DOI:10.11484/jaea-review-2021-038

**Development Project-**

# 遮蔽不要な臨界近接監視システム用 ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発 (委託研究) ー令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー Technology Development of Diamond-base Neutron Sensors and Radiation-resistive

(Contract Research)
-FY2020 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource

Integrated-circuits for Shielding-free Criticality Approach Monitoring System

福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 高エネルギー加速器研究機構

> Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science, Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development High Energy Accelerator Research Organization

January 2022

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<a href="https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja">https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</a>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<a href="https://www.jaea.go.jp">https://www.jaea.go.jp</a>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発 (委託研究)

-令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業-

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター

高エネルギー加速器研究機構

(2021年9月14日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA) 廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和2年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業(以下、「本事業」という)を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等をはじめとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、令和 2 年度に採択された「遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発」の令和 2 年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、遮蔽不要な臨界近接監視モニター用中性子検出器の要素技術を開発することを目的としている。実機は軽量かつ最大 1 kGy/h の高 γ 線環境下で数 cps/nv の中性子検出感度が要求される。本研究では、炉雑音解析法からの要請を基にダイヤモンド中性子検出素子と耐放射線性集積回路技術を用いた信号処理・データ転送用集積回路を使用した計測要素を試作し、実機開発に必要なデータを取得する。また実機の使用を想定した臨界近接評価手法の検討も行う。令和 2 年度は、耐放射線トランジスタの開発、臨界近接監視システムの設計、信号処理・データ転送用集積回路の設計を行い令和 3 年度での製作と評価に備えた。中性子検出素子に関しては中性子検出用ダイヤモンド素子の中性子検出効率および高γ線環境下での動作について評価を開始した。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、高エネルギー加速器研究機構が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター:〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

Technology Development of Diamond-base Neutron Sensors and Radiation-resistive Integrated-circuits for Shielding-free Criticality Approach Monitoring System (Contract Research)

FY2020 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science, Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development Japan Atomic Energy Agency Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

High Energy Accelerator Research Organization

(Received September 14, 2021)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to "the Project") in FY2020.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields.

The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2020, this report summarizes the research results of the "Technology development of diamond-base neutron sensors and radiation-resistive integrated-circuits for shielding-free criticality approach monitoring system" conducted in FY2020.

The present study aims to develop key components of neutron detection system without a radiation shield for a criticality approach monitoring system. It is required high neutron detection efficiency for a few cps/nv under high gamma ray radiation environment (i.e. 1 kGy/h maximum) and compact-light-weight to fit constraints of the penetration size and the payload.

In order to develop the monitoring system, the project aims to design and evaluate neutron detection devices based on diamond sensors and a high radiation resistive signal-processing data-transfer system based on radiation resistive integrated circuit technologies and modification based on feedbacks from the view point of reactor noise analysis. We also study criticality approach monitoring methods to apply developed components in the realistic environment.

Radiation-tolerant transistors, signal-processing and data-transferring integrated circuits, design of criticality approach monitoring system in FY2020 are finished and ready for production and evaluation in FY2021. Evaluations of neutron detection efficiency and the behavior of diamond sensing devices under high gamma ray environment started in FY2020.

Keywords: Criticality Approach Monitoring, Neutron Detection, Radiation Tolerant, Diamond Sensor, Integrated Circuit

This work was performed by High Energy Accelerator Research Organization under contract with Japan Atomic Energy Agency.

## 目次

1.	英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要1
2.	平成 30 年度 採択課題 2
3.	令和元年度 採択課題5
4.	令和 2 年度 採択課題8
付	録 成果報告書11
	Contents
1.	Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project
	1
2.	Accepted Proposal in FY2018
3.	Accepted Proposal in FY2019
4.	Accepted Proposal in FY2020
Ap	pendix Result Report11

This is a blank page.

#### 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成 26 年 6 月文部科学省)」等を踏まえ、平成 27 年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、 機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課 題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

## 2. 平成30年度採択課題

平成30年度採択課題については以下のとおりである。

課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題(若手研究 6 課題、一般研究 5 課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 6課題

国際協力型廃炉研究プログラム 2課題 (日英共同研究)

## 平成30年度採択課題一覧

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための 半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマ ップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性 微粒子回収法の高度化	山﨑 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部 被ばくの横断的生体影響評価	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変 異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低い ストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

# 共通基盤型原子力研究プログラム

# 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオ ライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の 開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種 同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

# 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基 盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場 環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止 技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能 イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デ ブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

# 国際協力型廃炉研究プログラム (日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク 低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

## 3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

## 課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 7課題 (若手研究2課題、一般研究5課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 4課題

国際協力型廃炉研究プログラム 4課題(日英共同研究2課題、日露共同研究2課題)

研究人材育成型廃炉研究プログラム 4課題

## 令和元年度 採択課題一覧

## 共通基盤型原子力研究プログラム

## 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海 水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

# 共通基盤型原子力研究プログラム

# 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建 屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新た な評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 ( <sub>令和元年度まで)</sub> 大曲 新矢	産業技術総合研究所

# 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島 2・3 号機ペデ スタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化 技術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立 GE ニュークリ ア・エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物 の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームに よる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

# 国際協力型廃炉研究プログラム(日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するア ルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安 全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学 (令和2年度 まで) 岡山大学

# 国際協力型廃炉研究プログラム(日露共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に 関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾

## 研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のた めの遠隔技術に関する研究人材育成	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合した デブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育 成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デ ブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦 (平成30年度まで) 竹下 健二	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

#### 4. 今和2年度 採択課題

令和2年度は、2つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。 公募の概要は以下のとおりである。

公募期間:令和2年3月17日~令和2年5月14日(課題解決型) 令和2年5月13日~令和2年7月15日(国際協力型)

課題数:10課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8課題(若手研究2課題、一般研究6課題)

国際協力型廃炉研究プログラム 2課題(日英共同研究)

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。

その後、PD(プログラムディレクター)・PO(プログラムオフィサー)会議での審議を経て、採 択課題を決定した。

## 令和2年度 採択課題一覧

#### 課題解決型廃炉研究プログラム

## 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れ の調査	楊 会龍	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の 分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料 研究機構

# 課題解決型廃炉研究プログラム

# 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド 中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー 加速器研究 機構
α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納 容器系統内広域防食の実現:ナノバブルを用いた 新規防食技術の開発	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X線同時解析による迅速・高感度放射性核 種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄 筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄 物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高 度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

# 国際協力型廃炉研究プログラム (日英共同研究)

課題名	研究代表者	所属機関
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技 術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン 技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・ 航空技術 研究所

本報告書は、以下の課題の令和2年度の研究成果を取りまとめたものである。

## 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモ ンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー 加速器研究機構

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

# 付録

成果報告書

This is a blank page.

# 令和2年度

日本原子力研究開発機構 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモ ンド中性子検出器の要素技術開発 (契約番号 R02I139)

成果報告書

令和3年3月

大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構が実施した「遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発」の令和2年度の研究成果を取りまとめたものです。

## 目次

概■	各		. vii
1.	はじめ	に	1
2.	業務計	画	3
2	.1 全体	本計画	3
	2. 1. 1	高耐放射線スケーラブル中性子検出器 信号読み出しシステム開発	3
	2.1.2	ダイヤモンド中性子検出素子の開発	4
	2. 1. 3	検出素子、計測要素の性能評価と臨界近接監視手法の検討	5
	2.1.4	研究推進	6
	2.1.5	全体計画図	7
	2.1.6	実施体制図	8
2	.2 令和	□2年度の成果の目標及び業務の実施方法	9
	2. 2. 1	高耐放射線スケーラブル中性子検出器 信号読み出しシステム開発	9
	2.2.2	ダイヤモンド中性子検出素子の開発	9
	2.2.3	検出素子、計測要素の性能評価	9
	2.2.4	研究推進	. 10
	2. 2. 5	令和2年度の実施計画図	. 11
3.	令和2	年度の実施内容及び成果年度の実施内容及び成果	. 12
3	.1 高而	所放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発	. 12
	3. 1. 1	スケーラブルシステム開発	. 12
	3. 1. 2	フロントエンド集積回路開発	. 13
	3. 1. 3	バックエンド集積回路開発	. 14
3	.2 ダイ	・ イヤモンド中性子検出素子の開発	. 16
	3. 2. 1	自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発	. 16
	3. 2. 2	CVD 単結晶ダイヤモンドの自立膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証	. 19
	3. 2. 3	積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発	. 22
	3. 2. 4	検出素子の基板実装技術の開発	. 26
3	.3 検出	出素子、計測要素の性能評価	. 26
	3. 3. 1	検出素子の性能評価	. 26
	3. 3. 2	集積回路等の耐放射線性試験	. 30
	3. 3. 3	検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価	. 30
	3. 3. 4	臨界近接監視手法に関する検討	. 37
3	.4 研究	5推進	. 40
4.	結言		. 41
<b>会</b> え	医少缺		11

## 執筆者リスト

事業代表者	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構	教授	田中真伸
組織代表者	国立研究開発法人産業技術総合研究所	主任研究員	梅沢 仁
研究分担者	国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学	准教授	遠藤知弘
組織代表者	国立大学法人北海道大学	准教授	金子純一
研究分担者	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構	准教授	岸下徹一
組織代表者	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	課長	谷村嘉彦
研究分担者	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構	准教授	宮原正也
組織代表者	国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学	准教授	渡辺賢一

## 表一覧

表 3.3.1-1	試作した検出器の $5.486~{ m MeV}lpha$ 線を使用した性能評価結果 $\dots$	. 27
表 3.3.3-1	計算された各照射位置での熱中性子東	. 34
表 3.3.3-2	実験で得られた中性子計数率およびモンテカルロシミュレーションにより得ら	)
	れた LiCAF 中での <sup>6</sup> Li (n, t) 反応の反応率	. 36

## 図一覧

図 2-1	臨界近接監視システム実機の中性子検出器部のイメージ	3
図 3.1.1-1	システム開発の方針と開発要素	. 12
図 3.1.2-1	CMOS22 nm 半導体プロセスを使用したトランジスタ TEG のレイアウト図.	. 13
図 3.1.2-2	CMOS65 nm 半導体プロセスを使用したフロントエンド集積回路の設計仕様	きと
	レイアウト図	. 14
図 3.1.3-1	CMOS65 nm 半導体プロセスを使用したヒーリング機構付きデジタル信号転	送
	回路のレイアウト図	. 15
図 3. 2. 1-1	住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド基板の例	. 16
図 3. 2. 1−2	ダイヤモンド基板の偏光顕微鏡像	. 16
図 3. 2. 1-3	ダイレクトウエハ法による検出器用 CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の製化	乍過
	程	. 17
図 3. 2. 1-4	ダイレクトウエハ法により製作した CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の表面	訂形
	態例	. 17
図 3.2.1-5	CVD 合成基板のロッキングカーブ測定例	. 17
図 3.2.1-6	使用したダイヤモンド単結晶基板の例	. 18
図 3.2.2-1	使用したダイヤモンド単結晶基板の例	. 19
図 3.2.2-2	EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶基板上にホモエピタキシャル成長したダイ	ヤ
	モンドの表面	. 19
図 3.2.2-3(1/2)	EDP 社製 CVD 単結晶基板上に合成したエピタキシャルダイヤモンド層のカ	リソ
	ードルミネッセンス測定例	. 20
図 3.2.2-3(2/2)	EDP 社製 CVD 単結晶基板上に合成したエピタキシャルダイヤモンド層のた	コソ
	ードルミネッセンス測定例	
図 3.2.3-1	積層ダイヤモンド構造	. 22
図 3.2.3-2	p+コンタクト層成長後の表面状態	
図 3.2.3-3	高圧単結晶、CVD 単結晶とヘテロ結晶の内部応力分布	
図 3.2.3-4(a)	高圧単結晶への p+層成長前後における形状変化	
図 3.2.3-4(b)	CVD 単結晶への p+層成長前後における形状変化	. 24
図 3.2.3-4(c)	ヘテロ結晶への p+層成長前後における形状変化	. 25
図 3.2.4-1	高エネ研製計測ボード上に北大製ダイヤモンド検出素子を実装	. 26
図 3.3.1-1	北大製ダイヤモンド中性子検出器の断面図	. 27
図 3. 3. 1-2	北大製ダイヤモンド中性子検出器の <sup>252</sup> Cf 中性子源に対する応答関数測別	定例
		. 27
図 3.3.1-3	名大コバルト 60 ガンマ線照射室における実験体系の例	. 28
図 3.3.1-4	γ線量率環境で測定したダイヤモンド検出器の応答関数	. 28
図 3.3.1-5	JAEA 熱中性子校正場における中性子検出感度評価実験体系	. 29
図 3.3.1-6	JAEA 熱中性子校正場における中性子測定応答関数測定例	. 29
図 3.3.2-1	北大の X 線照射装置の外観	. 30
図 3.3.3-1	アルミニウム製遮蔽箱のふたに固定した高エネ研製読出し回路とダイヤマ	モン
	ド検出素子	
図 3.3.3-2	高エネ研製フロントエンド読出し集積回路の簡易的な回路図	. 30

図 3.3.3-3	ダイヤモンド検出素子に $5.486~{ m MeV}\alpha$ 線を入射させた際の出力信号観測例	
		31
図 3.3.3-4	導入した <sup>252</sup> Cf 中性子源の外観	32
図 3.3.3-5	ポリエチレン減速材の中心に配した <sup>252</sup> Cf 中性子源	32
図 3.3.3-6	モンテカルロシミュレーションの計算体系	33
図 3.3.3-7	計算された熱中性子束の空間分布	33
図 3.3.3-8	計算された各位置での中性子スペクトル	34
図 3.3.3-9	実験実施時の外観写真(上段)および使用した計測回路系(下段)	35
図 3.3.3-10	LiCAF シンチレータで得られた信号波高分布の一例	35
図 3.3.3-11	整備したサンプルステージの外観	36
図 3.3.3-12	遠隔操作した際のサンプル位置での線量率の時間変化	37
図 3.3.4-1	加速器駆動未臨界過渡変化実験における中性子計数率の時間変化	38
図 3.3.4-2	中性子計数率のオーダーが中性子源増倍法に与える影響	39
図 3.3.4-3	中性子計数率の移動平均 (t)に対する中性子源増倍法の適用結果	40

#### 略語一覧

JAEA : Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)

CLADS : Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

(廃炉環境国際共同研究センター)

1F : 東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所

高エネ研: 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

産総研:国立研究開発法人産業総合技術研究所

北大 : 国立大学法人北海道大学

名大 : 国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学

住友電工: 住友電気工業株式会社EDP 社: 株式会社イーディーピーElement Six: Element Six Holdings Ltd.

