

2007年度核データ研究会
3. 核データチュートリアル(1)

中性子断面積測定
—生データ取得から断面積導出まで—

日本原子力研究開発機構
原田 秀郎

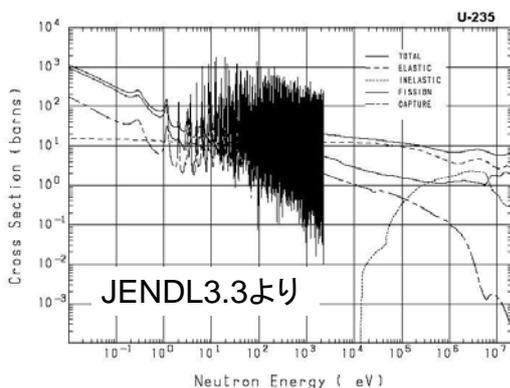
目次

- ① 中性子断面積測定に関する最近の話題
- ② 核データの誤差とは？
- ③ 生データの取得から断面積導出まで
(具体例を用いて)
 - a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定
 - b) 飛行時間測定法による中性子捕獲断面積の測定
- ④ 核データの精度向上は可能か？

① 中性子断面積測定に関する最近の話題 その1

重要核種の精度向上

例: U-235の核分裂断面積



LANL at ND2007

Isomerの寄与まで測定

Isomer 25 min
at 77 eV

$1/2+$

$7/2-$

^{235}U

7×10^8

years

① 中性子断面積測定に関する最近の話題 その2

MA核種の精度向上: 核変換研究、革新的原子炉システム研究

Two Major Projects on Nuclear Data in Japan

2002 2003 2004 2005 2006

Fundamental R&D on Neutron Cross Sections for Innovative Reactors Using Advanced Radiation Measurement Technology

Project Leader: M. Igashira

2005 2006 2007 2008 2009

Study on Nuclear Data by using a High Intensity Pulsed Neutron Source for Advanced Nuclear System

Project Leader: Y. Kiyanagi

各大学・機関の
取り組み

① 中性子断面積測定に関する最近の話題 その3

世界の動向

Major Projects on Nuclear Data in the World

欧州共同体n-TOFプロジェクト

米国LANLでのプロジェクト

DANCE: 熱中性子から500keVの中性子を供給するLujanセンターのビームラインに設置された中性子捕獲及び核分裂断面積を測定するための全立体角型BaF₂検出器である。

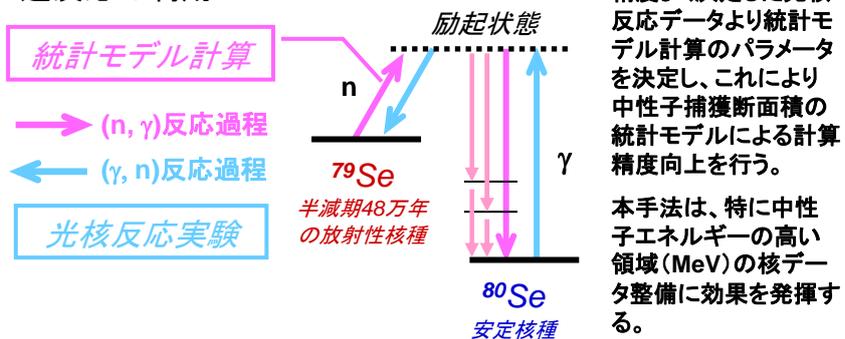
GEANIE、FIGARO : GEANIE及びFIGAROは、100keVから800MeVの中性子を供給するWNR (Weapons Neutron Research)高速中性子源に設置された装置であり、核分裂断面積及び(n, 2n)断面積測定に利用されている。

Karlsruher, IRMM等各機関の取り組み

① 中性子断面積測定に関する最近の話題 その4

間接的な測定方法 (サンプルが利用できない場合)

⇒逆反応の利用



精度よく決定した光核反応データより統計モデル計算のパラメータを決定し、これにより中性子捕獲断面積の統計モデルによる計算精度向上を行う。

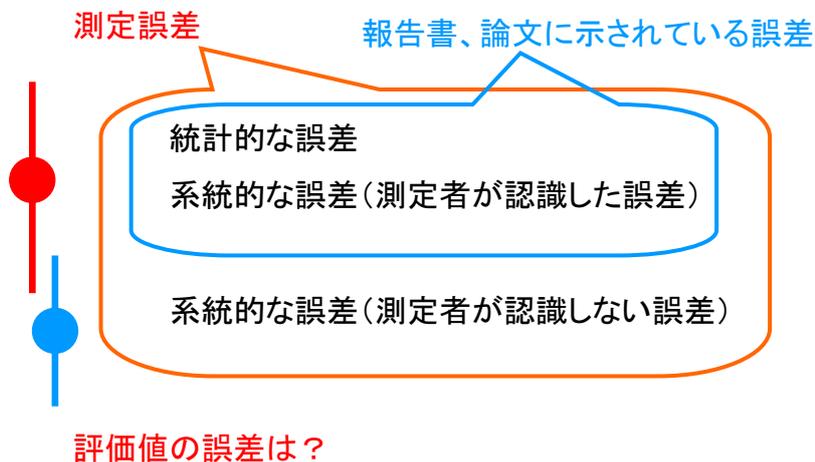
本手法は、特に中性子エネルギーの高い領域 (MeV) の核データ整備に効果を発揮する。

⇒代理反応の利用

トランスファー反応を用いて核分裂断面積などを決定する方法、ローレンス・リバモア研究所等 (ND2007での1セッション)

