

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3年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

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

-FY2021 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project-

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

December 2022

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

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。(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>)
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 (<https://www.jaea.go.jp>) 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

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3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

(2022年8月31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3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始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3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3年度は、未臨界度測定手法について Feynman- α 法により γ 線計数/中性子計数の割合 <1 の条件であれば、即発中性子減衰定数を測定できる見込みを得た。またシミュレーションにより定量評価を行い千個程度の中性子検出素子によって目標が達成されることを確認し、中性子検出素子の動作も確認した。これら検出素子の信号を高速で処理する1 MGy まで動作する信号処理集積回路と512個検出素子が搭載できる基板を開発し集積回路を実装し全体の動作を確認した。1 kGy/h の高 γ 線バックグラウンド下で動作するダイヤモンド検出素子に関しても、ダイヤモンド膜製造プロセス、電極生成プロセス等の改良により0.864 kGy/hでの動作を確認した。

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)

— FY2021 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 August 31, 2022)

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 FY2021.

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 FY2021.

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 1 kGy/h and compact-light-weight to fit constraints of the penetration size and the payload.

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. This feasibility study clarified that the Feynman- α method for the subcriticality measurement can measure the prompt neutron decay constant if the ratio of (γ -ray counts) to (neutron counts) is less than 1. We confirmed of neutron sensing devices achieved a few cps/nv based on numerical simulations, and finished developments of a prototype neutron monitoring board which can be mounted 512 devices with 1 MGy radiation tolerant signal processing circuits. Diamond sensing devices also work under 0.864 kGy/h, after modification of production processes for the sensing device.

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
5. 令和 3 年度 採択課題	10
付録 成果報告書	13

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
5. Accepted Proposal in FY2021.....	10
Appendix Result Report	13

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	山崎 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	渡邊 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 (~R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1~)	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号機ペダ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	渡邊 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 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 1~)	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 (～R3. 3. 31) 岡山大学 (R3. 4. 1～)

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	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティ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 (～R2. 3. 31) 竹下 健二 (R2. 4. 1～)	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. 令和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 (~R4.7.31) 村上 健太 (~R4.8.1)	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	渡邊 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

5. 令和3年度 採択課題

令和3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3年3月16日～令和3年5月17日（課題解決型）
 令和3年4月13日～令和3年7月1日（国際協力型 日英共同研究）
 令和3年7月12日～令和3年8月18日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）、2 課題（日露）

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・日露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）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

令和3年度 採択課題一覧

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
建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究	前田 匡樹	東北大学
燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化	宇埜 正美	福井大学
ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究	鈴木 俊一	東京大学
世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立	坂本 哲夫	工学院大学
アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化	豊嶋 厚史	大阪大学

課題名	研究代表者	所属機関
連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究	人見 啓太郎	東北大学
中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発	安原 亮	自然科学研究機構
福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価	中瀬 正彦	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
福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究	Erkan Nejdet (~R4. 1. 31) 三輪 修一郎 (R4. 2. 1~)	東京大学
燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御	浅間 一	東京大学

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
福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握	小林 能直	東京工業大学
非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化	小原 徹	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和3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【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

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 3 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 R03I036)

成果報告書

令和 4 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 3 年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vii
1. はじめに	1
2. 業務計画	3
2.1 全体計画	3
2.1.1 高耐放射線スケラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発	4
2.1.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発	5
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	6
2.1.4 研究推進	6
2.2 実施体制	7
2.3 令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法	8
2.3.1 高耐放射線スケラブル中性子検出器信号読み出しシステム開発	8
2.3.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発	8
2.3.3 検出素子、計測要素の性能評価	9
2.3.4 研究推進	9
3. 実施内容及び成果	10
3.1 高耐放射線スケ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 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）	12
3.1.2 令和3年度実施内容及び成果	12
3.1.3 まとめ	18
3.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発	20
3.2.1 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）	20
3.2.2 令和3年度実施内容及び成果	20
3.2.3 まとめ	35
3.3 検出素子、計測要素の性能評価	37
3.3.1 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）	37
3.3.2 令和3年度実施内容及び成果	37
3.3.3 まとめ	57
3.4 研究推進	59
3.4.1 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）	59
3.4.2 令和3年度実施内容及び成果	59
3.4.3 まとめ	60
4. 結言	61
参考文献	65

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
 准教授 宮原正也
 准教授 岸下徹一

委託先

国立大学法人北海道大学

国立研究開発法人産業技術総合研究所

国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学

准教授 金子純一
 主任研究員 梅沢 仁
 准教授 遠藤知弘

委託先研究協力者

国立大学法人九州大学

教授 渡辺賢一

連携先

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

表一覧

表 3.2.2-1	作製した検出器の 5.486 MeV α 線を使用した性能評価結果例	26
表 3.3.2-1	α 線誘導電荷分布測定の結果.....	43

図一覧

図 2.1-1	臨界近接監視システム実機の中性子検出器のイメージ.....	3
図 2.2-1	実施体制図.....	7
図 3.1.1-1	目標と令和3年度までの達成された成果及び最終年度で行う主要な研究項目の 関連.....	10
図 3.1.2-1	中性子検出器プロトタイプ基板の写真.....	13
図 3.1.2-2	ペネトレーション穴径 10 cm 用の中性子検出器デザイン.....	14
図 3.1.2-3	プロトタイプボードの評価セットアップ及び評価結果例.....	14
図 3.1.2-4	フロントエンド集積回路評価結果.....	15
図 3.1.2-5	フロントエンド集積回路及びフロントエンド、バックエンド集積回路評価基板 の写真.....	16
図 3.1.2-6	フロントエンド、バックエンド集積回路評価基板を使用しフロントエンド集積 回路の特性を評価した例.....	17
図 3.1.2-7	検出器とコンピュータ間でデータ転送を行うためのデジタルデータ転送回路評 価用基板の写真とその評価結果.....	19
図 3.2.2-1	住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド基板の例.....	20
図 3.2.2-2	ダイレクトウエハ法による検出素子開発用 CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の製 作過程.....	21
図 3.2.2-3	住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶.....	21
図 3.2.2-4	住友電工製 HP/HT Ib 型ダイヤモンド単結晶基板上に合成したホモエピタキシ ヤルダイヤモンド層の二次イオン質量分析法の測定例.....	22
図 3.2.2-5	住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶基板上に合成したホモエピタキシ ヤルダイヤモンド層のカソードルミネッセンス測定例.....	22
図 3.2.2-6	9 mm 角大型自立膜と加工後の基板分離面（微分干渉顕微鏡像）.....	23
図 3.2.2-7	検出素子構造の概略図.....	23
図 3.2.2-8	約 260 Gy/h の γ 線環境下における α 線応答関数の比較.....	23
図 3.2.2-9	エネルギー補償型検出素子の概略図.....	24
図 3.2.2-10	^{90}Sr β 線源を用いた γ 線補償型検出素子の動作評価結果.....	24
図 3.2.2-11	左：EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶エピタキシャル層有り、右：EDP 製 CVD ダイ ヤモンド単結晶エピタキシャル層無し、基板上にそれぞれホモエピタキシャル 成長したダイヤモンドの表面.....	25
図 3.2.2-12	EDP 製エピタキシャル層付き基板上に合成した CVD ダイヤモンドのカーソードル ミネッセンススペクトル例.....	25
図 3.2.2-13	北大製ダイヤモンド検出素子の断面図.....	25
図 3.2.2-14	コピー元の住友電工製 HP/HT IIa 型基板（左）作製したコピー基板（右）... ..	26
図 3.2.2-15	（左）住友電工製 HP/HT IIa 型基板、（中）コピー基板、（右）EDP 製基板の位相 差観察画像の位相差観察画像.....	27
図 3.2.2-16	Ni を用いた加工法.....	28
図 3.2.2-17	反応性イオンエッチングを用いた加工法.....	28
図 3.2.2-18	レーザー描画後のレーザー顕微鏡像.....	28

図 3.2.2-19	Ni 加工後のレーザー顕微鏡像	29
図 3.2.2-20	Ni 加工後、線幅 20 μm の拡大図と加工面の表面状態	29
図 3.2.2-21	疑似縦型検出素子の構造(a)と結晶成長後の表面の様子(b)	30
図 3.2.2-22	オーミック電極形成後の疑似縦型検出素子と異常成長粒子の様子	31
図 3.2.2-23	異常成長粒子を避けた素子構造設計と実際の素子の様子	32
図 3.2.2-24	5 mm \sim 2 mm の各素子における電流電圧特性	33
図 3.2.2-25	検出素子ダイヤモンドの結晶成長後、IBE 処理後、スカイフ研磨後の様子	34
図 3.2.2-26	成長後、IBE 処理後、スカイフ研磨後の表面ラフネス	35
図 3.3.2-1	モンテカルロシミュレーションの計算体系	38
図 3.3.2-2	検出素子で得られる付与エネルギー分布	39
図 3.3.2-3	コンバータに B_4C を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性	40
図 3.3.2-4	コンバータに単体 B を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性	40
図 3.3.2-5	コンバータに LiF を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性	41
図 3.3.2-6	コンバータに金属 Li を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性	41
図 3.3.2-7	I-V 特性測定例	42
図 3.3.2-8	C-V 特性測定例	42
図 3.3.2-9	北大製中性子検出器の断面図	43
図 3.3.2-10	JAEA 熱中性子校正場における中性子計測例	43
図 3.3.2-11	北大 ^{252}Cf を用いた中性子計測例	43
図 3.3.2-12	各 γ 線線量率環境における北大製ダイヤモンド検出器の α 線応答関数	44
図 3.3.2-13	市販ダイヤモンド単結晶から同一構造で製作した検出素子の各 γ 線線量率環境における α 線応答関数	44
図 3.3.2-14	IBE20 μm を行った検出素子(黒)と図 3.3.2-12 で示した検出素子(青)の経過時間による 1 秒間の総カウント (Counts/s) の変化	45
図 3.3.2-15	IBE20 μm を行った検出素子(黒)と図 3.3.2-12 で示した検出素子(青)の γ 線応答関数の比較	45
図 3.3.2-16	集積回路耐放射線試験セットアップ	46
図 3.3.2-17	長距離高速データ転送を行うための集積回路の照射による影響	47
図 3.3.2-18	ダイヤモンド検出素子とフロントエンド集積回路を接続した様子と、フロントエンド集積回路から出力された 5.5 MeV α 線信号	47
図 3.3.2-19	ダイヤモンド検出素子+フロントエンド集積回路の γ 線照射試験時の様子	48
図 3.3.2-20	約 300 Gy/h の γ 線線量率環境における、ORTEC 社製の回路と高エネ研製フロントエンド集積回路それぞれの α 線応答関数の比較	48
図 3.3.2-21	北大製ダイヤモンド検出素子+高エネ研製フロントエンド集積回路の各 γ 線線量率における γ 線応答関数の比較	49
図 3.3.2-22	北大製ダイヤモンド検出素子+高エネ研製フロントエンド集積回路の線量率:645 Gy/h の γ 線環境における γ 線応答関数と北大で計測した中性子信号の比較	49
図 3.3.2-23	即発中性子減衰定数と中性子計数率の関係	52
図 3.3.2-24	即発中性子減衰定数に対する逆増倍法の応用例	53
図 3.3.2-25	γ 線計数/中性子計数の割合が中性子相関量に与える影響	55
図 3.3.2-26	中性子相関量の統計的不確かさ	56
図 3.3.2-27	γ 線計数/中性子計数の割合が即発中性子減衰定数に与える影響	57

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技術総合研究所
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	: 株式会社イーディーピー
Element Six	: Element Six UK 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、燃料デブリ取り出しの早期実現、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及び高 γ 線環境下での動作について評価を行った。

令和 3 年度では、令和 2 年度の評価を踏まえて目標に対して次の成果を得た。未臨界度測定手法の実現については、Feynman- α 法により γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 の条件であれば、即発中性子減衰定数を測定できる見込みを得た。これにより、開発した中性子検出器が、高 γ 線環境下で γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 を満たし、目標とする数 count/nv の中性子感度が達成できれば実時間で深い未臨界はモニタリング可能であることが示された。この結果を基に、シミュレーションにより中性子検出素子用中性子コンバーターの材料と厚み等について評価し、1 素子あたり 0.001 count/nv を達成するための条件を定量化し、コンバーターとして LiF を最優先で中性子検出素子に組み込むことにした。また実際に中性子検出素子を開発し中性子検出機能を確認した。目標とする感度を達成するためには、数千個の検出素子からの信号を高速で処理する 1 MGy まで動作する信号処理回路が必要であるため、令和 2 年度に引き続き集積回路を開発し動作を確認し、512 個検出素子が搭載できる基板を開発し、集積回路を実装し全体の動作を確認した。ここで開発した信号処理回路の特徴は、市販の集積回路より応答速度が速く、かつ 100 nsec で 4096 個の検出素子からのデジタル信号を数十 m 離れたコンピュータへシリアル転送できることである。応答速度が速いことは、1 kGy/h の高 γ 線バックグラウンド下での中性子信号対 γ 線バックグラウンド信号比を大きくできる利点があり、現状で市販の信号処理回路の 10 倍以上性能を上げることが可能である。また、中性子検出素子の鍵となるダイヤモンド検出素子に関しても、ダイヤモンド膜製造プロセス、電極生成プロセス等の改良により 0.864 kGy/h での動作を確認した。

今後は、中性子検出素子の性能を評価しシミュレーションと比較し改良を行うことで、目標とする中性子感度を達成する。また 1 kGy/h の γ 線照射場による評価も遂行しつつ、実機製造に向けた検出素子製造プロセス、信号処理集積回路デザインと評価手法、実装基板実装と評価手法、中性子コンバーターの厚さなどの検出器デザインを定量的に評価していく。

前年度までの成果報告書：

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—

JAEA-Review 2021-038, 2022, 65p.

<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-038>

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 γ 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、軽量の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る、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未満となっている[1-2][1-3]。また当初は、中性子線源を用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][1-3]では、1時間の測定で炉雑音法の一つである Feynman- α 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 γ 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、原子炉格納容器、さらに原子炉圧力容器（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、 γ 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、 γ 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 線バックグラウ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ウンドも減少する。
- (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素子を検討した場合、読み出し極間の距離が近くなるため原理的には検出素子容量は増加する。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、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素子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”と上述した(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6であり小さく上述の要請を満たす。この材料を使用した素子製作技術や評価に関しては、北海道大学（以下、「北大」という）及び産業技術総合研究所（以下、「産総研」という）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。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 MGy 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、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及び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 (Feynman- α 法) で要求される時間幅 1 μ s 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 2.1.1 から述べる 3 項目を研究組織 (高エネ研、北大、産総研、名大、JAEA) が連携する。図 2.1-1 に目標とする中性子検出器の概念図を示す。

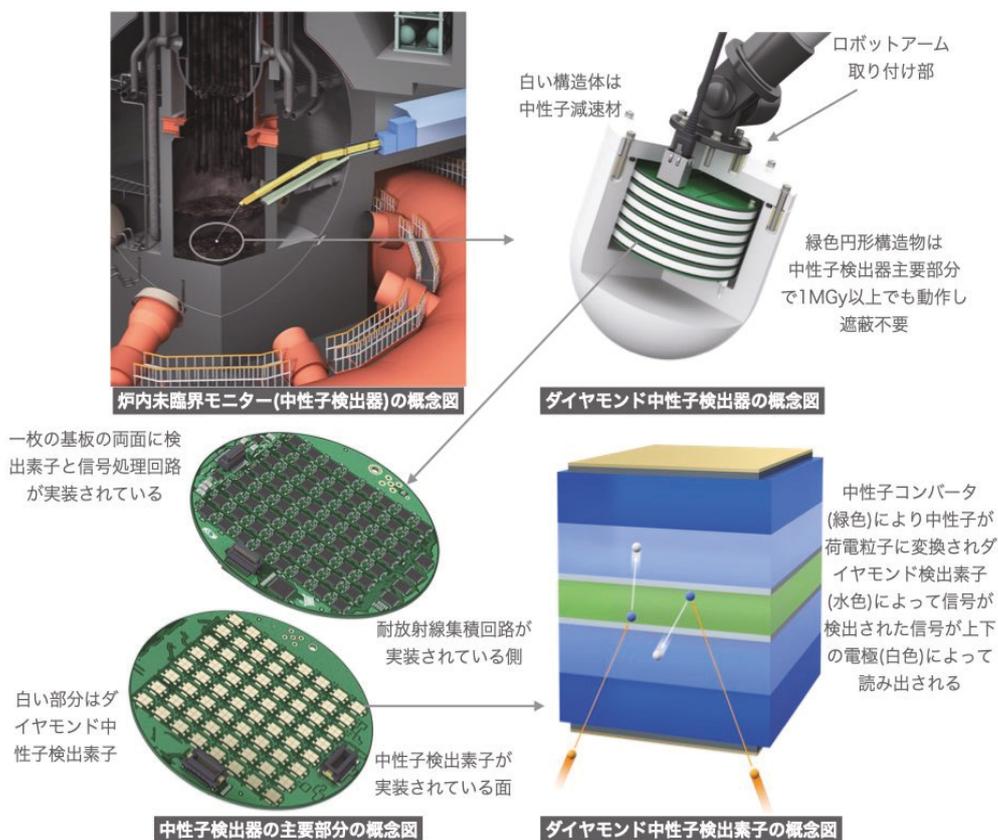


図 2.1-1 臨界近接監視システム実機の中性子検出器のイメージ

(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 μ s 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 μ s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。1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1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¹⁰B₄C 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ク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 μ ~10 μ 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探索する。結晶性・純度共に高い Element Six 製 CVD 単結晶や、自立型単結晶ダイヤモンドの検出素子開発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 μ m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素子構造を試作する。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 (JAEA 熱中性子校正場)、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、 α 線を用い電荷キャリア輸送特性を評価する。さらに、 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 等中性子・荷電粒子変換物質を付与した中性子検出素子を試作し、 ^{252}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、 γ 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 γ 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、 ^{252}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 α 線、 ^{252}Cf 、北大 LINAC-II で評価する。さらに JAEA 熱中性子校正場で中性子感度評価を行う。最後に、1 kGy/h の γ 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。

2.2 実施体制

図 2.2-1 に実施体制図を示す。

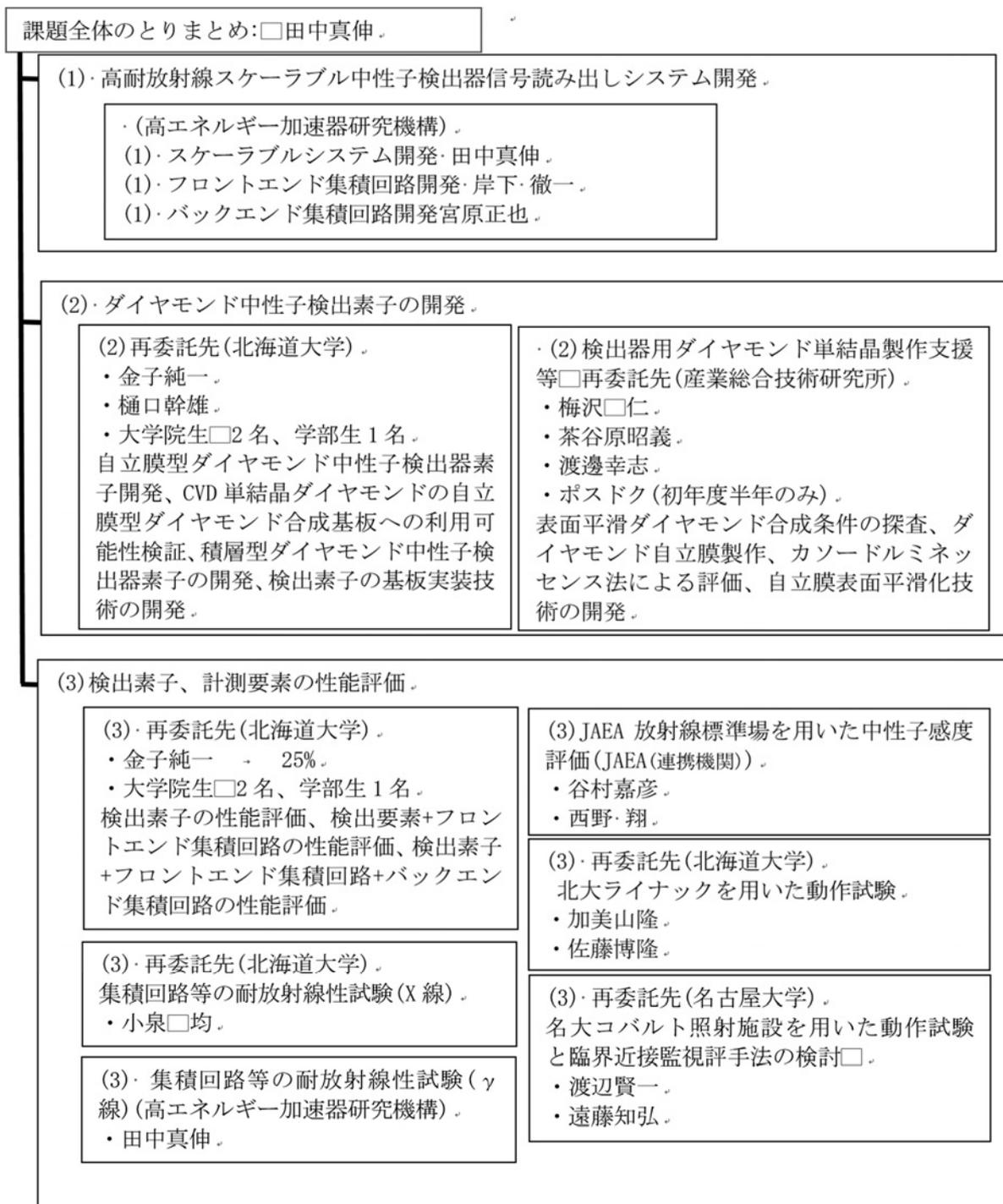


図 2.2-1 実施体制図

2.3 令和3年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 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

① スケーラブルシステム開発

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令和4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 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、修正点を含め再試作評価をおこなう。

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、修正点を含め再試作評価をおこなう。

2.3.2 ダイヤモンド中性子検出素子の開発

① 自立膜型ダイヤモンド中性子検出器素子の開発（再委託先：北大、産総研）

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及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 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（再委託先：北大、産総研）

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る。

③ 積層型ダイヤモンド中性子検出器素子の開発（再委託先：北大、産総研）

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パ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。

④ 検出素子の基板実装技術の開発（再委託先：北大、産総研）

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。

2.3.3 検出素子、計測要素の性能評価

① 検出素子の性能評価（再委託先：北大、名大、連携先：JAEA）

2.3.2①、2.3.3③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 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 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 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。

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4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。

2.3.4 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。

3. 実施内容及び成果

計画全体に関して、目標と令和3年度までの達成された成果及び最終年度で行う主要な研究項目の関連について述べる（図3.1.1-1 参照のこと）。

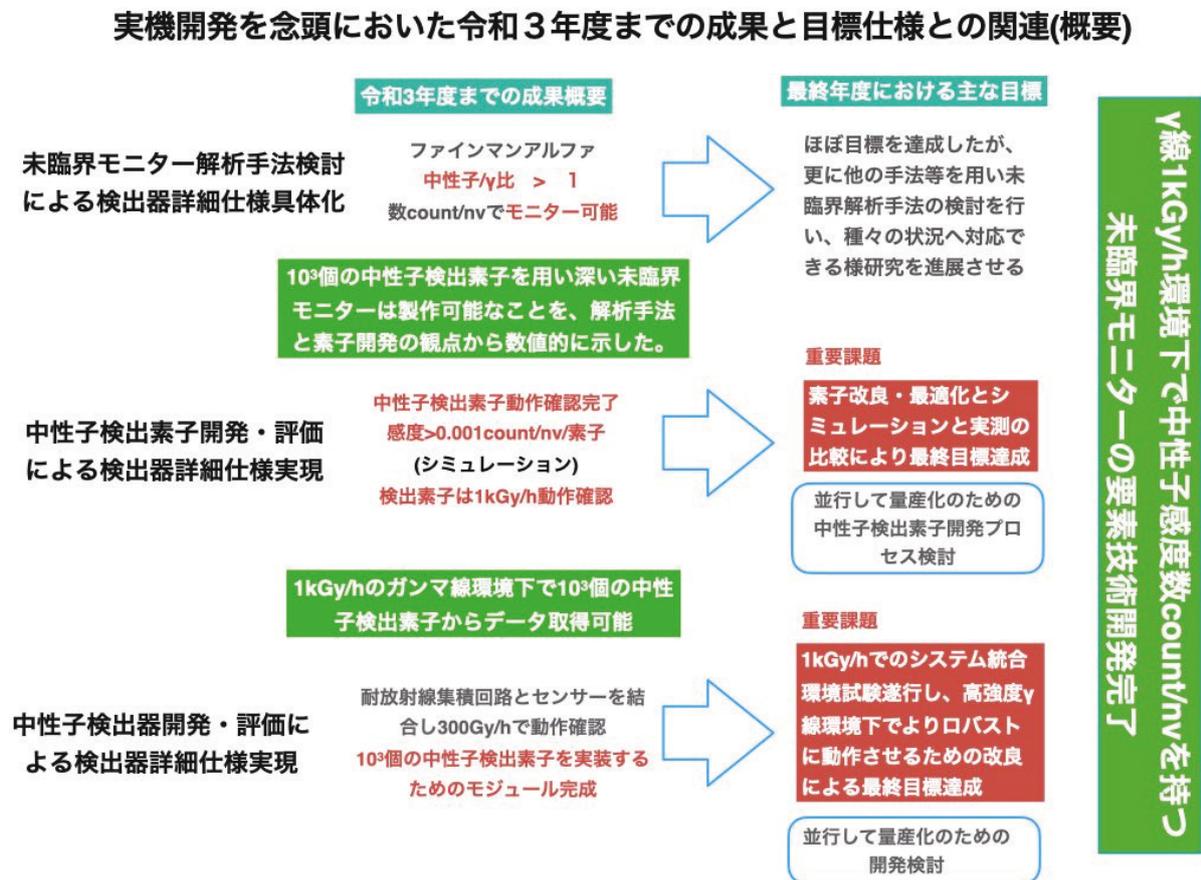


図 3.1.1-1 目標と令和3年度までの達成された成果及び最終年度で行う主要な研究項目の関連

本研究開発は、実施体制に示す図に基づき開発を推進している。実機開発を念頭におき、各要素開発と目標とする実機性能の関連及び到達度をわかりやすくし、3.1.2 以降の成果報告から全体を俯瞰しやすくするために、以下に、目標とそれを達成するための“詳細仕様の明確化”、“要素技術の確立（中性子検出素子）”、“システム化（中性子検出器化）”の流れの中で何がどこまで達成され、最終年度何を行うかについて概説する。

