

JAERI-Review

95-005



HTTR による高温高性能半導体の  
製造の有用性についての検討

1995年3月

柴田 大受

日本原子力研究所  
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し込みください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

This reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

HTTRによる高温高性能半導体の製造の有用性についての検討

日本原子力研究所大洗研究所高温工学試験研究炉開発部

柴田 大受

(1995年2月24日受理)

GaAs や SiC は、高温環境下での動作が可能な高性能半導体として注目されている。半導体を実用化するうえで不純物の混入は主要な技術であり、熱拡散的な不純物混入が一般的である。しかし、GaAs については、この方法により混入した不純物が格子欠陥を引き起こすので、それを抑えるため Si に比べて複雑な設備を必要とする。一方、SiC に対する不純物の拡散係数は小さいので、この方法による不純物混入は困難である。従って、これら高性能半導体については、熱拡散的な不純物混入法に代わる手法の確立が望まれる。

Si イングットを原子炉内で中性子照射し、Si 中に不純物を生成させる方法は NTD 法と呼ばれ、Si 半導体を製造する確立された手法の一つとなっている。日本原子力研究所では平成10年の臨界を目指し、大洗研究所に高温工学試験研究炉 (HTTR) を建設中である。HTTR は、数十 cm の大きさの大型試料を約 1000°C までの高温で照射できるという、これまでにないユニークな照射能力を有する原子炉である。

本報告書では、この HTTR を用いて、GaAs、SiC 等の高温高性能半導体を製造する方法の有用性及び実現可能性について検討した。まず、NTD 法による Si 半導体製造の現状について調べ、NTD 法の利点及び問題点を明らかにした。これに基づき、GaAs 及び SiC について NTD 法の適用性を調べた。さらに、HTTR を用いた半導体製造の実現可能性について基礎的な検討を行った。

その結果、NTD 法は SiC には有望であるが GaAs には適切ではないことが明らかになった。さらに、HTTR の特徴を生かすには SiC 結晶の大型化が不可欠であり、これが実現できれば、(1) 照射損傷の抑制、(2) 不純物分布の均一性、(3) 大型試料の照射による生産性の向上、の点で効果的な SiC 半導体の製造が可能になることを明らかにした。今後、実際の照射方法等については詳細な検討を行っていく予定である。

Feasibility Study on Potential Productivity of Heat-resisting  
and Advanced Semiconductors by using the HTTR

Taiju SHIBATA

Department of HTTR Project  
Oarai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received February 24, 1995)

Worldwide attention has been paid to GaAs and SiC as a kind of the heat-resisting and advanced semiconductor materials. Doping of specific impurities into semiconductor materials is a key technology for producing semiconductor devices. As one of doping technologies, thermal diffusional doping has been successfully applied to Si. Application of thermal diffusional doping to GaAs needs expensive and complicated processes in order to prevent an occurrence of lattice defects by impurities. On the other hand, it is difficult to apply this technology to SiC, because of small diffusion coefficient of impurities to SiC. Therefore, it is of great importance to develop a substitutional doping technology for these materials for realizing heat-resisting and advanced semiconductor.

To dope some impurities into Si crystal by using neutron irradiation is a mature technology and is called NTD. The High Temperature engineering Test Reactor (HTTR) which has been being constructed at the Oarai Research Establishment of the Japan Atomic Energy Research Institute has an unique and superior capability to irradiate large-sized specimen, in the order of 10cm in diameter, at high temperature up to approximately 1000°C.

This report presents a result of feasibility study of potential applicability and effectiveness of NTD to GaAs and SiC at the HTTR. First of all, advantages and disadvantages were identified by reviewing the state-of-the-art technology of NTD to Si. Potential applicability of NTD to GaAs and SiC are discussed. Based on this discussion, effectiveness and feasibility of NTD to these materials at the HTTR are examined.

As a result, NTD is feasible to SiC but not to GaAs. The HTTR provides the capability to produce SiC semiconductor, in particular, to produce the semiconductor with (1) low irradiation damage, (2) uniform distribution of doped impurities and (3) high productivity, if a large-sized SiC crystal is capable to be commercialized. Practical application of NTD at the HTTR will be discussed in the next study.

Keywords: Heat-resisting and Advanced Semiconductor, SiC, NTD, The HTTR, Feasibility Study, Potential Productivity.

