

中性子フィルタ法を用いたJRR-3 均一照射設備高性能化の設計検討

—研究炉を用いたシリコン照射の生産性向上に関する技術開発—
(共同研究)

Investigation of Neutron Filter Method Using the Research Reactor JRR-3
for Uniformity Irradiation System
- Technological Examination to Expand Productivity of
Neutron Transmutation Doping Silicon (NTD-Si) -
(Joint Research)

竹内 真樹 馬籠 博克 米田 政夫 川崎 幸三

Masaki TAKEUCHI, Hirokatsu MAGOME, Masao KOMEDA
and Kozo KAWASAKI

東海研究開発センター
原子力科学研究所
研究炉加速器管理部

Department of Research Reactor and Tandem Accelerator
Nuclear Science Research Institute
Tokai Research and Development Center

本レポートは独立行政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。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2009

中性子フィルタ法を用いた JRR-3 均一照射設備高性能化の設計検討
—研究炉を用いたシリコン照射の生産性向上に関する技術開発—
(共同研究)

日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター
原子力科学研究所 研究炉加速器管理部

竹内 真樹、馬籠 博克、米田 政夫、川崎 幸三*

(2009年5月13日受理)

JRR-3 では NTD-Si(Neutron Transmutation Doping Silicon: 中性子核変換ドーピングシリコン)を生産している。ここで用いられている方法は反転法であるが、さらに NTD-Si の生産性を大きく向上するため、中性子フィルタ法を導入のための技術検討を行った。検討の結果、現在、JRR-3 で用いられている NTD-Si 装置をほとんど変更することなくフィルタ法を導入できる見通しを得た。

本研究は、日本原子力研究開発機構と(財)放射線利用振興協会との共同研究に基づいて実施したものである。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

*(財)放射線利用振興協会

Investigation of Neutron Filter Method Using the Research Reactor JRR-3
for Uniformity Irradiation System
—Technological Examination to Expand Productivity of
Neutron Transmutation Doping Silicon (NTD-Si) —
(Joint Research)

Masaki TAKEUCHI、Hirokatsu MAGOME、Masao KOMEDA,
and Kozo KAWASAKI*

Department of Research Reactor and Tandem Accelerator
Nuclear Science Research Institute
Tokai Research and Development Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 13, 2009)

Japan Research Reactor No.3 (JRR-3) has been providing Neutron Transmutation Doping Silicon (NTD-Si). Though the inverse method is employed for producing NTD-Si in JRR-3, it is possible to increase the production rate of NTD-Si by using the neutron filter method. As the result, the prospect that the neutron filter method was able to develop without changing a geometrical size of NTD-Si facility in JRR3 was obtained.

Keywords: Neutron Filter Method、JRR3、NTD-Si

* Radiation Application Development Association(RADA)

目 次

1. 緒言	1
2. NTD-Si の経緯と利点	2
2.1 NTD-Si の経緯	2
2.2 NTD-Si の利点	2
3. NTD-Si 装置と中性子フィルタ法による技術開発の必要性	3
3.1 NTD-Si の原理	3
3.2 中性子フィルタ法	3
3.3 中性子フィルタ法による技術開発の必要性	3
3.4 中性子フィルタ法による生産性向上	4
4. JRR-3 での中性子フィルタ法検討	9
4.1 設置する箇所の形状等	9
4.2 中性子フィルタ材の選定	13
4.3 軸方向の中性子束分布	15
4.4 設置スペースの検討	16
4.5 成立性	17
4.6 中性子フィルタ設置場所の検討結果	19
5. 設計	20
5.1 中性子フィルタ形状の設計	20
5.2 中性子フィルタ付きホルダの炉心反応度への影響評価	22
5.3 中性子フィルタ付きホルダの放射化による放射線当量率の評価	22
5.4 ボロンの燃焼	25
6. おわりに	27
謝 辞	28
参考文献	28

Contents

1. Introduction	1
2. History and advantage of NTD-Si	2
2.1 History of NTD-Si	2
2.2 Advantage of NTD-Si	2
3. Necessity of technological development by NTD-Si device and neutron filter method	3
3.1 Principle of NTD-Si	3
3.2 Neutron filter method	3
3.3 Necessity of technological development of neutron filter method	3
3.4 Expanding of productivity by neutron filter method	4
4. Examination neutron filter method in JRR-3	9
4.1 Shape of applied respect	9
4.2 Selection of neutron filter material	13
4.3 Axially distribution of neutron flux distribution	15
4.4 Installation space	16
4.5 Approval	17
4.6 Location investigation of neutron filter	19
5. Design	20
5.1 Shape of neutron filter	20
5.2 Reactivity effect holder with neutron filter	22
5.3 Evaluation of radiation exposure rate by induced radioactivity of holder with neutron filter	22
5.4 Burn-up of boron	25
6. Conclusion	27
Acknowledgements	28
References	28

1. 緒言

半導体は、日常の身の回りにある家電製品をはじめ、機械設備、通信機器、車両等あらゆる分野で使用されている。この半導体材料は、珪素(Si)、ゲルマニウム(Ge)、セレン(Se)等多様であるが、Siは、地球上の岩石成分のなかで酸素に次いで多いことから半導体材料の大部分にSiが使用されている。Siは、高純度の単結晶に微量の不純物として硼素(B)、磷(P)等を混入させることにより半導体として使用され、パワートランジスタ、サイリスタ、LSI(CPU、メモリ)等に使用されている。

Si単結晶は、電気的に絶縁体であり、適切な抵抗値まで引き下げなければ電気材料として使用できない。この抵抗値を制御する物質として極微量の不純物を添加し、一般的にP型の半導体とするにはBが、N型の半導体にするのにP、砒素(As)等が使用されている。

半導体素子の基板となるn型のシリコン基板は、添加方法では、シリコンインゴットの半径方向にP濃度のムラが生じて抵抗率の変動を大きくする。これが半導体素子の耐圧性や電気特性の低下、あるいは素子破壊と言った不具合をもたらす要因となる。この抵抗率が不均一となる問題を解決したのが、中性子による核反応 $^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si} \rightarrow ^{31}\text{P}$ を利用する中性子核変換ドーピング(Neutron Transmutation Doping: NTD)法である。

原子炉を利用するNTD法における最大の技術要件は、長尺シリコンインゴットに対しあいかに均一に軸方向の中性子照射を行うかにある。各炉種々の方法が工夫され実用化されているが、JRR-3及びJRR-4においては、特段の初期投資を要しないことからシリコンインゴットを上下反転し均一照射する反転方式を採用してきた。この方式の短所は、作業効率に欠け生産性が低いことである。近年NTDシリコン(NTD-Si)への期待が高まる中で、この需要に応えるために、軸方向の中性子束を均一にするために配置した吸収材の厚さを調節することで均一照射する中性子フィルタ法を導入するための技術的開発を進めている。

本報告書では、第2章から第3章で、NTD-Siの経緯と利点、中性子フィルタ法による技術開発の必要性を述べた。第4章でJRR-3での中性子フィルタ法を適用する可能性について検討した結果をまとめた。第5章では、ホルダに中性子フィルタ法を適用する場合について、設計検討した結果を述べ、第6章で結果のまとめを述べた。

2. NTD-Si の経緯と利点

2.1 NTD-Si の経緯

1961 年にベルテレフォン研究所の Tanenbaum らによって提案された中性子による核変換を利用する NTD 法は、中性子照射によって結晶中にドナーとなるリンを生成するもので、1974 年にデンマークのトップシル社が DR-3 炉を用いて NTD 法による Si を売り出し、規格の厳しい製品に使用されるようになった。その後、半導体の進歩とともに 1975 年頃より NTD 技術の必要性が生じて実用化されるに至っている。

日本においては、原子力機構の前身である日本原子力研究所が 1975 年 Si 材料メーカーからの依頼により研究炉における NTD-Si 製造に関する実験を開始¹⁾し、1977 年からは現在の(財)放射線利用振興協会によって実用照射を実施してきた。

プール型研究炉である JRR-3 及び JRR-4 では、高いアクセス性と高い中性子束を有することから、これまで半導体シリコンのドーピングに対して利用の場を提供し、年間約 4.5 トン（平成 18 年度）の NTD-Si を生産してきているが、NTD-Si は、主にサイリスタ等の大電流半導体として一般産業分野で利用されているところであり、近年のハイブリッドカーの普及に伴い、NTD-Si への期待が高まりつつある²⁾。

2.2 NTD-Si の利点

NTD-Si の利点は以下のとおりである。

- ・ 結晶中に一様なリンの不純物ができる。
- ・ シリコンの抵抗率を精度よく制御できる。
- ・ 結晶中の抵抗欠陥がない。

また、NTD-Si の欠点として以下をあげることができる。

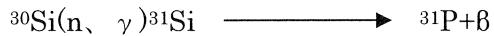
- ・ 照射した NTD-Si 中に放射能が誘導されるため、放射能減衰に冷却期間を必要とする。
- ・ 高速中性子によって結晶中に照射損失を生ずる。そのため、照射損失を回復させるため熱処理（アニーリング）を必要とする。
- ・ 他のドーピング方に比べてコストが高い。

しかし、NTD-Si の抵抗率は、化学的な方法（一般的なプロセス、シリコン工業界で広範囲に利用されている、安い）でドーピングした場合に比べて、半径方向及び軸方向ともに ±5% 以内で抵抗率の変動が小さく、均一な分布となっている。このことから NTD-Si は、高品質の高電力機器用半導体等を製造するのに適用されている。

3. NTD-Si 装置と中性子フィルタ法による技術開発の必要性

3.1 NTD-Si の原理

NTD 法は、原子炉の熱中性子をシリコンに照射し、ドナーであるリンを次の反応によりドープするものである。



NTD-Si の最大の特徴は、従来のガスドープ方法等と比較してシリコン断面内の抵抗率の均一性が格段に良いことである。これは、シリコンの同位体である ^{30}Si に中性子が均一に照射されれば、当然 ^{31}P が均一に分布することになるからである。