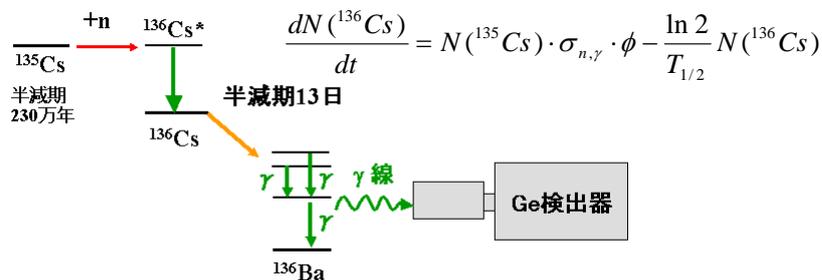
② 核データの誤差とは？

核データ測定値の誤差



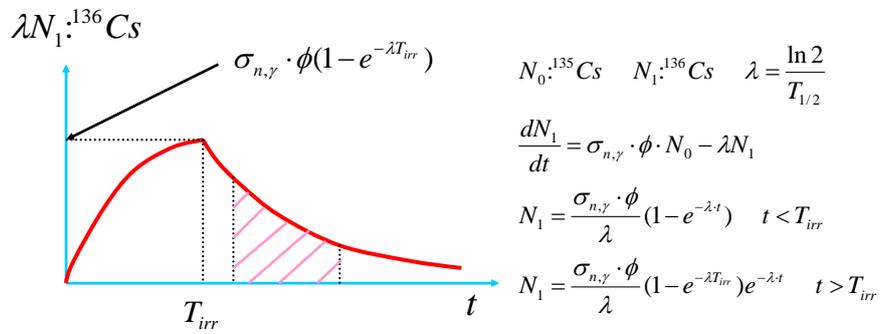
③ 生データの取得から断面積導出まで

放射化法による熱中性子捕獲断面積の測定の場合を例に測定の統計誤差、系統誤差を考えてみよう。



^{135}Cs 試料を原子炉中性子で照射して放射化させると、生成される ^{136}Cs 核が短い半減期(13日)で崩壊し、ガンマ線を放出して安定な ^{136}Ba 核になる。

Y_pと断面積の関係



$$Y_p = \varepsilon_p \cdot I_\gamma \cdot \int_{t_1}^{t_2} \lambda N_1 dt, \quad I_\gamma: \gamma \text{線放出確率}, \quad \varepsilon_p: \text{ピーク検出効率}$$

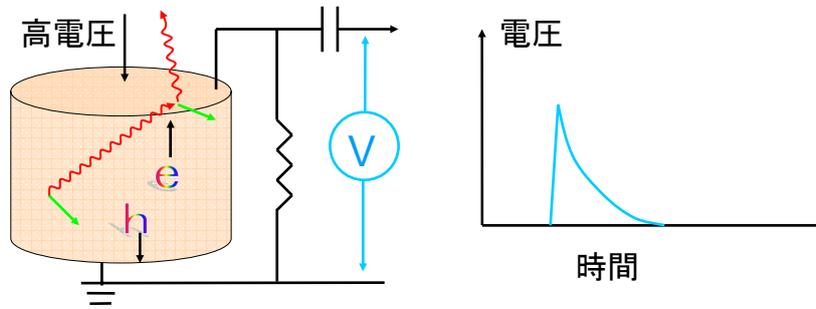
a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定

測定装置例



a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定

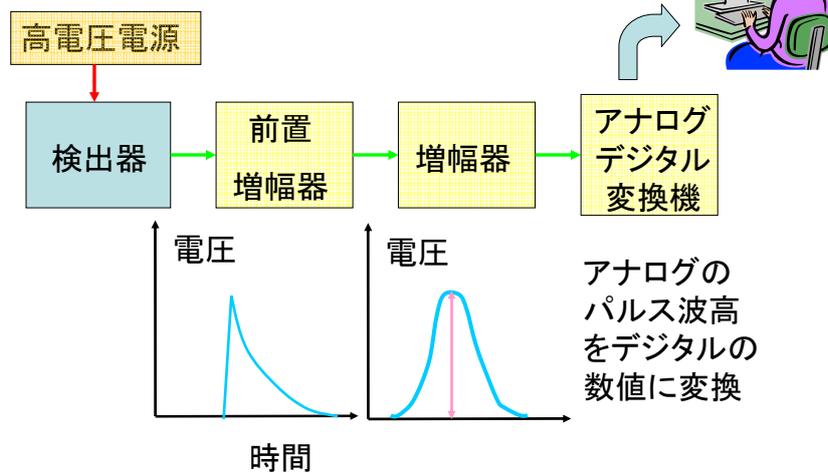
放射線検出器の例: 半導体検出器



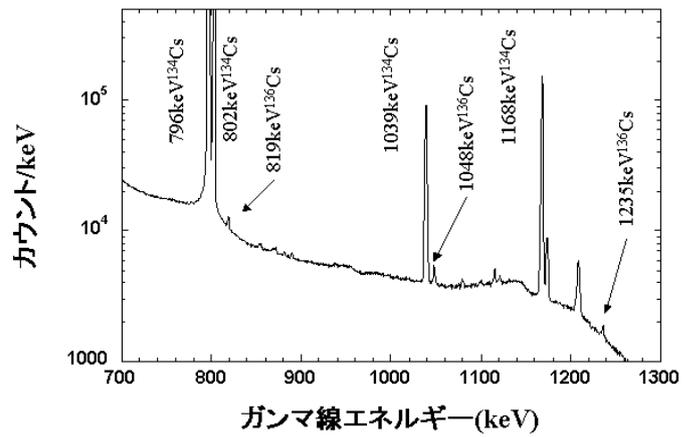
$$Q \approx eN_{ph} \approx eE / (\text{bandgap})$$

a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定

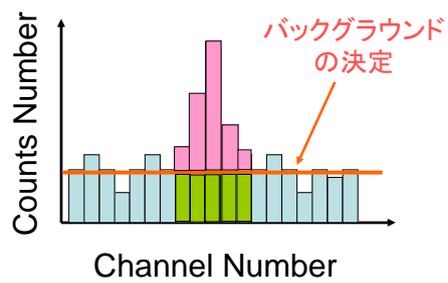
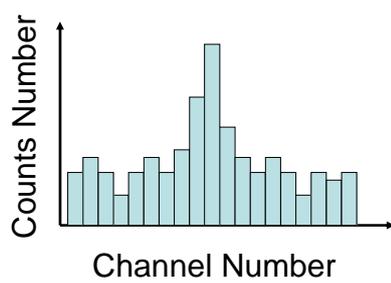
計測回路