ANSeeN : 株式会社 ANSeeN

IRID : 技術研究組合国際廃炉研究開発機構

#### 概略

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所(以下、「1F」という)の炉内状況の把握、燃料デブリ取出しの早期実現、臨界リスク管理に資するため、本研究では、遮蔽不要な臨界近接監視システム用中性子検出器の要素技術を開発する。遮蔽不要な臨界近接監視システム用中性子検出器の要素技術を開発する。遮蔽不要な臨界近接監視システム用中性子検出器には軽量かつ最大1 kGy/hの高 γ 線環境下で数 cps/nv の高い中性子検出感度が要求される。これを実現するために炉雑音解析法からの要請を基に、ダイヤモンド中性子検出素子と耐放射線性集積回路技術を応用・発展させた信号処理・データ転送用集積回路を使用した計測要素を試作し、実機開発に必要なデータを取得する。また実機の使用を想定した臨界近接評価手法の検討も並行して行う。

令和2年度は、耐放射線トランジスタの開発、臨界近接監視システムの設計、信号処理・データ転送用集積回路の設計を行い令和3年度での製作と評価に備えた。中性子検出素子に関しては中性子検出用ダイヤモンド素子の中性子検出効率および高γ線環境下での動作について評価を行った。

#### 1. はじめに

1F における燃料デブリ取り出し作業において、燃料デブリ形状や水量の変化による臨界を防止し、万が一臨界が生じた場合でも一般公衆及び作業員に過度の被ばくが生じることのないような臨界管理手法の確立が必須となっている。これに対応するため、技術研究組合国際廃炉研究開発機構(以下「IRID」という)では参考文献[1-1]等で公表されている、燃料デブリ臨界管理技術を開発している。この中で解決すべき課題が最大 1 kGy/h の高  $\gamma$  線環境下で燃料デブリからの微弱な中性子を計測可能とする数 cps/nv の中性子検出感度を持った、軽量な臨界近接監視システムの実現にある。

初期に使用される臨界近接監視システムは狭隘なペネトレーションを通して原子炉格納容器 (PCV) 内に挿入する必要があり、燃料デブリ取り出し装置のペイロードから重量制限が非常に厳しく、PCV 詳細調査用アーム型アクセス装置は 10~kg 未満[1-2] となっている。また当初は中性子線源をもちいた動的手法の使用は選択肢から外されており、炉雑音解析法の要請から数 cps/nv の中性子検出感度を持つ必要がある。参考文献[1-1] では 1 時間の測定で炉雑音法の一種であるファイマン  $\alpha$  法による臨界度評価可能な高感度 10 B 比例計数管(中性子検出感度: 2~cps/nv)の場合、厚さ 2~cm の鉛遮蔽が必要となり総重量が 150~kg を超えると試算している。また半導体中性子検出器の使用に関しては、信号対雑音比を向上させるためには信号処理回路をできるだけ検出器近傍に置く必要があり市販の集積回路を使用する場合放射線遮蔽が必要となる。ここまでで述べたように、臨界近接監視システムが満たさなくてはならない要求としては、高  $\gamma$  線環境下で数 cps/nv の中性子検出感度を持ち、軽量かつ小型であることが必須であり全ての要求を同時に満たすシステムを開発することは容易ではないが、学際連携等により原子炉圧力容器 (RPV) 内部で使用可能な素子開発からシステム構築までのノウハウを効果的に使用し臨界近接監視システムの開発を成功させることが、デブリ取り出し作業を遅延なく進める上で急務である。

上記の課題を検討していくと一般的には以下のようなことが明らかになる。

- (1) 軽量化の観点からは、 $\gamma$ 線防護のための遮蔽物の重量をできるだけ少なくする必要がある。 ただしこの場合  $\gamma$ 線防護が必要な検出素子は使用不可能になる。
- (2) 高γ線環境下での中性子検出の検出効率の向上に関しては、検出部の材料とγ線バックグランドとの相互作用を減らすことが重要であり、検出部の材料以外は、できるだけ原子炉圧力容器 (RPV) 内部に入れない方がよく、また使用する材料も原子番号の小さいものを使用することが望ましい。これにより検出部構造体からのコンプトン散乱による電子が減少することで、中性子検出に対するバックグランドも減少する。
- (3) 検出素子の信号処理の観点からは、信号処理回路ができるだけ検出素子に近い方が雑音を減らし高い信号対雑音比で中性子検出できる。現状検出部と人間が滞在可能な空間までは数十 m 離れているため、可能な信号処理手法としては信号処理回路を検出素子に近づけるか、抵抗等で検出素子からの信号を電圧に変換し長距離ケーブルを通して信号を検出するかの 2 種類と考えられる。後者の場合検出素子からの信号が大きい場合は適応可能だが、一般に半導体及びガスを使用した検出素子からの信号は小さく、ケーブルのインピーダンスマッチングも考えた場合には実用的でない。

つまり、できるだけ原子数の小さい材料を用いて薄いもしくは物質量の小さい検出部を構築し、信号処理回路は検出素子の近くに置くことが可能であれば開発を推進することができる。ただし耐放射線性能は1 MGy 以上必要である。この観点から臨界近接監視システムに対してどのような要件が必要とされるかをもう少し検討する。構造として薄い検出器を検討した場合、読み出し電

極間の距離が近くなるため原理的には検出器容量は増加する。これは雑音を増加させるため、電極構造の観点からは読み出し電極を分割することが必須となる。特に半導体を使用した検出素子の場合は数 µm の検出層の場合、読み出し電極の大きさをセンチメートルオーダーまで広げると検出器容量が著しく増加し、雑音の増加と信号処理回路の消費電力の増加や設計開発の困難さが問題となる。よって読み出し電極の細分化は避けられない。一方中性子検出効率を上げるためには検出素子の数を増加させる必要がある。この"検出素子数の増加要求"と上記(3)で述べた"検出処理信号処理部はできるだけ検出素子に近づけること"を満たすためには、臨界近接監視システムに特化した検出素子信号読み出し用集積回路を開発せざるを得なくなる。このため臨界近接監視システム開発においては耐放射線検出素子技術と耐放射線集積回路技術は避けて通ることのできない必須の技術となる。

さて、検出素子として半導体に目を向けてみると、監視カメラやロボットなどの目に使用される CCD カメラなどのシリコン半導体センサーは放射線計測にも多く用いられるが、耐放射線性能が高くないため、高放射線環境下の原子炉内部調査には、不向きである。一方、ダイヤモンドは半導体センサー材料として優れた特性を持っており、特にワイドギャップ及び低誘電率により、高放射線環境下では他の半導体をしのぐ信号対雑音比を有する優れたセンサー材料である。また原子番号も12であり小さく前述の要請を満たす。この材料を使用した素子製作技術や評価に関しては北大および産業技術総合研究所は種々の技術蓄積を保有し、世界の中でも開発拠点となっている。

電子回路の開発という観点からはトランジスタの耐放射線性能を考慮しなくてはならない。大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構(以下、「高エネ研」という)ではBファクトリー加速器・Large Hadron Collider・大強度陽子加速器施設等世界最強加速器の高放射線環境下で動作するセンサー信号処理用集積回路開発と実用化を行ってきた。その経験から、超微細 CMOS プロセスを用い、かつトランジスタ構造を変えることで、商用シリコン半導体プロセスを使用した集積回路でも数 MGv もの高放射線環境下で安定に動作することがわかってきた。

我々は日本が世界に誇るダイヤモンド放射線検出器技術、耐放射線測定装置の開発で培われた耐放射線性集積回路技術、スケーラブルシステムの豊富な開発経験に基づき、国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学(以下、「名大」という)と連携し未臨界度測定の専門家の知見を反映した遮蔽不要な臨界近接監視モニターの開発を行う。また開発された技術要素は名大および国立研究開発法人日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という)との連携のもとそれぞれの機関で所有している特色ある評価場を評価に使用する。これにより臨界近接監視システムの実現に必要な計測要素の試作と評価を行い、実機の成立性検証ならびに設計に必要な基本データの取得を行う。これらの知識を実機開発計画につなげることで、廃炉工程の遅延なく遂行することを目標に本プロジェクトを推進する。また耐放射線性半導体のような廃炉に関わる基本技術を国内で持つことは安全保障上の観点からも重要な意味を持ち、現場からの要求に対して柔軟な対応も可能となるため、本プロジェクトで蓄積された技術ノウハウを生かし他のプロジェクトへの技術還元などを推進していく。

#### 2. 業務計画

#### 2.1 全体計画

本研究の目標は以下の通りである。

- ・1 kGy/h の γ 線環境における微弱中性子計測可能な計測要素の実現
- ・炉雑音解析法(ファイマンα法)で要求される時間幅 1 μs で中性子計数の経時変化を連続測 定可能な信号伝送系の構築
- ・炉雑音解析法で要求される中性子検出感度を達成可能なスケーラブルシステムの構築
- ・主要構成部品の1 MGy 以上の耐放射線性(努力目標4 MGy)

上記を達成することで、実機成立性を実証し、実機開発の設計・開発に必要な要素技術を獲得する。この研究を遂行するにあたり次項から述べる3項目を研究組織(高エネ研、国立大学法人北海道大学(以下、「北大」という)、国立研究開発法人産業総合技術研究所(以下、「産総研」という)、名大、JAEA)が連携する。図2-1に目標とする中性子検出器の概念図を示す。

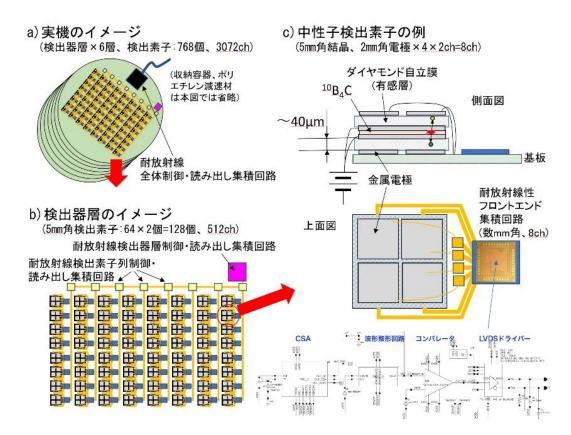


図 2-1 臨界近接監視システム実機の中性子検出部のイメージ

(本要素技術開発ではダイヤモンド検出素子一検出器素子列・読み出し集積回路一検出素子層制御・読み出し集積回路一全体制御・読み出し集積回路を基板上に実装した計測要素を製作し、1 kGy/h の高γ線環境下における中性子計測性能評価試験等を行う。)

2.1.1 高耐放射線スケーラブル中性子検出器 信号読み出しシステム開発(高エネ研) 実機では数千チャンネルの中性子検出素子からの信号を処理しデータ転送する必要がある。 また炉雑音解析法による実効増倍率測定を行うためには時間幅 1 us で中性子計数の時間変化の 計測が必要となる。これらを実現するために、積算線量 1 MGy 以上、努力目標 4 MGy の耐放射線性をもった中性子検出素子、検出素子からの信号を処理するフロントエンド集積回路、制御ならびに信号伝送を行うバックエンド集積回路を開発し、1 枚の基板上に実装する。基板数を増やすことで必要な中性子検出効率をスケーラブルに達成可能とするシステムを開発する。

#### 2.1.1.1 スケーラブルシステム開発

臨界近接監視システムでは必要な中性子検出効率を確保するため数千チャンネルの中性子検出素子からの信号を処理・伝送する必要がある。これを実現するため、同一基板上に検出素子、信号処理用集積回路、制御・データ転送用集積回路を実装する。さらに基板単位で計測要素を増やすことで、検出効率向上等の要求に柔軟に対応可能なスケーラブルなシステムとなる。これを担保するため、高エネ研で開発してきた半導体ピクセル検出器の制御読み出し手法を基盤としてスケーラブルシステムの設計・開発を行う。下記に述べる耐放射線性集積回路群を開発、使用することで、遮蔽不要で十分な検出効率と時間分解能を有する臨界近接監視システムを実現可能とする。

#### 2.1.1.2 フロントエンド集積回路開発

検出素子からの信号読み出し用途に使用可能と考えられるCMOS 22 nm及び28 nmの最先端 半導体プロセスとCMOS 65 nmプロセスの耐放射線性評価を行う。各プロセスで最小線幅のト ランジスタを含め数種類の基本デバイスを製作し、アニーリング効果も含め耐放射線性能を 調査する。その結果を中性子検出素子読み出し用集積回路開発へフィードバックする。本ス ケーラブルシステムにおいて、トータルドーズ効果による特性劣化はフロントエンド集積回 路で最も顕著に表れる。従って、集積回路の耐放射線性強化を本項目で行うことでスケーラ ブルシステムの開発を円滑に行うことが可能となる。

#### 2.1.1.3 バックエンド集積回路開発

中性子計測に基づく臨界近接監視システムでは、時間幅1 µsで中性子を計数し、その時間変化を記録可能とする必要がある。このためには100 ns程度の時間分解能を維持し、検出した中性子信号を限られた信号線数により送受信する必要がある。更にフロントエンド集積回路の制御も行う。これを数千チャンネル規模の検出素子に対して実現するため、機能を分割した、複数の集積回路を開発する。一つは組み合わせ回路を利用し100 nsの時間分解能を維持した中性子数計測回路を含むフロントエンド集積回路との信号の送受信を行う集積回路であり、もう一つは同様の機能を持ちながら情報を多重化し信号線数を減らすために必要な集積回路である。

#### 2.1.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発

臨界近接監視モニター用中性子検出器の中性子検出素子をダイヤモンド放射線検出素子と <sup>10</sup>B4C 等の中性子・荷電粒子変換物質の組み合わせにより試作する。臨界近接監視モニター用中性子検出器実機では 5 mm 角のダイヤモンドであれば 800 枚弱が必要となる。本開発では高耐放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発で開発する耐放射線性集積回路群と組み合わせて最終的に評価する。電極サイズ、結晶厚さの最適化を進め、計測要素試作に必要な個数の検出素子を製作する。 さらに基板実装技術の開発を高エネ研と共同して行い、段階的に計測要素を供しながらフィードバックをかけ開発を進める。