3.2 中性子フィルタ法

JRR-3 に設置されている NTD-Si 装置は、第 3.2-1 図に示す原子炉鳥瞰図の SI 照射筒にて、シリコンインゴットの照射を行うもので、NTD-Si 装置本体は、原子炉プールの上部にある上部遮へい体に設置されている。JRR-3 における NTD 法では、ホルダ(円柱状の筒)にシリコンインゴットを収納し、重水タンクの SI 照射筒にて照射している。重水タンク内の軸方向の熱中性子束分布がコサイン分布であるため、ある照射量に達したらシリコンを反転し、軸方向の中性子照射量による歪を緩和している。中性子フィルタ法とは、ホルダの内側に薄い材質(熱中性子吸収物質)を装荷し、軸方向の中性子束分布を均一とし、シリコンインゴットを精度よく照射することである。

3.3 中性子フィルタ法による技術開発の必要性

NTD 法は、中性子を均一に照射することによって ^{31}P を均一に分布することができる。しかし、重水タンク内の中性子束分布は、燃料の燃焼度割合、制御棒位置によって半径方向と軸方向に幾何学的な分布を有するので、これらを考慮してシリコンインゴットを均一に照射する必要がある。

鉛直方向の照射筒を用いてシリコンインゴットを均一照射する照射装置では、中性子の径方向の分布に対しては、照射試料であるシリコンインゴットを一定速度で回転させることによって、半径方向の均一照射を、また、軸方向の中性子束勾配については、以下のよ

うな方法で均一化が図られている。

(1) 勾配が逆の位置にて照射する方法

照射途中でシリコンインゴットを上下反転させる方式により軸方向の均一化を図る。

(2) 中性子フィルタにより平坦化する方法

中性子を吸収するフィルタにより平坦化する方法で、フランスの OSHIRIS³⁾、韓国

HANARO⁴⁾、ドイツの FMR-II⁵⁾等で採用されてきた。

(3) 一定速度で軸方向を移動させる方法

照射試料を炉心の上下に移動して均一照射する方法で、スウェーデンの R2 炉⁽³⁾等において採用されてきた。

NTD-Si 装置は、第 3.3・1 図に示すように、シリコンインゴットをホルダに設置し、このホルダを NTD-Si 装置の中に 6 個収納できる構造になっている。照射可能な領域は、シリコンインゴットとして、径 6inch で長さが 600mm まであり、シリコンインゴットの上端と下端には、中性子束の自己遮へい防止のためのシリコンスペーサが合計長さで 100 mm 設けられる。ホルダは、アルミ合金のチェーンで吊り下げられ電動機により照射位置まで降下し、その位置で、回転装置によりホルダを回転させて半径方向の中性子照射を均一にできる構造⁶⁾になっている。

JRR-3 及び JRR-4 においては、軸方向の中性子束勾配に対して、均一に照射するため、中性子束の勾配が緩やかな位置で、シリコンインゴットを上下反転し均一照射する反転方式を採用してきた。

この方式の欠点は、

- ・ 上下反転動作は、人力により行うため放射線被ばく低減の観点から、シリコン照射による誘導放射能を減衰させる時間が必要となること。
- ・ 上下反転照射するために同一のシリコンインゴットを 2 回照射すること。

等から、作業効率に欠け生産性が低くなることである。

研究炉(JRR-3 及び JRR-4)を用いた最近の NTD-Si の生産量は、第 3.3・2 図に示すように、約 4.5ton/年である。短期間で安価な方法によってこの低い生産性を克服する方法として、反転作業時に必要とされる冷却期間を排除できる中性子フィルタ法の導入に向けて検討を行った。

3.4 中性子フィルタ法による生産性向上

中性子フィルタ法と上下反転方式との生産性について比較検討した。

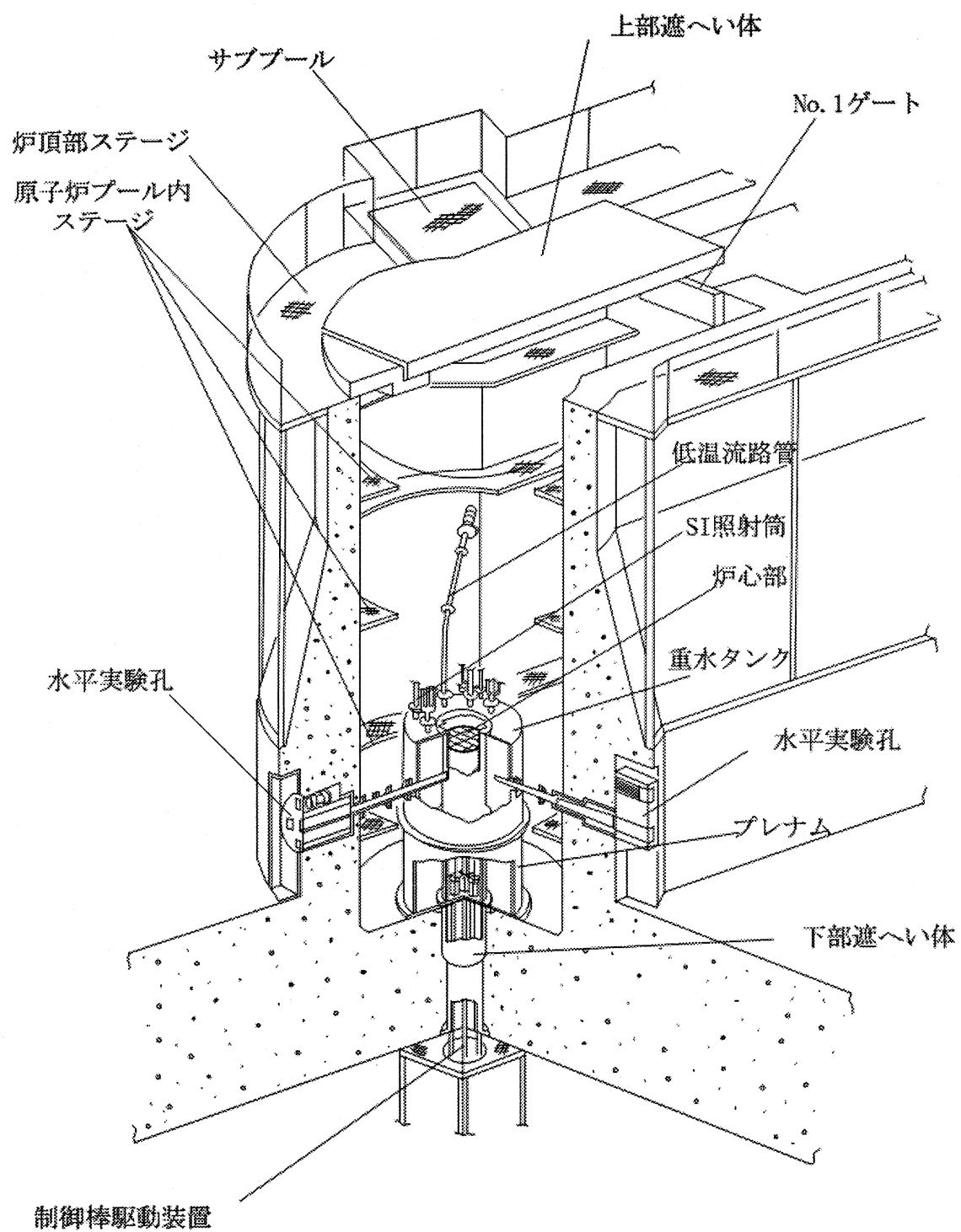
NTD-Si 装置の機能制限から、毎日の照射シリコンインゴット数(直径 6inch × 長さ 600 mm)は、6 個、3 個、2 個及び 1 個とする運転が可能である。

運転 1 サイクルの期間として、運転日数を 28 日とし、照射されたシリコンインゴットの反転あるいは取り出しに当たっては、約 2 日の冷却を要すると仮定して製造数を検討した結果を第 3.4・1 図に示す。

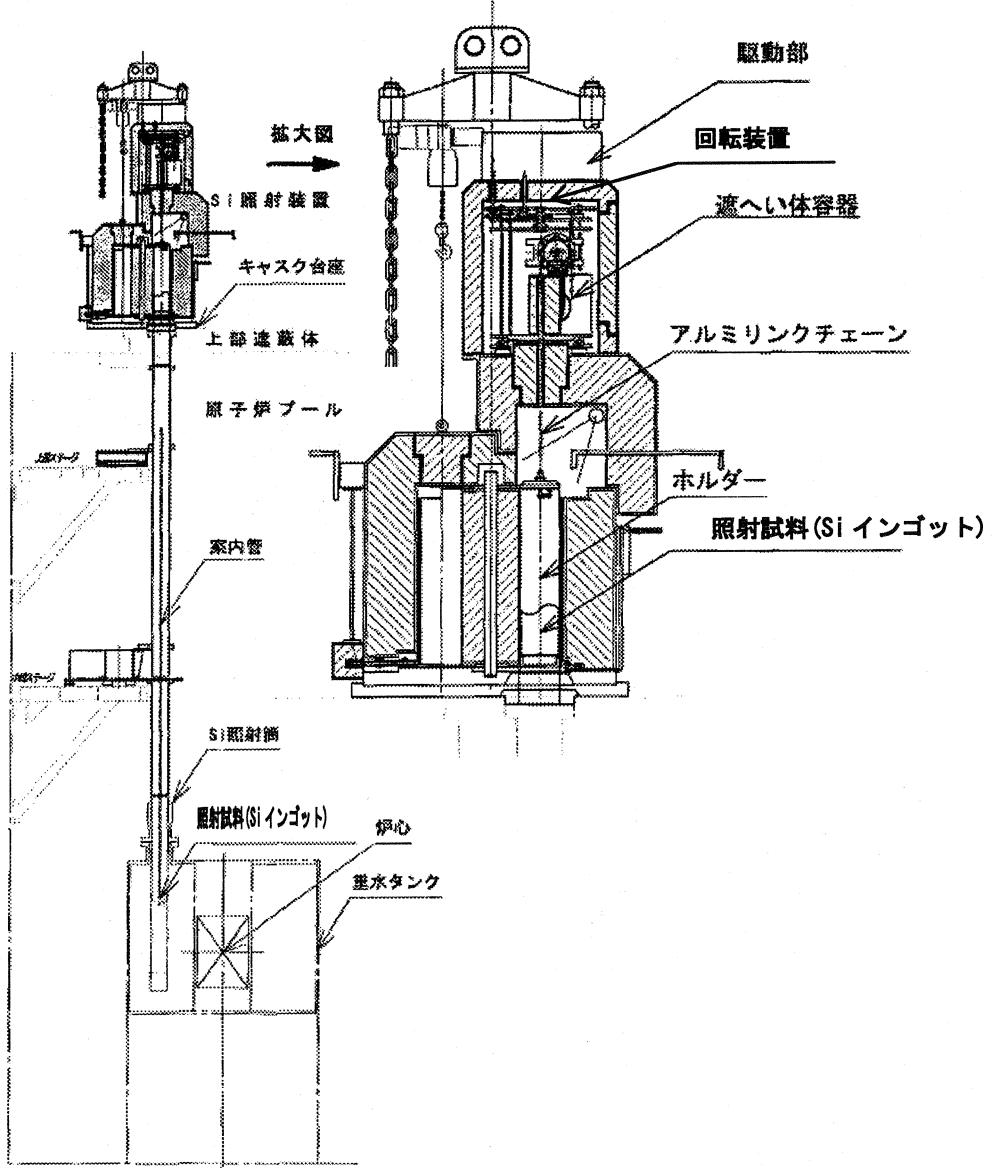
照射可能時間から比較すると、中性子フィルタ法の場合では、毎日 2 個のシリコンインゴットを日勤時間(8 時間)で照射するとした場合には、シリコンインゴット当たりの照射可能時間が 4 時間(抵抗率で約 280Ωcm)となり、運転 1 サイクル当たり 40 個のシリコンイ

