DOI:10.11484/jaea-review-2025-028

遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムの プロトタイプ開発 (委託研究)

-令和5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 a Prototype Shielding-free Radiation-resistant Diamond
Neutron Measurement System
(Contract Research)

- FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
 Development Project –

福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター 北海道大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science, Fukushima Research and Engineering Institute Hokkaido University **TOYION**

November 2025

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

© Japan Atomic Energy Agency, 2025

遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発 (委託研究)

-令和5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 福島廃炉安全工学研究所 廃炉環境国際共同研究センター

北海道大学

(2025年5月26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5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(1F)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5年度に採択された研究課題のうち、「遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発」の令和5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、1F 廃炉事業で強いニーズのある遮蔽不要な中性子計測システムのプロトタイプを開発する。本システムは、ダイヤモンド中性子検出素子と耐放射線性シリコン集積回路から構成され、部品レベルでは積算線量でそれぞれ 10 MGy 以上、4 MGy 以上の耐放射線性を有し、1.5 kGy/hの γ 線線量率環境下で安定動作した実績を持つ。将来的な用途として、デブリ調査用中性子検出器、臨界近接監視モニタ、圧力容器内ドライチューブ調査用中性子検出器等への適用が想定される。

本開発では、5 mm 角相当のダイヤモンド検出素子 100 枚規模からなるプロトタイプを開発し、システム構築技術の獲得とシステム性能を評価する。併せて未臨界度評価手法の開発も進める。これによりシステム開発までを完了し、メーカーとの連携による実機開発、1F 廃炉事業への投入につなげる。令和 5 年度は、合成装置の電源改修や 2 cm 角以上の合成範囲での検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成条件を探索し、中性子・荷電粒子コンバータの合成条件を探索した。積層型ダイヤモンド検出素子の開発では、メタン濃度(CH4/H2)、酸素濃度(0/C)が積層型構造の p-層中の不純物濃度や表面形態に与える影響を調べ、さらに中性子検出素子用信号処理集積回路では、特性ばらつきを評価し、キャリブレーション手法を検討した。また、臨界近接監視法の開発では、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方法論の検討を進め、γ線照射試験では、照射場の整備を進めた。中性子感度測定試験では、必要な照射設備や照射方法等について参画機関と協議し、試験環境の整備を進めた。

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、北海道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 a Prototype Shielding-free Radiation-resistant Diamond Neutron Measurement System (Contract Research)

FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project

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

Hokkaido University

(Received May 26, 2025)

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 FY2023.

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 FY2023, this report summarizes the research results of the "Development of a prototype shielding-free radiation-resistant diamond neutron measurement system" conducted in FY2023.

The present study aims to develop a prototype of a shielding-free neutron measurement system for 1F. The system consists of diamond neutron detectors and radiation-resistant silicon integrated circuits, and has radiation resistance of more than 10 MGy and 4 MGy, respectively, at the component level in terms of integrated dose, and has a track record of stable operation under γ -ray dose rate environment of 1.5 kGy/h. Future applications are expected to include neutron detectors for debris investigation, criticality proximity monitoring monitors, and neutron detectors for dry tube investigation in pressure vessels.

In this development, a prototype consisting of 100 diamond detector elements of 5 mm square will be developed to obtain system construction technology and to evaluate system performance. In addition, a subcriticality evaluation method will be developed. This development will lead to the completion of system development, development of the actual system in collaboration with the manufacturer, and introduction of the system into 1F decommissioning project.

Keywords: Diamond, Neutron Detector, Shielding-free, Radiation Resistance, Criticality Approach Monitoring, Decommissioning, Electronics, Integrated Circuit

This work was performed by Hokkaido 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
6.	令和 4 年度 採択課題
7.	令和 5 年度 採択課題14
付领	録 成果報告書
	Contents
1.	Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project
2.	Accepted Proposal in FY2018
3.	Accepted Proposal in FY2019
4.	Accepted Proposal in FY2020
5.	Accepted Proposal in FY2021
6.	Accepted Proposal in FY2022
7.	Accepted Proposal in FY2023
Apj	pendix Result Report17

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)

平成30年度採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

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

課題解決型廃炉研究プログラム

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

国際協力型廃炉研究プログラム (日英共同研究)

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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数:19課題

共通基盤型原子力研究プログラム 7課題 (若手研究2課題、一般研究5課題)

課題解決型廃炉研究プログラム 4課題

国際協力型廃炉研究プログラム 4課題(日英2課題、日露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 号機ペデスタル燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技 術を用いた分別方法の研究開発	渡邉 大輔	日立GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物 の安定固化技術の開発	竹下 健二 (~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	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

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

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	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X線同時解析による迅速・高感度放射性 核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染 鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃 棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高 度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

国際協力型廃炉研究プログラム(日英共同研究)

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

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)

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 性データーベースの高度化	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
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 啓太朗	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

課題名	研究代表者	所属機関
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	淺間 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)

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 (~R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1~)
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
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

7. 令和5年度 採択課題

令和5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5年3月1日~令和5年4月14日 (課題解決型) 令和5年4月12日~令和5年6月15日 (国際協力型 日英共同研究)

課題数:9課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7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5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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測 システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学
簡易非破壊測定に向けた革新的な n・γ シンチレーション検出システムの開発	鎌田 圭	東北大学
ペデスタル部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握 に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研 究	五十嵐 豪	名古屋大学
動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速 3 次元炉内環境モデリング	中村 啓太	札幌大学
放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合 理的処理・処分方法の検討	小崎 完	北海道大学

課題名	研究代表者	所属機関
高バックグラウンド放射線環境における配管内 探査技術の開発	鳥居 建男	福井大学
PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔 光計測技術の研究開発	椎名 達雄	千葉大学

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
革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化 への挑戦と LIBS による検証	牟田 浩明	大阪大学
燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカ オリンベースのジオポリマーの設計と特性評価	Yogarajah Elakneswaran	北海道大学

本報告書は、以下の課題の令和5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
遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計 測システムのプロトタイプ開発	金子 純一	北海道大学

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5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

遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システム のプロトタイプ開発

(契約番号 R05I103)

成果報告書

令和6年3月 国立大学法人北海道大学

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、国立大学法人北海道大学が実施した「遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発」の令和5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	۱۲	1-1
2.		業務計	画	2-1
	2.	1 全体	s計画	2-1
		2. 1. 1	自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発	2-1
		2. 1. 2	積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援.	2-2
		2. 1. 3	中性子検出器信号読み出しモジュール開発	2-2
		2. 1. 4	臨界近接監視法の開発	2-2
		2. 1. 5	γ 線照射試験と n-γ 弁別性能の評価	2-3
		2.1.6	中性子感度測定試験	2-3
		2. 1. 7	中性子計測システムの開発	2-3
		2.1.8	研究推進	2-3
	2.	2 実施	直体制	2-4
	2.	3 令和	口5年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-5
		2. 3. 1	自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発	2-5
		2.3.2	積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援	
			(再委託先:産総研)	2-5
		2. 3. 3	中性子検出器信号読み出しモジュール開発(再委託先:高エネ研)	2-5
		2.3.4	臨界近接監視法の開発(再委託先:名古屋大学)	2-5
		2. 3. 5	γ 線照射試験と n-γ 弁別性能の評価(再委託先:九州大学)	2-6
		2. 3. 6	中性子感度測定試験(連携先:原子力機構)	
		2. 3. 7	研究推進	2-6
3.		実施内	容及び成果	3-1
	3.	1 自立	エ膜型ダイヤモンド検出素子の開発【令和 5 年度】	3-1
		3. 1. 1	自立膜型ダイヤモンド検出素子量産技術の開発【令和5年度】	3-1
		3. 1. 2	中性子・荷電粒子コンバータの開発【令和5年度】	3-5
	3.	2 積層	『型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援	
		(再	委託先:産総研)【令和 5 年度】	3-7
		3. 2. 1	積層型ダイヤモンド検出素子の開発【令和5年度】	3-7
		3. 2. 2	自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援【令和5年度】	3-11
	3.	3 中性	k子検出器信号読み出しモジュール開発(再委託先:高エネ研)【令和 5 年度】 :	3-12
		3. 3. 1	中性子高感度化と多チャンネル間補正機能を実現する信号処理回路研究開発	
			【令和5年度】	3-12
		3. 3. 2	プリンタブル技術による小型高密度中性子検出モジュールの研究開発	
			【令和5年度】	3-13

3	4 臨界近接監視法の開発(再委託先:名古屋大学)【令和5年度】3-	-15
	3.4.1 臨界近接監視手法に関する検討【令和5年度】3-	-15
	3.4.2 プロトタイプ検出器を用いた実験シナリオの検討【令和5年度】3-	-19
3	5 γ 線照射試験と $n-\gamma$ 弁別性能の評価(再委託先:九州大学)【令和 5 年度】 3-	-20
3	6 中性子感度測定試験(連携先:原子力機構)【令和5年度】3-	-26
3	7 研究推進3-	-28
4.	結言	4-1
参考	· 文献	5-1

執筆者リスト

T	ログロノ	(4)=	⇇⇉৴
117	「究	レス	又怕

国立大学法人北海道大学 准教授 金子 純一

再委託先

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構 准教授 岸下 徹一 国立研究開発法人産業技術総合研究所 研究員 嶋岡 毅紘 国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学 推教授 遠藤 知弘 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 技術副主幹 西野 翔

表一覧

表 3.6-1 熱中性子等方場の基準フルエンス率及び基準周辺線量当量率 (2023/10/19) 3-27

図一覧

図 1-1	開発装置実機の適用例の1つ	 1-1
図 1-2	令和2年度原子力英知事業「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」で開発したモックアップ	 1-1
図 2.2-1	実施体制図	 2-4
図 3.1-1	改修後のマイクロ波 CVD 装置の外観	 3-1
図 3.1-2	2 インチサイズの試料ホルダー	 3-2
図 3.1-3	合成したダイヤモンド単結晶の表面レーザー顕微鏡像	 3-2
図 3.1-4	合成したダイヤモンド単結晶から製作した検出素子による	
	5.486 MeVα線に対する応答関数測定例	 3-3
図 3.1-5	ダイレクトウェハ法の概要	 3-3
図 3.1-6	基板に発生する問題を回避する条件で合成したダイヤモンド単結晶	
	表面レーザー顕微鏡像	 3-4
図 3.1-7	リフトオフ後の自立膜	 3-4
図 3.1-8	各温度における焼結後の LiF コンバータ	 3-5
図 3.1-9	研磨後の LiF コンバータのレーザー顕微鏡像	 3-6
図 3.2-1	試料構造と工程	 3-7
図 3.2-2	メタン濃度(CH4/H2)を段階的に変化させた試料の SIMS プロファイル	 3-8
図 3.2-3	酸素濃度(0/C)を段階的に変化させた試料の SIMS プロファイル	 3-8
図 3.2-4	膜中ホウ素濃度の成長速度依存性	 3-9
図 3.2-5	メタン濃度(CH4/H2)1%でエピタキシャル成長した試料の微分干渉	
	顕微鏡像	 3-10
図 3.2-6	北海道大学が成膜した成長層のカソードルミネッセンススペクトル	 3-11
図 3.3-1	閾値電圧調整回路のブロックダイヤグラム(左)及び	
	閾値電圧の自動調整の波形(右)	 3-12
図 3.3-2	試作した信号処理回路の写真とアナログ性能の諸元	 3-13
図 3.3-3	実装プロセス検討図	 3-13
図 3.3-4	約300 µmの段差を乗り越える狭ピッチ印刷配線の試験	 3-14
図 3.3-5	スクリーンオフセット印刷機	 3-14
図 3.4-1	自己相関法によるα測定結果の統計的不確かさ評価結果	 3-18
図 3.5-1	可動式サンプル設置治具の写真	 3-20
図 3.5-2	線源からの距離(水平)に対する線量率依存性	 3-21
図 3.5-3	線源直近の線量率の鉛直方向分布	 3-22
図 3.5-4	水平断面 X-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系	 3-23
図 3.5-5	水平断面 X-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定結果	 3-23
図 3.5-6	鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系	 3-24
図 3.5-7	鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定結果	 3-24
図 3.6-1	熱中性子等方場の外観	 3-26
図 3.6-2	黒鉛パイル空洞内への BF3 比例計数管の設置	 3-27

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

CLADS : Collaborative Laboratories for (廃炉環境国際共同研究センター)

Advanced Decommissioning Science

CVD : Chemical Vapor Deposition (化学蒸着)

FRS : Facility of Radiation Standards (放射線標準施設)

IRID : 技術研究組合国際廃炉研究開発機構

SIMS : Secondary Ion Mass Spectroscopy (2次イオン質量分析法)