#### 2.1.2.1 自立膜型ダイヤモンド中性子検出器素子開発(北大、産総研)

すでに実績のある住友電工製高圧高温(HP/HT)IIa型単結晶基板とマイクロ波プラズマCVD法により北大で検出素子用ダイヤモンド単結晶を合成し、産総研が支援するイオン注入・リフトオフ法により自立膜化する。結晶厚さ、電極面積を変え、S/N 比、γ線応答などを評価し検出素子の仕様を決定する。検出素子の量産を見据え、7~8 mm 角程度の不定形単結晶基板からレーザー切断を使用した 5 mm 角程度の定型検出素子の製作、複数枚同時合成技術の開発も行う。1 枚の基板を検出素子用自立膜合成に使用し、次の合成に使用するまで平均3ヵ月かかるため、基板数の確保が重要となる。また、基板の繰り返し利用により基板面積が縮小するため、HP/HT IIa型基板の新規購入に加え、2.1.2.2で代替基板の開発が必要となる。

産総研はイオン注入・リフトオフ、カソードルミネッセンス法による合成ダイヤモンドの評価を行う。さらに北大の合成条件では合成面に数  $\mu$ ~10  $\mu$ m の凹凸が発生するため、これを改善する目的で平滑表面を有するダイヤモンド合成条件の探索も担当する。

## 2.1.2.2 CVD 単結晶ダイヤモンドの自立膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証 (北大、産総研)

2.1.2.1 で使用する住友電工業製 HP/HT IIa 型単結晶基板は年間生産数量に制限がある。 並行して代替可能なダイヤモンド単結晶基板を北大が探索する。結晶性・純度共に高いエレメントシックス社製 CVD 単結晶や自立型単結晶ダイヤモンドの検出器用自立膜合成用基板としての利用可能性を探る。産総研は 2.1.2.1 同様、イオン注入・リフトオフ、カソードルミネッセンス法による支援を行う。

### 2.1.2.3 積層型ダイヤモンド中性子検出器素子の開発(産総研、北大)

産総研が中心となり HP/HT IIa 型基板と比較すると、結晶性に劣るものの1 cm 角以上の大型単結晶が入手可能なモザイク結晶、ヘテロエピタキシャル結晶を使用した積層型ダイヤモンド検出素子の試作を行う。キャパシタンスの問題はあるが中性子検出に必要な膜厚は20 μm 以下であることから薄膜 i 層/p+層による積層構造を内部に組み込んだ検出器構造を試作する。北大はこの試料の検出素子化と評価を担当し、X線照射試験も行う。

#### 2.1.2.4 検出素子の基板実装技術の開発(北大、高エネ研、産総研)

検出素子の基板実装法、耐放射線性集積回路との接続方法について、北大が高エネ研と協力しながら開発を進める。産総研は検出素子用ダイヤモンドの平滑化技術の開発を行う。

#### 2.1.3 検出素子、計測要素の性能評価と臨界近接監視手法の検討

北大 LINAC-II、JAEA・放射線標準施設、名大コバルト照射施設を使い、検出素子、計測要素の中性子感度評価、γ線影響評価等性能試験を行い、実機開発に必要なデータを取得する。 さらに実機使用を想定した臨界近接監視手法を検討する。

#### 2.1.3.1 検出素子の性能評価(北大、JAEA、名大)

試作した検出素子の評価として、I-V、C-V 測定、 $\alpha$ 線を用い電荷キャリア輸送特性を評価する。さらに  $^{10}$ B $_4$ C 等の中性子・荷電粒子変換物質を付与した中性子検出素子を試作し、

<sup>252</sup>Cf 等中性子源、北大 LINAC-Ⅱでの動作試験、JAEA・熱中性子校正場での中性子感度評価を行う。また名大γ線照射施設において検出素子のγ線感度評価を行う。

### 2.1.3.2 集積回路等の耐放射線性試験(北大、高エネ研)

北大の X 線照射施設を使用し、検出素子の一部、耐放射線性集積回路等の照射試験を行う。これまでの経験から X 線照射はオゾンの発生を伴うことから  $\gamma$  線照射よりも電子デバイスに対しては過酷な条件となる。集積回路に関しては  $\gamma$  線照射試験を高エネ研が担当して行う。

## 2.1.3.3 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価(北大、名大)

2.1.3.1 で開発した中性子検出素子とフロントエンド集積回路を組み合わせた計測要素に対して <sup>252</sup>Cf 等中性子源を使用した評価を行う。名大γ線照射施設において中性子検出素子とフロントエンド集積回路を組み合わせた計測要素のγ線影響評価を行う。

2.1.3.4 検出素子+フロントエンド集積回路+バックエンド集積回路の性能評価(北大、JAEA、名大)

中性子検出素子、フロントエンド集積回路、バックエンド集積回路を結合した計測要素を $\alpha$ 線、 $^{252}$ Cf、北大 LINAC- $\Pi$ で評価する。さらに JAEA・標準放射線場で中性子感度評価を行う。最後に 1 kGv/hの $\gamma$ 線環境での影響評価ならびに同環境における中性子計測を行う。

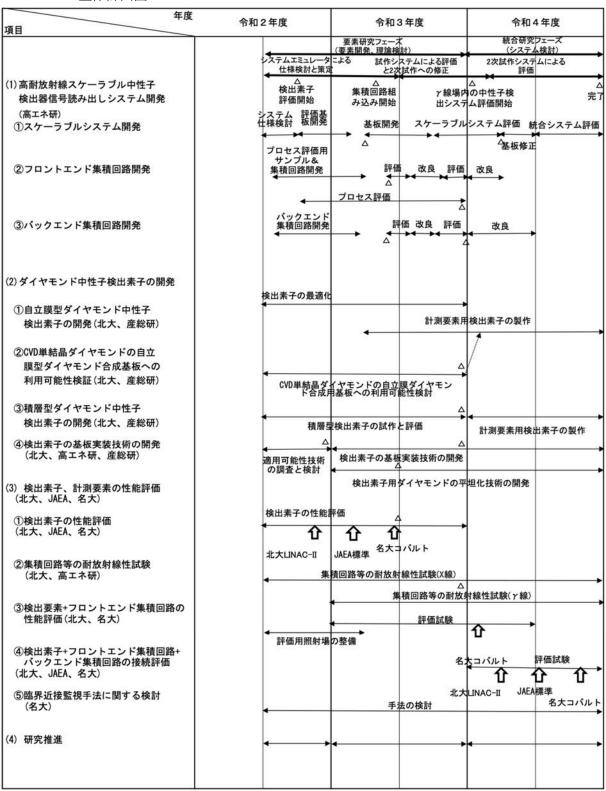
## 2.1.3.5 臨界近接監視手法の検討(名大)

上記 2.1.3.1、2.1.3.3 及び 2.1.3.4 で得られたデータを元に臨界近接監視手法の適用手法を検討し、実機での予測性能の評価を行う。

#### 2.1.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター(以下「CLADS」という)等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

#### 2.1.5 全体計画図



### 2.1.6 実施体制図

## 課題全体のとりまとめ: 田中真伸。

- (1) 高耐放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発。
  - ・(高エネルギー加速器研究機構)。
  - (1) スケーラブルシステム開発・田中真伸。
  - (1)・フロントエンド集積回路開発・岸下・徹一。
  - (1)・バックエンド集積回路開発宮原正也。
- (2)・ダイヤモンド中性子検出素子の開発。
  - (2) 再委託先(北海道大学)。
  - 金子純一。
  - 桶口幹雄。
  - ·大学院生 2名、学部生1名。

自立膜型ダイヤモンド中性子検出器素子開発、CVD単結晶ダイヤモンドの自立 膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証、積層型ダイヤモンド中性子検 出器素子の開発、検出素子の基板実装技 術の開発。

- ・(2) 検出器用ダイヤモンド単結晶製作支援 等 再委託先(産業総合技術研究所)。
- ・梅沢 仁。
- 茶谷原昭義。
- 渡邊幸志。
- ・ポスドク(初年度半年のみ)。

表面平滑ダイヤモンド合成条件の探査、ダイヤモンド自立膜製作、カソードルミネッセンス法による評価、自立膜表面平滑化技術の開発。

- (3)検出素子、計測要素の性能評価。
  - (3) 再委託先(北海道大学)。
  - 金子純一 25% -
  - ·大学院生 2名、学部生1名。

検出素子の性能評価、検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価、検出素子+フロントエンド集積回路+バックエンド集積回路の性能評価。

- (3). 再委託先(北海道大学)。
- 集積回路等の耐放射線性試験(X線)。
- · 小泉 均。
- (3) 集積回路等の耐放射線性試験(γ 線)(高エネルギー加速器研究機構)。
- · 田中真伸 .

- (3) JAEA 放射線標準場を用いた中性子感度 評価(JAEA(連携機関))。
- 谷村嘉彦。
- 西野·翔。
- (3) 再委託先(北海道大学)。

北大ライナックを用いた動作試験。

- 加美山隆。
- 佐藤博隆。
- (3) 再委託先(名古屋大学)。

名大コバルト照射施設を用いた動作試験 と臨界近接監視 手法の検討

- · 渡辺賢一.
- 遠藤知弘。

- 2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法
  - 2.2.1 高耐放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発(高エネ研)
    - 2.2.1.1 スケーラブルシステム開発

システム評価に必要な基板設計の検討を開始し、システムデザインを進める。またシステム評価用基板を開発する。これらの評価結果を基に次年度のスケーラブルシステム構築へフィードバックをかける。

2.2.1.2 フロントエンド集積回路開発

1 MGy までの動作実績がある商用プロセスを用い、1 MGy 以上の放射線環境での耐性を評価する。並行して、1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用フロントエンド集積回路を設計する。

2.2.1.3 バックエンド集積回路開発

1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用バックエンド集積回路を設計する。

- 2.2.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発(再委託先:北大、産総研)
  - 2.2.2.1 自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

HP/HT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板等を購入し、イオン注入・リフトオフ法により検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜を製作する。製作した自立膜の表面構造欠陥を表面構造評価法および透過型偏光顕微鏡法、X線回折法により評価する。評価結果は北大にフィードバックし、成長技術の改善を検討する。

- 2.2.2.2 CVD 単結晶ダイヤモンドの自立膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証 CVD ダイヤモンド単結晶、HP/HT I b 型単結晶ダイヤモンドを購入し、検出素子用ダイヤモンド合成用基板としての使用を試みる。
- 2.2.2.3 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

モザイク、ヘテロエピタキシャル等のダイヤモンド基板上にフィラメント CVD 法により超高濃度ホウ素ドープダイヤモンド膜をホモエピタキシャル成長し積層ダイヤモンドを形成する。

2.2.2.4 検出素子の基板実装技術の開発

基板実装に関わる技術情報の収集とダイヤモンド素子に対する適用可能性を検討する。

- 2.2.3 検出素子、計測要素の性能評価
  - 2.2.3.1 検出素子の性能評価(再委託先:北大、名大、連携先:JAEA)
  - 2.2.2.1 及び2.2.2.3 で作製したダイヤモンド検出素子の性能を評価する。さらに  $^{10}$ B<sub>4</sub>C を使用した中性子検出素子の性能評価に必要な中性子照射方法の検討及び照射用治具の準備をする。
  - 2.2.3.2 集積回路等の耐放射線性試験(再委託先:北大)

X線照射試験の準備ならびに環境を整備する。

- 2.2.3.3 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価(再委託先:北大、名大) 令和3年度から開始する評価験のための、実験場の整備等を進める。
- 2.2.3.4 検出素子+フロントエンド集積回路+バックエンド集積回路の性能評価 令和2年度は、実施予定はない。
- 2.2.3.5 臨界近接監視手法に関する検討(再委託先:名大)

ダイヤモンド中性子検出器を用いて、1Fにおける燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視を行うための手法に関する検討を進める。燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法として、現時点で候補として挙げている未臨界度測定手法についての問題点を抽出する。

### 2.2.4 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉環境国際共同研究センター (CLADS) 等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

# 2.2.5 令和2年度の実施計画図

	実施日程		, [	-		_	_	-			-			10	_		1		Т		Τ,		Τ,	
項目		4 5	3	5	Я	6	月	7	月	8	月	9	月	10	Я	11 月		12 月		1 月	1	2 }	1	3 月
(1) 高耐放射線スケーラブル中性子																								
検出器信号読み出しシステム開発 (高エネ研)																				シ	Z F	ム評値	西基柱	反及び
①スケーラブルシステム開発															シス	テム仕	採検	討	1	3573	7	トウ	7	反及び 開発
														And the last	***************************************	į.	1		7		T		Т	
②フロントエンド集積回路開発																	-	ロン	뉴	ンド	集積	回路部	維細説	全計
															į.									
																•	+		41	2人計	100)	FTEG!	M9E	
③バックエンド集積回路開発															0	_ /		バッ	123	こンド	集	直回路	詳細	设計
(2) ダイヤモンド中性子検出素子の開発																		•	,	金田書	7	の最適	11-	
①自立膜型ダイヤモンド中性子														• *	i.		+	•	+3	хшя	7	7.00,203	10	
検出素子の開発(北大、産総研)																								
②CVD単結晶ダイヤモンドの自立														(	CVD.	は結晶ダ	14	モン	r o	白女郎	14	イヤモ	ンド	슴
膜型ダイヤモンド合成基板への																結晶ダー成月	華	板への	利用	同可能	性	食討		
利用可能性検証(北大、産総研)																							Т	
③積層型ダイヤモンド中性子																積層	型柱	<b>余出</b> 素	70	試作	٤	平価		
検出素子の開発(北大、産総研)														•			T		T		7		$^{\dagger}$	
④検出素子の基板実装技術の開発												実	装仕村	後の明	確化									
(北大、高エネ研、産総研)																7:	17	- 英	1	(2%		744	ズ振	当ばず
(2) 於山東ス 計測画表の姓於語体								E	表存っと検	出素	トエ子のジ	ンド	集積回	路 価 提供			۴.	バラス	様	析が会	和	を注が	が軽	詩
(3) 検出素子、計測要素の性能評価 (北大、JAEA、名大)							(	KEKO	の手持	ちサ	トンプ	ルを	北大		)									
①検出素子の性能評価														₽						検出	素	その性	能評	Ĭ.
(北大、JAEA、名大)																							Т	
②集積回路等の耐放射線性試験																								
(北大、JAEA)														<u>_</u>		集	積回	路等	の酢	放射	線性	試験(	X線)	
#24170030250000000 = \$0 10 8002000														Ø										
③検出要素+フロントエンド集積 回路の性能評価(北大、名大)					Ä	既存殿	トラン	ジス	タ及をすり	び集	積回	格のさ	ガンマ	線試面			1	評	価用	照射	場の	整備	4	
						ίκ	EKO	手持	ちか:	137	レをは	大个	提供											
④臨界近接監視手法に関する検討(4	z+\										シス	テム	要件	のすり	合材	oせ のフィー O確定)								
受職外以按無抗于広に関する検討(1	100									17.	ックと	1/3	果積度	們	樣	確定)	- T	*C+##	e 18	E:+1-		する検		
														•"	15		TO SERVICE	近接的	E 192	于法门	-1948	9 句快	ē7	
(4) 研究推進												IJ=	€-ŀ	キッ	クオ	フミーテ	1:	ノグ開	A		4	モート	検討	会開催
														•			$^{\dagger}$		Ť		1		$^{\dagger}$	