本研究の目標は、高 γ 線環境下（1 kGy/h）で動作する中性子検出による深い未臨界モニターを実現するための要素技術開発であり、そのためには、

1. 詳細仕様の明確化：深い未臨界の解析手法を検討することで検出器に対する詳細仕様を明確にしつつ、検出器が稼働する際に使用する解析手法の具体化
2. 要素技術の確立：1 で要求されている詳細仕様を満たす中性子検出素子の開発評価及び実現
3. システム化：1 と 2 で要求される詳細仕様を満たす中性子検出器の開発評価及び実現

を組織間で密に連携し推進することが必須である。最初に我々が注目すべき重要な点は、 γ 線バックグラウンドが1 kGy/hの環境で、どの程度の中性子感度で深い未臨界がモニタリング可能かという点である。これについては、Feynman- α 法を用いることで、中性子と γ 線のカウント比が1より大きければモニタリング可能という成果を令和3年度までに得た（詳細は3.3.2.4を参照のこと）。これにより、検出器の感度として数 count/nv の性能があれば実時間でのモニタリングは現実的である。またさらに感度を上げる必要がある場合でも、中性子検出素子の感度向上や検出素子数を増やすことで対応可能な検出器を構築できるデザインを実現できる（詳細は3.1.2.1から3.1.2.3を参照のこと）。未臨界解析手法の観点からは、令和3年度までに当初の目的を達成したため、今後は様々な環境に対応できるように他の解析手法も検討する。

さて、1で明確になった仕様に対し、現在開発可能なダイヤモンドを使用した中性子検出素子を数値シミュレーションを用いて検討すると、1素子当たりおよそ0.001 count/nv という数値を得た（詳細は3.3.2.1.1を参照のこと）。よって、数千個の中性子検出素子を用意することで中性子感度数 count/nv という目標値へ到達できる。令和3年度まで、この数値シミュレーション結果と並行して実験を行い、ダイヤモンド検出素子は0.845 kGy/h環境下で動作を確認した（詳細は3.3.2.1.2を参照のこと）。令和4年度においては、中性子検出素子感度のシミュレーションと実測との比較を行うことで、さらなる素子改良による中性子感度・ γ 線耐性向上を推進し目標の達成を推進する。

1と2で明確になった検出器（未臨界モニター）を完成させるためには、千個オーダーの中性子検出素子からの信号を処理し、解析するためのデータをコンピュータへ長距離高速転送する機能、更に使用環境に合わせて形状変更等が容易にできる柔軟性を持つ必要がある（詳細は3.1.2.1を参照のこと）。令和3年度では、 γ 線0.6 kGy/h環境下でダイヤモンド検出素子と読み出し集積回路の動作を確認し（詳細は3.3.2.3を参照のこと）、また、未臨界モニター実機プロトタイプも完成し動作を確認した（詳細は3.1.2.1から3.1.2.3を参照のこと）。令和4年度においては、1 kGy/h環境下での評価を通して検出素子デザインの改良を推進する。

目標に対する現在までの到達度をまとめると、 γ 線バックグラウンド0.845 kGy/h環境下での動作確認は、検出素子レベルで確認できており、読み出しエレクトロニクスを含めた検出素子レベルでの確認は0.6 kGy/hまで確認できている。令和4年度で、検出素子として1 kGy/h環境下での動作を確認する予定である。高ガンマ線バックグラウンド下での中性子測定感度に関しては、令和3年度までに、解析手法の検討及び検出素子シミュレーションにより数 count/nv において深い未臨界モニターとしての性能を達成可能であることを明確にした。令和4年度においては、要求されている中性子感度を達成するために、中性子コンバーターの最適化と検出素子への実装と中性子感度測定をおこない、シミュレーション結果と比較し改良を重ねる。

本研究開発では実機開発を念頭に置いているため上述の研究開発だけでなく、実機開発のための検出素子等の量産についても検討し、製造手法、製造時のプロセスパラメータ、素子構造などを最適化するための研究開発を並行して進めている（詳細は3.2.2.2及び3.2.2.3を参照）。

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 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）

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令和4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。

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。CMOS 65 nm トランジスタの耐放射線評価のために、量子科学技術研究開発機構（QST）において1 MGy 以上の照射を行った。この CMOS 65 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、CMOS 22 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。

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ー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。

3.1.2 令和3年度実施内容及び成果

3.1.2.1 スケーラブルシステム開発

深い未臨界モニター用中性子検出器に要求される仕様は、

- 1) 高γ線バックグラウンド下での中性子測定を高い検出効率：この要求を実現する場合すでに述べた通り、中性子検出要素の高効率化だけでなく、多くの検出素子の使用（多チャンネル化）が必須である。このうちアナログ信号処理についてはフロントエンド集積回路、デジタル制御及びデータ収集に関してはバックエンド集積回路で触れる。
- 2) 高速応答：深い未臨界では予想される中性子検出数は低いが、未知の環境変化にも即応可能なこと、できるだけ多くの情報をリアルタイムに観測できることは1Fの環境をモニターするうえで必須である。多くの検出素子からの情報を高速に収集する機能については3.1.2.3のバックエンド集積回路の項目で触れる。
- 3) 検出器を構成するシステムの拡張性と柔軟性：1で述べた多チャンネル化は、この拡張性と柔軟性をもたせることで、中性子検出効率の向上や、検出器デザインの柔軟な環境への対応（例えばのちに述べる、ペネトレーション内径が異なった検出器サイズへの変更等）が可能となる。

である。

図 3.1.2-1 に、中性子検出素子を 512 個搭載可能な 15 cm 径中性子検出器用プロトタイプボードを示す。

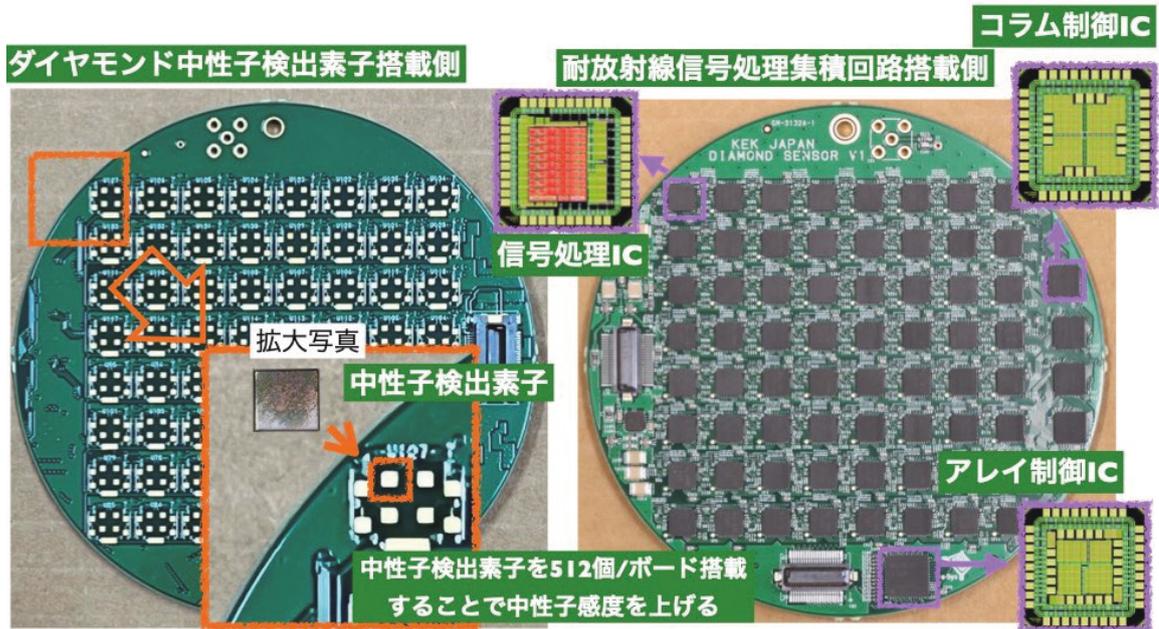


図 3.1.2-1 中性子検出器プロトタイプ基板の写真

このボードは複数枚接続することが可能で、最大で 4096 個の検出素子を 1 つの検出器に組み込むことができる。このため、中性子感度を向上させるにはボードの枚数を増やすことで解決可能である。このボードは直径 15 cm の穴径を通すように設計された中性子検出器用であるが、スケーラブルな特徴を持たせているため、デブリ取り出し用ペネトレーション内径等が異なった時の装置デザインも行い、図 3.1.2-2 に示すような直径 10 cm 用の検出器を構成することも可能である。



図 3.1.2-2 ペネトレーション穴径 10 cm 用の中性子検出器デザイン

図 3.1.2-3 に、このボードの評価セットアップの写真を示す。このセットアップで、バックエンド集積回路を使用したフロントエンド集積回路の制御及びテストパルスによるフロントエンド集積回路の動作確認を完了した。これらの評価結果を基に令和 4 年度のスクーラブルシステム構築へフィードバックをかけた。

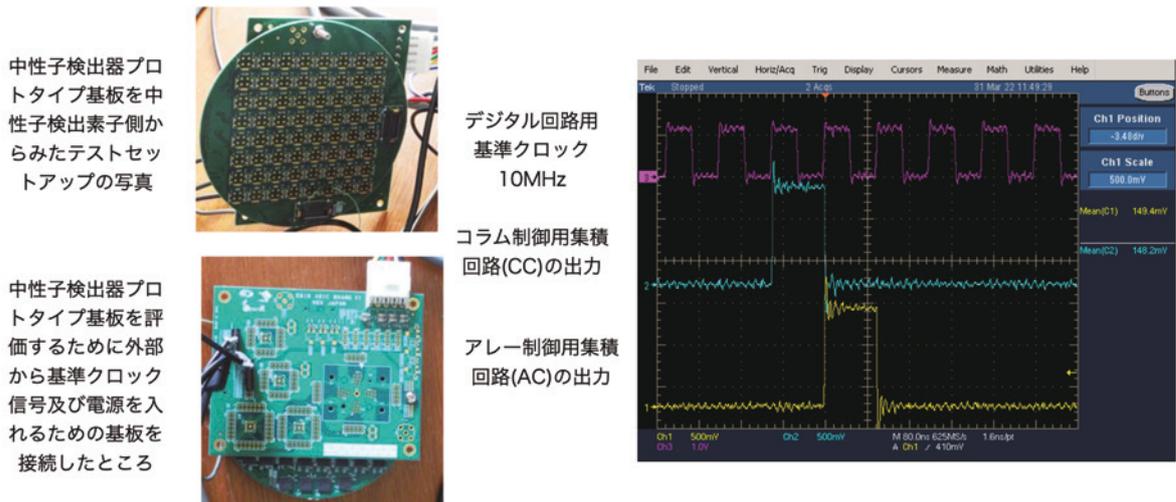
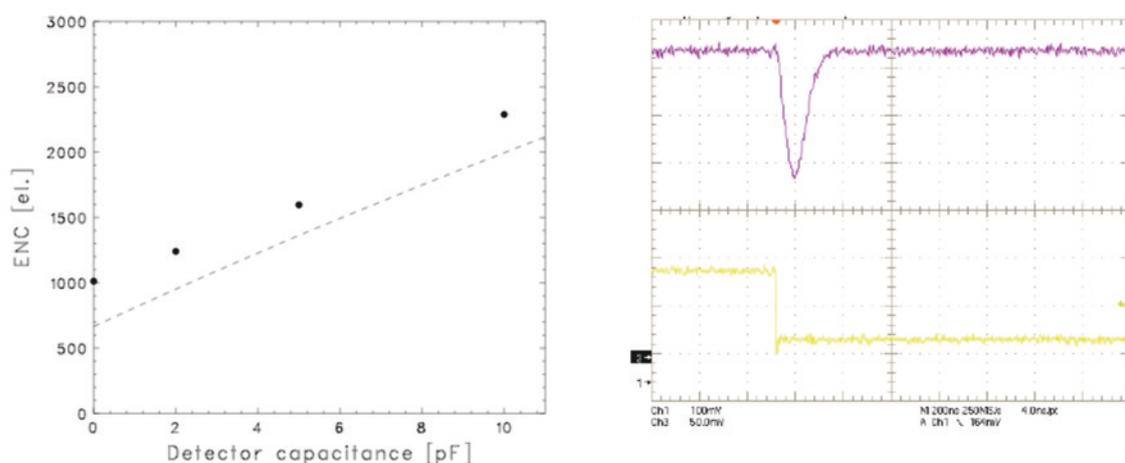


図 3.1.2-3 プロトタイプボードの評価セットアップ及び評価結果例

3.1.2.2 フロントエンド集積回路開発

フロントエンド集積回路は、中性子検出素子からの信号を高い信号対雑音比を保ったまま、中性子 γ 線弁別を行いデジタル情報をバックエンド集積回路へ転送する役割を担う。この時注意しなくてはならないのが γ 線バックグラウンドによる誤信号出力である。詳細は3.3.2.3において議論するが、この γ 線バックグラウンドは深い未臨界状態の判定に影響を与える。この中性子信号対 γ 線バックグラウンド信号比を1以上にする必要があるので(3.3.2.4参照のこと)、できるだけ1検出素子当たりの γ 線バックグラウンド信号を0.001 count/sec未満に抑えることが重要となる。そのためには、できるだけ良い信号対雑音比を保ちつつも高レートでの γ 線信号によるパイルアップを防ぐために、時定数の短い信号処理回路を設計する必要がある。一般的に時定数を短くすると信号対雑音比は悪化するため慎重にデザインを進めなくてはならない。



フロントエンド集積回路の雑音。黒丸が測定結果で点線がシミュレーション値。実測とシミュレーションの違いは浮遊容量によるものと考えられる。

フロントエンド集積回路のテストパルス評価。テストパルスのタイミング信号(下部) に対して出力波形(上部)が観測されておりパルス幅は200nsec程度である。

図 3.1.2-4 フロントエンド集積回路評価結果

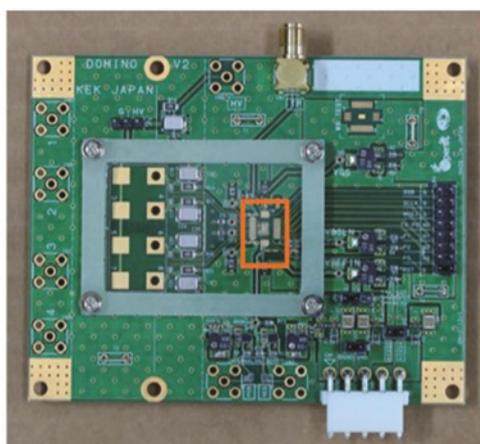
フロントエンド集積回路は TSMC 65 nm CMOS 半導体プロセスを利用して開発した。1 MGy 以上の Total Ionizing Dose に対しても動作するように、令和 2 年度までの耐放射線トランジスタの測定データを参考にモデルを作り設計を行った。具体的には、ゲート電極でドレイン端子を囲んだ ELT (Enclosed Gate Layout) と呼ばれる構造のトランジスタの IV 特性を既存のトランジスタと比較し、アナログ回路を構成する全てのトランジスタを ELT に置き換えるという作業を実施した。ELT は高放射線の影響で問題となる寄生トランジスタからの漏れ電流を抑制し、回路の放射線耐性を高めると期待されるが、特殊なレイアウト構造のため、回路設計に必要となる SPICE モデル自体が存在しなかった。我々は、ELT トランジスタのモデル化を、ガンマ線を 1 MGy 照射した場合も含めて実施しており、高い放射線耐性が期待できる。1 MGy 以上の放射線環境での放射線耐性試験に関しては 3.3.2.2 で述べる。

図 3.1.2-4 に開発したフロントエンド集積回路の雑音を示す。横軸は検出素子の持つ容量で、縦軸は雑音電子数である。使用を検討している検出素子の検出容量は実装時の浮遊容量を入れて 5 pF 未満なので、電子数にして 1500 個、エネルギーにして 20 keV 未満であるため、中性子検出器の信号を信号対雑音比 50 程度で充分中性子識別可能である。

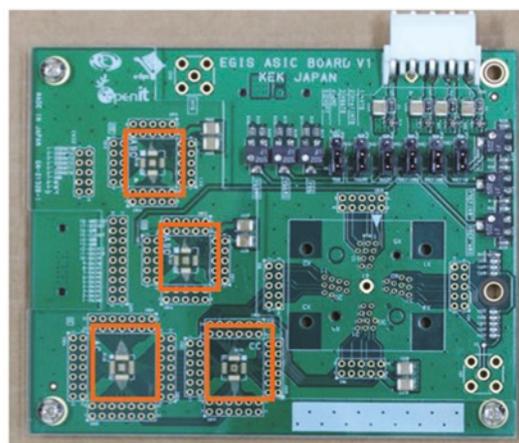
一方、設計時の時定数に関しては、前置増幅器は 1 μ sec、シェーピングタイムは 50 nsec であり、アナログ出力パルス幅は 100 nsec 程度である (図 3.1.2-4 参照)。この評価はフロントエンド集積回路のみの評価基板を開発し行った (図 3.1.2-4 参照)。その後バックエンド集積回路との仕様の互換性等を考慮し再試作を行い、フロントエンド集積回路とバックエンド集積回路を搭載した基板を作成し、フロントエンド集積回路の特性評価を進めた。(図 3.1.2-5 参照)。

3.1.2.3 バックエンド集積回路開発

バックエンド集積回路は、深い未臨界モニターの実用化を目標とし、数千チャンネルのセンサーのヒットデータを 100 nsec 毎に転送できるように設計されている。その理由は、炉内環境を把握するための情報をできるだけ多く得るために、全てのセンサーからの情報をコンピュータに送る必要があるからである。この機能は、急激な環境変化及び未知もしくは情報が不足している環境をモニタリングするために必須の機能であり、その機能を実現しているのがバックエンド集積回路である。



フロントエンド集積回路(ASD)単体試験基板



フロントエンド集積回路(ASD)バックエンド集積回路(CC,AC)試験基板

図 3.1.2-5 フロントエンド集積回路及びフロントエンド、バックエンド集積回路評価基板の写真
(オレンジ枠で囲まれている部分が本研究で開発された集積回路である。)

センサー信号処理回路を開発する場合、センサーからはアナログ信号が出力されるため、耐放射線集積回路技術が必須であることは明白だが、汎用 FPGA ではカバーできないデジタル集積回路のみの開発も以下の理由で必要となる。

- 1) 小型化: 検出効率向上のための多センサー使用の場合、デジタル集積回路はできるだけ小型化され様々な場所へ実装される必要がある。この場合、汎用で巨大な FPGA の使用は測定装置の大型化につながる。

- 2) 消費電力：全体の消費電力は FPGA より低い。一般的に 1/10 以下にでき、熱冷却等の問題を大幅に低減できる。さらに、デジタル信号の入出力部は大きな電流を消費するが、FPGA と比較して ASIC は入出力数や速度等に対し消費電力の最適化が行えるため有利である。

令和 3 年度に開発されたバックエンド集積回路は 4 種類で、それらを組み合わせることで 100 nsec 毎に 4096 チャンネルまでのセンサーのヒット情報をまとめリアルタイムにコンピュータに転送でき、以下のような特徴を持つ。

- 1) 全てのセンサーのヒット情報を高速に演算し転送できるようにする機能

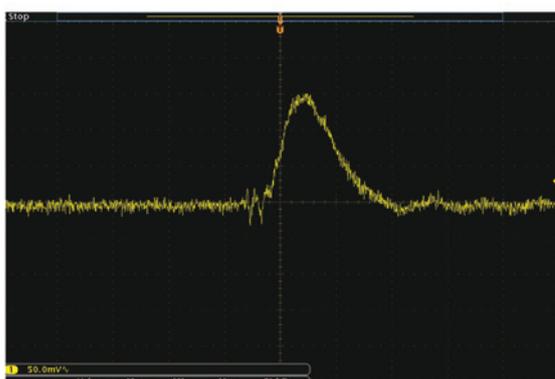
次に述べる CC (コラム制御用集積回路) 及び AC (アレイ制御用集積回路) の 2 つのデジタル集積回路により、アレー状に配置された多数のセンサーからのヒット情報を高速に加算し出力する。これによって、100 nsec 毎に中性子検出情報を取得し深い未臨界モニター用の解析がリアルタイムで行うことができる。またこのように 2 つの集積回路に分けることによって、3.1.2.1 で述べたスケーラブルでかつ柔軟な形状に対応した検出器が実装可能となる。

- 2) 長距離データ転送を行った時に高速転送を可能にするためのデータ送受信技術の導入

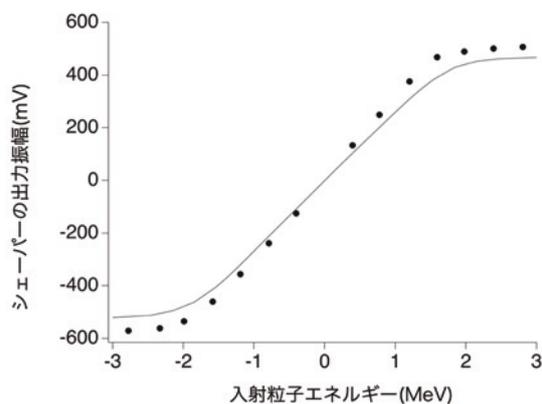
未臨界モニターとデータ解析用コンピュータ間の距離は数十メートルあり、ケーブルの本数も制限されているため、高速で安定したデータの送受信機能を持つ必要がある。この実現のため TX (検出器側送受信回路)、RX (コンピュータ側送受信回路) の 2 種類の集積回路を開発した。

以下に開発したバックエンド集積回路の概要を説明する。

CC (コラム制御用集積回路)：最大 32 個のセンサーからの情報を処理可能な高速の加算器を有し、64 チャンネルのフロントエンド集積回路の制御も行う。



バックエンド集積回路を通してフロントエンド集積回路のアナログ出力信号をテストパルスによりモニタした例



テストパルスにより入力エネルギーに対する出力振幅の応答関数を調べた例(黒丸)とシミュレーション値の比較(黒線)

図 3.1.2-6 フロントエンド、バックエンド集積回路評価基板を使用し
フロントエンド集積回路の特性を評価した例
(右図でエネルギーに符号がついているのは信号極性を示す。)

AC（アレイ制御用集積回路）：最大 64 個の CC からのデジタル情報の処理と制御を行う。
 TX（検出器側送受信回路）、RX（コンピュータ側送受信回路）：TX から RX へのデータ転送に関しては 64b/66b シリアル通信を行っており、DC バランスはスクランブル化でとっている。RX から TX への転送は 8b/10b シリアル通信で行っており、DC バランスはマンチェスターコードでとっている。

これらのデジタル集積回路は、1 MGy まで動作実績のある TSMC 65 nm CMOS プロセスを使用し開発した。図 3.1.2-5 に、フロントエンド集積回路（ASD）とデータ収集用バックエンド集積回路（AC、CC）が搭載されている評価ボードの写真を示す。このボードを使用した AC、CC のすべての機能を確認した後、フロントエンド集積回路との接続試験を行った評価結果の一部を図 3.1.2-6 に示す。バックエンド集積回路は設計通り動作しフロントエンド集積回路の特性を確認できた。現在まで、フロントエンド集積回路（ASD）及び AC、CC は設計通りの性能を示していることが理解された。図 3.1.2-7 に TX、RX の評価ボードを示す。装置とコンピュータを接続するための長距離データ転送回路の評価に関しては、図 3.1.2-7 に示す試験基板を使用し、ランダム信号を入力してアイパターンの測定を通して信頼性の確認を行った。図 3.1.2-7 からわかるように 300 Mbps で安定にデジタルデータを転送可能である。この要素は放射線耐性試験も完了し問題がないことがわかっている。放射線耐性試験に関しては 3.3.2.2 で述べる。

