

高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した
放射線場マッピング観測システム開発
(委託研究)

—令和4年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Development of Radiation Field Mapping Measurement System Based on
High Radiation Tolerant Solar Cells for Low-light Illumination
(Contract Research)

-FY2022 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
京都大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science,
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Kyoto University

October 2024

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 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発
(委託研究)

—令和4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

京都大学

(2024年3月27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4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 (以下、「1F」という。) の廃炉等をはじめとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。

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

本研究は、令和4年度に採択された研究課題のうち、「高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発」の令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、自立・遠隔で駆動するセンサーを応用した放射線場マッピングが可能なシステムを開発することで、PCV 内の放射線情報を網羅的かつリアルタイムで取得し、非常に透過性が高く事故の要因となりえるガンマ線や中性子などの漏洩監視により作業員や住民に対する安全性を担保可能なシステムを実環境に実装するための実証研究を行うものである。太陽電池型線量計は、宇宙用太陽電池として開発されてきた高放射線耐性を有する半導体素子を利用した自立駆動形の省電力・小型センサーとして開発を進めており、PCV への適応可能性について議論してきた。CIGS 太陽電池型線量計をベースとして 1F 実装に向けた素子の高機能化及びシステム化が必要となる。高機能化として、さらなる難アクセス箇所への探索を目指したフレキシブルシート化、マッピングモニタリングシステム開発基盤となる多接続化及び再臨界事故評価システム開発に向けたガンマ線・中性子検出構造の最適化を実施している。令和4年度では、CIGS 太陽電池素子構造をベースとしたフレキシブル素子の作製設備の整備及びガラス基板 CIGS 素子を用いた試作機による初期特性をガンマ線、電子線及び中性子線照射試験により解明する。中性子検出構造においては、変換材料のホウ素を塗布による成膜を検討しており、粉末材料粒径の調製条件の解明や、塗布法及び溶剤条件に関する選定を行う。またマッピング計測では、太陽電池を複数接続して切り替えることで放射線を検出できる機器の選定を行う。

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、京都大学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

Development of Radiation Field Mapping Measurement System Based on High Radiation Tolerant Solar Cells for Low-light Illumination
(Contract Research)

— FY2022 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

Kyoto University

(Received March 27, 2024)

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 FY2022.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F), 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 FY2022, this report summarizes the research results of the “Development of radiation field mapping measurement system based on high radiation tolerant solar cells for low-light illumination ” conducted in FY2022.

The objective of the present study is to develop a system that can map radiation fields by applying independent and remotely operated sensors to obtain real-time radiation information in PCV. The system will be implemented in an actual environment to ensure the safety of workers and equipment by monitoring the leakage of gamma rays and neutrons, which are highly penetrating and can be a cause of accidents. Solar cell dosimeters are being developed as a compact sensor of the built-in potential drive type that utilizes a device with high radiation tolerance that has been developed as a solar cell for space use. The CIGS solar cell dosimeter is the basis for the development of a system with high functionality and systemization for 1F packaging. In FY2022, we will develop fabrication facilities for flexible devices based on the CIGS solar cell device structure, and elucidate the initial characteristics of the prototypes by gamma-ray, electron-beam, and neutron-beam irradiation tests. For the neutron detection structure, we are considering the deposition of boron as a conversion material by coating, and are clarifying the conditions for the preparation of powder material particle size, and selecting the coating method and solvent conditions. For mapping measurement, equipment that can detect radiation by connecting multiple solar cells and switching between them will be selected.

Keywords: Solar Cell, CIGS, Dosimeter, Remote Operate, High Radiation, Mapping System, Flexible, Boron

This work was performed by Kyoto University 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
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

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
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report	15

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

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

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

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

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

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

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

共通基盤型原子力研究プログラム	11 課題（若手研究 6 課題、一般研究 5 課題）
課題解決型廃炉研究プログラム	6 課題
国際協力型廃炉研究プログラム	2 課題（日英共同研究）

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 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ティアップ型人材育成	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 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (R3. 7. 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

6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日～令和4年5月6日（課題解決型）

令和4年4月7日～令和4年6月16日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：8 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）

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4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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニタの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の探求	塚原 剛彦	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学

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 4 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

高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した
放射線場マッピング観測システム開発

(契約番号 R04I119)

成果報告書

令和 5 年 3 月

国立大学法人京都大学

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、国立大学法人京都大学が実施した「高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発」の令和4年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	vii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.1.1 フレキシブルシート検出素子の開発	2-1
2.1.2 多接続化によるマッピング計測システムの開発	2-1
2.1.3 ガンマ線・中性子検出構造	2-1
2.2 実施体制	2-2
2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法	2.3-1
2.3.1 CIGS センサー素子開発	2.3-1
2.3.2 ホウ素微小粉末の作製	2.3-1
2.3.3 有機バインダと焼結条件の探索	2.3-1
2.3.4 中性子試験照射場の整備と中性子束・エネルギースペクトル変動システムの開発	2.3-1
2.3.5 ガンマ線場、電子線場を利用したシステム照射試験	2.3-1
2.3.6 センサー素子劣化挙動の解析	2.3-1
2.3.7 高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム 開発	2.3-1
2.3.8 研究推進	2.3-2
3. 実施内容及び成果	3.1-1
3.1 CIGS センサー素子開発	3.1-1
3.1.1 フレキシブル基板向け成膜条件の検討	3.1-1
3.2 ホウ素微小粉末の作製（再委託先：東北大学）	3.2-1
3.2.1 ホウ素微小粉末の作製（再委託先：東北大学）	3.2-1
3.3 有機バインダと焼結条件の探索	3.3-1
3.4 中性子試験照射場の整備と中性子束・エネルギースペクトル変動システムの開発	3.4-1
3.5 ガンマ線場、電子線場を利用したシステム照射試験	3.5-1
3.6 センサー素子劣化挙動の解析	3.6-1
3.6.1 本課題の目的	3.6-1
3.6.2 電子線場における照射試験システム構築	3.6-2
3.7 高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	3.7-1
3.7.1 静電塗布法を用いた中性子変換膜作製条件の解明	3.7-1
3.7.2 素子のガンマ線・中性子線検出特性解明	3.7-7
3.7.3 1F 適応システムの開発	3.7-13
3.7.4 まとめ	3.7-15
3.8 研究推進	3.8-1
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

事業代表者

国立大学法人京都大学 助教 奥野泰希

再委託先

独立行政法人国立高等専門学校機構木更津工業高等専門学校 教授 岡本保

再委託先

国立研究開発法人産業技術総合研究所 主任研究員 上川由紀子

再委託先

国立研究開発法人理化学研究所 専任研究員 小林知洋

再委託先

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構 研究領域主幹 今泉充

再委託先

国立大学法人東北大学 教授 笠田竜太

再委託先

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 主幹研究員 牧野高紘

表一覧

表 3.1.1	CIGS センサーの各構成部の製膜方法と代表的な材料	……	3.1-1
表 3.2.1	市販ホウ素粉末の諸元	……	3.2-2
表 3.2.2	BM 処理によるホウ素粉末量の変化と回収率	……	3.2-2
表 3.2.3	ホウ素粉末の化学分析結果 (mass%)	……	3.2-6

図一覧

図 1	太陽電池型線量計の試作機スペックと本事業での目標	..	1-2
図 2.2.1	研究の実施体制	..	2-2
図 3.1.1	CIGS センサーの構造概略	..	3.1-1
図 3.1.2	(左) 通常用いる基板イメージ図 (ガラス基板) (右) フィルム向け治具 (設計図)	..	3.1-2
図 3.1.3	①10 cm 角ガラス基板、②ポリイミドフィルム③治具に取り付けたポリイミドフィルム (板状基板と同様に扱うことが可能)	..	3.1-2
図 3.1.4	(左) 10 cm 角ガラス基板、(右) 治具に取り付けたポリイミドフィルムを同時蒸着製膜装置用ホルダーに設置した際の外観写真	..	3.1-3
図 3.1.5	(左) 10 cm 角ガラス基板、(右) 治具に取り付けたポリイミドフィルムを化学溶液堆積法用ホルダーに設置した際の外観写真	..	3.1-3
図 3.1.6	同時蒸着装置構造概略図	..	3.1-4
図 3.1.7	放射温度計により観察した、製膜試料表面温度の時間変化	..	3.1-4
図 3.2.1	ボールミリング用に導入した窒化ケイ素製容器	..	3.2-1
図 3.2.2	粉末回収率の BM 処理時間依存性	..	3.2-3
図 3.2.3	モフォロギ 4 で取得したホウ素粉末の粒子画像	..	3.2-4
図 3.2.4	ホウ素粉末の個数基準粒径分布 (a) 粒径 0-150 μm 、(b) 粒径 0-10 μm の範囲	..	3.2-4
図 3.2.5	ホウ素粉末の体積基準粒径分布	..	3.2-5
図 3.2.6	ホウ素粉末粒径の個数基準アスペクト比分布	..	3.2-5
図 3.2.7	EPMA によって取得したホウ素粉末の 2 次電子像	..	3.2-6
図 3.2.8	EPMA による元素マップ分析結果	..	3.2-7
図 3.3.1	本研究で用いたスクリーン印刷装置の外観	..	3.3-2
図 3.3.2	本研究で作製した B_4C 膜の外観	..	3.3-3
図 3.3.3	本研究で作製した LiF 膜の外観	..	3.3-3
図 3.3.4	本研究で作製した Gd_2O_3 膜の外観	..	3.3-4
図 3.3.5	作製した B_4C 膜、 LiF 膜、 Gd_2O_3 膜の X 線回折パターン	..	3.3-4
図 3.3.6	コンバータ膜を用いた InGaP 太陽電池の誘導電流密度の陽子電流依存性	..	3.3-5
図 3.3.7	ポリイミドフィルム上に作製した B_4C 膜の外観	..	3.3-6
図 3.4.1	加速器駆動小型中性子源 RANS の遮蔽体と中性子ビーム照射口	..	3.4-1
図 3.4.2	中性子ビーム照射口に挿入された直線駆動システム	..	3.4-1
図 3.4.3	コンバータ付 InGaP 太陽電池の発電電流実測値	..	3.4-2
図 3.4.4	RANS 実験ホール平面図	..	3.4-2
図 3.4.5	RANS 実験ホールの中性子線量率計算結果 (100 μA 運転時)	..	3.4-3
図 3.4.6	RANS 遮蔽体内及び近傍の中性子線量率計算結果 (100 μA 運転時)	..	3.4-3
図 3.4.7	RANS における熱中性子束計算結果 (100 μA 運転時)	..	3.4-4
図 3.5.1	1 号電子線加速器の外観	..	3.5-1
図 3.5.2	加速器と照射室の位置関係	..	3.5-1
図 3.5.3	垂直照射室での照射体系	..	3.5-2
図 3.5.4	1 号加速器の線量率一覧	..	3.5-2

図 3.5.5	1.7 mm ^t のアルミニウム板による 1 MeV 電子線エネルギースペクトルの変化	..	3.5-3
図 3.6.1	真空ポンプの換装	..	3.6-3
図 3.6.2	石英フランジ/ビューポート	..	3.6-3
図 3.6.3	真空計センサヘッドの換装	..	3.6-4
図 3.6.4	端子フィードスルーの換装	..	3.6-4
図 3.6.5	電子線照射治具取付け用水冷銅プレート	..	3.6-4
図 3.7.1	中性子照射時の裏面アルファ線強度の窒化ホウ素 (BN) 膜厚依存性	..	3.7-1
図 3.7.2	静電塗布による成膜の概略図	..	3.7-2
図 3.7.3	静電塗布装置の外観	..	3.7-3
図 3.7.4	ホウ素粉末塗布前後のアルミニウム板	..	3.7-3
図 3.7.5	コンフォーカルレーザー顕微鏡の外観	..	3.7-4
図 3.7.6	アルミニウム基板上に塗布されたホウ素粉末の膜厚	..	3.7-5
図 3.7.7	焼結及び塗布のホウ素変換膜による InGaP 太陽電池の中性子誘起電流挙動	..	3.7-6
図 3.7.8	ミリング後のホウ素粉末中の不純物	..	3.7-6
図 3.7.9	ガラス基板上に成膜された CIGS 素子	..	3.7-7
図 3.7.10	Co-60 ガンマ線源を用いた照射体系	..	3.7-8
図 3.7.11	Co-60 ガンマ線環境中の CIGS 太陽電池の電流特性	..	3.7-9
図 3.7.12	Co-60 ガンマ線照射環境及び非照射環境の CIGS 太陽電池の電流ゆらぎ	..	3.7-9
図 3.7.13	電子線照射時の体系と試料の外観	..	3.7-10
図 3.7.14	電子線照射時の試料表面温度	..	3.7-11
図 3.7.15	電子線照射時の CIGS 太陽電池の電流挙動	..	3.7-12
図 3.7.16	電子線照射時の CIGS 太陽電池の変位損傷量	..	3.7-12
図 3.7.17	太陽電池型線量計の多接続システムの回路	..	3.7-13
図 3.7.18	太陽電池型線量計の多接続システムの外観	..	3.7-14
図 3.7.19	太陽電池型線量計の多接続システム照射試験	..	3.7-14
図 3.7.20	多接続システムによる CIGS 太陽電池型線量計の電流測定結果	..	3.7-15

略語一覧

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
PCV	: 原子炉格納容器
東電 HD	: 東京電力ホールディングス株式会社
CIGS	: Cu(In, Ga)Se_2
BM	: ボールミリング
EPMA	: 電子プローブマイクロアナライザ
京都大学	: 国立大学法人京都大学
東北大学	: 国立大学法人東北大学
木更津高専	: 独立行政法人国立高等専門学校機構木更津工業高等専門学校
産総研	: 国立研究開発法人産業技術総合研究所
理研	: 国立研究開発法人理化学研究所
QST	: 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
JAXA	: 国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構
BBT	: 株式会社 BeeBeans Technologies

概略

福島第一原子力発電所（以下、「1F」という。）の原子炉格納容器（PCV）から燃料デブリを取り出し、1Fの廃炉を効率的に進めるためには、PCV内の放射線源及び線量率の分布を知り、適切な除染や放射線遮蔽措置を行って、作業者の安全性を確保するとともに、廃炉に使用する装置類の耐放射線性等の最適化をする必要がある。また、デブリ移動に伴う不測の再臨界が生じる可能性も懸念されており、ガンマ線だけでなく、アルファ線や、中性子線の検出も重要視されている。これまで、東京電力ホールディングス（以下、「東電HD」という。）や国際廃炉研究開発機構（以下、「IRID」という。）により、遠隔操作ロボット等を用いたPCV内部調査が各号機に対して行われ、これらに搭載した放射線センサー等により、線量率分布の実測がなされてきた。PCVへのアクセスは長距離の移動、水環境、高レベル放射線環境のため主にロボットや、アクセスポートを用いて行われる。しかし、線量計には小型化・軽量化・省電力化が求められており、使用できる線量計には限りがあるため、放射線分布の情報は、時間的にも空間的にも断片的である。そのため、本研究では、自立・遠隔で駆動するセンサーを応用した放射線場マッピングが可能なシステムを開発することで、PCV内の放射線情報を網羅的かつリアルタイムで取得し、非常に透過性が高く事故の要因となりえるガンマ線や中性子などの漏洩監視により作業員や住民に対する安全性を担保可能なシステムを実環境に実装するための実証研究を行う。

太陽電池型線量計は、宇宙用太陽電池として開発されてきた高放射線耐性を有する半導体素子を利用した自立駆動形の省電力・小型センサーとして開発を進めており、PCVへの適応可能性について議論してきた。1FのPCV中の高線量率環境での適応においては、高い放射線耐性と高い分解能を有している線量計の有力な候補として銅インジウムガリウムセレン（CIGS）化合物を利用した太陽電池が候補素子として整理された。CIGS太陽電池素子は、近年さらなる高精度化を遂げ、フレキシブル素子化及び高並列抵抗素子による低照度素子化に成功しており、本技術を用いることでウェアラブルかつ低ノイズな太陽電池型線量計へさらなる高精度化につながる事が期待される。また、CIGS太陽電池は、表面にホウ素などが含有した中性子一荷電粒子変換膜を設置することで、中性子センサーとしての応用が期待されている。中性子検出素子として感度を最大化させるためには、太陽電池の面積に合わせたホウ素膜を4-5 μm程度の膜厚に積層する必要がある。しかし、ホウ素などの高い融点材料は、蒸着などの積層が困難であり、最適な膜厚に成膜可能な方法を探索する必要がある。

本事業では、CIGS太陽電池型線量計をベースとして1F実装に向けた素子の高機能化及びシステム化を実行する。高機能化として、さらなる難アクセス箇所への探索を目指したフレキシブルシート化、マッピングモニタリングシステム開発基盤となる多接続化及び再臨界事故評価システム開発に向けたガンマ線・中性子検出構造の最適化を実施する。高機能化の成果をもとに、実際の1Fへ実装可能なシステムを開発する。本システムの実用化の主な機能として、多接続センサーを省電力で駆動し、PCV内部のガンマ線や中性子の情報をリアルタイムにマッピングできる。このシステム導入は、PCV外へ影響を与える放射線場の変化を追跡することで、放射線漏洩による被ばく事故や機器損傷を防ぐことが、効果として期待される。

初年度では、CIGS太陽電池においては、フレキシブル素子の作製設備の整備及びガラス基板CIGS素子を用いた試作機による初期特性をガンマ線、電子線及び中性子線照射試験により解明する。マッピング計測においては、太陽電池を複数接続して切り替えることで放射線を検出できる機器の選定を行う。中性子検出構造においては、変換材料のホウ素を塗布による成膜を検討しており、粉末材料粒径の調製条件の解明や、塗布法及び溶剤条件に関する選定を行う。

1. はじめに

1FのPCVから燃料デブリを取り出し、1Fの廃炉を効率的に進めるためには、PCV内の放射線源及び線量率の分布を知り、適切な除染や放射線遮蔽措置を行って、作業者の安全性を確保するとともに、廃炉に使用する装置類の耐放射線性等の最適化をする必要がある。またデブリ移動に伴う不測の再臨界が生じる可能性も懸念されており、ガンマ線だけでなく、アルファ線や、中性子線の検出も重要視されている。これまで、東電HDやIRIDにより、遠隔操作ロボット等を用いたPCV内部調査が各号機に対して行われ、これらに搭載した放射線センサー等により、線量率分布の実測がなされてきた。PCVへのアクセスは長距離の移動、水環境、高レベル放射線環境のため主にロボットや、アクセスポートを用いて行われる。しかし、線量計には小型化・軽量化・省電力化が求められており、使用できる線量計には限りがあるため、放射線分布の情報は、時間的にも空間的にも断片的である。線量情報が取得できない主な要因として、炉内での電源供給の不足、アクセスできる形状や重量の制限、広範囲なダイナミックレンジの線量率及び高線量環境下での損傷などが挙げられる。また、線量分布を把握することは、取り出し作業前の燃料デブリ位置や汚染箇所の把握だけでなく、取り出し作業中の構造物の移動やデブリの反応による線量分布の変化に伴う被ばく事故及び運用中の装置の放射線障害を防止するために重要である。そのため、今後、20-30年以上続く廃炉措置を安全に遂行するため、ロボットなどへ装着するリアルタイム線量測定だけでなく、長期間の定点観測型マッピング線量測定の需要が強く求められている。本研究では、PCV内のリアルタイム・マッピング測定を目的として高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した長期運用型の多接続ガンマ線・中性子線線量場観測システムの開発を実施する。

太陽電池型線量計は、宇宙用太陽電池として開発されてきた高放射線耐性を有する半導体素子を利用した自立駆動形の省電力・小型センサーとして開発を進めており、平成30年度から3年間本英知事業により、開発を進めてきた。先行研究において、シリコン型太陽電池を用いた線量計では放射線耐性が低く、検出と同時に劣化が生じるため、信号の信頼性に課題があった。化合物太陽電池の中でも、InGaP、CdTe及びCu(In,Ga)Se₂ (CIGS)の化合物を用いた太陽電池は、特に高い放射線耐性が報告されてきており、高レベルの放射線環境中における長時間の安定動作が期待される。前英知事業では、図1に示すように、CIGS太陽電池を用いて実際に試作機の作製を行い、そのガンマ線挙動を取得した。これまでの成果より、PCV環境中で想定される数十mGy/h～数百Gy/hの環境中においてガンマ線線量に対して直線的な優れた挙動が観察された。放射線耐性も優れており、電子線による加速劣化試験では10MGy相当のガンマ線環境中での耐性が確認された。また、太陽電池素子の線量計センサー応用においては、低照度太陽電池の技術を用いることで、放射線検出時のノイズを低減し、分解能を向上させることが明らかになってきた。加えて、1F適応のためには、ロボットアーム動作中の0.2秒のリアルタイム測定や、100m程度のケーブルでの長距離信号輸送における信号の低下などの影響も小さいことなども確認しており、これらの結果を踏まえ太陽電池型線量計による1F廃炉に適応可能であると判断している。

本事業では、太陽電池型線量計をベースとして1F実装に向けた素子の高機能化及びシステム化を実行する。高機能化として、さらなる難アクセス箇所への探索を目指した(a)フレキシブルシート化、マッピングモニタリングシステム開発基盤となる(b)多接続化及び再臨界事故評価システム開発に向けた(c)ガンマ線・中性子検出構造を開発する。高機能化の成果をもとに、実際の1Fへ実装可能なシステムを開発する。本システムの実用化の主な機能として、多接続センサーを省電力で駆動し、PCV内部のガンマ線や中性子の情報をリアルタイムにマッピングできる。

このシステム導入は、PCV 外へ影響を与える放射線場の変化を追跡することで、放射線漏洩による被ばく事故や機器損傷を防ぐことが、効果として期待される。

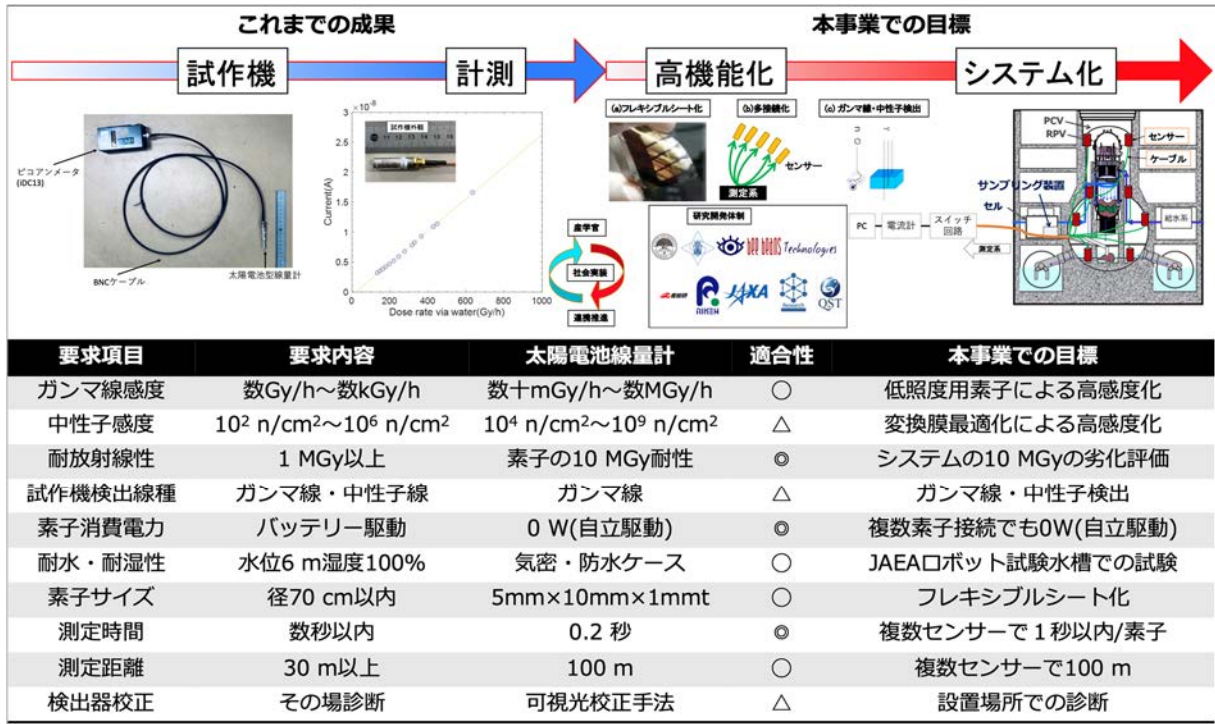


図1 太陽電池型線量計の試作機スペックと本事業での目標

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 フレキシブルシート検出素子の開発

先行研究でセンサーの有効性が確認されている CIGS 太陽電池素子は、近年、発電デバイスとしての実用化されており、高効率な素子を作製する技術が確立してきた。素子では、デバイス中の内蔵電位が、放射線環境中で発生した電子正孔対を外部回路へ取り出す役目を果たしており、外部電位を印加しない自立駆動が可能であることから、小型化・軽量化・省電力な検出器が実現可能となる。しかし、これまでの素子では、板状の素子のため、形状の制限により、小さい径のアクセス穴や、ロボット側面への実装は難しい。一方、車・航空機用ソーラーパネルとしてフレキシブルシート化の技術も開発されており、フレキシブル放射線検出素子への革新的な応用も期待できる。CIGS 太陽電池のフレキシブル化の開発を推進することで、フレキシブルシート放射線センサーとして応用が期待できる。本事業では、CIGS 素子のフレキシブルシートを利用した放射線検出器を目指した素子開発及び放射線検出特性の解明を行う。また、センサー特性の分解能を向上させるためには、並列抵抗を向上させる必要があるため、低照度太陽電池の技術を応用する。