^{136}Cs が崩壊する際、放出するガンマ線のスペクトルを図に示す。
測定されるガンマ線のピークのカウンタ数から、生成された ^{136}Cs を定量することができる。



a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定



$$\begin{array}{c}
 \text{Peak Histogram} \\
 Y_p
 \end{array}
 =
 \begin{array}{c}
 \text{Total Histogram} \\
 Y_t
 \end{array}
 -
 \begin{array}{c}
 \text{Background Histogram} \\
 Y_b
 \end{array}$$

$$\begin{aligned}
 \delta Y_p^2 &= \left(\frac{\partial Y_p}{\partial Y_t}\right)^2 \delta Y_t^2 + \left(\frac{\partial Y_p}{\partial Y_b}\right)^2 \delta Y_b^2 \\
 &= \delta Y_t^2 + \delta Y_b^2 \\
 &= \left(\sqrt{Y_t}\right)^2 + \left(\sqrt{Y_b}\right)^2 = Y_t + Y_b
 \end{aligned}$$

a) 放射化法による中性子捕獲断面積の測定

統計誤差はどこまで小さくし得るか？

$$\delta Y_p = \sqrt{Y_t + Y_b} \quad Y_p = Y_t - Y_b$$

$\delta Y_p / Y_p$ のケーススタディ

$Y_p : Y_b$	$Y_p=10^2$	$Y_p=10^4$	$Y_p=10^6$	$Y_p=10^8$
100:1	10.1 %	1.01 %	0.10 %	0.010 %
1:1	17.3 %	1.73 %	0.17 %	0.017 %
1:100	142 %	14.2 %	1.42 %	0.14 %

Y_p は、いくらでも大きくし得るのか？

$\delta Y_p / Y_p$ のケーススタディ

$Y_p : Y_b$	$Y_p=10^6$	$Y_p=10^8$
1:1	0.17 %	0.017 %
1:100	1.42 %	0.14 %

Ge検出器の計数率: 5kcps

測定時間: 10日

スペクトル全体のカウント数
と解析するピーク領域のカウント数 N_t の比: 100:1

核種依存性が強い

$$Y_p \approx 5000 \times (10 \times 24 \times 3600) \times (1/100) \times (Y_p / Y_t)$$

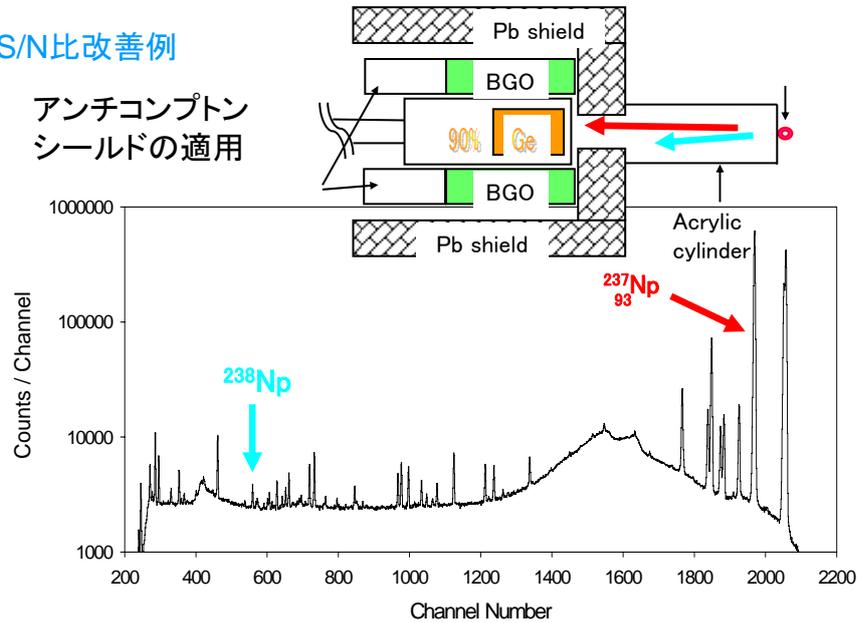
$$Y_p : Y_b = 1:1 \text{ の場合、 } Y_p = 2.1 \times 10^7 \quad \delta Y_p / Y_p : 0.03 \%$$

$$Y_p : Y_b = 1:100 \text{ の場合、 } Y_p = 0.43 \times 10^6 \quad \delta Y_p / Y_p : 1.5 \%$$