九州大学 : 国立大学法人九州大学

原子力機構 : 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

高エネ研: 大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

産総研: 国立研究開発法人産業総合技術研究所

住友電工 : 住友電気工業株式会社

東電:東京電力ホールディングス株式会社

名古屋大学 : 国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学

北海道大学 : 国立大学法人北海道大学

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と略記。)廃炉事業で強いニーズのある遮蔽不要な中性子計測システムのプロトタイプを開発する。本システムは、ダイヤモンド中性子検出素子と耐放射線性シリコン集積回路から構成され、部品レベルでは積算線量でそれぞれ10 MGy 以上、4 MGy 以上の耐放射線性を有し、1.5 kGy/hのγ線線量率環境下で安定動作した実績をもつ。将来的な用途として、デブリ調査用中性子検出器、臨界近接監視モニタ、圧力容器内ドライチューブ調査用中性子検出器等への適用が想定される。本開発では、5 mm 角相当のダイヤモンド検出素子100 枚規模からなるプロトタイプを開発し、システム構築技術の獲得とシステム性能を評価する。併せて未臨界度評価手法の開発を進める。本開発によりシステム開発までを完了し、メーカーとの連携による実機開発、1F 廃炉事業への投入につなげる。

令和5年度は「3.1節 自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発」として、合成装置の電源改修や2 cm 角以上の合成範囲において検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成条件の探索を進めた。また、中性子・荷電粒子コンバータの合成条件を探索した。「3.2節 積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援」では、メタン濃度 (CH_4/H_2) 、酸素濃度 (0/C)が積層型構造の p-層中の不純物濃度や表面形態に与える影響を調べた。「3.3節 中性子検出器信号読み出しモジュール開発」では、中性子検出素子用信号処理集積回路の特性ばらつきを評価し、キャリブレーション手法を検討した。「3.4節 臨界近接監視法の開発」では、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方法論の検討を進めた。「3.5節 γ 線照射試験と $n-\gamma$ 弁別性能の評価」では、照射場の整備を進めた。「3.6節 中性子感度測定試験」では、ダイヤモンド検出素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価を行うために必要な照射設備や照射方法等について参画機関と協議し、試験環境の整備を進めた。「3.7節 研究推進」では、定期的に進捗会議を開催し、事業の円滑推進に努めた。

前年度までの成果報告書:

本研究は、令和 5 年度に採択された新規課題であるが、令和 2 年度~令和 4 年度にかけて行われた「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」に基づいている。この内容は、JAEA-Review 2023-020 (DOI:10.11484/jaea-review-2023-020) にまとめられており、以下に概要部分の抜粋を示す。

『本研究は、令和2年度に採択された研究課題のうち、「遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発」の令和2年度から令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。本研究では、高 γ 線環境下 (1 kGy/h) で動作し、高感度中性子検出感度 (数 count/nv) をもつ軽量で遮蔽不要な深い未臨界モニタを実現するための要素技術開発を行った。開発要素はダイヤモンドを使用した中性子検出素子、耐放射線集積回路6種類とそれら要素を搭載するモジュール複数枚を開発し、目標性能を確認し当初の目的を達成しただけでなく、6 cm径ドライチューブに挿入可能な中性子検出器のモックアップを開発し中性子測定動作実証も行い、予定通りの性能を確認した。まず、我々は炉内体系が不明である場合に確実に使用可能な未臨界解析手法としてファインマン α 法を選択し、" γ 線計測数対中性子計測数の比を1未満に抑えること"を明らかにし、この仕様を満たす中性子検出器のデザインと要素技術の研究開発を推進した。この研究開発を通して、ダイヤモンド検出素子は1kGy/h環境下でも安定動作すること、中性子感度も1 cm²あたり0.015 cps/nvであることを確認し、実用化可能であることを実証した。また、開発した全ての信号処理用集積回路は、積分照射線量1 MGy まで動作確認を行い、これらの要素技術を組み合わせ1kGy/hの γ 線バックグラウンド環境下での動作試験及び中性子検出試験を行い必要な性能をもっていることも確認した。』

1. はじめに

本研究では、図 1-1 に示す燃料 デブリ取り出し時に必要となる臨 界近接監視モニタ、原子炉圧力容 器内事前調査等で必要とされる遮 蔽不要なダイヤモンド中性子検出 器のプロトタイプを令和 2 年度原 子力機構英知事業「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」 の成果に基づき開発する。

現在、技術研究組合国際廃炉研究開発機構 (IRID) が事業終了期を迎え、それを引き継ぐ東双みらいテクノロジー株式会社 (Decom. Tech) が設立された。同社の石川真澄社長は上記事業の担当 PO を務められ、在任中、水中にデブリが存在する3号機調査用中性子検出器や、廃炉事業全体の計画を練るうえで必要となる原子炉圧力容器内ドライチューブ等、配管内に挿入可能な遮蔽不要な中性子検出器の必要性を強く主張された。

本研究では、図1-2に示す要素技術開発の成果である大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構(以下、高エネ研と略記。)が開発した4 MGy 以上の耐放射線性を有する集積回路と高 y 線線量率環境下で安定動作したダイヤモンド中性子検出素子を組み合わせ、3号機水中デブリ調査用途を念頭に置いたダイヤモンド中性子検出システムのプロトタイプを開発する。これにより、実規模システム構築のノウハウを獲得し、実機開発へのスムーズな展開を可能とする。

システム性能評価を行うに足る 5 mm 角ダイヤモンド素子換算 100

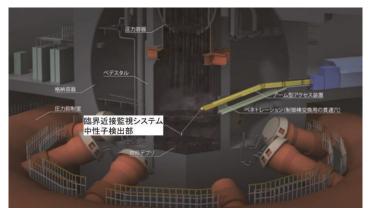
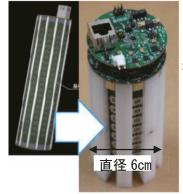
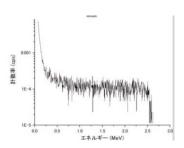


図 1-1 開発装置実機の適用例の 1 つ (臨界近接監視システム:ペイロードに制限のあるア ーム型アクセス装置に取り付け、デブリ調査に使用)

モックアップ開発 印刷技術による多素子実装成功







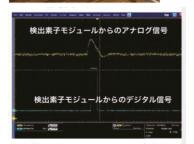


図 1-2 令和 2 年度原子力英知事業「遮蔽不要な臨界近接 監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素 技術開発」で開発したモックアップ

(左上:直径6 cm に収まる検出器信号読み出し基板及び伝送回路基板、右上:信号読み出し基板上に実装したダイヤモンド検出素子、左下: ⁶Li コンバータを使用したダイヤモンド素子による中性子エネルギースペクトル、右中・右下:検出器信号を処理して70 mの伝送に成功)

枚程度(参考推定中性子感度: ~0.1 cps/nv)の中性子計測システムを開発、評価する。これによりシステム構築技術を獲得し、将来的に必須となる圧力容器内ドライチューブ調査用中性子ダイヤモンド検出システム等の技術的開発目途を立て、メーカーを中心とした実機開発につなげる。

令和2年度英知事業「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」において、研究提案者等は図1-1に示す2号機のデブリ取り出し初期段階で必要とされた臨界近接監視モニタを念頭に置き、1.5 kGy/h 以上の γ 線線量場で安定して動作するダイヤモンド検出素子、積算線量:4 MGy以上に耐える耐放射線 Si 集積回路を実現した。さらに、図1-2に示すように数枚の検出素子と計測・伝送回路群からなるモックアップ製作・評価まで行った。

現在、1 kGy/h 以上の高γ線線量率環境下で遮蔽不要かつ必要とされる中性子検出感度をスケーラブルに達成可能な計測システムは、我々が提案するダイヤモンド中性子計測システム以外に存在せず、真に革新的、独創的、新規性に富む先端的研究・開発といえる。

本研究では、第一にシステム構築技術の獲得とシステム性能を評価する。具体的には、実機性能を推定するに足る規模として、3 号機のデブリ調査用中性子検出器に近い 5 mm 角ダイヤモンド検出素子 100 枚規模のプロトタイプシステムを開発し、中性子計測システムとしての性能を評価する。なお、本研究開発の範囲では、使用可能なダイヤモンド基板の制限から、目標とする γ 線線量率は 100 Gy/h とする。また、将来的に必要となる 1 kGy/h に対応するため各種ダイヤモンド素子の開発も進める。これにより、実機実現に向け技術的リスクを可能な限り低減する形で開発を進める。

2. 業務計画

2.1 全体計画

令和 2 年度原子力機構英知事業「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」の成果に基づき、事業期間中に実機性能を立証するに足る規模のプロトタ イプシステムを着実に開発・評価できるよう立案した。検出素子に関しては、国立大学法人北海 道大学(以下、北海道大学と略記。)、国立研究開発法人産業技術総合研究所(以下、産総研と略 記。) が協力し、動作可能γ線線量率 100 Gy/h 程度となるものの、相対的に安価な 1 cm 角の大 型ダイヤモンド単結晶にバッファ層を積んだ基板を使用して量産化を行い、プロトタイプ開発 に使用し、システム性能の検証を可能にする。さらに、動作可能線量率向上の要素技術開発も並 行して進め、将来的な 1 kGy/h 対応ならびに量産化の目途を立てる。中性子・荷電粒子コンバー タは、Li 系を中心に北海道大学で進める。耐放射線読み出し回路に関しては、前事業で開発し た集積回路群によるシステム構築とバグ抽出・再設計・製作・試験のサイクルを繰り返し、安定 動作する計測システムの構築を目指す。また、印刷技術をベースとした検出素子実装技術の改良 を進め、5 mm 角ダイヤモンド素子 100 枚程度を実装したシステムを開発する。臨界近接監視法 の開発は、国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学(以下、名古屋大学と略記。)中心に進め、 国立大学法人九州大学(以下、九州大学と略記。)におけるγ線照射、国立研究開発法人日本原 子力研究開発機構(以下、原子力機構と略記。)における中性子検出効率測定などを経たうえで、 最終的に臨界集合体を使用した試験を行う。

2.1.1 自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発

自立膜型ダイヤモンド検出素子を量産するための技術開発を行うと共に、令和 6 年度以降に実施する「2.1.7 項 中性子計測システムの開発」で使用するダイヤモンド検出素子を製作する。将来的な 1 kGh/h の線量率に対応するダイヤモンド検出素子の開発、中性子・荷電粒子コンバータの開発も行う。

(1) 自立膜型ダイヤモンド検出素子量産技術の開発

将来開発する実機では、中性子検出感度の要請から 5 mm 角相当で 1,000 枚単位のダイヤモンド検出素子が必要となる。本プロトタイプ開発では、実機性能を推定するに足る 5 mm 角相当で 100 枚規模の計測システムを開発する。そのため、大型基板を複数枚使用したマイクロ波プラズマ CVD (Chemical Vapor Deposition: 化学蒸着) 法等による同時合成技術の開発を行う。さらに、本技術に基づき、2.1.7 項における中性子計測システムの開発に供するダイヤモンド検出素子を製作する。また、最終年度となる令和7年度には、技術移転により、連携企業に対するダイヤモンド合成の委託も検討する。

(2) 高γ線線量率対応ダイヤモンド検出素子の開発

将来的に開発する実機、特に圧力容器内ドライチューブ調査では 1 kGy/h 程度の高線量環境下での測定が必要となる。これに対処するため、高品質基板を使用した自立膜型ダイヤモンド素子開発を北海道大学が行う。リフトオフ等に関しては産総研が担当する。

(3) 中性子・荷電粒子コンバータの開発

2.1.7 項で開発する中性子計測システムで使用する中性子・荷電粒子コンバータの開発、製作を北海道大学が中心となって行う。

2.1.2 積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援

自立型ダイヤモンド検出素子は、高線量率下での動作実績がある一方、高品質基板の供給体制や実装技術に課題が残る。これらへの対策として既存実装技術が適用できる積層型ダイヤモンド検出素子の開発を行う。高γ線線量率下での動作テストを行い、積層型ダイヤモンド検出素子が動作可能な線量率を明らかにする。自立型ダイヤモンド検出素子の製作・評価を支援する。

(1) 積層型ダイヤモンド検出素子の開発

2.1.1 項(2) と同様の目的に対し、産総研を中心に積層型ダイヤモンド検出素子の開発を行う。マイクロ波プラズマ CVD 法において、メタン濃度 (CH_4/H_2) 、酸素濃度 (0/C) 等がエピタキシャル層の不純物濃度や表面形態に与える影響を調査する。

(2) 自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援

北海道大学が 2.1.1 項で進める開発において、リフトオフ工程を担当し自立膜型ダイヤモンド検出素子製作を支援する。また、カソードルミネッセンスによる結晶品質評価を行う。

2.1.3 中性子検出器信号読み出しモジュール開発

実機プロトタイプでは、数百チャンネルの中性子検出素子からの信号を処理してデータ転送する必要がある。これらを実現するために、積算線量 1 MGy 以上の耐放射線性をもつ信号処理集積回路の開発と、その信号処理集積回路と中性子検出素子を 1 枚の基板上に実装し、モジュールとして完成させる。