3.1.3 まとめ

現状では目標とする耐放射線性能 1 MGy は確保できており、中性子検出器用プロトタイプ基板も集積回路を搭載し動作確認できた。1 kGy/h 耐性に関しては、さらに高速化をすることで中性子検出効率を最大限にあげられるように試作を進める。今後、長時間安定性の試験などはシステムインテグレーション後に行う。

① スケーラブルシステム開発

開発した集積回路及びシステム評価に必要なプロトタイプ基板を開発し、システムデザインを進めた。これらの評価結果を基に令和 4 年度のスケラブルシステム構築へフィードバックをかけた。装置設計を開始し、プロトタイプ丸形基板を開発し動作の検証を行った。また、デブリ取り出し用ペネトレーション内径等が異なった時の装置デザインも行い、直径 10 cm 対応のデザインを検討した。

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開発し動作確認した。また、バックエンド集積回路と合わせて試験を行い、評価結果を踏まえ改良し再試作評価を行った。フロントエンド集積回路のみの評価基板を製作し評価を行い、集積回路の再試作後に、フロントエンド集積回路とバックエンド集積回路の評価基板を開発し評価を行った。

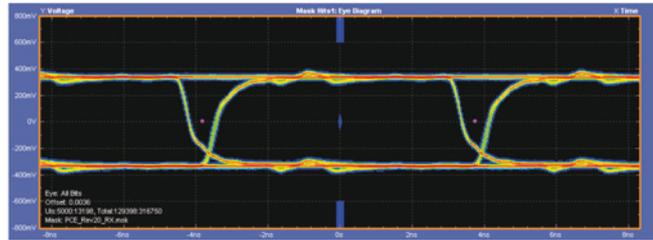
③ バックエンド集積回路開発

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開発し動作確認した。また、フロントエンド集積回路との接続試験を行い、評価結果を踏まえ改

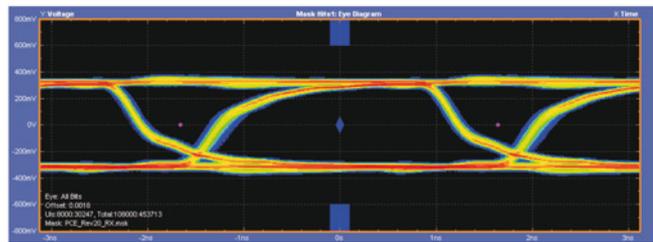
良し再試作評価を行った。装置とコンピュータを接続するための長距離データ転送回路の評価を行った。フロントエンド集積回路とバックエンド集積回路の評価基板を開発し評価を行った。



データ転送用集積回路評価ボード



132Mbpsでデータ転送を行った時のアイパターン



300Mbpsでデータ転送を行った時のアイパターン

図 3.1.2-7 検出器とコンピュータ間でデータ転送を行うためのデジタルデータ転送回路評価用基板の写真とその評価結果

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 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）

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及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、北大でホモエピタキシャル成長、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。

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。株式会社イーディーピー（以下、「EDP」という）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。

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及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パ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。

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。

3.2.2 令和3年度実施内容及び成果

3.2.2.1 自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

令和2年度に引き続きエネルギー spektrometa 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 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶基板を購入、北大が合成を担当し、産総研において、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。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 3.2.2-1 に示すように 6~8 mm 角程度の基板を購入し、図 3.2.2-3 他本報告書内で使用しているダイヤモンド検出素子の多くを製作した。

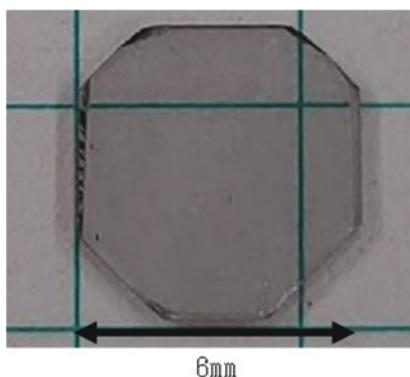
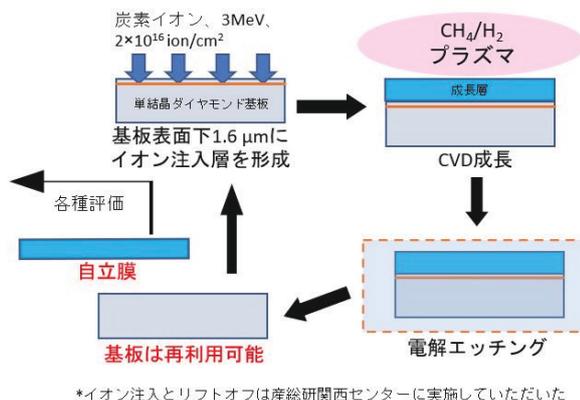


図 3.2.2-1 住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド基板の例

これらの基板に対して図 3. 2. 2-2 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^{16} 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素子開発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。



現状では価格の高い単結晶ダイヤモンド基板においても再利用可能

図 3. 2. 2-2 ダイレクトウエハ法による検出素子開発用 CVD 単結晶ダイヤモンド自立膜の製作過程

図 3. 2. 2-2 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。

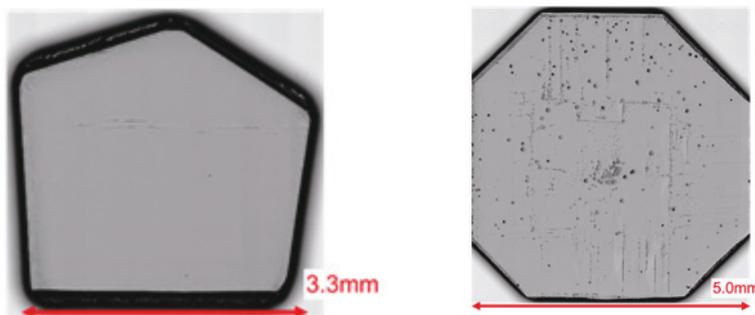


図 3. 2. 2-3 住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶基板上にホモエピタキシャル成長したダイヤモンドの表面例

図 3. 2. 2-3 に合成した結晶表面の光学顕微鏡観測例を示す。合成条件により表面形態に変化が現れることがわかる。

・二次イオン質量分析法 (SIMS)

図 3. 2. 2-4 に住友電工製 HP/HT Ib 型ダイヤモンド単結晶基板上にそれぞれ異なる条件でホモエピタキシャル成長したダイヤモンド層の二次イオン質量分析法の測定例を示す。表面

平滑化及び電荷キャリア輸送特性改善の試みとしてプラズマ中に酸素を添加する方法として、酸素もしくは二酸化炭素を添加する方法を試みた。ここでは二酸化炭素添加合成実験の結果を示す。合成時のメタン濃度はすべての試料で1%とし、二酸化炭素濃度はそれぞれのダイヤモンド層で0%、0.5%、1.0%、1.5%である。これにより、検出素子用ダイヤモンド単結晶の残留不純物を評価でき、水素元素と酸素元素はすべての二酸化炭素濃度で検出限界レベルであった。窒素元素の取り込みはすべての二酸化炭素濃度で同程度であった。ボロン元素は二酸化炭素を添加することで、明確に取り込みが低減されることがわかった。

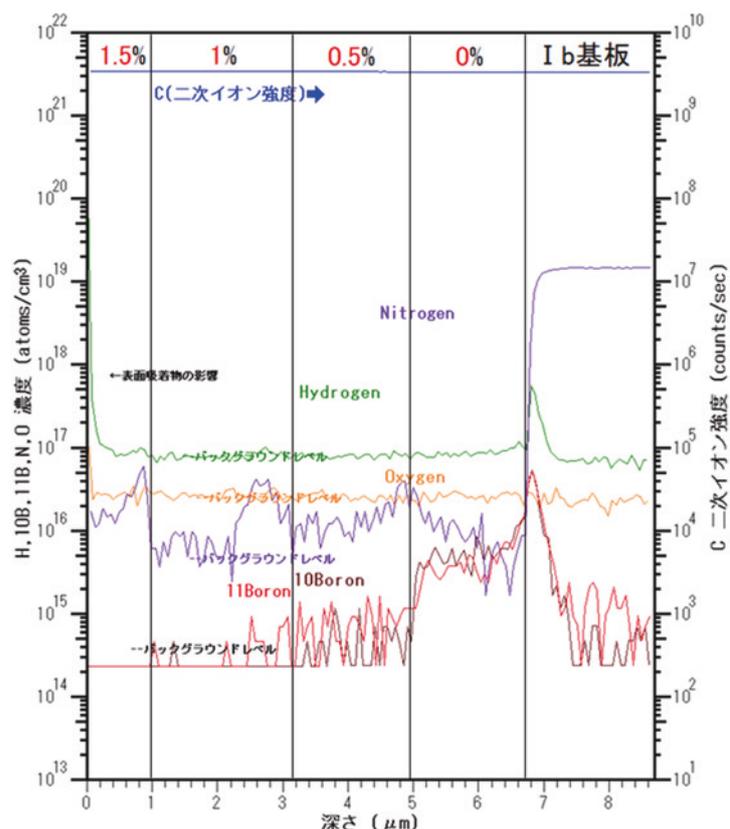


図 3. 2. 2-4 住友電工製 HP/HT Ib 型ダイヤモンド単結晶基板上に合成したホモエピタキシャルダイヤモンド層の二次イオン質量分析法の測定例

図 3. 2. 2-5 に産総研で測定したこれらの成長層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。2 つのスペクトルはそれぞれ図 3. 2. 2. 1-3 の試料に相当する。右側の図では強い自由励起子再結合発光が観測されている。

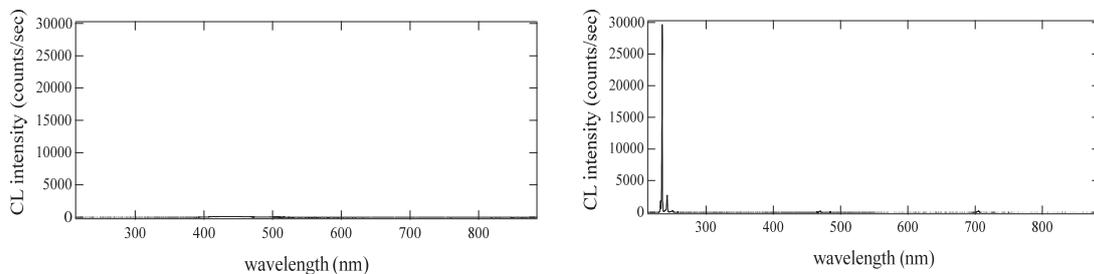


図 3. 2. 2-5 住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶基板上に合成したホモエピタキシャルダイヤモンド層のカソードルミネッセンス測定例

・基板側成長層の部分的な除去によるチャージアップ対策

北大ではダイヤモンド自立膜の作製にダイレクトウエハ法を用いている。ダイレクトウエハ法においては、イオン注入済の基板上にホモエピタキシャル成長を行うことから、自立膜の基板側成長層の欠陥密度が相対的に大きいとの研究結果がすでにある。チャージアップ対策として、結晶品質を向上させるためにこの基板側成長層を、産総研において 10 μm~20 μm イオンビームエッチング (IBE) 法により除去した。またダイヤモンド自立膜と金属電極の接触をよりオーミックにするために、基板側成長層除去後にボロンドープした P+層を約 2 μm 合成した自立膜も用意した。

同一条件で合成されたダイヤモンドでも、使用した基板の品質等によって結晶品質にバラつきがあることから図 3.2.2-6 に示す 9 mm 角の大型自立膜を切断し、本チャージアップ対策の有用性を評価した。

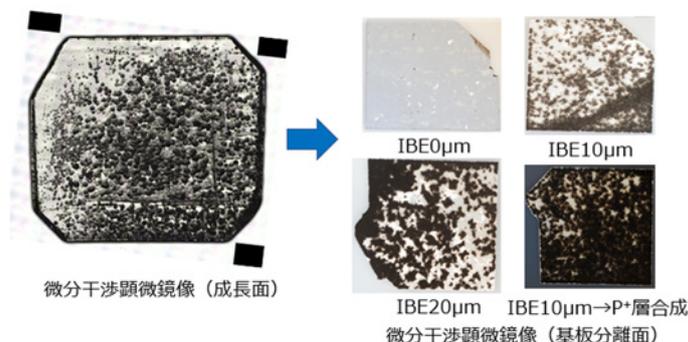


図 3.2.2-6 9 mm 角大型自立膜と加工後の基板分離面 (微分干渉顕微鏡像)

・γ線照射試験によるチャージアップ対策の有用性評価

上記で加工を行った自立膜 (IBE 0 μm、IBE 10 μm、IBE 10 μm→P+層合成) を図 3.2.2-7 に示す構造で検出素子化した。この 3 つの検出素子に対して、約 260 Gy/h の γ線環境下で 5.5 MeV α線を用いて計測を行った。結果を図 3.2.2-8 に示す。

図から基板側成長層の部分的除去、P+層の導入はともにγ線影響を低減させていることがわかる。よって、基板側成長層の部分的除去と P+層の導入はチャージアップ対策として有用であることが判明した。

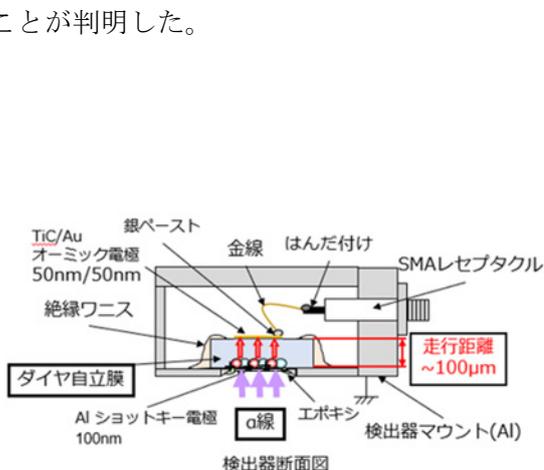


図 3.2.2-7 検出素子構造の概略図

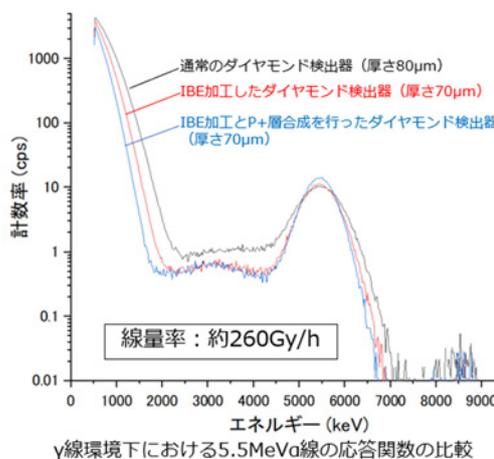


図 3.2.2-8 約 260 Gy/h の γ線環境下における α線応答関数の比較

・中性子検出素子の試作

これらのチャージアップ対策を行った検出素子上に $^{10}\text{B}_4\text{C}$ を蒸着法により設置し、中性子検出素子を試作した。 ^{252}Cf を使用した評価結果例は“3.3.2.3 検出素子+フロントエンド集積回路の性能評価”で示す。

・エネルギー補償型検出素子の試作と評価

名大で行った γ 線照射試験の結果からその必要性は低下したが、エネルギー補償型検出素子を作製し評価した。 γ 線ノイズが打ち消されるように、図 3.2.2-9 に示す構造の検出素子を作製した。高線量率の γ 線環境を想定して、 β 線を用いて検出素子の動作評価を行った。 β 線を用いた動作評価の結果を図 3.2.2-10 に示す。

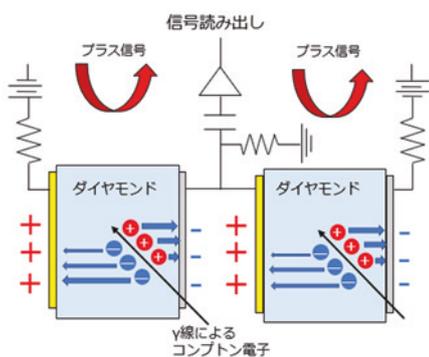


図 3.2.2-9 エネルギー補償型検出素子の概略図

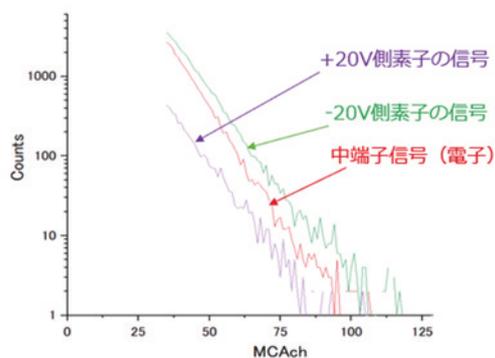


図 3.2.2-10 ^{90}Sr β 線源を用いた γ 線補償型検出素子の動作評価結果

エネルギー補償型検出素子として動作していれば、赤色スペクトルが緑色スペクトルと紫色スペクトルによって打ち消されるはずである。 β 線入射の立体角を考慮して補正を掛けたところ、 γ 線補償型検出素子として信号の打ち消しが動作していることが確認できた。

高 γ 線環境における評価は結晶品質の問題でできていないが、エネルギー補償型検出素子の作製自体が可能であることは確認できた。

3.2.2.2 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

図 3.2.2-11 に、令和 2 年度に作成した EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶エピタキシャル層有り基板上、および EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶エピタキシャル層無基板上に、それぞれ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画像を示す。エピタキシャル層有りの方が表面が平滑であることがわかる。

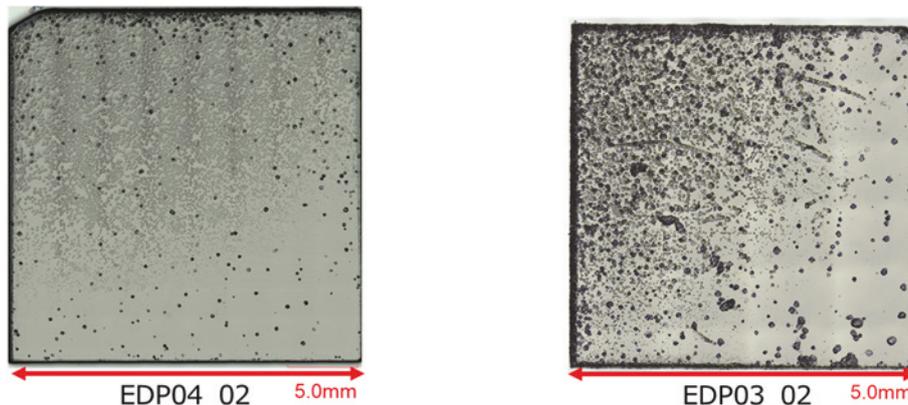


図 3.2.2-11 左：EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶エピタキシャル層有り、
右：EDP 製 CVD ダイヤモンド単結晶エピタキシャル層無し、基板上にそれぞれ
ホモエピタキシャル成長したダイヤモンドの表面

図 3.2.2-12 に、図 3.2.2-11 で示した CVD ダイヤモンド基板上に合成したホモエピタキシャル成長層のカーソルミネッセンススペクトル測定例を示す。エピタキシャル層付きでは自由励起子再結合発光ピークが観測された。

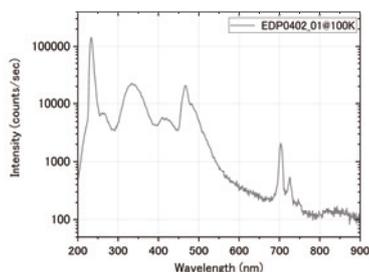


図 3.2.2-12 EDP 製エピタキシャル層付き基板上に合成した CVD ダイヤモンドのカーソルミネッセンススペクトル例（バンド A 発光はあるものの自由励起子再結合発光も観察された）

図 3.2.2-2 に示した方法により、これらの成長層を自立膜化し、検出素子を作製した後、性能評価を行った。

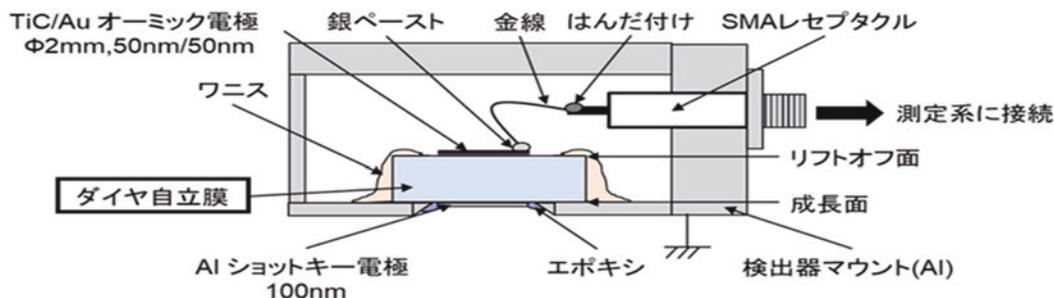


図 3.2.2-13 北大製ダイヤモンド検出素子の断面図

図 3.2.2-13 に、評価に使用したダイヤモンド検出素子の断面図を示す。自立膜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。表 3.2.2-1 に、これらの検出素子の ^{241}Am からの 5.486 MeV α 線を使用した性能評価例を示す。エピタキシャル層が有る基板に成長させた試料は、正孔では過去に行った Element Six 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性能が得られたが、電子では α 線を使用した測定を行えなかった。エピタキシャル層が無い基板に成長させた試料は、電子と正孔両方で α 線の測定を行うことができたが、どちらのキャリアに対しても、過去に行った Element Six 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よりも低い検出性能を示した。

表 3.2.2-1 作製した検出器の 5.486 MeV α 線を使用した性能評価結果例

試料名	測定キャリア	電荷収集効率	エネルギー分解能
EDP04_02 (エピタキシャル層有り)	電子	-	-
	正孔	101.6%	0.40%
EDP03_02 (エピタキシャル層無し)	電子	100.5%	2.49%
	正孔	101.8%	1.96%

・コピー基板

合成に使用する単結晶基板の結晶性や欠陥の有無が、検出素子の性能に影響を与えることから、量産技術の可能性検証として、住友電工製 HP/HT IIa 型ダイヤモンド単結晶を基板として、マイクロ波プラズマ CVD 法によりコピー基板を合成した。基板として使用する場合、厚さが 300 μm 程度必要となることから、産総研において標準的な合成条件で CVD ダイヤモンド合成を行った。図 3.2.2-14 は左側が元となった住友電工製 HP/HT IIa 型基板、右側が合成したコピー基板の光学像である。コピー基板には窒素が少量含まれているため、茶色く着色している。

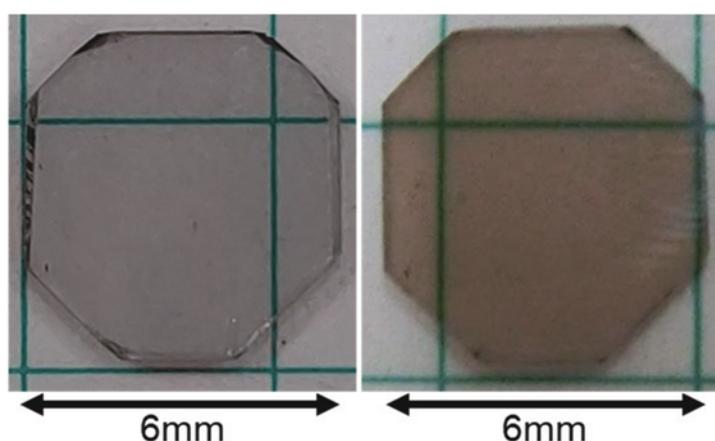


図 3.2.2-14 コピー元の住友電工製 HP/HT IIa 型基板 (左)
作製したコピー基板 (右)

図 3.2.2-15 は、左から住友電工製 HP/HT IIa 型基板、作製したコピー基板、EDP 製基板の位相差観察画像である。位相差観察では基板の転移や欠陥などが白く見える。親基板である住友電工製 HP/HT IIa 型基板の位相差顕微鏡像は、一部を除き光っておらず、欠陥などが少ないことがわかる。作製したコピー基板は親基板より劣るものの、EDP 製基板と比較すると発光部分が局在化しており、今後、バッファ層の導入なども含めて検出素子用基板としての可能性検証を進めていく。

