\pm0.20\text{ kb}$ (2020)

3. 新たな展開 3-1. 多重捕獲反応 Hf-181

○Hf-181 (n,g) 実験可能性検討について

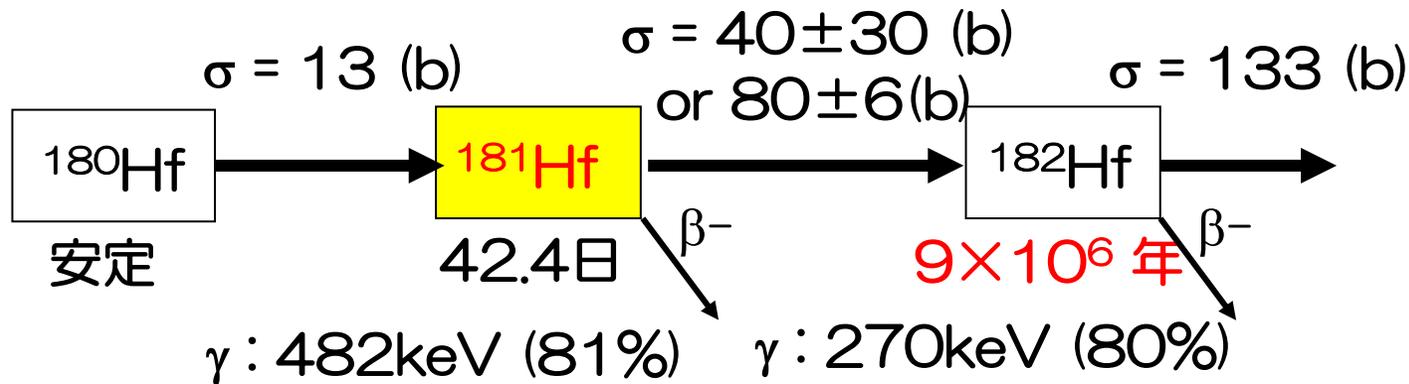
クリアランスの問題

- 原子炉の制御には、中性子吸収の大きいHfが制御棒に使用されている。

将来、原子炉の解体、廃棄を考える場合

Hfの放射化量を精度よく予測することが必要！

二重中性子捕獲反応



長期安定運転

サイクル照射
例) 30日/サイクル
6サイクル/年

- 過去の報告値は2つのみ

2倍の食い違い！

$40 \pm 30 \text{ (b)}$ (J.Wing, PR, 123, 1354(1961).)

$80.0 \pm 5.6 \text{ (b)}$ (Qiu Jiu-Zi, PHE, 29(7), 648(2005).)

- 予測生成量は2倍も食い違ってくることになる。

高い中性子束

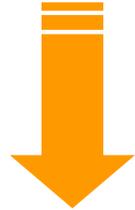
$10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ 以上

3-2. 即発ガンマ線分光法による断面積測定 ①原理

○放射化法による適用限界

中性子捕獲反応後の生成核が安定核の場合、崩壊ガンマ線を放出しないために放射化法では測定できない。このような対象FP核種として、

^{107}Pd ($6.5 \times 10^6 \text{y}$) ^{93}Zr ($1.53 \times 10^6 \text{y}$)