(1) 中性子高感度化と多チャンネル間補正機能を実現する信号処理回路研究開発

実機プロトタイプ用に数百チャンネルの信号処理回路利用を念頭に、素子ばらつき等の影響による信号処理回路チャンネル間のゲインばらつきやアナログ信号デジタル化のためのコンパレータオフセットばらつき等を自動でチューニングするオートキャリブレーションの手法を開発すること及びγ線のバックグラウンドから中性子信号を分離し、中性子感度を上げるための信号処理手法を研究する。

(2) プリンタブル技術による小型高密度中性子検出モジュールの研究開発

実機プロトタイプ中性子検出器を開発するに当たっては、多くの中性子検出素子と信号処理集積回路の小型基板への実装が鍵となる。特に、ダイヤモンドを用いた中性子検出素子の厚さは 40 μm と薄いため、ワイヤボンディング等の従来の実装技術は使用できない。よって、プリンタブル技術を応用することで実装可能にするだけでなく、その技術特徴を活かしてモジュールの小型化を実現する。また、本研究を通じて実機製造時に注意すべき実装プロセス及び品質保証(Quality Assurance: QA)に対する知見を蓄える。

2.1.4 臨界近接監視法の開発

プロトタイプ検出器を用いた臨界近接監視手法について検討する。

(1) 臨界近接監視手法に関する検討

燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法として適用可能性がある各測定手法 について、プロトタイプ検出器の使用を想定した際の課題を抽出する。課題解決のため、 過去に国内実験施設で取得した測定結果を活用した仮想数値実験による検討を行う。

(2) プロトタイプ検出器を用いた実験シナリオの検討

プロトタイプ検出器を用いた実環境下での測定に向けて、国内実験装置など使用したプロトタイプ検出器を用いた実験シナリオについて検討を実施する。

2.1.5 γ線照射試験と n-γ弁別性能の評価

2.1.1 項(1)、(2)、2.1.2 項(1)で開発したダイヤモンド検出素子、2.1.7 項で行うプロトタイプシステムの γ 線応答特性評価を、参画機関と協力して九州大学 γ 線照射施設で行う。また、開発した検出素子・集積回路・信号処理法に関して、中性子と γ 線の混在場における各々の感度評価、弁別性能の評価を行う。必要に応じて、結果のフィードバックをかけることで、システム性能の向上を図る。

2.1.6 中性子感度測定試験

2.1.1 項、2.1.4 項で開発した、検出素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価を原子力機構・原子力科学研究所の放射線標準施設 (FRS) 標準照射場で参画機関と協力して行う。

2.1.7 中性子計測システムの開発

2.1.1項~2.1.4項で開発された要素技術を組み合わせ、中性子計測システムのプロトタイプ開発と評価を行う。

(1) 動作試験 · 基本性能評価

2.1.1 項(1)から供されるダイヤモンド検出素子と 2.1.3 項で開発した回路等を組み合わせ、プロトタイプを製作する。さらに、 α 線源等を使用して動作試験・基本性能を評価する。

(2) γ線·中性子応答評価

2.1.7 項(1)で開発したプロトタイプに 2.1.1 項(3)で開発した中性子・荷電粒子コンバータを付加し、中性子を使用した動作試験を行う。また、開発した装置を 2.1.5 項に供して γ 線照射試験、2.1.6 項に供して中性子感度測定を行う。

(3) 臨界近接モニタとしての試験

2.1.7項(1)で開発したプロトタイプと2.1.4項で開発した臨界近接モニタリングプログラムを組み合わせ、臨界集合体等において取得したデータに基づき臨界近接モニタとしての性能評価を行う。

2.1.8 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、1F 現場に実機適用すべく、現場との意見・情報交換を行いながら、研究を進める。また、研究実施計画を推進するため、四半期毎に進捗会議を開催とする。

2.2 実施体制

実施体制を図 2.2-1 に示す。

課題全体の取りまとめ:金子純一

(1) 自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発 北海道大学

金子純一 研究責任者

樋口幹雄 中性子・荷電粒子コンバータの開発 鱒渕友治 中性子・荷電粒子コンバータの開発

山石直也 ダイヤモンド検出素子開発 学術研究員 織田堅吾 ダイヤモンド検出素子開発 博士1年

高橋正樹 ダイヤモンド検出素子開発 修士1年

(2) 積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の 製作支援 産総研 (再委託)

嶋岡毅紘 研究責任者「若手」35才

山田英明 結晶合成等茶谷原昭義 リフトオフ等

渡邊幸志 カソードルミネッセンス測定

梅沢 仁 結晶合成等

(3) 中性子検出器信号読み出しモジュール開発 高エネ研 (再委託)

岸下徹一 研究責任者「準若手」41 才

庄子正剛 実装技術開発等 田中真伸 回路開発等

(4) 臨界近接監視法の開発 名古屋大学(再委託)

遠藤知弘 研究責任者

(5) y 線照射試験と n-y 弁別性能の評価 九州大学(再委託)

渡辺賢一 研究責任者

(6) 中性子感度測定 原子力機構(連携機関)

西野 翔 研究責任者「若手」39才

高峰 潤 中性子感度測定 谷村嘉彦 中性子感度測定実験

(7) 中性子計測システムの開発

金子純一研究責任者

織田堅吾、高橋正樹

岸下徹一、庄子正剛、田中真伸

遠藤知弘 渡辺腎一

西野 翔、高峰 潤、谷村嘉彦

図 2.2-1 実施体制図

- 2.3 令和5年度の成果の目標及び業務の実施方法
 - 2.3.1 自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発
 - (1) 自立膜型ダイヤモンド検出素子量産技術の開発

主力合成装置であるマイクロ波プラズマ CVD 装置の電源を改修する。最終的に目標としている 2 cm 角以上の合成範囲において検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成が可能な合成条件を探索する。また、リフトオフ法により単結晶自立膜を合成する。リフトオフ時にレーザー切断により基板サイズが縮小する課題の対処法開発を試みる。

(2) 中性子・荷電粒子コンバータの開発 天然組成の LiF 等を使用したコンバータの合成条件探索を行う。

- 2.3.2 積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援 (再委託先:産総研)
 - (1) 積層型ダイヤモンド検出素子の開発

積層型ダイヤモンド検出素子の成膜条件を探索する。メタン濃度(CH₄/H₂)、酸素濃度(0/C)が積層型構造のp-層中の不純物濃度や表面形態に与える影響を調べる。不純物濃度は2次イオン質量分析にて定量する。表面形態について顕微鏡観察、表面粗さ等を評価する。

(2) 自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援 北海道大学が成膜した単結晶ダイヤモンドをリフトオフ法により自立化する。また、 カソードルミネッセンス法により成長層の結晶品質を評価する。

- 2.3.3 中性子検出器信号読み出しモジュール開発(再委託先:高エネ研)
 - (1) 中性子高感度化と多チャンネル間補正機能を実現する信号処理回路研究開発 既存の中性子検出素子用信号処理集積回路(以下、集積回路と略記。)の特性ばらつきを評価し、キャリブレーション手法を検討する。検討結果に基づき、特性ばらつきを抑えるための回路手法を検討し、集積回路を試作する。また、北海道大学との連携により、保有する集積回路を使用し、中性子入射時の信号とγ線入射時の信号を比較し、中性子感度を向上させることができる信号処理手法を検討する。
 - (2) プリンタブル技術による小型高密度中性子検出モジュールの研究開発 小型高密度中性子検出モジュール(以下、モジュールと略記。)の開発用配線デザインと実装プロセスを検討する。既存の集積回路及びダミー検出素子を用い、印刷装置を使用して製作した配線を用いてモジュールの試作を行う。令和6年度に整備予定の位置制御装置等を検討し、実装プロセスの概要を固める。
- 2.3.4 臨界近接監視法の開発(再委託先:名古屋大学)
 - (1) 臨界近接監視手法に関する検討

プロトタイプ中性子検出器の使用を想定した、IF 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方法論の検討、課題の抽出及び課題改善策の検討を進める。臨界近接監視手法として候補の1つとして挙がっている、炉雑音解析手法について、Feynman- α 法以外の分析手法の適用可能性について検討を行う。

(2) プロトタイプ検出器を用いた実験シナリオの検討 国内の実験装置を対象に、プロトタイプ検出器を装荷した測定実験の実施可能性に 関する情報収集を行う。

2.3.5 γ線照射試験と n-γ弁別性能の評価(再委託先:九州大学)

開発を進めるダイヤモンド検出素子、集積回路の γ 線照射試験を実施するために、照射場の整備を行う。高 γ 線量率の照射場としては、九州大学加速器・ビーム応用科学センターに設置されている 60 Co γ 線照射装置を用いる。まず、線源近傍の線量率の空間分布について詳細評価を行う。加えて、照射サンプルの位置決めを確実に行うためのサンプル固定治具を整備する。

2.3.6 中性子感度測定試験(連携先:原子力機構)

開発を進めるダイヤモンド検出素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価を 行うために必要な照射設備や照射方法等について参画機関と協議し、実験に用いる照 射治具等の試験環境の整備を進める。

2.3.7 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、1F 現場に実機適用すべく、現場との意見・情報交換を行いながら、研究を進める。また、研究実施計画を推進するため、四半期毎に進捗会議を開催する。

3. 実施内容及び成果

- 3.1 自立膜型ダイヤモンド検出素子の開発【令和5年度】
 - 3.1.1 自立膜型ダイヤモンド検出素子量産技術の開発【令和5年度】

図 3.1-1 に示すように、主力合成装置であるマイクロ波プラズマ CVD 装置のマイクロ波電源へッド(発信機部分)の寿命と既存製品の生産終了に伴うシステム更新が必要となったことから、マイクロ波電源を改修した。また、最終的に目標としている 2 cm 角以上の合成範囲において、検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成では、合成範囲を拡大するために合成時のプラズマサイズを大きくする必要があり、高いマイクロ波出力の使用が必要となる。それに伴って発生する熱量も増加することから、装置に対する高い冷却能力の付与が必要となる。そこで、冷却能力の高いチラーを新たに導入した。電源の改修と新たなチラーの導入により、最大 5 kW のプラズマ出力での合成が可能となり、2 cm 角以上の合成範囲でのダイヤモンド単結晶合成が可能な装置の準備が整った。

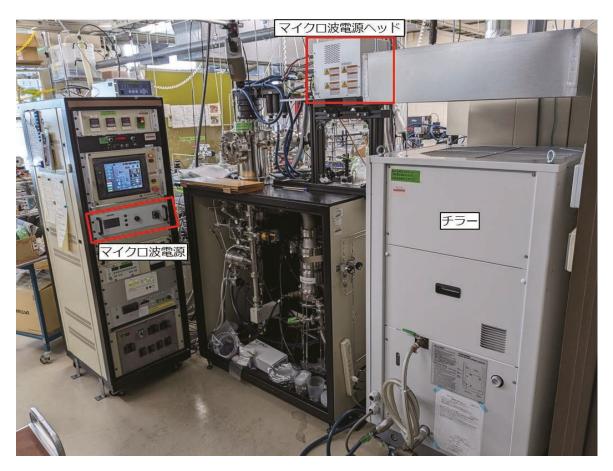
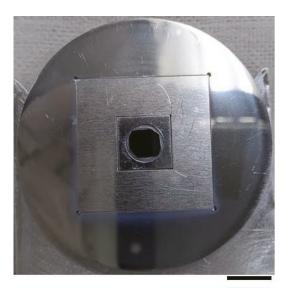


図 3.1-1 改修後のマイクロ波 CVD 装置の外観

最終目標としている 2 cm 角以上の合成範囲において検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成が可能な合成条件を探索するため、図 3.1-2 に示す 2 インチサイズの試料ホルダーを試作し、ダイヤモンド単結晶合成を試みた。合成に使用したダイヤモンド基板サイズは、約6×7 mm であった。合成条件はメタン濃度 $(CH_4/H_2+CH_4+O_2):1\%$ 、酸素濃度 $(0_2/H_2+CH_4+O_2):0.5\%$ 、容器内圧力 110 Torr、プラズマ出力:600 W、基板温度:870 °Cで、合成膜厚:123 μ m、成長率:0.6 μ m/h であった。図 3.1-3 に合成したダイヤモンド単結晶の表面レーザー顕微鏡

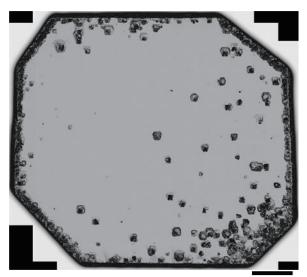
像を示す。合成したダイヤモンド層を産総研がリフトオフ作業により自立膜化した。さらに結晶両面に電極を形成、検出素子とした後に真空中において 241 Am からの 5.486 MeV α 線を入射して得たエネルギースペクトル測定例を図 3.1-4 に示す。

上記の合成条件では、十分にダイヤモンド単結晶の合成が可能であった。今後も引き続き 2 インチサイズの試料ホルダーを用いて、使用するダイヤモンド基板のサイズを大きくし、2 cm 角以上の合成範囲において検出器グレードのダイヤモンド単結晶合成が可能な合成条件の探索を進める。