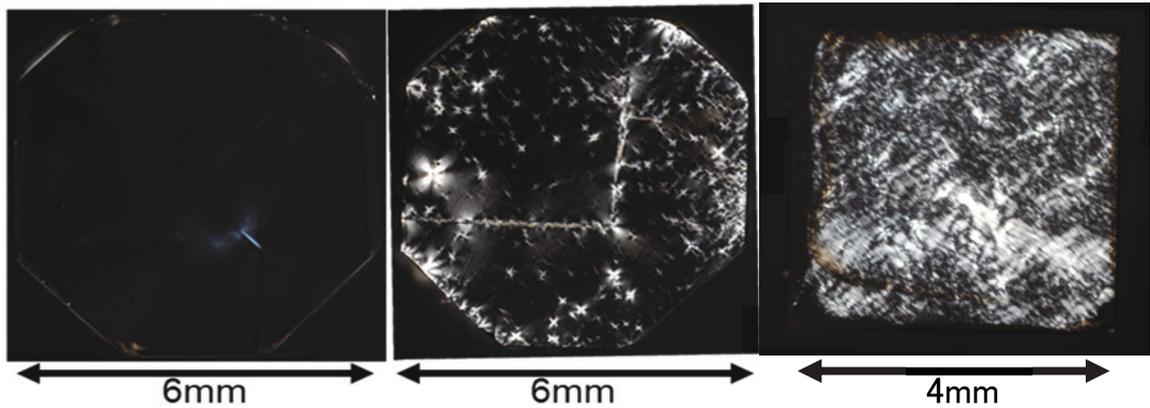


図 3.2.2-15 (左) 住友電工製 HP/HT IIa 型基板、(中) コピー基板、(右) EDP 製基板の位相差観察画像の位相差観察画像

・微細加工技術の導入

微細加工の方法として、Ni を用いた加工（図 3.2.2-16）と反応性イオンエッチングを用いた加工（図 3.2.2-17）の2つを検討している。

北大のレーザー描画装置を用いて図 3.2.2-18 に示すパターン描画を行った。これに Ni を蒸着して、図 3.2.2-19、図 3.2.2-20 に示すようにエッチング可能であることを確認した。

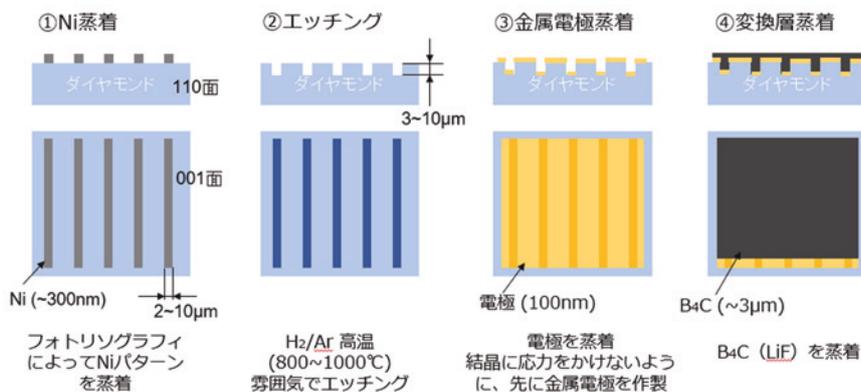


図 3.2.2-16 Ni を用いた加工法

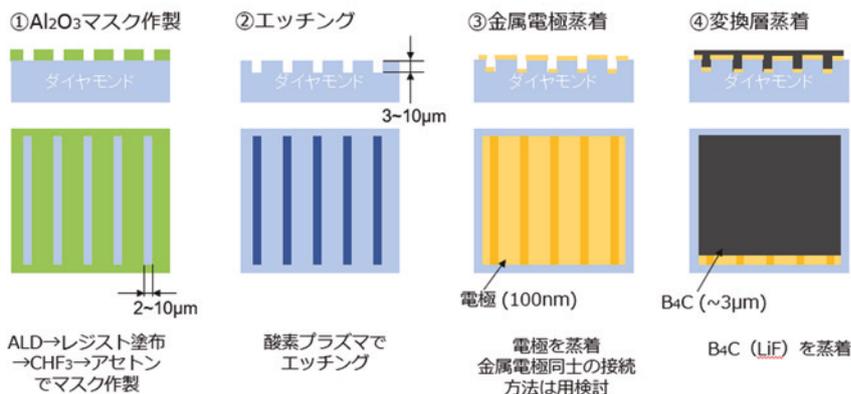


図 3.2.2-17 反応性イオンエッチングを用いた加工法

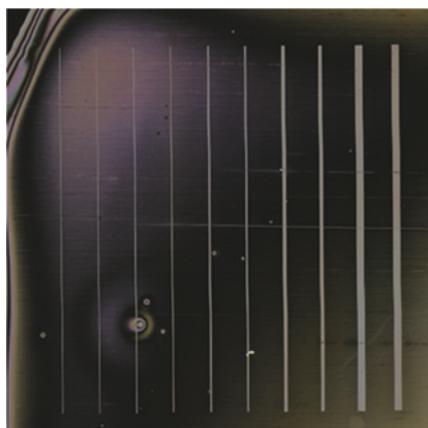


図 3.2.2-18 レーザー描画後のレーザー顕微鏡像

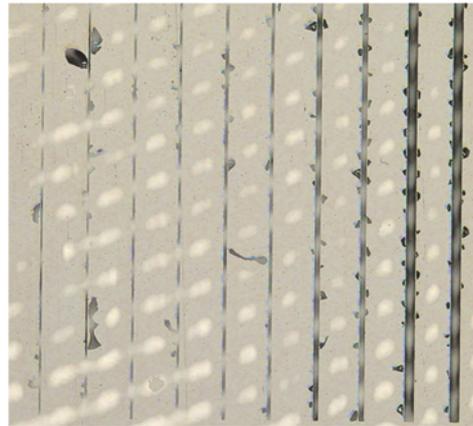


図 3. 2. 2-19 Ni 加工後のレーザー顕微鏡像

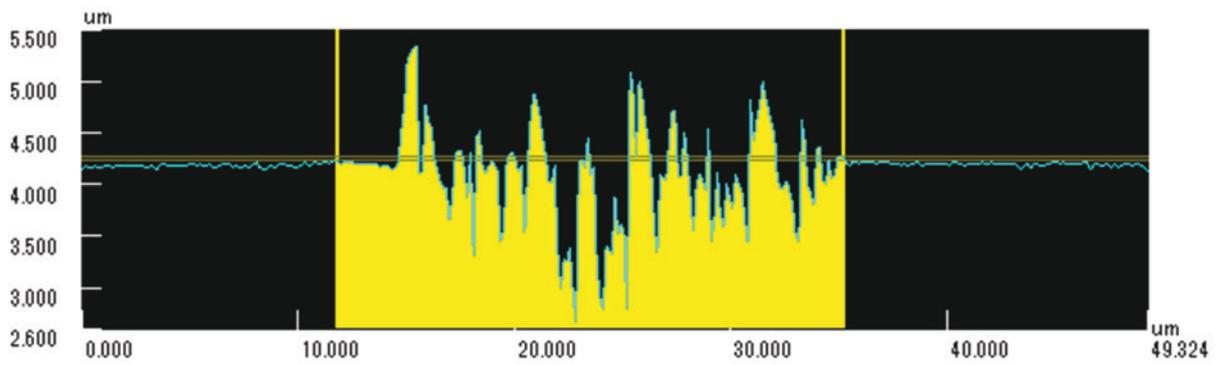
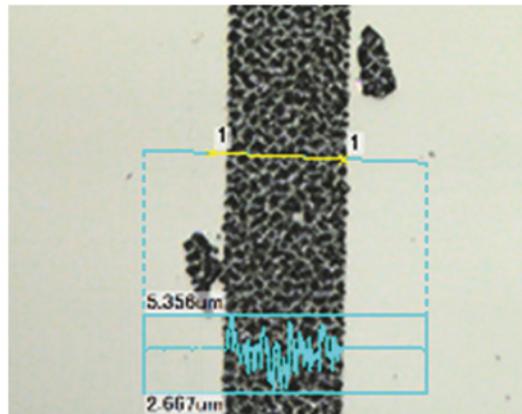


図 3. 2. 2-20 Ni 加工後、線幅 20 μm の拡大図と加工面の表面状態

3.2.2.3 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

臨界監視用中性子検出器には、検出信号を改善するために γ 線検出素子と異なり多数の検出素子を搭載する必要がある。現状の超高品質検出素子製造プロセスを用いた場合、量産化のためには装置台数を増やす必要があり、コスト的に非現実的である。このため、将来的な検出素子の量産化と低コスト化を目的として、市販のハーフインチ大型ウェハを利用した検出素子の試作と評価を行った。検出素子結晶基板はモザイク法を利用した市販の接合ウェハであり、基板部には窒素がドーピングされているため半絶縁性である。基板は Minimal Fab ウェハ規格に準拠しており、サイズは $\Phi 0.5$ inch、厚さ 0.25 mm である。なお縁辺はベベリング加工がされている。

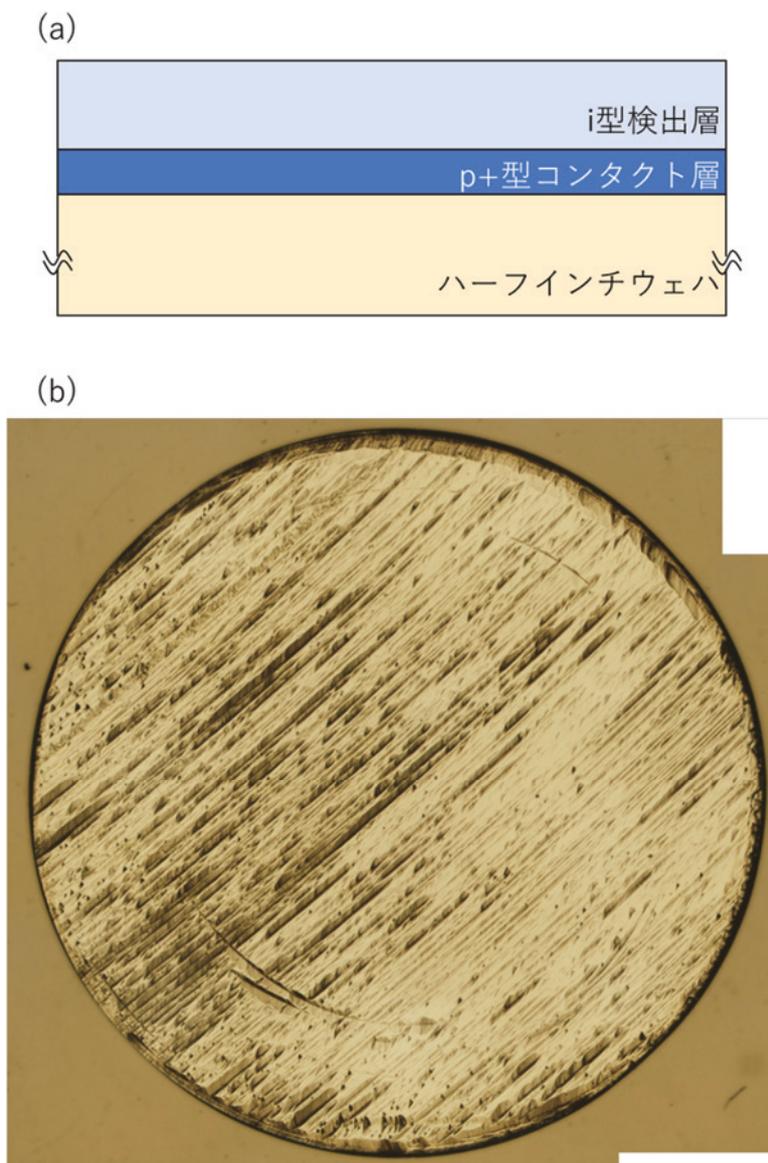


図 3.2.2-21 疑似縦型検出素子の構造(a)と結晶成長後の表面の様子(b)

疑似縦型検出素子の試作のため、ハーフィンチダイヤモンド基板にオーミック層となる p+コンタクト層、i 型検出層を CVD (Chemical Vapor Deposition) 法にて積層成長させた。p+コンタクト層は熱フィラメント法による FCVD (Hot Filament CVD) 法を用い MAT (Metal Assisted Defect Termination) 層とすることで、デバイス劣化欠陥の影響低減を行った[3-1]。i 型検出層はマイクロ波 CVD 法を用いている。図 3. 2. 2-21 に、疑似縦型検出素子の構造模式図と結晶成長後の表面の様子を示す。結晶成長後の様子から、(1) $\langle 110 \rangle$ 結晶方向に沿ったラフネスの発生、(2) 異常成長粒子の発生、(3) オリフラの消失、などが見られた。

この基板に 5 mm 角、3 mm 角、2 mm 角相当の疑似縦型検出素子を試作した。異常成長粒子は素子に対してキラー欠陥でありリーク電流を著しく上昇させることがわかっている[3-2]。なお、オーミック電極を形成した際には、異常成長粒子によるラフネスによりパターンニング異常が発生しており、図 3. 2. 2-22 に示す通り、異常成長粒子上にもオーミック電極が形成されていることがわかった。このため、検出素子側の電極は異常成長粒子を避けるように設計した特殊製造プロセスを用いた。図 3. 2. 2-23 にリソグラフィーの設計と実際に試作した素子の顕微鏡像を示す。なお、素子番号 5 mm-A、5 mm-B、2 mm-A、2 mm-B、3 mm-B は異常成長粒子が存在する欠陥部分を避けて電極形成し、3 mm-A は電極下に異常成長粒子を含んだ素子、 $\Phi 100 \mu\text{m}$ 素子（合計 192 個）は確率的に異常成長粒子が含まれる電極としている。また、プロセス後の完成検査において、3 mm-B には異常成長粒子が 1 つ含まれていることが確認された。

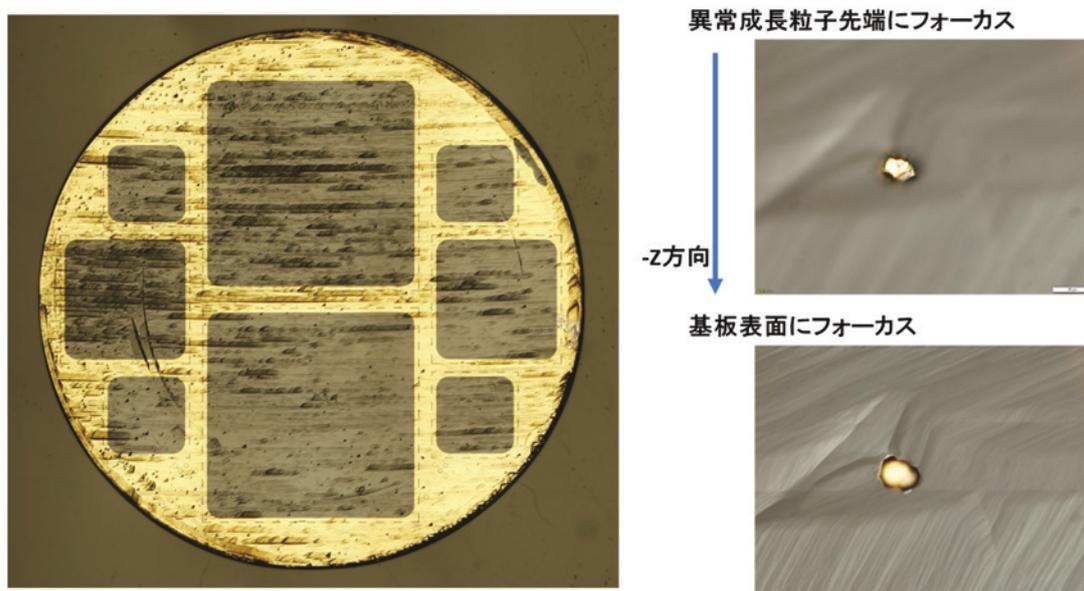


図 3. 2. 2-22 オーミック電極形成後の疑似縦型検出素子と異常成長粒子の様子

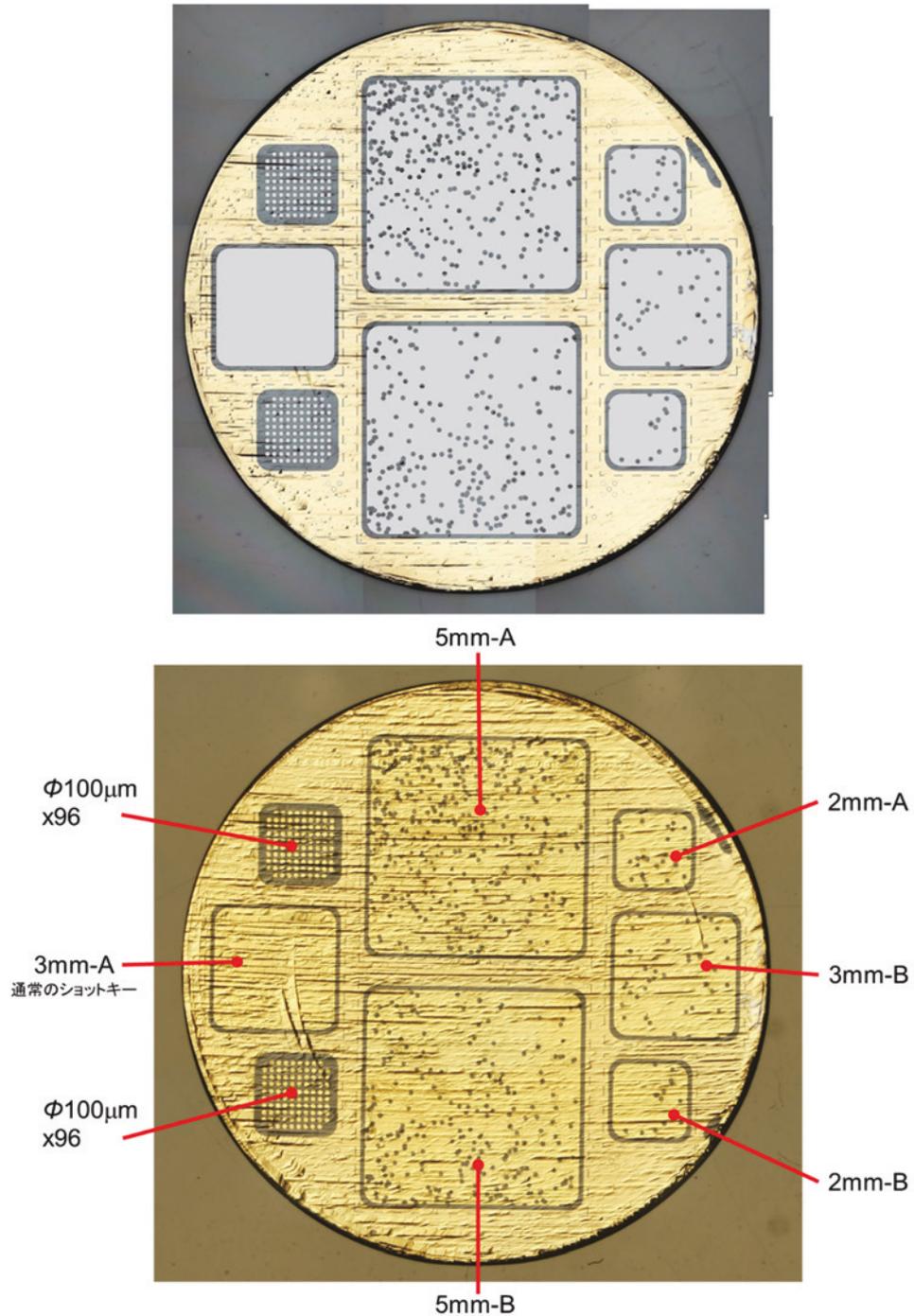


図 3. 2. 2-23 異常成長粒子を避けた素子構造設計と実際の素子の様子

図 3. 2. 2-24 に、5 mm-A、5 mm-B、3 mm-A、3 mm-B、2 mm-A、2 mm-B 各素子における電流電圧特性を示す。特殊製造プロセスを用いて異常成長粒子欠陥を避けた素子については低い理想値による低リーク電流特性が示されており、良好な障壁が得られていることがわかる。特に 2 mm 素子では測定限界をはるかに下回るリーク電流であった。異常成長粒子を含んだ構造の素子 (3 mm-A) はオーミック性のリーク電流が見られており、過去の論文[3-2]で示されたものと同質の

リークが発生していることがわかる。このことから、異常成長粒子欠陥は検出層を貫通した欠陥であると考えられる。3 mm-A ではオーミック性ではないものの、比較的低い印加電圧である +2 V 付近からリークが上昇していることがわかる。5 mm-B 素子では 3 V 付近からリーク電流が徐々に上昇し、+5 V では 10 nA 程度に達している。これは異常成長粒子ではない欠陥、もしくは極めて小さい異常成長粒子（検出層を貫通していない異常成長粒子欠陥）によるリークの上昇とみられる。

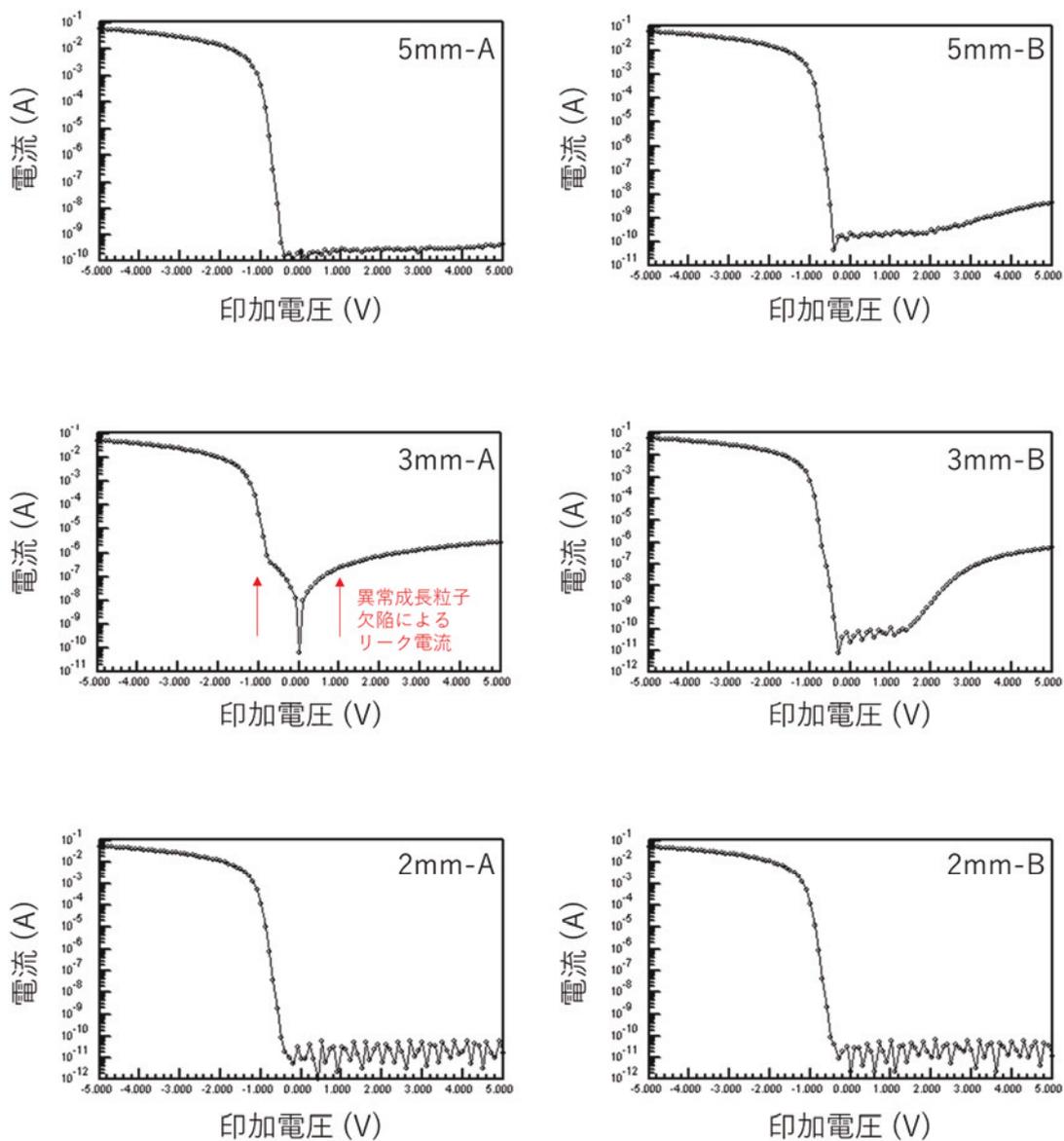


図 3.2.2-24 5 mm～2 mm の各素子における電流電圧特性

(欠陥をさけない構造を取った 3 mm-A 素子は異常成長粒子欠陥によるリーク電流が確認された。3 mm-B は完成後検査で異常成長粒子欠陥が 1 つ含まれていることを確認した素子。)

上記プロセスで作製、電気特性評価を行った疑似縦型ダイヤモンドショットキーバリアダイオードに対して、北大にて α 線誘導電荷量分布測定を行った。測定には電荷有感型前置増幅器 (ORTEC 社、142A)、スペクトロスコピーアンプ (ORTEC 社、672)、マルチチャンネルアナライザ (横河電機株式会社、WE7000) を用いた。 α 線源には ^{241}Am を用いた。上述したように、ダイオード電極には異常成長粒子を取り除いたパターンを採用している。自立型検出素子作製プロセスでは、導電性ペーストにより読み出しラインとの電氣的な接続を施しているが、本素子ではペーストにより点在する異常成長粒子と電極の電氣的な接触が懸念されたため、マイクロプローブシステムによる評価を行った。プローブによりダイオードと計測システムを接続すると、ノイズが増加することを前置増幅器出力から確認した。このため、十分なS/Nで α 線スペクトルの評価を行うことができなかった。ダイオードのリーク電流は、pAオーダーであり、自立型検出素子や市販のSi半導体検出器と同等であるため直接的な原因であるとは考えにくい。その他のノイズ増加の要因について現在調査中であり、令和4年度に検出特性の再評価を行う予定である。