2.1.2 多接続化によるマッピング計測システムの開発

太陽電池素子の駆動電位は 0 V であるため、外部の電位を印加する必要がなく、電流計との接続回路の切替えのみで簡易に、複数の素子を測定ができると考えられる。また、電離箱のように高電圧を印加する必要がないため、電圧の印加時間を短縮することができることから、高速に設計することが可能となる。しかし、多接続化においては、素子毎の回路のスイッチングが行われる過渡状態において高周波が発生し、ノイズが発生する場合、太陽電池型線量計の測定精度が低下する可能性がある。また、スイッチングノイズのために、回路切替え後の測定までの待機時間が長くなった場合には多点測定時の測定時間が長時間化する恐れがある。そのため、本事業では、回路切替えから測定までのノイズを最小化し、かつ高速な測定を実現できるような装置や測定条件を探索する。CIGS 太陽電池の素子としての信号応答速度は、数ミリ秒と報告されているため、Power Line Cycle (PLC) や回路切替え後の信号測定タイミングを調整することで高速化を目指す。また多接続化に伴い、素子毎の測定時の故障を診断することは非常に難しくなるため、自動化ができることが現場適応において望ましい。太陽電池素子は、ダイオード特性を有しており、電流電圧測定により放射線劣化状況や回路の健全性を取得することができる。そのため、多接続化で懸念される素子の動作状況の確認については、電流電圧特性の取得で解決できると想定される。また、ダイオード特性は、素子の放射線劣化を診断する指標としてだけでなく、信号の劣化量を見積もることで信号補正係数を導出する手法についても探索する。

2.1.3 ガンマ線・中性子検出構造

太陽電池素子は、ガンマ線に対しての感度は有しているが、中性子の感度はほとんどない。しかし、先行研究において、ホウ素、リチウム、ガドリニウムなど中性子を捕獲し荷電粒子を放出する元素を含有するコンバータ材を太陽電池表面に設置すると、その荷電粒子を素子が検出することで中性子束が測定可能であることが明らかになってきた。コンバータ材の最適膜厚は、ホウ素で 4-5 μm であり、その膜厚のときに、感度が最大となる。しかし、ホウ素は、高融点材料かつ脆性材料のため、蒸着やスパッタでは 1-2 μm までしか成膜できず、切削加工では 100 μm までしか成膜できないため、5 μm ホウ素膜の製造方法がほとんど確立できていない。また、フレキシブル化素子への展開を踏まえると、ポリイミドフィルムなどのフィルム状での成膜が必要となるため、高温での条件での成膜が困難である。そのため、事業では、フレキシブルなコンバータ膜を最適な膜厚で成膜できる条件について明らかにする。成膜方法としては、塗布法に着目しており、装置選定や成膜条件の最適化を行う。塗布法では、材料粉末の粒度分布が膜厚、表面粗さ及び、密度等などの成膜精度に影響を与える可能性がある。そのため、変換膜の材料粉末のミリングによる粒度制御についても行う。また、成膜後に素子設置する際に、粉末が剥がれ落ちることも想定されるため、バインダ等の調整により機械的強度特性についても検証する。

2.2 実施体制

実施体制を図 2.2.1 に示す。

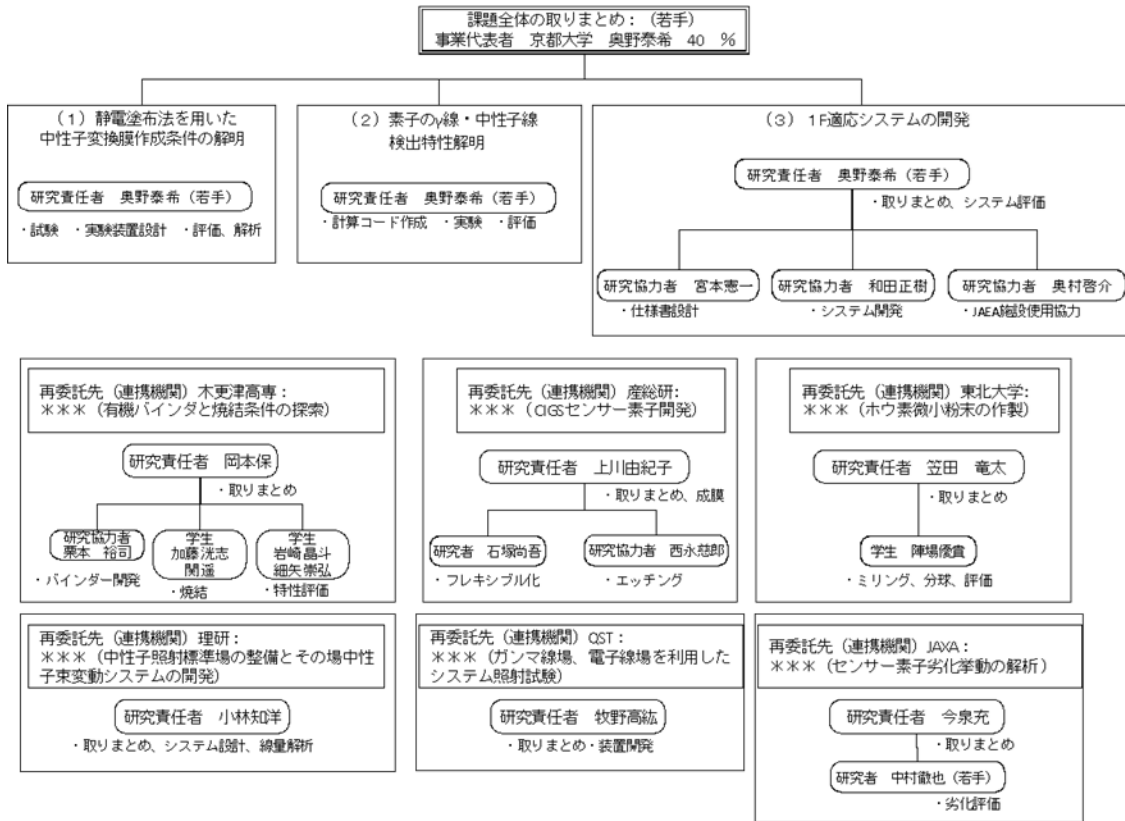


図 2.2.1 研究の実施体制

2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 CIGS センサー素子開発

フレキシブル基板向けの成膜条件の検討及び装置整備を行う。また、各プロセスに用いる治具の設計・準備を行い、板状基板向けプロセスとの互換性を確立し、耐熱性等を考慮した部材を用いて均一性、均質性の良い膜形成を確保する。

2.3.2 ホウ素微小粉末の作製

中性子コンバータ材として用いるホウ素粉末を微細化するためのメカニカルミリング法について、媒体素材等の処理条件の探索を行い、得られた粉末のサイズや不純物混入量の測定結果から適切な条件を選定する。

2.3.3 有機バインダと焼結条件の探索

印刷法によるホウ素化合物、リチウム化合物、ガドリニウム化合物に適した有機バインダの検討を行う。また、フレキシブル化の準備として、印刷法に適した基板の検討を行う。

2.3.4 中性子試験照射場の整備と中性子束・エネルギースペクトル変動システムの開発

小型加速器中性子源 RANS 及び RANS-II において、太陽電池デバイス実機の照射を行うとともに、照射中にビーム軸上に沿って検出器等を移動可能とする直線駆動システムを構築する。中性子及びガンマ線束の3次元空間における線量の計算評価を行う。

2.3.5 ガンマ線場、電子線場を利用したシステム照射試験

小型加速器中性子源 RANS 及び RANS-II において、太陽電池デバイス実機の照射を行うとともに、照射中にビーム軸上に沿って検出器等を移動可能とする直線駆動システムを構築する。中性子及びガンマ線束の3次元空間における線量の計算評価を行う。

2.3.6 センサー素子劣化挙動の解析

国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構（以下、「JAXA」という。）所有の太陽電池用電子線照射・測定同時装置に対して改良及び機器更新を実施し、かつ測定機器を調達・整備して、電子線場における電流電圧特性その場測定システムの構築を行う。

2.3.7 高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発

(1) 静電塗布法を用いた中性子変換膜作製条件の解明

ホウ素などの中性子を捕獲し、荷電粒子へ変換する元素を最適な膜圧で素子上ないし、基板上に形成するための静電塗布装置を選定し、装置の導入及び動作確認を行う。

(2) 素子のガンマ線・中性子線検出特性解明

CIGS 及びペロブスカイトなどの、放射線耐性の高い太陽電池の選定及び初期特性評価試験などの試作機のための準備を行う。

(3) 1F 適応システムの開発

メーカー等と協力し、多接続太陽電池型線量計のシステムに関するハードウェア及びソフトウェアの仕様を作成し、試作機作製の準備を行う。

2.3.8 研究推進

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

3. 実施内容及び成果

3.1 CIGS センサー素子開発

3.1.1 フレキシブル基板向け成膜条件の検討

(1) 概要

フレキシブル基板向けの成膜条件の検討及び装置整備を行った。また、各プロセスに用いる治具の設計・準備を行い、板状基板向けプロセスとの互換性を確立し、耐熱性等を考慮した部材を用いて均一性、均質性の良い膜形成を確保した。

フレキシブル基板としてポリイミドフィルムを選定しているため、従来のガラス基板を用いたような 500 °C 程度の成膜条件を使用できない。そのため、ポリイミドフィルムの耐熱温度を考慮し、400 °C 程度での CIGS 層の成膜条件について明らかにした。

(2) 令和 4 年度実施内容及び成果

Cu(In, Ga)Se₂ (CIGS) センサーの構造概略図を図 3.1.1 に示す。基板/裏面電極/CIGS 光電変換層/バッファ層 1/バッファ層 2/透明導電膜/表面電極を基本構造とする多層膜構造である。表 3.1.1 に各構成部の製膜方法と代表的な材料を示す。電子ビーム蒸着法、スパッタ法、多元蒸着法等の真空プロセスの他、化学溶液堆積法等を用いるが、これらのプロセスは、CIGS 系光電変換素子作製に広く用いられている板状基板向けに開発をされている。このため、フレキシブル基板を用いる際には、これら板状基板向けプロセスとの互換性を確立することが必要となる。

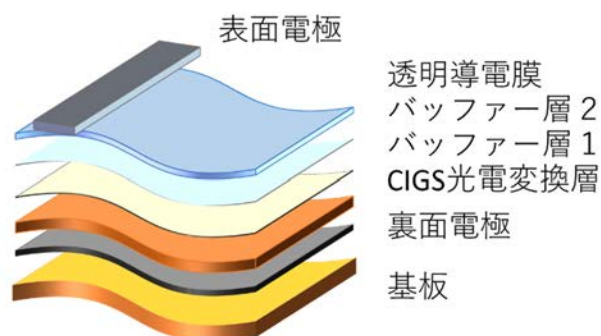


図 3.1.1 CIGS センサーの構造概略

表 3.1.1 CIGS センサーの各構成部の製膜方法と代表的な材料

構成部	製膜方法	代表的な材料
表面電極	電子ビーム蒸着法	Al
透明導電膜	直流 (DC) スパッタ法	ZnO:Al
バッファ層 2	高周波 (RF) スパッタ法	ZnO
バッファ層 1	化学溶液堆積法	CdS
CIGS 光電変換素子	同時蒸着法	Cu(In, Ga)Se ₂
裏面電極	DC スパッタ法	Mo
基板		青板ガラス (SLG) , ポリイミドフィルム

今回、板状基板向けプロセスとの互換性を確立するために、フィルム基板を板状基板と同様に扱える治具を設計・作製した。図 3.1.2 (左) に通常用いる基板のイメージ図 (ガラス基板)、また同図 (右) に今回設計したフィルム向け治具 (設計図) を示す。フィルムを 4 辺で保持することにより、10 cm 角の板状基板と同様に取り扱える設計とした。材質には耐熱性及び熱伝導の良いモリブデン金属を用いることで、膜の均一性、均質性の良い膜製膜を可能とした。また、今回選定したモリブデン金属は Cu(In, Ga)Se_2 (CIGS) 製膜時の Se 雰囲気下でも腐食が起きにくく、Fe 等の不純物源を含まないため、CIGS 製膜に適している。

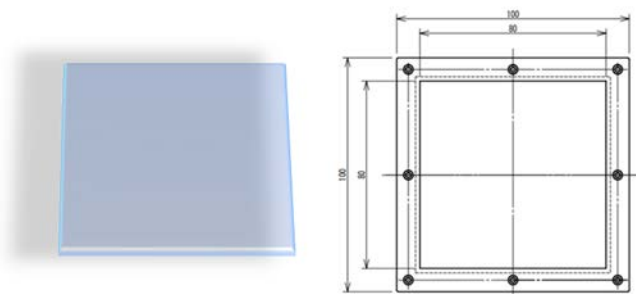


図 3.1.2

(左) 通常用いる基板イメージ図 (ガラス基板) (右) フィルム向け治具 (設計図)

図 3.1.3 に 10 cm 角ガラス基板 (①)、ポリイミドフィルム基板 (②) 及び治具に取り付けたポリイミドフィルム (③) を示す。ガラス基板は剛直でありハンドリングが容易である。ポリイミドフィルムはフレキシブルであるが、ガラス基板と同様の取り扱いことは難しい。今回作製したフィルム向け治具にポリイミドフィルムを取り付けた状態 (③) では、ポリイミドフィルムを板状基板と同様に扱うことが可能となる。

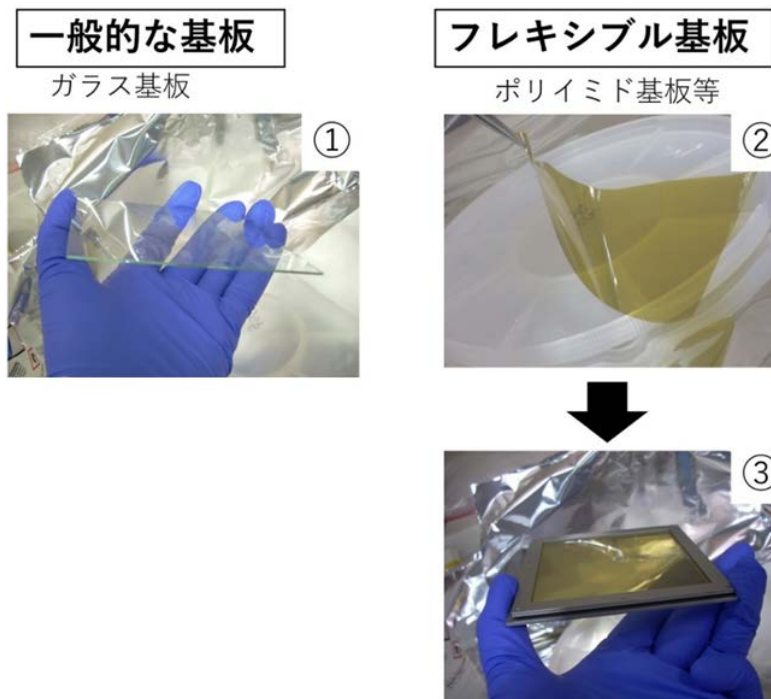


図 3.1.3

①10 cm 角ガラス基板、②ポリイミドフィルム
③治具に取り付けたポリイミドフィルム (板状基板と同様に扱うことが可能)

図 3.1.4 及び図 3.1.5 に 10 cm 角ガラス基板（左）及び治具に取り付けたポリイミドフィルム（右）を同時蒸着製膜装置用のホルダー及び化学溶液堆積法用のホルダーに設置した際の外観写真を示す。本治具を用いることでポリイミドフィルムを板ガラスと同様に設置可能とした。

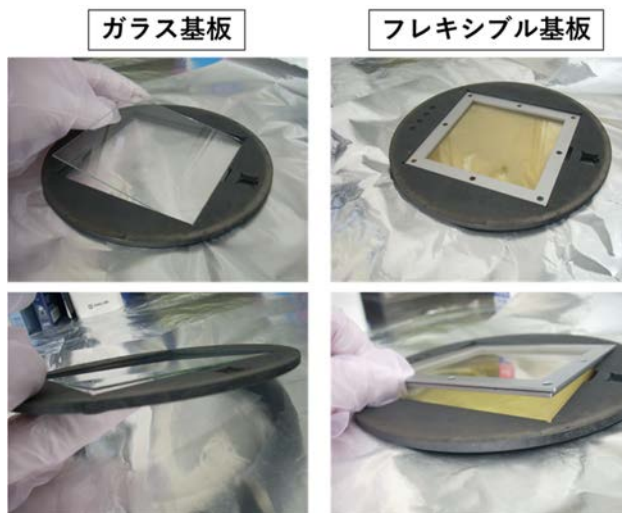


図 3.1.4

（左）10 cm 角ガラス基板、（右）治具に取り付けたポリイミドフィルムを同時蒸着製膜装置用ホルダーに設置した際の外観写真



図 3.1.5

（左）10 cm 角ガラス基板、（右）治具に取り付けたポリイミドフィルムを化学溶液堆積法用ホルダーに設置した際の外観写真

次に、CIGS 光電変換層の製膜について検討をした。CIGS 光電変換層は同時蒸着法を用いて製膜を行った。同時蒸着法の装置構造概略図を図 3.1.6 に示す。 10^{-5} Pa 以下の真空雰囲気において高温に加熱した金属の蒸着源を複数用いて同時蒸着を行う。また、同装置には放射温度計が備えられており、製膜試料表面より放射される赤外線強度を観測することが可能である。CIS 光電変換層には3段階に分けて複数の蒸着源を照射する「3段階法」を用いた[1]。1段階目では Ga、In、Se を照射し、2段階目では Cu、Se を照射した。最後に3段階目では Ga、In、Se を再度照射した。Mo 裏面電極を製膜したガラス基板上に、最高製膜温度 550 °C（一般的な製膜）及び 400 °C（低温製膜）にて CIGS 光電変換素子を製膜した際の、製膜試料表面の赤外線強度を放射温度計にて観察し温度換算した結果を図 3.1.7 に示す。赤外線の放射光強度（図中の温度）は、結晶の膜厚が変

化するのに伴い干渉効果により振動する。1段階目では(In, Ga)₂Se₃の結晶、2、3段階目ではこれらとCu-Se相が反応することで得られるカルコパイライト結晶が良好に製膜される場合には振動が観察される。一方、未反応の金属の析出等が生じると振動は生じない。今回、一般的な製膜と同様に低温製膜においても、良好な結晶成長を示す振動が観測された。

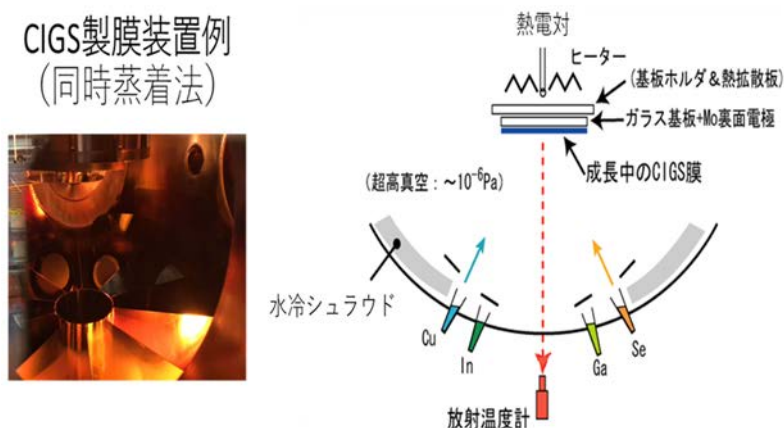


図 3.1.6 同時蒸着装置構造概略図

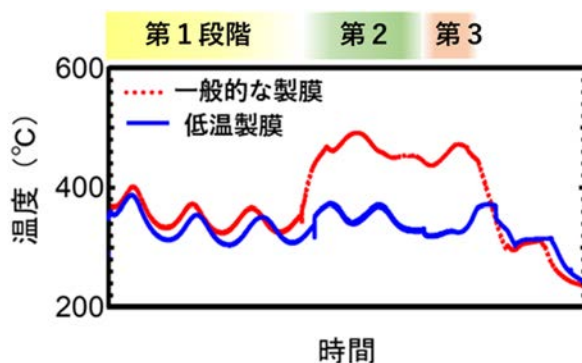


図 3.1.7 放射温度計により観察した、製膜試料表面温度の時間変化

3.2 ホウ素微小粉末の作製（再委託先：東北大学）

3.2.1 ホウ素微小粉末の作製（再委託先：東北大学）

(1) 実施内容及び成果

① 微細粉末製造の準備

1) 試験準備

中性子コンバータ材として用いるホウ素粉末を微細化するためのボールミリング（BM）処理に用いる容器とボールの素材選定を行った。選定にあたっては、コストの観点から市販製品を対象とすること、核的特性の観点から金属素材を避けること、力学特性の観点から硬いホウ素粉末による損耗が少ない素材を検討した。BM処理にあたっては、当グループで保有する高エネルギーボールミル装置である空冷式遊星型ボールミル P-5（フリッチェ製）か水冷式高エネルギーボールミル装置EMAX（レッチェ製）を用いることになるため、これらに適用可能な容器と、容器と同一素材のボールを選定した。予備検討では、既に保有している P-5 用のアルミナ製の容器とボールを用いたが、本研究では P-5 用の粉砕効率に優れているとされる窒化ケイ素（ Si_3N_4 ）製の容器とボール（図 3.2.1）を選定した。窒化ケイ素はアルミナと同程度の硬さを有しているが、Si は Al よりも中性子吸収が少なく、不純物としての混入した際のホウ素層のコンバータとしての機能への影響が小さいことが期待されることが選定理由である。



図 3.2.1 ボールミリング用に導入した窒化ケイ素製容器

容器内部への大気リーク防止のために、写真に示すようにロックシステムを用いて外側から挟み込むことによって蓋を固定して、BM 処理に供した。

2) 粉末製造試験

BM処理に用いるホウ素の出発素材は、市販の単体ホウ素粉末を用いることとした。商用で利用可能なホウ素粉末の諸元を表 3.2.1 に示す。ホウ素は融点が高く、微細粉末を工業的に得ることはコスト的に難しいと考えられる。海外商社では $1\ \mu\text{m}$ サイズのものも売られているが、純度が他社製品よりも低いため除外した。結果として、同程

度のサイズと純度を有しており、より安価な高純度化学研究所が販売している 99% (2N) 粉末を採用した。購入時に添付されたミルシートによると、不純物とその濃度は 0.03%Al、0.03%Fe、0.05%Mn、0.07%Si となっていた。

BM 処理は次の要領で実施した。空冷式の遊星型ボールミル P-5 (フリッチュ製) 用 に選定した Si₃N₄ 容器と Si₃N₄ ボール (10 BMφ) をアルゴン置換したグローブボックス 内に導入し、購入したホウ素粉末を秤量してセットした。アルゴン雰囲気中の酸素濃 度は<1 ppm となるように循環純化システムによって維持・管理されている。ボールと 粉末の重量比は BM 処理に一般的な 10:1 とした。BM 処理は P-5 を用いて回転数 200 rpm において実処理時間が 5、10、20 h となるように、容器内の温度上昇を防ぐため に 30 分運転→15 分休止を繰り返す間欠運転を実施した。回転数の影響を見るために、 400 rpm、10 h についても実施した。