## 目 次

1. はじめに	1
2. 半導体の原理と高温下での動作に要求される特徴	3
2.1 半導体の原理	3
2.1.1 電子軌道とエネルギー帯構造	3
2.1.2 半導体の導電性とエネルギー帯の関係	3
2.2 高温下での動作に要求される特徴	4
3. NTD法によるシリコン半導体製造の現状	7
3.1 NTD法の基礎原理と製造される半導体の特徴	7
3.1.1 基礎原理	7
3.1.2 製造される半導体の特徴	8
3.1.3 NTD法による半導体製造工程	8
3.2 生産量から見たNTD法の現状	10
3.3 原研の研究炉における実績	11
3.3.1 照射方法の概要	11
3.3.2 JRR-4 及び JRR-2 における照射技術	13
3.4 NTD法のこれまでの課題	14
3.4.1 照射場の大きさの制限	14
3.4.2 照射量の制限	15
4. NTD法による高温高性能半導体の製造可能性	26
4.1 半導体の性能の比較と実現性の検討	26
4.2 GaAs 半導体製造の可能性	28
4.3 SiC 半導体製造の可能性	29
4.4 GaAs 及び SiC 半導体製造の有用性の検討	30
5. HTTR による NTD 法の有用性	37
5.1 照射機能の概要	37
5.2 照射試験のための設備	38
5.2.1 実験設備室と照射試験用の貫通孔	38
5.2.2 照射量制御のための設備	39
5.3 照射方法の可能性	42
5.4 今後の検討課題	46
6. まとめ	68
謝 辞	70
参考文献	70
付録1 Si 及び SiC 円柱状インゴット内における中性子束分布	72

付録2	ラビット輸送計算	74
付録3	ラビット用気送管のベント部に必要な半径の計算	80

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Principle of Semiconductor and Requirements as Heat Resisting Semiconductor .....	3
2.1 Principle of Semiconductor .....	3
2.1.1 Orbits and Energy Band Structure .....	3
2.1.2 Conductive Performance Based on Energy Band Structure.....	3
2.2 Requirements as Heat Resisting Semiconductor .....	4
3. State-of-the-art Technology of NTD to Si.....	7
3.1 Principle of NTD and Features of NTD Semiconductor .....	7
3.1.1 Principle of NTD .....	7
3.1.2 Features of NTD Semiconductor.....	8
3.1.3 Processes of NTD Semiconductor manufacturing .....	8
3.2 Present Condition of NTD from a Standpoint of commercial Productions .....	10
3.3 NTD Technologies at JAERI's Research Reactors.....	11
3.3.1 Outline of Irradiation Services.....	11
3.3.2 Irradiation Technologies at JRR-4 and JRR-2.....	13
3.4 Present Problems of NTD.....	14
3.4.1 Limit of Irradiation Space .....	14
3.4.2 Limit of Allowable Neutron Fluence .....	15
4. Potential Applicability of NTD to Heat Resisting Semiconductor.....	26
4.1 Comparison about Heat Resisting Performance and about Realization....	26
4.2 Applicability about NTD to GaAs.....	28
4.3 Applicability about NTD to SiC .....	29
4.4 Effectiveness of NTD to GaAs and SiC .....	30
5. Effectiveness of NTD through the HTTR .....	37
5.1 Outline of Irradiation Performance .....	37
5.2 Facilities for Irradiation Tests .....	38
5.2.1 Laboratory and Perforations for Irradiation Tests.....	38
5.2.2 Proposed Facilities for Neutron Fluence Control.....	39
5.3 Feasibility of Irradiation Tests .....	42
5.4 Problems to be Examined in the Future.....	46
6. Conclusion.....	68



Acknowledgement .....	70
References .....	70
Appendix 1 Neutron Flux Distribution within Si and SiC Cylindrical Ingot...	72
Appendix 2 Analysis for Rabbit Transportation.....	74
Appendix 3 Analysis for Requested Radius at Bent Part of Pneumatic Tube.....	80

## 1. はじめに

現在、日本原子力研究所（原研）は、大洗研究所の敷地内に高温工学試験研究炉（HTTR：High Temperature Engineering Test Reactor）の建設を進めている。HTTRは、被覆粒子燃料を用いた黒鉛減速ヘリウムガス冷却の高温ガス炉型の試験研究炉であり、熱出力は30MW、原子炉出口冷却材最高温度は950°Cである。HTTRは高温ガス炉に関する基盤技術の確立と高温ガス炉技術の高度化に資するとともに、大型試料の高温の照射が可能であるという照射炉としての特有の機能を活かして、高温工学に関する先端的基礎研究にも貢献する試験研究炉として位置付けられている。