疑似縦型検出素子構造では、異常粒子が電極に含まれるとリーク電流が著しく増加することが明らかになった。今回のように、個別の電極パターン形成で異常粒子を回避することも可能であるが、量産を視野に入れた場合、プロセスが複雑化するのは好ましくない。令和4年度はmm角の領域で異常成長粒子が発生しないような成長条件探索を行う。

3.2.2.4 検出素子の基板実装技術の開発

検出素子用ダイヤモンドの平滑化技術の開発として、単結晶ダイヤモンドの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を行った。調査は顕微鏡及びZygoを用いたラフネス評価とした。図3.2.2-25に、成長後、IBE処理後、スカイフ研磨後の様子を示す。また、表面ラフネス (Ra) は、成長後、IBE処理後、スカイフ研磨後でそれぞれ0.235、0.230、0.15 μm であった (図3.2.2-26)。

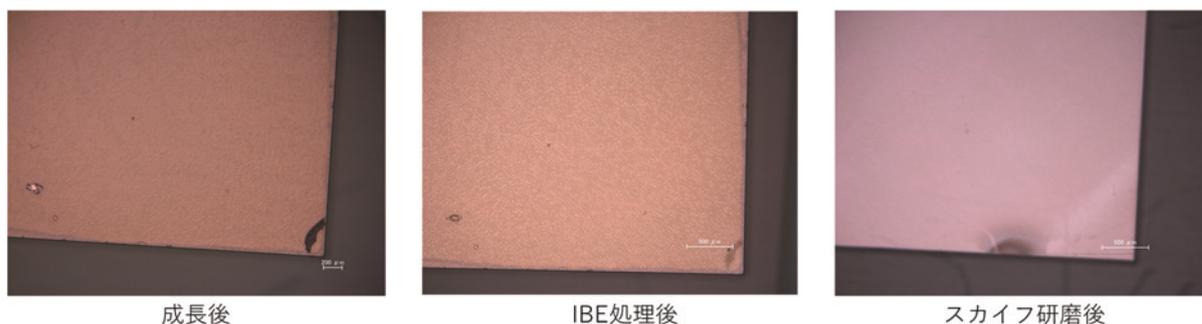


図 3.2.2-25 検出素子ダイヤモンドの結晶成長後、IBE処理後、スカイフ研磨後の様子

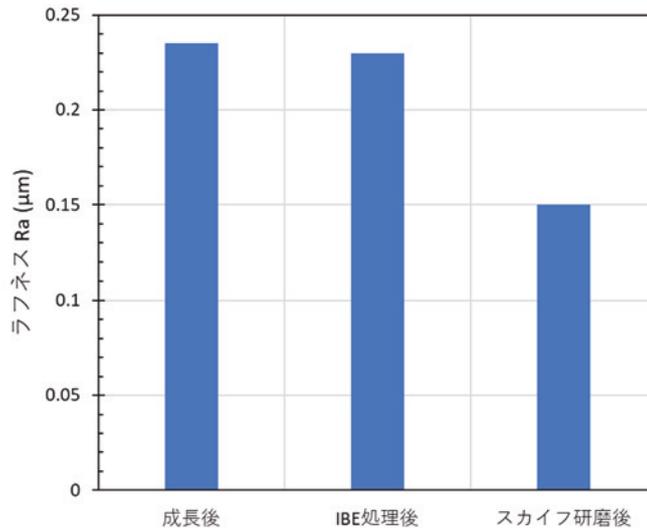


図 3.2.2-26 成長後、IBE 処理後、スカイフ研磨後の表面ラフネス

CVD 成長時に発生した表面の凹凸形態は IBE 処理では除去が難しく、スカイフ研磨を用いる必要があることがわかる。

令和 3 年度、名大で行った γ 線照射実験と検出素子のチャージアップ対策の結果、エネルギー補償型検出素子は概ね使う必要がないことを確認した。その結果から、5 mm 角のダイヤモンド自立膜の裏面に 2 mm 角の電極を 4 つ配置し、回路基板上に導電性ペーストで固定し、反対側はベタの 1 枚電極としてグランド側に落とし、その上に中性子・荷電粒子変換材料を載せる構造が第一優先となった。基板側に p+層を付ける場合は、p+層合成前に Ti などマスクを行い選択成長する方法を検討した。

3.2.3 まとめ

本開発項目は、以下の①による中性子検出素子の開発と②、③、④で行なう検出素子量産及び実装に向けた研究の 2 本立てである。中性子検出素子の開発に関しては、素子単体でほぼ 1 kGy/h での動作は確認できた。また、中性子検出素子の試作を行い中性子検出動作を確認した。今後は、次項目の結果で示す中性子検出素子感度を達成するように研究を進める。中性子検出素子の量産化に関しては、今後のリスク低減を見越して、高品質 CVD 単結晶から検出素子を開発する手法と、品質を問わない結晶から積層型ダイヤモンド検出素子を開発する手法の 2 種類を並行して進めている。前者は①の素子の量産化を進めるためのダイヤモンド基板開発であり、後者は量産化にすぐれ、かつ薄型化可能なため、薄型化が困難な自立膜に比べ γ 線バックグランドに対する耐性が強いことが利点である。この積層型ダイヤモンドを利用した手法に関しては、素子評価を行うところまで進展している。

① 自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

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した。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した。検出素子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した。検出素子

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た。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した。 γ 線影響低減の試みとして、エネルギー補償型検出素子を試作した。これらの検出素子に対し B_4C を付加することで中性子検出素子を試作した。製作したダイヤモンド単結晶自立膜に対し、カソードルミネッセンス法による評価後、検出素子を製作し「検出素子、計測要素の性能評価」で行う実験に供した。酸素添加合成は半導体不足の影響で開始時期が当初予定より遅れたが、酸素無添加条件と比べて表面形態のへこみを低減できる条件を見出した。酸素添加により、ホウ素不純物が低減する効果を SIMS を用いて確認した。エネルギー補償型検出素子ならびに B_4C を付加した中性子検出素子の試作も行い、 ^{252}Cf 線源中性子を用いた実験により動作を確認した。また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した。微細加工技術ではダイヤモンド基板上にホトリソグラフィにより Ni でパターンを切り、アニールによるエッチング条件を探索した。また、イオンビームエッチング法、反応性イオンエッチング法の適用可能性検討も進めた。

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

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応用を試みた。購入した CVD ダイヤモンド基板上にダイヤモンドをホモエピタキシャル成長し、成長層に対するカソードルミネッセンス測定を行った。部分的ではあるが、強い自由励起子再結合発光が観測される試料もあった。

③ 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発

令和 2 年度に北大と産総研と協力製作した積層型ダイヤモンド試料から検出素子を製作した。検出素子用に 5 mm 角以上の大型ダイヤモンドを用いた。産総研において積層型ダイヤモンド試料を合成し、北大において性能評価を行った。5 mm 以上の大型のダイヤモンド基板を使用したことによる影響かは不明であるが、漏れ電流が大きくなるケースも見られた。

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を継続し、ダイヤモンド素子に対する適用可能性を検討した。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「自立膜型ダイヤモンド中性子検出素子の開発」で合成したダイヤモンド単結晶を供した。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した。 γ 線照射試験結果等に基づき、北大・高エネ研で協議し、検出素子の仕様と基板上への実装に関する検討を進めた。基本的にエネルギー補償型を使用しなくてよい目途が立ったことと、p+層を使う場合は中性子・荷電粒子変換物質の付加は片面となることから、検出効率と必要検出素子数の検討なども議論した。また、平坦化が可能であるかを評価するため、成長ラフネスの大きいダイヤモンドにイオンビーム処理による加工を行い調査した。

3.3 検出素子、計測要素の性能評価

3.3.1 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）

① 検出素子の性能評価（再委託先：北大、名大、連携先：JAEA）

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 $^{10}\text{B}_4\text{C}$ 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、 α 線により性能を評価した。さらに名大 ^{60}Co 照射場で 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、JAEA 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。

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。

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、ガンマ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、 α 線を用い動作を確認した。 γ 線照射場において γ 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。

④ 臨界近接監視手法に関する検討（再委託先：名大）

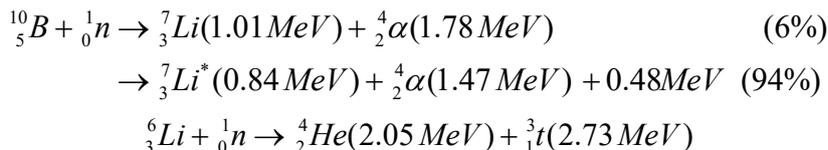
ダイヤモンド中性子検出器を用いて、1Fにおける燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視を行うための手法に関する検討を進めた。燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法として、現時点で候補として挙げている未臨界度測定手法についての問題点を抽出した。候補となっている測定手法の問題点を抽出するため、過去に国内施設で実施した未臨界実験のデータを再利用した検討を行った。中性子源増倍法による未臨界度測定を対象として、中性子計数率のオーダーを変化させた仮想的な数値実験を実施した。計数率が低くなるにつれて未臨界度推定結果の統計精度が悪化する問題点を抽出し、移動平均などのノイズ除去処理により問題点の改善が可能であ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

3.3.2 令和3年度実施内容及び成果

3.3.2.1 検出素子の性能評価

3.3.2.1.1 熱中性子コンバータのシミュレーション結果

ダイヤモンド中性子検出素子では、熱中性子コンバータによって非荷電粒子である中性子を高エネルギーの荷電粒子に変換し、それらを半導体ダイヤモンド検出素子に入射させる信号を取得することで中性子検出を行う。そのため、ここでは熱中性子コンバータの設計について述べる。熱中性子コンバータの候補としては、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応を引き起こす ^{10}B 、あるいは $^6\text{Li}(n, t)\alpha$ 反応を引き起こす ^6Li を含有する物質が挙げられる。これらの反応式を以下に示す。



どの熱中性子コンバータを採用するかは、検出素子の中性子感度を定める重要な要因となるため、複数の熱中性子コンバータ材に関して検討を行った。

熱中性子コンバータの役割としては、熱中性子を吸収し、高エネルギー荷電粒子を放出し、その荷電粒子で半導体に電荷キャリアを生成し、信号を誘起することである。このためには、放出された高エネルギー荷電粒子がダイヤモンド半導体検出素子の有感部まで到達する必要がある。加えて放出される高エネルギー荷電粒子は阻止能が比較的大きいため、その飛程も長くはない。つまり、コンバータ材を厚くしすぎても、放出される荷電粒子はダイヤモンド検出素子まで到達できないため、有効なコンバータ材厚さには最大値が存在する。これを超えて厚みが増すと、コンバータ材は逆に熱中性子の遮蔽材として働くために、検出素子の熱中性子感度としては減少していくことになる。このため、コンバータの材質のみならず、厚さに関する検討を行った。

加えて、本事業で想定している高ガンマ線量率場での中性子検出においては、付与エネルギー、すなわち信号波高の小さなガンマ線イベントが大量に発生するために、これらのパイルアップによるノイズ信号を除去できるように、信号弁別レベルを設定する必要がある。このノイズ信号のレベルは、検出素子の構造、信号処理回路系の設計にも依存するため、ここでは、信号弁別レベルが中性子感度に与える影響についても検討を行った。

熱中性子コンバータ材に関する検討は、モンテカルロシミュレーションコードPHITSを用いた、検出素子有感部内へのエネルギー付与を計算することにより行った。基本的な計算体系を図 3.3.2-1 に示す。

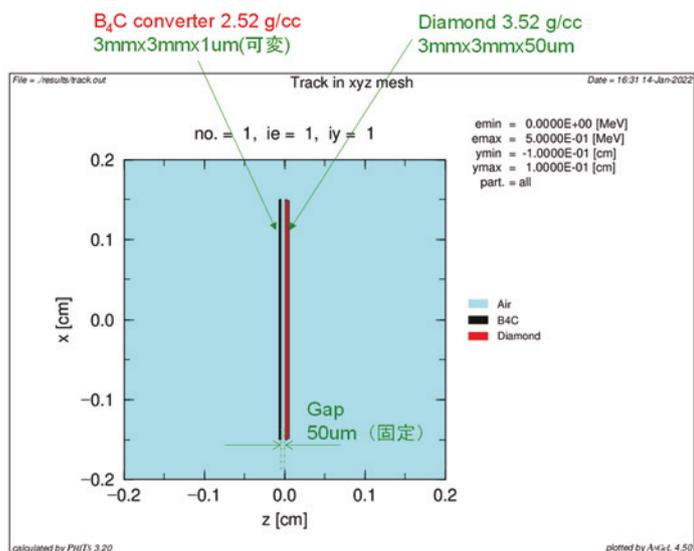


図 3.3.2-1 モンテカルロシミュレーションの計算体系 (コンバータの材質、厚みを適宜変更。)

コンバータ材としては、B含有物質である B_4C 、単体B、Li含有物質であるLiFおよび金属Liについて検討した。それぞれの物質の密度は、 B_4C : 2.52 g/cm^3 、単体B: 2.08 g/cm^3 、LiF: 2.64 g/cm^3 、金属Li: 0.534 g/cm^3 とした[3-19]。また、 ^{10}B 、 6Li の同位体比は95%濃縮とした。ダイヤモンド検出素子の寸法は、 $3\text{ mm}\times 3\text{ mm}\times 50\text{ }\mu\text{m}$ とし、熱中性子コンバータは、 $50\text{ }\mu\text{m}$ のギャップを設け、ダイヤモンド検出素子全体を覆えるように $3\text{ mm}\times 3\text{ mm}$ の面積とした。この寸法は、およそ中性子検出器の1検出素子の寸法であり、1検出素子当たりの検出感度を計算することとなる。照射した中性子のエネルギーは単色 25 meV で、周囲から等方的に照射を行った。一例として、コンバータに厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ の B_4C を用いた際に検出素子で得られる付与エネルギー分布を図3.3.2-2に示す。

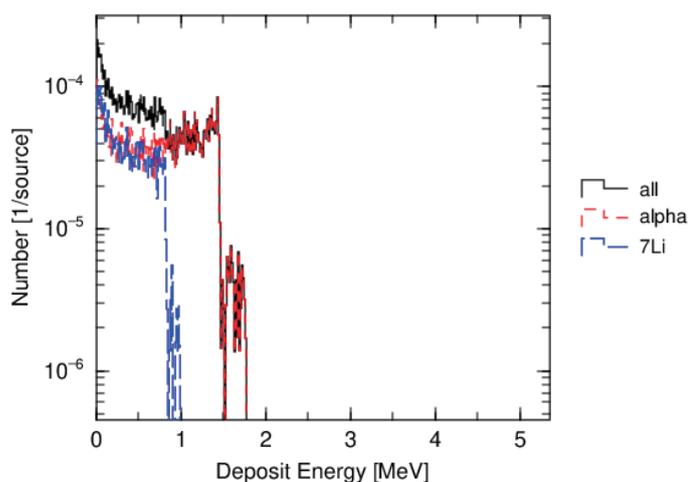


図 3.3.2-2 検出素子で得られる付与エネルギー分布
コンバータは厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ の B_4C

現実としては、付与エネルギーに対応した信号波高値が得られるため、図3.3.2-2は検出素子で得られる信号波高分布に相当する。検出素子のエネルギー分解能は非常に高いため、この信号波高分布は若干広がるのが想定されるものの、感度を評価する際の誤差は小さいと考えられる。実際に中性子イベントを抽出する際には、設定した信号波高弁別レベル以上の信号を中性子イベントとして計数するため、信号波高弁別レベル (Lower Level Discriminator: LLD) を変化させて、中性子感度の熱中性子コンバータ厚さ依存性を調べた。ここで、中性子感度は、検出素子を設置しなかった際のその場所の単位熱中性子束 ($1\text{ n/cm}^2/\text{s} = \text{nv}$) あたりの中性子計数率と定義した。

図 3.3.2-3、図 3.3.2-4、図 3.3.2-5、図 3.3.2-6 に、熱中性子コンバータ材に B₄C、単体 B、LiF、金属 Li を用いた際の、検出素子感度のコンバータ材厚さ依存性を示す。

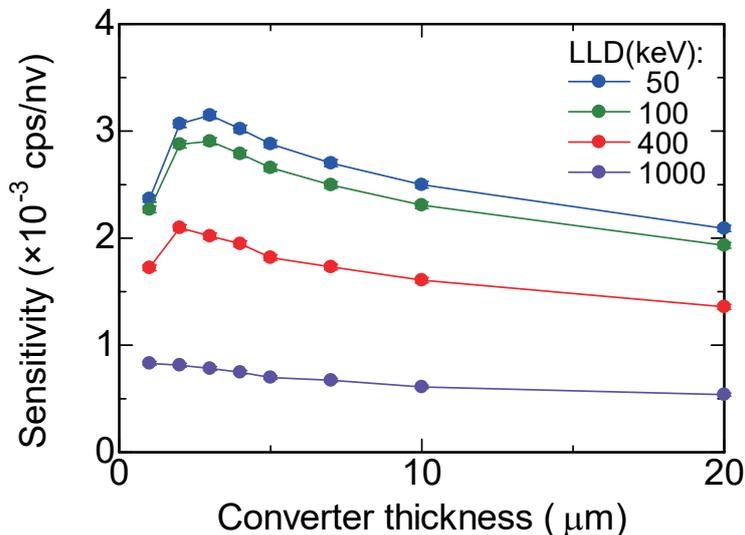


図 3.3.2-3 コンバータに B₄C を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性 (信号波高弁別レベルを変更して評価)

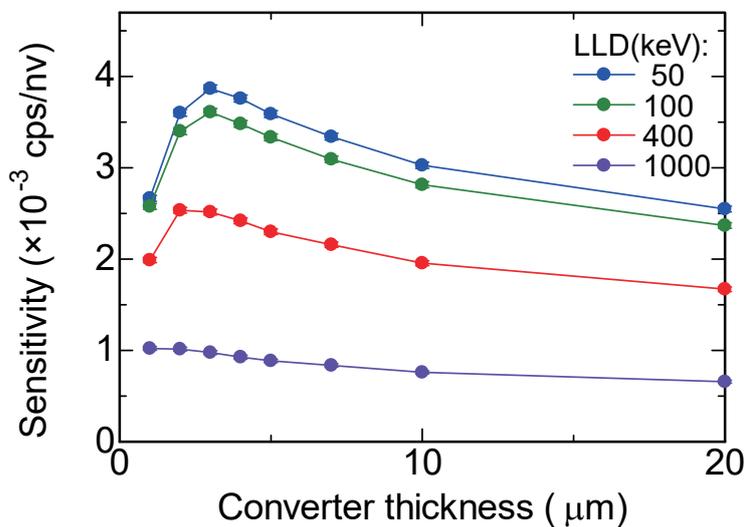


図 3.3.2-4 コンバータに単体 B を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性 (信号波高弁別レベルを変更して評価)

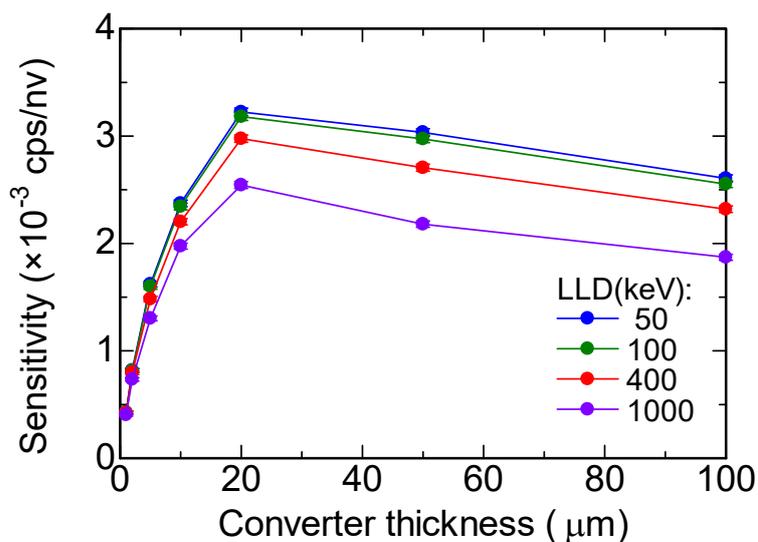


図 3.3.2-5 コンバータに LiF を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性 (信号波高弁別レベルを変更して評価)

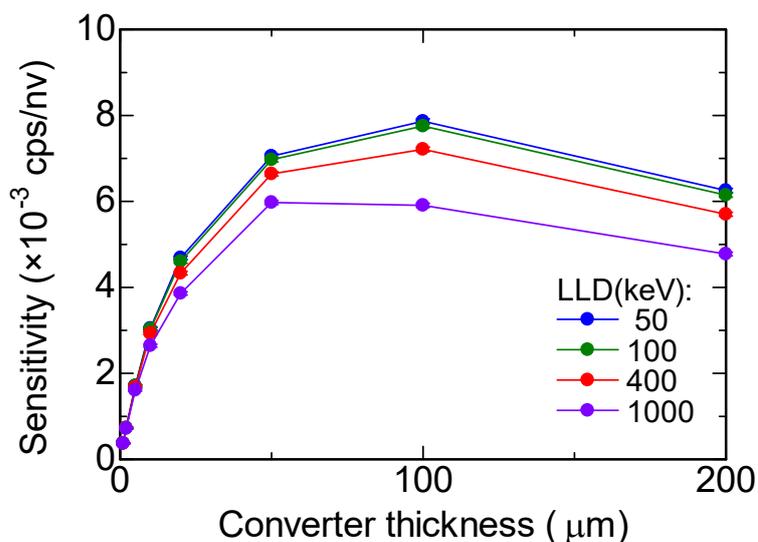


図 3.3.2-6 コンバータに金属 Li を用いた際の中性子検出感度のコンバータ厚さ依存性 (信号波高弁別レベルを変更して評価)

図 3.3.2-3 より、熱中性子コンバータとして B₄C を採用した際の最大の中性子感度は、およそ 3×10^{-3} cps/(n/cm²/s) (あるいは 3×10^{-3} cps/nv) と評価された。これは中性子検出器 1 素子当たりの感度であり、1 n/cm²/s 程度の熱中性子束の場合、目標とする数 cps という計数率を得るには、千個程度の検出素子が必要となることを意味している。また、信号波高弁別レベル LLD を 50 keV に設定した場合、コンバータ厚さ 3 μm で最大感度を

取り、以後、コンバータ厚さを厚くしていくと中性子感度は減少していく。これはコンバータ厚さを厚くすると、反応する ^{10}B の数が増加するため感度も増加していくが、厚くしすぎて放出される α 粒子、 ^7Li 粒子がダイヤモンド検出素子に到達しないため、検出感度は飽和傾向を示し、さらに厚くすると、逆に中性子の自己遮蔽により感度が減少に転じていることを示している。このような傾向は、他の熱中性子コンバータ材に関しても同様である。最高到達感度に関して言えば、金属 $\text{Li} > \text{LiF} > \text{B}_4\text{C}$ となっており、金属 Li を除く他の材質はほぼ同等の感度で $\sim 3 \times 10^{-3}$ cps/(n/cm²/s) となっている。熱中性子による $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応の断面積 3,800 barn が、 $^6\text{Li}(n, t)\alpha$ 反応の 940 barn と比べ、4 倍程度大きいにも関わらず、このような傾向になっているのは、 $^6\text{Li}(n, t)\alpha$ 反応で放出される荷電粒子のエネルギーが相対的に高いこと、阻止能が小さいことに由来している。

注目すべきは金属 Li では、他の材質の 2 倍程度の感度を示しているが、これは荷電粒子減速材としての金属 Li という材質が他の材質と比べ実効原子番号が低く阻止能が小さいためである。また、 ^{10}B 含有コンバータ材である B_4C 及び単体 B の場合、信号波高弁別レベル LLD を高く設定すると、著しく感度が減少することがわかる。一方、 ^6Li 含有コンバータ材である LiF 及び金属 Li では、信号波高弁別レベル LLD を高く設定しても、顕著な感度低下は起こらないことが確認された。これも、 $^6\text{Li}(n, t)\alpha$ 反応で放出される荷電粒子のエネルギーが高く、生成される信号波高値（付与エネルギー）も高いことに由来している。このことは、 Li 含有コンバータ材の方が、ノイズ耐性が高いことを意味している。

以上、熱中性子コンバータ材と中性子感度に関する検討を行った結果、最も高い感度を示し、ノイズ耐性も高いコンバータ材は金属 Li であった。感度の面では金属 Li の優位性が確認されたが、金属 Li の化学的な不安定性を考慮すると、コンバータ材を外気に触れない機構とする必要がある等、検出素子製作上のさらなる技術的障壁が存在している。短期の開発期間ということを加味すると、他の材質のほうが、化学的には安定で金属 Li のような技術障壁は低いと考えられ、現実的な選択肢と言える。ノイズ耐性という面を考慮すると、 B 含有コンバータと比して LiF は優れた特性を示し、有力な候補と 1 つであると考えられる。

3.3.2.1.2 北大で試作したダイヤモンド検出器の基本特性

図 3.2.2-6 で示したダイヤモンド自立膜を図 3.2.2-7 の構造で検出器化し、基本特性の評価を行った。図 3.3.2-7 に I-V 測定例、図 3.3.2-8 に C-V 測定例、表 3.3.2-1 に、 α 線誘導電荷分布測定結果に基づき、電荷収集効率ならびにエネルギー分解能測定結果を示す。