- 3. 令和2年度の実施内容及び成果
  - 3.1 高耐放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発
    - 3.1.1 スケーラブルシステム開発

システム評価に必要な基板設計の検討を開始し、システムデザインを進めた。またシステム評価用基板を開発した。これらの評価結果を基に次年度のスケーラブルシステム構築へフィードバックをかけた。開発目標を明確にし、そのシステム仕様にフィードバックをかけるため、以下 2)、3)に示す目的のため未臨界モニターシステムのエミュレータを開発した。また開発要素の評価とシステム設計へのフィードバックを目的として下記 1)に述べるダイヤモンド検出素子評価用ボードの開発を行った。全体計画に基づいた詳細開発項目を図 3.1.1-1 に示す。図の最上部に示す"検出素子開発評価フェーズ"のシステムを構築するための単一検出素子評価ボード、システム仕様確認用デジタルボード、ラップトップコンピュータ上のデータ収集、コントロール用ソフトウエアの開発を行った。この開発で目的は、1)ダイヤモンド検出素子を用いた中性子検出素子の評価および検出素子からの信号を処理するためのフロントエンド集積回路の評価と仕様確認およびシステム開発へのフィードバック 2)エミュレータを未臨界モニターの開発用プラットフォームとし、仕様確認等のための情報共有基盤として使用する、3)実験、評価環境下におけるシステムの使用方法に慣れ、機能等への改良を進める、の3点である。ここで述べたボード及びボード上に搭載された FPGA 内で動作するデジタル回路及びソフトウエアの開発は完了した。

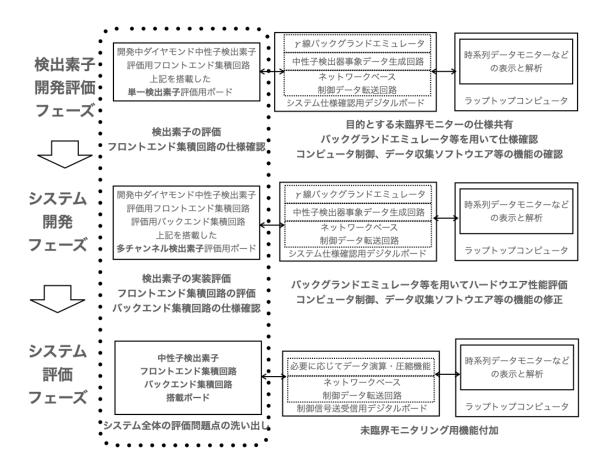


図 3.1.1-1 システム開発の方針と開発要素

### 3.1.2 フロントエンド集積回路開発

令和2年度においては既に動作実績のあるCMOS65 nm 半導体プロセスで開発したトランジスタの耐放射線性能の評価、CMOS22 nm 半導体プロセスを評価するためのトランジスタTEGの開発、CMOS65 nm 半導体プロセスを利用したプロトタイプフロントエンド集積回路の開発を行った。

図 3.1.2-1 に CMOS22 nm 半導体プロセスを評価するためのトランジスタ TEG のレイアウト図を示す。パッドレイアウト及びトランジスタ配置は、すでに評価中の CMOS65 nm 半導体プロセスを用いたトランジスタ TEG と互換性を持たせ、効率的に評価を遂行できるようにした。CMOS65 nm 半導体プロセスで開発したトランジスタの耐放射線性能の評価に関しては、トランジスタの 関値電圧、ゲートリーク電流、トランスコンダクタンスのパラメータを計算し、1 MGy 耐性を持つアナログ回路設計用の大きな設計指針を明確にした。国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構(QST)において、10 MGy まで照射し 2 MGy まで動作を確認し、現在 1 MGy をこえるトランジスタの動作解析と詳細な評価を進めている。

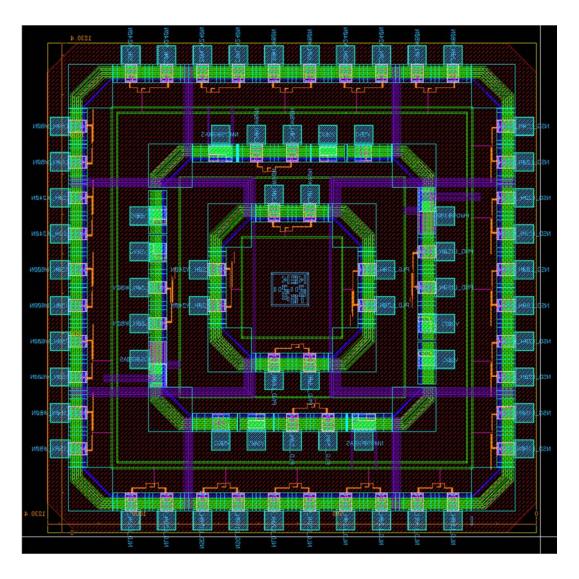


図 3.1.2-1 CMOS22 nm 半導体プロセスを使用したトランジスタ TEG のレイアウト図

図 3.1.2-2 に開発したフロントエンド集積回路の仕様とレイアウト図を示す。検出素子評価のために開発したため、信号増幅率(ゲイン)が外部制御により可変となっている。  $\gamma$  線レートは 1 Mcnt/ $(s \cdot cm^2)$  になっており、今後評価を進め必要があれば修正をおこなう。集積回路サイズは幅  $820~\mu m$ 、長さ  $1460~\mu m$  で、この中に信号処理回路が 4~ チャンネル分実装されている。今後検出素子との実装評価を経て大きさやチャンネル数の変更を行う予定である。

# 検出素子評価用集積回路

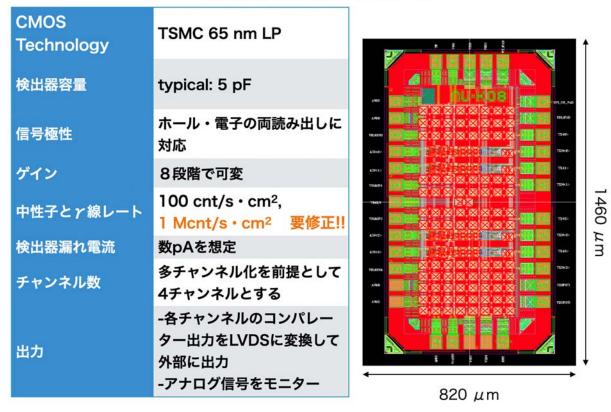


図 3.1.2-2 CMOS65 nm 半導体プロセスを使用したフロントエンド集積回路の設計仕様とレイアウト図

#### 3.1.3 バックエンド集積回路開発

バックエンド集積回路は、フロントエンド集積回路の制御と検出信号(デジタル信号)の収集と転送を行う機能を持ち1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用バックエンド集積回路を設計した。特にデジタル信号転送に関しては、高放射線環境下で数十mの信号ケーブルを使用する必要があることから、令和2年度から注意して開発を進めている。図3.1.3-1に示すように外来雑音に対して耐性を持たせるため、差動デジタル信号の送信できるようにしてある。更に高放射線環境下で使用して、性能の劣化が起こった時にトランジスタ特性を回復させるためのヒーリング機構を実装してある。目標のデータ転送レートは1 Gbps だが、ケーブル長が数十mの場合実効転送速度は低下することが予想されるため、令和3年度では性能について評価を行う予定である。

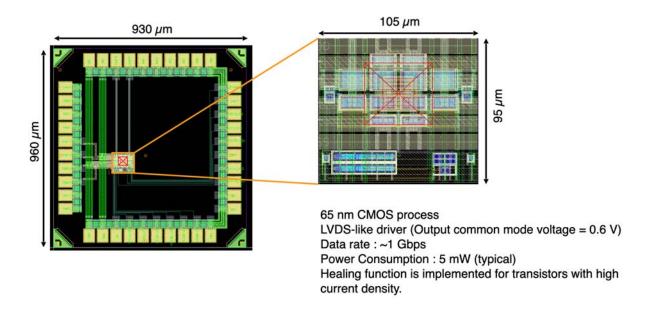


図 3.1.3-1 CMOS65 nm 半導体プロセスを使用したヒーリング機構付きデジタル信号転送 回路のレイアウト図

- 3.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発(再委託先:北大、産総研)
  - 3.2.1 自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

エネルギースペクトロメータグレードの CVD ダイヤモンド単結晶合成で実績のある住友電工製高温高圧 IIa 型ダイヤモンド単結晶基板を購入した。本開発では 2 mm 角程度の電極をもつ検出素子をダイヤモンド自立膜上に 4 個設置することを予定しているため、図 3.2.1-1 に示すように 5~6 mm 角程度の基板を購入した。

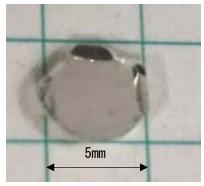


図 3.2.1-1 住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド基板の例

図3.2.1-2 に産総研で行った住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶と Element Six 社製光学グレード CVD ダイヤモンド単結晶の偏光顕微鏡像を示す。後者では欠陥により光が散乱され独特のパターンが観察された。前者では欠陥が無いため像が黒くなっていることがわかる。この測定結果からも使用した HP/HT IIa 型単結晶の結晶性の高さがわかる。





図 3.2.1-2 ダイヤモンド基板の偏光顕微鏡像

- 左) 住友電工製 HP/HT IIa 型単結晶、
- 右) Element Six 社製オプティカルグレード CVD 単結晶

これらの基板に対して図 3.2.1-3 に示すように、産総研においてイオン注入を行った。注入イオンは炭素、エネルギーは 2 MeV 程度、イオン密度は 2×10<sup>16</sup> 個/cm 程度である。この基板を使用し、北大においてマイクロ波プラズマ CVD 装置により単結晶ダイヤモンドをホモエピタキシャル成長した。成長後、産総研において電気化学エッチングにより検出器用ダイヤモンド単結晶自立膜を分離した。分離作業後、基板に対して再度イオン注入を行い、再度合成に使用する。

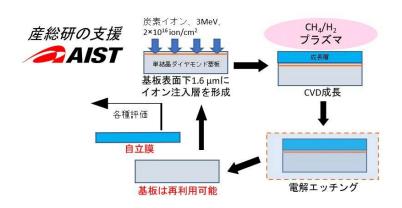


図3.2.1-3 ダイレクトウエハ法による検出器用 CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の製作過程

図 3.2.1-4 は合成した検出器用ダイヤモンド単結晶自立膜の例である。北大の合成条件はエッチングがかなり強い条件で合成するため、厚さ 100  $\mu$ m の結晶に対して 10  $\mu$ m 程度の凹みが発生することが多い。

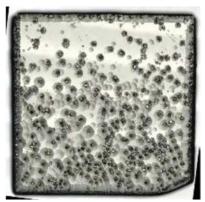


図3.2.1-4 ダイレクトウエハ法により製作した CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の表面形態例 (微分干渉顕微鏡像であり、表面の凹凸が強調される)

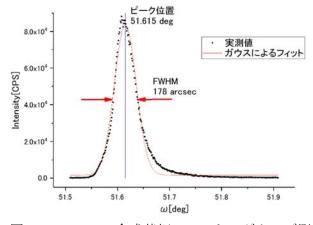


図 3.2.1-5 CVD 合成基板のロッキングカーブ測定例

図 3.2.1-5 に合成した検出器用ダイヤモンド単結晶の結晶性を評価するために産総研で行ったロッキングカーブの測定例を示す。使用した基板の半値幅は今回使用した装置の測定下限である 40 arcsec 程度の値だったことや複数の測定から判断して厚さが数 10 μm~100 μm 程度と薄いことから、自立膜がわずかに湾曲している可能性が示唆された。これは Ib 型基板上にノンドープで合成したダイヤモンド自立膜が大きな残留応力を受けることなどからの推測である。今後、結晶性に関しては測定データを蓄積行っていく。

図 3.2.1-6 に同じく産総研で測定した検出器用ダイヤモンド自立膜に対するカソードルミネッセンススペクトル測定例を示す。評価試料を 80 K 程度まで冷却し、測定した。上図はスペクトルの全体像であり、235 nm 付近に強い自由励起子再結合発光が観察され、一定程度以上の電荷キャリア輸送特性を持つダイヤモンドであることが期待された。下図はスペクトルの低下カウント部分の拡大図である。この結晶は電子基板への実装を意識して合成ダイヤモンド表面を平滑化する目的で行った二酸化炭素添加合成実験試料であることから、わずかではあるが 600 nm 付近に構造欠陥とみられるブロードな発光が観測された。また 575 nm に nv センターと考えられる鋭いピークが観測され、わずかではあるが窒素のコンタミネーションが予測された。現在、添加した CO2 ガスからの窒素か配管からの窒素汚染か調査を進めている。

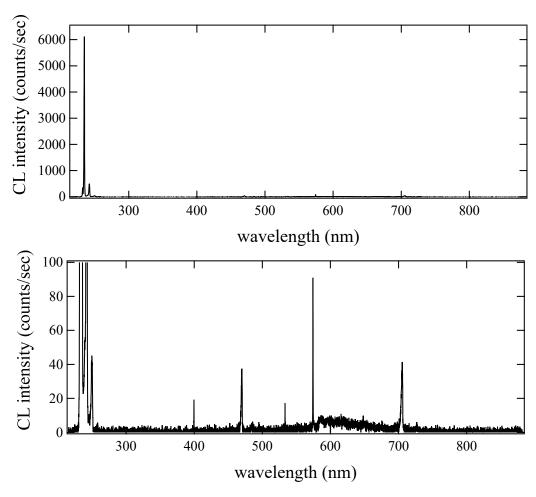


図 3.2.1-6 使用したダイヤモンド単結晶基板の例

以上のように北大で合成したダイヤモンド自立膜に対していくつかの評価測定を行い、結晶 合成に対するフィードバックを行った。

# 3.2.2 CVD 単結晶ダイヤモンドの自立膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証

図 3. 2. 2-1 に CVD 単結晶ダイヤモンドと住友電工製 HP/HT Ib 型単結晶ダイヤモンド、IIa 型単結晶ダイヤモンドを示す。Ib 型ダイヤモンドは窒素不純物を含むことから、黄色く着色していることが一般的である。EDP 社製 CVD 単結晶ダイヤモンドは図 3. 2. 1-3 に示したダイレクトウエハ法を使用して生産されており、高圧高温合成 Ib 型ダイヤモンド基板上を元基板として、窒素をドーピングしながらホモエピタキシャル成長した CVD 単結晶ダイヤモンドである。図 3. 2. 1-2 に示した Element Six 社製 CVD ダイヤモンドと同様に偏光顕微鏡像では欠陥が観測される。