10mm

図3.1-2 2インチサイズの試料ホルダー



1mm

図 3.1-3 合成したダイヤモンド単結晶の 表面レーザー顕微鏡像

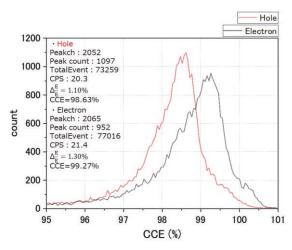


図 3.1-4 合成したダイヤモンド単結晶から製作した検出素子による 5.486 MeV α 線に対する応答関数測定例

また、現在は図 3.1-5 に示すダイレクトウェハ法を用いたリフトオフにより単結晶自立膜を製作しているが、リフトオフ時に基板に問題が発生する課題があり、その対処法開発を試みた。

図3.1-6に、対処法を施して合成したダイヤモンド単結晶の表面レーザー顕微鏡像を示す。また、図3.1-7にリフトオフにより得た自立膜の写真を示す。基板に発生する問題は回避できたが、自立膜は割れてしまった。今回の方法には改善の余地があることから、令和6年度以降も改良を進める。

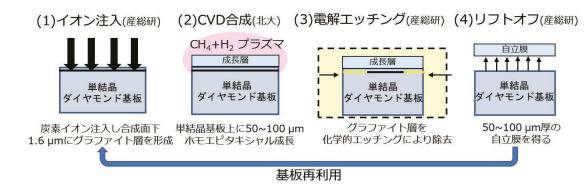


図 3.1-5 ダイレクトウェハ法の概要

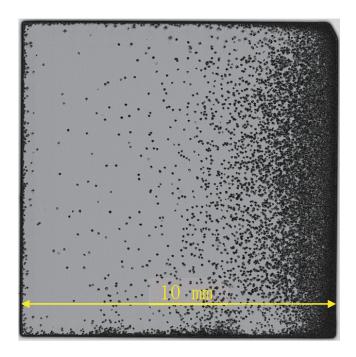


図3.1-6 基板に発生する問題を回避する条件で合成した ダイヤモンド単結晶表面レーザー顕微鏡像



図 3.1-7 リフトオフ後の自立膜

3.1.2 中性子・荷電粒子コンバータの開発【令和5年度】

天然組成の LiF にバインダーやエタノールを加えながら 1 時間程度混合した後、錠剤成型機を用いて、成型圧力: 14 MPa、成型時間: 5分で LiF の成型を行った。その後、温度を 400~600 ℃で変化させて LiF コンバータを焼結し、合成条件探索を行った。図 3.1-8 に、各温度における焼結後の LiF コンバータを示す。焼結温度が 500 ℃以上の(d)、(e)では LiF の変形、表面の凹凸が発生している。(c)でも LiF の変形が発生している。(a)、(b)では LiF の変形、表面の凹凸は発生しなかった。しかし、(a) は焼結温度が低いことが原因であると考えられるが、他の試料と比べて脆かった。そのため、今回の焼結温度の中で最もコンバータとしての仕様に適した温度は、(b) 425 ℃であった。

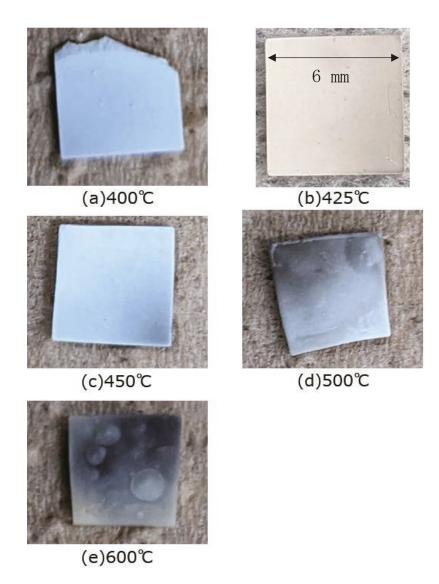


図 3.1-8 各温度における焼結後の LiF コンバータ

その後、焼結後の LiF コンバータの研磨を行った。図 3.1-9 に、研磨後の LiF コンバータのレーザー顕微鏡像を示す。研磨により、LiF コンバータの膜厚は $584~\mu m$ から $178~\mu m$ となり、臨界近接監視システムに適用可能な膜厚となった。



図 3.1-9 研磨後の LiF コンバータのレーザー顕微鏡像

※ まとめ

マイクロ波プラズマ CVD 装置の電源改修により最大 5 kW のプラズマ出力での合成が可能となった。2 インチサイズの試料ホルダーを用いてのダイヤモンド単結晶合成を行い、10 mm 角程度の範囲では検出器グレードの結晶合成が可能であることを確認した。令和 6 年度は、2 cm 角以上の領域全体で検出器グレードの単結晶育成可能な条件・合成手法の確立を目指す。レーザー切断なしでの単結晶自立膜のリフトオフを実施し、リフトオフは可能であったが課題は残るため、今後も開発を進める。

焼結温度を $400\sim600$ $^{\circ}$ で変化させることや研磨を行うことで LiF コンバータの合成条件 の目処が付き、臨界近接監視システムに適用可能な LiF コンバータの合成が可能となった。

- 3.2 積層型ダイヤモンド検出素子の開発と自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援 (再委託先:産総研)【令和5年度】
 - 3.2.1 積層型ダイヤモンド検出素子の開発【令和5年度】

自立型ダイヤモンド検出器は、高圧合成 II a 型基板の入手性、自立膜へのワイヤボンディング等既存の実装技術の適用が難しい等の課題があることから、本研究開発では自立型検出器供給体制のバックアップとして、絶縁性ダイヤモンド基板上に導電性の高濃度ホウ素ドープダイヤモンド層(p^- 層)、高純度層(p^- 層)を積層した構造からなる検出器の開発を並行して進めている。

積層構造は高濃度ホウ素ドープ層上に放射線検出用の高純度エピ層を形成する必要がある。マイクロ波プラズマ CVD においては、 p^+ 層がホウ素の固体ソースとなり、 p^- 層をエピタキシャル成長する際、膜中の不純物濃度を上昇させてしまう。そこで、令和 5 年度は、高濃度ホウ素ドープ層上にホウ素濃度を抑えた p^- 層を形成するための成膜条件を探索した。具体的には、メタン濃度 (CH_4/H_2) 、酸素濃度 (0/C) が積層型構造の p^- 層中の不純物濃度や表面形態に与える影響を調べた。不純物濃度は、2 次イオン質量分析法(Secondary Ion Mass Spectroscopy:SIMS)にて定量した。また、表面形態について顕微鏡観察、表面粗さ等を評価した。

図 3.2-1 には試料製作の工程を示す。絶縁性ダイヤモンド基板上に、熱フィラメント化学 気相成長(HFCVD)法によって p^{\dagger} 層をエピタキシャル成長させた。次に、高濃度ホウ素ドープ 層上にマイクロ波プラズマ CVD 法により、ガス圧 120 Torr、基板温度 850 $^{\circ}$ C、マイクロ波出力を 3 kW として p^{-} 層をエピタキシャル成長させた。メタン濃度(CH_4/H_2)4%でバッファ層を形成した後、成長中のメタン濃度(CH_4/H_2)と酸素濃度(O/C)を変化させ、エピタキシャル成長した複数の試料を製作した。膜中のホウ素濃度は SIMS によって定量した。



図 3.2-1 試料構造と工程

図 3. 2-2 には、メタン濃度(CH_4/H_2)を段階的に変化させた試料の SIMS 分析プロファイルを示す。ホウ素濃度 1E20 atoms/ cm^3 の p+層の上にメタン濃度 (CH_4/H_2) を $1\sim6\%$ に変化させ、エピタキシャル成長させた。メタン濃度 (CH_4/H_2) は気相中のメタンに対する、キャリアガスである水素の組成比(CH_4/H_2)として定義した。 SIMS プロファイルからメタン濃度(CH_4/H_2)の増減に伴い、膜中に取り込まれているホウ素の濃度も増減していることがわかる。プロファイルから、各メタン濃度(CH_4/H_2)での平均濃度を見積もったところ、メタン濃度(CH_4/H_2)の減少に伴い、ホウ素濃度が減少する傾向がみられた。

図 3. 2–3 には、メタン濃度(CH_4/H_2)を 6%に固定し、気相中の酸素濃度(0/C)を変化させた試料のプロファイルを示す。ここで、酸素濃度(0/C)は炭素原子に対する酸素原子の組成比(0/C)として定義した。0/C=0%では 3E16 atoms/cm³であったホウ素濃度が、0/C=10%では 1E16 atoms/cm³に低下した。一方、0/C=25、50%とし、さらに酸素濃度(0/C)を増加してもホウ素濃度の変化はみられなかった。

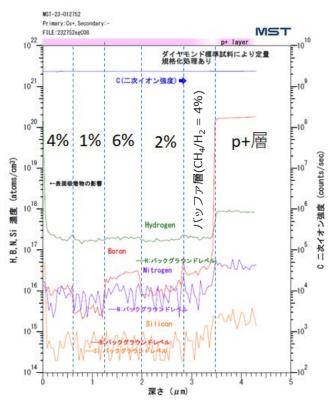


図 3.2-2 メタン濃度 (CH₄/H₂) を段階的に変化させた試料の SIMS プロファイル

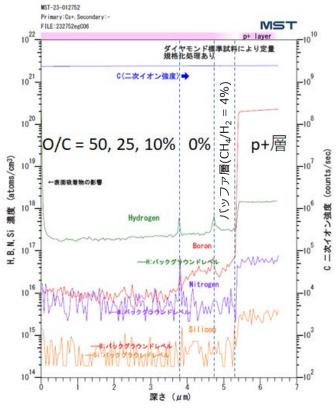


図 3.2-3 酸素濃度 (0/C) を段階的に変化させた試料の SIMS プロファイル

先の例で示したメタン濃度(CH_4/H_2)、酸素濃度(O/C)の変化は、ダイヤモンド成長に寄与する気相中の炭素を含むラジカルの濃度を変化させる。したがって、それに伴い成長速度も変化してしまう。そこで、成長速度に着目し、p-層における、膜中ホウ素の取り込み量の成長速度依存性をまとめた結果を図 3.2-4 に示す。ここで、成長速度は SIMS プロファイルから得られた膜厚を成長時間で割った値、ホウ素濃度は SIMS プロファイルの平均値とした。各プロット点の横にはメタン濃度(CH_4/H_2)、酸素濃度(O/C)を記載した。メタン濃度(CH_4/H_2)の減少に伴い、成長速度は減少し、ホウ素の取り込み量も同様に減少した。酸素添加の有無に関して、同程度の成長速度の試料を比較すると酸素添加条件で成長した試料の方がホウ素濃度が低く抑えられた。なお、本測定においてホウ素濃度のバックグラウンドは IE15 atoms/ cm^3 であり、最も低いホウ素濃度であったメタン濃度(CH_4/H_2) 1%、酸素添加をした試料ではさらにホウ素濃度が低い可能性がある。令和 6年度以降は SIMS 分析時の 1次イオンをセシウムから酸素に変更して、よりホウ素に対する感度の高い条件で定量を行う予定である。

エピタキシャル成長において、ホウ素は原子ステップで取り込まれやすい。ホウ素原子がステップで1度取り込まれ、その上に原子層が積み上げられるまでは、ホウ素原子は再表面にあり脱離しやすい。成長速度が小さい場合、この状態が長く継続するため、ホウ素の取り込みが抑制されるものと考えられる。酸素添加によりホウ素濃度が抑えられた要因としては、成長速度の減少に加え、酸素がホウ素を含むラジカルと結合し、気相中のホウ素濃度(B/C)を抑制した可能性も考えられる。

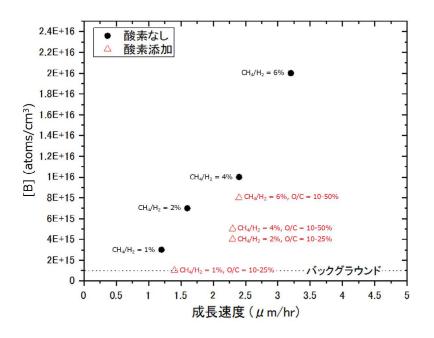


図 3.2-4 膜中ホウ素濃度の成長速度依存性

次に、得られた試料の表面粗さ、表面形態を評価した。表面粗さは白色干渉顕微鏡により評価した。p-層の膜厚 $3\sim5$ μm の複数の試料の中央部付近を評価したところ、200 $\mu m \times 250$ μm 四方の算術平均粗さは $0.7\sim7$ nm であった。図 3.2-5 には、最もホウ素濃度が抑えられたメタン濃度(CH_4/H_2) 1% かつ酸素添加をした試料のエピタキシャル成長後の微分干渉顕微鏡像の例を示す。図 3.2-5 (a)、(b) には、メタン濃度(CH_4/H_2) 1%、酸素濃度(0/C) 10% で