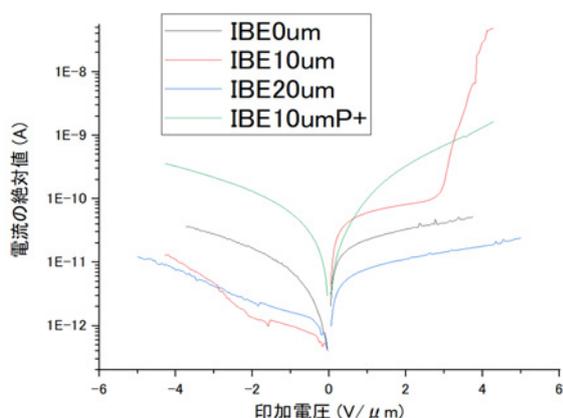


図 3.3.2-7 I-V 特性測定例

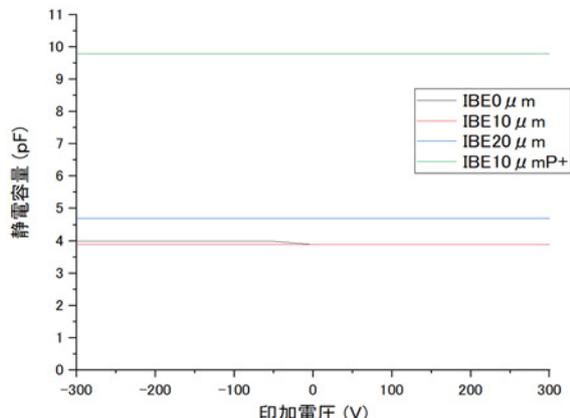


図 3.3.2-8 C-V 特性測定例

表 3.3.2-1 α 線誘導電荷分布測定の結果

【自立膜の名称】	電荷収集効率 (%)		エネルギー分解能 (%)	
	【電子】	【正孔】	【電子】	【正孔】
IBE0 μ m	99.8	99.0	0.820	0.472
IBE10 μ m	99.5	98.5	0.796	0.520
IBE10 μ mP+層合成	97.57	97.5	0.793	0.377
IBE20 μ m	98.6	97.5	0.871	0.471

3.3.2.1.3 北大における ^{252}Cf 中性子計測環境の整備

図 3.3.2-9 に示す北大製中性子検出器を使用して、JAEA 熱中性子校正場で熱中性子計測を行った結果を図 3.3.2-10 に示す。この結果に基づき、上記中性子検出器の検出効率を算出した。

北大では本事業初年度である令和 2 年度に ^{252}Cf 中性子源を購入しており、その中性子線源とポリエチレン減速材で測定体系を構築した。この系において検出効率のわかっている上記中性子検出器を使用して、図 3.3.2-11 に示すスペクトルを測定し、検出設置位置の中性子フラックスを算出した。今後は同様の体系を組んだ場合、誤差は一定程度あるが大まかな中性子検出効率を北大でも算出可能となった。

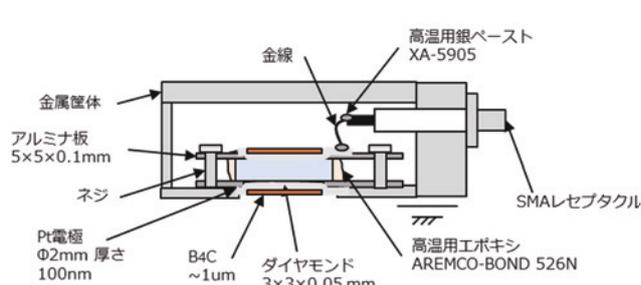


図 3.3.2-9 北大製中性子検出器の断面図

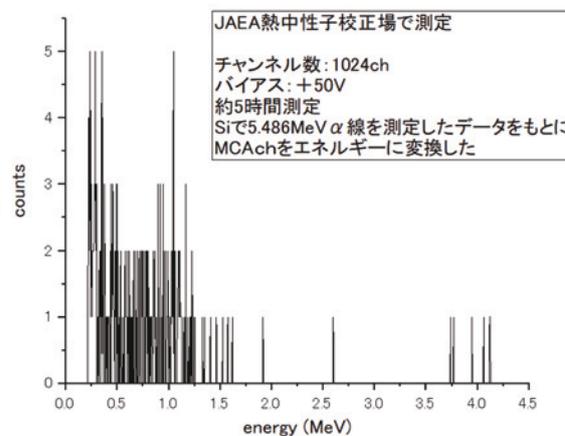


図 3.3.2-10 JAEA 熱中性子校正場における中性子計測例

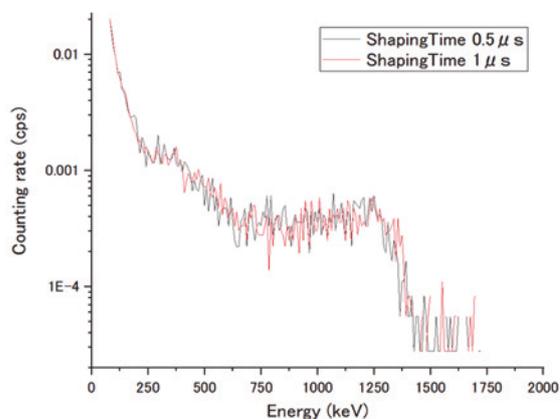


図 3.3.2-11 北大 ^{252}Cf を用いた中性子計測例

3.3.2.1.4 ダイヤモンド検出素子の γ 線影響評価結果

北大で作製した自立膜に対して、図 3.2.2-7 の構造で検出素子を作製した。名大 ^{60}Co 照射施設において、名大・北大が共同実験を行い、各 γ 線線量率環境における北大製ダイヤモンド検出素子の α 線応答関数を図 3.3.2-12 に示した。金属電極を両面ショットキー構造からオーミック+ショットキー構造に変更したことで、約 850 Gy/h で動作するダイヤモンド検出素子の作製に成功した。比較のために市販の単結晶ダイヤモンドを購入し、同一構造の検出素子を作製した。この検出素子に対しても γ 線照射試験を行った。結果を図 3.3.2-13 に示した。こちらの検出素子は約 30 Gy/h の線量率で動作不良を起こした。これは検出素子構造が同一であることから、結晶品質の差が原因だと思われる。

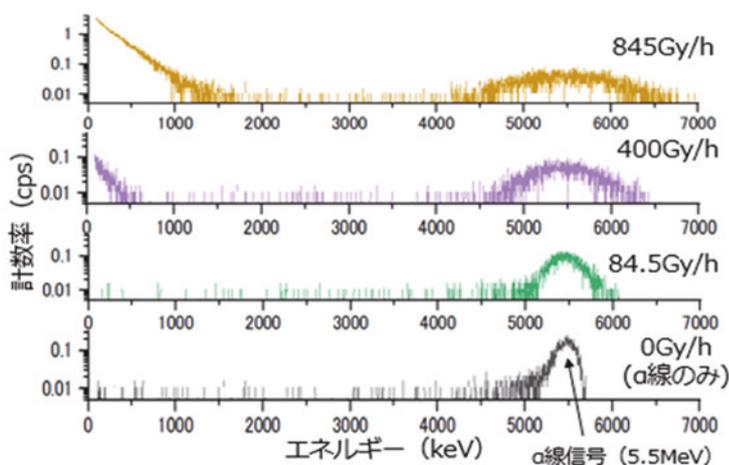


図 3.3.2-12 各 γ 線線量率環境における北大製ダイヤモンド検出器の α 線応答関数 (厚さ 60 μm)

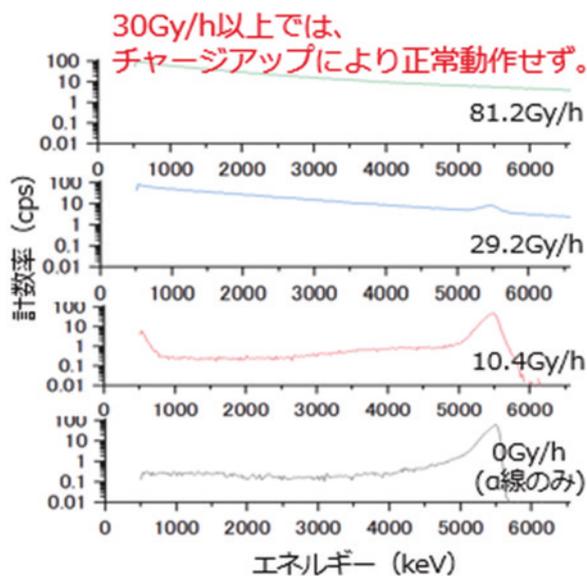


図 3.3.2-13 市販ダイヤモンド単結晶から同一構造で製作した検出素子の各 γ 線線量率環境における α 線応答関数
Element Six 製エレクトロニックグレード (厚さ 50 μm)

次に、イオンビームエッチング（IBE）法で基板側成長層を 20 μm 除去した自立膜を用いた検出素子と、図 3.3.2-12 で結果を示した検出素子のそれぞれに対して、1 時間の γ 線照射試験（線量率：約 850 Gy/h）を行った。結果を図 3.3.2-14、図 3.3.2-15 に示す。

IBE 加工していない検出素子は時々急激な信号を検出しており、これはチャージアップ起因の放電が原因だと考えられる。一方、IBE 加工した検出素子は信号量が非常に安定しているが、IBE 加工していないものに比べて常にカウント量が多いことがわかる。

このような信号量の差は両ダイヤモンドの厚さがほとんど同じであることから、チャージアップによるものだと考えられる。そして、チャージアップによる信号の個体差は結晶品質の違いによるものであると思われるため、今後合成条件の改良によって結晶品質を向上させる必要がある。

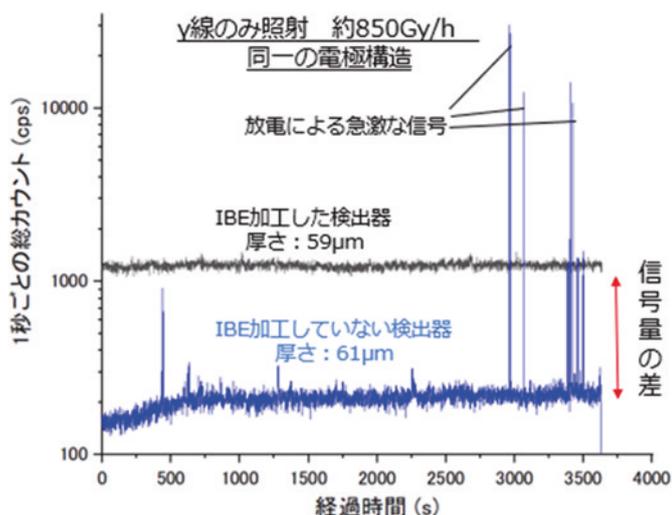


図 3.3.2-14 IBE20 μm を行った検出素子（黒）と図 3.3.2-12 で示した検出素子（青）の経過時間による 1 秒間の総カウント（Counts/s）の変化

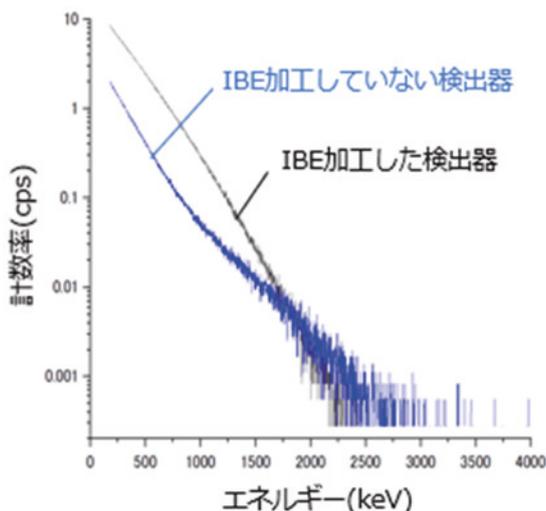


図 3.3.2-15 IBE20 μm を行った検出素子（黒）と図 3.3.2-12 で示した検出素子（青）の γ 線応答関数の比較

3.3.2.2 集積回路等の耐放射線性試験

北大が所有している高強度 X 線照射装置を使用し、開発した集積回路の耐放射線性能を評価した。照射時セットアップを図 3.3.2-16 に示す。集積回路には電源や動作させるための基準クロック等を入れている状態で、X 線照射を行なっている。X 線はγ線と比較しエネルギーが低いため、集積回路の表面を覆っているモールド材の影響が大きいいため、評価集積回路の表面からはモールド材を除去した試料か、もしくはモールド材を使用せず、評価基板に直接ワイヤーボンディングされた試料を使用している。照射前後及び照射中には試料の電流値、電源電圧及びオシロスコープによる信号のモニターを行い変化があるかどうかを確認し、詳細試験は高エネ研へ持ち帰って行なった。

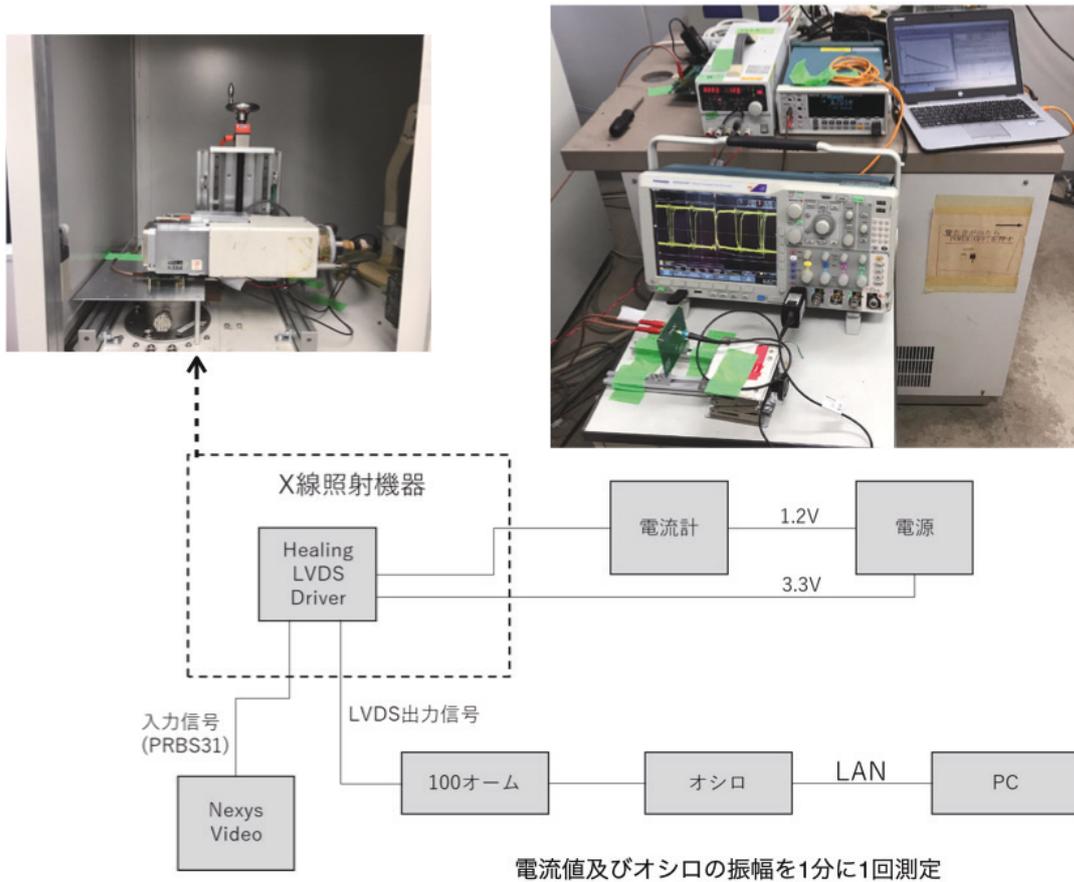


図 3.3.2-16 集積回路耐放射線試験セットアップ

照射直後及び照射中の電流電圧特性に関して問題が起こった試料はなく、全て高エネ研に持ち帰って詳細測定を行った。図 3.3.2-17 は、長距離高速データ転送を行うための集積回路の照射による影響を測定した例で、照射量が増加するに従い信号の振幅が低下しているのがわかる。しかしながら、照射後低下した振幅でも、信号規格を満たしており使用可能であることがわかった。更に、外部から与える電圧を調整することで、照射前の振幅に戻すことも可能であったため実用上の問題点は全くない。応答速度についても同様に評価したが変化は認められなかった。これにより、評価した集積回路は 1 MGy までの放射線耐性を十分に持っていることが

わかる。今後は、どの程度まで安定して動作するかを詳細評価することで、実機に応用した場合の装置安定性の観点から研究を進める。

照射量に対する信号振幅及び応答速度の変化

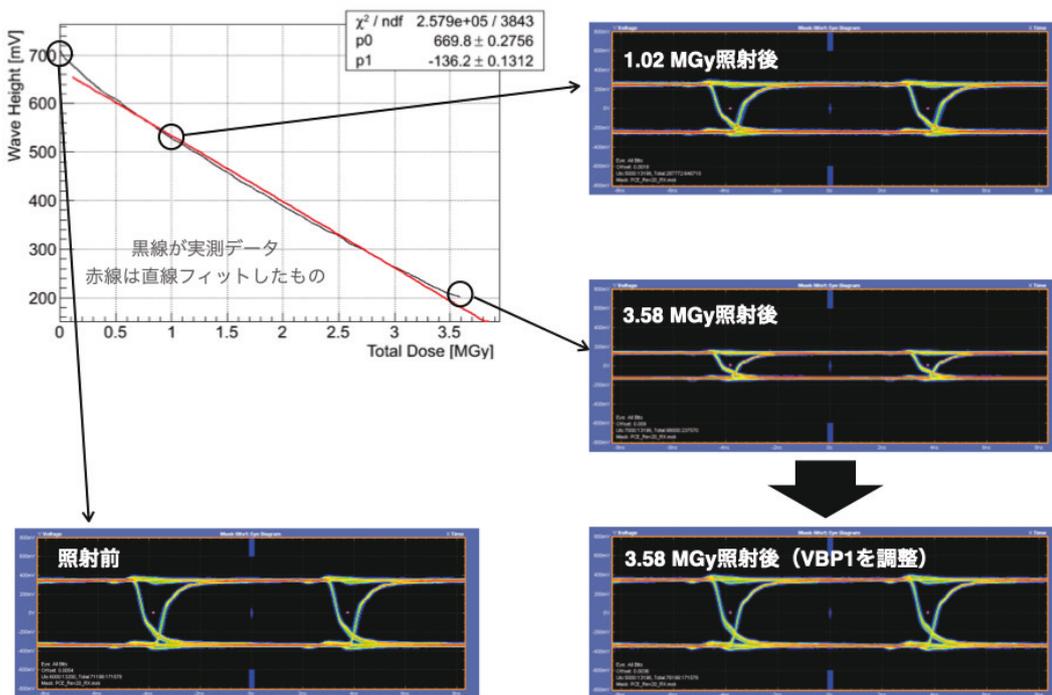
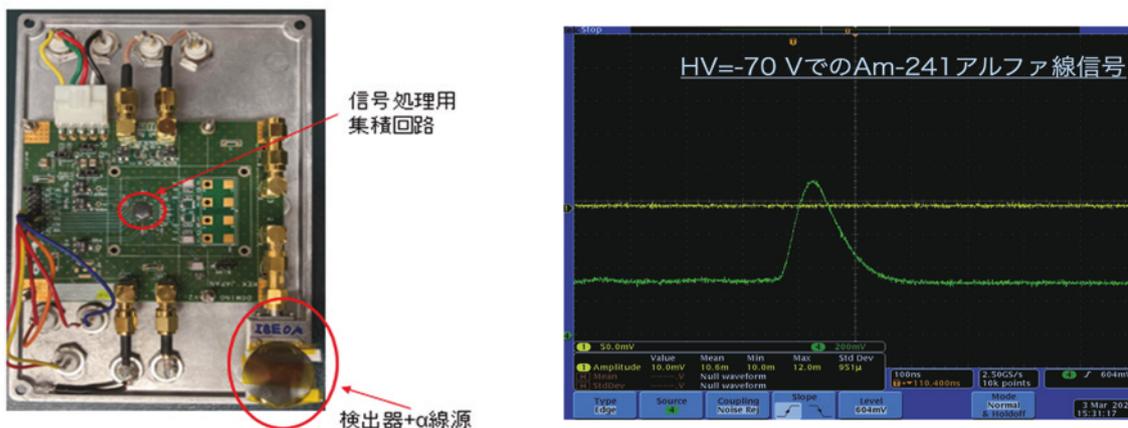


図 3.3.2-17 長距離高速データ転送を行うための集積回路の照射による影響

3.3.2.3 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価

北大製ダイヤモンド検出素子と高エネ研製フロントエンド集積回路 (DOMINO2) を組み合わせて 5.5 MeV α 線信号を確認した。接続した計測要素の様子を図 3.3.2-18 に示す。



ダイヤモンド検出器+フロントエンド集積回路の接続時の様子

フロントエンド集積回路から出力された 5.5 MeV α 線信号

図 3.3.2-18 ダイヤモンド検出素子とフロントエンド集積回路を接続した様子と、フロントエンド集積回路から出力された 5.5 MeV α 線信号

図 3.3.2-18 で作製した検出要素+フロントエンド集積回路に対して、 γ 線照射試験を行った。 γ 線照射施設として、名大 ^{60}Co γ 線照射施設と九州大学 ^{60}Co γ 線照射施設を用いた。名大と九州大学のそれぞれの γ 線照射試験時の様子を、図 3.3.2-19 に示した。約 300 Gy/h の γ 線線量率環境における、ORTEC 社製の回路と高エネ研製フロントエンド集積回路それぞれの α 線応答関数を図 3.3.2-20 に示した。図 3.3.2-20 から、シェーピングタイム：1 μs の ORTEC 回路に比べて、シェーピングタイム：0.1 μs の高エネ研製フロントエンド集積回路は大幅に γ 線影響を低減できることがわかった。

また、九州大学の γ 線照射施設を用いて、84 Gy/h~645 Gy/h の γ 線線量率で γ 線応答関数がどのように推移するかを評価した。結果を図 3.3.2-21 に示す。図 3.3.2-21 から γ 線線量率が増加するにつれて、 γ 線影響が増加していることがわかる。原因として、検出素子内のチャージアップ起因の放電や、 γ 線信号のピルアップが考えられる。

645 Gy/h の γ 線線量率における γ 線応答関数と北大で測定した ^{252}Cf 中性子の応答関数を比較した結果を図 3.3.2-22 に示した。この図から、厚さ 50 μm の検出素子を使用する場合、中性子信号の半分程度が γ 線バックグラウンドと区別できないことがわかる。

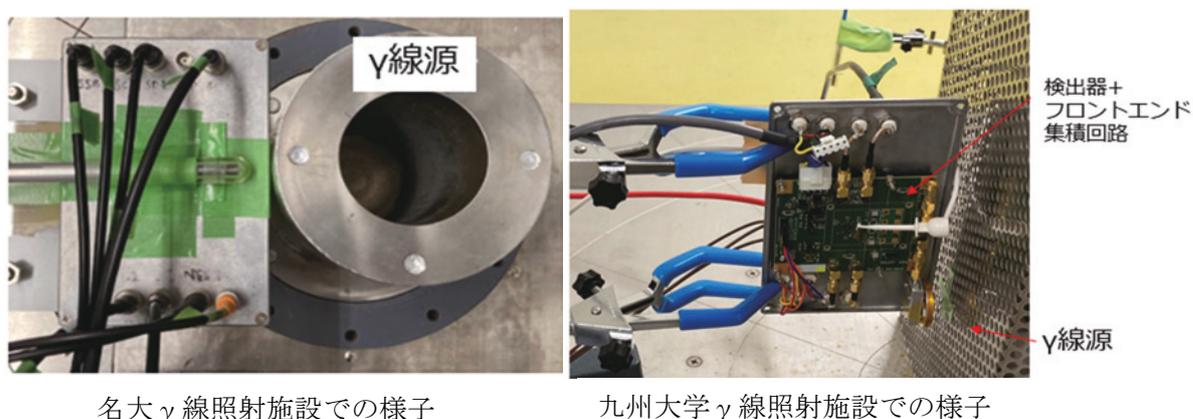


図 3.3.2-19 ダイヤモンド検出素子+フロントエンド集積回路の γ 線照射試験時の様子

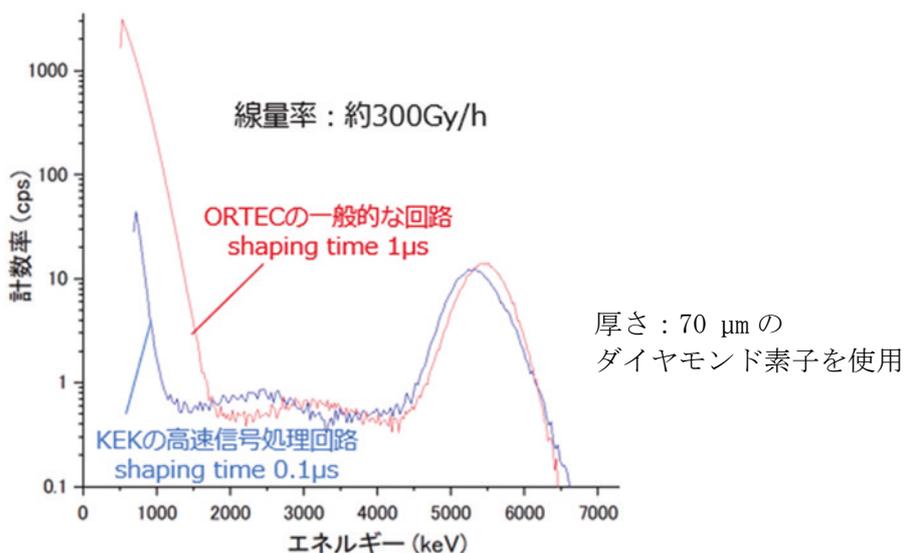


図 3.3.2-20 約 300 Gy/h の γ 線線量率環境における、ORTEC 社製の回路と高エネ研製フロントエンド集積回路それぞれの α 線応答関数の比較（名大 γ 線照射施設を使用）