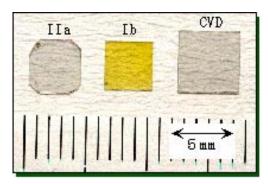


図 3.2.2-1 使用したダイヤモンド単結晶基板の例

3.2.1 の図 3.2.1-3 に示した方法によりマイクロ波プラズマ CVD 法によるホモエピタキシャル成長とダイレクトウエハ法によりダイヤモンド自立膜を合成した。Ib 型基板は IIa 型よりも大型の基板を合成可能ではあるが、そのまま窒素ドープなしに CVD ダイヤモンドをホモエピタキシャル成長させると残留応力が発生し、合成後に破損することが多い。

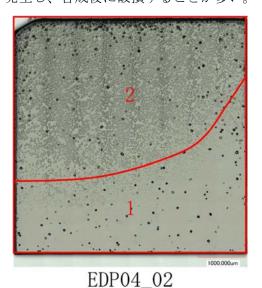


図 3.2.2-2 EDP 社製 CVD ダイヤモンド単結晶基板上に ホモエピタキシャル成長したダイヤモンドの表面

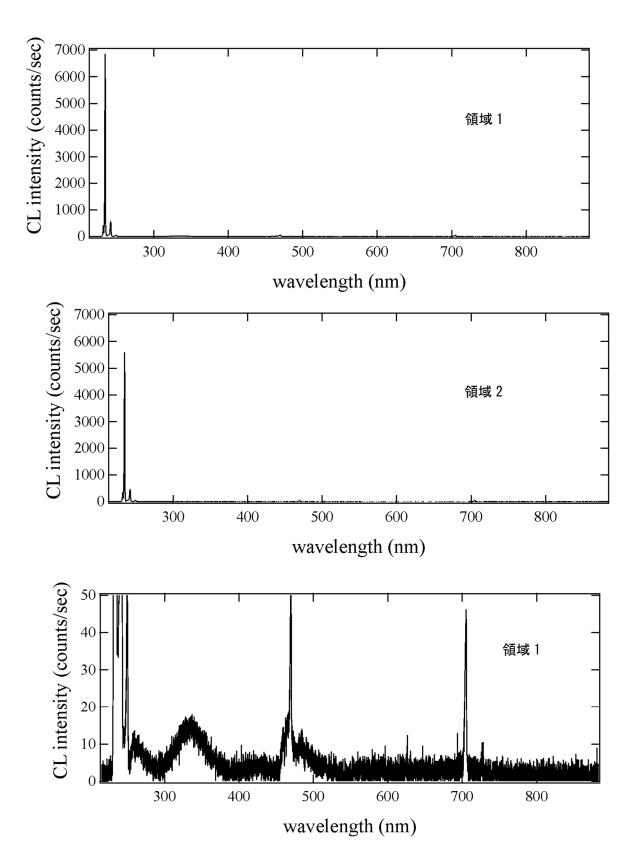


図 3. 2. 2-3 (1/2) EDP 社製 CVD 単結晶基板上に合成したエピタキシャル ダイヤモンド層のカソードルミネッセンス測定例

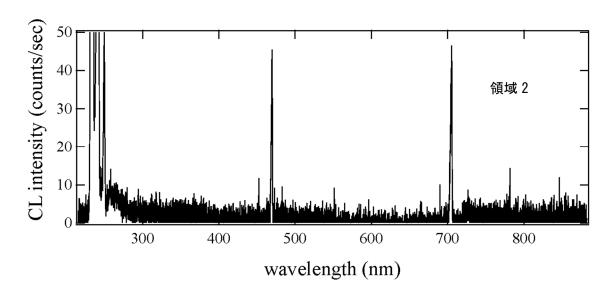


図 3. 2. 2-3 (2/2) EDP 社製 CVD 単結晶基板上に合成したエピタキシャル ダイヤモンド層のカソードルミネッセンス測定例

図 3.2.2-2 に EDP 製 CVD 単結晶基板上にホモエピタキシャル成長したダイヤモンドのレーザー顕微鏡像を示す。合成時にプラズマ球が写真上面側に寄った結果、上側はエッチングが進み、下側は平たんな表面形態であることが分かる。

図 3. 2. 2-3 にこの成長層に対するカソードルミネッセンス測定例を示す。領域 1、2 共に自由励起子再結合発光が支配的で一定以上の電荷キャリア輸送特性が期待できる結晶であることが分かる。 さらに低計数率領域を拡大したところ、予想通りエッチングが厳しい領域 2 はほとんど構造欠陥や NV センターによる発光は無く住友電工製 HP/HT IIa 型基板上に合成した検出器用ダイヤモンドと同等のスペクトルが得られている。一方、平坦な表面を持つ領域 1 では 300 nm 付近、400 nm 付近にブロードな発光がみられる。

合成層の自立膜化はこれからだが、今後、検出器化を進め性能評価を進める。あくまでもカソードルミネッセンススペクトルからのみの推測ではあるが、過去に行った Element Six 社製オプティカルグレード CVD 単結晶基板上に合成した結晶と同等程度の検出器性能は期待できる。ただし、1F の廃炉事業では最大 1 kGy/h の高 $\gamma$  線環境下での使用となることから早期に $\gamma$  線照射試験を行い、適用可能性を評価したい。

#### 3.2.3 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

高い放射線環境下でも性能を維持する臨界監視用中性子検出器素子には超高品質ダイヤモンド成長技術が必要不可欠であるが、自立型単結晶ダイヤモンドでこれを製造することは成長時間的に困難であるため、安価な基板材料を用いて代用することが可能かを調査する。安価な基板材料を用いた場合には積層ダイヤモンド構造とすることが望ましく、CVD モザイク単結晶基板、CVD ヘテロエピタキシャル結晶基板にフィラメント CVD 法により超高濃度ホウ素ドープダイヤモンド膜をホモエピタキシャル成長し、積層ダイヤモンドを形成した。CVD モザイク単結晶基板については検出器として利用する箇所がモザイク境界を外した箇所を切り出して用いることとなるため、評価にはモザイク境界を含めないこととした。

作製した積層ダイヤモンドは、微分干渉法、複屈折評価法および表面形状評価法を用いて 評価した。比較のため、高圧単結晶基板上にも同様の成長を行った。

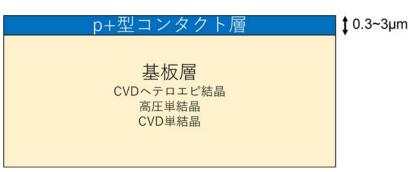


図 3.2.3-1 積層ダイヤモンド構造

図 3.2.3-1 に断面図を示す。積層ダイヤモンドの下部電極となる p+コンタクト層は  $0.3 \sim 3 \mu m$  とした。不純物濃度は  $10^{20}/cm^3$  程度であり [3.2.3-1]、膜厚は成長時間による。

図 3. 2. 3-2 に p+成長後の表面状態を示す。それぞれ目立った異常成長は見られないが CVD 単結晶では研磨傷による成長痕(縦縞様)が見られるほか、結晶内部のバンドルした欠陥による欠陥成長が表面のラフネスとして観察される箇所がある。ヘテロ結晶上への成長では基板自身のクラック、およびバンドルした欠陥箇所でのラフネスが見られているほか、全体的なラフネスが大きい。



A社製高圧単結晶



B社製CVD単結晶



C社製ヘテロ結晶

図 3.2.3-2 p+コンタクト層成長後の表面状態 (微分干渉像)

次に p+コンタクト層成長後の内部の応力分布( $0.3 \mu m$  成長時)について複屈折顕微鏡により評価した。結果を図 3.2.3-3 に示す。

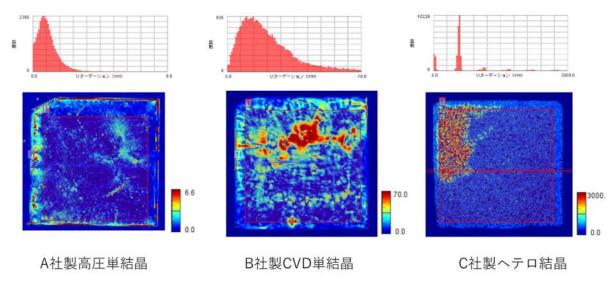


図 3.2.3-3 高圧単結晶、CVD 単結晶とヘテロ結晶の内部応力分布

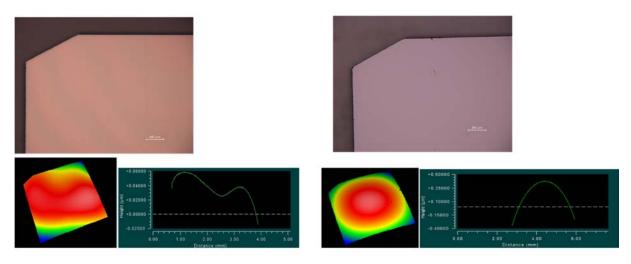
高圧単結晶基板は左辺に大きな応力が見られている。この箇所は、微分干渉像でもラフネスが見られている。これは研磨によりチッピングが発生した箇所へ成長する際に、応力が発生したまま成長が継続していることによるものと考えられる。また中央右側に応力が集中する箇所が見受けられ、これは転位がバンドルしている箇所と考えられる[3.2.3-2]。ただし、リタデーションの大きさはエッジ部の最大応力部でも6 nm 程度であり、中央部はその領域のほとんどで3 nm 以下である。

これに対して CVD 単結晶上に p+コンタクト層を成長した基板では中央部に 70 nm 程度の応力が見られるほか、エッジ部に発生する応力が見られている。応力頻度におけるピークは 14 nm 程度である。これは成長時の応力の影響ではなく、基板が持つ応力と考えられる。

また、ヘテロ結晶に p+コンタクト層を成長した場合には極めて大きな応力が見られており、 リタデーションは最大で 3000 nm である。極めて大きな応力であり、正確な評価ができていな い可能性がある。

また、図 3.2.3-4(a)、(b)、(c)にそれぞれ高圧単結晶、CVD 単結晶、ヘテロ結晶への p+3 タクト層成長前後における形状変化結果を示す。高圧単結晶は成長前には 0.074  $\mu m$  程度の最大谷深さ (PV 値)、0.015  $\mu m$  程度の算術平均粗さ (Ra 値) であったが、3  $\mu m$  の p+3 クト層成長後には 0.83  $\mu m$  の PV 値および 0.9  $\mu m$  の Ra 値となっている。また成長後には表面形状が上に凸形状となっており、p+3 クト層の格子定数が下地基板より大きいことよる応力の影響で歪みが発生していることが分かる。CVD 単結晶では成長前の PV 値および Ra 値はそれぞれ 0.29  $\mu m$ 、0.07  $\mu m$  であるが、成長後には 0.67  $\mu m$  および 0.17  $\mu m$  となっている。また高圧単結晶と同様に成長後には上に凸の形状となっており、格子定数差による歪みの影響を受けていることがわかる。ヘテロ結晶では成長前の PV 値および Ra 値は 0.15  $\mu m$ 、0.03  $\mu m$  であったが、成長後には 0.35  $\mu m$ 、0.89  $\mu m$  となっている。ヘテロ結晶でもほかの結晶と同様に 0.35  $\mu m$ 0、0.89  $\mu m$ 0、0.890  $\mu m$ 0、0.890 0.890

# A社製高圧単結晶への積層成長

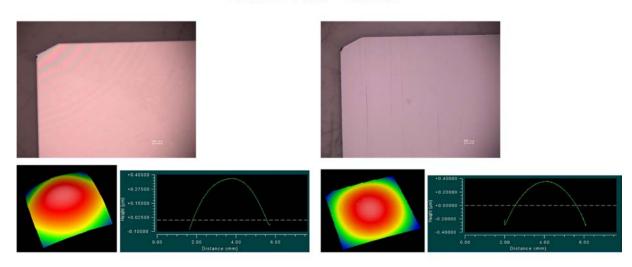


p+コンタクト層成長前

p+コンタクト層成長後

図 3.2.3-4(a) 高圧単結晶への p+層成長前後における形状変化

# B社製CVD単結晶への積層成長

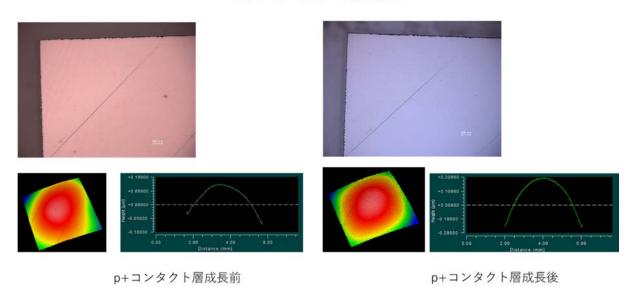


p+コンタクト層成長前

p+コンタクト層成長後

図 3.2.3-4(b) CVD 単結晶への p+層成長前後における形状変化

# C社製ヘテロ結晶への積層成長



p+コンタクト層成長前

図 3.2.3-4(c) ヘテロ結晶への p+層成長前後における形状変化

### 3.2.4 検出素子の基板実装技術の開発

基板実装の最終的な形態については、検出素子の構造によって大きく変わる。これまで Si 検出器等に対する各種ボンディングを実際に行ってきた高エネ研と薄いダイヤモンドに対するボンディング方法について協議した。特に今回の開発で使用するダイヤモンド結晶は 40 μm 程度と薄く、超音波ボンディングを使用した方法は基板の剛性不足から使用できないことから検出素子構造、特に γ 線補償構造の有無の目途が立った時点で再度議論することとした。