表 3.2.1 市販ホウ素粉末の諸元

販売社	名称 (型番)	サイズ	純度	最小単位	定価
高純度化学研究所	結晶性粉末 (BBE01PB)	M45 μm 以下	2N	25g	23,400 円
ニラコ	粉末 (B-054101)	45 μm	99%	10g	17,000 円
Goodfellow	粉末 (B 006012)	最大 45 μm	98%	10g	不明
	粉末 (B 006020)	平均 1 μm	92.1%	10g	不明
	粉末 (B 006041)	最大 0.9 μm	95%	10g	不明

3) 粉末評価

BM 処理への粉末投入量、粉末回収量、回収率を表 3.2.2 に示す。図 3.2.2 に示すよ うに、BM 処理時間とともに粉末回収率は低下し、BM 処理時間が 20 h に到達すると回 収率の低下のみならず、バッチ毎のバラツキも大きくなることがわかる。BM 処理回転 数の影響を比較すると、400 rpm のほうが僅かながらも回収率の低下が大きくなった。 回収率の低下の要因は、容器やボール表面への付着である。特にボール表面には、BM 時間の増加とともに付着量が多くなる様子が見られた。

表 3.2.2 BM 処理によるホウ素粉末量の変化と回収率

Sample	200rpm, 5h	200rpm, 10h	200rpm, 20h	200rpm, 20h	400rpm, 10h
投入量 (g)	1.06	1.05	1.11	1.08	1.07
回収量 (g)	1.00	0.96	0.80	0.89	0.96
回収率 (%)	94	91	72	82	92

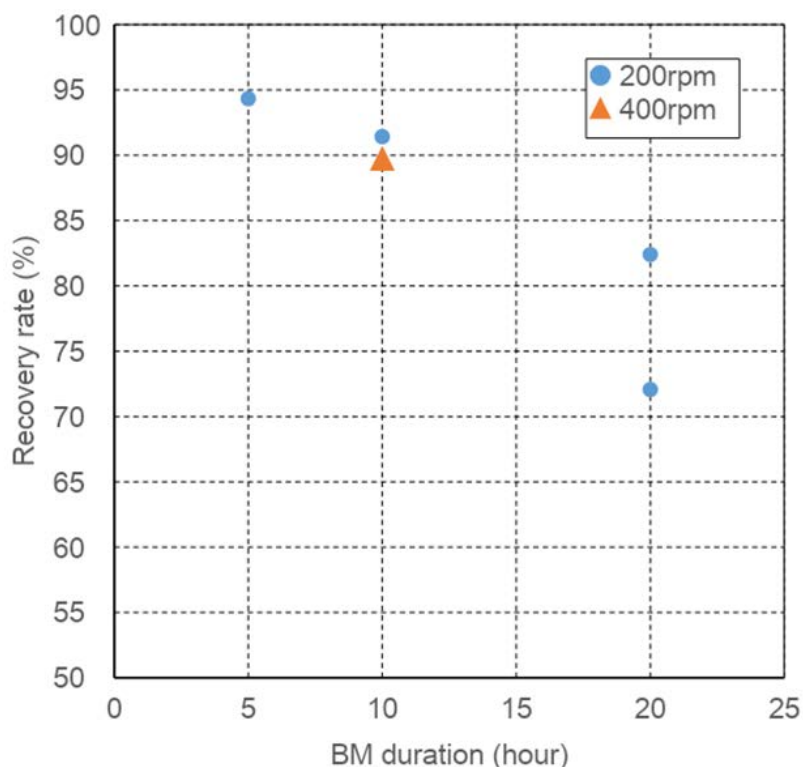


図 3.2.2 粉末回収率の BM 処理時間依存性

図 3.2.3 には、粒子画像分析装置モフォロギ 4 (Malvern Panalytical) を用いて取得した光学画像を示す。黒いコントラストが粉末に対応する。BM 処理によって微細化していることが見て取れるが、粗大な黒点も BM 処理時間とともに増加していることがわかる。図 3.2.3 の画像自動計測によって得られた粉末の粒度分布測定結果を図 3.2.4 ~ 図 3.2.6 に示す。図 3.2.4 の個数基準粒度分布は、測定装置の測定限界である $0.2 \mu\text{m}$ で打ち切られた対数正規分布に従っており、最頻径は、As Received : $1.7 \mu\text{m}$ 、BM 処理 10 h : $1.0 \mu\text{m}$ 、BM 処理 20h : $1.2 \mu\text{m}$ となっており、BM 処理によって微細化が進んでいることがわかるが、粒子径分布の全体的な特徴は見えにくい。また、検出限界に近い $0.2 \mu\text{m}$ 付近にピークを持つ分布も As Received と 20 h 処理試料に見られるが Artifact である可能性も否定できない。一方、図 3.2.5 に示す体積基準粒度分布では、As Received がカタログ値に対応する約 $45 \mu\text{m}$ に最頻径を有する正規分布（あるいは約 $25 \mu\text{m}$ にもピークを持つ分布との 2 つの正規分布の重なり）と考えられる分布形状をしているのに対して、BM 処理剤では大きな粒子径の頻度の増加が明確に示されている。体積基準粒度分布は、粒子径の 3 乗すなわち体積（あるいは質量）に比例する重みがかかっており、粒子径の大きいほうの頻度が高くなるためである。体積基準粒度分布では、BM 処理時間が 10 h において微細な粒子の最頻径は約 $15 \mu\text{m}$ となっているが、20 h まで BM 処理時間が増加してもさらなる微細化は起こらず、むしろ凝集粒子の頻度が大きくなることがわかる。図 3.2.6 には、ホウ素粉末の個数基準アスペクト比分布を示す。As Received のホウ素粉末の最頻アスペクト比が約 0.8 であったのに対して、BM 処理後は処理時間に関わらず約 0.9 まで増加しており、球状化が進んでいることが示唆された。

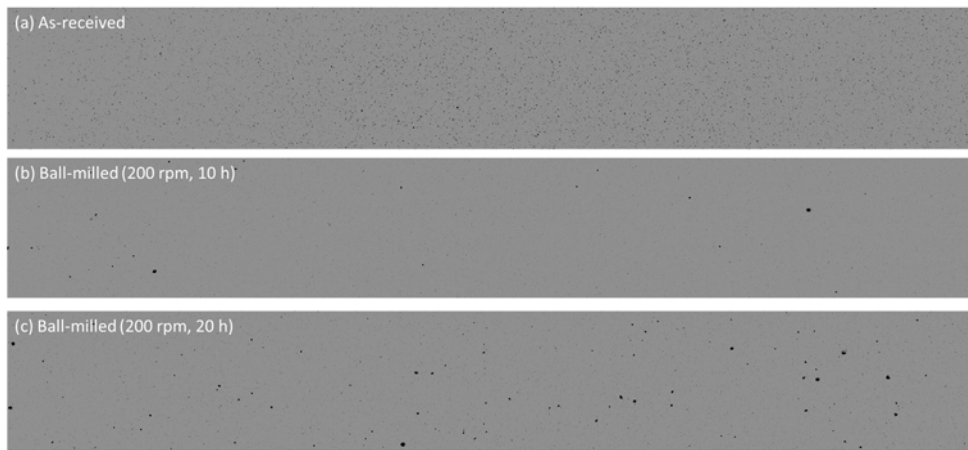


図 3.2.3 モフォロギ 4 で取得したホウ素粉末の粒子画像

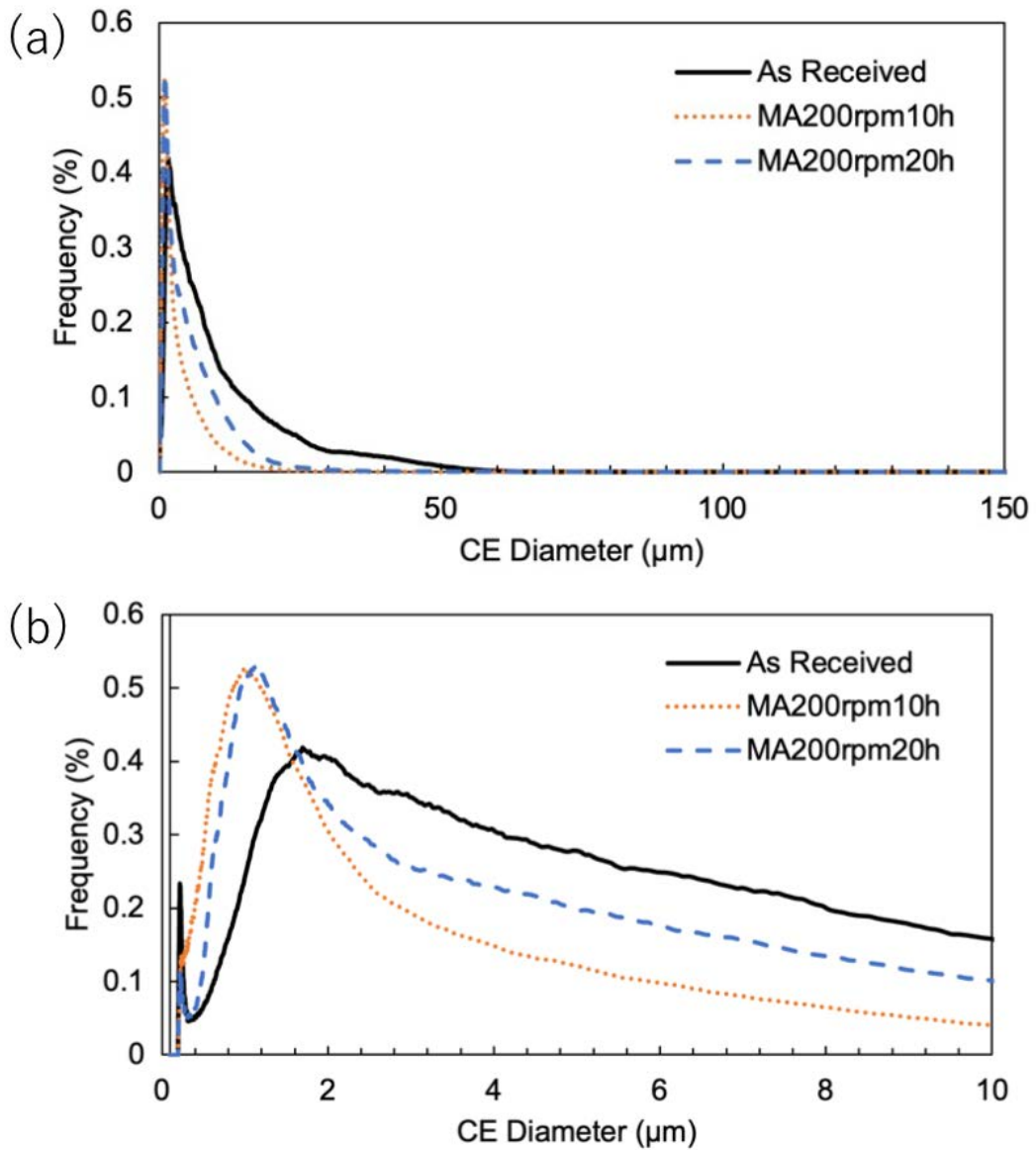


図 3.2.4 ホウ素粉末の個数基準粒径分布(a)粒径 0-150 μm、(b)粒径 0-10 μm の範囲

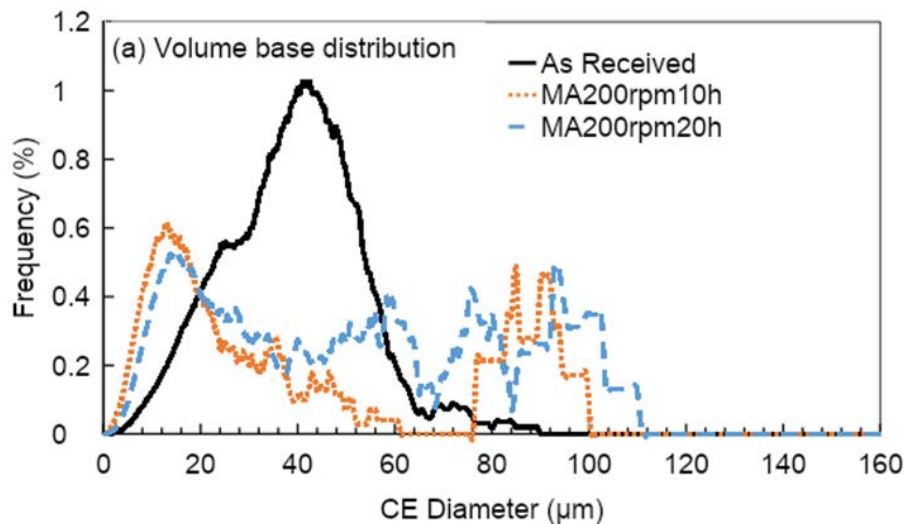


図 3.2.5 ホウ素粉末の体積基準粒径分布

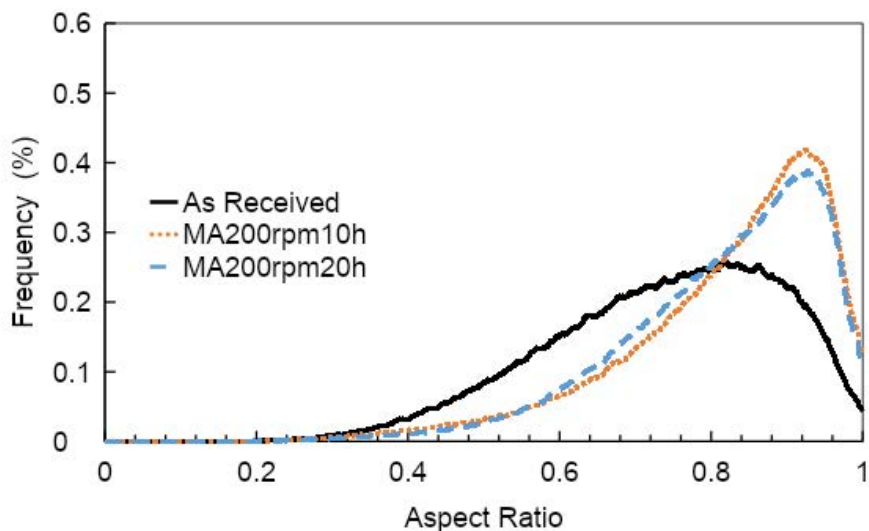


図 3.2.6 ホウ素粉末粒径の個数基準アスペクト比分布

東北大学金属材料研究所分析コアにおいて、As Received 及び 200 rpm、20 h の BM 処理したホウ素粉末の化学分析を行った。Si はマイクロ波発光分析法、Fe はフレイム原子吸光法、C は燃焼 - 赤外線吸収法、O は He 搬送融解 - 赤外線吸収法、N は He 搬送融解 - 熱伝導度法によって定量された。BM 処理後の Si と Fe については 2 回目の処理材についても測定を行った。表 3.2.3 に示すように、BM 処理後においてすべての測定元素の増加が見られたが、特に Si と N の増加が著しく、BM 処理に用いた Si_3N_4 媒体の摩耗・混入による汚染の影響と考えられる。N の増加量に比して、O、C の増加量は低く抑えられており、大気リークの影響は少ないと考えられる。Fe 量が僅かながら増加する原因は不明であるが、出発原料に含まれる量と同じオーダーであり、BM 処理の影響は小さいと考えられる。

表 3.2.3 ホウ素粉末の化学分析結果 (mass%)

B 粉末	B	Si	Fe	N	O	C
As Received	(bal.)	0.068	0.025	0.0057	0.170	0.306
		0.066	0.025	0.0061	0.166	0.287
200rpm, 20h	(bal.)	0.329	0.049	0.274	0.614	0.359
		0.342	0.048	0.287	0.595	0.352
200rpm, 20h	(bal.)	0.205	0.060	-	-	-
		0.208	0.058			

BM 処理によるホウ素粉末の形態の変化について電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) によって調べた。図 3.2.7 には 2 次電子像 (400 倍) をまとめて示す。As Received 材に着目すると、カタログに示された通り M45 μm に対応するように、数十 μm 級の粗大なフレーク状あるいは塊上の粉末とともに、粒径 1 μm 級の粉末が見られる。BM 処理を施すと、処理時間 5 h において既に数十 μm 級の粗大な粉末は見られなくなり、多くは数 μm 程度の粉末となっている。処理時間 20 h に達すると粒子の凝集が多く見られるようになってきている。図 3.2.8 には、200 rpm、20 h の BM 処理後のホウ素粉末の EPMA による化学組成マップを示す。カーボンテープ上に粉末を固定したため、炭素についての情報の信頼性は低い。Si については粉末中に均一に存在する他に、ところどころに Si が凝集した粉末が見られ、化学分析で見られた不純物の増加に対応している可能性がある。Fe についても凝集が見られるが、化学分析によると BM 処理による増加量が微かであり、原料粉末中に含まれる不純物由来のものかもしれない。

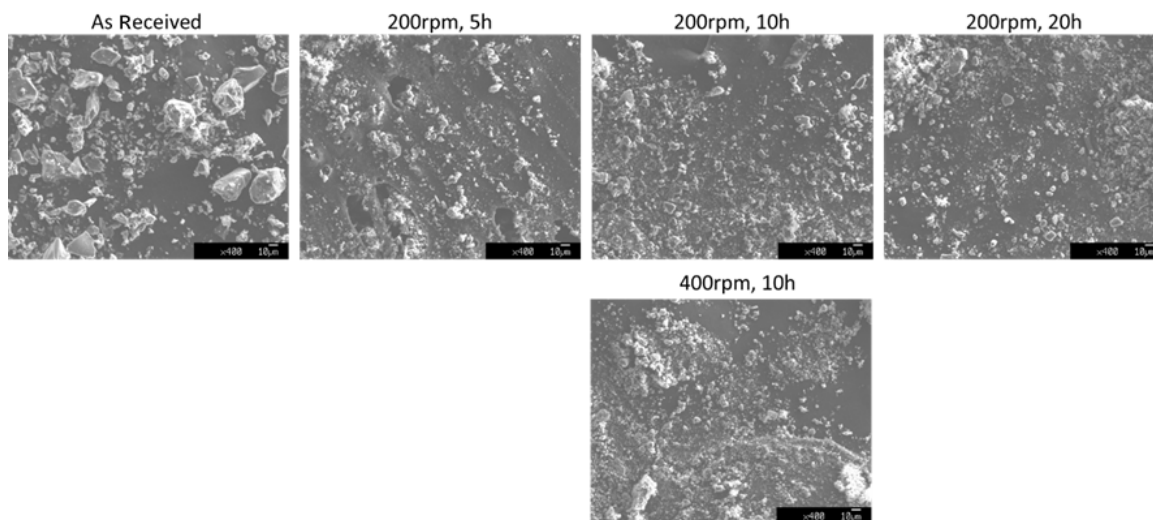


図 3.2.7 EPMA によって取得したホウ素粉末の 2 次電子像

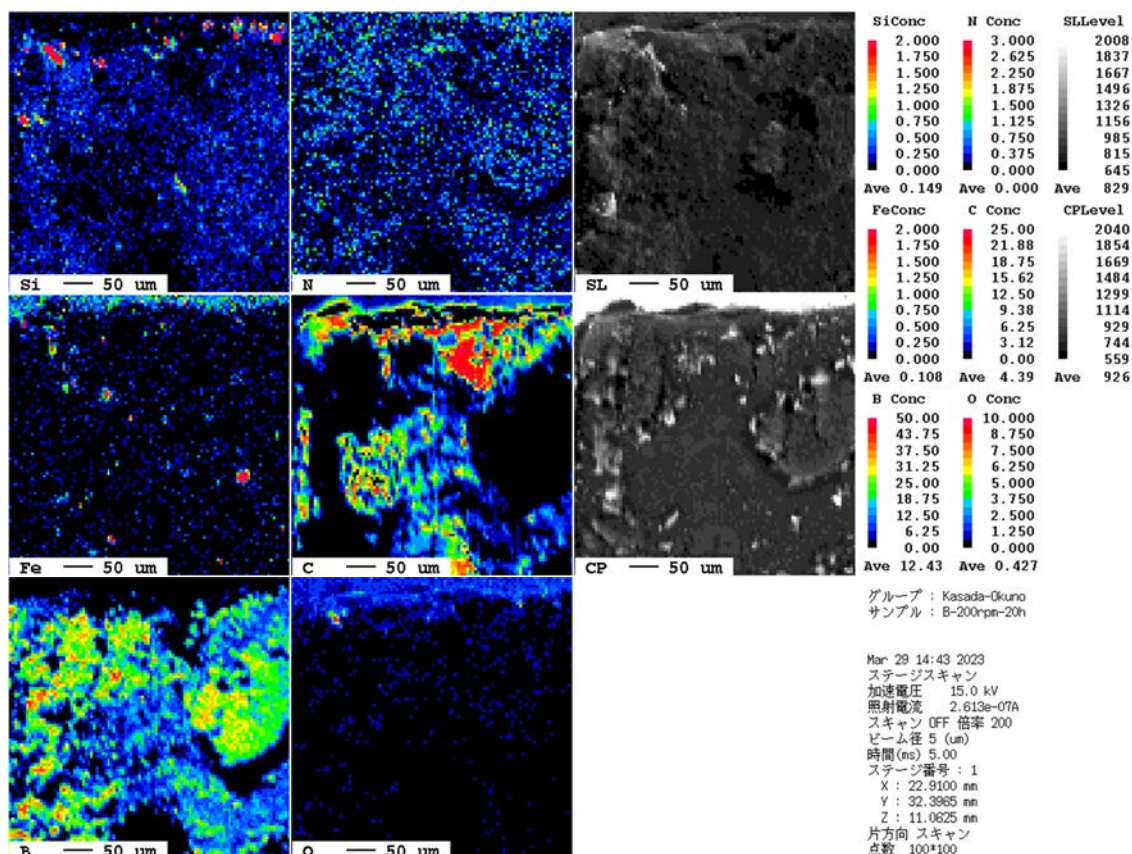


図 3.2.8 EPMA による元素マップ分析結果

4) まとめ

中性子コンバータ材の原料として用いるホウ素単体粉末を微細化する方法の候補として BM 処理の適用性を調べた。媒体素材等の処理条件の探索を行い、得られた粉末のサイズ分布の測定結果から、BM 法における適切な条件を選定し、以下の結論を得た。

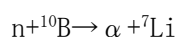
- ホウ素粉末の BM 処理に用いる容器やボールの媒体素材には、中性子コンバータとしての核的機能の観点から避けるべき不純物混入を低減できる Si_3N_4 を用いることとした。
- ホウ素粉末の回収率に及ぼす BM 処理時間については、200 rpm においては 10 h までは 90% 台と緩やかに低下するが、20 h では 72% まで大きく低下し、対応するように粉末の凝集が多くなっている。
- ホウ素粉末の最頻径については、個数基準で As Received: 1.7 μm から BM 処理 10 h 後に 1.0 μm まで減少した後 20 h 後に 1.2 μm に増加した。体積基準では、As Received: 約 45 μm から BM 処理後 10 h 後に約 15 μm まで減少し、20 h 後もあまり変化しなかった。
- 200 rpm、20 h の BM 処理によって混入する主要な不純物は、容器やボールの媒体素材由来の Si、N であり、それぞれ 0.3 mass% 程度であった。

以上の結果より、本研究で検討した条件においては、BM 処理時間の増加とともに粉末の凝集が進むことによって回収率が低下することから、十分に微細化が進行している 200 rpm、10 時間の処理時間が適切であると結論づけた。Si や N に代表される不純物の許容濃度については、核的機能から求められる制限の詳細について検討した上で、BM 処理が適用可能かを調べる必要がある。

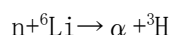
3.3 有機バインダと焼結条件の探索

我々はこれまでに、CdTe、InGaP などの太陽電池が過酷放射線環境下における線量計として適用できることを明らかにしてきた[2]。しかし、太陽電池型線量計は中性子線に対してほとんど感度を有していないことが明らかとなった[2]。そこで、太陽電池と中性子コンバータを組み合わせた太陽電池型中性子線量計の開発を試みた。本研究では、太陽電池型線量計を中性子束モニタとして使用可能にするためのコンバータの作製を目的として、スクリーン印刷法により B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜の作製と評価を行った。