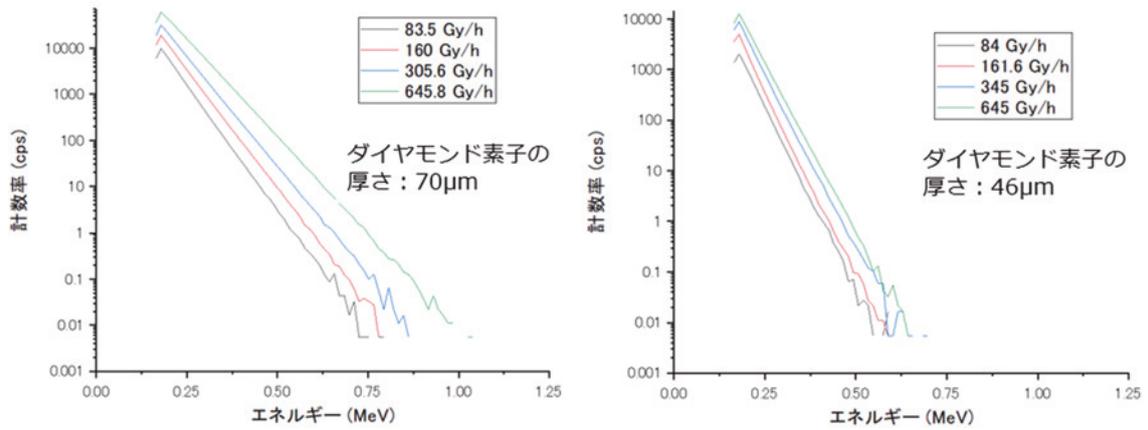


図 3.3.2-21 北大製ダイヤモンド検出素子+高エネ研製フロントエンド集積回路の各 γ 線線量率における γ 線応答関数の比較
(左：厚さ 70 μm の検出素子、右：厚さ 46 μm の検出素子)

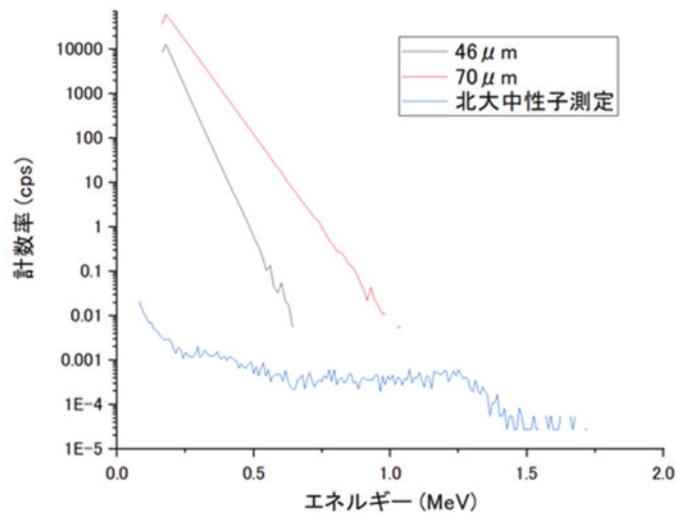


図 3.3.2-22 北大製ダイヤモンド検出素子+高エネ研製フロントエンド集積回路の線量率：645 Gy/h の γ 線環境における γ 線応答関数と北大で計測した中性子信号の比較
(赤：厚さ 70 μm の検出素子、黒：厚さ 46 μm の検出素子、青：北大で計測した中性子信号)

3.3.2.4 臨界近接監視手法に関する検討（再委託先：名大）

3.3.2.4.1 未臨界度測定手法の概説

燃料デブリ取り出し作業における臨界近接監視手法に関する検討をするにあたって、まずは、これまでに提案された各未臨界度測定手法の概要について説明する[3-3]。これまでに提案された各未臨界度測定手法は大きく分けて、以下の3つの区分に分けることができる。

- ① 静的手法：定常状態に達した中性子計数率の測定結果から未臨界度を推定する手法。
例えば、中性子源増倍法[3-4]、指数実験法*[3-5]など。
- ② 動的手法：過渡変化時における中性子計数率の時間変化から、未臨界度を推定する手法。
例えば、逆動特性法（反応度計の測定原理）[3-6]、パルス中性子法*[3-7][3-8]、ソースジャーク法*[3-9]など。
- ③ 炉雑音解析手法：中性子計数の時間的揺らぎの情報から未臨界度を測定する手法。
例えば、Feynman- α 法[3-10]、Rossi- α 法[3-11]など。

なお上述において、手法名の後にアスタリスク*がつけられた手法については、測定体系に外部中性子源（Cf 中性子源やパルス中性子源）を持ち込む必要がある手法（アクティブ法）であることを示している。

上述した各未臨界度測定手法にはそれぞれ利点と欠点があるため、状況に応じて適切な手法を使い分ける必要がある。

燃料デブリ取り出し作業における臨界近接監視手法について考えた場合、燃料デブリが存在する体系に外部中性子源を持ち込むようなアクティブ法は適用し難いと考えられる。すなわち、ドル単位の未臨界度絶対値を測定可能なパルス中性子法（面積比法）やソースジャーク法といった、外部中性子源の時間変化に基づいた動的手法を適用することは困難であると考えられる。従って、適用可能な未臨界度測定法としては、基本的には燃料デブリ内に存在する固有中性子源（主に²⁴⁴Cmなど自発核分裂核反応など）を活用したパッシブ法に基づいた手法が候補として挙がるかたちとなる。

また、燃料デブリが存在する体系は、その幾何形状及びデブリ中の核種組成について詳細な情報が判明していないため、事前の数値解析により一点炉動特性パラメータ（中性子生成時間 Λ 、即発中性子寿命 ℓ 、実効遅発中性子割合 β_{eff} ）や、燃料デブリに内在している固有中性子源の実効的な中性子源強度を推定する際には、それらパラメータ推定結果には不確かさが生じることとなる。従って、上述したパラメータが必要となる測定手法、例えば、逆動特性法を考えた場合には、これらパラメータの不確かさが未臨界度推定結果に与える影響評価が必要となる。

以上で述べた状況も踏まえた上で、燃料デブリ取り出し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[3-12]。

- ① 取り出し作業開始前：炉雑音解析手法（Feynman- α 法）[3-10]
- ② 取り出し作業中：中性子源増倍法[3-4]

取り出し作業開始の定常状態において中性子検出時刻情報の時系列データ（炉雑音）を測定し、Feynman- α 法などの炉雑音解析手法を用いることで、即発中性子減衰定数 α と呼ばれる量を得ることができる。ここで、即発中性子減衰定数 α とは、体系内に投入された1個の中性子を起点とした中性子束（即発中性子成分）が $1/e$ に減少するまでの時間の逆数を表す時定

数である。即発中性子減衰定数 α と未臨界度 $-\rho$ （あるいは実効中性子増倍率 k_{eff} ）の間には、一点炉動特性パラメータを介して、以下のような関係がある。

$$\alpha \approx \frac{\beta_{\text{eff}} - \rho}{\Lambda} = \frac{1 - (1 - \beta_{\text{eff}})k_{\text{eff}}}{\ell} \quad (3.3.4-1)$$

$$-\rho \equiv \frac{1}{k_{\text{eff}}} - 1 \quad (3.3.4-2)$$

$$\Lambda \equiv \frac{\ell}{k_{\text{eff}}} \quad (3.3.4-3)$$

以上より、例えば、H/U-235 比を変動させた組成条件で一点炉動特性パラメータを数値解析により、あらかじめ評価しておけば、(3.3.4-1)式に基づくことで、取り出し作業開始前の基準状態で測定された即発中性子減衰定数 α_0 から、基準状態における未臨界度 $-\rho_0$ （あるいは基準状態における実効中性子増倍率 $k_{\text{eff},0}$ ）を推定することができる。

続いて、取り出し作業中において、中性子計数率 P (cps)の時間変化を連続的に測定したとする。ここで、中性子源有りの未臨界増倍体系において、定常状態に達した中性子計数率 P の大きさは、体系内に存在する中性子源強度 S に比例し、未臨界度 $-\rho$ に反比例した値となる。

$$P \approx \frac{\varepsilon S \Lambda}{-\rho} = \frac{\varepsilon S \ell}{1 - k_{\text{eff}}} \quad (3.3.4-4)$$

(3.3.4-4)式において ε は検出効率を表す。例えば、取り出し作業開始前の基準状態において中性子計数率 P_0 を測定しておけば、炉雑音解析手法により、 $\varepsilon S \ell$ の値を以下のように校正できる。

$$\varepsilon S \ell \approx (1 - k_{\text{eff},0})P_0 \quad (3.3.4-5)$$

また、1回の取り出し作業が終了した後、十分時間が経過した後の中性子計数率 P について、 $\varepsilon S \ell$ の値は一定で、実効中性子増倍率 k_{eff} のみが変化すると仮定する。この時、①基準体系における計数率と、②1回の取り出し作業後の計数率の比 P_0/P を取ることによって、以下の式により1回の取り出し作業後の実効中性子増倍率 k_{eff} を推定することができる。

$$k_{\text{eff}} \approx 1 - \frac{P_0}{P}(1 - k_{\text{eff},0}) \quad (3.3.4-6)$$

なお、(3.3.4-6)式より、計数率比 P_0/P には以下の関係があることがわかる。

$$\frac{P_0}{P} \approx \frac{1 - k_{\text{eff}}}{1 - k_{\text{eff},0}} \quad (3.3.4-7)$$

すなわち、(3.3.4-7)式からわかるように、1 回取り出し作業後の計数率 P が非常に大きくなり、基準体系との計数率比 P_0/P がゼロに近づいた場合には、 $k_{\text{eff}} \approx 1$ の臨界状態に漸近したと判断できる。このように、基準体系との計数率比 P_0/P を調べることで臨界近接を判断することができ、この方法は逆増倍法と呼ばれている。

3.3.2.4.2 即発中性子減衰定数に対する逆増倍法の応用

3.3.2.4.1 にて説明したように、燃料デブリ取り出し作業における臨界近接監視手法の候補として、炉雑音解析手法と中性子源増倍法を組み合わせた手法がこれまでに提案されている。ただし、上述した方法の場合、基準状態における未臨界度 $-\rho_0$ （あるいは基準状態における実効中性子増倍率 $k_{\text{eff},0}$ ）の推定結果が必要であり、事前の数値解析によって一点炉動特性パラメータを推定しておく必要がある。燃料デブリ取り出し作業中において、ある程度の測定時間をかけて炉雑音測定が実施でき、即発中性子減衰定数 α が測定できたとする。この場合には、以下で述べるような方法論により、事前に数値解析を実施することなく、中性子検出の測定結果のみからドル単位の未臨界度 $-\rho/\beta_{\text{eff}}$ を概算できる可能性がある。

例えば、横軸を即発中性子減衰定数 α の測定値、縦軸を中性子計数率 P として測定結果を図示すると、図 3.3.2-23 a) のような形状となる。(3.3.4-1)式、(3.3.4-4)式からわかるように、未臨界が深くなるほど (k_{eff} がゼロに近づき、未臨界度 $-\rho$ が大きくなるほど)、即発中性子減衰定数 α は大きくなり、中性子計数率 P は減少する。逆に、未臨界が浅くなる (k_{eff} が 1 に近づき、未臨界度 $-\rho$ が小さくなるほど)、即発中性子減衰定数 α は小さく、中性子計数率 P は増加する。しかし、測定結果を図 3.3.2-23 a) のように整理した場合には、取り出し作業時における未臨界度がどの程度の値なのか概算することが一見容易ではない。

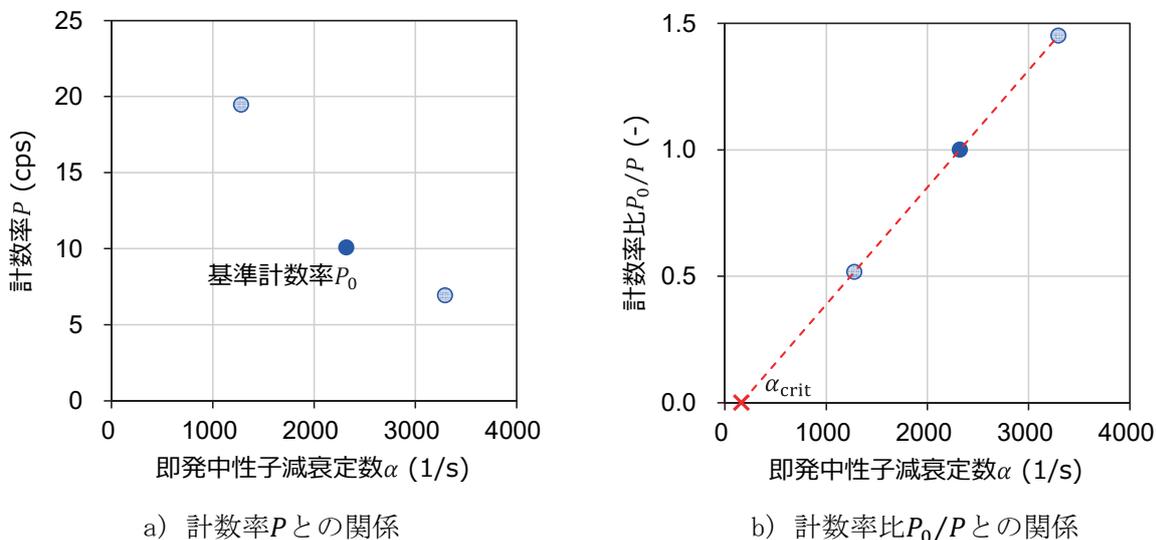


図 3.3.2-23 即発中性子減衰定数と中性子計数率の関係

そこで、図 3.3.2-23 a) の結果に対して、逆増倍法を応用することを考える。例えば、取り出し作業開始前の基準状態で測定した中性子計数率 P_0 を用いて、縦軸を計数率比 P_0/P として図示すると図 3.3.2-23 b) のような形状となる。ここで、取り出し作業中において数点測定した α と P_0/P の結果に基づいて、 $P_0/P = 0$ となるような即発中性子減衰定数 α_{crit} を外挿して

推定できたとする。(3.3.4-7)式からわかるように、 $P_0/P = 0$ の点は臨界状態 ($k_{\text{eff}} = 1$) に対応するため、外挿して推定した α_{crit} は、(3.3.4-1)式に基づくことで、以下の関係を満足する量であることがわかる。

$$\alpha_{\text{crit}} = \frac{\beta_{\text{eff}}}{\ell} \approx \frac{\beta_{\text{eff}}}{\Lambda} \quad (3.3.4-8)$$

このように逆増倍法を応用することで、実際の測定を通じて臨界状態における即発中性子減衰定数 α_{crit} を求めることができれば、以下の式 (Simmons-King 法) により、ドル単位の未臨界度 $-\rho/\beta_{\text{eff}}$ を推定することができる[3-8]。

$$\frac{-\rho}{\beta_{\text{eff}}} \approx \frac{\alpha}{\alpha_{\text{crit}}} - 1 \quad (3.3.4-9)$$

(3.3.4-9)式に基づくことで、図 3.3.2-23 のように、測定され蓄積された中性子検出情報データから、事前に一点炉動特性パラメータの数値解析を行うことなく、図 3.3.2-24 で示したようにドル単位の未臨界度 $-\rho/\beta_{\text{eff}}$ を概算することができる。

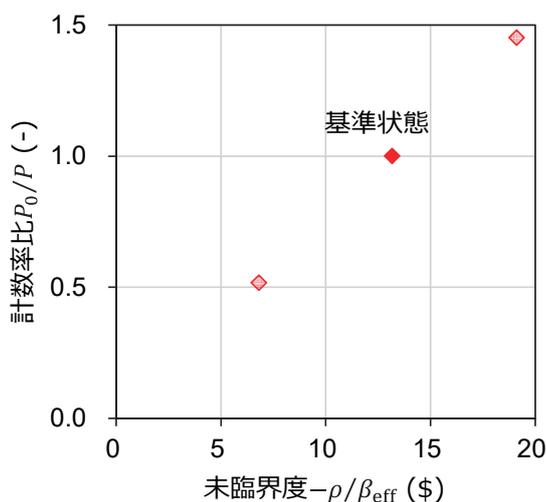


図 3.3.2-24 即発中性子減衰定数に対する逆増倍法の応用例

3.3.2.4.3 Feynman- α 法に関する検討

3.3.2.4.1、3.3.2.4.2 で説明したように、燃料デブリ内に存在する内在中性子源を活用したパッシブ法による未臨界度測定手法として、中性子源増倍法 (逆増倍法) と炉雑音解析手法 (Feynman- α 法) を組み合わせた手法が候補として挙げられる。令和 2 年度の検討において、中性子源増倍法に関する検討を実施済みである[3-13]。そこで、令和 3 年度の検討では、炉雑音解析手法の 1 つである Feynman- α 法に関して検討を行うこととした。

まず、Feynman- α 法 (分散対平均法) の概要について説明する。定常状態の炉心において、ある一定の時間幅 T で中性子計数の測定を連続的に N 回実施し、中性子検出数の時系列データ ($C_1(T), C_2(T), \dots, C_N(T)$) を得たとする。こうして得られた時系列データの標本平均 $\mu(T)$ と不偏分散 $\sigma^2(T)$ を用いて、中性子相関量 $Y(T)$ を以下のように定義する。

$$Y(T) \equiv \frac{\sigma^2(T)}{\mu(T)} - 1 \quad (3.3.4-10)$$

$$\mu(T) \equiv \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N C_i(T) \quad (3.3.4-11)$$

$$\sigma^2(T) \equiv \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N (C_i(T) - \mu(T))^2 \quad (3.3.4-12)$$

仮に、核分裂連鎖反応が全く生じていない場合には、ランダムに中性子が検出されるため、 $C_i(T)$ の頻度分布はポアソン分布に従うこととなり、中性子相関量 $Y(T) = 0$ となる(分散 $\sigma^2(T)$ と平均 $\mu(T)$ が等しくなる)。一方、未臨界増倍体系において中性子検出を行った場合には、同じ核分裂連鎖反応の家系に属する中性子を検出する場合があるため、検出された中性子の間には核分裂連鎖反応に起因した相関が生じる。すなわち、 $\sigma^2(T) > \mu(T)$ となるため、(3.3.4-10)式で定義された中性子相関量 $Y(T)$ が $Y(T) > 0$ となる。Feynman- α 法では、検出時間幅 T を変えて中性子相関量 $Y(T)$ の変化を調べることにより、炉雑音測定結果から即発中性子減衰定数 α を求めることができる。

従来のFeynman- α 法では、波高弁別などにより、あらかじめ中性子のみを検出した炉雑音測定結果に対して中性子相関量 $Y(T)$ を分析することが多い。近年の研究[3-14]、[3-15]において、中性子-ガンマ線検出数を対象としたFeynman- α 法の理論式導出に関する検討もなされている。また、BGO検出器を利用して、核分裂連鎖反応に起因して放出される γ 線を主として検出した炉雑音測定[3-16]の場合には、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α が推定できる可能性も示されている。ただし、燃料デブリ取り出し時の状況を考えた場合には、体系内に残存する核分裂生成物(Cs-137など)起因の γ 線バックグラウンド成分が多い状況であり、核分裂連鎖反応に起因した γ 線の測定は容易ではないと考えられる。また、検出信号のn/ γ 弁別をする際に、波高弁別の閾値を調整することにより、炉雑音測定結果に含まれる γ 線検出割合を低減できることはできるが、中性子線に対する検出効率が低下することとなり、結果として、統計的に有意な中性子相関量 $Y(T)$ を検知することが困難となる。そこで、令和3年度の検討では、炉雑音測定結果に含まれる γ 線起因のノイズがどれだけの割合であれば、Feynman- α 法を適用することが可能なか明らかにすることを目的として、以下で述べる検討を実施した。

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炉雑音測定データ[3-17]を再活用することを試みた。この実験では、外部中性子源の無い原子炉停止時の未臨界炉心(炉心平均U-235濃縮度5.4w%)について、炉心周りのポリエチレン反射体領域内に設置された ^3He 検出器により中性子検出時刻の時系列データが測定されている。なお、ウラン燃料板内に存在する微弱な内在中性子源(^{238}U の自発核分裂反応、Uの α 崩壊と ^{27}Al による (α, n) 反応)を種火とした未臨界増倍により、中性子計数率として約4.4 cpsが維持された条件で長時間の炉雑音測定データが取得されている。ただし、過去に取得した炉雑音測定結果はあらかじめn/ γ 弁別済みであるため、 γ 線ノイズの影響につい

て直接検討することはできない。そこで本検討では、代替的な数値実験として、過去に取得した炉雑音測定結果に対して、仮想的にポアソンノイズを加えて検討を実施することとした。なお、本仮想数値実験では、以下の条件を仮定することとした。

- ① 中性子の検出効率としては、過去の炉雑音測定時に使用した ^3He 検出器に相当するオーダーである仮定した。
- ② 核分裂生成物起因の γ 線ノイズについては、ポアソン分布に従うノイズとみなす。ここで、 γ 線ノイズを模擬したポアソンノイズの大きさについては、 γ 線計数/中性子計数の割合 (γ/n 割合) を変化させて影響評価を行うこととした。
- ③ Feynman- α 法の分析に使用した炉雑音の測定時間は1時間とした。

γ/n 割合を0から100まで変化させた仮想炉雑音測定結果に対して、moving block bootstrap法を適用して求めた中性子相関量 $Y(T)$ の分析結果を図 3.3.2-25 に示す。なお図 3.3.2-25 において、 Y 値のエラーバーは、moving block bootstrap 法によって推定した Y 値の統計的不確かさ (1シグマの標準偏差 σ_Y) を図示している。

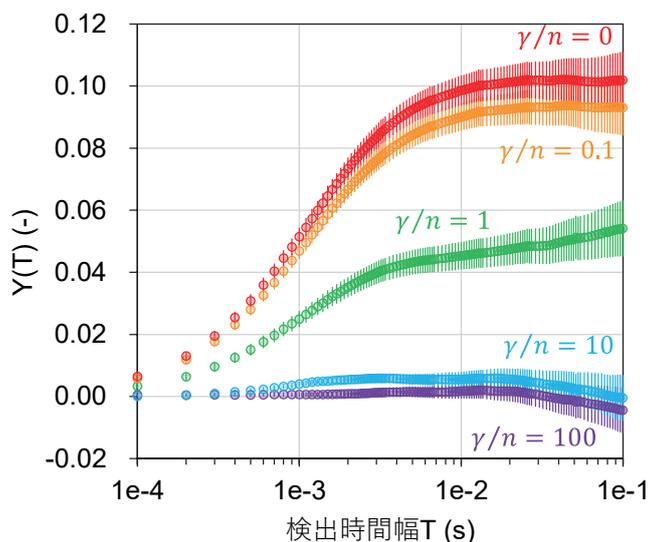


図 3.3.2-25 γ 線計数/中性子計数の割合が中性子相関量に与える影響

図 3.3.2-25 からわかるよう γ/n 割合が増加するにつれて、 Y 値の大きさが減少することがわかる。これは、 γ/n 割合の増加によって、炉雑音測定結果に含まれるポアソンノイズの寄与が増加し、分散 $\sigma^2(T)$ と平均 $\mu(T)$ の差が小さくなり、 Y 値の大きさがゼロの方向に近づくためであると考えられる。

一方、統計的不確かさ σ_Y の大きさについては、 γ/n 割合の増加にあまり依存せずほぼ同程度である。この理由は、参考文献[3-17]でも議論しているように、統計的不確かさ σ_Y の大きさは、主に中性子計数のデータ数 N (\propto 分析する炉雑音の測定時間 NT) に依存するためであると考えられる。例えば、未臨界体系において測定された中性子計数の確率分布は、Pál-Mogil' ner-Zolotukhin-Bell-Babala 分布 (PMZBB 分布) [3-18] に従うため、PMZBB 分布の統計学的性質に基づくことで Y 値の統計的不確かさ σ_Y は、以下式により推定することができる[3-17]。

$$\begin{aligned} \sigma_Y &\approx (Y + 1) \sqrt{\frac{Y(2Y + 1)(5Y + 2)}{N(Y + 1)^2\mu} + \frac{2}{N - 1}} \\ &= (Y + 1) \sqrt{\frac{Y(2Y + 1)(5Y + 2)}{NT(Y + 1)^2P} + \frac{2}{N - 1}} \end{aligned} \tag{3.3.4-13}$$