改善策: 繰り返し測定、検出器の台数増加、S/N比改善、等

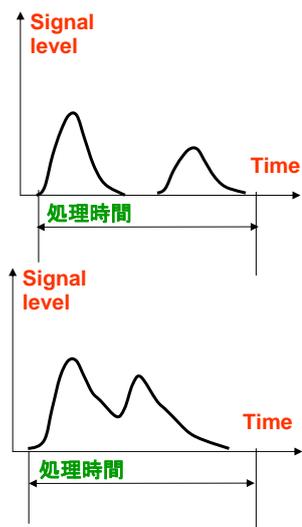
S/N比改善例

アンチコンプトン
シールドの適用



Y_p 計測上の注意点

・デッドタイム、パルスパイルアップの補正

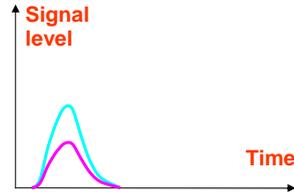
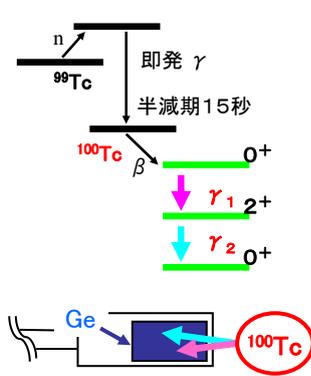


計数率が高くなると計測システムの表示される dead time, live timeと実際の計数に差が生じる場合が、測定システムによってある。

2線源法などにより dead time と数え落としの関係を校正しておく。

Y_p計測上の注意点

・サムコインシデンスの補正



ϵ_i : 全検出効率

の大きさに応じてカスケードサムコインシデンスによる数え落しが生じる。これが大きい場合は、詳細な崩壊特性(カスケード関係にあるガンマ線の強度及び角相関)を考慮した補正が必要。

この補正は、検出効率の校正でも考慮する必要がある。

Y_pと断面積の関係導出に必要な他の物理量

$$N_0 \cdot {}^{135}\text{Cs}, N_1 \cdot {}^{136}\text{Cs}, \lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}, N_1 = \frac{\sigma_{n,\gamma} \cdot \phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda T_{irr}}) e^{-\lambda t} \quad t > T_{irr}$$

$$Y_p = \epsilon_p \cdot I_\gamma \cdot \int_{t_1}^{t_2} \lambda N_1 dt, \quad I_\gamma : \gamma \text{線放出確率}, \quad \epsilon_p : \text{ピーク検出効率}$$

ピーク検出効率: ガンマ線標準線源との相対測定

ガンマ線標準線源の絶対強度には、
1~3%の誤差があり、系統的誤差の一因

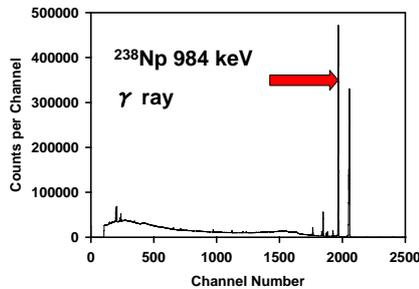
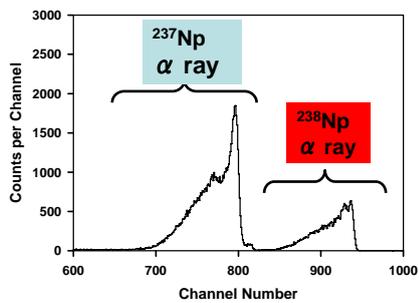
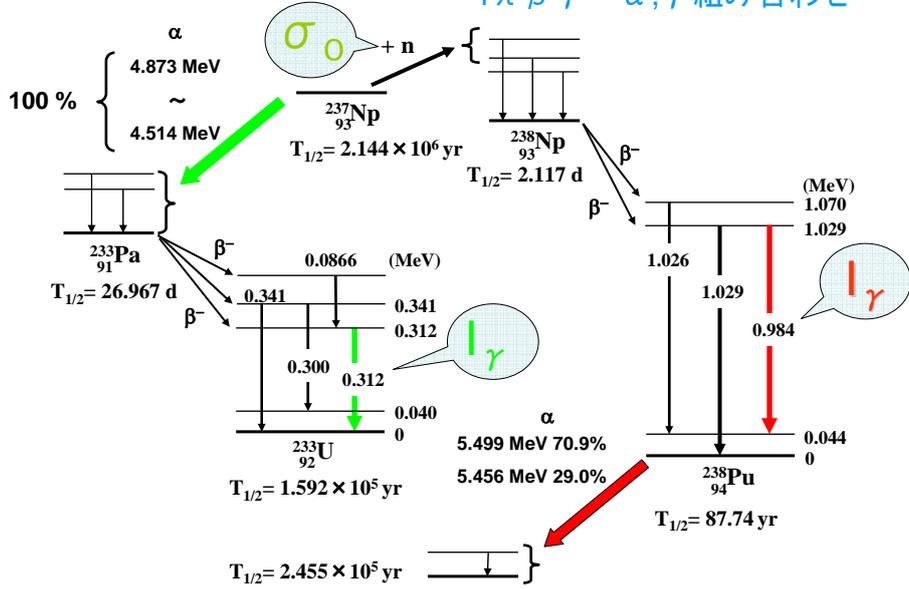
ガンマ線放出率確率:

多くの場合文献値を利用するが、しばしば大きな
系統的誤差の一因となる。

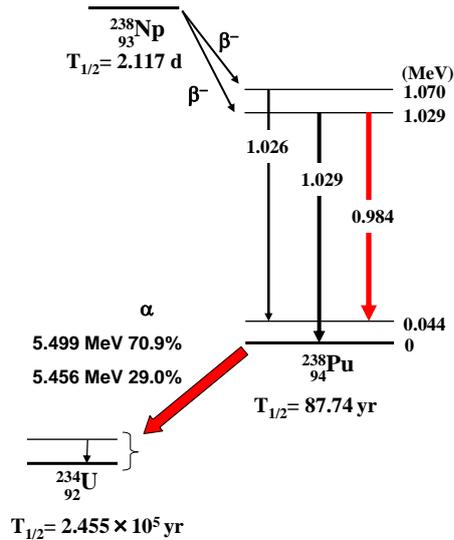
改善策: 独自の測定 (名大の高精度測定実績例)