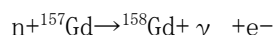
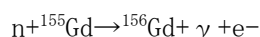
ホウ素 10 (¹⁰B) は中性子との核反応によって下記のように、ヘリウム原子核 (⁴He 原子核 (アルファ線)) とリチウム原子核 (⁷Li 原子核) が放出される。主な中性子捕獲反応の反応断面積は 3,837 barns であり、反応後の荷電粒子のエネルギーはアルファ粒子が 1.47 MeV、⁷Li が 0.84 MeV である。なお、天然 B 中の ¹⁰B の存在比は 19.9% である。



また、リチウム 6 (⁶Li) は中性子との核反応によって下記のようにヘリウム原子核 (⁴He 原子核 (アルファ線)) とトリチウム原子核 (³H 原子核 (三重陽子)) が放出される。反応断面積は 940 barns であり、反応後の荷電粒子のエネルギーはアルファ粒子が 2.05 MeV、³H が 2.74 MeV である。なお、天然 Li 中の ⁶Li の存在比は 7.5% である。



これに対して、ガドリニウム 155 (¹⁵⁵Gd)、ガドリニウム 157 (¹⁵⁷Gd) は熱中性子を吸収する能力が極めて大きく、下記のように中性子を捕獲すると即発ガンマ線と内部転換電子を放出する。反応断面積は ¹⁵⁵Gd の場合 60,900 barns、¹⁵⁷Gd の場合 254,000 barns であり、転換電子のエネルギーは 0.029 eV~0.25 eV である。なお、天然 Li 中の ⁶Li の存在比は ¹⁵⁵Gd が 14.8%、¹⁵⁷Gd が 15.7% である。



また、Gd は B と反応断面積のエネルギー依存性が異なっていることから、B と併用することで中性子のエネルギーについての情報を得られる可能性がある。また、ホウ素 (¹⁰B)、リチウム (⁶Li) は中性子をアルファ線に変換するが、Gd は中性子をガンマ線及び内部転換電子に変換することから太陽電池のアルファ線による劣化を防ぐことができる。

原料粉末には B₄C 粉末 (B4C-1、E-Metals、粒度:1 μm)、LiF 粉末 (LIH10XB、関東化学)、Gd₂O₃ 粉末 (GD001PB、高純度化学) を用いた。原料粉末とアクリルバインダ (OLYCOX KC-1700P、共栄社化学) と酢酸ブチルを混合して 100 mm 角のガラス基板 (Corning Eagle XG) 上にスクリーン印刷し、300 °C で 15 分間加熱して B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜を作製した。粉末、酢酸ブチル、アクリルバインダの重量は、B₄C 膜の場合はそれぞれ、6.0 g、7.2 g、2.4 g、LiF 膜の場合、8.0 g、7.2 g、3.2 g、Gd₂O₃ 膜の場合、9.0 g、5.4 g、1.8 g とした。図 3.3.1 に用いたスクリーン印刷装置の外観を示す。この装置を用いて手刷りで印刷を行った。

B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜の厚さは約 20 μm である。膜厚については、B₄C 膜の最適膜厚は 5 μm 程度と見積もられており、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜については最適膜厚は異なると考えられるが、今回はまず同一の膜厚で比較を行うこととした。PHITS 計算による最適膜厚のシミュレーション及び膜厚依存性の検討は今後の課題である。作製した B₄C 膜、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜の外観を図 3.3.2～図 3.3.4 に示す。100 mm 角の基板内に 82 mm 角で印刷している。このように 82 mm 角の範囲ではほぼ均一な膜を作製することができた。また、この成膜条件の場合には簡単に剥離しない程度の機械的強度は得られているが、成膜条件による機械的強度の最適化などは今後の課題である。機械的強度の測定法としてはスコッチテープテストなどを検討している。

また、B₄C 膜について、印刷時と加熱後の重量を計測した。印刷後の重量はガラス基板を除いて 0.26 g、加熱後の重量はガラス基板を除いて 0.12 g であった。B₄C 膜の粉末、酢酸ブチル、アクリルバインダの重量は 6.0 g、7.2 g、2.4 g であることから、加熱時に酢酸ブチルが揮発したと仮定すると、アクリルバインダの残渣は 0.02 g と見積もられる。加熱開始までの酢酸ブチルの揮発を考えると実際にはアクリルバインダの残渣はこれらの値より小さいと考えられる。アクリルバインダの残渣を 0.02 g とすると、B₄C 膜の重量は 0.10 g となる。このことから、面積を 8.2 cm×8.2 cm、厚さを 20×10^{-4} cm として密度を計算すると 0.74 g/cm³ と見積もられた。固体 B₄C の密度は 2.52 g/cm³ であることから、得られた B₄C 膜の密度は固体 B₄C の密度の 30% 程度であり、多孔質状の膜が得られていると考えられる。成膜条件と密度の関係、断面観察による構造の評価などが今後の課題となる。

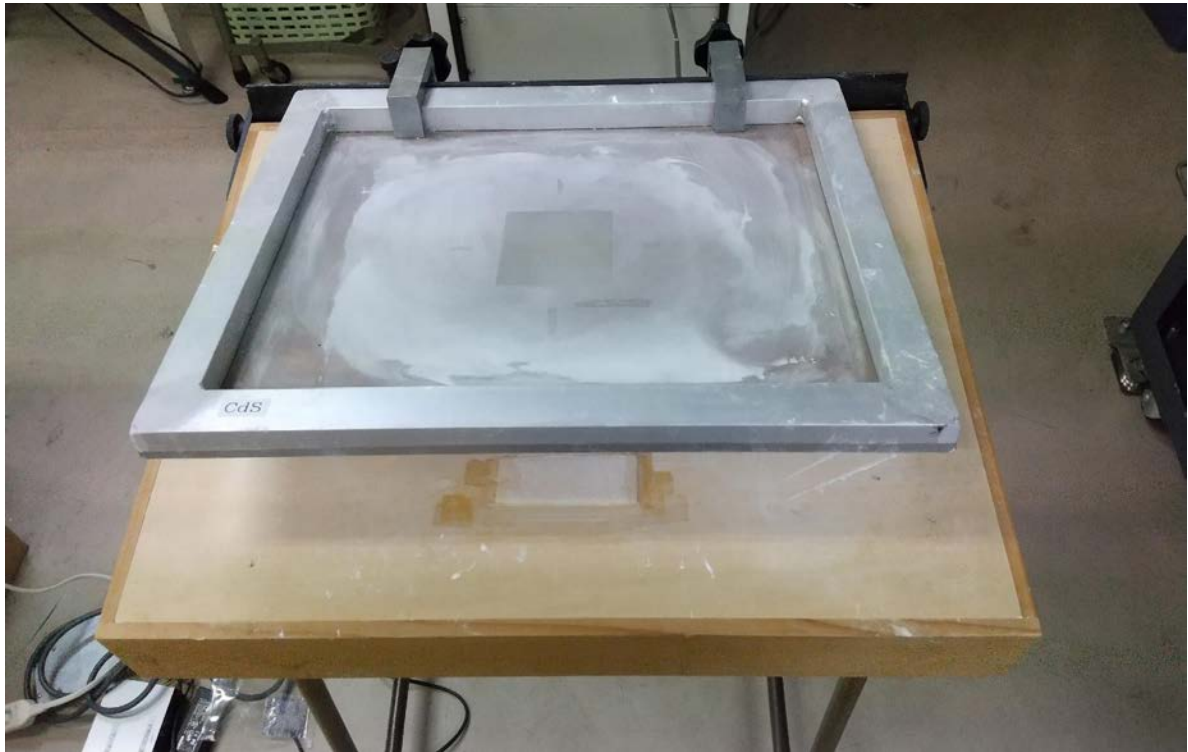


図 3.3.1 本研究で用いたスクリーン印刷装置の外観

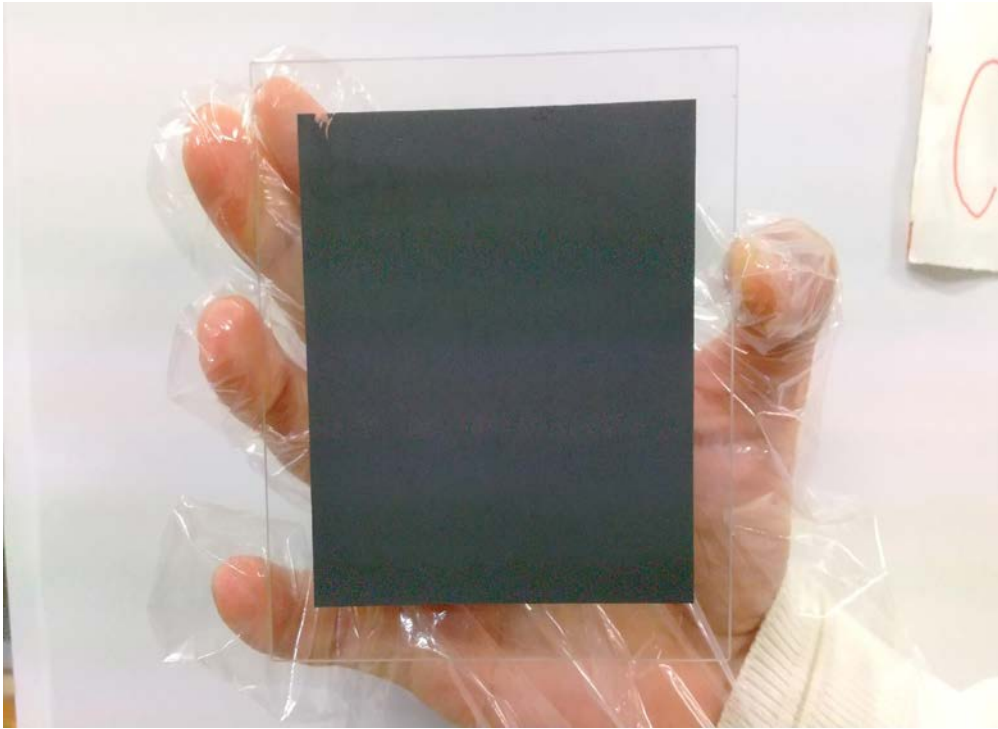


図 3.3.2 本研究で作製した B_4C 膜の外観

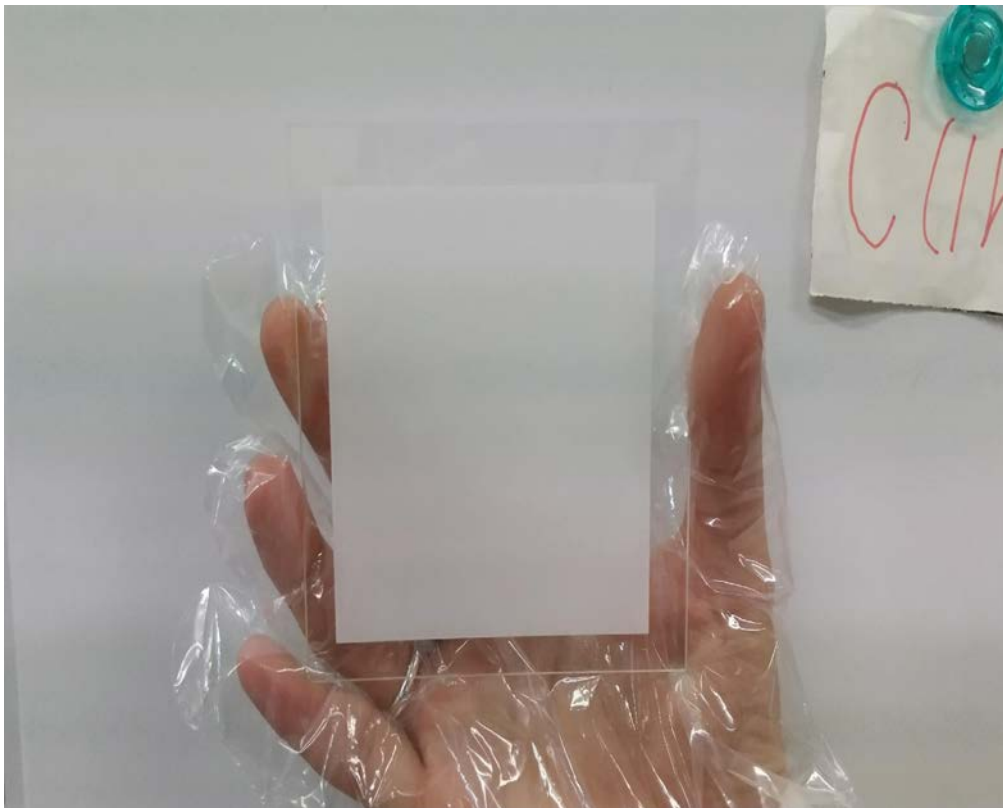


図 3.3.3 本研究で作製した LiF 膜の外観

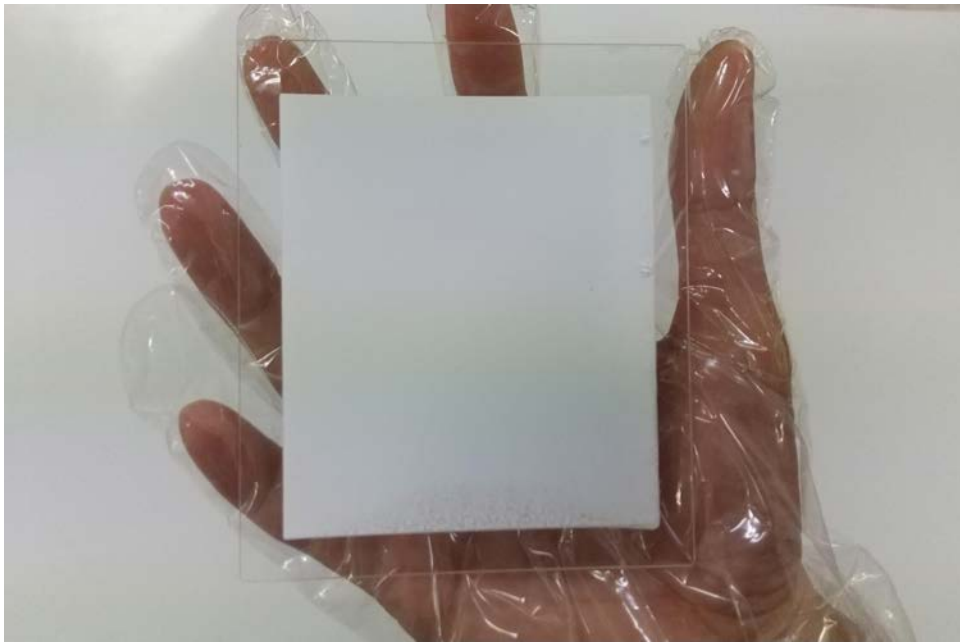


図 3.3.4 本研究で作製した Gd_2O_3 膜の外観

次に、X線回折法を用いて作製した中性子コンバータ膜を評価した。図 3.3.5 に作製した B_4C 膜、 LiF 膜、 Gd_2O_3 膜の X 線回折パターンを示す。この図によると、作製した各コンバータ膜において、 B_4C 、 LiF 、 Gd_2O_3 のピークが確認された。このことからスクリーン印刷法によって、 B_4C 膜、 LiF 膜、 Gd_2O_3 膜が得られていることが確認できた。

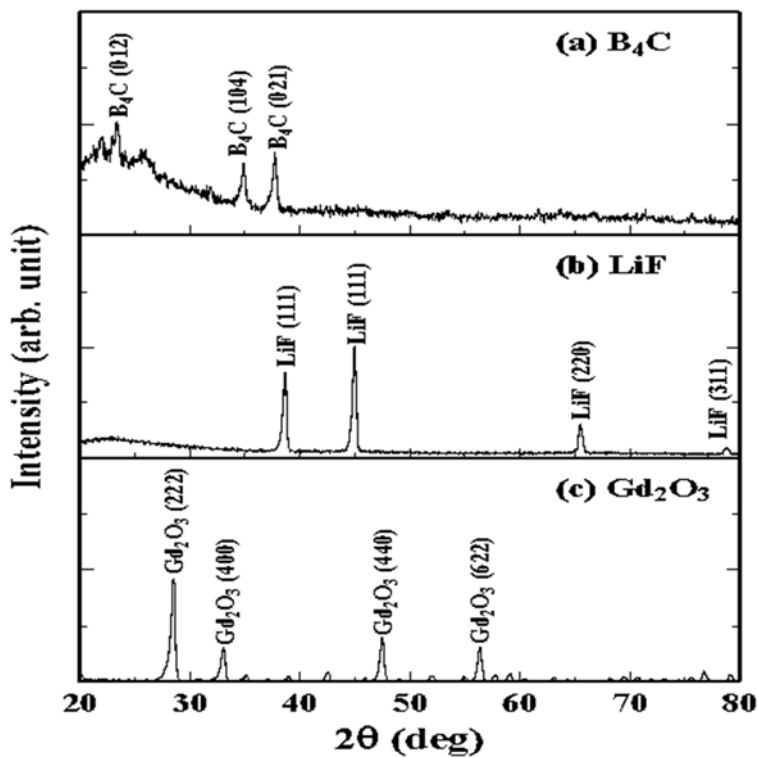


図 3.3.5 作製した B_4C 膜、 LiF 膜、 Gd_2O_3 膜の X 線回折パターン

次に、中性子照射試験を実施した。1×1 cm²のInGaP太陽電池表面上に、0.8×1 cm²のコンバータ膜を接触させた。中性子照射には、理研小型加速器中性子源 RANS を用いた。中性子線はコンバータの厚さの影響がないようにInGaP太陽電池側から照射した。比較のために、コンバータを設置しない場合、B 焼結板をコンバータに用いた場合、ガラス基板 (Corning Eagle XG) のみを設置した場合の中性子照射試験も実施した。コンバータ膜を用いたInGaP太陽電池の誘導電流密度の陽子電流依存性を図 3.3.6 に示す。中性子発生は Be(p, n)B 反応によるため、中性子線量と陽子電流は比例する。また、中性子と同時にガンマ線も発生する。コンバータなしの場合にも誘起電流が観測されているが、これはガンマ線によるものである。また、ガラス基板 (Corning Eagle XG) のみでもガラス中のBの影響で誘起電流が得られている。しかし、コンバータ膜が存在する場合にはガラスから放出されるアルファ線が太陽電池に到達しないため、コンバータ膜を設置した場合には、各コンバータ由来の誘起電流が計測されることになる。また、B₄C 膜では B 焼結板と同程度の感度が得られており、簡便なスクリーン印刷法でも十分な特性が得られることが確認できた。さらに、LiF 膜、Gd₂O₃ 膜を有した場合でも感度が得られており、スクリーン印刷法で作製した中性子コンバータ膜を用いることで、太陽電池型線量計が中性子束モニタとして使用できることわかった。

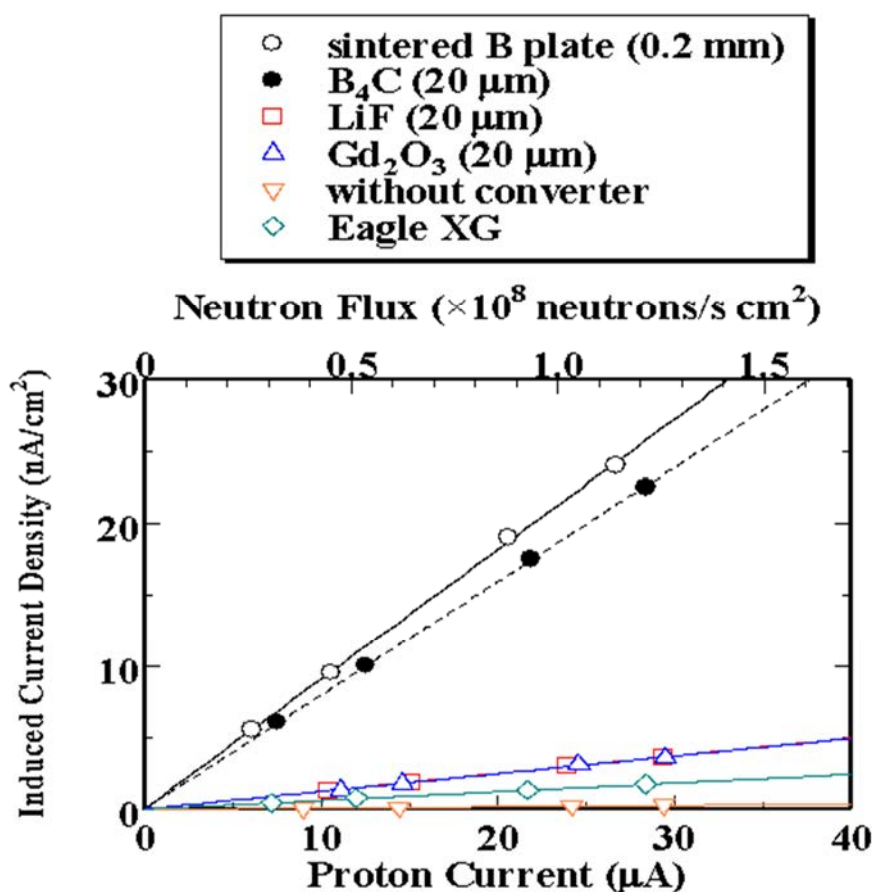


図 3.3.6 コンバータ膜を用いた InGaP 太陽電池の誘導電流密度の陽子電流依存性

次に、中性子コンバータ膜のフレキシブル化を目的として、フレキシブル基板上への成膜を検討した。300 °C以上の耐熱性を考慮して、ポリイミドフィルム (Upilex®-50S, UBE Co.) を基板として選定した。図 3.3.7 にポリイミドフィルム上に作製した B_4C 膜の外観を示す。このように初期的な実験ではあるが、ポリイミドフィルム上の成膜に成功し、図 3.3.7 のように折り曲げでも剥離などは見られていない。今後、様々な条件でポリイミドフィルム上に B_4C 膜、 LiF 膜、 Gd_2O_3 膜を作製し、中性子照射試験等を実施していく予定である。

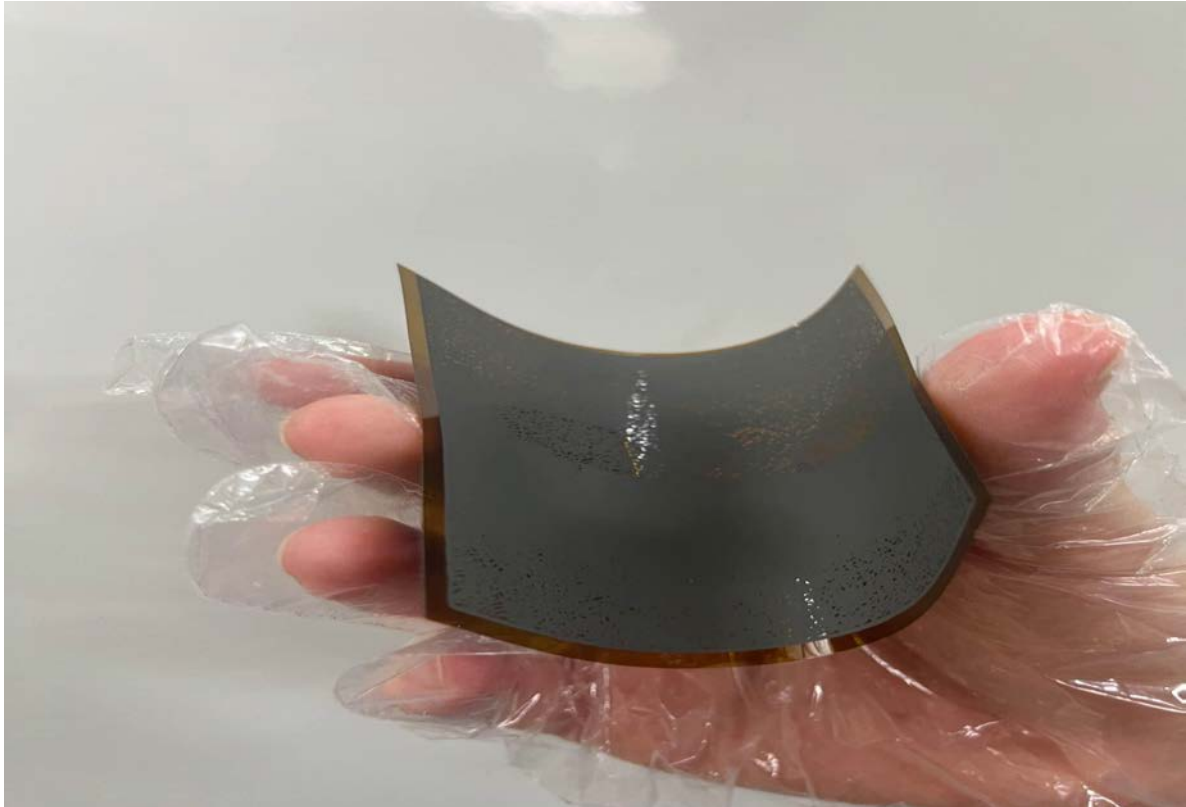


図 3.3.7 ポリイミドフィルム上に作製した B_4C 膜の外観

3.4 中性子試験照射場の整備と中性子束・エネルギースペクトル変動システムの開発

小型加速器中性子源 RANS 及び RANS-II において、太陽電池デバイス実機の照射を行った。各デバイスの挙動詳細については委託元が別項で報告している。図 3.4.1 には RANS の遮蔽体を示す。左側に見えるビーム照射口よりデバイスを挿入し、中性子発生ターゲットであるベリリウム近傍にて計測を行った。