(3.3.4-13)式において、 μ は中性子計数の標本平均、 P は中性子計数率 ($P = \mu/T$ 、ただし T の単位はs)を表している。 γ 線ノイズを含んだ本仮想数値実験の場合には、 $P = 4.4 \times (1 + (\gamma/n))$ (cps)、 $N = [3600/T]$ であるため、例えば、 γ/n 割合=10の条件において、(3.3.4-13)式により推定した Y 値の統計的不確かさ σ_Y は図3.3.2-26のような結果となる。図3.3.2-26より、炉雑音測定結果データ内にポアソンノイズが含まれた場合であっても、(3.3.4-13)式によって推定した σ_Y の値は、moving block bootstrap法によって評価した σ_Y の値と良く一致していることが確認できる。なお、 γ/n 割合が変化した場合についても同様の結果であった。従って、 σ_Y の簡易評価式(3.3.4-13)式を活用することにより、実際に測定された中性子計数率 P や Y 値の大きさに応じて、統計的に有意な Y 値を得るためには、どれぐらい多くのデータ数 N (あるいは測定時間 NT)が必要となるのか、あらかじめ概算することも可能であると考えられる。

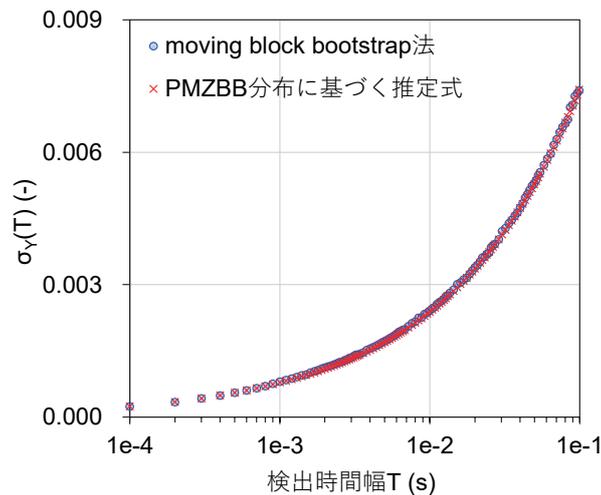


図 3.3.2-26 中性子相関量の統計的不確かさ (γ 線計数/中性子計数の割合=10)

次に、図3.3.2-25のように得られた中性子相関量 $Y(T)$ について、moving block bootstrap法を用いて異なる検出時間幅 T 間の $Y(T)$ 共分散を考慮した上で、次式で示すフィッティング式を非線形最小二乗法でフィッティングすることにより、即発中性子減衰定数 α 及び統計的不確かさ σ_α を推定した。

$$Y(T) = Y_\infty \left(1 - \frac{1 - \exp(-\alpha T)}{\alpha T} \right) + cT + d \tag{3.3.4-14}$$

(3.3.4-14)式において、 α, Y_∞, c, d はフィッティングパラメータであり、 Y_∞ は検出時間幅 $T \rightarrow \infty$ における Y 値の飽和値、 c は遅発中性子成分に関する補正項、 d は検出器の不感時間や空間高次モード成分の影響に関する補正項に対応している。 γ/n 割合を0.01から10まで変化させた仮想炉雑音測定結果に対して、moving block bootstrap法を適用して求めた α 及び σ_α を図3.3.2-

27 に示す。図 3.3.2-25 及び図 3.3.2-27 からわかるように、 γ 線ノイズの割合が増えて $Y(T)$ の分析し難くなるにつれて、即発中性子減衰定数 α の測定誤差（統計的不確かさ σ_α ）も増加することとなる。本検討で実施した仮想数値実験の条件の場合、 γ/n 割合が概ね 1 以下のオーダーに抑制することができれば、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α が測定可能であると考えられる。

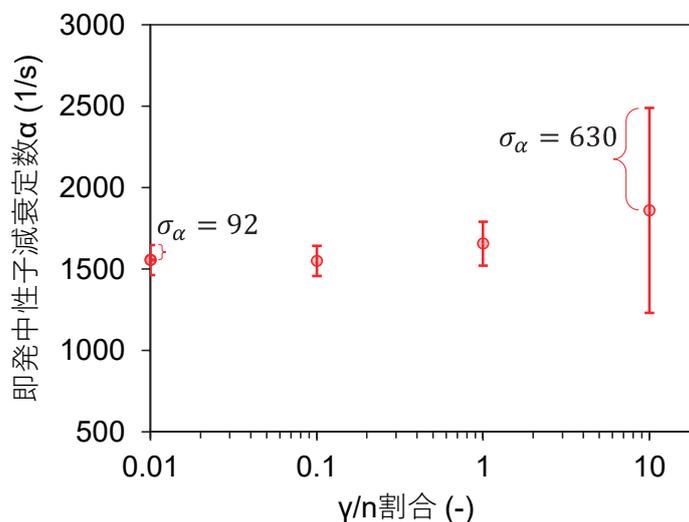


図 3.3.2-27 γ 線計数/中性子計数の割合が即発中性子減衰定数に与える影響

以上より、中性子検出器の検出効率 (cps/nv) をできる限り高く保ちつつ、開発する中性子検出器に、 γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 程度となるように中性子線 γ 線から弁別する性能を満たせば、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α が測定できる見込みを得ることができた。

3.3.3 まとめ

① 検出素子の性能評価（再委託先：北大、名大、連携先：JAEA）

製作したダイヤモンド検出素子に対して、北大において I-V、C-V 特性ならびに α 線を使用した電荷収集効率等を評価した。令和 2 年度、JAEA の協力に基づき検出効率を評価した検出器を使用して、 ^{252}Cf 中性子源を使用した北大において簡易的な検出効率評価を可能とした。 γ 線照射試験を名大 ^{60}Co 施設で名大・北大が共同して行い、イオンビームエッチングや合成条件の最適化により 1 kGy/h に対応可能な目途を得た。

② 集積回路等の耐放射線性試験（再委託先：北大）

北大が有する X 線照射設備を使用し、高エネ研で試作した評価試料に対して照射試験を行い、課題抽出を高エネ研・北大が共同して行った。

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）

検出素子とフロントエンド集積回路を組み合わせた測定要素に対して ^{252}Cf 等中性子源を使用した動作試験を行った。 γ 線照射試験を名大 ^{60}Co 施設で行い、検出素子を実装した集積素子の動作試験を行い、300 Gy/h において安定動作することを確認した。また、 α 線を照射した際に疑似信号が発生したことから回路調整対策を行った。また、 ^{252}Cf 中性子源を使用した動作試験を北大で行った。

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。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仮想数値実験により、炉雑音測定データに含まれる γ 線計数/中性子計数の割合が大きくなるにつれて、Feynman- α 法による即発中性子減衰定数の測定誤差が大きくなる問題点を抽出した。また、 γ 線計数/中性子計数の割合 <1 の条件であれば、即発中性子減衰定数を測定できる見込みを得た。

3.4 研究推進

3.4.1 令和2年度までの実施内容及び成果（概要）

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。COVID-19 の蔓延防止対策としてプロジェクトグループ全体会議や組織間をまたがる会議は計 8 回リモートで開催した。組織内では適宜リモートと対面を用い、組織内関係者間で意思疎通が円滑になるよう会議を開催した。これらミーティング以外に、関係者間で活発な議論を行うため、メールでの情報のやり取りだけでなく情報セキュリティーに注意をはらいつつ、リアルタイム性を持たせたビジネス用メッセージングアプリケーションを用い本プロジェクト関係者内での議論を促進した。

3.4.2 令和3年度実施内容及び成果

令和3年度になり名大の組織代表者である渡辺氏が九州大学に栄転され、名大の組織代表者を遠藤氏に代わっていただいたが、渡辺氏には引き続き本プロジェクトに関わっていただき、中性子検出素子及び γ 線照射に関する業務でご助言をいただくことになった。

令和3年4月26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、主に中性子検出器用の信号処理回路に対する仕様の確認や議論を行い集積回路設計を含む中性子検出器の設計仕様をプロジェクト内で共有した。5月11日には、北大と産総研と高エネ研で γ 線バックグラウンドの影響に焦点を絞って開発目標の議論とシミュレーション等に関する役割分担を決定した。5月22日には北大と高エネ研でフォローアップミーティングを行った。6月11日には現状のプロジェクト進展に関するフォロー会議を行い、現状での改善点の共有を行った。6月28日には放射線耐性測定を行うための施設管理者との打ち合わせを行い、継続的に議論し我々の目標を達成できる評価スケジュールを決定することにした。7月13日には北大での素子開発状況について議論し情報共有を行なった。8月23日～24日には放射線耐性に絞った会議を行い現状での結論と今後の予定について決定を行った。9月16日にダイヤモンド素子開発の現状共有を行なった。10月9日には福島廃炉の状況を把握するために技術戦略ワークショップに出席した。10月29日には検出素子微細加工に関して金沢大学の専門家を招き方向性、スケジュールについて議論を交わし、11月30日試料開発状況や今後の進め方に関して議論を行った。12月6日及び12月28日に現状の開発状況及び廃炉の現状に関する聞き取り調査の情報交換会を行い、今後の方策に関して議論を行い、研究開発の方針を定めた。2月18日には微細加工に関する議論とまとめを行なった。3月2日は γ 線試験を行いながら、検出素子とフロントエンド集積回路開発グループの実務者レベルの打ち合わせを行い、仕事分担等も含めたプロジェクト進行に関する詳細な打ち合わせを行った。3月3日には耐放射線評価についてまとめを行い今後の予定等について情報共有を行なった。3月18日には高エネ研の開発チームで γ 線バックグラウンド評価に関する情報共有と議論を行い、それをもとに3月24日、25日で北大、高エネ研関係者が集まって γ 線バックグラウンドによる影響の低減策について議論を行った。その結果をもとに3月29日にプロジェクト全体会議を行い、令和4年度の予定について議論し、検出器の仕様及びスケジュールについて合意を行った。上記以外に各組織内で隔週及び毎週開発グループ内での進捗打ち合わせを行っている。またプログラムオフィサー（P0）、J-P0へはメール等を通じ研究方針や発表資料等に対し助言をいただいた。

令和4年度は最終年度となるため、事業代表者が必要に応じて各組織のグループ打ち合わせに出席し組織間の連携を強化することとした。

3.4.3 まとめ

COVID-19の影響で直接会って会議を開くことができなくなった代わりに、頻繁にWEB会議を行うことで研究者間で開発目標や現状等の情報共有を行なっている。特にγ線バックグラウンドに対する研究開発に関しては、開発者レベル、組織代表者レベルの複数のレベルで情報共有を行いプロジェクト内の意思統一を図った。それ以外に微細加工技術や放射線耐性に関する打ち合わせには、積極的にプロジェクト外の専門家を招聘し意見を聞きプロジェクト推進に役立てた。これによりリスクの少ないプロジェクト推進を積極的に進めた。

4. 結言

本研究の目標は、高 γ 線環境下（1 kGy/h）で動作する中性子検出による深い未臨界モニターを実現するため、中性子検出器の感度として数 count/nv の性能を持つ実時間でのモニタリングを目標として要素開発を進めている。

令和3年度まで、本プロジェクトでは、「臨界近接監視手法に関する検討」において、Feynman- α 法を用い深い未臨界の解析手法を検討することで、検出器性能に対する制限を明確にした。これは他の深い未臨界モニターに対しても必要な普遍的な条件であることは本プロジェクトの成果であり、我々もこの成果を基に中性子検出器の開発を推進している。

中性子検出器詳細設計に関してはすでに述べたように、検出感度と γ 線バックグラウンド比、中性子信号とイントリンジックノイズ比、を検討した結果、できるだけ物質量（放射線遮蔽物を含む）を削減しかつ、中性子信号とイントリンジックノイズ比を適正に保つこと及び製造可能な検出素子の大きさに決めた後、その中性子検出素子の個数を目標感度になるまで使用することで中性子検出器が完成する。我々は現在までに、シミュレーションにより1素子あたりの感度を算出し0.001 count/nv程度まで向上できることを定量的に明らかにした。これについては「検出素子の性能評価」にて行った。

よって、目標を達成するためには千個の素子が必要であることを定量的に示した。また実際に中性子検出素子を使用し中性子が検出可能なことも実証できている。今後は、コンバーター選定等も含め夏までに試作を続け、令和3年度中にシミュレーションとの比較を行う予定である。

その結果を素子構造等の最適化に使用するとともに、実機製作において素子の個数を含む仕様を明確にして実機製造へつなげる。

中性子検出器を実機で動作させるためには数千個の検出素子からの信号を処理する必要がある。このためには、耐放射線信号処理集積回路の開発が必須であり、本プロジェクトではセンサー信号をアナログデジタル変換するまでの集積回路（フロントエンド集積回路）と数千個の検出素子からのデジタル信号を処理するデジタル集積回路（バックエンド集積回路）、及びそれらを検出素子と統合し検出器として機能させるためのシステム化（スケーラブルシステム開発）に分けて連携をとりながらこのサブプロジェクトを進めており、耐放射線耐性に関しては、プロトタイプ集積回路はTIDが1 MGyまで動作することは確認済みであり、今後は耐放射線性能にロバストな性能を示す改良を進めていく。機能に関しては、フロントエンド集積回路及びバックエンド集積回路はプロトタイプ中性子検出器用基板に組み込まれ動作が確認された。フロントエンド集積回路に関しては、市販信号処理回路より高速低消費電力で動作し、高レート γ 線バックグラウンドが100分の1以下に減らせることが成果である。今後この性能をさらに向上させ γ 線バックグラウンド耐性を向上させる予定である。

バックエンド集積回路に関しては、全ての検出素子からのデジタルデータを高速でコンピュータへ転送することが可能な4種類のデジタル集積回路の開発が完成したことで、消費電力、実装密度及び耐放射線性能に関してFPGAでは困難な性能を達成できた。

一方1 kGy/hへの対応に関しては、ダイヤモンドを使用した放射線検出素子と、そこから信号を読み出す信号処理回路を含む検出器で最適化が必要となる。これに関しては、ダイヤモンド検出素子開発とフロントエンド集積回路開発の両方に対応を行った。その結果、自立ダイヤモンド膜及び検出素子電極構造に関して研究が進展し、0.8 kGy/hでも動作に支障がないダイヤモンド検出素子の構造が提案できたことは重要な成果である。これは市販ダイヤモンド基板の性能を

はるかにしのぐ結果である。また、量産化及び高ガンマ線環境耐性に利点を持つ積層型検出素子も開発し評価を開始した、一方、フロントエンド集積回路に関しては高速化により γ 線バックグラウンド耐性は向上したが、中性子感度を上げるために令和4年度ではさらに高速化及び量産化に対応した改良を進める。

以下詳細について各項で述べる。

(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

令和3年度までに、スケーラブルシステムであることを示すために直径10 cm及び15 cmのデザインを進め、実際に直径15 cm検出器用基板を開発し、フロントエンド集積回路及びバックエンド集積回路を実装し機能を確認した。今後は実機に向けた中性子減速材の厚みのシミュレーションなど、JAEAと連携して中性子検出器の詳細仕様を定量化していく。並行して中性子検出素子及び改良した集積回路を実装した基板を、プロトタイプボードの量産化に向けた問題点を開発へフィードバックしつつ、評価し実機開発に向けた研究開発を推進する。

② フロントエンド集積回路開発

耐放射線を高めかつ γ 線バックグラウンド低減のために高速化したフロントエンド集積回路を開発し、1 MGy照射後の放射線環境での耐性と動作を確認した。今後は量産まで考慮した集積回路デザインを進めつつ、更に高速化を狙った改良を進める。これにより高ガンマ線照射場での検出器の動作により信頼性を持たせ、かつ高い中性子感度を達成する。

③ バックエンド集積回路開発

中性子検出器用バックエンド集積回路は、10 MHzで4096チャンネルのデジタルデータを全てコンピュータへ転送する機能を持つように設計が行われ、計4種類の集積回路を開発し動作確認を行い問題がないことを確認した。今後は、コンピュータまでの長距離高速転送に関して安定性及び信頼性の評価を行い実機実現を推進する。

(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

検出素子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行い、検出素子用ダイヤモンド単結晶自立膜を製作し、検出素子性能の向上を0.864 kGy/hまで確認した。検出素子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し表面形態のへこみを低減できる条件を見出した。これらの検出素子に対し B_4C を付加することで、中性子検出素子を試作し動作を確認した。今後は、夏までにコンバーターとしてLiFを用い中性子検出素子を開発し、 B_4C を使用した中性子検出素子も含めシミュレーションと比較し、より中性子感度の高い検出素子を完成させる。また、中性子検出器としての性能向上の試みとして、微細加工技術の評価も行なった。微細加工技術ではニッケル触媒を使用したエッチング及びイオンエッチング法の

適用可能性検討も進めた。微細加工については、中性子検出感度を向上させることが可能であり、成果は出ているものの、単年度で検出素子への技術応用は容易ではなく、研究体制を再構築し引き続き研究は続けていくが、まずは並行平板型の中性子検出素子を開発する。

- 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
量産化を考えた場合に、複数の自立膜は必須であるため、引き続き研究を続け検出素子開発に使用可能かどうかについて検証を行う。
- ③ 積層型ダイヤモンド中性子検出素子の開発
検出素子の量産化、大型化、 γ 線バックグラウンドに対する耐性が強化を狙い、積層型ダイヤモンド試料から検出素子を製作した。成果として大型化には有効であることは確認できたが、漏れ電流が大きくなるケースも見られた。今後は異常粒子の無い積層型素子を作製し、1 kGy/h の γ 線環境下で使用できるか判断する。この素子の場合是有感層が薄くでき γ 線バックグラウンドの影響を受けにくいいため、中性子コンバーターはボロンを選択する。
- ④ 検出素子の基板実装技術の開発
検出素子を実装する場合素子表面の平滑化技術は、量産時の実装イールドを上げるために必須である。現在まで、イオンビーム加工等を使用した表面平坦化の研究により平坦化が可能であることを実証できた。今後は、実際に中性子検出器用基板に実装し問題点を洗い出す。

(3) 検出素子、計測要素の性能評価

- ① 検出素子の性能評価
中性子検出素子の中性子コンバーターの種類、厚さ等をシミュレーションによって探索し、 γ 線バックグラウンドに対して中性子検出感度を効果的に上げる材料として Li を選定し、今後 LiF をコンバーターとして使用する方針を決定した。また、ダイヤモンド検出素子の製造工程を改良した結果、ダイヤモンド検出素子の性能を評価し 1 kGy/h に対応可能な目途を得た。
- ② 集積回路等の耐放射線性試験
開発した集積回路に γ 線、X 線を照射し動作を確認した。今後は、シミュレーション等で確認したのち、より影響が出やすいと思われる照射方法にて照射試験を行う予定である。
- ③ 検出要素+フロントエンド集積回路の性能評価
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中性子検出要素に対して ^{252}Cf 等中性子源を使用した動作試験を行い中性子検出を確認した。また γ 線照射試験

を名大及び九州大学で行い、検出素子を実装した集積素子の動作試験を行い、600 Gy/h において安定動作することを確認した。ただし、高 γ 線バックグラウンド環境下で中性子検出素子の中性子感度を目標値にするには、中性子コンバーターの変更とフロントエンド集積回路の更なる高速化の両方の研究を最優先で進める必要があることがわかった。そのためフロントエンド集積回路開発では、より高速化したフロントエンド集積回路の開発も行う。また、ダイヤモンド中性子検出素子の開発においては、LiFをコンバーターにした中性子検出素子の開発と感度評価を最優先で推進し、中性子感度が目標値を達成できるようにリソースを集中させる。

④ 臨界近接監視手法に関する検討（再委託先：名大）

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仮想数値実験のデータを利用し、高ガンマ線環境下でFeynman- α 法による即発中性子減衰定数の解析を行った。その結果 γ 線計数/中性子計数の割合 <1 の条件であれば、即発中性子減衰定数を測定できる見込みを得た。

目標達成のため、令和4年度における重要課題は以下の点である。

- 1 kGy/h 環境下で 0.001 count/nv 以上の中性子感度を持つ中性子検出要素（ダイヤモンド自立膜を使用）を、北大にて完成させる。この完成には LiF コンバーターの使用が不可欠である。
- 1 kGy/h 環境下での γ 線によるバックグラウンドヒットをできるだけ減らすために、より高速なフロントエンド集積回路を開発し検出素子と接続し評価する。これによりシミュレーションの不確定要素を排除することで、高ガンマ線環境下での効果を定量的に把握し、不確定な γ 線環境下でも安定して動作する中性子検出器の設計を遂行する。
- ダイヤモンド検出素子の量産に向けて、積層型基板を使用した検出素子に関して、異常粒子の無い積層型素子の開発を推進し高ガンマ線環境下で評価する。

上記を主軸として全体の研究開発を推進することで、実機量産を念頭に置いた要素研究開発を推進する。

参考文献

- [1-1] 技術研究組合国際廃炉研究開発機構, 平成 28 年度補正予算 廃炉・汚染水対策事業費補助金「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けたサンプリング技術の開発」平成 30 年度実施分最終報告, 令和元年 7 月, https://irid.or.jp/_pdf/20180000_07.pdf (参照日: 2022 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 (参照日: 2022 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 (参照日: 2022 年 3 月 31 日) .
- [3-1] S. Ohmagari, H. Yamada, N. Tsubouchi, H. Umezawa, A. Chayahara, A. Seki, F. Kawai, H. Saitoh and Y. Mokuno, Schottky Barrier Diodes Fabricated on Diamond Mosaic Wafers: Dislocation Reduction to Mitigate the Effect of Coalescence Boundaries, *Appl. Phys. Lett.*, vol.114, 2019, 082104.
- [3-2] H. Umezawa, N. Tokuda, M. Ogura, S.G. Ri and S. Shikata, Characterization of Leakage Current on Diamond Schottky Barrier Diodes Using Thermionic-field Emission Modeling, *Diamond Relat. Mater.*, vol.15, no.11-12, 2006, pp.1949-1953.
- [3-3] 遠藤知弘, 左近敦士, 基礎から分かる未臨界: 第 3 回 未臨界度測定のいろは, 日本原子力学会誌 *ATOMO Σ*, vol.61, no.12, 2019, pp.857-862.
- [3-4] 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.
- [3-5] Suzuki, T., Subcriticality Determination of Low-Enriched UO₂ Lattices in Water by Exponential Experiment, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol.28, no.12, 1991, pp.1067-1077.
- [3-6] Sastre, C. A., The Measurement of Reactivity, *Nucl. Sci. Eng.*, vol.8, no.5, 1960, pp.443-447.
- [3-7] Simmons, B. E., King, J. S., A Pulsed Neutron Technique for Reactivity Determination, *Nucl. Sci. Eng.*, vol.3, no.5, 1958, pp.595-608.
- [3-8] Sjöstrand, N. G., Measurements on a Subcritical Reactor Using a Pulsed Neutron Source, *Arkiv för Fysik*, vol.11, 1956, pp.233-246.
- [3-9] Hogan, W. S., Negative-Reactivity Measurements, *Nucl. Sci. Eng.*, vol.8, no.6, 1960, pp.518-522.
- [3-10] Feynman, R. P., de Hoffmann, F., Serber, R., Dispersion of the Neutron Emission in U-235 Fission, *J. Nucl. Energy(1954)*, vol.3, no.1-2, 1956, pp.64-69.
- [3-11] Orndoff, J. D., Prompt Neutron Periods of Metal Critical Assemblies, *Nucl. Sci. Eng.*, vol.2, no.4, 1957, pp.450-460.
- [3-12] 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.

- [3-13] 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, 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, JAEA-Review 2021-038, 2022, 65p.
- [3-14] Chernikova, D. et al., The Neutron-Gamma Feynman Variance to Mean Approach: Gamma Detection and Total Neutron-Gamma Detection (Theory and Practice), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, vol.782, 2015, pp.47-55.
- [3-15] Chernikova, D. et al., The Inclusion of Photofission, Photonuclear, (n, xn) , $(n, n' x\gamma)$, and $(n, x\gamma)$ Reactions in the Neutron-Gamma Feynman-Alpha Variance-to-Mean Formalism, Nucl. Sci. Eng., vol.185, no.1, 2017, pp.206-216.
- [3-16] 後藤正樹他, UTR-KINKI における BGO 検出器を用いた原子炉雑音測定手法の開発: (2) 即発中性子減衰定数の測定, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, オンライン開催, 2021, 1I07, <https://confit.atlas.jp/guide/event/aesj2021f/subject/1I07/advanced> (参照日: 2022 年 2 月 22 日) .
- [3-17] Endo, T., Yamamoto, A., Comparison of Theoretical Formulae and Bootstrap Method for Statistical Error Estimation of Feynman- α Method, Ann. Nucl. Energy, vol.124, 2019, pp.606-615.
- [3-18] Endo T., et al., Theoretical Derivation of a Unique Combination Number Hidden in the Higher-Order Neutron Correlation Factors Using the Pál-Bell Equation, Nucl. Sci. Eng., (in press) <https://doi.org/10.1080/00295639.2022.2049992>.
- [3-19] D. R. Lide, CRC Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press, Taylor & Francis, 2005, 2660p.

This is a blank page.