ガンマ線放出率測定例

4πβγ → α, γ 組み合わせ



^{238}Np の γ 測定 ^{237}Np の σ_{eff} 測定



核データの誤差原因の例: γ 線放出率(^{237}Np の場合)

Authors (year)	Isotopes	γ -ray energy (keV)	γ -ray intensity (%)	Methods
Harada et al. (2006)	^{238}Np	984	25.2 ± 0.5	α and γ
Table of Isotopes 8ed. (1996)	^{238}Np	984	27.8 ± 0.8	Evaluation
Yongfu et al. (1990)	^{238}Np	984	25.19 ± 0.21	$4\pi\beta\gamma$
Table of Isotopes 7ed. (1978)	^{238}Np	984	27.8 ± 0.8	Evaluation
Schuman et al. (1969)	^{238}Np	984	24.5	α and γ

核データの導出には、既存の報告値を利用する場合がありますが、その誤差にも測定者が認識していない誤差が存在する可能性がある。

①出典: http://www.soc.nii.ac.jp/cesi/publication/JNST2006/No.11/43_1289-1297.pdf
 ②参考文献: ..

ガンマ線放出率を補正すると(^{237}Np の例)

Table 7 Present results and previous thermal neutron capture cross section of ^{237}Np

Authors (year)	σ (b)	Original σ^0 (b)	Correction factor	Corrected σ^0 (b)
Present result (2006)	198 ± 7	$169 \pm 6^{a)}$		
Katoh et al. (2003)		141.7 ± 5.4	1.189	168 ± 6
Kobayashi et al. (1994)		158 ± 3	1.240	196 ± 4
Jurova et al. (1984)		158 ± 4	$1.086^{b)}$	172 ± 4

^{a)} $g=0.982$ and $s^0=6.27$ were used to deduce σ_0 .
^{b)} ^{237}Np , I_γ (86 keV)=12.4% were used for correction.

Authors (year)	σ_0 (b)	Methods
Harada et al. (2006)	169 ± 4	Activation, 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	File Oscillation
Smith et al. (1957)	170 ± 22	$\sigma_{\text{TOT}} - \sigma_{\text{SCA}}(\text{CAL})$
Brown et al. (1956)	172 ± 7	Activation, α

CEA 180 ± 5 ← → JAEA 169 ± 4
 最新の測定値

①出典: http://www.soc.nii.ac.jp/cesi/publication/JNST2006/No.11/43_1289-1297.pdf
 ②参考文献: ..

熱中性子炉での中性子束 ϕ の測定

When an effective cross section $\hat{\sigma}$ for well moderated neutrons is expressed by the Westcott's convention,²²⁾ the reaction rate R is given by the following equation:

$$R = nv_0\hat{\sigma}, \quad (2)$$

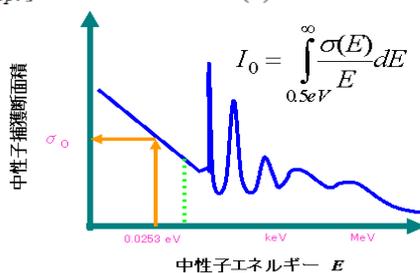
where nv_0 is the "neutron flux" in the Westcott's convention with the neutron density n , including thermal and epithermal neutrons, and with the velocity of neutron $v_0=2,200$ m/s, and

$$\hat{\sigma} = \sigma_0[gG_{th} + r(T/T_0)^{1/2}s_0G_{epi}]. \quad (3)$$

G_i : サンプル中での中性子自己吸収補正因子

Here, σ_0 is the reaction cross section for 2,200 m/s neutrons, g the measure of the cross section deviation from the $1/v$ law in the thermal energy region, and r an epithermal index in Westcott's convention.²²⁾ The characters T and T_0

g:微分データ情報が必要



熱中性子炉での中性子束 ϕ の測定

AuやCoなど標準モニターの放射化量を測定し、フラックスを決定する。

$g=1$ の場合

Modifying the Westcott's convention

$$\frac{R}{\sigma_0} = \phi_s G_{th} + \phi_e s_0 G_{epi}$$

for irradiation without a Cd shield,

$$\frac{R'}{\sigma_0} = \phi'_s G'_{th} + \phi'_e s_0 G_{epi}$$

for irradiation with a Cd shield.
where

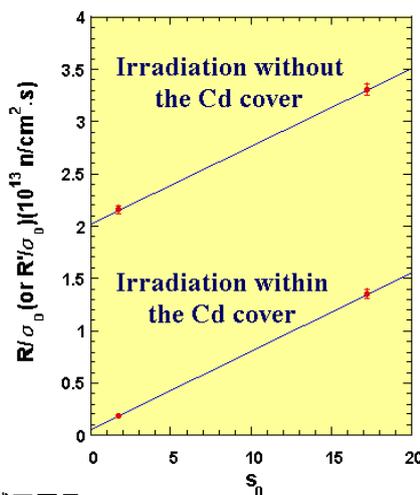
$$s_0 = \sqrt{\frac{4}{\pi} \frac{I'_0}{\sigma_0}}$$

I'_0 is the resonance integral after subtracting the $1/v$ component

Resonance Integral I_0

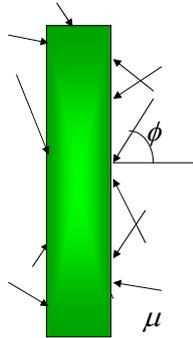
$$I_0 = I'_0 + 0.45 \sigma_0$$

for a cadmium cut-off energy of 0.5eV

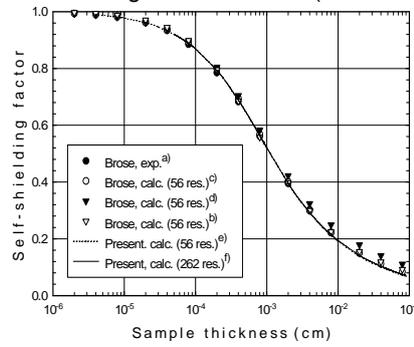


G_i : サンプル中での中性子自己吸収補正因子

G_i: サンプル中での中性子自己吸収補正因子の計算



Resonance self-shielding factor for Gold (absolute value)



$$P_a(t) = \int_0^1 \mu \cdot d\mu \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \left(1 - e^{-\frac{t}{\mu} N_a \sigma_0 \psi(\theta, x)}\right) dx$$