図 3.4.1 加速器駆動小型中性子源 RANS の遮蔽体と中性子ビーム照射口

照射中にビーム軸上に沿って検出器等を移動可能とする直線駆動システムを構築した（図 3.4.2）。長さ 3 m のベルト駆動式リニアステージを使用し、遠隔駆動にてモデレータ近接部から遮蔽体外まで 1 mm 単位で操作可能とした。



図 3.4.2 中性子ビーム照射口に挿入された直線駆動システム

InGaP 太陽電池とホウ素変換膜を用いた中性子検出器を用いてモデレータの位置からステージを移動させながら、太陽電池の誘起電流を取得した。結果を図 3.4.3 に示す。モデレータ表面からの距離に応じてセル発電電流が減少しているが、その減少率がおおよそ 150 cm の地点を境に変化していることがわかった。この位置はちょうどビーム照射口に相当している。

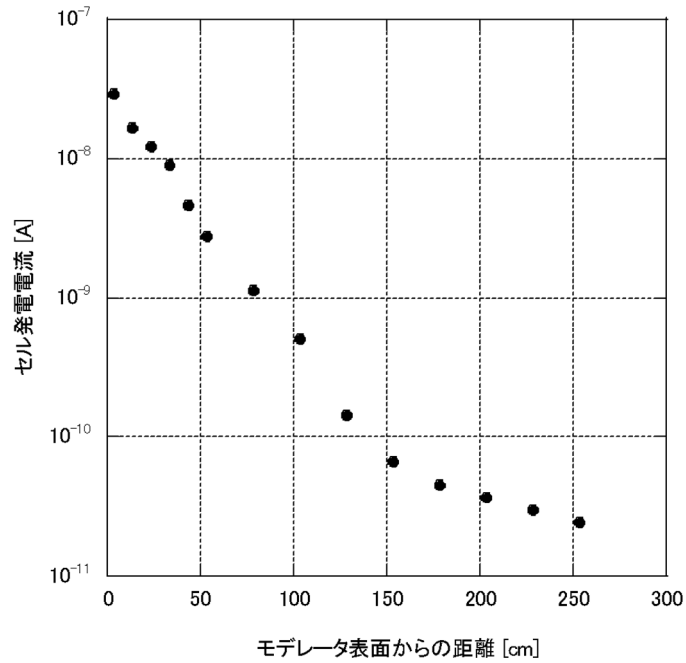


図 3.4.3 コンバータ付 InGaP 太陽電池の発電電流実測値

実測とは別に実験ホールにおける線量の計算評価を行った。図 3.4.4、図 3.4.5、図 3.4.6 はそれぞれ、実験ホール平面図、RANS を 100 μ A で運転した場合の運転条件遮蔽体内部及び近傍における中性子線量率計算結果である。線量計算には PHITS コード (Ver. 3.2.8) を使用した。

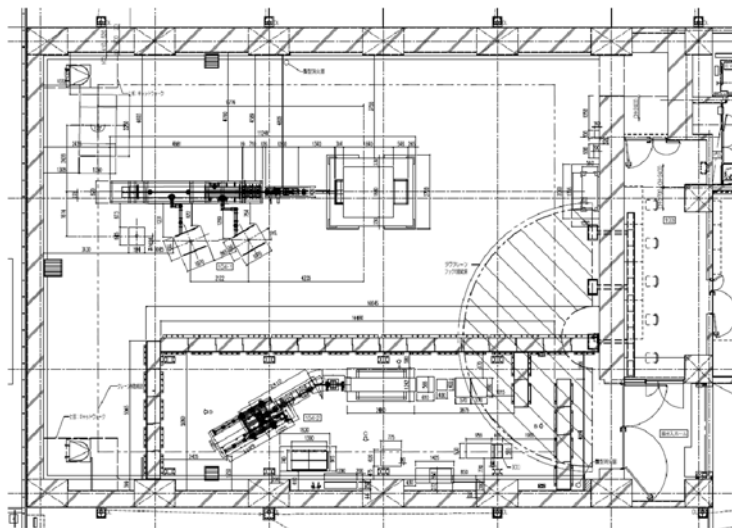


図 3.4.4 RANS 実験ホール平面図

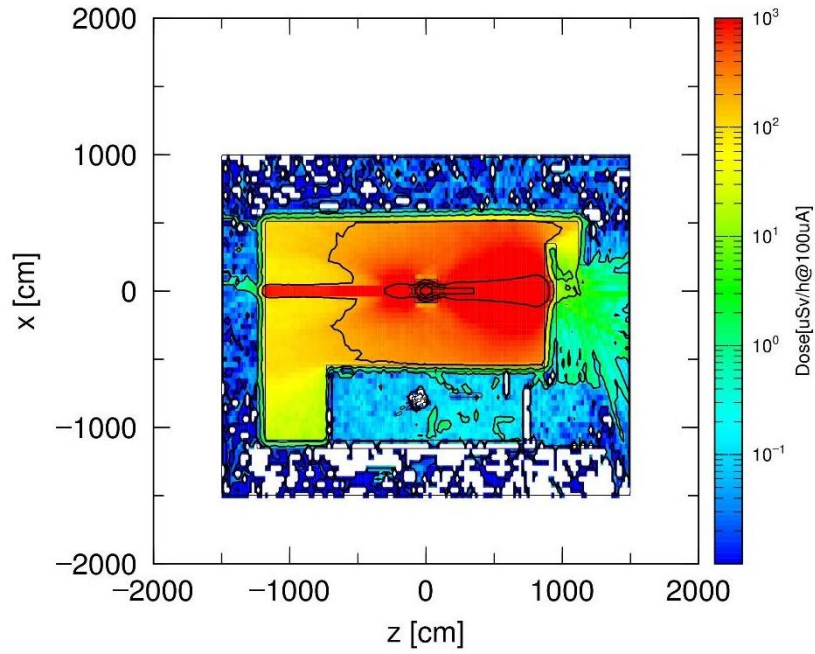


図 3.4.5 RANS 実験ホールの中性子線量率計算結果 (100 μ A 運転時)

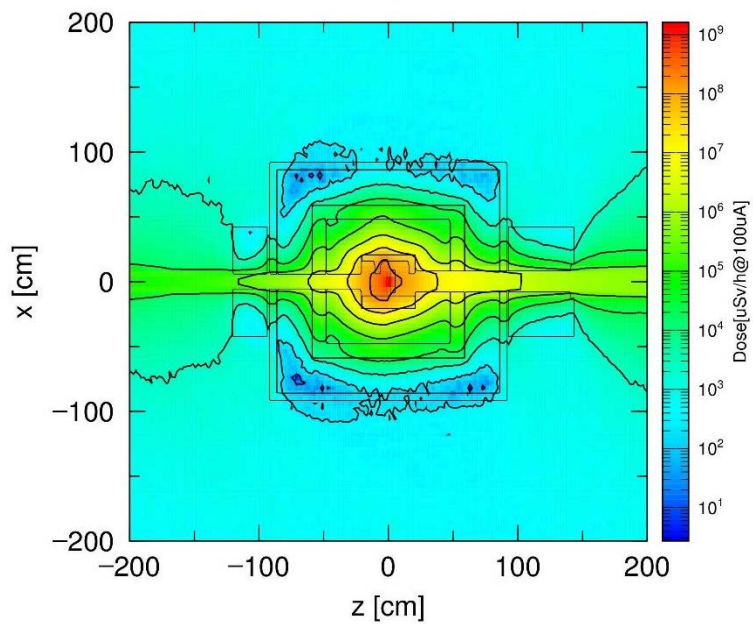


図 3.4.6 RANS 遮蔽体内及び近傍の中性子線量率計算結果 (100 μ A 運転時)

本計算結果をもとに、ホウ素との反応断面積が大きい 100 meV 以下のエネルギーを持つ中性子数をモデレータ表面からの距離に応じてプロットしたものを図 3.4.7 に示す。

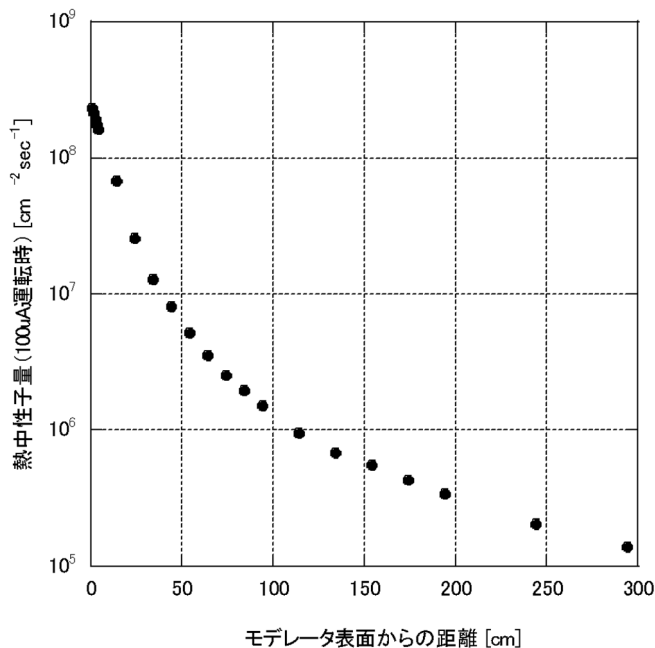


図 3.4.7 RANS における熱中性子束計算結果 (100 μA 運転時)

図 3.4.7 (熱中性子束計算結果) と図 3.4.3 (太陽電池セル発電電流実測値) とを比較すると、いずれもモデレータ直近と距離 250 cm 付近における値の比率はおおよそ 1/1000 となっており減少のオーダーは一致している。しかしながら実測において減少率が変化しているのはビーム口に相当する距離 150 cm 付近であるのに対して、計算評価では遮蔽体内に相当する距離 50 cm から 100 cm において減少率の変化が見られた。差異が生じた要因としては、計算モデルを構築するにあたり、遮蔽体の構造やターゲット周囲の反射体の構造を完全には再現できていない可能性と、今回発電に寄与する中性子エネルギー領域を 100 meV 以下と設定したものの、より細かい範囲分けが必要である可能性が考えられる。

3.5 ガンマ線場、電子線場を利用したシステム照射試験

[概要]

電子線場における照射試験システムの仕様決定と設計を行う。また、照射用照射容器を設計した。

[詳細]

電子線照射システムの使用は、JAXA チャンバの整備及び新たな治具等の改造により本事業を遂行したことの報告内容については、次の 3.6 節に含めて記す。また CIGS 素子を用いたガンマ線線量計の試作機の照射試験に関しては、3.7.2 項に含めて記す。

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構（以下、「QST」という。）高崎量子応用研究所の電子線加速器は、図 3.5.1 に示すように、縦 440.6 cm 及び横 500 cm の大きさを持つコッククロフトウォルトン型電子線加速器である。加速器の使用は、加速電圧で 0.5-2.0 MV、電子電流で 0.1-30 mA である。図 3.5.2 に示すように、加速器から水平及び垂直方向に対してビームラインが伸びており、照射室に接続されている。本研究では、垂直照射室にて照射試験の準備を行った。

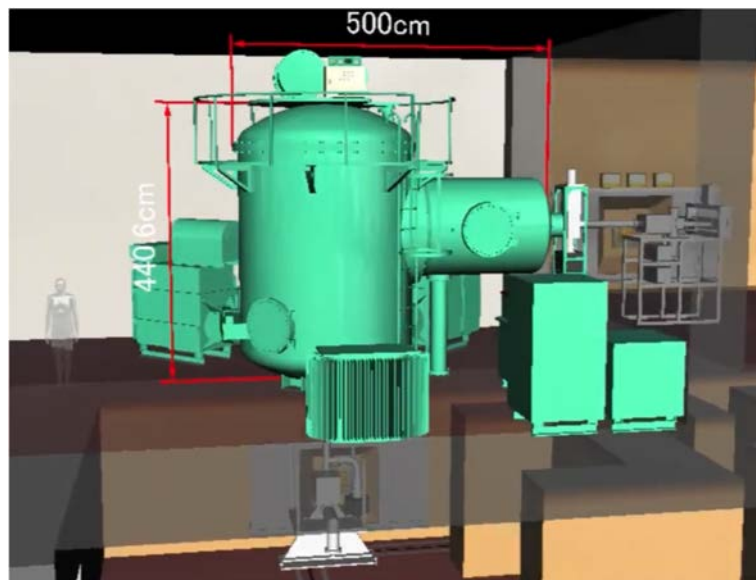


図 3.5.1 1号電子線加速器の外観

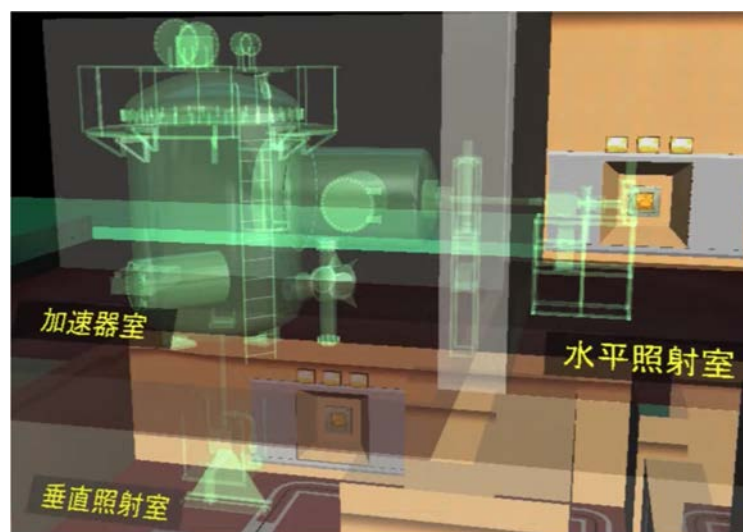


図 3.5.2 加速器と照射室の位置関係

垂直照射室では、図 3.5.3 加速管内で加速された電子は、スキャナによって走査され、チタン製の薄窓（厚さ 0.05 mm）を透過して、幅 120 cm にわたり均一な電子線となって真空中から大気中に取り出される。またスマートモジュールが設置されており、K 熱電対の温度センサーによる温度計測と BNC ケーブルによる電氣的な計測が可能である。電子照射では、材料への線量率やフルエンスを条件毎に算出する必要があるが、設置している試料台車の高さの条件であれば、図 3.5.4 に示す、データシートを利用することで簡易に照射条件を決定することができる。

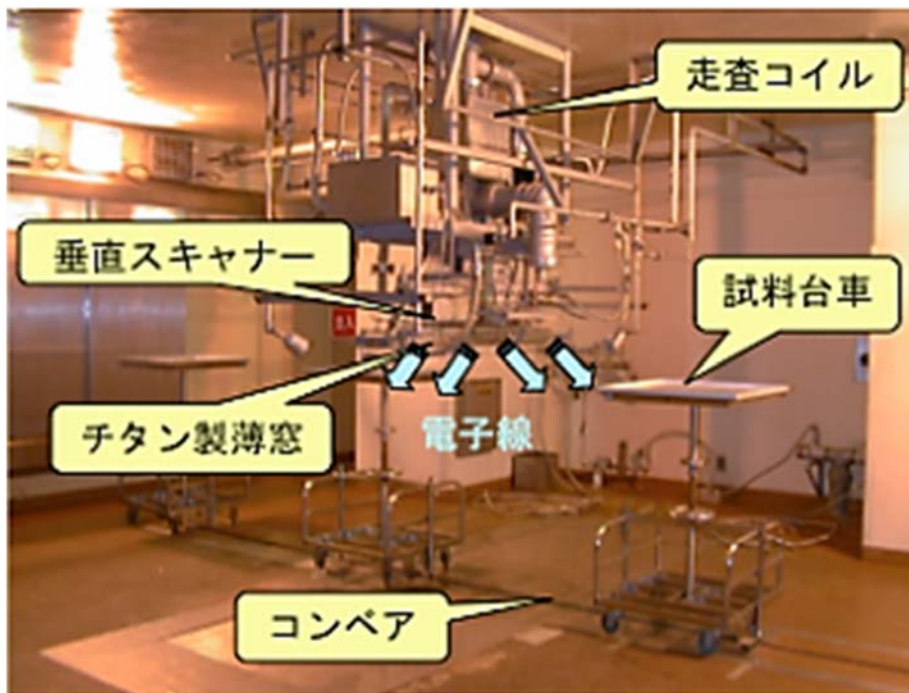


図 3.5.3 垂直照射室での照射体系

1号加速器 線量率一覧(窓下20cm at 1mA) 2022/10/21 現在

加速電圧 [MV]	吸収線量率 D (CTA線量計)				電子流密度 (チャージコレクター)
	コンペア[kGy/Pass at 1m/min]		固定[kGy/sec]		固定 [e/cm ² /sec]
	Sur.	Ave.	Sur.	Ave.	
2	9.64	12.24	1.65	2.33	5.31 E+12
1	11.90	14.39	1.16	1.57	3.13E+12
0.5	12.10	12.10	0.84	0.94	1.50E+12

※その他の条件下での線量率については、照射施設管理課までお問い合わせください。

コンペア速度 $V = D \times I / X$ V: コンペア速度, D: 線量率, I: 電子流, X: 1Passの照射線量

加速電圧 [MV]	電子流 I [mA]	コンペア速度 V [m/min at 10kGy/Pass]	
		Sur.	Ave.
2	2	1.93	2.45
2	3	2.90	3.67

図 3.5.4 1号加速器の線量率一覧

CIGS 太陽電池を用いた試作機の照射では、厚み 1.7 mm アルミニウムを遮光ケースとして、使用しているため、遮蔽効果を検証する必要がある。本年度の照射条件で想定している 1 MeV の電子線の 1.7 mm のアルミニウム透過後のエネルギースペクトルについて PHITS により計算した結果を図 3.5.5 に示す。この結果より、エネルギーは、減弱しており、0.7 keV 付近にピークを持つことがわかる。Co-60 ガンマ線が、Al 板通過後の 2 次電子のエネルギースペクトルも 0.7 MeV 付近にピークを持つことから、この電子線スペクトルは、Co-60 の損傷を模擬するのに良い特性を示していると考えられる。また、フラックスの減弱率については、0.97 であり、電子線の数はほとんど同じであった。

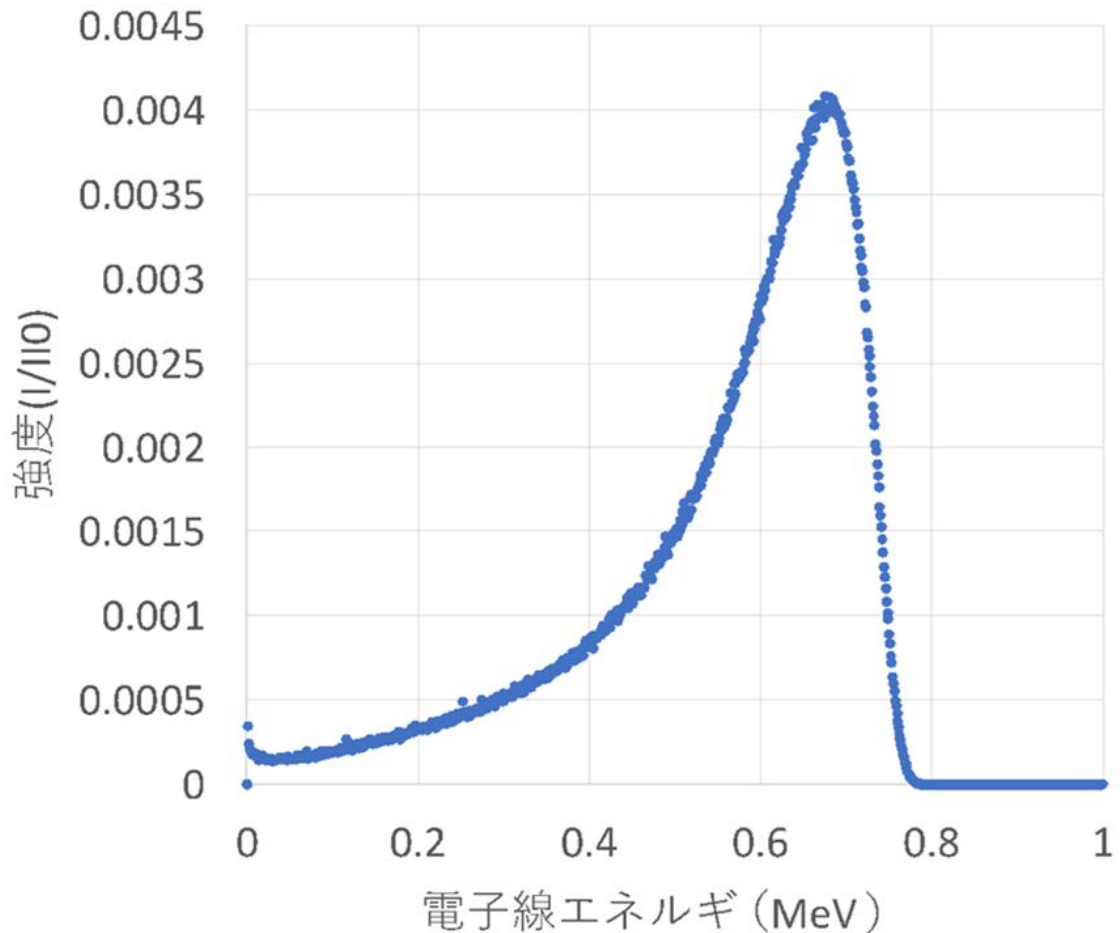


図 3.5.5 1.7 mm のアルミニウム板による 1 MeV 電子線エネルギースペクトルの変化

3.6 センサー素子劣化挙動の解析

3.6.1 本課題の目的

この照射試験システムの構築は、放射線場における太陽電池型放射線検知器デバイスの放射線劣化を、連続検知動作中に可能とする方法を検討するために行うものである。

太陽電池の基本的構造は pn 接合ダイオードである。放射線すなわち高エネルギーの荷電粒子が太陽電池デバイスを構成する半導体結晶に入射すると、そのエネルギーの一部は結晶構成原子を変位させる、すなわち結晶欠陥を発生することに消費される。これは放射線欠陥と呼ばれる。この放射線欠陥は発生後に様々な欠陥反応を経て、その一部がキャリア再結合中心として振舞う欠陥となり、結果的に太陽電池デバイスの出力（発生電流／電圧）を低下させる。これが太陽電池の放射線劣化である。

一方、ダイオードの電流－電圧特性は一般的に次式で表される。

$$I = I_0 \left[\exp\left(\frac{qV}{nkT}\right) - 1 \right] \quad (3.6.1)$$

ここで、 I : ダイオード電流、 V : 印加電圧、 n : ダイオード因子、 k : ボルツマン定数、 q : 電荷素量、 T : 絶対温度であり、 I_0 は逆方向飽和電流といわれる値で、ダイオード内のキャリア再結合が増すと大きくなる。この I_0 と n は、実際に測定した電流－電圧特性を式(3.6.1)でフィッティングすることで求めることができる。従って、放射線の被ばくによる太陽電池出力の劣化は、この I_0 を求めることで見積もることができる。