ンゴットが照射できる。上下反転方式では、照射本数で 3 個のシリコンインゴット（シリコンインゴット当たりの照射時間 2 時間×3 回照射=6 時間）が照射可能で、運転 1 サイクル当たり 24 個のシリコンインゴットを照射できることになる。

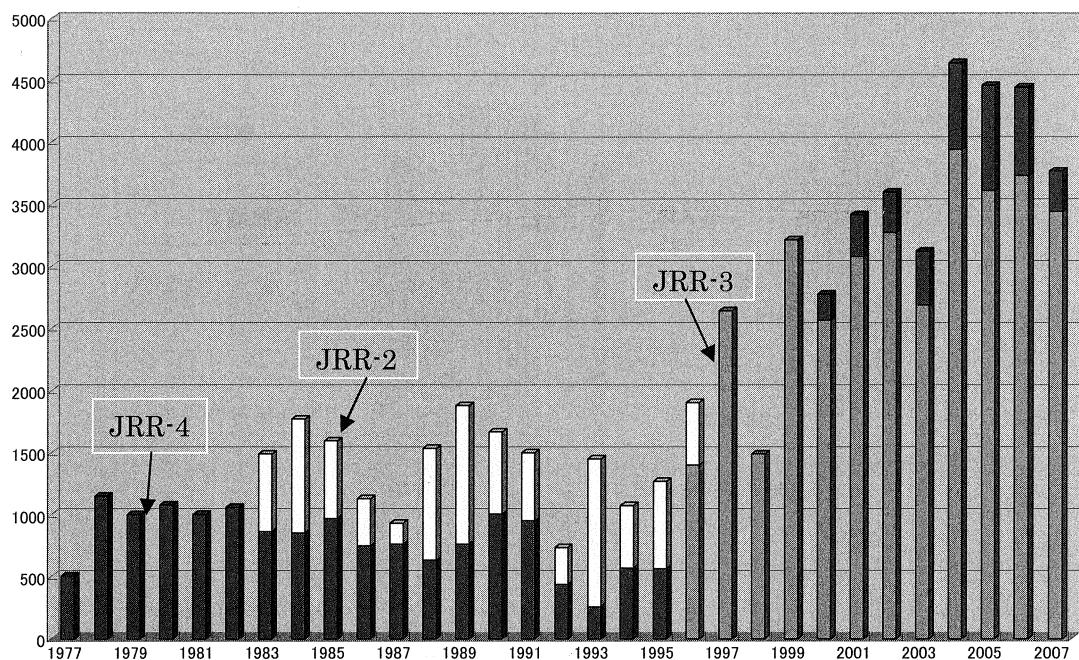
以上のように、中性子フィルタ法は、上下反転方式に比べて 1.5 倍以上($40/24=1.66$)の生産性向上が期待できることになる。



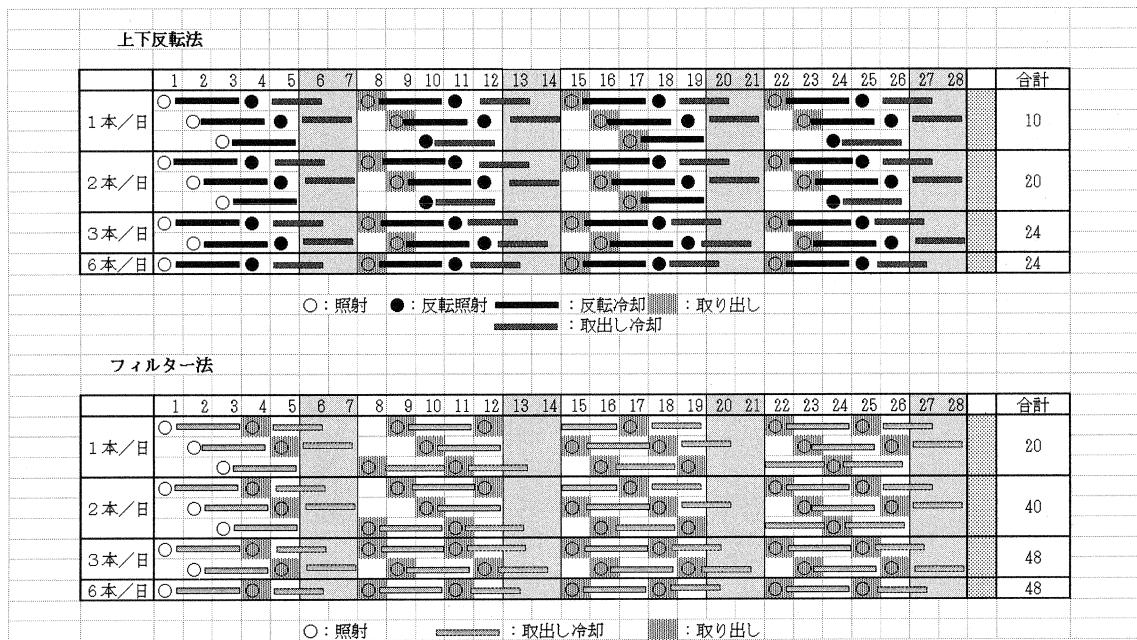
第 3.2-1 図 JRR-3 原子炉鳥瞰図



第 3.3-1 図 JRR-3 均一照射設備(NTD-Si 装置)概略図



第3.3-2図 研究炉を利用したNTD-Siの生産量



第3.4-1図 上下反転法と中性子フィルタ法との製造機能拡充の比較

4. JRR-3 での中性子フィルタ法検討

JRR-3 の均一照射装置に中性子フィルタを設置できる箇所は、1) ホルダ 2) 照射筒 及び 3) ライナである。これらの箇所に中性子フィルタを設置することを想定し検討を行った。

4.1 設置する箇所の形状等

(1) ホルダ

ホルダは、第 4.1-1 図に示すように直径 6inch×長さ 600mm のシリコンインゴットを収納するもので、内径 $152.5 \pm 0.2\text{mm}\Phi$ 、外径 $161.0 \pm 0.2\text{mm}\Phi$ 、底板の厚さ 5.0mmt、胴部板厚 4.25mmt の円筒容器である。ホルダは、外径 163mm の掴み治具によって取り扱われる。

中性子フィルタの設置場所は胴部である。

(2) 照射筒

照射筒は、第 4.1-2 図に示すように重水タンクに挿入されており、軽水環境と重水環境とを金属 O リングにて確実にシールする構造となっている。照射筒は、軽水が循環できるよう二重管構造で、照射筒上部の開口部と側部にある開口フランジで炉プールに流れようになっている。

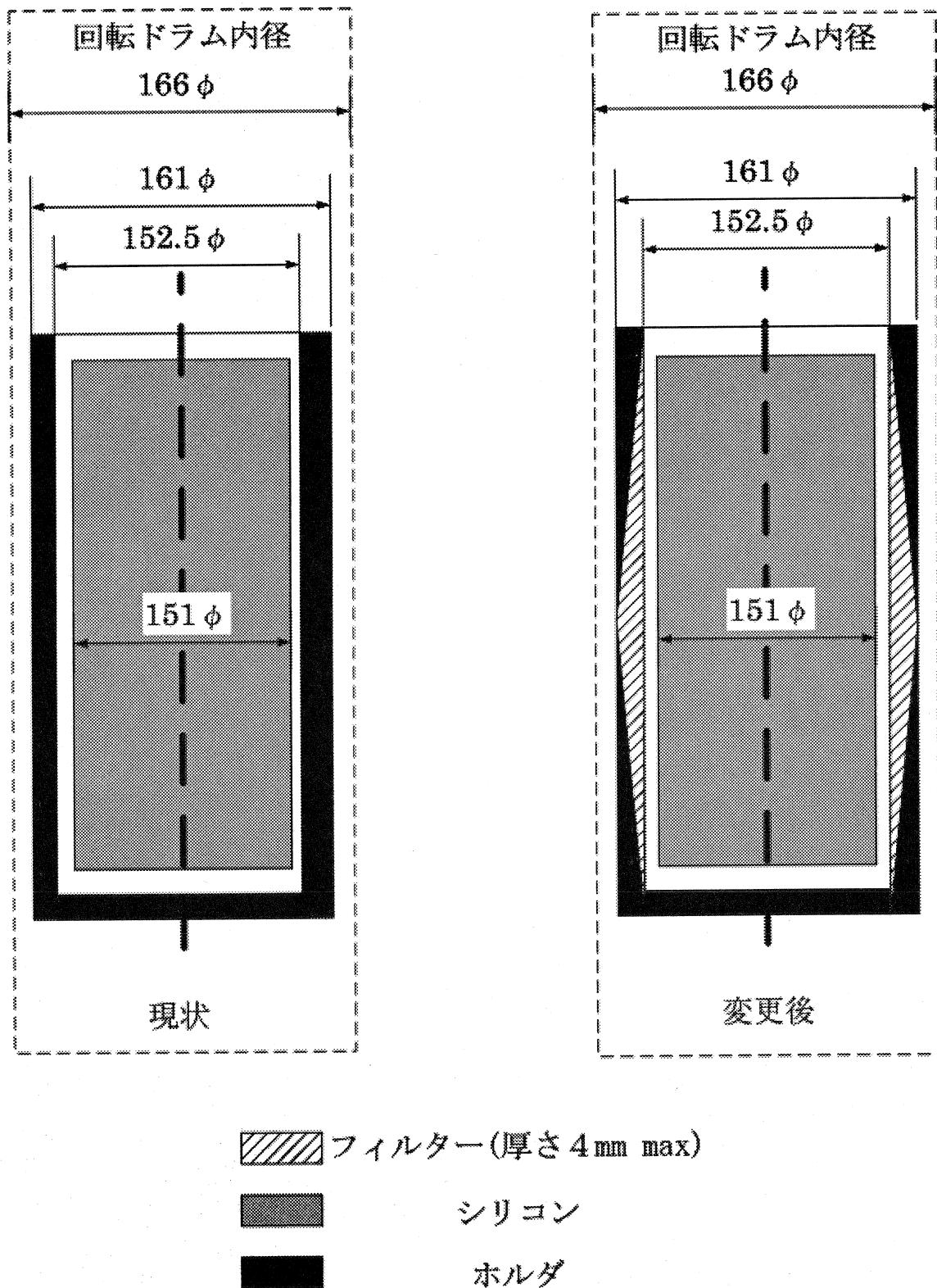
照射筒の内管の内径は $170\text{mm}\Phi$ 、内管の板厚 5.0mm である。照射筒の外管の内径は $200\text{mm}\Phi$ 、外管の板厚は 5.0mm である。