μ - cosine of incidence angle

σ_0 - peak cross section

N_a - number of nuclei in unit volume

$$\psi(\theta, x) = \frac{\theta}{2 \cdot \sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-\frac{1}{4}\theta^2(x-y)^2}}{1+y^2} dy \quad \Delta = \sqrt{\frac{4E_0 kT}{A}} \quad \theta = \frac{\Gamma}{\Delta} \quad x = \frac{2 \cdot (E - E_0)}{\Gamma}$$

Doppler broadening function

Doppler width

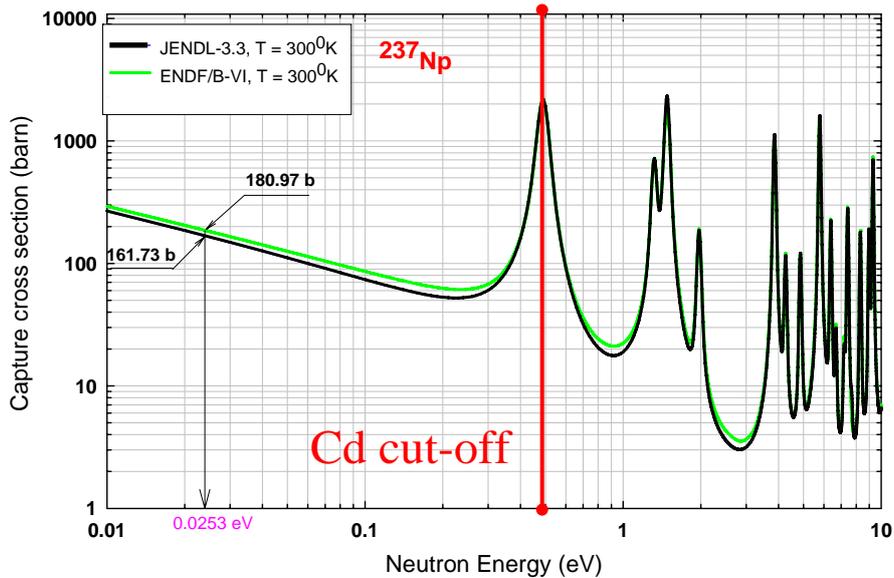
①出典:

<http://www.soc.nii.ac.jp/aesj/publication/>

②参考文献: -

JNST2002/No.5/39_548-553.pdf

共鳴ピークが0.5eV以下に存在する場合の注意点



共鳴ピークが0.5eV以下に存在する場合の注意点

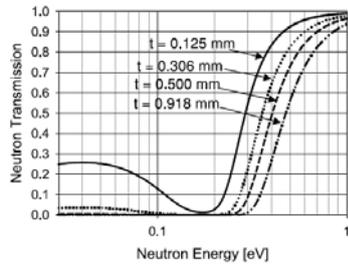


Fig. 2 Transmission of neutrons through a Cd sheet with various thickness

The solid line shows the transmission through a Cd sheet of 0.125 mm thick, the dotted line that through a Cd sheet of 0.306 mm thick, the broken line that through a Cd sheet of 0.5 mm, and the dot-dash-line that through a Cd sheet of 0.918 mm.

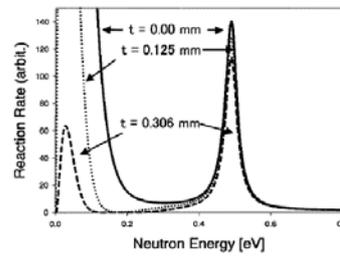


Fig. 5 Reduction of reaction rates around the 0.49 eV resonance of $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ due to the reduction of neutrons in Cd cover sheets

The solid line shows the reaction rate without a Cd sheet, the dotted line that within Cd sheets of 0.125 mm thick, and the broken line that within Cd sheets of 0.306 mm.

Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 40, No. 8, p. 559–568 (August 2003)

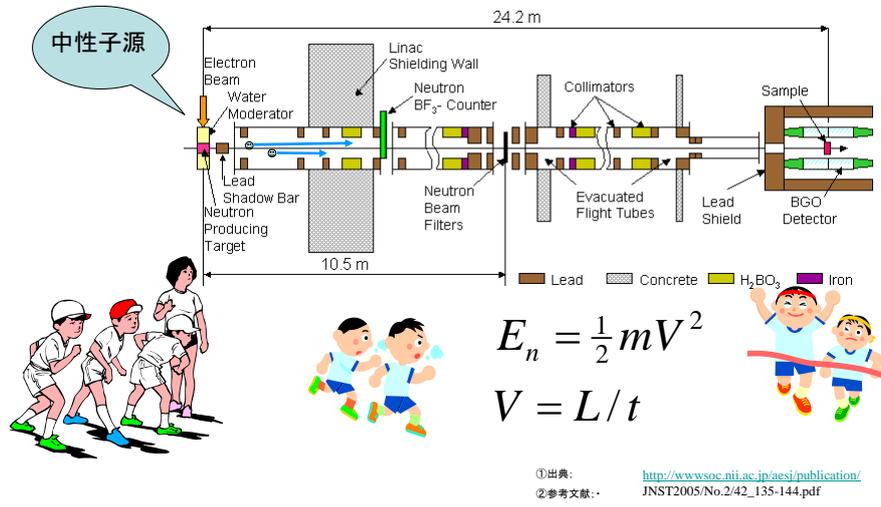
Measurement of Thermal Neutron Capture Cross Section and Resonance Integral of the $^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}$ Reaction