並行して高エネ研で試作された計測用ボードに対して、図 3.2.4-1 に示すように厚さ 50 μm、4 mm 角程度のダイヤモンド素子を、銀ペーストを使い計測用ボードに実装した。銀ペーストが経年劣化すると比抵抗が上がることが分かっており、さらに乾燥後剥離する事態が発生したことから、新しい銀ペーストを購入、使用することとした。本検出素子ならびに計測用ボードの評価結果については 3.3.3 で述べる。



図 3. 2. 4-1 高エネ研製計測ボード上に北大製ダイヤモンド検出素子を 実装

# 3.3 検出素子、計測要素の性能評価

- 3.3.1 検出素子の性能評価(再委託先:北大、名大、連携先:JAEA)
- 3.3.1.1 α線、中性子線源を使用した評価

図 3. 3. 1-1 に評価に使用したダイヤモンド検出器の断面図を示す。3.2 で製作したダイヤモンド素子に対して金属電極を両面に蒸着により形成し、図のような金属製筐体に固定した。この図では中性子検出器として使用するため、 $^{10}$ B を 95 %までエンリッチした  $^{10}$ B<sub>4</sub>C を 3  $^{10}$ L を 3  $^$ 

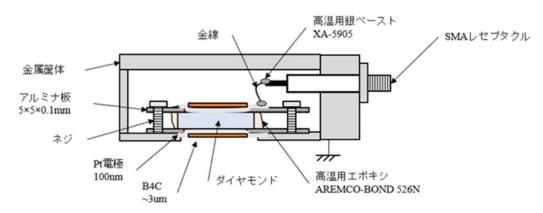


図 3.3.1-1 北大製ダイヤモンド中性子検出器の断面図

本検出器は  $B_4$ C を蒸着する以前に  $^{241}$ Am からの 5.486 MeV  $\alpha$  線を使用して性能評価を行って おり、表 3.3.1-1 にまとめた性能を持つことを確認している。

	1.00	
膜厚:46 μm、電極:両面 Pt	電荷収集効率	エネルギー分解能
電子	99.2 %	0.88
正孔	99.5 %	0.38

表 3.3.1-1 試作した検出器の 5.486 MeV α 線を使用した性能評価結果

図 3.3.1-2 は北大で新規に購入した  $^{252}$ Cf 中性子源を使用した中性子応答測定例である。 3.7 MBq の放射能を持つことから、それまで 1 週間以上かかっていた計測が 1 昼夜で完了するようになった。

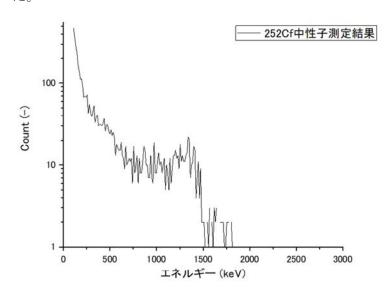


図 3.3.1-2 北大製ダイヤモンド中性子検出器の <sup>252</sup>Cf 中性子源 に対する応答関数測定例

# 3.3.1.2 γ線影響評価実験

名大コバルト 60 ガンマ線照射室に 3.3.1.1 で評価した検出器を持ち込み、チャージアップ、パイルアップ等の  $\gamma$  線影響評価試験を行った(図 3.3.1-3)。

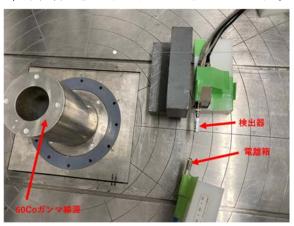


図 3.3.1-3 名大コバルト 60 ガンマ線照射室における実験体系の例

図 3. 3. 1-4 に 4 Gy/h~100 Gy/h までの  $\gamma$  線線量率環境で測定したダイヤモンド検出器の 応答関数を示す。

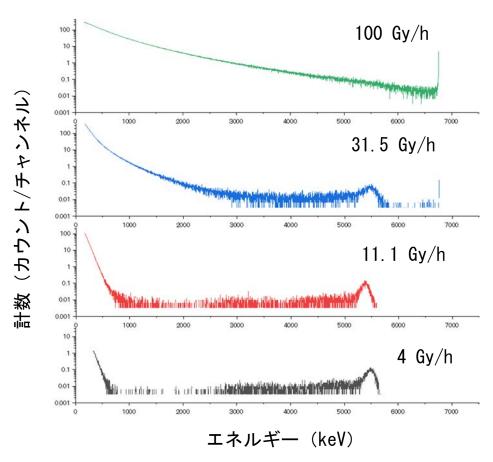


図3.3.1-4 γ線線量率環境で測定したダイヤモンド検出器の応答関数

この測定では $\gamma$ 線の照射だけでは検出器の動作状態をモニターすることが困難であることから  $^{241}$ Am からの 5.486 MeV  $\alpha$  線を入射させながら $\gamma$  線照射を行っている。

パイルアップについては一般的な電荷有感型前置増幅器を使用していることから概ね予想通りの結果となった。チャージアップに関しては 31.5 Gy/h で 30 分以上照射した際に発生した。携帯電話の光照射でチャージアップが解放可能であることを確認した。100 Gy/h では数分でチャージアップが発生した。

使用した検出器は基板側結晶の電荷キャリア輸送特性が劣ることが分かっているので今後、基板側面のエッチングによる除去、電極構造の変更などにより対応を行う。

#### 3.3.1.3 中性子検出効率評価実験

JAEA において試作したダイヤモンド中性子検出器の検出効率の絶対評価を行った。これは RF スパッタ装置により金属電極上に積層した  $^{10}$ B<sub>4</sub>C (95 %エンリッチ) の密度が B<sub>4</sub>C 単結晶の 密度より、どの程度低くなるかの評価と考えればよい。

図 3. 3. 1-5 に JAEA 放射線標準施設棟(FRS)にある熱中性子校正場で行った検出感度測定の体系写真を示す。図のように黒鉛パイル表面から 40 cm の位置に図 3. 3. 1-1 に示したダイヤモンド中性子検出器を設置し、中性子を計測した。検出器設置位置での照射フルエンス率は 57. 4 n/cm²・s であり、測定時間: 18,845 秒で図 3. 3. 1-6 に示すスペクトルが得られ、総カウント数は 263 カウントであった。検出器の検出効率は 0.774 %となった。 GaAs 半導体検出器を使用した同種の実験では検出効率が片面で 2.9 %となっていることから、 $^{10}$ B4C の密度がかなり低下している可能性が示唆された。今後、RF スパッタ時の基板温度を上げるといった製作条件の改善を試みていく。また令和 2 年度に準備した中性子測定用治具(スライダー:図 3. 3. 1-5 の右写真)を利用し測定の効率化を推進する。



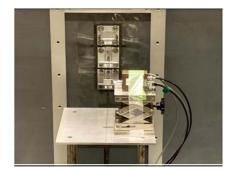


図 3.3.1-5 JAEA 熱中性子校正場における中性子検出感度評価実験体系

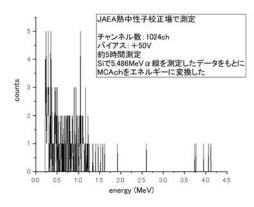


図 3.3.1-6 JAEA 熱中性子校正場における中性子測定応答関数測定例

# 3.3.2 集積回路等の耐放射線性試験(再委託先:北大)

図 3.3.2-1 に X 線照射装置の外観を示す。また照射中に半導体デバイスに通電可能とする必要があり、新型コロナウイルス感染症の影響で高エネ研の担当者が北大に来ることが難しかったため、高エネ研と協議の上、照射環境にかかわる情報を提供した。また線量評価方法をルーチン化した。



図 3.3.2-1 北大の X 線照射装置の外観

### 3.3.3 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価(再委託先:北大、名大)

#### 3.3.3.1 評価システム開発とアルファ線源による評価

高エネ研で製作された読出し回路と北大製ダイヤモンド検出素子を組み合わせた回路ボードをアルミニウム製遮蔽箱(ふた)に固定したものを図 3.3.3–1 に示す。図 3.3.3–2 にフロントエンド集積回路の簡易的な回路図、図 3.3.3–3 に検出素子に対して 5.486 MeV  $\alpha$  線を入射した際の回路出力を示す。この回路は中性子吸収の結果  $^{10}$ B からの放出される荷電粒子を計測する前提で設計されているため、5.5 MeV の $\alpha$  線は出力信号が飽和した。次回、製作する改良型ボードでは $\alpha$  線のエネルギースペクトル計測可能なゲインを選定できるようにすることを高エネ研と協議した。



図 3.3.3-1 アルミニウム製遮蔽箱のふたに固定した 高エネ研製読出し回路とダイヤモンド検出素子

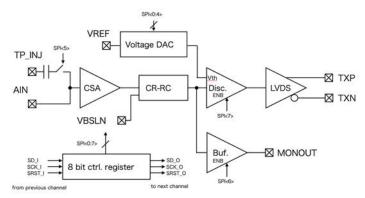


図3.3.3-2 高エネ研製フロントエンド読出し集積回路の簡易的な回路図

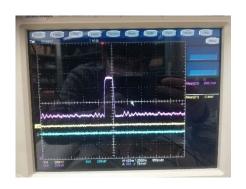


図 3.3.3-3 ダイヤモンド検出素子に 5.486 MeV α 線を入射させた際の出力信号観測例

本計測システムを名大の $\gamma$ 線照射場に持参し、3.3.3.2 で述べたダイヤモンド中性子検出器と共に $\gamma$ 線照射試験も行った。上述した $\alpha$ 線計測実験の後、検出素子が剥離し再度取り付け作業をした際に検出素子に応力かけてしまったようで、もともと十分な性能を持っていた検出素子であったが、4 Gy/hで検出器がチャージアップが発生し十分な評価が出来なかった。なお、検出素子が無い状態で 100 Gy/h 0  $\gamma$  線照射を読出し回路に行ったがノイズはほとんど観測されなかった。令和 3 年度、早い段階で検出素子を交換し $\gamma$  線照射試験を行う予定である。

#### 3.3.3.2 γ線照射環境の整備

令和3年度より開始する評価試験のための試験場の整備を行った。本事業で開発を進めている中性子検出器は、kGy/h のオーダーに迫る高強度の  $\gamma$  線場の中で動作することが求められている。当該項目を含む、開発を進める中性子検出器の検出要素、検出素子および集積回路等の性能評価試験では、高強度の  $\gamma$  線場という環境の中で、中性子を検出できるかということがポイントとなる。 $\gamma$  線照射設備としては、名大コバルト 60 ガンマ線照射室を想定している。名大コバルト 60 ガンマ線照射室では、サンプルを線源中心に設置することで 1 kGy/h の線量率で  $\gamma$  線照射することが可能である。

性能評価試験では、中性子の信号に対して、 $\gamma$ 線の影響がどの程度まで抑制可能であるかを評価する必要があるので、高強度  $\gamma$  線場の中で検出器に対し中性子を照射する必要がある。中性子源として、 $^{252}$ Cf 自発核分裂線源を導入した。線源強度は  $3.7~\mathrm{MBq}$  で中性子発生率は  $4.06\times10^5~\mathrm{n/s}$  である(令和 3 年 1 月 15 日現在)。当該線源は表示付き認証機器として認証を 得たものである。導入した  $^{252}$ Cf 中性子源の外観を図 3.3.3-4 に示す。直径  $9.4~\mathrm{mm}$ 、長さ  $36.3~\mathrm{mm}$  のステンレス製カプセルで、その中心に配したセラミック基材に  $^{252}$ Cf が分散された構造を 有する。



図 3.3.3-4 導入した <sup>252</sup>Cf 中性子源の外観

 $^{252}$ Cf 中性子源より放出される中性子のエネルギースペクトルはいわゆる核分裂スペクトルと呼ばれるもので平均エネルギーは約 1 MeV である。本研究で開発を進めている中性子検出器は、ダイヤモンド検出器表面に熱中性子コンバータを配したもので、熱中性子に感度を有するものであるため、検出器に照射する前に中性子を減速する必要がある。そのため、 $^{252}$ Cf 中性子源を  $50\times50\times100~$  mm のポリエチレン減速材の中心に設置する構造とした。ポリエチレン減速材の外観を図 3.3.3-5 に示す。減速材の寸法を大きくすることで、より効率的に中性子を減速・熱化することが可能であるが、 $\gamma$ 線照射場のスペースも限られるため、中性子源の基本構造としては上記のような寸法のポリエチレン減速材で周囲を覆うこととした。

性能評価試験では、 $\gamma$ 線を計測している環境における中性子計測性能も評価する必要があるため、整備した中性子源の周辺の熱中性子束の評価を行った。熱中性子束の評価は、基本的には、線源および周辺構造を模擬したモンテカルロシミュレーションにより実施し、これを、中性子感度を計算により評価可能な Li 含有中性子シンチレータによる実験により確認することで、その妥当性および不確かさを検証した。



図 3.3.3-5 ポリエチレン減速材の中心に配した <sup>252</sup>Cf 中性子源

モンテカルロシミュレーションは PHITS コード ver. 3.20[3.3.3.2-1]を用いて実施した。 モンテカルロシミュレーションコード内で構築した計算体系の一例を図 3.3.3-6 に示す。

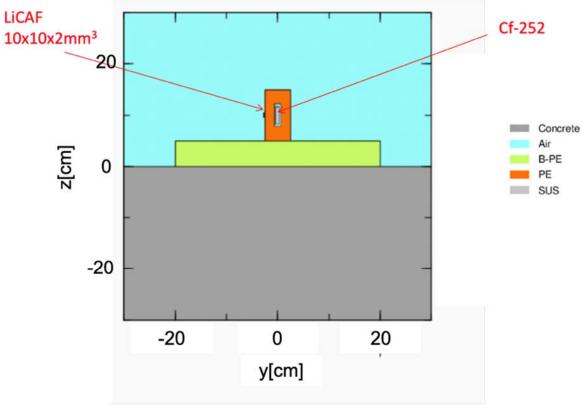


図3.3.3-6 モンテカルロシミュレーションの計算体系

図 3.3.3-6 では、Li 含有中性子シンチレータを用いた実験を想定しているが、各位置における熱中性子束を計算する際にはシンチレータは取り除き計算を行っている。また、床であるコンクリートからの中性子の反射の効果を抑制するために線源の下にホウ素入りポリエチレン板を敷いている。Li 含有中性子シンチレータを設置していない状態で計算した中性子束の空間分布を図 3.3.3-7 に示す。また、ポリエチレン減速材表面から 1 mm、20 mm、50 mm における中性子スペクトルを図 3.3.3-8 に示す。