即発ガンマ線分光法の適用

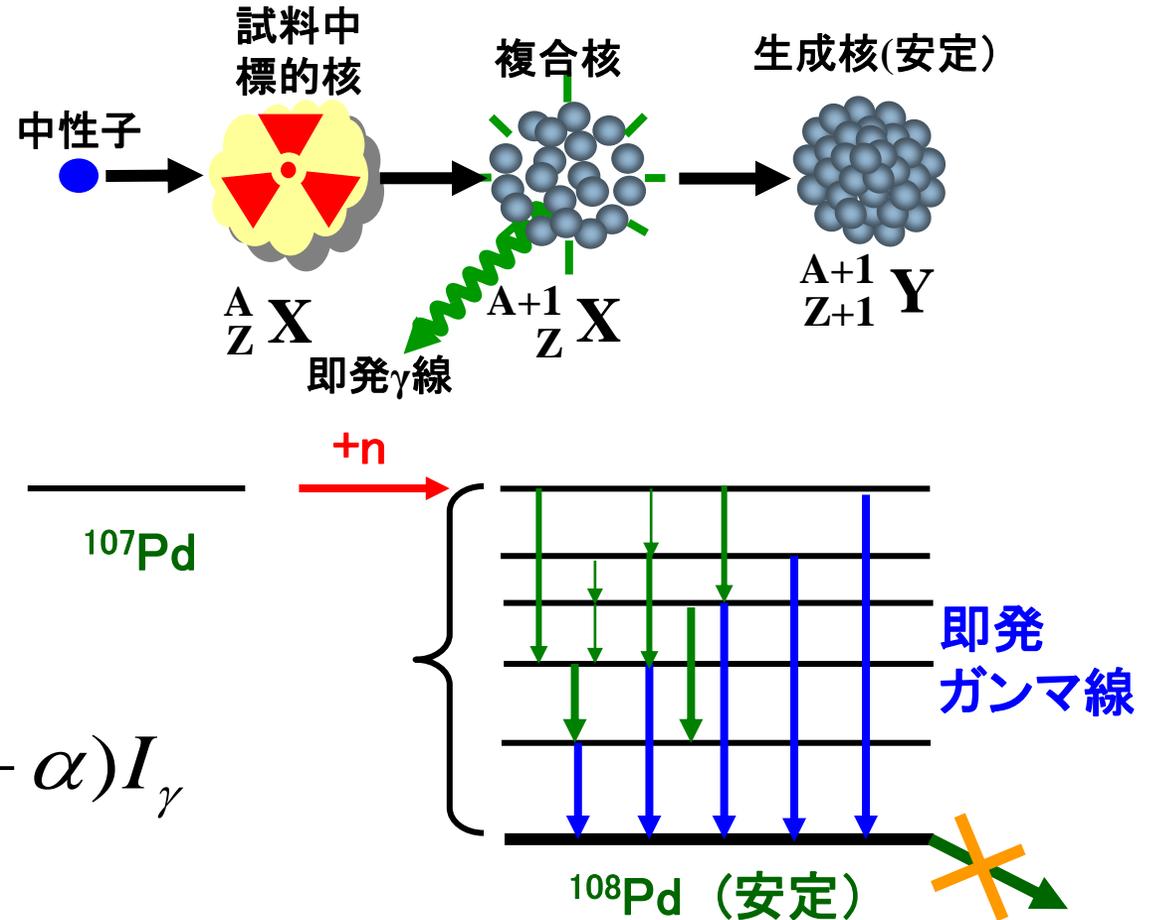
基底遷移法

$$\sigma = \sum_{g.s. \text{ transition}} (1 + \alpha) I_{\gamma}$$

α 内部転換係数

I_{γ} : 基底遷移ガンマ線の強度
(単位: barn)