照射炉の利用形態のひとつとして中性子照射による半導体製造がある。この方法は中性子吸収による原子核の変換を利用して半導体の母材中に不純物を生成させるもので、NTD（Neutron Transmutation Doping）法と呼ばれている。現在実用化されているものは、シリコン単結晶の円柱状インゴットを中性子照射し、 $^{30}\text{Si}$ の中性子捕獲反応を利用して $^{31}\text{P}$ を生成させ、これを半導体中の不純物とするものである。この方法により製造される半導体は、4族元素のシリコンの一部を5族元素のリンに置き換え、シリコンとリンの間の共有結合で一つ余った価電子が電荷の担い手となるn型半導体であり、大電力用のサイリスタやパワートランジスタ等に使用されている。NTD法によるシリコン半導体の製造量は世界全体で180トン/年（1992年）程度であり、NTD法は半導体製造法の一般的な手法となっている。

NTD法による半導体製造の利点としては、以下の事柄が挙げられる。

○熱拡散的に不純物を混入する方法では不純物の偏析が生じるが、NTD法では結晶中に直に不純物を生成させるので、不純物分布の均一性の高い半導体を製造することができる。

○中性子照射量を変えることにより、半導体中の不純物量すなわち半導体の抵抗率を任意に変えることができる。

一方、欠点としては、中性子や $\gamma$ 線の照射により発生する結晶中の格子欠陥や材料の放射化の問題が挙げられる。

近年、シリコンに比べて耐熱性、耐放射線性に優れた高性能半導体の候補材料としてGaAsやSiC等が着目されている。現在実用化されているGaAsは、熱拡散を用いた製造法では結晶成長時におけるAsの解離や不純物の偏析により発生する格子欠陥を抑えるため、結晶成長時の温度や雰囲気制御が必要であり、シリコンの場合に比べ複雑な設備を必要とする。一方、近未来的な実用化が期待されるSiCは、不純物の拡散係数が小さいので結晶成長中の熱拡散的な不純物混入が困難であり、実用化のためには他の不純物混入法の開発が必要である。

このような半導体材料にHTTRを用いて高温で中性子照射を行えば、照射による格子欠陥を抑制しつつ不純物を均一に生成できる可能性があり、高性能半導体の効率的な製造が期待される。また、NTD法による半導体の製造においては、大量生産による採算性の向上や大電力用の大容量素子の製造のために大型のインゴットが照射で

きることが望ましく、この点でも大型試料の照射が可能なH T T Rへの期待は大きい。また、このような期待を反映してH T T Rを用いた高温工学に関する先端的基礎研究としても、N T D法による半導体製造に関する提案が67件中6件（平成6年9月6日現在）も出されている。

そこで、H T T Rによる高性能半導体製造の有用性を探るため、N T D法によるシリコン半導体製造の現状について調査を行い、その問題点を明らかにした。これに基づき、G a A s及びS i Cについて、N T D法の適用性を調べた。さらに、H T T Rを用いた半導体製造の実現可能性について、基礎的な検討を行った。

## 2. 半導体の原理と高温下での動作に要求される特徴

### 2. 1 半導体の原理

#### 2. 1. 1 電子軌道とエネルギー帯構造

原子はその原子核の原子番号に対応して各々固有な電子軌道を持っている。Table 2.1.1<sup>1)</sup> に定常状態における低原子番号の原子の電子軌道とそこを占める電子の数を示す。電子軌道は、原子核に近い方すなわちエネルギー準位の低い方から、1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d, … という順に並んでいて、s-軌道には最大2個の電子が、p-軌道には最大6個の電子が、d-軌道には最大10個の電子が入る。

原子が単独に存在していれば、この電子軌道のエネルギー準位は原子の種類とその電子軌道に関して一意的に決まる。しかし、結晶状態になって原子間の距離が近づく場合には、電子軌道は周辺の他の原子から影響を受けエネルギー準位に幅が生じ、隣接原子間にまたがって空間的に連続した分布をとるようになる。この連続なエネルギー幅をエネルギー帯と言い、軌道電子の占有状態により、以下のように区分することができる。

充満帯：軌道が完全に電子で満たされたエネルギー帯

伝導帯：軌道が完全には電子で満たされていないか、あるいは電子が全く無いエネルギー帯。電子軌道は低エネルギー側の軌道から電子で満たされているので、充満帯より上のエネルギーに位置する。