成長した試料の全体像及び中央部の微分干渉顕微鏡像を示す。この条件では試料全域でエピタキシャル成長した。一方、酸素濃度(0/C)25%で成長した試料では試料中央部において、図 3.2-5(c)、(d)で示すように、プラズマエッチングによりエッチピットが形成された。水素あるいは酸素ラジカルのエッチング寄与が大きく、成長に寄与するメタンを含むラジカルが不足した結果、エッチングが進行したものと考えられる。図 3.2-3 のプロファイルで示したように、メタン濃度(CH_4/H_2)を固定し、酸素濃度(0/C)を 25%以上に増加しても、ホウ素の取り込み量はほとんど変わらない。以上の結果から、本節で行った p-層の成長条件においては、メタン濃度(CH_4/H_2)1%、酸素濃度(0/C) 10%とするのが妥当と判断した。

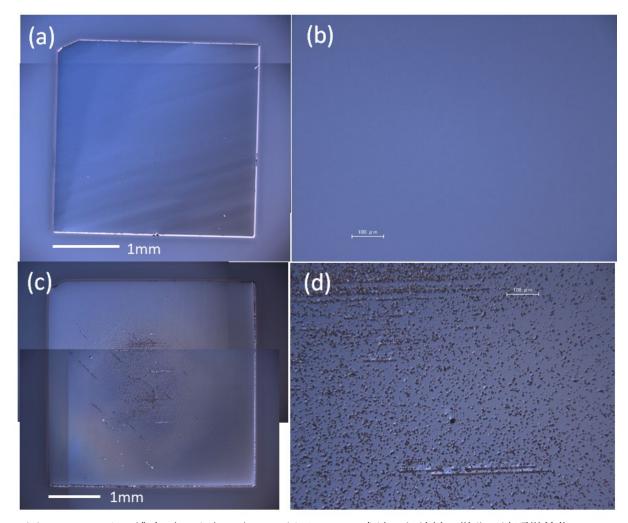


図 3. 2-5 メタン濃度 (CH₄/H₂) 1%でエピタキシャル成長した試料の微分干渉顕微鏡像 (a) 酸素濃度 (0/C) 10%で成長した試料の全体像、(b) 中央部 (c) 酸素濃度 (0/C) 25%で成長した試料の全体像、(d) 中央部

3.2.2 自立膜型ダイヤモンド検出素子の製作支援【令和5年度】

3.1.1 項にて北海道大学が成膜した単結晶ダイヤモンドをリフトオフ法により自立化した。 また、図 3.2-6 に示すようにカソードルミネッセンス法により成長層の結晶品質を評価した。

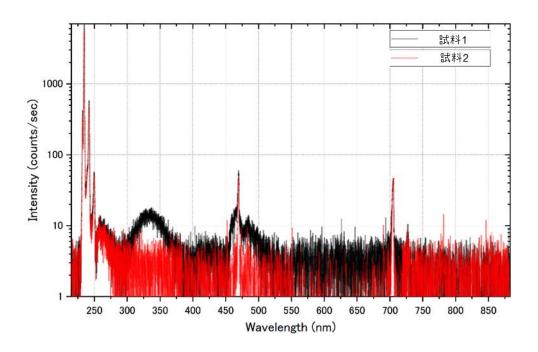


図 3.2-6 北海道大学が成膜した成長層のカソードルミネッセンススペクトル

※ まとめ

積層構造において、高濃度ホウ素ドープダイヤモンド上に放射線検出用の高純度エピ層を形成するための成長条件探索を実施した。パラメータとして、メタン濃度(CH_4/H_2)、酸素濃度 (0/C) の 2 つを変化させ、SIMS にてホウ素濃度の定量を実施した。(1) メタン濃度 (CH_4/H_2) を低減し、成長速度を低下させることで、ホウ素の取り込みが抑制されること、(2) 酸素を添加することで、同程度の成長速度において、酸素を添加しない場合と比較してホウ素の取り込み量が $30\sim40\%$ 程度に抑えられることを明らかにした。また、(1)、(2) を組み合わせ、メタン濃度 (CH_4/H_2) 1%、酸素濃度 (0/C) 10%で成長した試料では、ホウ素濃度 1E20 atoms/ cm^3 以上の高濃度ホウ素ドープダイヤモンド上にホウ素濃度 1E15 atoms/ cm^3 以下の高純度層が形成できることを確認した。高純度エピ層のホウ素濃度の測定値は、SIMS のバックグラウンドにより制限されているため、令和 6 年度以降は、より高感度条件で 1E14 atoms/ cm^3 オーダーのホウ素濃度の定量を行うと共に、積層構造型検出器を試作し、C-V(容量 - 電圧)特性からの空乏層幅、アクセプター濃度評価を行う予定である。

- 3.3 中性子検出器信号読み出しモジュール開発(再委託先:高エネ研)【令和5年度】
 - 3.3.1 中性子高感度化と多チャンネル間補正機能を実現する信号処理回路研究開発 【令和5年度】

集積回路に搭載されているコンパレータの閾値電圧が製造プロセスによってチャンネル間で ばらつく課題に対応することを目的として、キャリブレーション手法を検討した。図3.3-1(左) に、コンパレータ回路部分のブロックダイヤグラムを示す。既存の集積回路では、閾値電圧 は外部からの参照電圧 (VREF) を基に、4 bitのDAC (Digital-to-Analog Converter) で与 える構成となっていた。しかし、チャンネル間の電圧のばらつきを調整するためには 4 bit の 分解能では十分ではなく、100 チャンネル以上のセンサーを読み出す多チャンネル化システ ムにおいては、1 チャンネルずつ閾値電圧を DAC で調整するのは現実的ではない。そこで、今 回新たに閾値電圧の Auto-tuning 回路を導入し、DAC の分解能も 4 bit から 8 bit に増やし た。図 3.3-1(右)は、横軸を時間、縦軸を電圧値として、Auto-tuning 回路の出力電圧(VTH) がアナログ回路のベースライン電圧(AIN)に自動的に収束していく様子を示したものである。 実際の集積回路のオペレーションとしては、最初に全チャンネルの閾値電圧をアナログ回路 のベースラインの値に揃えたのち、8 bit の DAC の電圧値を足し引きすることによって、全 チャンネルで任意で一様な VTH 値を与えることができるようになる。VTH を調整後は、中性 子からの信号をコンパレータで計測してバックエンド回路へとデータ送信する。Auto-tuning 回路自体は、アップダウンカウンターでコンパレータの出力をカウントし、そのカウントの 増減の結果に応じて閾値電圧を上げ下げする回路機構となっており、動作に必要なクロック 信号は、チップ外部から供給する仕様とした。

図 3.3-2 に、試作したチップの写真を示す。ダイヤモンドセンサーからの信号を処理するための回路構成は、北海道大学との連携により、これまでに雑音性能と放射線耐性が実証されている荷電有感型増幅回路を使用し、 γ 線バックグランドによる偽中性子信号出力を抑えるために、信号処理回路の時定数は 50 nsec に調整している。図 3.3-2 の諸元に示すように、ダイヤモンドセンサーの検出器容量を 5 pF 程度と仮定した場合であっても、S/N は 100 以上を達成することができるため、アナログ性能としては十分な値が確保できている。令和 5 年度は、このチップの製作までを実施したため、実際的な性能評価試験は令和 6 年度に実施する予定である。

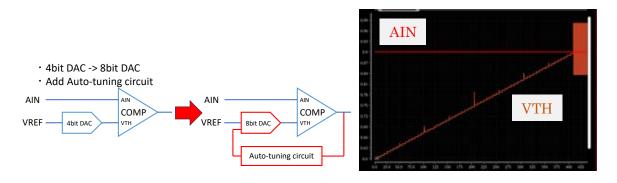
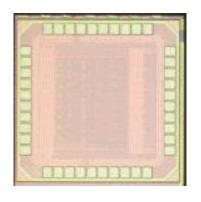


図3.3-1 閾値電圧調整回路のブロックダイヤグラム(左)及び閾値電圧の自動調整の波形(右)



Nu-	K_CSA	
Type	charge sensitive	
Peaking time	50nsec(t _w ~100nsec)	
Noise	-1500e @Cdet=5pF	
S/N	~350@Cdet=5pF	

図3.3-2 試作した信号処理回路の写真とアナログ性能の諸元

3.3.2 プリンタブル技術による小型高密度中性子検出モジュールの研究開発【令和5年度】モジュールの開発用配線デザインと実装プロセスを検討した。我々が目指すチャンネル数の達成のために、モジュールには中性子コンバータの両側をダイヤモンドセンサーで挟み込んだ構造にする必要がある。本研究開発で使用するダイヤモンドセンサー厚は約50 μm、中性子コンバータ厚は約200 μmとすることが検討されており、下段ダイヤモンドセンサーの実装については、印刷機で印刷した導電性フィルムを用いて接続して、放射線検出機として動作することが確認できている。本研究開発の課題となる中性子コンバータと上段ダイヤモンドセンサーの接続について、実装プロセスを検討した。配線デザインと実装プロセスの概略図を示す(図3.3-3)。実装プロセスは、①中性子コンバータ上に上段ダイヤモンド用のバイアス電圧印加用配線を印刷し、②上段ダイヤモンドセンサーを接着、③上段ダイヤモンドの信号配線を印刷する。

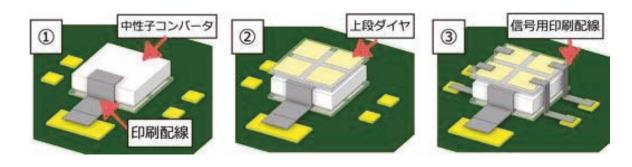


図 3.3-3 実装プロセス検討図

約300 µm の段差を乗り越える印刷配線の形成のため、産総研の印刷装置を用いて段差乗り越え配線の印刷試験を行った。この試験では、ダミー素子に相当するガラス面に微細配線を印刷し、印刷配線の配線幅、配線厚等の情報を得た(図3.3-4)。センサー配線の印刷手法検証のために、ダミー素子の厚みは約400 µm のものを使用して条件出しを行った。

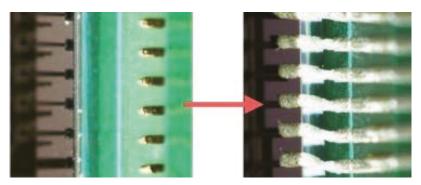


図3.3-4 約300 µmの段差を乗り越える狭ピッチ印刷配線の試験 (ダミー素子と試験基板を用いて試験を行っている。右が配線印刷前、左が段差乗り越え印刷後。 ダミー素子電極と基板電極間を印刷配線で接続している。)

また、令和5年度は、高エネ研に印刷装置(図3.3-5)を導入し、令和6年度以降のセンサー実装に向けた準備を進めた。令和6年度には、アライメント調整用の印刷位置制御装置と数 μm 厚の薄膜を製作するための膜厚調整機構を導入し、センサー実装手法を確立する。



図 3.3-5 スクリーンオフセット印刷機 (センサー実装に向けて整備を進めている。)

※ まとめ

モジュールの開発用配線デザインと実装プロセスを検討した。既存の集積回路及びダミー検出素子を用い、印刷装置を使用して製作した配線を用いてモジュールの試作を行った。令和6年度に整備予定の位置制御装置等を検討し、実装プロセスの概要を固めた。モジュールの試作は、主に産総研の印刷装置を使用して、ダミー素子に相当するガラス面に微細配線を印刷し、配線幅やピッチなどの情報を得た。また、令和5年度は、高エネ研に印刷装置をインストールし、令和6年度以降の実装に向けた準備を進めた。

- 3.4 臨界近接監視法の開発(再委託先:名古屋大学)【令和5年度】
 - 3.4.1 臨界近接監視手法に関する検討【令和5年度】

プロトタイプ中性子検出器の仕様を想定した、1F燃料デブリ取り出し作業における臨界近接監視を行うための方法論の検討、課題の抽出及び課題改善策の検討を進めた。臨界近接監視手法 $[1]^{[2]}$ の1つとして、炉雑音解析手法[3]が候補として挙がっている。この炉雑音解析手法に関する検討として、先行研究[4]では $Feynman-\alpha$ 法[5]に関する検討結果が主に報告されている。ただし、炉雑音解析手法には $Feynman-\alpha$ 法以外にもさまざまな分析手法[3]がこれまでに提案されており、1F燃料デブリ取り出し作業時の現場状況に応じた適切な分析手法について検討する必要がある。そこで、令和5年度の検討では、 $Feynman-\alpha$ 法以外の分析手法として、自己相関法の適用可能性について課題を抽出して検討を実施した。