$H(n_{th}, \gamma)$ 断面積 **332 mbとの相対測定**

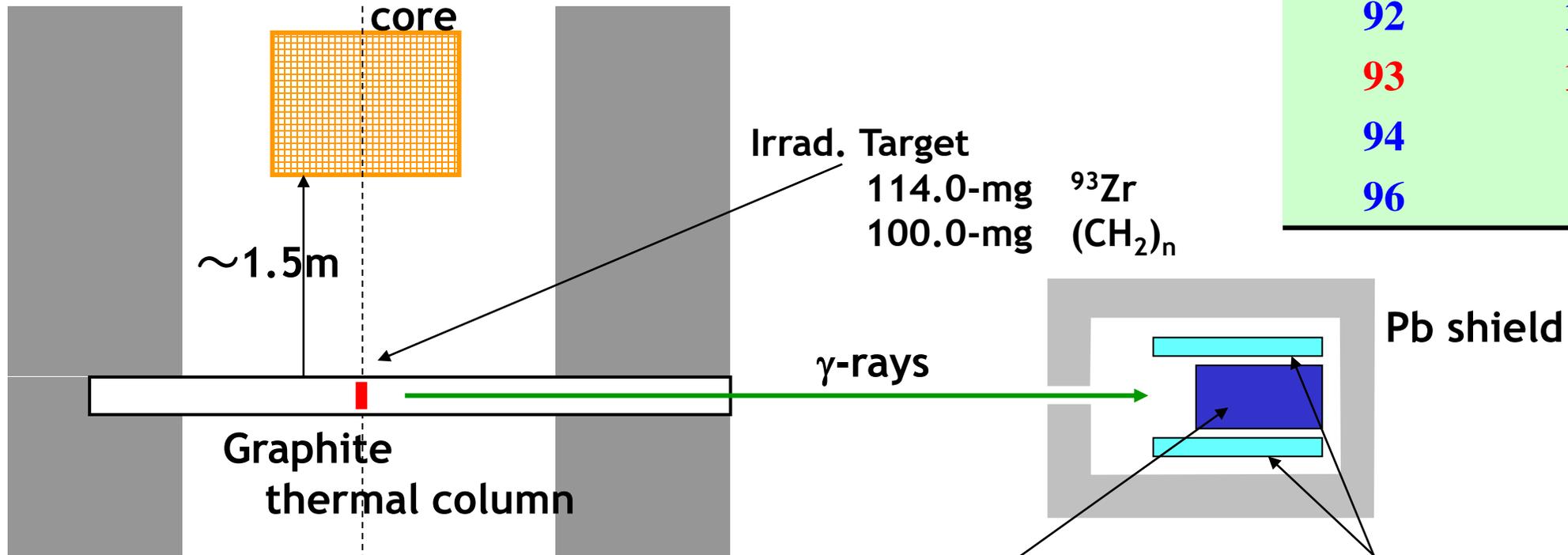


3-2. 即発ガンマ線分光法による断面積測定 ②実験



8MW Los Alamos
Omega West Reactor

Mass	Abundance(%)
90	2.29 ± 0.05
91	18.61 ± 0.10
92	18.95 ± 0.10
93	19.98 ± 0.10
94	20.50 ± 0.10
96	19.67 ± 0.10



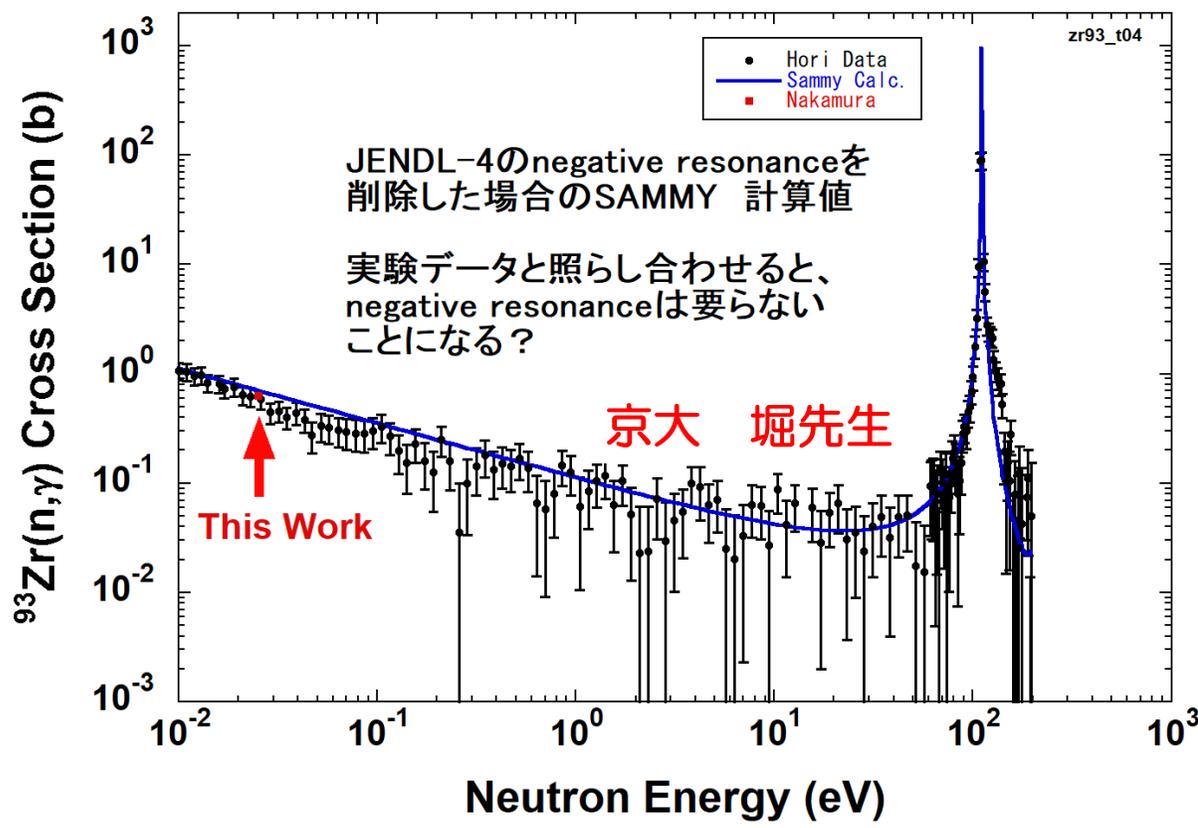
Flux $\sim 6 \times 10^{11}$ n/cm²s
Cd(In) ratio ~ 2000
Maxwell distribution