中性子フィルタは、内管あるいは外管のなかで作業の容易な方に設置する。

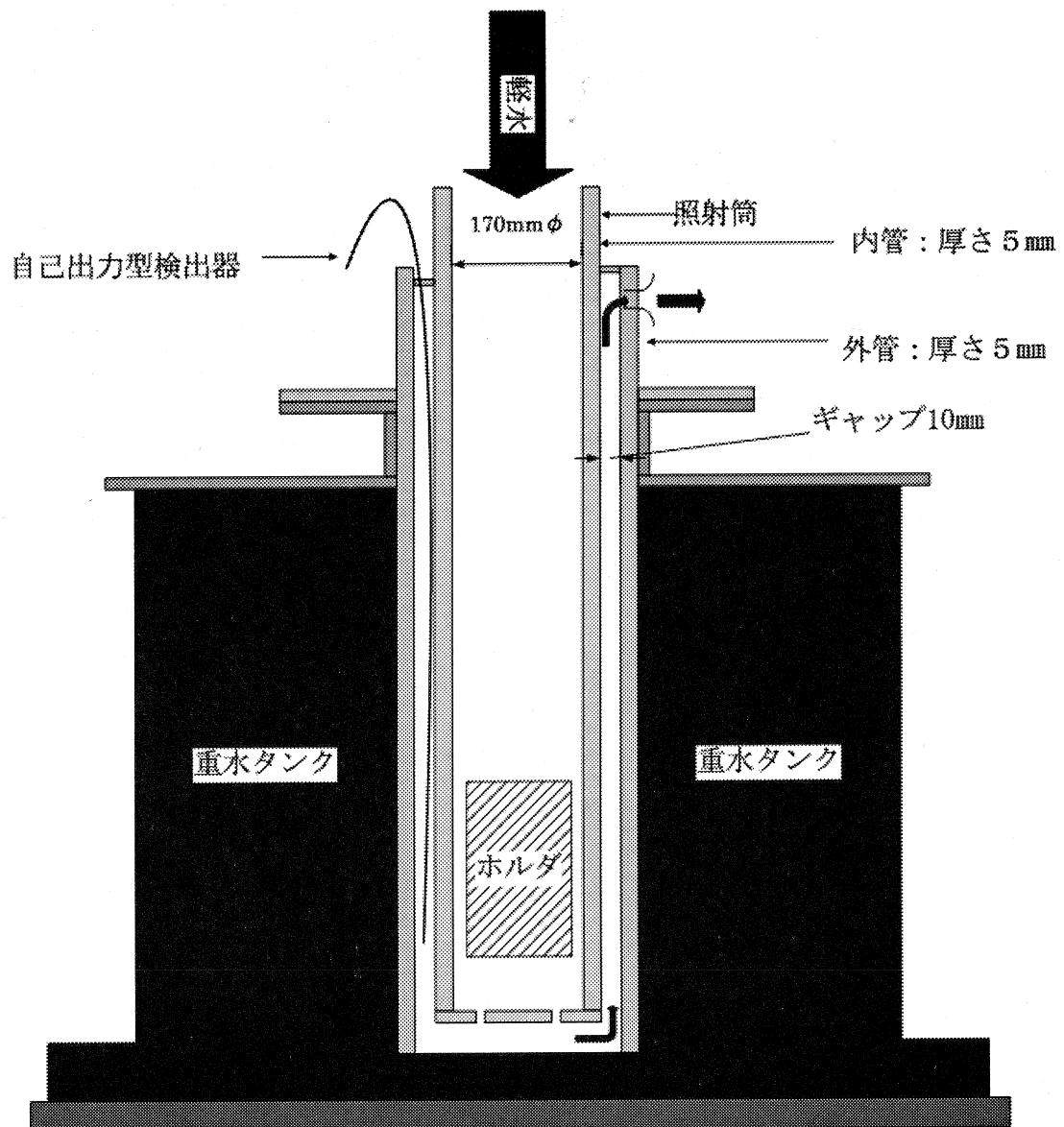
(3) ライナ

ホルダの外面(掴み治具の外径)と照射筒の内管の内面には 3.5mm の間隙がある。この間隙を拡大するように例えばホルダの板厚等を短縮することで、間隙を広げてこの間に中性子フィルタを設置する。設置イメージを第 4.1-3 図に示す。

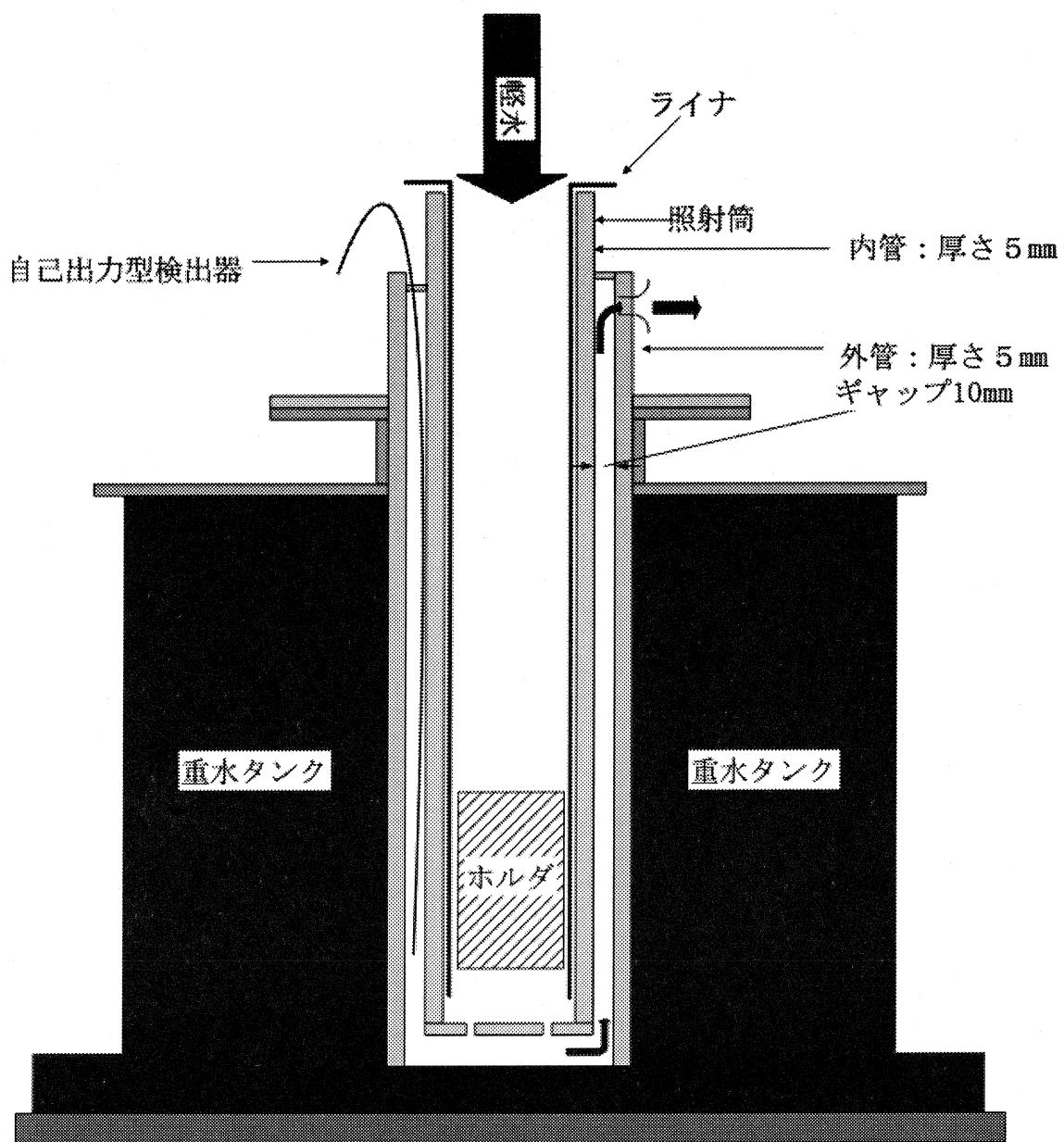
これらの方法を実現する場合の特徴等をまとめて第 4.1-1 表に示した。



第 4.1-1 図 ホルダ概念図(単位:mm)