太陽電池は、光の入射・吸収により光子のエネルギーが価電子帯の電子を伝導帯に励起され、この励起電子が空乏層の電界により加速されて外部に取り出されることで発電する。すなわち、太陽電池は基本的に電流発生デバイスである。太陽電池に放射線粒子が入射した場合も光と同じ現象が起き、やはり電流が発生する。本研究では、この放射線発生電流を放射線検知信号に用いることを基本としている。従って、放射線場に置かれた太陽電池型放射線検知器デバイスの出力電流劣化は、 I_0 を求めることで見積もることができると考えられる。本項の検討は、その方法を I_0 の変化などの劣化挙動を解析することにより求めようとするものである。また、求めた出力電流劣化予測方法の妥当性を確認する手段としては、デバイスが太陽電池でありかつ動作原理が太陽電池と同じであることを利用して、光を照射した際の発生電流を放射線照射／被ばく前後で比較してその変化・劣化を求め、放射線検知信号劣化予測結果と比較すればよい。

1F 原子炉における放射線場では、そのほとんどをガンマ線が占めると考えられる。ガンマ線が物質に入ると高エネルギーの電子を発生させる。この高エネルギー電子は上述の変位欠陥すなわち放射線劣化を起こす。従って、電子線場における太陽電池デバイスの劣化挙動を観察すれば、1F 炉内にて太陽電池型放射線検知器デバイスを用いた場合の放射線劣化挙動を模擬できると考えられる。ただし、実際の動作状況に近い状態での挙動観察が必要であり、そのためには電子線が照射されている状態でのその場電流－電圧特性測定が必要である。この実現のため、本年度は電子線照射と電流－電圧特性測定を同時に行える照射システムの構築を行った。

3.6.2 電子線場における照射試験システム構築

本年度は、電子線場における照射試験システムの設計をして仕様決定を行った。半導体不足の影響もあり、新規に照射システムを構築すると納期と費用面で間に合わなくなる等の理由により、新規作製から JAXA 所有の電子線照射試験システム（老朽化により稼働不能状態）を用いた改良・更新によるシステム構築に計画変更した。線量計デバイスの照射システムとしても用いられるような変更設計を行い、また老朽化部分について付帯装置の更新などによるリファービッシュを実施した。また、照射用の照射容器は新規に設計・作製することはせず、この照射システムのチャンバをクリーンアップし試料装着ステージ部分を設計変更して使用することとした。さらに、電子線場における電流電圧特性その場測定システムの構築においては、基本的な測定機器（ソースメータ、スイッチャ、温度計など）は JAXA 照射システム付帯の既有装置が使用可能と判断した。ただし、真空計については動作不能であったため新規に調達し交換するという整備を行った。なお、既有測定機器の実際の長時間動作確認については、令和6年度に実施する初回電子線照射実験の際に試運転として行う予定である。以下、電子線照射・同時測定システムのリファービッシュ内容について記す。

(1) 真空ポンプ

既存装置にはターボ分子ポンプ（不動）とロータリーポンプを用いていた。令和6年度以降実施する電子線照射試験には、高真空は必要ないがロータリーポンプのみによる長時間の真空引きでは油上がりによる試料の汚染が懸念された。そこで、メカニカルブースター型ドライポンプ（油不使用）を採用することとした。また、新型のポンプはインバータ制御式となっており、制御用電子回路が電子線の影響で故障する可能性が大きいため、耐放射線設計として制御部別置型として設計し、制御部は照射室外に設置して電子線の影響を防ぐとともに、同時照射・測定実験運転時すなわち照射室ロック時においても真空ポンプの制御を可能とした。既設ポンプ及び新規ポンプの写真を図 3.6.1 に示す。

(2) 石英フランジ／ビューポート

既存装置には通常ガラスのビューポートが付帯しており、長年の電子線被ばくにより着色して内部が見られない状態であった。そこで、電子線による着色が生じない石英製の窓による透明フランジすなわちビューポートに交換し、真空引き後、照射実験直前に試料ステージ上の試料と測定用プローブの接触状態が確認できるようにした。装着したビューポートを図 3.6.2 に示す。なお、チャンバ上部にある石英窓は光照射用の光源用であり直上に光源レンズが位置するため、試料ステージを見ることは不可能である。

(3) 真空計測系

既存装置では真空度表示部がシステムに付帯していたため、電子線照射試験中に表示部電子回路が被ばくにより故障していた。そこで、真空センサヘッドと真空度表示部を別置型として真空計を作製・調達し、システムに装着した。図 3.6.3 に交換前後の真空ヘッドを示す。

(4) 試料出力測定用端子フィードスルー

既存装置では試料太陽電池の出力を測定するための真空チャンバ内外を接続する端子フィードスルーが長年の放置により腐食し接触不良となり、かつ若干のリークが発生して真空シール不良となっていた。そこで新規にフィードスルーを調達して装着した。図 3.6.4 に交換前後の端子フィードスルーを示す。

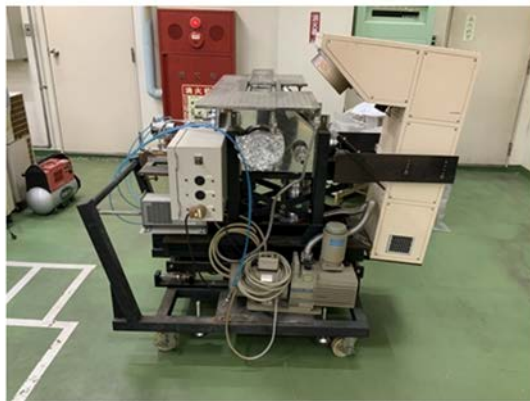
(5) 照射光光源（ソーラーシミュレータ）

既存装置の光源は、被ばくによる電源部の動作不良により点灯不能となっていることを確認した。また、製造メーカーへの問合せより、修理は不可である旨を伝えられた。光源の新調には計画外の多大の費用がかかること及び本研究課題において電子線照射中に光を照射して太陽電池としての性能劣化を観察する必要は必ずしもないことから、本研究による改修作業ではシステム付帯の光源の新調・改造は行わないこととし、令和5年度以降にJAXA予算による手当を計画する。なお、本研究課題では、同時照射・測定実験の前後に別の光源及び計測系による太陽電池性能の測定を行って必要なデータを取得する方針である。

(6) 試料ステージ

既存装置では試料は円形水冷銅プレート（図3.6.5）上に別の銅プレート（照射治具と称す）をネジ止めによって密着させ、その銅プレートに試料太陽電池を同じくこの銅プレート上に装着した測定用バネプローブによって固定する。既存の照射治具は4枚の太陽電池を装着する仕様であるが、本研究課題用に2枚装着の治具を設計した。その図面起こしと加工依頼を令和5年度初頭に実施する計画である。一方、水冷銅プレートにある照射治具固定用の4つのネジ穴のひとつがネジ折れにより使用不能であることが確認された。水冷プレートと治具には良好な熱接触が必要であるため、一度取り外して新たなネジ穴を設ける加工を行う。

以上、電子線の同時照射・測定実験を実施するためには数件の追加加工が必要であるが、実験実施のための基本的な照射システムの準備・整備は完了した。



(a) 既設ロータリーポンプ



(b) 新規メカニカルブースターポンプ

図 3.6.1 真空ポンプの換装



図 3.6.2 石英フランジ／ビューポート



(a) 既設真空計センサヘッド

(b) 新規真空計センサヘッド

図 3.6.3 真空計センサヘッドの換装



(a) 既設フィードスルー

(b) 新規フィードスルー

図 3.6.4 端子フィードスルーの換装

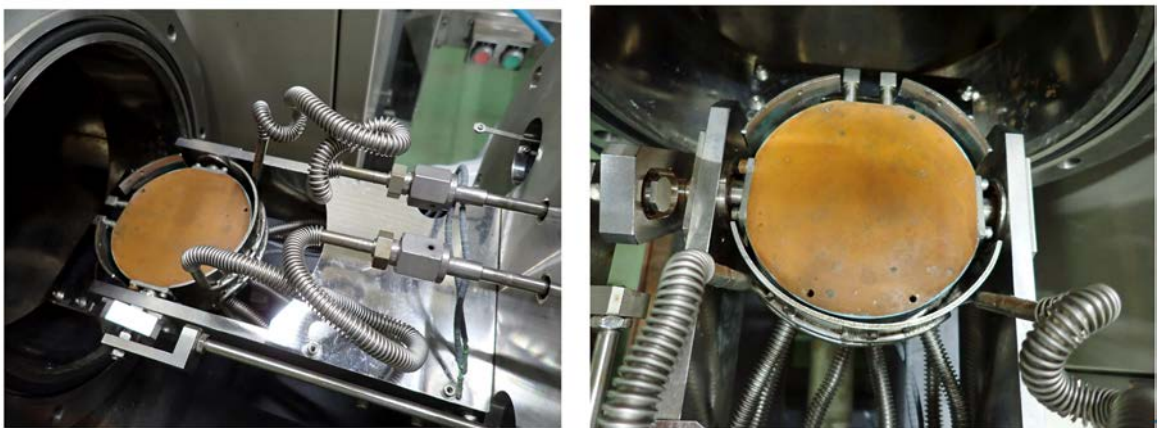


図 3.6.5 電子線照射治具取付け用水冷銅プレート

3.7 高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発

3.7.1 静電塗布法を用いた中性子変換膜作製条件の解明

[概要]

ホウ素などの中性子を捕獲し、荷電粒子へ変換する元素を最適な膜圧で素子上ないし、基板上に形成するための静電塗布装置を選定し、装置の導入及び動作確認を行った。

[詳細]

中性子を効率よく検出するためには、変換膜の膜厚を最適化する必要がある。図 3.7.1 に、窒化ホウ素 (BN) 中薄膜の膜厚に熱中性子を照射した場合における裏面から放出されるアルファ線の強度を示す。中性子は、薄膜表面から入射され、変換膜に吸収される。中性子を吸収したホウ素はアルファ線を放出し、裏面から放出される。変換膜が薄い場合、中性子の吸収が十分でなく信号が低下する。一方、変換膜が厚い場合も、低下が見られるが、これが、中性子の遮蔽及びアルファ線の飛程の影響である。中性子は変換膜により遮蔽され、表面より裏面では中性子束が少なくなる。また、アルファ線は、飛程が短く、BN 中では、およそ 5 μm 程度である。そのため、裏面から 5 μm 程度付近で生成されたアルファ線のみが放出される。計算結果からもおよそ 4-5 μm の膜厚において、アルファ線の最大放出強度を持っていることがわかる。このことから、変換膜材料においては、遮蔽と荷電粒子の飛程を考慮した最適な膜厚を設計する必要がある。

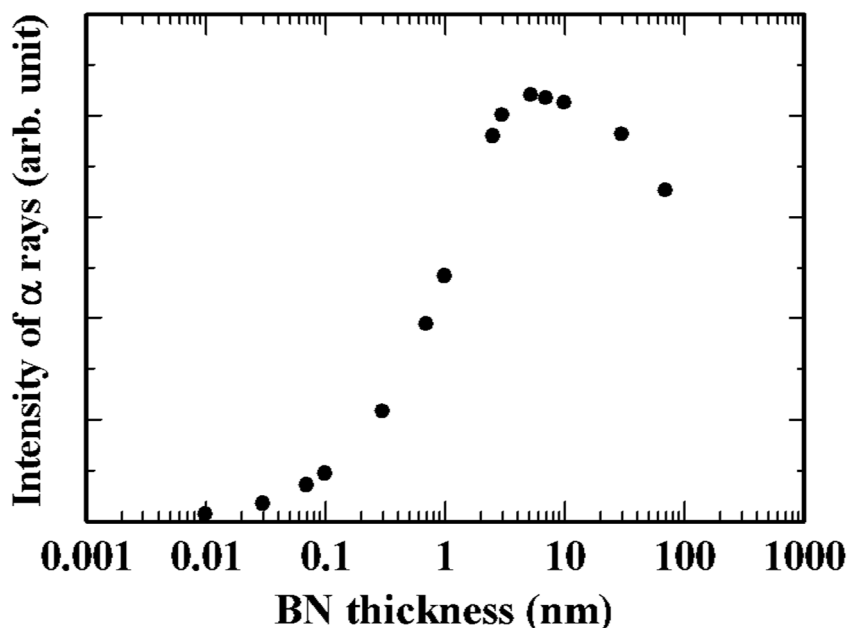


図 3.7.1 中性子照射時の裏面アルファ線強度の窒化ホウ素 (BN) 膜厚依存性

変換膜の最適な膜厚ホウ素では、4-5 μm 程度、フッ化リチウム 20-30 μm 程度の厚みが必要となるが、この膜厚を製造する方法として、蒸着では厚すぎており、切削では薄すぎるため、製造方法の確立が求められている。我々は塗布法に着目しており、本事業では、その成膜条件に関する探査を行う。3.3 節では、スクリーン印刷法を用いた成膜方法についての検討を記載しているが、本項では静電塗布法に着目し、その装置についての選定を行った内容を記載する。静電塗布による成膜時を図 3.7.2 に示す。粉末材料を混合した溶剤を高電圧が印加された金属ノズルに注入すると、正の電荷を帯びた液滴が発生する。液滴は、自身の電荷により分裂を繰り返し、小さ

くなる。液滴の一部は、溶剤が蒸発して、帯電した粉末になる。その粉末が基板上的導電性膜に付着することで、膜が形成される。静電塗布法のメリットとしては、非真空環境で成膜ができる点、曲面対象に対する均一性が高い点、大面積化が容易である点がある。本研究ではフレキシブル基板上や太陽電池素子に直接的に変換膜材を塗布することを想定しており、対象が曲面になることも想定されるため、塗布法として適していると考えられる。

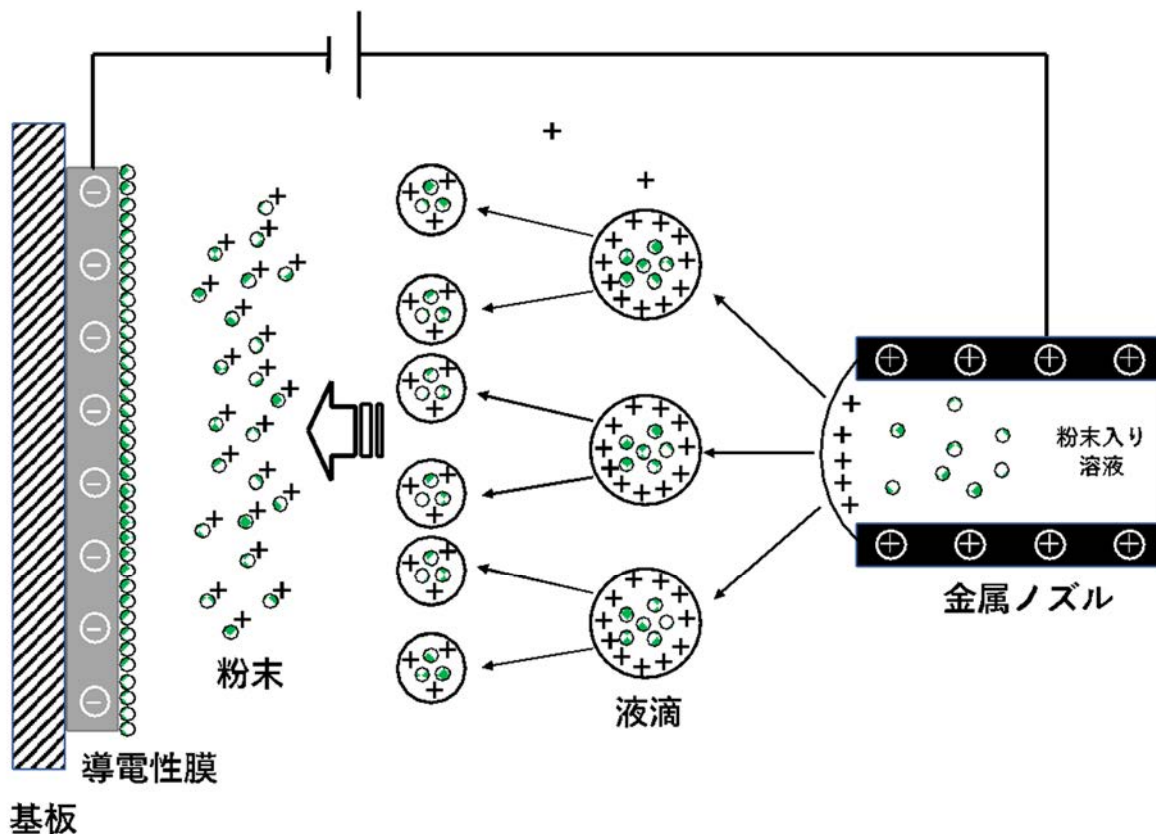


図 3.7.2 静電塗布による成膜の概略図

図 3.7.3 に選定した静電塗布装置 (PDR-04、ナガセテクノエンジニアリング製) を示す。この装置の特徴は、微粒子のコーティングに対応、液剤コストを削減、作業環境をクリーンに維持、高い膜厚均一性、凹凸基材へのコーティングに対応している点である。本装置での機能として、シリンジ内部のスターラによる溶液拡散により粉末の沈殿を防止可能である。また、試料台は X 軸で 10 cm、Y 軸で 10 cm 移動させることができ、変換膜に必要な大きさである 1 cm 角の素子を同時に複数作製することができる。本年度は、本装置を利用してホウ素粉末を使用してアルミニウム板に塗布を行った。ホウ素粉末は、アルミナるつぼを用いてミリングした。塗布用の溶剤は、プロピレングリコールへ 2 wt%のホウ素を混合したものを使用した。塗布条件は、基板温度 100 °C、塗布回数 3 回、印加電圧 8 kV、流量 0.10 ml/min、ノズル距離 30 mm、ステージ移動速度 25 mm/s、X 軸ピッチ 1.0 mm、Y 軸ピッチ 1.0 mm だった。また塗布後のアルミニウム基板は、180 °Cで 5 分間焼結を行った。ホウ素を塗布したアルミニウム板の外観を図 3.7.4 に示す。外観の結果からは、ホウ素粉末が表面に付着しており、膜が形成されていることがわかる。



図 3.7.3 静電塗布装置の外観

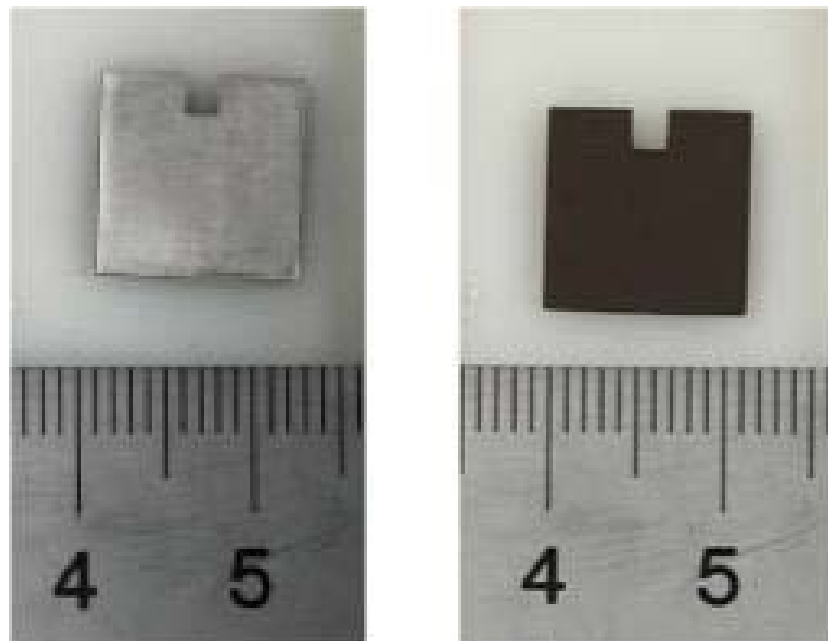


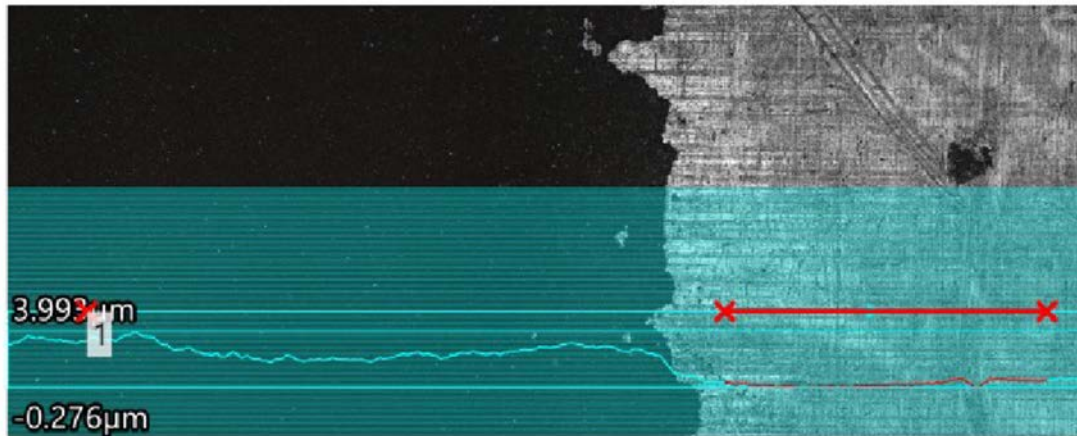
図 3.7.4 ホウ素粉末塗布前後のアルミニウム板

また、膜厚の均一性は感度に影響を与えるため、3次元的な情報を変換膜の大きさと取得する必要がある。作製した膜厚を測定するための装置として図 3.7.5 に示すようにコンフォーカルレーザー顕微鏡 (VK-X3000、キーエンス製) を選定した。本レーザー顕微鏡には、電動ステージがあり X 軸に 10 cm 及び Y 軸に 10 cm の試料の連続的な移動と画像連結による大面積の測定が可能となる。静電塗布装置で成膜したホウ素膜厚を測定した結果を図 3.7.6 に示す。測定にあたり、ホウ素膜の一部を拭き取り、アルミニウム基板をむき出しにして基板表面からの膜厚を観測した。図 3.7.6(a) の左の比較的白いエリアがアルミニウム基板であり、右の黒いエリアがホウ素塗布膜である。アルミ基板上の赤線を基板高さとして、点 1 で示している場所の高さを解析した結果、 $4.4 \mu\text{m}$ であることが明らかになった。ホウ素変換膜の最適な膜厚は、 $4\text{--}5 \mu\text{m}$ であることから、静電塗布によりホウ素変換膜を作製可能であることが示唆された。ただし、今後、膜厚だけでなく、密度や表面粗さなどの感度に関わるパラメータを明らかにし、面方向全体の感度の均一性を解明する必要があると考えている。



図 3.7.5 コンフォーカルレーザー顕微鏡の外観

(a)



(b)

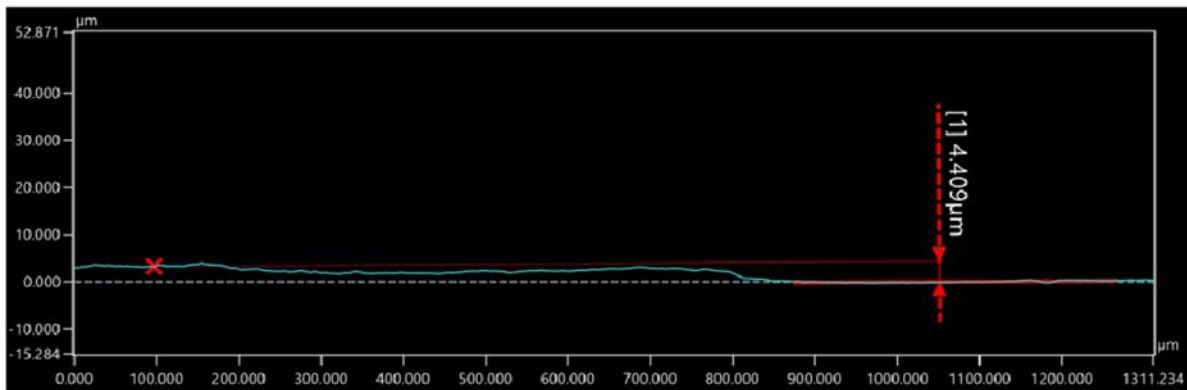


図 3.7.6 アルミニウム基板上に塗布されたホウ素粉末の膜厚

作製したホウ素変換膜の性能を明らかにするため、RANS を用いた照射試験を実施した結果を図 3.7.7 に示す。変換膜の評価のための検出素子として、InGaP 太陽電池を使用した。横軸は、RANS の陽子線ベリリウムターゲットに入射するビーム電流量であるため、発生中性子量と比例関係にある値である。焼結ホウ素変換膜は、焼結体を切削加工にて表面形状を静電塗布法で使用したアルミニウム基板と同様、厚みを 0.2 mm の厚みにしたものを作製した。結果より、静電塗布法により作製したホウ素変換膜は、焼結体に比べて約 80% の電流信号が出力された。この要因としては、ミリング中の不純物の混入、成膜時の溶液などの残留物の混入、変換膜の空隙率などが影響していると考えられる。ミリング中の不純物を明らかにするために、粉末の成分を走査型電子顕微鏡のエネルギー分散型 X 線分光法を用いて測定を行った結果を図 3.7.8 に示す。この結果より、ミリング容器のアルミナがホウ素粉末に混入すること、ホウ素濃度が 80% 程度まで低下していることが明らかになった。このことから、塗布粉末における感度の低下要因についてはミリング時の不純物の混入が大きな要因であると考えられる。3.2 節では、この不純物低減のため、ミリングのるつぼ材料の選定や微粉化条件について探索されており、アルミナるつぼによるミリングよりも不純物の低減が進んでいる。そのため、今後、不純物の改善した粉末材料を使用することでさらなる感度の向上が期待される。