Ge(Li) detector NaI(Tl) detector
Anti-Compton mode
Pair-spectrometer mode

3-2. 即発ガンマ線分光法による断面積測定 ③結果

Result of thermal-neutron capture cross-section for $^{93}\text{Zr}(n_{\text{th}},\gamma)$ and $^{91}\text{Zr}(n_{\text{th}},\gamma)$ reactions

References		σ_0 for ^{91}Zr (b)	σ_0 for ^{93}Zr (b)
H.Pomerance ^{a)}	1952	1.52 ± 0.12	$1.3 < \sigma_0 < 4$
Garrison <i>et al.</i> ^{b)}	1962	1.2 ± 0.32	1.1 ± 0.4
Clayton ^{c)}	1972	1.579	1.996
Mughabghab	1981	1.24 ± 0.25	$1.3 < \sigma_0 < 4$
T.O.I. <i>8ed</i>	1998	1.24 ± 0.25	2.7 ± 1.4
JENDL-3.3	2002	1.247	2.239
This Work <i>(lower limit)</i>		1.30 ± 0.04	0.63 ± 0.02

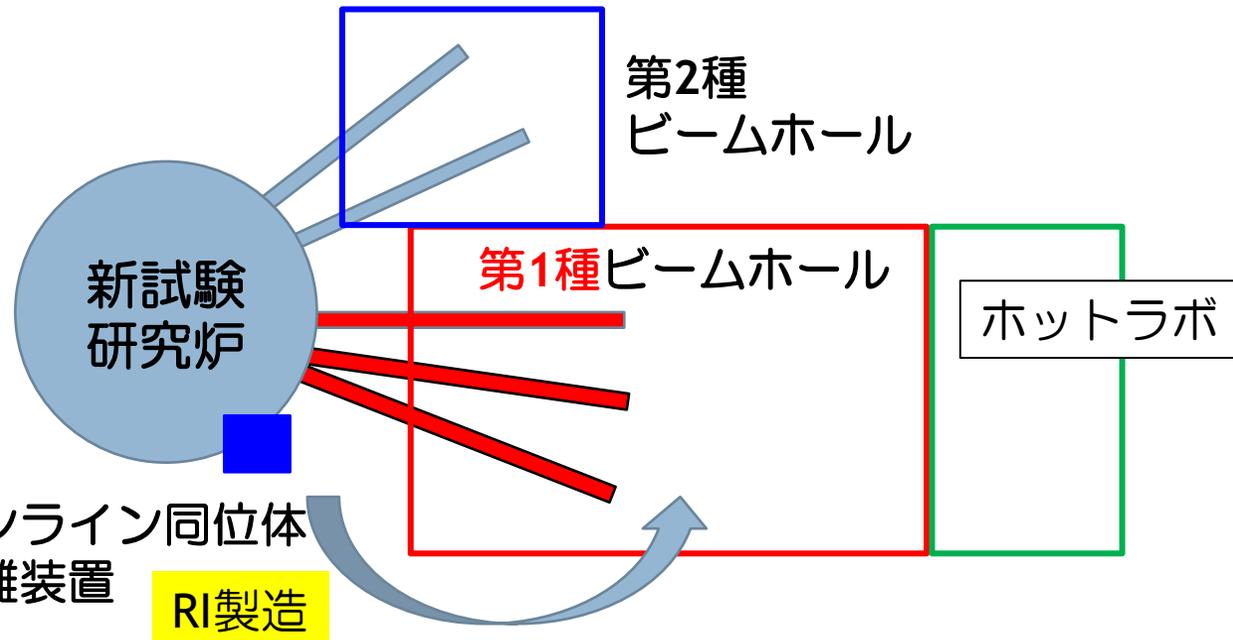
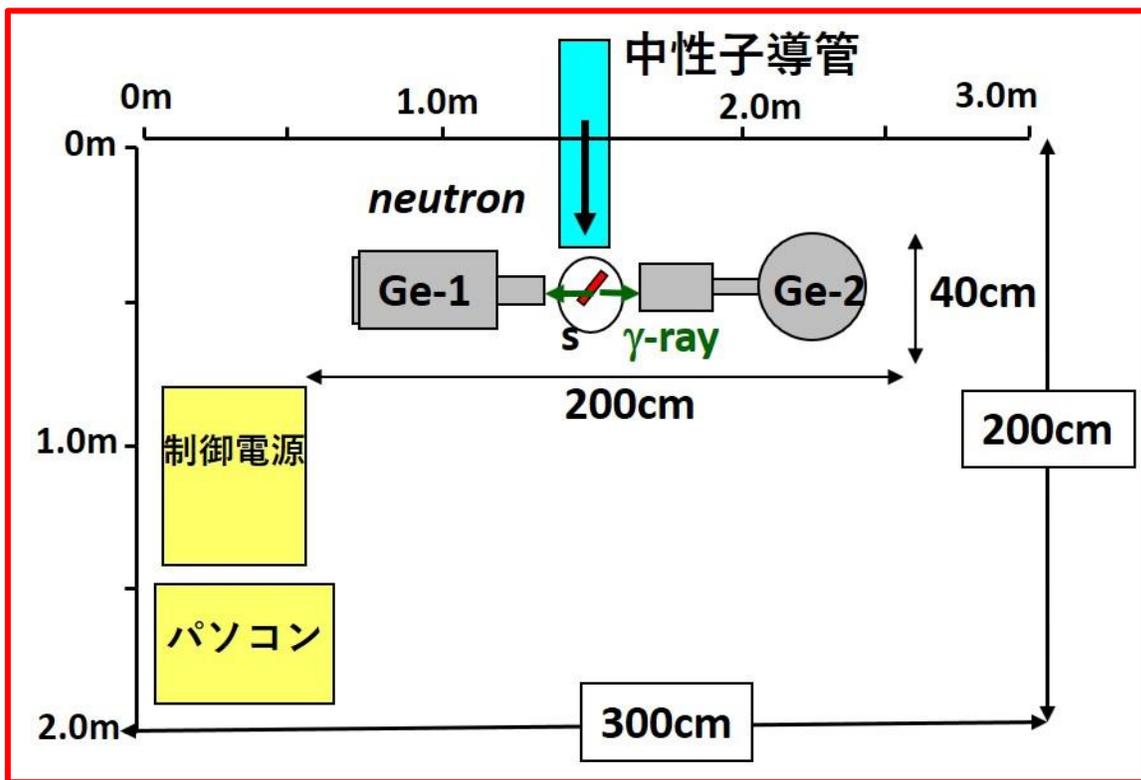