自己相関法 $^{[3]}$ とは、炉雑音(一定の時間間隔 $\Delta \tau$ で測定した中性子計数時系列データ C_i)の測定結果から自己相関関数 $\rho(\tau)$ を分析し、時間ラグ τ に対する $\rho(\tau)$ の指数関数的な減衰率を求めることで、即発中性子減衰定数 α (核分裂連鎖反応の時間的減衰定数)を測定する手法である。

$$\rho(\tau) = \rho(k\Delta\tau) = \frac{\gamma_k}{\gamma_0} \approx A e^{-\alpha\tau} + B, \quad \text{for } \tau > 0$$

$$\chi(3.4-1)$$

$$\gamma_k = \langle (C_i - \mu)(C_{i+k} - \mu) \rangle$$

$$\chi(3.4-2)$$

$$\mu = \langle C_i \rangle$$

$$\chi(3.4-3)$$

上式において、ブラケット()は期待値、 μ は真の平均、 γ_0 は真の分散、 γ_k はラグkの真の自己共分散、係数A,Bはフィッティングパラメータをそれぞれ表す。他の炉雑音解析手法と比べ自己相関法には、以下に挙げるような利点がある。

- ✓ Rossi-α法^[6]の場合には個々の中性子検出時刻信号を区別する必要があるが、自己相関 法の場合には、中性子計数率の大小に依存せず分析しやすい。
- \checkmark 検出器の不感時間に比べて時間間隔 $\Delta \tau$ が大きい場合、不感時間の影響は主に分散 γ_0 に現れるため $^{[7]}$ 、フィッティングにより α を求める際に不感時間が与える影響が小さい。
- \checkmark α を求める際のフィッティング式が、指数関数の和 $\sum_i A_i e^{-\omega_i \tau}$ といった比較的単純な関数形で表すことができる。したがって、動的モード分解 $^{[8][9]}$ を利用して基本モードの α を頑健に推定できる可能性がある。
 - 一方で、自己相関法の検討すべき課題として、以下の点が挙げられる。
- ・ 中性子計数の時系列データ数Nが少ない場合、標本共分散による共分散推定結果にデータ数Nに起因した系統誤差が生じ、式(3.4-1)による自己相関関数 $\rho(\tau)$ の推定結果にも系統誤差が生じる。なお、Feynman- α 法の場合、先行研究 $^{[10][11]}$ において有限のデータ数Nが分散対平均比に与える影響について検討がなされている。
- ・ 時系列データ数Nに依存して、自己相関法で求めた α 測定結果に統計的不確かさが生じるが、その推定手法に関する先行研究例がない。なお、Feynman- α 法の場合、 α 測定結果の統計的不確かさ評価手法について、先行研究[12][13]で検討がなされている。

1F 燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視手法について考えた場合には、作業を妨げることがないように、炉雑音測定の測定時間に制限がある状況も想定される。したがって、限られた測定時間で得られた炉雑音測定データから適切に自己相関関数を推定し、統計的不確かさを定量評価する必要がある。そこで、本課題を解決するために令和5年度の検討では、

標本共分散の不偏推定法[14]に関する検討及び Stationary Bootstrap 法[15]を利用した自己相 関法によるα測定結果の統計的不確かさ評価手法について検討した。

まず、ある一定の時間間隔 $\Delta \tau$ で連続測定した中性子計数の時系列データ $\vec{C} = (C_1, C_2, \cdots, C_N)$ を想定し、そのデータ数をN個とする。この時系列データ \vec{c} に対して、標本平均 \bar{c} を求めたう えで、ラグkの標本自己共分散 $\hat{\gamma}_k$ を以下のように推定したとする。

$$\hat{\gamma}_k = \frac{1}{N-k} \sum_{i=1}^{N-k} (C_i - \bar{C})(C_{i+k} - \bar{C})$$

$$\vec{\Xi}(3.4-4)$$

ここで、自己共分散のラグkとして $0 \le k \le K$ の範囲について考えた場合(K < N)、自己共 分散の不偏推定量 $\tilde{\gamma}_k$ は、以下で示す連立方程式の解より求めることができる $^{[14]}$ 。

$$\mathbf{A}\widetilde{\boldsymbol{\gamma}} = \widehat{\boldsymbol{\gamma}}$$
 $\vec{\Xi} (3.4-6)$

$$\mathbf{A}\widetilde{\boldsymbol{\gamma}} = \widehat{\boldsymbol{\gamma}} \qquad \qquad \qquad 式(3.4-6)$$
 $\widetilde{\boldsymbol{\gamma}} = (\widetilde{\gamma}_0 \quad \widetilde{\gamma}_1 \quad \cdots \quad \widetilde{\gamma}_K)^{\mathrm{T}} \in \mathbb{R}^{(K+1)\times 1} : 不偏自己共分散ベクトル \qquad 式(3.4-7)$ $\widehat{\boldsymbol{\gamma}} = (\widehat{\gamma}_0 \quad \widehat{\gamma}_1 \quad \cdots \quad \widehat{\gamma}_K)^{\mathrm{T}} \in \mathbb{R}^{(K+1)\times 1} : 標本自己共分散ベクトル \qquad 式(3.4-8)$

$$\hat{\mathbf{y}} = (\hat{y}_0 \quad \hat{y}_1 \quad \cdots \quad \hat{y}_K)^T \in \mathbb{R}^{(K+1)\times 1} : 標本自己共分散ベクトル 式(3.4-8)$$

式(3.4-6)の係数行列Aは、標本自己共分散ベクトルの期待値(ŷ)を考えることで、以下の ように解析的に求めることができる。なお、本検討では、式(3.4-4)のように分母を(N-k)で割る形で標本自己共分散 $\hat{\gamma}_k$ を定義するため、係数行列Aの各要素は文献 $^{[14]}$ で示された式と は若干異なった表現となっている。

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} a_{00} & a_{01} & \cdots & a_{0K} \\ a_{10} & a_{11} & \cdots & a_{1K} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{K0} & a_{K1} & \cdots & a_{KK} \end{pmatrix} \in \mathbb{R}^{(K+1)\times(K+1)}$$

$$\vec{x}(3.4-11)$$

$$a_{0k} = \begin{cases} 1 - \frac{1}{N} & k = 0, \\ -\frac{2}{N} \left(1 - \frac{k}{N}\right) & 1 \le k, \end{cases}$$

for $1 \le j \le \frac{N-1}{2}$:

$$a_{jk} = \begin{cases} -\frac{1}{N} & k = 0, \\ -\frac{2}{N-j} \left(1 - \frac{j}{N} \left(1 + \frac{k}{N} \right) \right) & 1 \le k \le (j-1), \\ 1 - \frac{2}{N-j} \left(1 - \frac{j}{N} \left(1 + \frac{j}{N} \right) \right) & j = k, \\ -\frac{2}{N-j} \left(1 - \frac{k}{N} \left(1 + \frac{j}{N} \right) \right) & (j+1) \le k \le (N-j-1), \\ -\frac{2}{N-j} \frac{j}{N} \left(1 - \frac{k}{N} \right) & (N-j) \le k, \end{cases}$$

for
$$\frac{N-1}{2} \le j$$
:
$$a_{jk} = \begin{cases}
-\frac{1}{N} & k = 0, \\
-\frac{2}{N-j} \left(1 - \frac{j}{N} \left(1 + \frac{k}{N} \right) \right) & 1 \le k \le (N-j-1), \\
-\frac{2}{N} \frac{k}{N} & (N-j) \le k \le (j-1), \\
1 - \frac{2}{N} \frac{j}{N} & j = k, \\
-\frac{2}{N-j} \frac{j}{N} \left(1 - \frac{k}{N} \right) & (j+1) \le k.
\end{cases}$$
(continued)

式 (3.4-12) より、データ数 $N\to\infty$ の極限を考えた場合には係数行列Aは単位行列に収束する $(\lim_{N\to\infty}a_{jk}=\delta_{jk})$ ことがわかる。この場合、式 (3.4-9) に基づくことで、標本自己共分散の期待値 $(\widehat{\gamma})$ は真値 γ に収束すると期待できる。しかし、データ数Nが小さくなるにつれて、係数行列Aと単位行列の差が大きくなるため、標本自己共分散の期待値 $(\widehat{\gamma})$ は $(\widehat{\gamma})=A\gamma$ となり、偏った推定結果となる。例えば、全てのラグkについて真の自己共分散が $\gamma_k>0$ である場合には、 $(\widehat{\gamma}_k)<\gamma_k$ となり、過小評価となる。一方、自己共分散の推定量 $\widehat{\gamma}$ を式 (3.4-6) の連立方程式の解 $(\widehat{\gamma}=A^{-1}\widehat{\gamma})$ により求めた場合、その期待値は $(\widehat{\gamma})=A^{-1}(\widehat{\gamma})=\gamma$ となることが期待でき、 $\widehat{\gamma}$ が不偏推定量となることがわかる。

自己相関法による α 測定結果の統計的不確かさ評価手法については、炉雑音測定結果を定常時系列データとみなすことで、Stationary Bootstrap 法を用いることとした。統計的不確かさ評価の具体的な手順は、以下のとおりである。

- 1. 一定の時間間隔 $\Delta \tau$ で連続測定した中性子計数の時系列データ \vec{c} を用意する。
- 2. オリジナルの時系列データ \vec{C} に対して Stationary Bootstrap 法を適用することで、B 個の時系列データ \vec{C}^{*b} をリサンプリングする $(1 \le b \le B)$ 。
- 3. 各 Bootstrap 標本 \vec{C}^{*b} に対して、式(3.4-4)により標本自己共分散 $\hat{\gamma}^{*b}$ を求め、連立方程式式(3.4-6)の数値解を求めることで不偏推定量 $\hat{\gamma}^{*b}$ を評価する。
- 4. 推定した自己共分散 $\tilde{\gamma}^{*b}$ より、式(3.4-1)に基づいて各時間ラグ $\tau = k\Delta \tau$ に対する自己相関関数 $\rho^{*b}(\tau) = \tilde{\gamma}_k^{*b}/\tilde{\gamma}_0^{*b}$ を評価し、B個の自己相関関数 $\rho^{*b}(\tau)$ から Bootstrap 標準偏差 $\sigma_{\rho^*}(\tau)$ (1 シグマ)を推定する。
- 5. $\sigma_{\rho^*}(\tau)$ の逆数を重みとして、自己相関関数の各 Bootstrap 標本 $\rho^{*b}(\tau)$ に対してフィッティング式 (例: $A e^{-\alpha \tau} + B$) を最小 2 乗フィッティングすることで、B個の即発中性子減衰定数 α^{*b} を求める。
- 6. B個の即発中性子減衰定数 α^{*b} から、2.5 パーセンタイル値と 97.5 パーセンタイル値を 推定し、Bootstrap 95%信頼区間を求めることで、統計的不確かさを推定する。

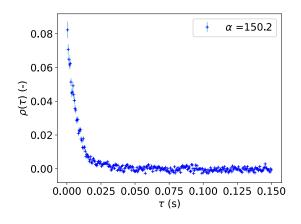
以上で述べた自己相関法の即発中性子減衰定数α推定結果の妥当性を確認するため、過去に 国内実験施設(近畿大学原子炉、UTR-KINKI^[16])で測定された炉雑音測定データ^[17]を再活用 して検討を実施した。上記実験では、外部中性子源のない原子炉停止状態の未臨界炉心にお いて、BF₃検出器を黒鉛反射体の中央ストリンガー孔に設置することで、中性子検出時刻の時 系列データが測定されている。ウラン-アルミニウム合金内の内在中性子源 (U の α 崩壊と 27 A1 による (α , n) 反応) を種火とした未臨界増倍によって体系内で定常状態の中性子束が維持されており、平均中性子計数率が約 35 cps の炉雑音測定データが取得されている。妥当性確認の具体的な手順は、以下のとおりである。

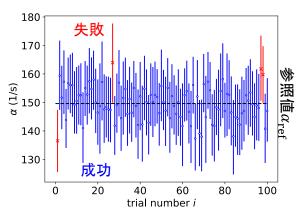
- 1. $600 \, \mathrm{s}$ 単位の炉雑音測定を $1 \, \mathrm{回}$ の試行とみなし、 $100 \, \mathrm{@}$ の試行データを用意する $(1 \leq i \leq 100)$ 。
- 2. i 番目の試行データに対して Stationary Bootstrap 法を適用し、自己相関関数 $\rho_i^{*b}(\tau)$ を不偏推定し、即発中性子減衰定数 α_i の統計的不確かさ(Bootstrap 95%信頼区間)を推定する。

なお、本検討では、時系列データ時間幅 $\Delta \tau = 0.0005 \, \mathrm{s}$ 、ラグ最大値K = 300、Bootstrap サンプルサイズB = 1,000、Stationary Bootstrap 法における平均ブロック幅 $3,000 (= 1.5 \, \mathrm{s})$ の条件で分析を実施した。

- 3. 推定した統計的不確かさ範囲内に参照値 $\alpha_{\rm ref}$ が含まれている試行データ数の割合 $p_{\rm calc}$ を調べる。ここで、参照値 $\alpha_{\rm ref}$ は 100 個の試行データから得られた α_i の標本平均 $\overline{\alpha}$ とする。
- 4. 求めた割合 p_{calc} と被覆確率の参照値 $p_{\text{ref}} = 95\%$ を比較し、本手法で推定した α 統計的不確かさの妥当性を確認する。