第 4.1-2 図 照射筒の概念図



第 4.1-3 図 ライナ設置の概念図

第 4.1-1 表 中性子フィルタ法をホルダあるいは照射筒に適用した場合

	ホルダ	照射筒	ライナ
中性子フィルタ材選定	検討(放射化の制限)	容易	容易
照射位置の追従	容易	不可	不可
中性子束分布の把握	SPND(中性子検出器)	SPND	SPND
製作性	要検討	容易	要検討
交換	容易	要検討	要検討
作業・交換期間	短期	長期	中期
交換品の保管	これまでと同じ	要検討	なし
試験の容易性	容易	要検討	要検討
作業・交換時期	容易	制限される	制限される
他への影響	少ない	非常に大きい	大きい
設置許可申請	不要	必須	不要
予算	小	大	中

4.2 中性子フィルタ材の選定

中性子フィルタとしては、チタン、ニッケル、ボロン添加金属が有力な候補である。ここでは、熱中性子吸収能力、放射能の生成及び加工性について調べた。主な材料の熱中性子巨視的吸収断面積、生成放射能核種と半減期を第 4.2-1 表に示す。

第 4.2-1 表 主な材料の熱中性子巨視的吸収断面積、生成放射能核種と半減期

材料	熱中性子巨視的吸収断面積(cm ⁻¹)	生成放射能核種	半減期
ホウ素(¹⁰ B)	103 1.03(ホウ素濃度 1.0wt%)	He-4 Li-7	
チタン(⁴⁸ Ti)	0.328	Sc-46	83.8d
ニッケル(⁵⁸ Ni)	0.42	Ni-59	7.5 × 10 ⁴ y
マンガン(⁵⁵ Mn)	1.04	Mn-56	2.6h
コバルト(⁵⁹ Co)	3.46	Co-60	5.3y

(1) 中性子吸収能力

チタンの熱中性子巨視的吸収断面積(0.3281cm⁻¹)を基準にして比較すると、ニッケルは、約 1.28 倍、ホウ素(濃度 1.0wt%)は、3.14 倍である。

(2) 放射能の生成

チタンの放射化に関しては、 ^{45}Sc の不純物の (n, γ) 反応によって生成される ^{46}Sc (半減期が 83.8day) が支配的な核種となる。

ニッケルの放射化に関しては、同位体である ^{58}Ni の (n, γ) 反応によって生成される ^{59}Ni (半減期 7.5×10^4 年) が支配的な核種となる。

ボロンの放射化に関しては、同位体である ^{10}B が (n, α) 反応のため、取扱う上で被ばくする懸念はない。

(3) 加工性

チタンのうち工業用に使用されている純チタンの機械的特性は、約 240~620MPa の引張強さ、約 20~30% の伸びを有している。これは、ステンレス鋼と比べて、引張強さは、0.5~0.7 倍、伸びは、0.5~0.9 倍である。硬さは、チタンが約 117~202Hv とステンレス鋼 (約 170Hv) より高い。チタンは、室温での伸びが小さいので成形限界が低く、降伏比(引張強さ／耐力)が大きくて、適正な成形加工応力を選定しにくいと言われている。また、(耐力／ヤング率) の値が大きくて、成形加工後にスプリングバックにより加工精度が得にくいと言われている。チタンの接合方法には他の材料と同じように、溶接、ろう付け、圧接等がある。

ニッケルは、結晶構造が面心立方格子で Ni-Fe 合金、Ni-Cr 合金、Ni-Al 合金、Ni-Cu 合金等がある。Ni-Al 合金である耐食材料 4.5%Al、94%Ni は、1225MPa から 1470MPa の引っ張り強度が得られ、加工性、耐食性に優れた金属であり加工する上で問題にはならない。

ボロンは、アルミ合金、ステンレス鋼に添加され販売されている。その加工性は、素材の加工性と本質的に同じであり、加工する上で問題にはならない。

以上のことから、ホルダには、ボロン、照射筒には、チタン、ニッケル、ボロン添加合金、照射筒のライナには、チタン、ニッケル、ボロン添加合金を適用できる。

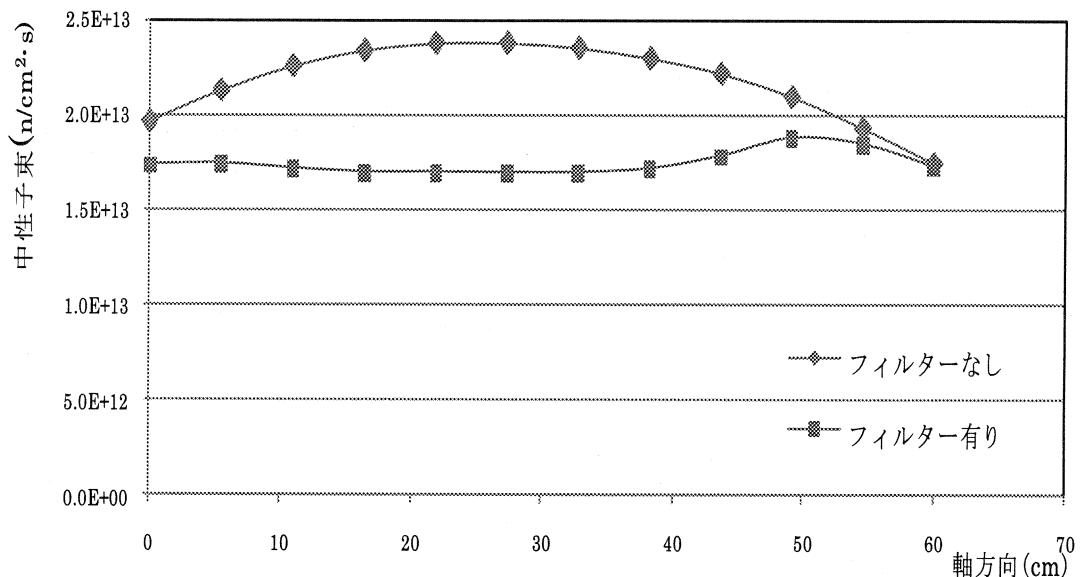
なお、上記の中性子フィルタ材の候補以外に、ボロンのドーピング、ボロンが添加された黒鉛セラミック、窒化ボロン等についても検討したが、製作可能な寸法等の制限から不適と判断した。

4.3 軸方向の中性子束分布

本解析で使用する制御棒の位置は過剰反応度最小反応度炉心における臨界時の値(32.0cm)⁷⁾として計算を行った。中性子束のエネルギー区分としては汎用核計算コードシステム SRAC95⁸⁾で用いられている 107 群のエネルギー区分を用いた。以下に示す。

- ・熱中性子 : 0 ~ 0.53158eV
- ・熱外中性子 : 0.53158eV ~ 100keV
- ・高速中性子 : 100keV ~ 20MeV

連続エネルギーモンテカルロコード MCNP⁹⁾の解析では、軸方向の熱中性子束を 600mm の範囲で平坦化させるには、第 4.3-1 図のフィルタなし熱中性子束分布に示すように約 27% の熱中性子束を中性子フィルタで吸収しなければならず、厚さ 3.0mm のチタンをホルダに設置した場合には軸方向の熱中性子束が、約 29% 低下する結果が得られた。



第 4.3-1 図 MCNP によるシリコンインゴット中の中性子束分布

簡易な計算として、中性子束が 1 次式で吸収されて低下するとした場合を考えると次の関係式が得られる。

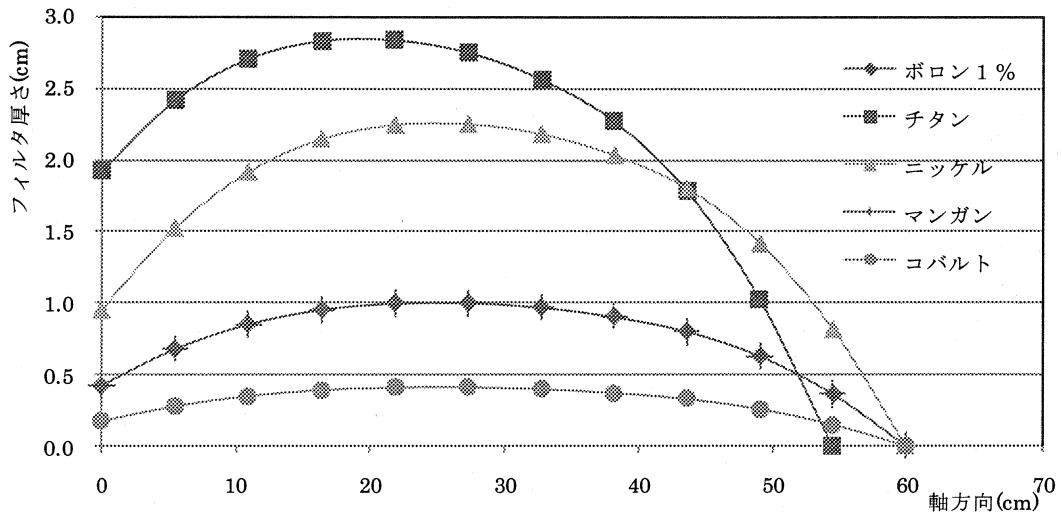
$$\text{低下率} = \{ 1 - e^{-\Sigma t} \}$$

ここで、 Σ : 巨視的吸収断面積(cm⁻¹)

t : 中性子フィルタ厚さ(cm)

この関係式を基に、チタンの厚さ 3.0 mm で約 29 % 低下している解析結果に合致するよ

う補正係数($\mu = 3.0$)を導入して、軸方向の熱中性子束を 600mm の範囲で平坦化させるのに必要な厚さをもとめた結果を第 4.3-2 図に示す。



第 4.3-2 図 シリコンインゴット長 600mm を均一にするに必要な中性子フィルタ厚さ

この簡易な近似式から得られた必要な中性子フィルタ厚さは、それぞれ次のようになる。

- (1) チタンの場合に必要な中性子フィルタ厚さ : 約 3.0mm
- (2) ニッケルの場合に必要な中性子フィルタ厚さ : 約 2.2mm
- (3) ボロン (濃度 1.0wt%) の場合に必要な中性子フィルタ厚さ : 約 1.0mm
- (4) マンガンの場合に必要な中性子フィルタ厚さ : 約 1.0mm
- (5) コバルトの場合に必要な中性子フィルタ厚さ : 約 0.4 mm