- a) Measurements with ORNL pile oscillator
- b) Statistical model estimates
- c) Calculation by the resonance parameters from BNL-325

3-2. 即発ガンマ線分光法による断面積測定 ④要望

新照射試験炉に
熱、冷中性子ビーム導管
>10⁷ n/cm²sec

核データ測定、分析に使用できる。
ユーザーが測定器を持ち込み、自由にセットアップ。

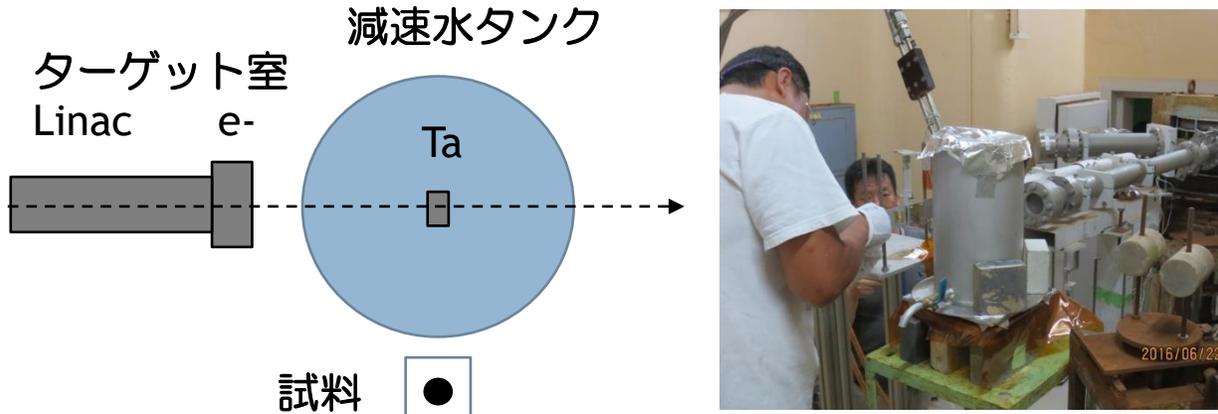


- RI、核燃物質 **非密封**で取扱い (使用の許認可)
- LLFP、MAなど使用できるビーム導管 1本以上
- 原子炉とビームホールの**連結**
→ RI試料の施設間の**手続き不要**
- 施設内で、製造、実験、廃棄まで、閉じている。
- 施設と外部機関との試料の輸送
- 申請、手続きの簡便さ