提案手法による即発中性子減衰定数 α の推定結果を図 3.4-1に示す。図 3.4-1(b)において、エラーバーは Bootstrap 95%信頼区間を示しており、青色プロット(成功)は参照値 $\alpha_{\rm ref}$ が信頼区間内に含まれる場合、赤色プロット(失敗)は参照値 $\alpha_{\rm ref}$ が信頼区間外にある場合をそれぞれ示している。検討結果より、提案手法によって推定された信頼区間内に参照値 $\alpha_{\rm ref}$ が含まれる割合は $p_{\rm calc}=96\pm2\%$ であり、被覆確率の参照値 $p_{\rm ref}=95\%$ とよく一致していることから、提案手法による α 統計的不確かさ評価結果の妥当性を確認できた。





(a) 自己相関関数 (i = 46番目の試行データ)

(b) α統計的不確かさ評価結果

図 3.4-1 自己相関法によるα測定結果の統計的不確かさ評価結果

3.4.2 プロトタイプ検出器を用いた実験シナリオの検討【令和5年度】

国内の実験装置を対象として、プロトタイプ検出器を装荷した測定実験の実施可能性に関する情報を収集した。

令和6年3月時点において、臨界実験可能な国内実施施設は近畿大学原子炉(UTR-KINKI) [16] のみである。3.4.1 項における検討で利用した過去測定データ [17] の場合、外部中性子源を挿入しない原子炉停止状態において、黒鉛反射体の中央ストリンガー孔(縦9.5 cm×横9.5 cm×深さ 122 cm の空洞)に直径 1 インチの BF_3 検出器 [18] を設置することで、炉雑音測定を実施していた。この測定条件において平均中性子計数率が約 35 cps であったことから、使用した BF_3 検出器の中性子感度が約 6 cps/nv であれば、原子炉停止状態の中央ストリンガー孔の検出器設置位置における中性子束は、約 6 neutrons/(cm²・s)のオーダーと概算できる。なお、1F 1 号機原子炉格納容器 (PCV) 内部調査の堆積物デブリ検知の調査 [19] において、B10 検出器で計測された熱中性子束のオーダーは 4~6 neutrons/(cm²・s)の範囲にわたっている。したがって、原子炉停止状態の UTR-KINKI を利用することで、プロトタイプ検出器を用いた実験シナリオの 1 つとして、1F 燃料デブリ取り出し時に想定される低中性子束の条件下における炉雑音測定について検討できると考えられる。

ただし、UTR-KINKI の場合、起動用 Pu-Be 中性子源を炉心に挿入して起動系の核計装(核分裂計数管)の計数率が 10 cps を超えない限り、制御棒の引抜操作により反応度を変化させることができない点に留意せねばならない。言い換えると、燃料デブリ取り出し作業時における未臨界過渡変化を模擬した実験シナリオを考える場合には、外部中性子源なしの原子炉停止状態で制御棒を引き抜く実験を実施することはできない。したがって、未臨界状態の UTR-KINKI を使用して反応度過渡変化に関する実験シナリオを計画する場合には、起動用 Pu-Be 中性子源を炉心に挿入した条件下で実験計画を練る必要がある。ここで、全制御棒が全挿入された原子炉停止状態から、起動用 Pu-Be 中性子源を挿入した場合には、黒鉛反射体の中央ストリンガー孔の検出器設置位置における中性子束は、約 3×10³ neutrons/(cm²・s)程度まで増加すると見込まれる。安全棒や制御棒の引抜操作により未臨界が浅くなるにつれ、中央ストリンガー孔の検出器設置位置の中性子束はさらに増加するため、UTR-KINKI における未臨界過渡変化実験のシナリオを考える場合には、今後試作するプロトタイプ検出器の中性子感度に応じた適切な設置位置を模索したうえで、実験シナリオを計画する必要もあるといえる。

以上の情報収集結果より、国内の実験装置として UTR-KINKI を候補とし、プロトタイプ検 出器を用いた実験シナリオについてさらなる検討を行うため、令和 6 年度に予備実験が実施 できるよう共同利用研究計画の手続きを申請した。

※ まとめ

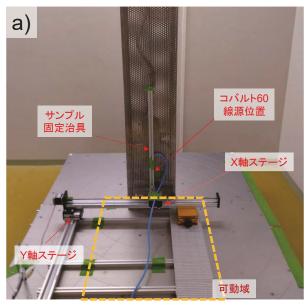
プロトタイプ中性子検出器の使用を想定した、IF における燃料デブリ取り出し作業時の臨界近接監視を行うための方法論の検討、課題の抽出及び課題改善策の検討を進めた。臨界近接監視手法として候補の1つとして挙がっている、炉雑音解析手法について Feynman- α 法以外の分析手法として自己相関法に注目し、Stationary Bootstrap 法による統計的不確かさ評価手法について検討し、短時間(10分間)の炉雑音測定1回のみに基づいて即発中性子減衰定数の統計的不確かさが推定できることを確認した。

国内の実験装置を対象に、プロトタイプ検出器を装荷した測定実験の実施可能性に関する情報を収集した。情報収集の結果、国内の実験装置として近畿大学原子炉を候補とし、令和6年度に予備実験が実施できるよう共同利用研究計画の手続きを申請した。

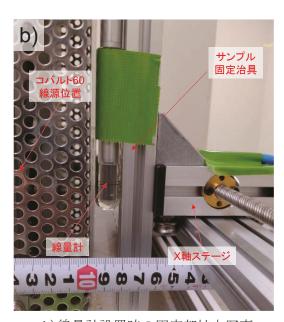
3.5 y線照射試験とn-y弁別性能の評価(再委託先:九州大学)【令和5年度】

令和6年度より開始する評価試験のため試験設備を整備する一環として、サンプル固定治具の整備を行った。当研究で開発を進めている中性子検出器は、数百 Gy/h の高強度 γ 線場の中で動作することが求められている。当該項目を含む、開発を進めるダイヤモンド検出素子、集積回路の性能評価試験では、高強度 γ 線場という環境の中で、問題なく中性子を検出可能か否かについて確認することが必要となる。 γ 線照射試験は、九州大学加速器・ビーム応用科学センターに設置されている ^{60}Co γ 線照射装置を用いて実施する予定である。当該照射装置の γ 線源は棒状線源であり、サンプル設置位置の線源からの距離を変化させることで照射する線量率を変化・調整することが可能となる。

照射試験では、検出素子等の健全性を確認するため、加えて問題点の抽出のために種々の線量率での試験が必要となる。そのような試験を実施するために、サンプル設置位置を移動させることのできるサンプル固定治具を整備した。図 3.5-1 に可動式サンプル設置治具の写真を示す。当該治具は、2 軸の直動ステージを備えており、サンプル位置の線量率を変化させることが可能である。直動ステージの可動域は各々500 mm であり、線量率としては600 Gy/h から15 Gy/h の範囲で変化させることが可能である。また、サンプル自体はアルミ構造フレームを用いて固定する構造となっており、さまざまなサンプルを固定することが可能である。



a) 全体像



b)線量計設置時の固定部拡大写真

図 3.5-1 可動式サンプル設置治具の写真

また、照射装置の整備の一環として令和5年度は、装置を駆動するためのバッテリー電源の整備を行った。これは、照射装置が設置されている加速器・ビーム応用科学センターの建屋のノイズ環境が悪く、半導体検出器の評価系に悪影響を与えるという問題に対する対応策である。これら整備したバッテリー電源の動作確認として、可動式サンプル設置治具の動作試験及び電離箱線量計を用いた予備測定をバッテリー電源で行った。これにより整備したバッテリー電源の健全性も確認された。

上述のとおり、九州大学加速器・ビーム応用科学センターに設置されている 60 Co γ 線照射装置は棒状の線源であり、サンプル設置位置の線源からの距離を変化させることで照射する線量率を変化・調整することが可能である。サンプルへの照射線量を評価するには、線源周囲の線量率の空間分布を把握しておく必要がある。上記のとおり、整備した可動式サンプル固定治具を用いて、電離箱線量計を移動し、 γ 線線量率の空間分布を評価した。

使用した電離箱線量計は PTW 社製の TN30013 型の空気線量計で、その有感体積は $0.6~{\rm cm}^3$ である。高エネルギー γ 線を測定するために、直径 $16.4~{\rm mm}$ のアクリル製ビルドアップキャップを装着した状態で測定を行った。線量率の読み出しには東洋メディック社製の線量計信号読み出し装置 RAMTEC Light を用いた。遠隔で線量率を読み出すために、RAMTEC Light のアナログ出力をクリアパルス社製の ADC 1820 型に接続し、制御用 PC にて読み出しを行った。この制御用 PC を用いて可動式サンプル固定治具の $2~{\rm tm}$ ステージを制御することで、自動で $2~{\rm tm}$ 次元空間分布を測定することが可能である。

公称 450 mm の棒状の 60 Co γ 線源は上下鉛直方向に配置されている。まずは、これに垂直な水平方向に線量計を移動し、線源からの距離に対する線量率の依存性を評価した。測定した点の高さは、過去の測定結果で最も線量率の高かった照射台の上面より 120 mm とした。図 3.5-2 に線源からの距離に対する線量率の依存性を示す。赤線の関数は、

[Dose rate (Gy/h)] = $A \times [Distance (mm)]^{-B} + C$

でフィッティングした結果を表しており、フィッティング結果は、

(A, B, C) = (125743, 1.28, 14.7)

であった。点線源を仮定すれば距離の 2 乗に反比例、無限長の 1 次元棒状線源を仮定すれば距離に反比例することを考えると、両者の間の依存性を取っており、妥当な結果であるといえる。

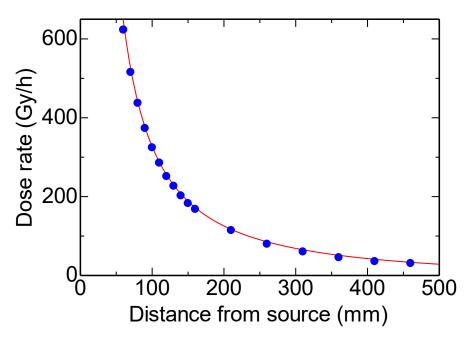


図3.5-2 線源からの距離(水平)に対する線量率依存性

 60 Co γ 線源は、駆動機構を用いて格納容器より出し入れすることで、「照射」及び「格納」といった状態を遠隔で変更することが可能である。この駆動機構はメッシュ状の構造体の中に収められているため、このメッシュ状構造の中にはサンプルを設置することはできない。このため、サンプルは棒状線源より 60 mm より近付けることはできない。この最もサンプルを近付けられる棒状線源より 60 mm の位置で、棒状線源と平行な方向、つまり鉛直方向の線量率分布を評価した。図 3.5-3 に、線源直近の線量率の鉛直方向分布を示す。ここで示している高さは照射台上面からの高さである。照射台上面より 120 mm 及び 300 mm 付近に 2 つの極大値をもつ分布となっていることがわかった。このことから、当該装置の 60 Co γ 線源は、均一な棒状線源ではなく、2 つの極大値を有する強度分布を有することが確認された。また、線源の直近であっても極大値を取る高さから上下 50 mm、つまり合計して 100 mm くらいの領域までは、極大となる線量率からの減少分は 10%以内に収まっていることが確認された。

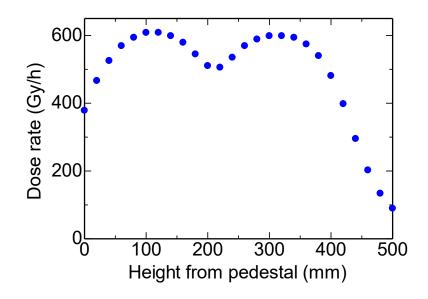


図 3.5-3 線源直近の線量率の鉛直方向分布

これらの結果を踏まえ、水平断面 X-Y 及び鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布を評価した。水平断面 X-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系を図 3.5-4 に示す。また、その測定結果を図 3.5-5 に示す。これらの測定日は令和 6 年 2 月 5 日である。

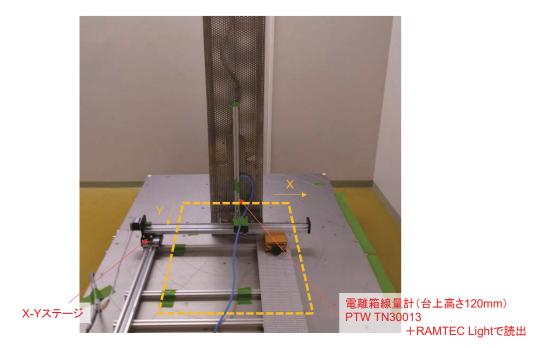


図 3.5-4 水平断面 X-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系

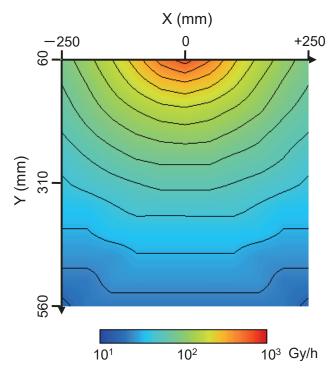


図 3.5-5 水平断面 X-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定結果

鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系を図 3.5-6 に示す。また、その測定結果を図 3.5-7 に示す。これらの測定日は令和 6 年 2 月 20 日である。