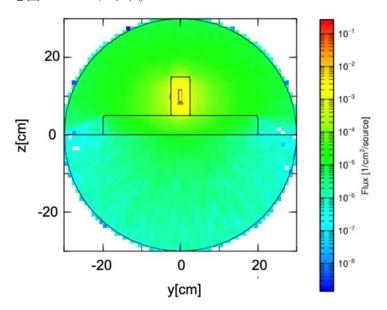


図 3.3.3-7 計算された熱中性子束の空間分布

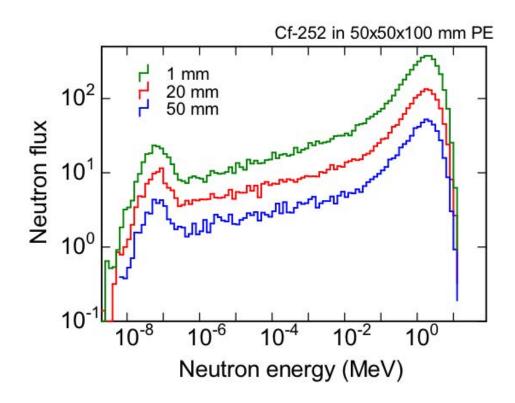


図 3.3.3-8 計算された各位置での中性子スペクトル

減速材表面と照射位置との 間の距離 (mm)	熱中性子束 (n/cm²/s)
1	230±1
20	102±1
50	40. 4±0. 4

表 3.3.3-1 計算された各照射位置での熱中性子東

<sup>252</sup>Cf 中性子源の周囲を覆っているポリエチレン減速材の効果で、中性子が熱化されている様子が確認できる。熱中性子を 0.5 eV 以下のエネルギーを有する中性子と定義した際の、計算された各照射位置での熱中性子束を表 3.3.3-1 に示す。

当然ではあるが、減速材表面から距離が離れるにつれて中性子束は減少していることが確認できる。

ここまでの結果を検証すべく、中性子感度が計算により決定することが可能な Li 含有中性子シンチレータである Eu:LiCaAlF<sub>6</sub> (以下、「LiCAF」という)シンチレータによる実験との比較を行った。PHITS によるモンテカルロシミュレーションでは、実際の設置位置に LiCAF シンチレータを配し、 $^6$ Li (n, t) 反応の反応率を計算した。実験実施時の外観写真および使用した計測回路系を図 3. 3. 3-9 に示す。



Scintillator : Eu:LiCaAIF<sub>6</sub> (Li-6:95 % enriched), 10x10x2 mm

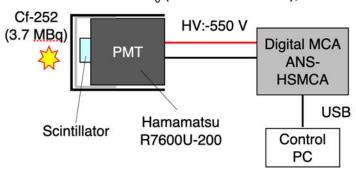


図 3.3.3-9 実験実施時の外観写真(上段)および使用した計測回路系(下段)

シンチレータには上述の通り、Li-6を95%に濃縮したLiCAFを用い、その寸法は $10\times10\times2$ mmである。これを光電子増倍管と接続し、その信号をデジタルマルチチャンネルアナライザ (ANSeeN 製、HSMCA) に接続し、信号波高分布を取得した。得られた信号波高分布の一例を図3.3.3-10に示す。信号波高値が1500 ch 付近に見られるピークが中性子による $^6$ Li (n, t) 反応起因の発光信号事象を表している。ピークの下のペデスタル成分は $\gamma$ 線起因の信号成分であるため、ペデスタル部を差し引き、中性子信号の計数率を計測した。シンチレータと減速材表面との距離を1mm、20mm、50mmと変化させ計測を行った。

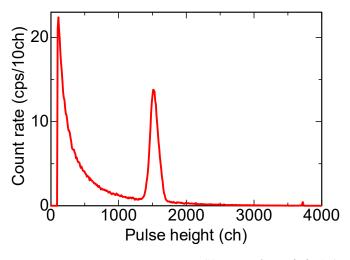


図 3.3.3-10 LiCAF シンチレータで得られた信号波高分布の一例

実験で得られた計数率およびモンテカルロシミュレーションにより得られた LiCAF 中での  $^6$ Li (n, t)反応の反応率を表 3. 3. 3-2 に示す。

表 3.3.3-2	実験で得られた中性子計数率およびモンテカルロシミュレーション
	により得られた Li CAF 中での <sup>6</sup> Li (n, t) 反応の反応率

減速材表面と 照射位置との 間の距離 (mm)	実験で得らえた 中性子計数率 (cps)	シミュレーションで 得られた <sup>6</sup> Li(n,t)反応率 (reactions/s)	E/C		
1	197±2	155±4	1. 27		
20	87±2	78±2	1.11		
50	39±1	31±1	1.24		

実験で得られた値は、モンテカルロシミュレーションによる評価値より3割弱過大評価する傾向にある。この原因としては、線源強度が公称値より高い可能性や、モンテカルロシミュレーションに組み込んでいない、光電子増倍管等の構造物による中性子の熱化等が考えられる。実際の性能評価試験においても、検出器周辺の構造を詳細に評価することは困難であるため、30%程度の不確かさを含むことを考慮に入れておくことは重要となる。

結論として、実際に中性子検出器を設置すると想定される減速材表面から 20 mm の位置での 熱中性子束の評価値は 100 n/cm²/s 程度であり、その不確かさは 30 %であることが示された。

名大コバルト 60 ガンマ線照射室では、サンプルに照射する線量率を変更するには、線源からの距離を変更することが必要である。しかしながら、サンプル位置の変更には、その都度線源を格納する必要があり、また線源の格納には数分の時間を費やすため、線量率の変更にはある程度の時間を必要とする。そこで性能評価試験を効率的に進められるように、遠隔で線源とサンプル間の距離を変更できるサンプルステージを整備した。整備したサンプルステージの外観を図 3.3.3-11 に示す。今回は、ステージ上に電離箱線量計(PTW 製 30013 型 farmer チェンバ)を設置し、サンプル位置での線量率を変更できるかの確認試験を実施した。図 3.3.3-12 に遠隔操作した際のサンプル位置での線量率の時間変化を示す。遠隔操作により線量率を変更可能であることを確認した。

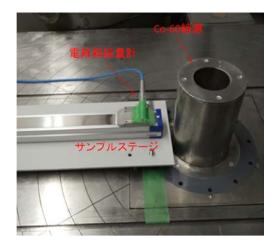


図 3.3.3-11 整備したサンプルステージの外観

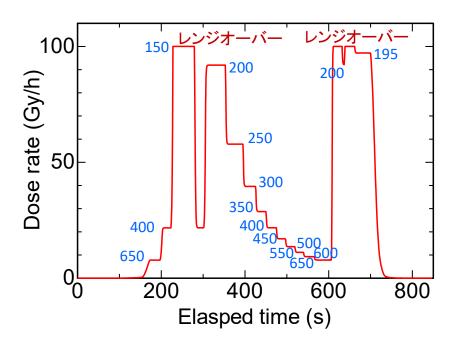


図 3.3.3-12 遠隔操作した際のサンプル位置での線量率の時間変化 (図内の青数字は線源中心-線量計間距離:mm)

加えて、高エネ研で製作したフロントエンド集積回路に北大製ダイヤモンド素子を実装し、 $\alpha$ 線を用い動作を確認した。 $\gamma$ 線照射場において  $\gamma$ 線強度に対する検出素子及びフロントエンド集積回路の応答を評価した。実装前後で検出素子にダメージが発生したため、 $4~{\rm Gy/h}$ で影響が生じた。集積回路単体では  $100~{\rm Gy}$  の線量場でもノイズは観測されなかった。

# 3.3.4 臨界近接監視手法に関する検討(再委託先:名大)

燃料デブリ取出作業における臨界近接監視手法の候補となっている各未臨界度測定手法について、問題点を抽出するための検討を実施した。

これまでに提案された各未臨界度測定手法にはそれぞれ利点と欠点があり、状況に応じて適切な手法を使い分けることが重要となる。燃料デブリ取出作業における臨界近接監視手法の候補として、以下の2つの手法を組み合わせることが検討されている[3.3.4-2]。

- ① 取出作業開始前: 炉雑音解析法 (Feynman- $\alpha$ 法) [3.3.4-3]
- ② 取出作業中 : 中性子源增倍法[3, 3, 4-4]

令和2年度の検討では、中性子源増倍法による未臨界度測定を対象として、中性子計数率(cps)のオーダーが未臨界度推定精度にどのような影響を及ぼすのか、仮想的な数値実験により検討することとした。

仮想的な数値実験として、国内実験施設(京都大学臨界集合体実験装置)において過去に実施した未臨界過渡実験で得られた中性子計数率の測定データ[3.3.4-5]を再活用することを試みた。本実験では、D-T パルス中性子源を用いた加速器駆動の未臨界炉心を構築し、炉心周りのポリエチレン反射体領域内に BF<sub>3</sub> 検出器を設置することで中性子計数率N(t)が測定されている。ここで、制御棒挿入や中心架台落下(3×3 領域の燃料集合体および反射体引抜操作)により未

臨界度 $-\rho(t)$ を変化させることで、図 3. 3. 4-1 に示されたように中性子計数率N(t)は時間ともに変化し、測定された中性子計数率N(t)のオーダーは数百 cps 程度であった。

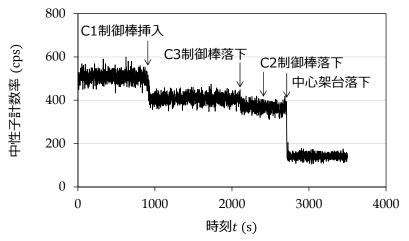


図 3.3.4-1 加速器駆動未臨界過渡変化実験における中性子計数率の時間変化

燃料デブリ取出時に測定される中性子計数率のオーダーとしては極めて低い計数率となることが予期されるため、図 3.3.4-1 のように測定された中性子計数率N(t)の大きさを、仮想的に $\varepsilon$ 倍だけ減少させることによって、低計数率の測定データn(t)を仮想的に生成し中性子源増倍法による未臨界度推定を実施した。ここで、中性子計数率が低くなるほど統計的不確かさが大きくなる現象を模擬するため、各時間ステップ( $\Delta t=1s$ )で測定された中性子計数 $n(t)\Delta t$ が近似的にポアソン分布に従うと仮定し、母平均を $\varepsilon N(t)\Delta t$ としたポアソン分布に従う乱数を発生させることで、仮想的な計数率n(t)の時系列データを生成した。なお、図 3.3.4-1 で示した中性子計数率の測定結果において、核分裂連鎖反応に起因した中性子相関の影響が大きくなる、もっとも浅い未臨界状態( $0 \le t \le 800 \, s$ )について  $1 \,$  秒当たりに得られた計数 N(t) の分散対平均の比を調べたところ約 1.04 であり、標本平均と不偏分散がほぼ等しいことから、各時間ステップの中性子計数がポアソン分布に従うという仮定は妥当であると判断した。

こうして仮想的に生成したn(t)に対して、中性子源増倍法に基づいて未臨界度 $-\rho(t)$ の時間変化を次式により逆推定した。

$$-\rho(t) = -\rho(0) \times \frac{n(0)}{n(t)}$$
 (3. 3. 4-1)

上式において、 $-\rho(0)$ とn(0)は初期時刻t=0における未臨界度と計数率をそれぞれ表す。本検討では連続エネルギー中性子輸送モンテカルロ計算コードMCNP6.2[3.3.4-6]で事前に解析された実効増倍率 $k_{eff}$ の数値解析結果により初期値 $-\rho(0) \approx 3$  ( $\%\Delta k/k$ )を推定した。

中性子計数率n(t)のオーダーを仮想的に変化させた際の中性子源増倍法による未臨界度推定結果を図 3.3.4-2 に示す。各時間ステップ( $\Delta t = 1 \, \mathrm{s}$ )で測定された中性子計数 $n(t)\Delta t$ がポアソン分布に従う場合、 $n(t)\Delta t$ の相対統計誤差は $1/\sqrt{n(t)\Delta t}$ となるため、計数率オーダーが約  $10 \, \mathrm{cps}$  を超える条件であれば、ノイズ除去処理を施すことなく、約 $10 \, (\%\Delta k/k)$ 程度の深い未臨界度まで中性子源増倍法により逆推定できることが分かる。しかし、数  $\mathrm{cps}$  未満の低い計数率の場合には、中性子計数がゼロとなる時間ステップも現れるため、中性子源増倍法による未臨界度推定が困難となる。

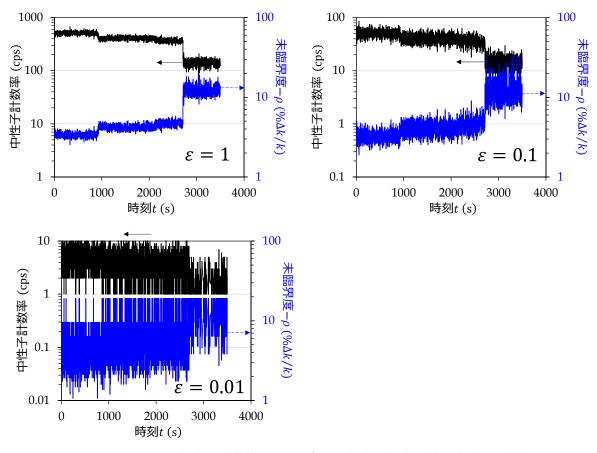


図 3.3.4-2 中性子計数率のオーダーが中性子源増倍法に与える影響

燃料デブリ取出時の計数率が数 cps 未満の低計数率となる場合、中性子源増倍法による未臨界度推定結果の統計精度を改善するには、何らかのノイズ除去処理を併用することが 1 つの方策として考えられる。単純かつ容易に適用可能なノイズ除去処理法の例として、計数率n(t)の値をそのまま利用する代わりに、過去T=30 sにわたる移動平均を取った値 $\bar{n}(t)$ を用いて中性子源法を適用した結果を図 3.3.4-3 に示す。図 3.3.4-3 で例示したように、計数率オーダーが低い場合には、相対統計誤差が小さくなるよう移動平均を取ることで、中性子源増倍法により約 10 (% $\Delta k/k$ )程度の深い未臨界度までおおよそ把握できる見込みがある。おおまかな目安としては、移動平均後の計数率 $\bar{n}(t)$ の相対統計誤差オーダー( $\approx 1/\sqrt{n(t)\times T}$ )が要求される統計精度となるように、計数率のオーダーに応じて移動平均を取る時間区間Tを設定すればよい。ただし、移動平均処理を施した場合には、未臨界度逆推定結果に応答遅れが生じることとなるため、実際の燃料デブリ取出作業時に要求される臨界近接監視の追随性能および検出器位置の中性子束 $\phi$ のオーダーに応じて、適切な中性子検出効率となるよう検出器設計を行う必要があると考えられる。