3-3. スペクトルを変化させた照射場

(※KUR-Linacでの中性子源ですが)

京大 堀先生、近大 佐野先生



ここで、2種類の中性子束スペクトル場を使えば、放射化法による断面積測定では、Cd(Gd)遮蔽が不要で、導出が可能になる。

(2016年、Np-237で試験)

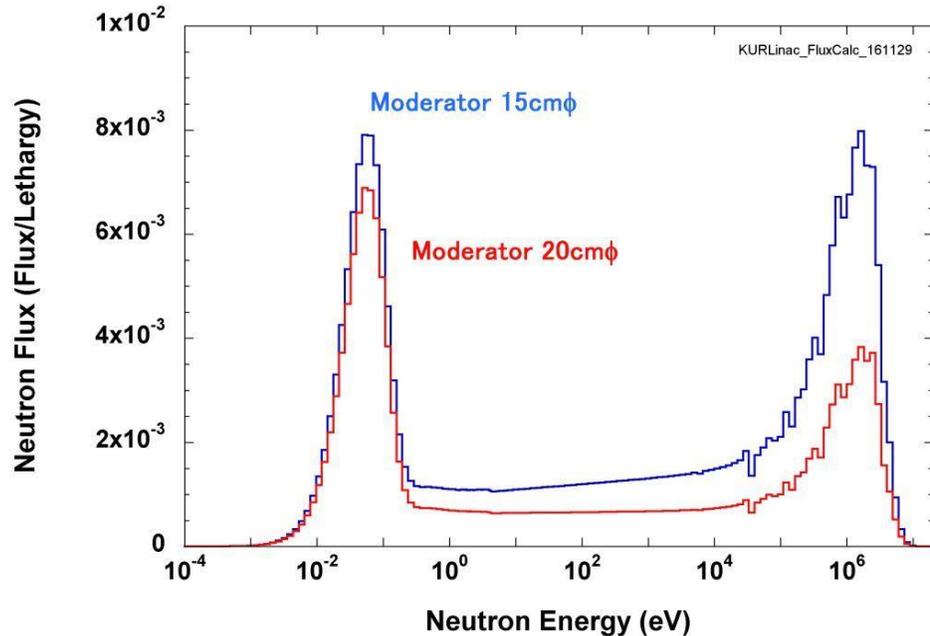
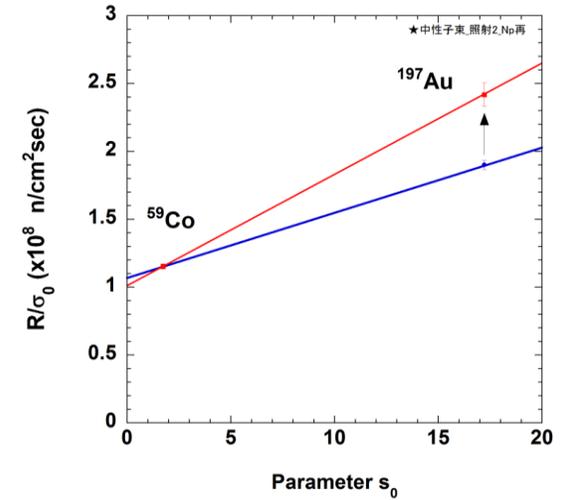
スペクトルa,bで照射し、実効断面積を求める。

$$\hat{\sigma}_a = \sigma_0 \cdot (g + \Phi_a s_0)$$

$$\hat{\sigma}_b = \sigma_0 \cdot (g + \Phi_b s_0)$$



$$\sigma_0 = \frac{\hat{\sigma}_b \Phi_a - \hat{\sigma}_a \Phi_b}{g \cdot (\Phi_a - \Phi_b)}$$



中性子スペクトルを変化させた照射場
バリエーション (熱、軟・硬い)
参考) JRR-3 ~1%、KUR 3%

3-4. RI試料の製造

©Se-79, Sn-126 実験データなし!