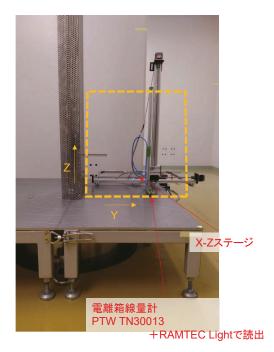


図 3.5-6 鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定系

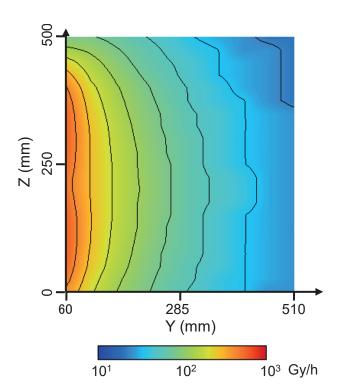


図 3.5-7 鉛直断面 Z-Y 方向の 2 次元線量率分布の測定結果

線源直近では、鉛直方向の線量率分布は 2 つのピークを有する構造となっていたが、メッシュ状構造から 100 mm 程度離れた位置、つまり Y=150 mm 程度の位置では鉛直方向に関しても単一のピーク構造を取ることが確認された。

※ まとめ

令和 5 年度に取得した線量率の空間分布は、令和 6 年度以降、検出素子等の照射試験を実施する際に、設置位置等を検討するうえでの基礎データとなる。当然のことながら 60 Co γ 線源の強度は、その 5.27 年という半減期で減衰する。この減衰を考慮し、線量率を見積もり、照射物の大きさを考慮に入れることで、照射試験の線量率及び積算線量を評価することが可能となる。

以上、令和5年度は、可動式サンプル固定治具の整備及び照射場における線量率の空間分布の評価を行った。これにより令和6年度以降、実施予定の照射試験の準備は整ったといえる。

3.6 中性子感度測定試験(連携先:原子力機構)【令和5年度】

令和 6 年度より開始するダイヤモンド素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価試験 のため、参画機関と協議して、原子力機構・原子力科学研究所の FRS において試験環境の整 備を行った。FRS に整備済みの熱中性子校正場 (平行場) は、252Cf 中性子線源と黒鉛パイル減 速材 (164 cm×150 cm×150 cm) から構成され、黒鉛パイル内で減速・熱化されたのち外部 に放出される中性子を利用する校正場である。被照射物を設置する校正点は、黒鉛パイルの 外側(南側と西側の2点)に設定されており、校正点における中性子の入射角度分布が平行 に近いことを特徴とする。しかしながら、²⁵²Cf線源の減衰が進んでおり、測定器試験に利用 できる熱中性子フルエンス率が年々減少している。令和5年度末における基準フルエンス率 は 25 s⁻¹cm⁻²程度であり、感度試験において十分な統計精度を得るためには、数日間にわたる 長時間照射を行う必要があった。そこで、より短時間で効率良く感度試験を実施できるよう、 ²⁴¹Am-Be 線源 2 個を用いた熱中性子校正場(等方場)を新たに整備することとした。 熱中性子 等方場では、図 3.6-1 に示すように、黒鉛パイルの中心を挟んで両側 2 箇所に設けられた線 源装荷孔に²⁴¹Am-Be 線源 2 個を装荷し、黒鉛パイル中央に設けた空洞 (27 cm×30 cm×47 cm) 内に校正点を設定する。試験の際は、空洞内に被照射物を設置して照射を行う。等方場では、 校正点への中性子の入射角度分布が等方的であること、241Am-Be 線源から放出される中性子に 対する減速距離が短いため、熱外中性子の相対的な割合が大きくなることが特徴となる。

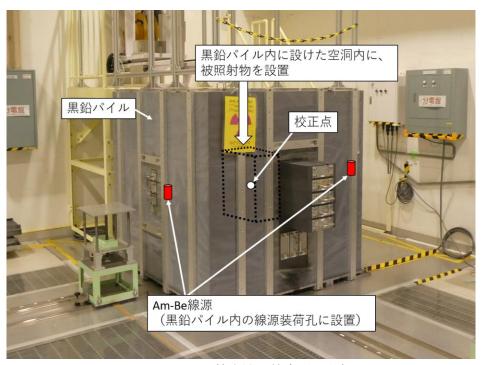


図 3.6-1 熱中性子等方場の外観

中性子感度試験を行うためには、校正点における熱中性子フルエンス率を正確に評価しておく必要がある。そこで、熱中性子感度が既知の BF_3 比例計数管を用いて、熱中性子等方場の基準フルエンス測定を行った。 BF_3 比例計数管は、図 3.6-2 に示すように専用治具を用いて黒鉛パイル内中央に設置し、上部の黒鉛ブロックの蓋を閉じた場合 (P4-CL) と開いた場合 (P4-OP) の 2 パターンにて測定を行った。また、それぞれ BF_3 比例計数管に Cd カバーを被せた場合/被せない場合の測定を行い、その差分を取ることにより熱外中性子(C0.4 eV)の寄与を差し引いた。

熱中性子等方場の基準フルエンス率及び基準周辺線量当量率の評価結果を表 3.6-1 に示す。上部の黒鉛ブロックの蓋を閉じた状態で $1,200~\rm s^{-1}cm^{-2}$ 程度、蓋を開いた状態で $900~\rm s^{-1}cm^{-2}$ 程度の熱中性子フルエンスが得られており、従来の平行場の基準フルエンス率の 40-50 倍となる。本校正場を用いることで、令和 6 年度以降にダイヤモンド素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価試験を効率的に実施することが可能となった。

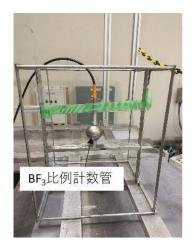








図 3.6-2 黒鉛パイル空洞内への BF₃比例計数管の設置 (上) Cd カバーなし、(下) Cd カバーあり

表 3.6-1 熱中性子等方場の基準フルエンス率及び基準周辺線量当量率 (2023/10/19)

場のタイプ	基準フルエンス率 基準周辺線量当量率	
	$(s^{-1}cm^{-2})$	$(\mu Sv h^{-1})$
P4-CL	$1.21(\pm 0.03) \times 10^3$	4. $60 (\pm 0.10) \times 10^{1}$
P4-0P	$9.04(\pm 0.19) \times 10^{2}$	$3.45(\pm 0.07) \times 10^{1}$

(不確かさは、k=2の拡張不確かさを示す。)

※ まとめ

開発を進めるダイヤモンド検出素子やプロトタイプシステムの中性子感度評価を行うために必要な照射設備や照射方法等について参画機関と協議し、実験に用いる照射治具等の試験環境の整備を進めた。中性子感度評価試験に利用可能な、²⁴¹Am-Be 中性子線源と黒鉛減速材を用いた熱中性子照射場を新たに設定した。

3.7 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、1F 現場に実機適用すべく、現場との意見・情報交換を行いながら研究を進めた。また、研究実施計画を推進するため、四半期毎に進捗会議を開催した。

令和5年10月30日にオンラインでキックオフミーティングを開催し、令和6年3月14日に高エネ研(つくば)にて対面で全体の進捗会議を開催し、進捗状況の確認ならびに令和6年度の開発計画に関する協議を行った。この間、個別の打ち合わせ等が関連の強い機関の間で適時行われていたことなどから、四半期会議は省略した。

4. 結言

前事業で高エネ研 田中真伸代表の下、要素技術開発で協力してきた参画機関が再度集い、長期的な 1F 廃炉事業への人材育成を意識しながら本研究開発を開始した。

令和5年度の目標は、全ての参画機関で達成した。特に、ダイヤモンド検出素子開発に関しては、大量合成に必要な合成整備関係の整備が進み、令和6年度から量産技術の確立に向けて全力で開発に当たる。産総研に関しては、積層型検出器の開発が順調に進んだ。高エネ研に関しては、ASICの改良を予定通り行い、検出素子実装に使用する配線用印刷装置の整備が行われた。名古屋大学中心に進めている臨界近接監視手法の開発に関して、基本的に検討が順調に進み、令和6年度に近畿大学臨界集合体を使用した代替実験を計画し、北海道大学、九州大学も実験に参加する予定となっている。九州大学、原子力機構に関しても、γ線照射場、中性子検出効率評価場の整備が予定通り進んだ。

現在のところ、申請時に掲げた目標との整合性を取りながら、デブリ取り出しを中心となって進める東双みらいテクノロジー社に対するヒアリングなどを通じ、令和7年度末までにダイヤモンド検出素子数256枚のプロトタイプの開発を目指す方向で到達目標を定めた。予算的な制限から困難が予想されるダイヤモンド検出素子合成ならびに調達に関して、関係各所に協力要請を依頼しつつ、前述した目標を達成し、令和8年度中に1F3号機へのプロトタイプ投入を目指す。

参考文献

- [1] 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.
- [2] Hayashi, Y., Nakano, M., Morimoto, Y., Development of Criticality Approach Monitoring Method Using Neutron Detectors for Fuel Debris Retrieval in Fukushima Dai-Ichi NPP, The 12th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC 2023, Sendai, Japan, 2023.
- [3] Williams, M. M. R., Random Processes in Nuclear Reactors, Pergamon Press, 1974, 243p.
- [4] Wada, S. et al., Investigation of Sub-criticality Monitoring System Based on Feynman-alpha Method for Large-scale Fuel Debris, The 12th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC 2023, Sendai, Japan, 2023.
- [5] Feynman, R. P., de Hoffmann, F., Serber, R., Dispersion of the Neutron Emission in U-235 Fission, J. Nucl. Energy, vol. 3, no. 1-2, 1956, pp. 64-69.
- [6] Orndoff, J. D., Prompt Neutron Periods of Metal Critical Assemblies, Nucl. Sci. Eng., vol. 2, no. 4, 1957, pp. 450-460.
- [7] Yamane, Y., Ito, D., Feynman-α Formula with Dead Time Effect for a Symmetric Coupled-core System, Ann. Nucl. Energy, vol. 23, no. 12, 1996, pp. 981-987.
- [8] Nishioka, F. et al., Applicability of Dynamic Mode Decomposition to Estimate Fundamental Mode Component of Prompt Neutron Decay Constant from Experimental Data, Nucl. Sci. Eng., vol. 196, no. 2, 2022, pp. 133-143.
- [9] Endo, T. et al., Application of Dynamic Mode Decomposition to Rossi- α Method in a Critical State Using File-by-File Moving Block Bootstrap Method, J. Nucl. Sci. Technol., vol.59, no.9, 2022, pp.1117-1126.
- [10] Wallerbos, E. J. M., Hoogenboom, J. E., The Forgotten Effect of the Finite Measurement Time on Various Noise Analysis Techniques, Ann. Nucl. Energy, vol. 25, no. 10, 1998, pp. 733-746.
- [11] Endo, T., Kitamura, Y., Yamane, Y., Absolute Measurement of the Subcriticality Based on the Third Order Neutron Correlation in Consideration of the Finite Nature of Neutron Counts Data, Proceedings of the 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC2003, Tokai, Japan, 2003, pp. 215-220.
- [12] Endo, T. et al., Statistical Error Estimation of the Feynman- α Method Using the Bootstrap Method, J. Nucl. Sci. Technol., vol.53, no.9, 2016, pp.1447-1453.
- [13] 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.
- [14] Vogelsang, T. J., Yang, J., Exactly/Nearly Unbiased Estimation of Autocovariances of a Univariate Time Series with Unknown Mean, J. Time Ser. Anal., vol. 37, no. 6, 2016, pp. 723-740.
- [15] Politis, D. N., Romano, J. P., The Stationary Bootstrap, J. Am. Stat. Assoc., vol. 89, no. 428, 1994, pp. 1303-1313.
- [16] Wakabayashi, G. et al., Introduction to Nuclear Reactor Experiments, Springer Singapore, 2023, 166p.

JAEA-Review 2025-028

- [17] Teratani, S. et al., Problem-based Learning Program of Reactor Physics Experiment to Measure Subcriticality for an Unknown System, The 12th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC 2023, Sendai, Japan, 2023.
- [18] LND, INC., Nuclear Radiation Detectors, 2029 Cylindrical BF₃ Neutron Detectors, https://www.lndinc.com/products/neutron-detectors/2029/ (参照:2024年7月23日).
- [19] IRID, 1 号機 PCV 内部調査(後半)について,2023 年 2 月 22 日, https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2023/02/1goukiPCVnaibutyousakouhan20230222r11.pdf (参照:2024年7月23日).