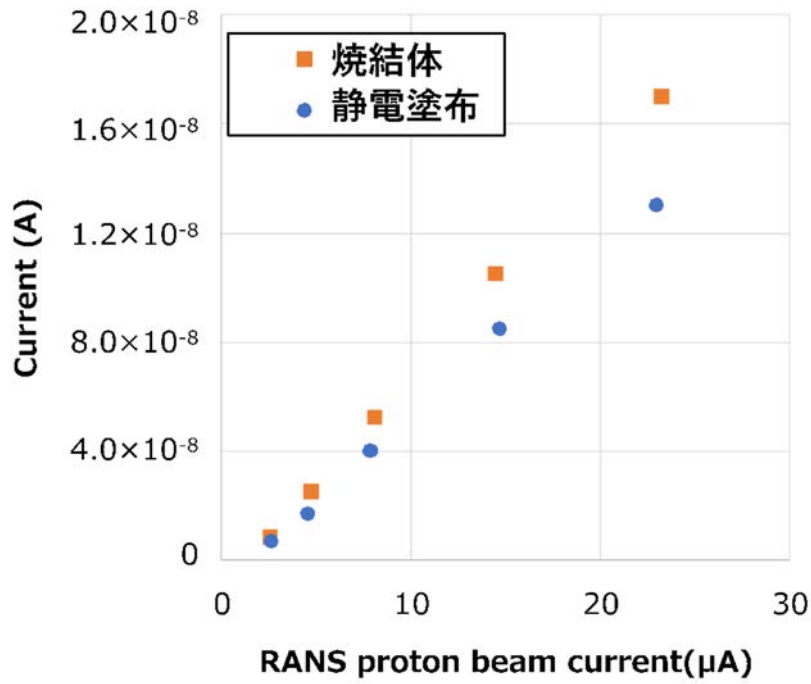


図 3.7.7 焼結及び塗布のホウ素変換膜による InGaP 太陽電池の中性子誘起電流挙動

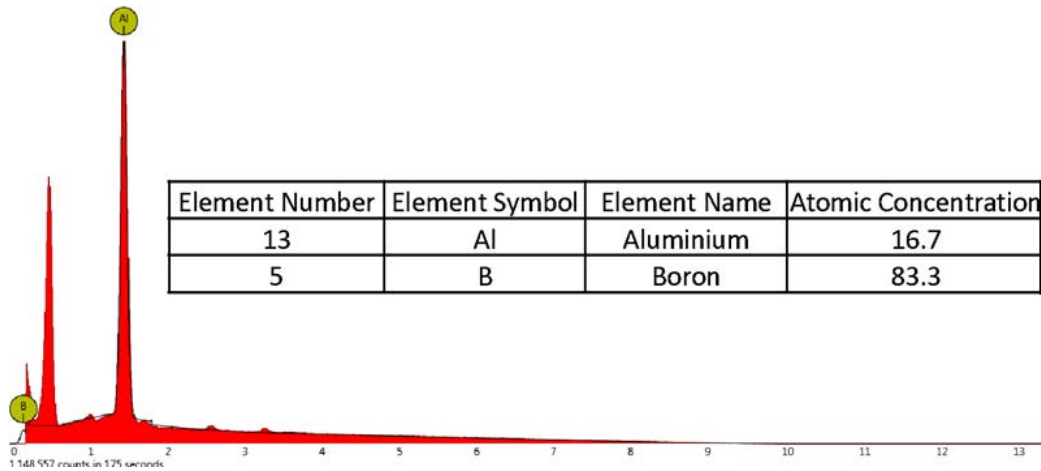


図 3.7.8 ミリング後のホウ素粉末中の不純物

3.7.2 素子のガンマ線・中性子線検出特性解明

[概要]

CIGS 及びペロブスカイトなどの、放射線耐性の高い太陽電池の選定及び初期特性評価試験などの試作機のための準備を行った。

[詳細]

本課題では、産総研にて作製されている CIGS 太陽電池を利用した線量計の開発を行っている。太陽電池素子の放射線検出特性や放射線耐性は、素子の設計によって異なる。放射線検出特性は、バンドギャップで見積もられる電子正孔対生成エネルギー、面積と膜厚により決定される吸収層の体積やキャリア拡散長や表面再結合などに起因する外部量子効率に影響を及ぼす[3]。耐放射線性は、照射欠陥のできやすさ、バンドギャップへの再結合中心の生成、2 次欠陥による準位の変化やキャリア濃度などに影響を及ぼす[4]。そのため、同様の太陽電池であっても素子設計により、その特性が異なる。本事業では、産総研の CIGS 太陽電池を使用することから、本年度にその素子特性が 1F の測定基準との適合性を明らかにする。

図 3.7.9 に、産総研にて作製した CIGS 太陽電池素子の(a)構造及び(b)外観を示す。構造は、6 層からなる素子であり、CIGS 吸収層の膜厚は、2 μm に調整された。素子は、ガラス基板上に成膜されており、10 mm \times 5 mm の表面積に調整された。配線は、裏面のモリブデン電極を正極及び表面の TCO-ZnO:Al 層の上に蒸着されたアルミニウム楕形電極を負極として接続した。素子は、太陽電池であるため可視光にも反応することから、照射時には、厚み 1.7 mm のアルミケースにより遮光を行った。標準線源として Co-60 ガンマ線の照射場を使用した照射試験の体系について図 3.7.10 に示す。Co-60 ガンマ線源は、QST 高崎量子応用研究所の食品照射棟に設置している Co-60 ガンマ線源を利用した。照射室に、リニア駆動ステージを設置し、移動台上に CIGS 太陽電池を固定した。照射室から測定室にあるピコアンメータ (iDC-13、泰榮エンジニアリング) のケーブルは、同軸ケーブルを使用した。ガンマ線線量率は、移動台の操作により線源と CIGS 太陽電池の距離を秒速 1.7 mm で変えることで調整した。信号のサンプリング時間は、0.2 秒に設定した。

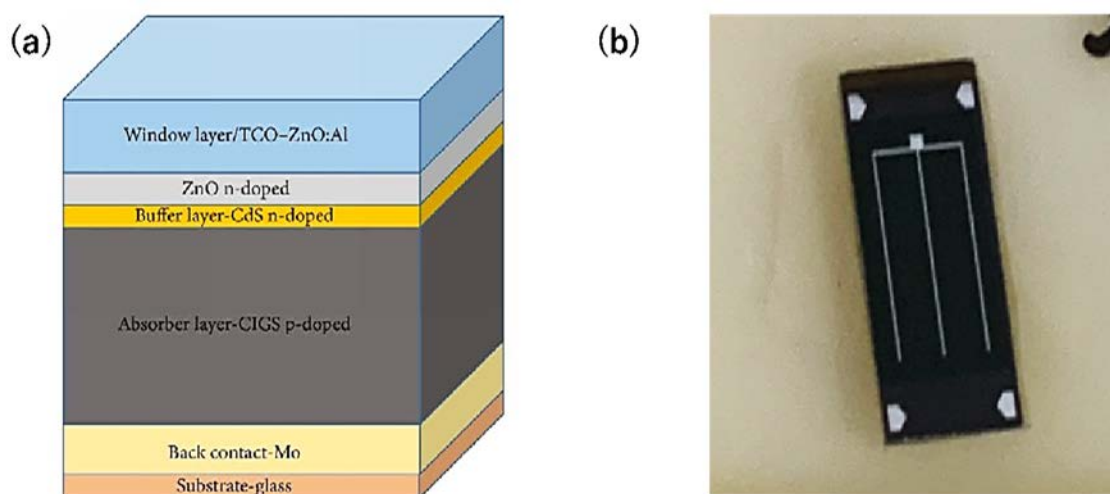


図 3.7.9 ガラス基板上に成膜された CIGS 素子

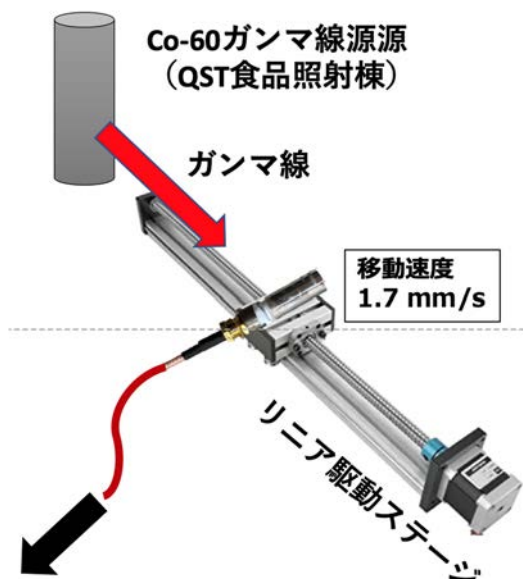


図 3.7.10 Co-60 ガンマ線源を用いた照射体系

ガンマ線照射試験時の CIGS 太陽電池の電流信号の観測結果を図 3.7.11 に示す。図 3.7.11 (a) では、経時的な電流信号の変化を取得しており、照射開始直後に電流が出力されて、数百 Gy/h の線量率環境中でナノアンペアオーダの電流量が観測された。移動台を線源に近づけて線量率が高い位置に持っていくことで、電流量の増加が確認された。また、任意の 6 点を設定して、移動台を静止させて電流信号を取得した後、その信号を移動台を連続移動させながら取得した信号と比較した結果を図 3.7.11 (b) に示す。この結果より、静止中と移動中の信号にほとんど違いはなく、CIGS 太陽電池を用いた線量計は、ロボットアームなどの動的な環境であっても観測できることが明らかになった。また、測定中の分解能を見積もるために、非照射中と 219 Gy/h 照射中の電流信号をカウントした結果をそれぞれ図 3.7.12 (a)、(b) に示す。照射時、非照射時の信号は、両方とも正規分布を取っており、それぞれの 3σ は両方ともおよそ 3 pA であることが明らかとなった。この結果は、高い線量率を測定している場合でも、太陽電池型線量計の分解能は変わらないことを意味している。そのため、高線量環境中の小さな線量信号の変化を観測することができると考えられるため、廃炉作業時に運搬される放射性物質の移動に伴う線量率の変化を敏感に捉えることができることが予想される。また、このゆらぎの原因については、主にピコアンメータのプリアンプからのオフセット電圧や、コネクタなどの異種金属接続による熱起電力、外部からの電磁ノイズなどが考えられる。それらの電位は、およそ μV 程度のオーダであると考えられる。太陽電池型線量計は、0 V での駆動を想定しているため、素子並列抵抗が低い場合、 μV オーダの電位によりノイズが増加する可能性がある。そのため、CIGS 素子では、並列抵抗を向上させるために、端面をウェットエッチングすることで、高抵抗な素子を作製しており、その並列抵抗はおよそ 40 M Ω 程度である。そのため、 μV オーダのノイズ電位に対して pA オーダの電流の電流ゆらぎが発生していると考えられる。例として、エッチング処理なしの場合、CIGS 素子の抵抗値は、約 7.7 k Ω であり、その非照射時の電流ゆらぎは図 3.7.12 (c) に示すように、25 pA 程度の分解能である。環境中のノイズ成分の違いは生じているが、信号の分解能は素子の並列抵抗の低下に伴い、低下していることがわかる。このことから、フレキシブル CIGS 太陽電池をセンサー応用する際にも、端面のエッチングプロセスなどを行い、並列抵抗を向上させることが重要であると考えられる。

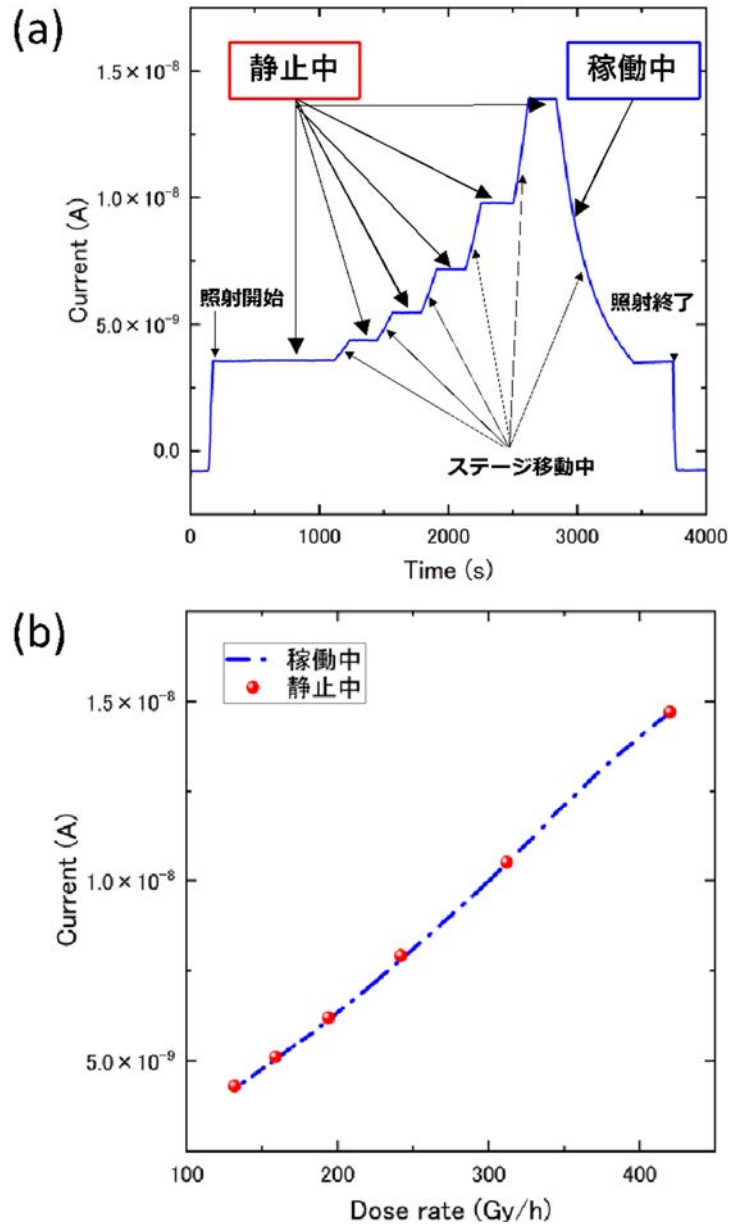


図 3.7.11 Co-60 ガンマ線環境中の CIGS 太陽電池の電流特性

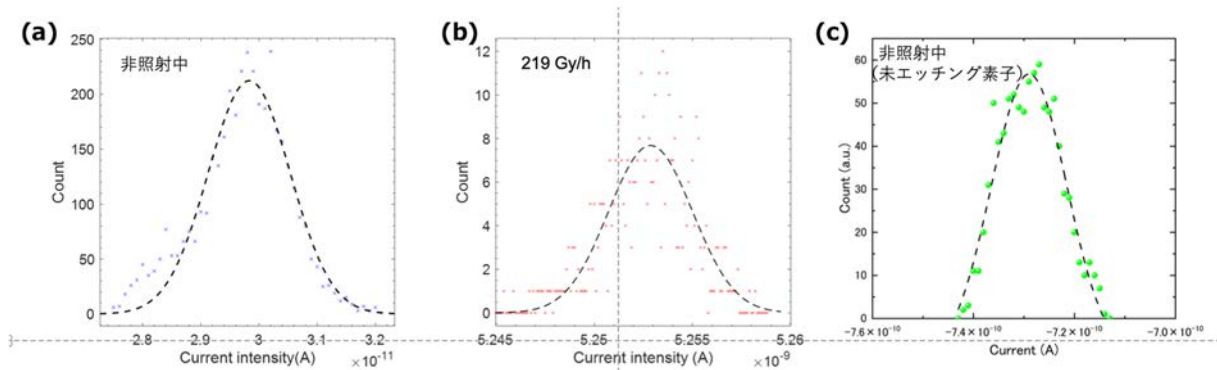


図 3.7.12 Co-60 ガンマ線照射環境及び非照射環境での CIGS 太陽電池の電流ゆらぎ

次に、1F 環境中では Co-60 ガンマ線環境中で 1 MGy の耐放射線性を有していることがセンサーに求められているため、CIGS 太陽電池の耐放射線性を見積もる新たな方法の構築を行った。Co-60 ガンマ線を実際に利用した場合、例えば、1 kGy/h の環境であれば、40 日の照射試験を行う必要があるため、今後開発していく素子をすべて耐放射線性を評価することは難しい。そのため、我々は、電子線を利用した劣化加速試験を行うことで、Co-60 ガンマ線 1 MGy 相当の損傷を素子に与えることにより、その劣化量を見積もる手法を考案した。人工衛星の設計のための宇宙用太陽電池の放射線劣化予測の先行研究では、太陽電池素子の劣化は、主に放射線による原子のはじき出しである変異損傷に比例することが知られている。ガンマ線環境の場合は、光子と電子の相互作用により発生した 2 次電子が、変異損傷を引き起こすことで、太陽電池素子が劣化する[5]。そのため、電子線照射により取得した劣化量から、ガンマ線環境中の劣化量を予測できることが示唆される。

QST 高崎量子応用研究所の 1 号電子線加速器を用いて CIGS 太陽電池に 1 MeV 電子線の照射を行った際の写真を図 3.7.13 に示す。CIGS 太陽電池は、ガンマ線照射の際に使用したアルミニウム製のケースに入れて遮光しており、水冷板の上に設置された。試料温度は、アルミケースに K 熱電対をカプトンテープで貼ることで測定した。照射中の電流を取得するために、同軸ケーブルにて太陽電池素子と照射室外のソースメジャーユニット (B2901A、Keysight 製) に接続した。

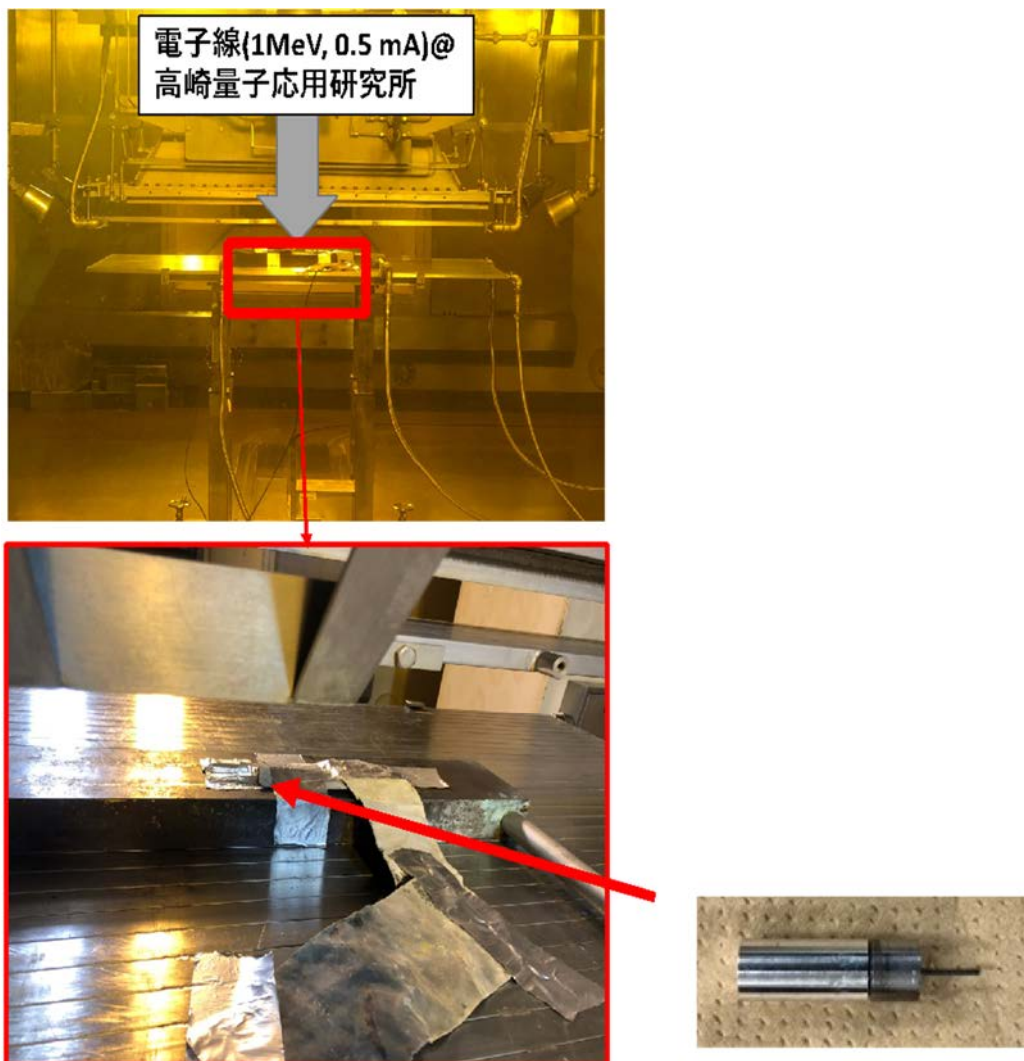


図 3.7.13 電子線照射時の体系と試料の外観

照射中の温度を測定した結果を図 3.7.14 に示す。照射開始に伴い、温度が上昇し、停止により急速に温度が低下する。照射中はおよそ 20-25 °C 間で推移しており、試料の温度上昇はほとんどない。半導体は、温度の上昇によりバンドギャップが小さくなるため、照射中に温度上昇があった場合放射線誘起電流が変換する可能性がある。今回の照射試験では、測定している素子の温度がほとんど一定であることから、温度による影響はほとんどないと考えられる。次に 1 MeV の電子線を 0.5 mA のビーム電流量で照射した際の素子の発生電流量を測定した結果を図 3.7.15 に示す。縦軸は、照射開始直後の発生電流を 1 に正規化した保存率を表している。照射開始直後に、電流が発生しており、電流量はほとんど変わらず、照射が終了した。ビーム量はほとんど一定であることから、この素子の信号においても変化がほとんどないことは、劣化が生じていないことを示唆している。途中で電流信号が大きく振動していることがあるが、これは加速器からのノイズが測定系に流入したためであると考えられる。この測定結果をもとに、1F 環境中での耐性評価の指標として掲げられている Co-60 ガンマ線 1 MGy 相当のダメージと比較を行う。

太陽電池の劣化においては変異損傷量 (DDD) と劣化の関係により、線源の異なる放射線が入射した際の劣化量を比較できる。1 MeV の電子線は、CIGS 素子の構成元素である Cu、In、Ga 及び Se をはじき出すことが十分に可能なエネルギーであるため、フルエンスに従って DDD が増加する。電子照射試験の結果から CIGS 太陽電池に蓄積される DDD を見積もった値を横軸としたものを図 3.7.16 に示す。また、Co-60 ガンマ線 1 MGy が CIGS 太陽電池に入射した場合に与えられる DDD 量はおよそ 2.7×10^{11} MeV/g であるため、この電子線照射による DDD を見積もった結果から、産総研で開発された CIGS 太陽電池素子は 1F 環境中で十分に使用できることが示された。