b) 飛行時間測定法による中性子捕獲断面積の測定

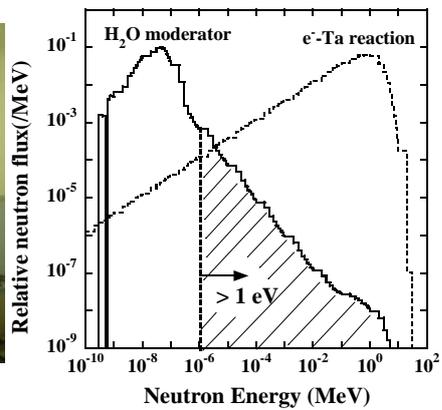
加速器で得られるパルスビームを中性子源に照射すると、そこからパルス状の中性子が飛び出してくる。この中性子源から一定距離離れた位置にある試料に到達する中性子の飛行時間は、中性子のエネルギーに依存する。中性子が試料に捕獲されると、瞬時にガンマ線を放出する(即発ガンマ線)ので、加速器のビーム照射からガンマ線が検出される時間の差で、どのエネルギーの中性子が捕獲されたかを求めることができる。

飛行時間法 (Time-Of-Flight (TOF)) は、加速器のパルスビーム照射時刻とガンマ線の検出される時刻の差を測定し、中性子のエネルギーを決定すると共に、中性子のエネルギー変化による中性子反応断面積変化を測定する方法である。

京大炉Linac施設24.2m flight pathにおける測定配置



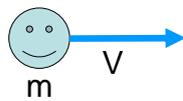
京大炉Linac施設中性子源とエネルギー分布



飛行時間と中性子エネルギー の関係

$$E_n = \frac{1}{2}mV^2 \dots \textcircled{1}$$

$$V = L/t \dots \textcircled{2}$$



$$E_n = \frac{1}{2}m(L/t)^2$$

$$\therefore t = L\sqrt{\frac{m}{2E_n}}$$

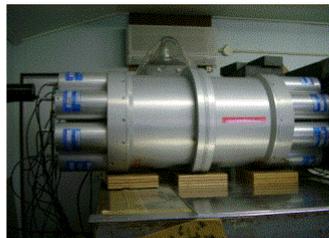
$$\therefore t = \frac{L}{c}\sqrt{\frac{mc^2}{2E_n}}$$

$$mc^2 = 939.55[\text{MeV}]$$

$$c = 2.997925 \times 10^8 [\text{m/s}]$$

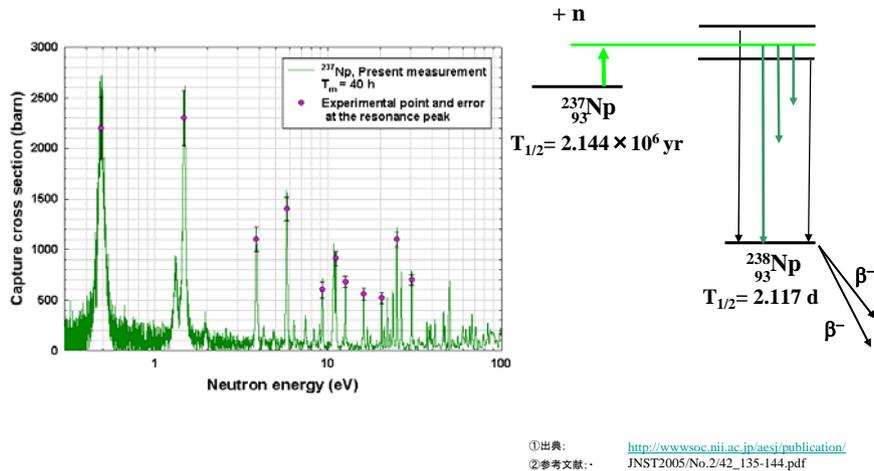
$$\therefore t[\mu\text{s}] = \frac{72.3 \times L[\text{m}]}{\sqrt{E_n[\text{eV}]}}$$

検出器例: 4π BGO検出器



4π型検出器としては、現在
BGO ($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$)シンチレータの他に
 BaF_2 シンチレータなどが利用されている。
さらに性能の高い検出器が開発されつつある。

1gの ^{237}Np ターゲットを用いて、TOF法にて測定した ^{237}Np の中性子捕獲断面積の結果



①出典: <http://www.soc.nii.ac.jp/aesi/publication/>
 ②参考文献: JNST2005/No.2/42_135-144.pdf