4.4 設置スペースの検討

NTD 装置の回転ドラム内径等の既設の各種取合いを変えることなく中性子フィルタを設置するために、既存のホルダの肉厚、隙間を調査した。

(1) 制限される取り合い寸法

a ホルダ内径 : シリコンインゴットをホルダに挿入・取り出すためにはシリコンインゴット外形とホルダ内面に隙間が必要となる。これまでの実績を重視して、この隙間を確保させることとして、ホルダ内径を固定寸法として扱う。

b 照射筒外径 : 重水タンクに照射筒を挿入するため、重水タンクとの取り合い

寸法が定まっており重水タンクを更新しない限り変更できない。

- c 均一照射装置内径：均一照射装置内にホルダを出し入れするためには、均一照射装置の取り出し口の最小寸法を満たすようにホルダ掴み治具外径を制限する必要がある。

(2) 見直し可能な寸法

- a ホルダ胴部厚さ：ホルダが扱うシリコンインゴットの重量は約 30kg である。現設計においては、板厚 4.25mm としているが、ホルダ材質の機械的強度から判断して過大に板厚を設定しているので加工上の制限がなければ薄くすることが可能となる。例えば、板厚 1.5mm としてアルミ(A1050)の許容応力 6.66N/mm^2 とすると許容荷重は 480kg となり、シリコンインゴット重量(設計荷重 33kg) の 14.5 倍となり強度的に問題にならない。
- b 照射筒内径とホルダ掴み治具外径との間隙：ホルダの挿入性を考えると間隙の大きい方がよい。現設計では 3.5mm となっているが、ライナ設置のため 2.0mm とする。
- c 照射筒の内径：照射筒の内径を設定する上で、シリコンインゴットの冷却上の要求がなければ、ホルダの挿入性を判断して設定できる。

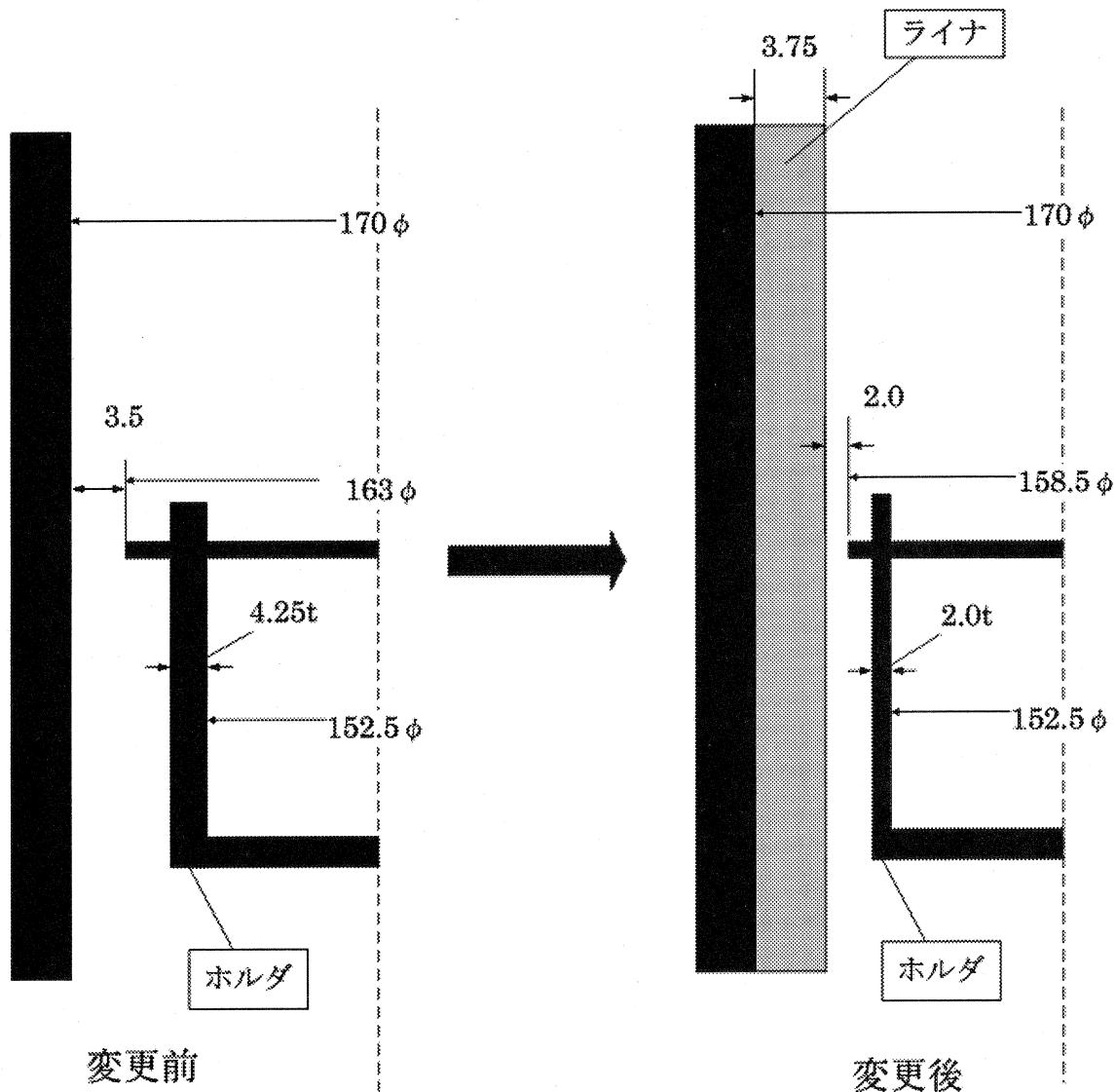
4.5 成立性

(1) ホルダに中性子フィルタを設置する場合

中性子フィルタ材としては、放射化の観点からボロン添加（例えば、アルミに添加）した材料を適用できる。必要なボロン添加厚さが約 1.0mm であることから、現設計の厚さ 4.25mm を変更せずに可能である。課題としては、添加されたボロンの均一性である。ボロンをアルミに溶解鋸造した製品のボロン偏析結果によると、 $\pm 20\%$ 以内の報告がある¹⁰⁾。本設計検討では、焼結法で 1.0wt%ボロン添加したアルミ合金を適用することを考えているが、ボロン偏析については、試行的に粒径の最適化を図る等によって実現性を模索することになる。

(2) 照射筒に中性子フィルタを設置する場合

新規に照射筒を製作すると中性子フィルタが冷却材中にあるため放射化を気にする必要がない。課題は、現行の照射筒の交換及び新規の照射筒設置に係る作業上の確実性である。特に、軽水環境と重水環境とのシール確保が重要である。



第 4.5-1 図 ライナ設置概念図(単位:mm)

(3) ライナを照射筒に設置する場合

薄いライナを照射筒に設置する場合、冷却材中であるため放射化を気にすることなく金属を適用することが可能となる。前節で述べたように、仮に、ホルダ厚さを4.25mmから2.0mmに見直すことで、照射孔内径とホルダ外径に5.75mmの隙間が生ずることになる。この隙間に、厚さ3.75mmのニッケルの中性子フィルタを挿入することを可能にすることである。中性子フィルタのライナを照射筒に設置する場合の概念図を第4.5-1図に示す。

4.6 中性子フィルタ設置場所の検討結果

中性子フィルタは定期的に交換する必要があるが、交換に伴いJRR-3施設の安全性を損なうことがあってはならない。照射筒及びライナに中性子フィルタを設置する方法では、中性子フィルタ交換のつどJRR-3施設の安全性確認に多大な時間を要するため現実でない。そのため、ホルダに中性子フィルタを設置する方法が最も現実的であると判断した。以降、第5章で中性子フィルタをホルダに設置した場合の予備解析について述べる。