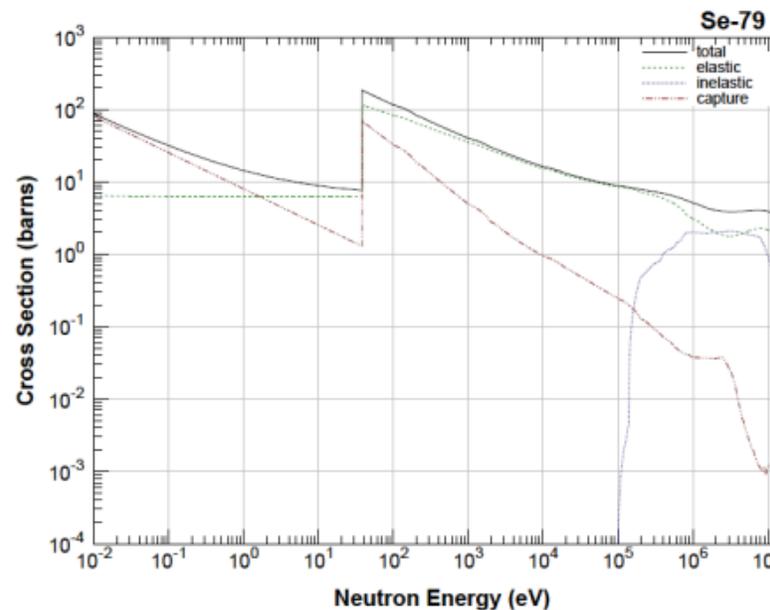
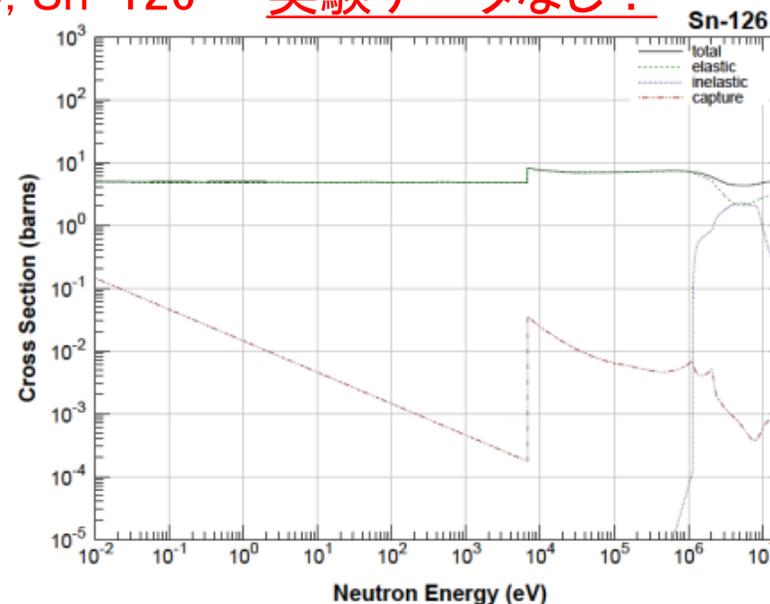
Transmutability of long-lived fission products

Fission product	Decay $T_{1/2}$ (y)	Transmutation $T_{1/2}$ (y)*	Isotopic separation
^{129}I	1.6×10^7	51	no
^{135}Cs	2.3×10^6	170	yes
^{99}Tc	2.1×10^5	51	no
^{126}Sn 未実施	1.0×10^5	4.4×10^3	yes
^{79}Se	6.5×10^4	2.2×10^3	yes

* Thermal flux: 10^{14} n/cm²s

Ref. NEA2002

Accelerator-driven Systems (ADS)
and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles