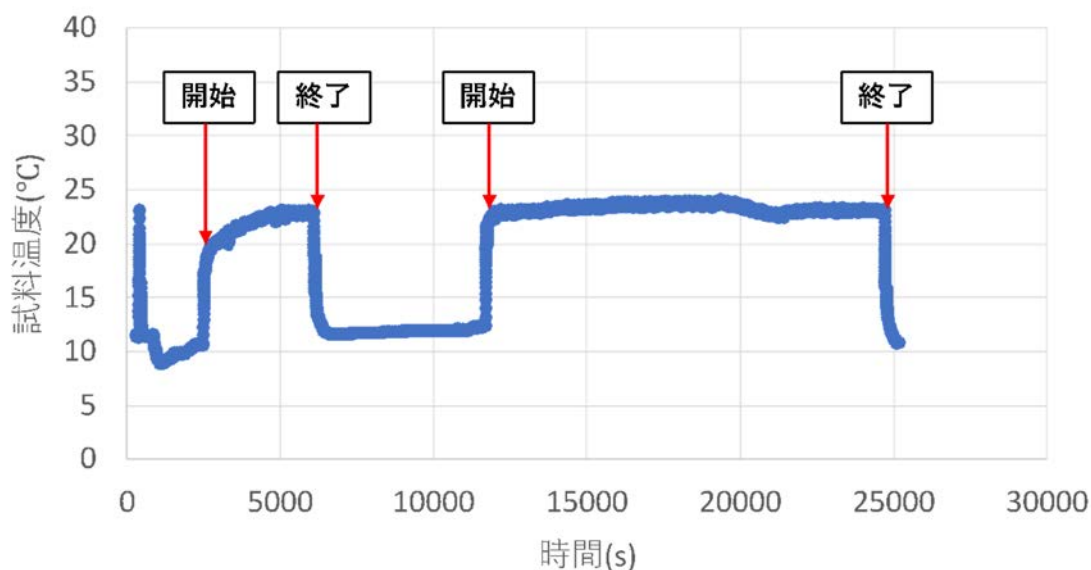


図 3.7.14 電子線照射時の試料表面温度

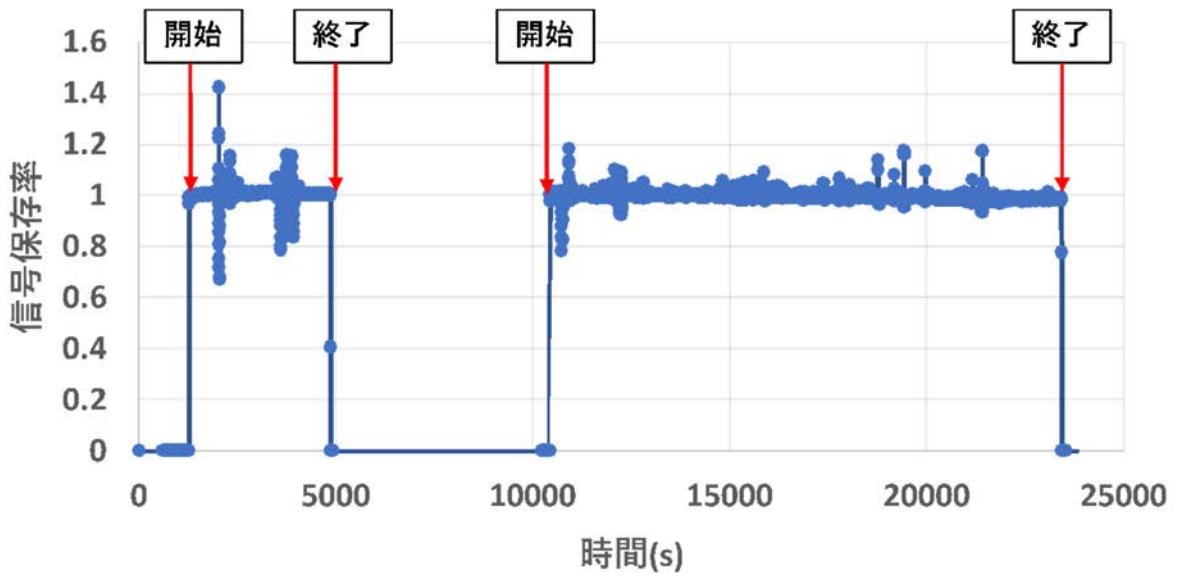


図 3.7.15 電子線照射時の CIGS 太陽電池の電流挙動

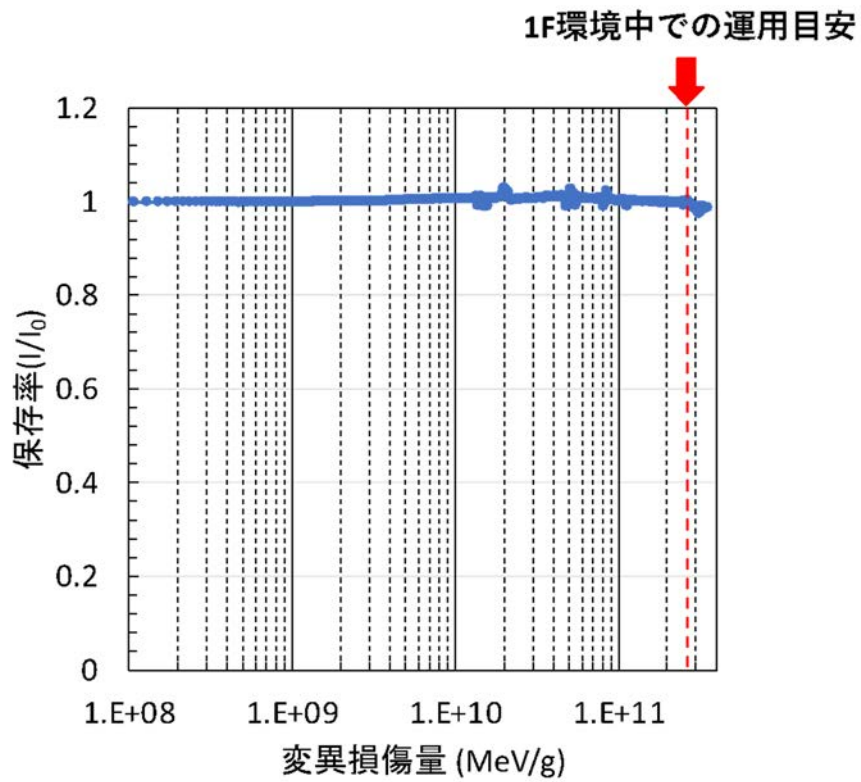


図 3.7.16 電子線照射時の CIGS 太陽電池の変位損傷量

3.7.3 1F 適応システムの開発

[概要]

メーカー等と協力し、多接続太陽電池型線量計のシステムに関するハードウェア及びソフトウェアの仕様を作成し、試作機作製の準備を行った。

[詳細]

1F 環境中の放射線を様々な場所で数十年モニタするシステムを開発するために、太陽電池型線量計を複数個接続して計測できる機能が必要となる。通常の線量計であった場合、1 素子あたりに必要な測定系は 1 セット必要になってくるため、測定したい場所分の測定システムを購入する必要があり、大きなコストが必要となる。一方、太陽電池型線量計は駆動時にバイアス電圧を印加することがないため、外部電源の操作がない単純な回路の切替で測定するセンサーを切り替えることができる。そのため、1 つの測定系と切替えシステムを組み合わせることで、複数の場所の線量情報を取得することができる。また、複数の素子を 1F 環境中に設置した場合、その動作が正常であるかを診断することは非常に手間がかかるため、自動的に測定システムの健全性を評価できることが求められている。その点においても、太陽電池素子は、ダイオード特性を有しており、電流電圧特性を取得することで、放射線による劣化や回路の異常を検出できる。そのため、本研究では、1F 環境中で多数のセンサーを設置し、ガンマ線や中性子の情報を安定的に取得できるシステムの開発を目指す。

太陽電池を複数接続するシステムとして図 3.7.17 に示すような回路を考案した。放射線からの信号となる電流測定や異常診断となる電流電圧測定は、エレクトロメータを使用する。また、複数のセンサーとエレクトロメータの回路の切替えは、マルチプレクサを使用する。マルチプレクサとエレクトロメータからの配線をまとめるために、配線ボックスを使用する。このシステム

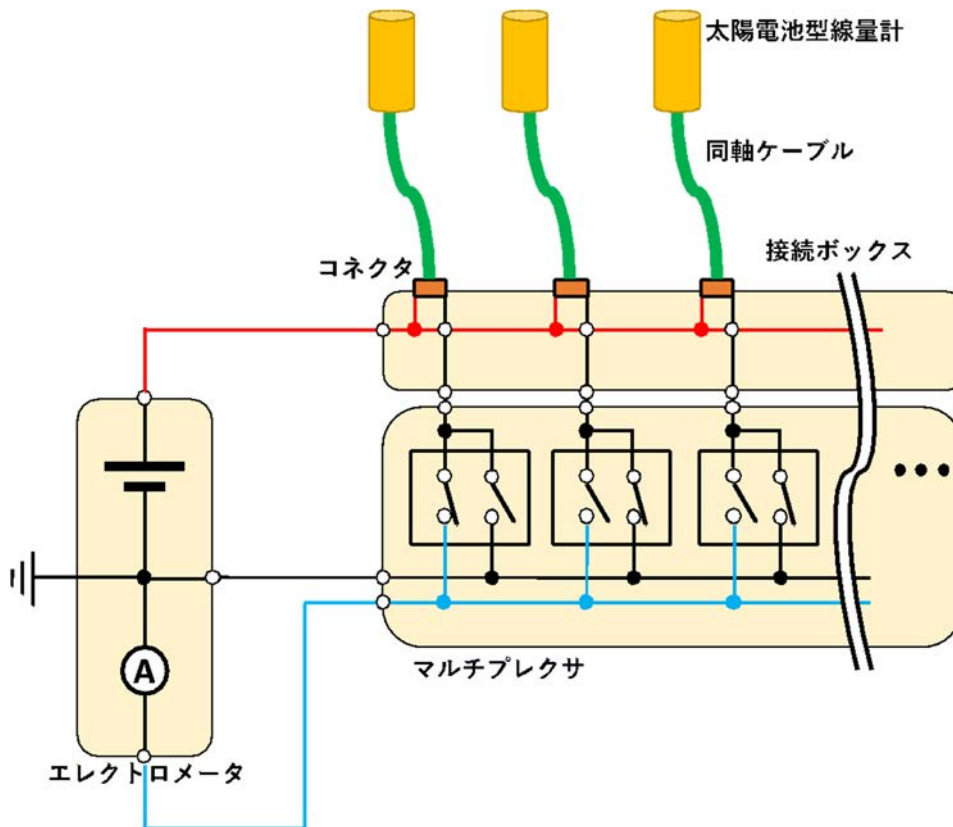


図 3.7.17 太陽電池型線量計の多接続システムの回路

を用いることで、マルチプレクサの回路切替えにより、指定したセンサーとエレクトロメータを接続して、信号を取得することができる。この回路をもとに、作製した実際の測定機器を図 3.7.18 に示す。ここでは、マルチプレクサは、ADCMT 製の 31001J をスキャナ (3100、ADCMT 社) に接続して使用した。また、エレクトロメータは、ADCMT 製の 5450 を使用した。また、制御ソフトウェアは、システムハウス・サンライズ製の W32-5450MIG80-N を使用した。

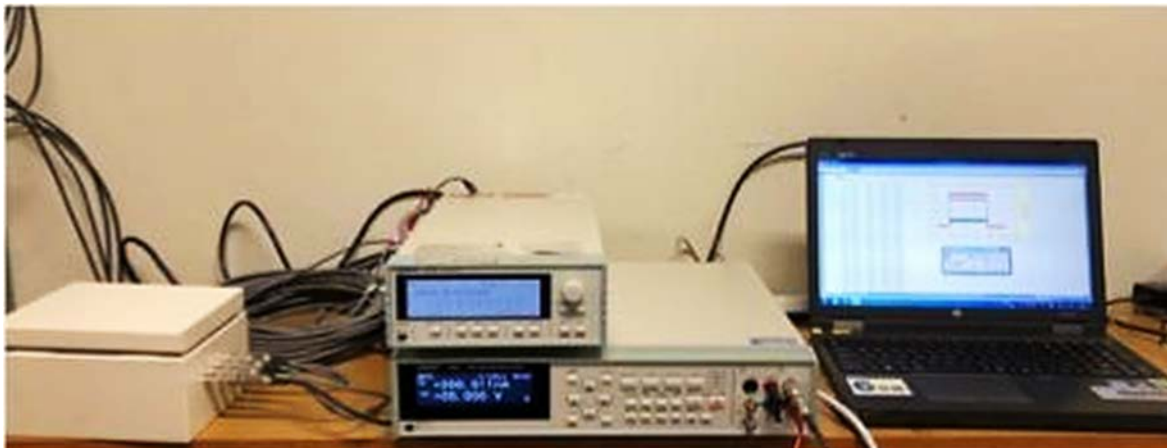


図 3.7.18 太陽電池型線量計の多接続システムの外観

構築したシステムを利用して、ガンマ線照射試験を実施した。図 3.7.19 に示すように、Co-60 ガンマ線源周辺に 2 つ CIGS 太陽電池を利用したセンサー試作機を設置し、同軸ケーブルにて測定室の配線ボックスに接続した。測定した結果を、図 3.7.20 に示す。センサー1 及びセンサー2 は、それぞれ 56 Gy/h 及び 52 Gy/h の線量率環境下に設置されているため、信号の差が確認されている。切替えに伴うノイズ等は観測されておらず、ほとんど一定の電流信号が出力されていることから、本システム及びソフトウェアによる多接続システムは、太陽電池型線量計に十分適応できると考えられる。しかし、1 サイクルの測定時間は、3.3 s (素子 2 枚) であるため、実用化に向けてはさらなる高速切替プログラムの作製が必要である。そのため、今後の開発として、使用したマルチプレクサの使用における切替え最短時間は 3 ms であり、電流計の計測は 10PLC で計算すると 60 Hz で 167 ms、50 Hz で 200 ms であることから、通信時間を含めても 1 素子 250 ms 程度の高速化を目指す。また、電流電圧特性を切り替えながら各センサーで取得し、測定前後での故障診断が可能なソフトウェアも含めて設計を行う予定である。



図 3.7.19 太陽電池型線量計の多接続システム照射試験

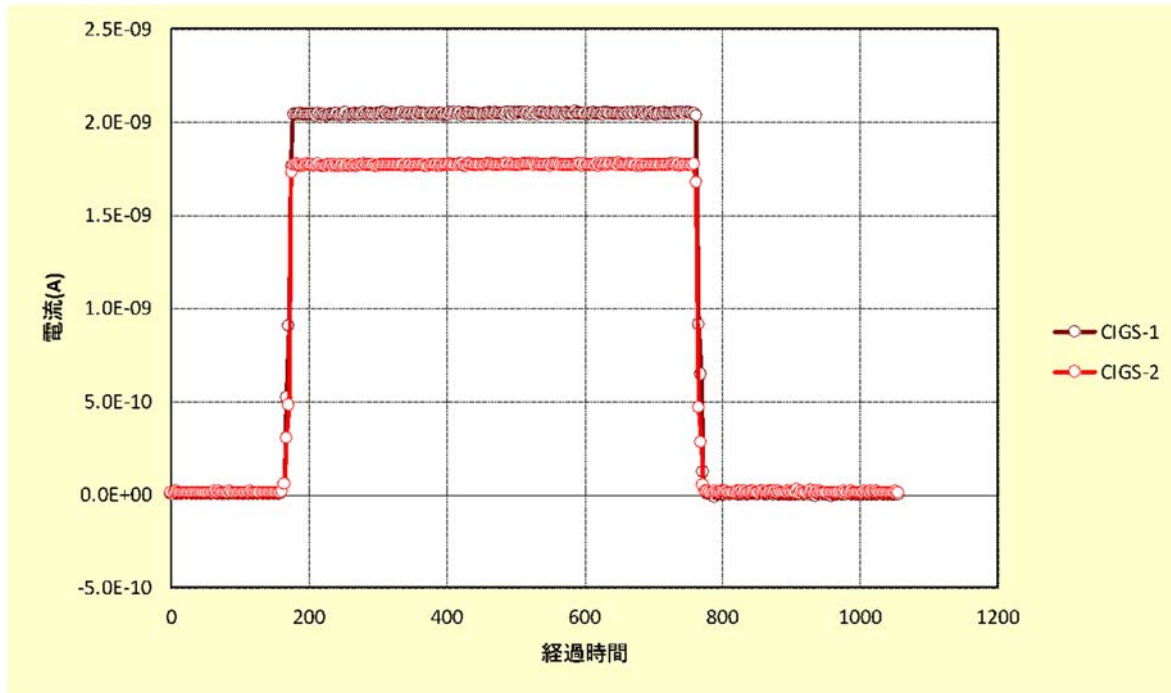


図 3.7.20 多接続システムによる CIGS 太陽電池型線量計の電流測定結果

3.7.4 まとめ

- ・ナガセテクノエンジニアリングの静電塗布装置を選定し導入を行った。ポリプロピレングリコールを溶剤として、ホウ素粉末をアルミ基板上に塗布を行った。レーザー顕微鏡で成膜の膜厚を測定した結果、4-5 μm 程度のホウ素膜の形成ができた。中性子照射試験により変換膜として機能することを確認した。
- ・アルミニウム合金を用いたシールドケースを加工し、CIGS 太陽電池を組み込んだ試作機を作製した。ガンマ線、電子線について素子のガンマ線感度と放射線耐性の初期特性を取得した。
- ・システムハウス・サンライズ製のソフトウェア及び ADCMT 製の装置を組み合わせることにより、複数のセンサーを切り替えながら測定できるシステムが構築できることを確認した。

3.8 研究推進

[概要]

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

[詳細]

・キックオフミーティング

日時：2022年10月25日（火）

場所：産業技術総合研究所 つくばセンター

参加者：奥野泰希（京都大学）、上川由紀子（産総研）、西永慈郎（産総研）、石塚尚吾（産総研）、小林知洋（理研）、笠田竜太（東北大学）、陣場優貴（東北大学）、岡本保（木更津高専）、栗本裕司（木更津高専）

内容：本事業の全体的なスケジュールの確認を行った。機関代表者からこれまでの研究成果と英知事業で推進する研究課題についての報告があった。

・第1回定期報告会

日時：2023年1月26日（木）

場所：京都大学 複合原子力科学研究所

参加者：奥野泰希（京都大学）、上川由紀子（産総研）、西永慈郎（産総研）、石塚尚吾（産総研）、小林知洋（理研）、笠田竜太（東北大学）、陣場優貴（東北大学）、岡本保（木更津高専）、

栗本裕司（木更津高専）

招待講演者：黒澤俊介 准教授（東北大学）

発表スケジュール：

14:00 - 14:05 開会の挨拶 奥野泰希

14:05 - 14:25 「太陽電池型線量計の1Fに向けた開発の現状」（京都大学）奥野泰希

14:25 - 14:45 「スクリーン印刷法による中性子変換膜作製」（木更津高専）岡本保

14:45 - 15:05 「中性子変換元素粉末の微細化」（東北大学）笠田竜太

15:05 - 15:25 休憩

15:25 - 15:40 「招待講演」（東北大学）黒澤俊介先生（オンライン）

15:40 - 16:00 「RANSの検出機器用中性子場開発」（理研）小林知洋

16:00 - 16:20 「フレキシブルCIGS素子の成長条件」（産総研）上川由紀子

16:20 - 16:30 休憩

16:30 - 16:50 「CIGS素子のイオンビームパルス計測」（産総研）西永慈郎

16:50 - 17:10 「BeeBeans Technologiesの会社概要説明と取組」（BBT）宮本憲一

17:10 - 17:40 「記念講演」（JAXA）今泉充

内容：1Fへの線量計の研究実績がある東北大学の黒澤先生より、シンチレーション型線量計の1F導入に関するこれまでの知見をご紹介いただいた。PCVのアクセスポートからシンチレーションを挿入して、光ファイバーにより信号を分光器に輸送することで線量率を計測した事例をもとに、太陽電池型線量計とシンチレーション型線量計の違いや、1Fでの適応方法に関する議論を行った。

・学会発表及び論文等

1. 奥野泰希、InGaP 太陽電池を応用した中性子検出方法とシステム開発、2022 年度 RANS シンポジウム、2022 年 11 月（和光市）。
2. 奥野泰希、宇宙用太陽電池素子を用いた放射線センシングによる 1F 廃炉推進、アトムサイエンスくまとり、Vol. 31、2023 年。
3. Y.Okuno, et al, Analysis of Irradiation Influence Using Photo-Induced Currents of pA Order in InGaP Solar Cells, PVSEC-33, 2022. 11., Japan.
4. 岡本保、他、印刷法によるコンバータ膜を用いた太陽電池型中性子線量計の開発、第 70 回応用物理学会春季学術講演会、2023 年 3 月。

4. 結言

本事業の課題である「高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発」に対して、本年度は、CIGS 素子のフレキシブル素子成膜条件探査、CIGS 太陽電池素子のガンマ線検出特性、耐放射線性等の初期特性を取得するとともに、変換膜材料の微細粒子製造条件探査、スクリーン印刷法、静電塗布によるフレキシブル変換膜製造条件探査、変換膜特性評価のための中性子照射場を整備し、太陽電池遠隔劣化評価システム構築のため in-situ 測定システムの開発及び多接続システム実現のための機器選定を実施した。

CIGS 素子の開発においては、ガラス基板上に作製した素子のガンマ線照射試験を実施した結果、PCV で想定される線量率に対して十分な感度を有していることが明らかになった。また、電線の加速試験による劣化評価方法を構築し、Co-60 ガンマ線 1 MGy 相当の変異損傷量に対してほとんど劣化しないことがわかった。この初期特性を有する CIGS 素子をガラス基板からフレキシブル基板上に成膜する条件についても実験を行い、フレキシブル基板の耐熱温度範囲内で最適な条件を見出した。次年度は、フレキシブル CIGS 素子を実際に作製し、そのガンマ線感度及び放射線耐性を従来のガラス基板のものと比較することでその初期特性を評価する。

中性子変換膜の開発においては、ホウ素粉末をミリングすることで微細粒子を製造し、その粒子を用いて塗布による膜を形成した。ミリングでは、るつぼとボールの材料により、不純物が混入する。特に、アルミなるつぼとボールを使用した場合、アルミナがホウ素粉末中に混入し、変換効率を低下させた。アルミナから窒化シリコンへ変更した場合、不純物濃度は改善しており、変換効率の改善が見込まれた。塗布法としては、静電塗布法により、ホウ素変換膜に必要な最適な膜厚に調整可能であることが明らかとなった。スクリーン印刷法では、厚い膜を形成することが可能であることから、リチウムやガドリニウム含有の変換膜の作製への適応可能性について知見が得られた。今後、ミリングにより低不純物の変換膜材料の微細粒子を作製し、塗布法により最適な膜厚へ形成を行う。また、実用化に向けて、膜の強度特性に関しても明らかにする。

太陽電池型線量計の 1F 適応システムにおいて、多接続マッピングシステムの構築のための機器を選定した。複数の太陽電池型線量計を回路切替えにより、電流計と接続する回路を設計した。マルチプレクサ及びエレクトロメータを選定して、ガンマ線環境中で CIGS 素子 2 枚を切り替えながら測定を行った。その結果、切替え時のノイズや素子過渡応答などもなく、安定した信号が検出できた。しかし、2 素子の測定で 3 秒程度の時間が経過しているため、回路駆動の高速化に向けて、今後、ソフトウェアの改良を実施する予定である。また、選定した機器では電流電圧特性の取得することが可能であることから、ソフトウェアによる機器制御と信号解析により、素子の劣化及び回路の健全性を評価する機能の実装も目指す。

参考文献

- [1] 中田 時夫, CIGS 太陽電池の基礎技術, 日刊工業新聞社, 2010, 184p.
- [2] Okamoto, T., Igari, T., Fukui, T., Tozawa, R., Gotoh, Y., Sato, N., Okuno, Y., Kobayashi, T., Imaizumi, M., and Akiyoshi, M., Gamma-Ray Irradiation Effects on CdTe Solar Cell Dosimeter, Jpn. J. Appl. Phys., 60 (2021) SBBF02.
- [3] Okuno, Y., Okubo, N. and Imaizumi, M, Application of InGaP space solar cells for a radiation dosimetry at high dose rates environment of Fukushima Daiichi nuclear power plant, J. Nucl. Sci. Technol, 56, (9-10), pp.851-858 (2019).
- [4] Yamaguchi, M, Radiation-resistant solar cells for space use, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 68, pp.31-53 (2001).
- [5] Akkerman, A. et al., Updated NIEL calculations for estimating the damage induced by particles and γ -rays in Si and GaAs, Radiat. Phys. Chem., 62, (4), pp.301-310 (2001).