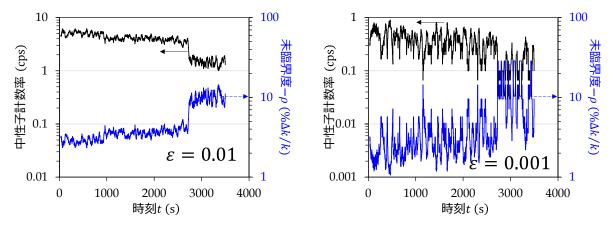


図 3.3.4-3 中性子計数率の移動平均n(t)に対する中性子源増倍法の適用結果

# 3.4 研究推進

本研究を推進するにあたり、研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携はメールベースで情報交換を行うとともに、定期的に研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。

令和2年9月14日に、プロジェクト関係者全員参加によるグループ全体会議をリモートで行い、目標、スケジュールおよび問題点の共有を行った。9月23日には耐放射線集積回路の開発およびトランジスタ照射に関する議論を高エネ研関係者で行い、開発に関する詳細を議論した。10月14日~15日には北海道大学と高エネ研関係者でダイヤモンド検出素子と評価用システムおよび集積回路デザインに関する打ち合わせを高エネ研でおこない、その結果を基に10月21日にシステムデザインに関する進歩状況報告会をリモートで行い、未臨界モニターシステムの詳細仕様検討を進めた。

11月5日に開催された福島リサーチカンファレンス令和2年度第一回英知事業ワークショップの後、12月15日には名大において、ダイヤモンド素子と集積回路のガンマ線評価についての打ち合わせと実験を行い、その結果も含めて1月19日にプロジェクト進行状況やスケジュールに関しての意見交換会を、主に組織代表者を参加者としてリモートで開催し、マイルストーンの確認とプロジェクト内でのリソースのシェア等について意見交換を行い、グループ全体会議へ備えた。2月5日にシステムデザインに関する進歩状況報告会をリモートで行った後、2月10日にリモートでグループ全体会議を開催し状況把握と情報共有を行い、プログラムオフィサー(PO)フォローに備えた。3月12日のPOフォローの後、3月18日に中性子照射評価に関する打ち合わせをJAEAで、3月24日にはシステムデザインに関する進歩状況報告会をリモートでそれぞれ開催した。

#### 4. 結言

本業務では、1F の炉内状況の把握、燃料デブリ取出しの早期実現、臨界リスク管理に資するため、最大 1~kGy/h の高  $\gamma~$ 線環境下で燃料デブリからの微弱な中性子を計測可能とする数 cps/nv の中性子検出感度を持った、遮蔽不要で軽量な臨界近接監視システムの実現を目的とし、未臨界度測定の専門家の知見を反映した、高  $\gamma~$ 線環境下でも安定に動作するダイヤモンド検出素子及び中性子コンバータからなる中性子検出素子と、1~MGy で動作する中性子信号読み出しシステムの開発を実施している。

以下に、3 カ年計画の 1 年目である令和 2 年度の業務実績および令和 3 年度の計画について述べる。

- (1) 高耐放射線スケーラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発
  - ① スケーラブルシステム開発

システム評価に必要な基板設計の検討を開始し、システムデザインを進めた。またシステム評価用基板を開発した。これらの評価結果を基に次年度のスケーラブルシステム 構築へフィードバックをかけた。開発目標を明確にし、そのシステム仕様にフィードバックをかけるため、未臨界モニターシステムのエミュレータを開発した。

令和 3 年度は開発した集積回路及びシステム評価に必要な基板を開始し、システムデザインを進める。これらの評価結果を基に次年度のスケーラブルシステム構築へフィードバックをかける。試作したフロントエンド集積回路、バックエンド集積回路の評価用基板の開発と、それらの動作確認後のプロトタイプ未臨界モニターの開発を行う。

### ② フロントエンド集積回路開発

1 MGy までの動作実績がある商用プロセスを用い、1 MGy 以上の放射線環境での耐性を評価した。並行して、1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用フロントエンド集積回路を設計した。CMOS65 nm トランジスタの耐放射線評価のために、1 MGy 以上の照射を行った。この CMOS65 nm プロセスを用いてダイヤモンド中性子検出素子用信号処理集積回路を開発した。また CMOS22 nm プロセスの耐放射線性能を評価するために、評価用トランジスタ素子の製造を行った。

令和3年度は1 MGy までの動作実績がある商用プロセスを用い、1 MGy 以上の放射線環境での耐性を評価する。並行して、1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用フロントエンド集積回路を開発し動作確認する。またバックエンド集積回路と合わせて試験を行い、修正点を含めた再試作評価をおこなう。特に高γ線照射場中でも動作する中性子検出器用フロントエンド集積回路の設計に関しては、ダイヤモンド素子との接続試験を通し目標を明確にし、開発を進める。

#### ③ バックエンド集積回路開発

1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用バックエンド集積回路を設計した。ダイヤモンド中性子検出素子のデジタルデータを数十 m 離れた未臨界解析用コンピュターへ転送するための高速デジタル信号転送素子は、耐放射線性能が最も必要とされるため機能回復用機能を持ったトランジスタを使用し設計した。

令和3年度は1 MGy まで動作実績のあるプロセスを使用し中性子検出器用バックエンド集積回路を開発し動作確認する。またフロントエンド集積回路と合わせて試験を行い、修正点を含めた再試作評価をおこなう。令和2年度に開発した高速デジタル信号転送素子の性能評価と、バックエンド集積回路の機能評価は、他の要素と連携させおこなう。

- (2) ダイヤモンド中性子検出素子の開発 (再委託先:北大、産総研)
  - ① 自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

HP/HT IIa型単結晶ダイヤモンド基板等を購入し、イオン注入・リフトオフ法により検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜を製作した。製作した自立膜の表面構造欠陥を表面構造評価法および透過型偏光顕微鏡法、X線回折法により評価した。評価結果は北大にフィードバックし、成長技術の改善を検討した。6 mm 角の HP/HT IIa型単結晶ダイヤモンド基板を住友電工から購入した。産総研において IIa型基板に対しイオン注入を行い、北大でホモエピタピシャル成長、再度産総研でリフトオフを行った。結晶評価は産総研、北大で協力して行った。

令和3年度は令和2年度に引き続き HP/HT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板等を購入し、イオン注入・リフトオフ法により検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜を製作する。 検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜の結晶性はカソードルミネッセンス法によって評価する。検出器製作時の加工を念頭に置いた表面平滑化を主な目的として酸素添加合成条件を探索する。検出器のチャージアップ耐性の改善を目的として成長層の基板側層の除去を試みる。二次イオン質量分析法(SIMS)を用いて検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜の残留不純物を評価し、チャージアップの要因を調査する。γ線影響低減の試みとして、エネルギー補償型検出器を試作する。

② CVD 単結晶ダイヤモンドの自立膜型ダイヤモンド合成基板への利用可能性検証 CVD ダイヤモンド単結晶、HP/HT Ib型単結晶ダイヤモンドを購入し、検出素子用ダイヤモンド合成用基板としての使用を試みた。EDP 社等から入手した CVD ダイヤモンド単結晶等にホモエピタキシャル成長を試みた。

令和3年度は令和2年度に引き続きCVDダイヤモンド単結晶等を購入し、検出素子用ダイヤモンド合成用基板としての使用を試みる。中性子検出器としての性能向上の試みとして、微細加工技術を導入する。

③ 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

単結晶モザイクダイヤモンド基板およびヘテロエピタキシャルダイヤモンド基板上にフィラメント CVD 法により超高濃度ホウ素ドープダイヤモンド膜をホモエピタキシャル成長し積層ダイヤモンドを形成した。

令和3年度は令和2年度、北大と産総研と協力製作した積層型ダイヤモンドから検出素子を製作する。検出素子用に5mm角以上の大型ダイヤモンドを用いる。

④ 検出素子の基板実装技術の開発

基板実装に関わる技術情報の収集とダイヤモンド素子に対する適用可能性を検討した。ダイヤモンド素子を基板上へ実装し信号処理集積回路への接続評価と、機能確認を行った。

令和 3 年度は基板実装に関わる技術情報の収集を継続し、ダイヤモンド素子に対する適用可能性を検討する。検出素子用ダイヤモンドの平滑化技術の開発として、産総研に(2)①で合成したダイヤモンド単結晶を供する。平坦化が可能であるかスカイフ処理、イオンビーム処理による加工を行い調査する。

- (3) 検出素子、計測要素の性能評価と臨界近接監視手法の検討
  - ① 検出素子の性能評価

(2)①、(2)③で作製したダイヤモンド検出素子の性能を評価した。さらに  $^{10}$ B<sub>4</sub>C を 使用した中性子検出素子の性能評価に必要な中性子照射方法の検討及び照射用治具の準備を行った。北大で製作したダイヤモンド検出素子に対して、 $\alpha$ 線により性能を

評価した。さらに名大コバルト 60 ガンマ線照射室で 100 Gy/h までの照射影響を評価した。JAEA 等において、中性子検出性能の評価に必要な中性子照射方法を検討・準備し、熱中性子校正場を利用してダイヤモンドを用いた中性子検出素子が中性子を検出することを確認した。

令和3年度は(2)① $\sim$ ③で作製したダイヤモンド検出素子の性能を評価する。

② 集積回路等の耐放射線性試験

X線照射試験の準備ならびに環境を整備した。X線照射装置まわりの照射治具を製作し、照射環境を整えた。

令和3年度は(1)から供される試料に対してX線を照射する。

③ 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価

令和 3 年度から開始する評価試験のための、実験場の整備等を進めた。 $^{252}$ Cf 中性子源を導入し、減速材体系と組み合わせた際の熱中性子束について評価を行った。さらに、 $\gamma$ 線照射時に線量率を変更可能とするため、リモート制御可能なステージを整備した。加えて、高エネ研で製作したフロントエンド集積回路に北大製ダイヤモンド素子を実装し、 $\alpha$ 線を用い動作を確認した。 $\gamma$ 線照射場において  $\gamma$ 線強度に対する検出素子及びフロントエンド集積回路の応答を評価した。実装前後で検出素子にダメージが発生したため、4 Gy/h で影響が生じた。集積回路単体では 100 Gy の線量場でもノイズは観測されなかった。

令和 3 年度は(2)で製作した検出素子と(1)で製作した測定要素を組み合わせ、性能 を評価する。

④ 臨界近接監視手法に関する検討(再委託先:名大)

ダイヤモンド中性子検出器を用いて、1Fにおける燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視を行うための手法に関する検討を進めた。燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法として、現時点で候補として挙げている未臨界度測定手法についての問題点を抽出した。候補となっている測定手法の問題点を抽出するため、過去に国内施設で実施した未臨界実験のデータを再利用した検討を行った。中性子源増倍法による未臨界度測定を対象として、中性子計数率のオーダーを変化させた仮想的な数値実験を実施した。計数率が低くなるにつれて未臨界度推定結果の統計精度が低化する問題点を抽出し、移動平均などのノイズ除去処理により問題点の改善が可能である見込みを得た。

令和3年度はダイヤモンド中性子検出器を用いて、1Fにおける燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視を行うための手法に関する検討を進める。燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法として、現時点で候補として挙げている未臨界度測定手法についての問題点を抽出する。

#### (4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。 また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。組織代表者間での情報 共有のためリモート会議および関連情報ツールを用いて連携した。またプロジェクトグル ープ全体で会議も行った。

令和3年度も令和2年度と同様に多機関間で連携を取り情報共有するとともに、協力して開発評価を推進していく。

以上、3カ年計画の1年目である令和2年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。

#### 参考文献

- [1-1] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構,平成27年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」(燃料デブリ臨界管理技術の開発) 最終報告,平成30年3月, https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000\_05.pdf(最終参照日:2021年3月1日).
- [1-2] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構, 平成 29 年度補正予算 廃炉・汚染水対策事業費補助金「原子炉格納容器内部詳細調査技術の開発 (X-6 ペネトレーションを用いた内部詳細調査技術の現場実証)」, https://irid.or.jp/\_pdf/20180000\_11.pdf (最終参照日:2021年3月1日).
- [1-3] 高守謙郎, IRID における燃料デブリ取り出し技術の開発, 2019年4月11日, https://irid.or.jp/\_pdf/20190411.pdf (最終参照日:2021年3月1日).
- [3.2.3-1] S. Ohmagari, T. Matsumoto, H. Umezawa, and Y. Mokuno, Submicron-scale Diamond Selective-area Growth by Hot-filament Chemical Vapor Deposition, Thin Solid Films, vol. 615, 2016, pp. 239-242.
- [3.2.3-2] Y. Kato, H. Umezawa, and S. I. Shikata, X-Ray Topographic Study of a Homoepitaxial Diamond Layer on an Ultraviolet-Irradiated Precision Polished Substrate, Acta Phys. Pol. A, vol. 125, pp. 969-971, 2014.
- [3.3.3.2-1] Sato, T. et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 55, no. 6, 2018, pp. 684-690.
- [3.3.4-2] 林大和, 加納慎也, 和田怜志, 基礎から分かる未臨界:第5回 1F燃料デブリの臨界 近接監視手法の開発, 日本原子力学会誌 ATOMO Σ, vol. 62, no. 2, 2020, pp. 89-93.
- [3.3.4-3] Feynman, R. P., De Hoffmann, F., Serber, R., Dispersion of the Neutron Emission in U-235 Fission, J. Nucl. Energy, vol. 3, no. 1-2, 1956, pp. 64-69.
- [3.3.4-4] Naing, W., Tsuji, M., Shimazu, Y., Subcriticality Measurement of Pressurized Water Reactors by the Modified Neutron Source Multiplication Method, J. Nucl. Sci. Technol., vol. 40, no. 12, 2003, pp. 983-988.
- [3.3.4-5] Endo, T. et al., Subcriticality Estimation Using Unscented Kalman Filter for Reactivity- and Source-Transients, Trans. Am. Nucl. Soc., vol. 123, no. 1, 2020, pp. 841-844.
- [3.3.4-6] Werner, C. J. (Ed.), MCNP User's Manual Code Version 6.2, LA-UR-17-29981, 2017, 746p.

This is a blank page.