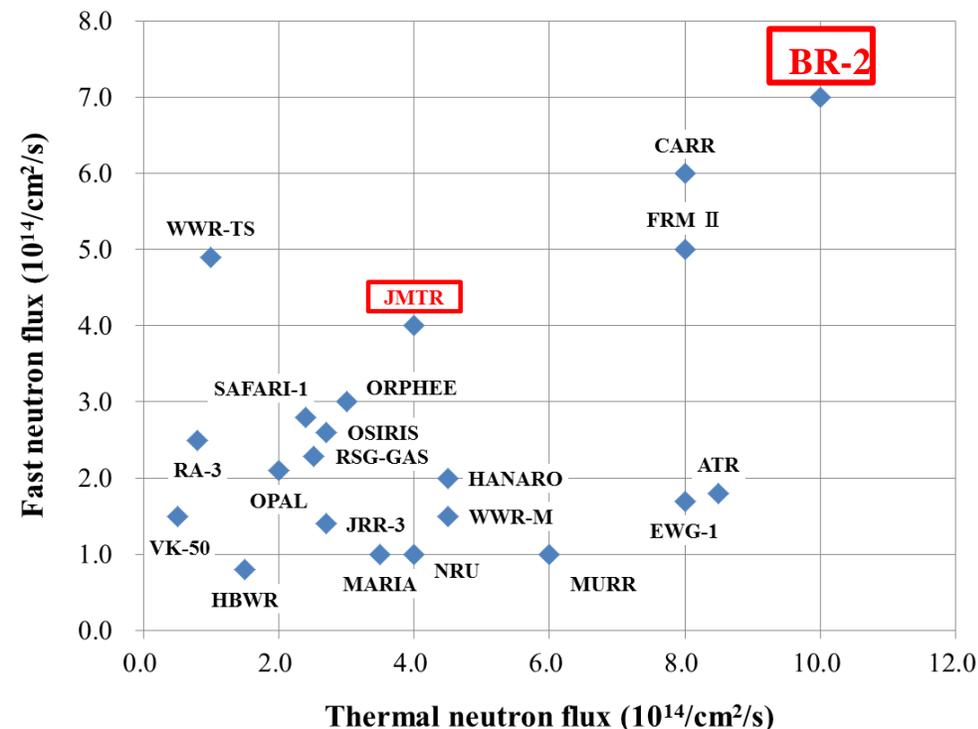
3-4. RI試料の製造

■Se-79の製造の検討

- JRR-3M(20MW) 熱： 3×10^{14} 、高速： 2×10^{14} n/cm²s
- 運転再開：2021年6月末
- 常陽 熱： 2×10^{14} 、高速： 3×10^{15} n/cm²s 冷却温度：高
- KUR (5MW) 熱： 4.3×10^{13} 、高速： 7.2×10^{12} n/cm²s
- BR-2 (100MW) @ベルギー、モル研究所

JMTRと同等の
中性子強度

- 東北大がBR2と契約し、照射研究を実施
- 中性子スペクトル JMTRとほぼ同じ
- 最大で100°C、冷却水温度80°C
- 1年6サイクル (21-28日/サイクル)
- カプセルの返送 輸送費(往復) 250万円
- Extraな照射の場合 1サイクル・カプセル 10kユーロ (約130万円)
- 照射前後の業務費 4~5kユーロ (約50~65万円)
- 照射について、技術的に問題なし

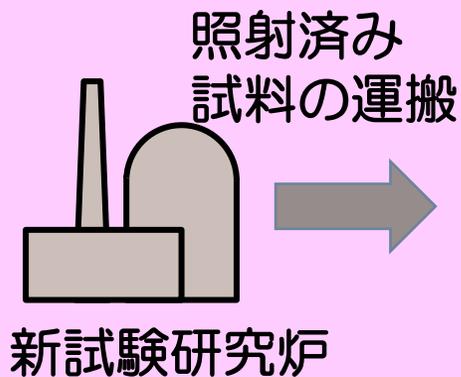


JAEA-Review 2017-0074 より抜粋

JMTRの代替炉が必要
高フラックス
長期照射 1年
コスト、時間、手間

3-4. RI試料の製造

原子炉等規制法



セレンの分離操作、
RI使用施設（核燃料使用施設）

放射線障害防止法

密封／非密封の
RI製品



→

JAEA施設
J-PARC・MLF

RI規制下
での運搬

外部研究施設
RI使用施設

- 照射済試料の運搬
- 分離操作によって発生する廃液、
廃溶媒の発生量の見積もり
- 十分な容量の廃液貯留設備
- 分離操作～廃液の処理処分
- 施設内のスムーズな移動、
ハンドリング（処理能力）
- 施設間移動が柔軟に可能な施設
運営体制

まとめ

○新試験研究炉に向けて、炉を使用した「放射化法」による断面積測定

について、測定を紹介するとともに、今後の展開する研究や必要な要件を整理した。

- 高稼働率、長期安定運転
- 連続運転 or サイクル照射 (6サイクル/年)
- RI・核燃の使用の許認可
- スペクトルを変化させて照射できる照射場の環境
- 炉とホットラボ施設の連結性：機能的にスムーズに連結 (→研究のフットワークの良さ)
- 施設の充実性 (RI・核燃取り扱い、ホットラボ、セル、フード)、使い勝手
- 申請手続きの簡便さ

◎JAEAの強み：

RI施設、核燃料取扱施設、J-PARC施設
原子力の多岐にわたる分野の人材

新型研究炉が加わることで
断面積測定に新たな展開が期待！