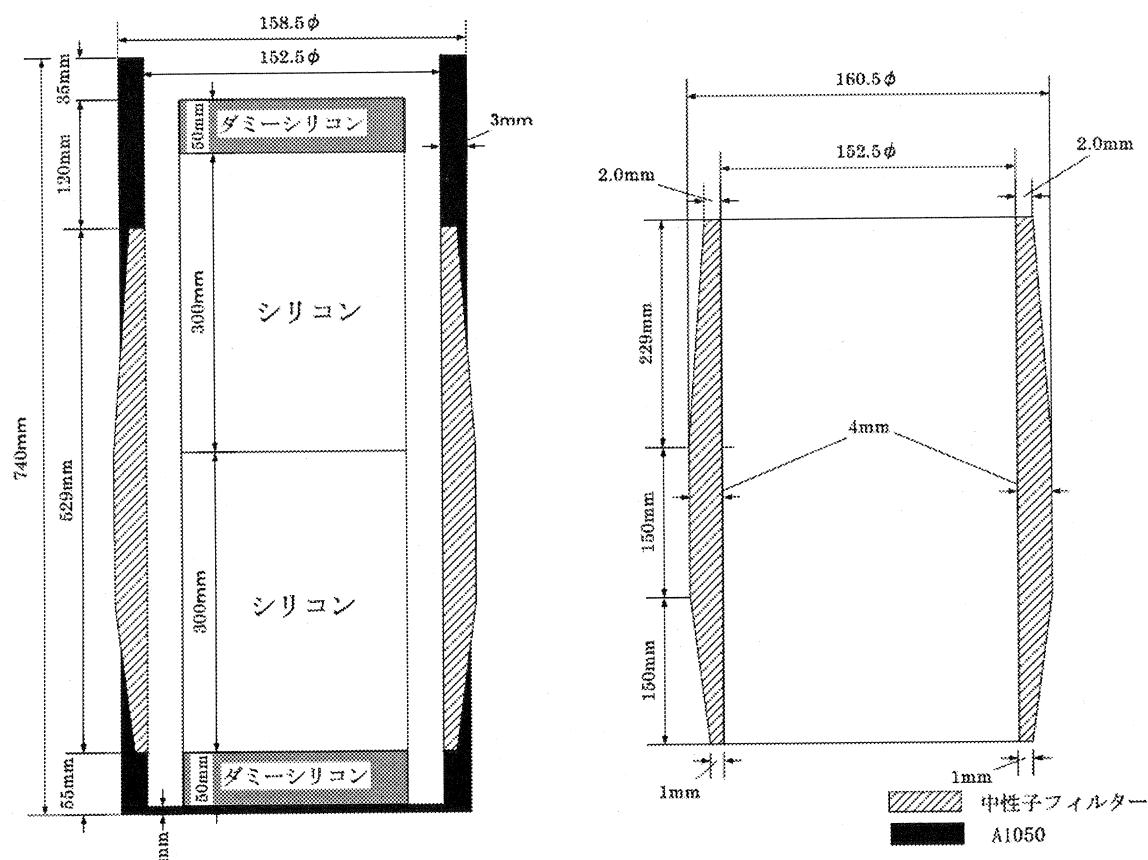
5. 設計

ホルダに中性子フィルタ法を適用する場合の予備設計の検討結果をまとめた。

5.1 中性子フィルタ形状の設計

解析では、軸方向の中性子束を 600mm の範囲で平坦化させる中性子フィルタ形状を最適化するため、第 5.1-1 図の解析モデルで、MCNP を用いて解析を行った。解析では、軸方向の中性子束を 600mm の範囲で平坦化させる中性子フィルタ形状を最適化するため、アルミとボロンが一様に混合された均一モデルを用いた。また、中性子フィルタ材料としては、炭化ホウ素(B_4C)を用いた。 ^{10}B の使用化学形態としては、 B_4C が最も多く、 B_4C は融点が高く、化学的に安定であり、比重も小さく、比較的安価であることから中性子吸収材として適切である。

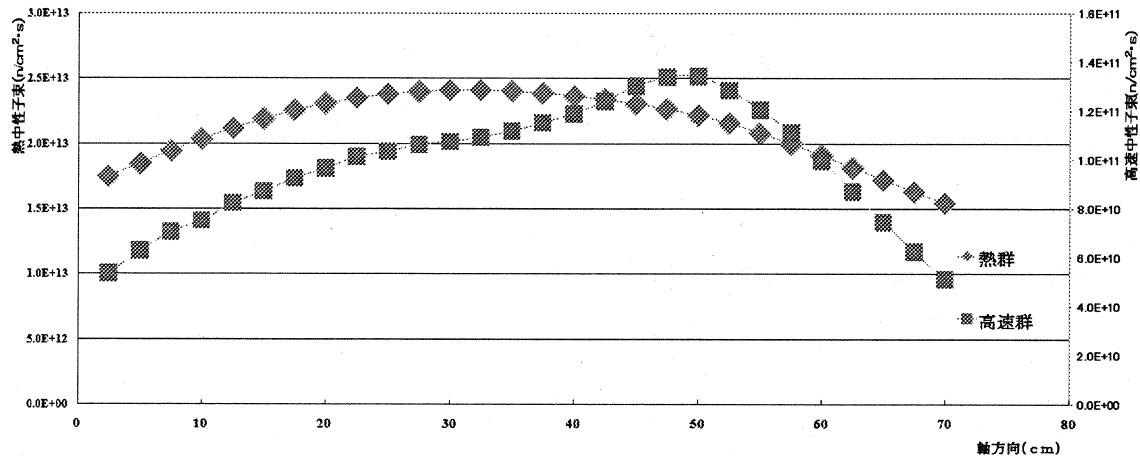
B_4C 濃度を 0.2~0.5wt% として最大厚さが 2.0~4.0mm となるよう、製作方法等の検討と協調させながら中性子フィルタ形状の最適化を進めた。中性子フィルタ形状の最適化の検討結果は、以下のとおりである。なお、第 4 章においてはボロン濃度を 1.0wt% としたが、中性子フィルタの最小厚さが約 0.25mm となり、製作において困難なため、中性子フィルタの最小限界厚さを 1.0mm とし解析を行った。



第 5.1-1 図 解析モデル

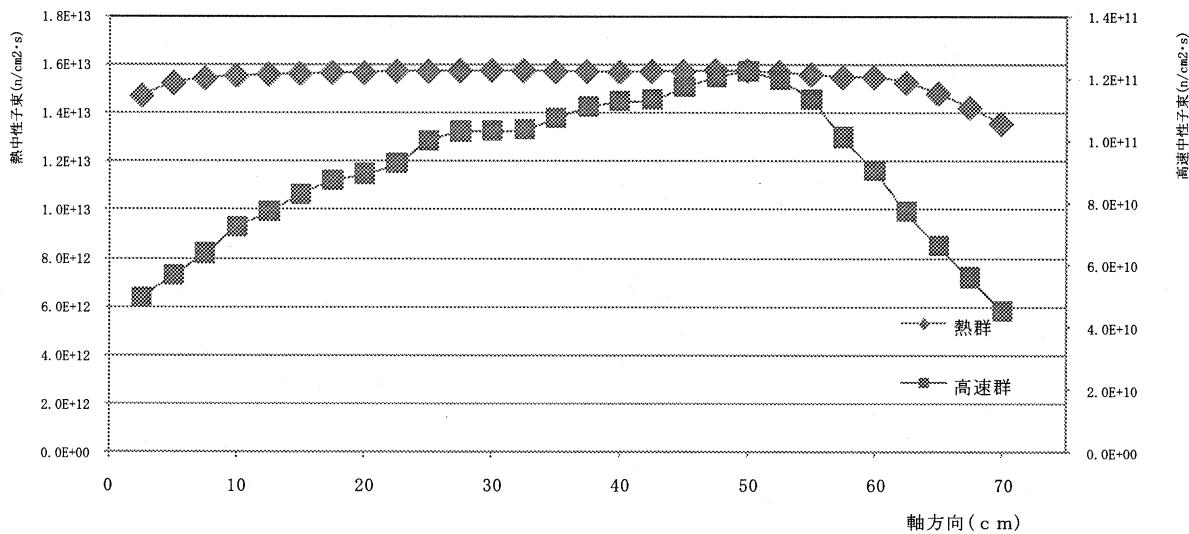
解析結果は、第 5.1-2 図及び第 5.1-3 図に示す。

中性子フィルタ付きホルダを使用しない場合の中性子束分布を第 5.1-2 図に示す。



第 5.1-2 図 中性子フィルタ付きホルダを使用しない場合の中性子束分布

この中性子束分布について、軸方向で 600mm の範囲を目標の±5%以内になるようにするため、ボロン濃度と板厚を調整した結果、B₄C 濃度 0.2675wt% とすると、第 5.1-3 図のような中性子束分布となる。



第 5.1-3 図 B₄C 濃度が 0.2675 wt % の場合の中性子束分布

これらの解析結果から実機を製作する場合には、B₄C 濃度を約 0.2675 wt% になるよう、

また、最大厚さが 4.0mm となるよう、製作方法等の検討と協調させながら中性子フィルタ形状の最適化を図ることにしている。

5.2 中性子フィルタ付きホルダの炉心反応度への影響評価

ボロン付きホルダの挿入・取出による影響について、ここでは、一群拡散理論の摂動法で簡易に反応度を評価した¹¹⁾。

$$\Delta\rho = -\frac{\int d^3r \times \{\varphi_r(r)\}^2 \times \delta\Sigma_a(r)}{\int d^3r \times \{\varphi_c(r)\}^2 \times v\Sigma_f(r)}$$

ここで、	$\Delta\rho$: 反応度 $\Delta k/k$
	$\varphi_r(r)$: ホルダ領域の平均中性子束
	$\delta\Sigma_a(r)$: ホルダのボロン吸収体の巨視的断面積
	$\varphi_c(r)$: 炉心平均の中性子束
	$\Sigma_f(r)$: 炉心平均の巨視的分裂断面積
	v	: 発生中性子数/分裂

JRR-3 の定常出力 20MW で運転中における全中性子発生数とボロン付きホルダの中性子吸収量から算出すると、反応度は約 0.004% $\delta k/k$ となる。この反応度は、JRR-3 の設置許可上、炉心の実験物による最大の負の反応度 3.7% $\delta k/k$ の約 1/100 であり、運転上の反応度外乱として運転に影響することはない。なお、MCNP における計算結果によると約 0.006% $\delta k/k$ となるので、簡易に算出した摂動法は、摂動が十分小さい場合において有効である。

5.3 中性子フィルタ付きホルダの放射化による放射線当量率の評価

線源強度の計算¹²⁾は、均一な厚さ 2.0mm で第 5.3-1 表に示す不純物を有している B₄C 濃度 5.0 wt% の中性子フィルタが円筒のホルダに巻かれた形状で、3 時間照射した場合について行った。

計算結果は、第 5.3-2 表に示している。

中性子フィルタの解析によると B₄C 濃度を 0.2675 wt% としており、形状はテープ状であるが、最大厚さが 4.0mm なので体積補正は行わず、ホルダの年間使用回数 50 回、また、運転サイクル間での放射能減衰は考慮せずに、単純に放射能量が蓄積するとした場合の最大の線量当量率は、次のように概算される。

$$\text{最大線量当量率} = 3.1\text{mSv/h} \times 0.2675/5 \times 50 \text{回} = 8.3\text{mSv/h}$$

現状の照射ホルダでシリコンインゴットを照射して 40 時間冷却した後の線量当量率の測定値は約 15mSv/h⁶⁾となっていることから、中性子フィルタからの線量当量率への寄与分を

合計すると約 23mSv/h となり、現在のホルダ線量当量率の約 1.5 倍となる。

選定する中性子フィルタ材の長半減期核種を生成する鉄とクロムの不純物濃度については、可能な限り第 5.3・1 表の不純物濃度に比べて低減したものとするが、仮に、鉄とクロムの濃度を 1 枠低下したものを選定した場合には、中性子フィルタからの線量当量率の寄与は約 1.0mSv/h と小さくなるので、現在のホルダ線量当量率と同程度になるので、作業員が著しい被ばくを受けるとは考えにくい。