測定システム例

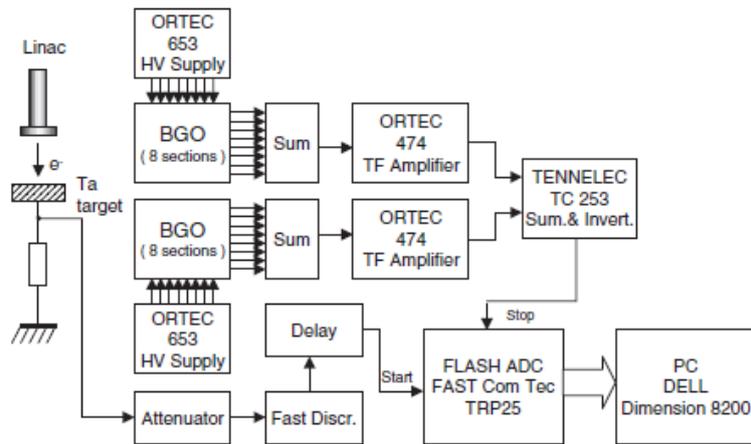


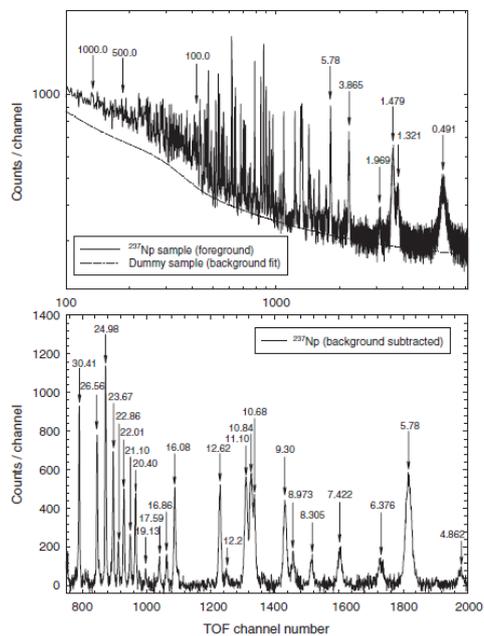
Fig. 3 Block diagram of the data taking system

①出典: <http://www.soc.nii.ac.jp/aesi/publication/>
 ②参考文献: JNST2005/No.2/42_135-144.pdf

中性子捕獲事象の測定例

Fig. 5 The time-of-flight spectra of ^{237}Np : (upper) neptunium sample (solid) and dummy sample (fit, dash-dotted), energy range $0.3\text{ eV} < E_n < 1.8\text{ keV}$; (lower) ^{237}Np sample (background subtracted), $4.9\text{ eV} < E_n < 32\text{ eV}$

The energies of the resonances are shown in eV, TOF channel width is equal to 400 ns, Linac pulse width is equal to 100 ns.



①出典: <http://wwwsoc.nii.ac.jp/aesi/publication/>
②参考文献: JNST2005/No.2/42_135-144.pdf

中性子束の測定例: B-10を標準断面積とした相対測定

ブラックレゾナンスフィルターによりバックグラウンドを決定

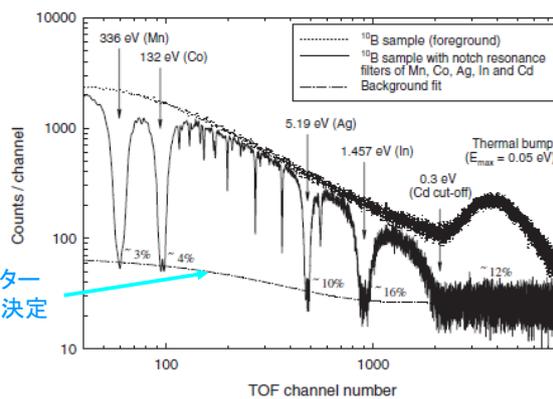


Fig. 4 The time-of-flight spectra of ^{10}B in the energy range $0.018\text{ eV} < E_n < 750\text{ eV}$: ^{10}B sample without filters (dotted), ^{10}B sample with resonance filters of Mn, Co, Ag, In and Cd (solid), fitted background (dash-dotted)

The energies of "black" resonance minima and percentage values of the background are shown, TOF channel width is equal to $1.6\mu\text{s}$, Linac pulse width is equal to $3\mu\text{s}$.

①出典: <http://wwwsoc.nii.ac.jp/aesi/publication/>
②参考文献: JNST2005/No.2/42_135-144.pdf

サンプル中自己吸収と多重散乱の補正

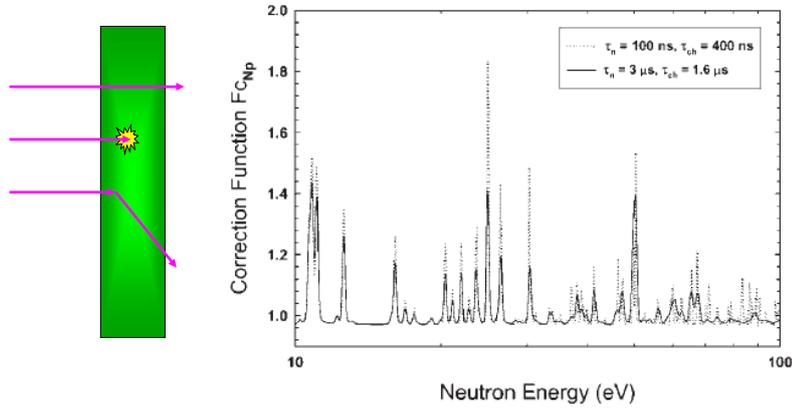


Fig. 6 Neutron self-shielding and multiple scattering correction for the ^{237}Np sample broadened by the TOF resolution function

①出典: <http://www.soc.nii.ac.jp/aeis/publication/>
②参考文献: JNST2005/No.2/42_135-144.pdf

その他の誤差要因

- ① サンプル量の精度
- ② サンプル中不純物の影響
- ③ サンプルの大きさ、位置の再現精度
(標準サンプルと測定対象サンプルの大きさ)
- ④ サンプル密度の一様性
- ⑤ データ収集系の不感時間補正精度
- ⑥ 検出効率の中性子エネルギー依存性
- ⑦ 検出器の応答関数の精度

④ 核データの精度向上は可能か？

独立な測定手法で一致するか否かで確認

例:放射化法と微分データ比較

個々の測定精度を高める

統計精度を高める 例:J-PARC, 高効率検出器,
良質サンプルの製作, バックグラウンド低減

系統誤差の評価精度を高める

例:シミュレーション評価の精度

認識されていない系統誤差要因の発見例: F-ADC

間接的な測定方法と理論計算の融合による未測定データの
予測精度向上