設計上、中性子フィルタ材については、不純物組成のうち金属不純物の少ないものを選定するので、作業員が被ばくする問題はない。

第 5.3・1 表 計算に使用した B₄C の組成

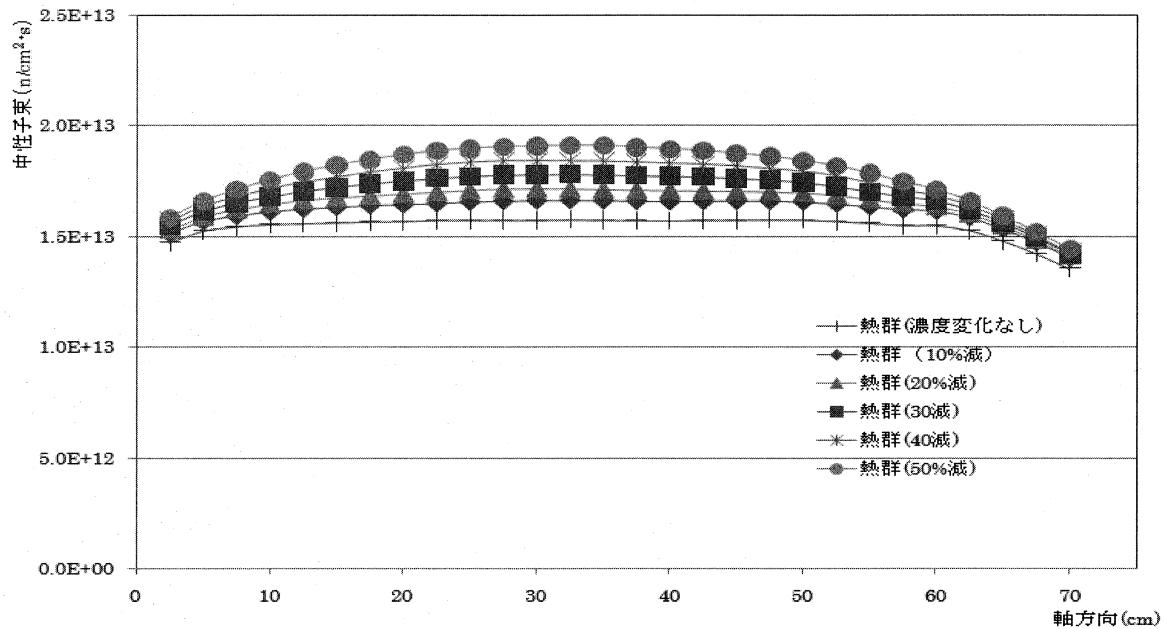
name	KS-40
Batch	M53703
Content	mass%
B	79.7
C	19.0
N	0.81
Si	0.062
Al	0.022
Fe	0.15
Ti	0.004
Ca	0.014
Mg	0.001
Cr	0.002
Grain Size	μ m
D10	5.12
D50	10.96
D90	19.90

第 5.3・2 表 B₄C 濃度 5.0 % の中性子フィルタを 3 時間照射時の生成放射能濃度

反応核	反応	生成核	半減期	Bq/cc	mSv/h
Fe-54	(n, α)	Cr-51	27.7d	2.8E+1	1.6E-4
Fe-58	(n, γ)	Fe-59	44.6d	7.3E+4	1.3
Ti-46	(n,p)	Sc-46	83.8d	8.8	1.3E-4
Ti-47	(n,p)	Sc-47	3.35d	2.0E+2	7.0E-4
Ti-48	(n,p)	Sc-48	43.7h	2.9E+2	7.0E-3
Ca-40	(n,p)	K-40	1.28E+9y	2.5E-16	6.0E-21
Ca-46	(n, γ)	Ca-47	4.536d	6.1E+2	1.5E-2
Cr-50	(n, γ)	Cr-51	27.7d	3.2E+5	1.8
合計				4.0E+5	3.1

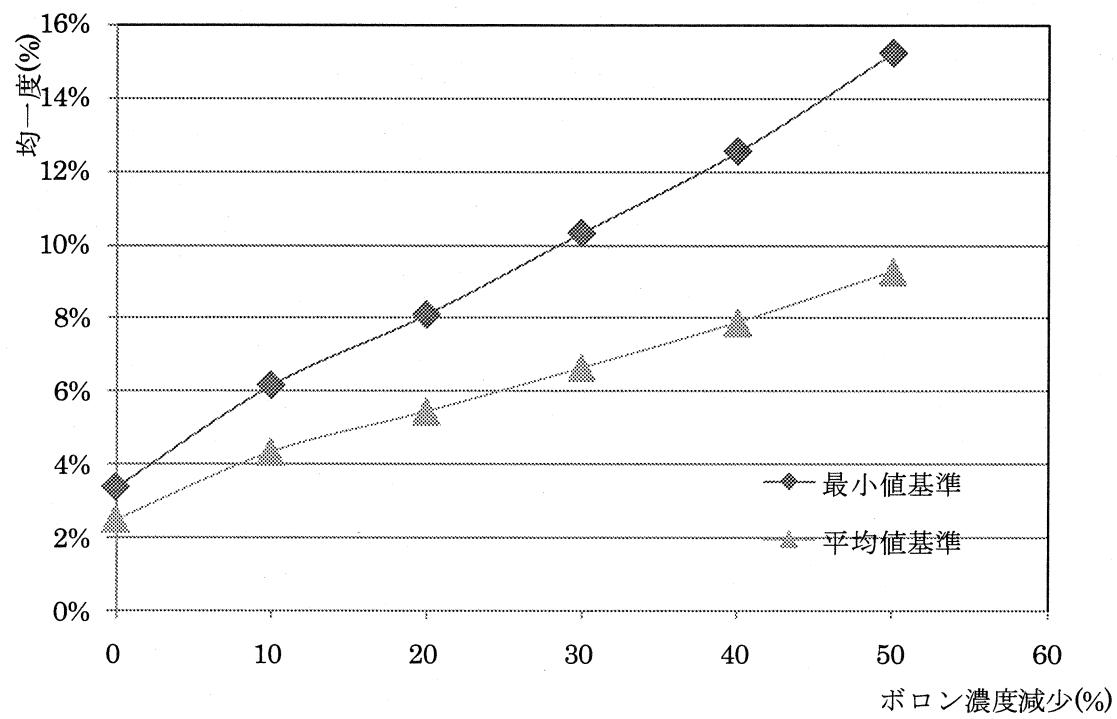
5.4 ポロンの燃焼

ポロンは、反応断面積が大きいことから熱中性子と反応(燃焼)し減少する。そのため、ポロン濃度が減少を考慮した熱中性子束の均一度を計算した結果を、第 5.4-1 図に示す。



第 5.4-1 図 ポロン燃焼時の熱中性子束分布

ポロンの燃焼に伴い熱中性子束は、増加し、その(最大値−最小値)/最小値の値及び軸方向の均一度(最大値−平均値)/平均値を第 5.4-2 図に示す。ポロンが 20%燃焼するまで目標とする±5%を満たすことになる。



第 5.4-2 図 ボロン濃度減少と中性子束均一度の関係

6. おわりに

NTD-Si 装置に軸方向の中性子束を均一化する中性子フィルタ法を適用し、生産性を向上させる技術開発の検討を進め、以下の結果を得た。

- (1) 中性子フィルタ材としては、ボロンとニッケルを対象に詳細化することが材料の入手性、加工性の面で合理的と判断される。また、中性子フィルタの設置場所としては、ホルダと照射筒にライナを設置することが、試験の容易性、設置の容易性を考えると適當と判断される。
- (2) 中性子フィルタ法は、試験を容易に行えるホルダに適用してその有効性を検証し、次いで、その結果を反映させて供用ホルダの製作を行うことが適當と判断される。
- (3) ホルダに適用するため予備設計を進めた結果、中性子フィルタ材のボロン濃度と中性子フィルタ厚さを調整することで
 - ・既存のホルダ寸法を変えずに、軸方向の中性子束を均一化できること
 - ・中性子フィルタ設置によるシリコンインゴットの温度上昇への影響がないこと
 - ・原子炉運転中の反応度外乱の影響がないこと
 - ・中性子フィルタ材の不純物を制限することでホルダ取り扱い時の被ばくに与える影響がないことを確認した。

謝 辞

今回の研究炉を用いた中性子フィルタ法によるシリコン照射の生産性向上に関する技術検討に当たっては、山下清信研究炉加速器管理部長・寺門義文 JRR-3 管理課長に貴重なご意見をいただいた。また、NTD-Si の生産性向上の具体化の検討においては、(財)放射線利用振興協会の小林晋昇専務理事に協力をいただいた。ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 堀口洋二、他 : JAERI-M 86-002 「中性子照射によるシリコンドーピング」 (1986).
- 2) NTD 技術検討会 : JAEA-Review 2005-006 「研究炉等(JRR-3、JRR-4 and JMTR)を用いた中性子核変換ドーピング Si 半導体 (NTD-Si) 製造機能拡充の検討」 (2006).
- 3) I.A.E.A., 1988. Silicon Transmutation Doping Techniques and Practices, Poland, IAEA-TECDOC-456. (1998) .
- 4) HAK-SUNG KIM, et al : NEAT vol.38 No7 「DESIGN OF A NUETRON SCREEN FOR 6-inch NEUTRON TRANSMUTATION DOPING IN HANARO」 (2006).
- 5) Xiao song Li H, et al:IGORR9 「Advanced Neutron Instrumentation at the FRM-II」 (2003).
- 6) 広瀬 彰、他 : JAEA-Technology 2006-059 「中性子核変換ドーピング Si 半導体 (NTD-Si) 製造機能拡充のための外部冷却法対応設備の製作(共同研究)」 (2006).
- 7) JRR-3 管理課、他 : JAERI-Tech 2000-027 「JRR-3M シリサイド燃料炉心の特性試験」 (2000).
- 8) 奥村 啓介、他 : JAERI-Date/Code 96-015 「SRAC95 ; 汎用核計算コードシステム」 (1996).
- 9) Jeremy Sweezy、ed.,,MCNP™—A General Monte Carlo N-particle Transport Code Version 5, Los Alamos National Laboratory (2003).
- 10) 下条 純、他 : R-D 神戸製鋼技法 Vol.53No3 「ボロン添加アルミニウム合金の製造技術」 (2003).
- 11) 成田 正邦、他 : 現代工学社、「原子炉の理論と解析(上)」 (1980).
- 12) 村上 悠紀雄、他 : 地人書館、「放射線データブック」 (1982).