充満帯の中の電子は、軌道中に電子が入る「空き」が無いので空間的に移動することはできないが、伝導帯中の電子は、軌道中に「空き」があるので空間的に移動することができる。しかし、結晶中では伝導帯中の電子は原子間の共有結合により強く束縛されているので、このままでは導電性は示さない。また、充満帯と伝導帯の間のエネルギー幅のことを禁制帯と言う。

#### 2. 1. 2 半導体の導電性とエネルギー帯の関係

半導体では、原子間の共有結合に束縛されない電子や正孔が電荷の担い手となって導電性が生じる。このような電子や正孔を結晶中に生じさせるため、結晶中に不純物を混入するが、一般に、母材原子より価数が1つ多い元素を不純物として混入し、電子を電荷の担い手とする半導体をn型半導体、価数が1つ少ない元素を不純物として混入し、正孔を電荷の担い手とする半導体をp型半導体という。このように、半導体は電荷の担い手によりn型やp型といった伝導型に大別される。

結晶中に不純物を混入した場合、結晶中の原子がその不純物原子と置きかわると、禁制帯中にその不純物原子に固有のエネルギー準位（不純物準位）が発生する。Fig.

2.1.1にn型半導体、p型半導体におけるエネルギー帯と不純物準位の関係を示す。例えば、4価のSi結晶中に5価のPを混入してn型半導体を製造する場合には、P

の不純物準位は伝導帯のすぐ下に発生する。この場合、不純物であるPをSiに対してドナーと言ひ、Pの不純物準位をドナー準位と言う。また、4価のSi結晶中に3価のAlを混入してp型半導体を製造する場合には、Alの不純物準位は充満帯のすぐ上に発生する。この場合、不純物であるAlをSiに対してアクセプターと言ひ、Alの不純物準位をアクセプター準位と言う。

半導体の母材に価数が1つ多い不純物を混入してn型半導体を製造する場合、母材原子と不純物原子間の共有結合において不純物原子の価電子が1つ余る。この電子はドナー準位のエネルギーレベルに位置し、共有結合には寄与しないが不純物原子の正電荷により弱く束縛されているので、このままでは空間的に移動することはできない。しかし、この電子は室温程度で伝導帯に熱励起するので、伝導帯中を空間的に移動することが可能になる。一方、母材に価数が1つ少ない不純物を混入してp型半導体を製造する場合には、母材原子と不純物原子間の共有結合に対して電子が1つ不足するので、充満帯にある電子を1つ共有結合に利用する。このため、充満帯中に正孔が生じるが、正孔の束縛エネルギーも弱く、室温程度で充満帯中を空間的に移動することが可能になる。このように、n型半導体では電子が、p型半導体では正孔が電荷の担い手となり導電性が生じる。

## 2. 2 高温下での動作に要求される特徴

シリコンを用いた半導体素子の最高使用温度は150℃程度と言われており、より高温で動作可能な半導体素子を用いれば、自動車や航空機のエンジン等の高温環境下における各種のシステムを制御することができる。また、耐放射線性を持つ半導体素子を開発すれば、人工衛星や惑星探査機などの宇宙環境のような放射線下でも使用することができる<sup>2)</sup>。

半導体の耐熱性、耐放射線性を決める最も重要な物理量は、半導体材料の禁制帯幅の大きさである。高温時には、半導体素子中の電子が充満帯から伝導帯に熱励起し、電子と正孔が発生するため、半導体の不純物濃度で決められたキャリア（電子や正孔）の数が変化する。さらに高温になると、熱励起によるキャリアが主体となり、p型やn型といった伝導型の区別がつかなくなるため（真性半導体領域）、整流作用やトランジスタ作用が不可能となる。高温時の使用にはこのような弊害があるので、禁制帯幅が大きい材料を用いた半導体素子ほどより高温での使用が可能である。また同様に、禁制帯幅が大きい材料ほど放射線による電子の充満帯から伝導帯への励起は起こりにくいので、耐放射線性に優れている<sup>2)</sup>。

これまでに、波動方程式を用いて電子軌道のエネルギー準位を電子軌道関数として表現することが行われてきたが、原子番号と禁制帯幅の大きさの間には密接な関係がある<sup>1)</sup>。電子軌道関数による電子軌道のエネルギー準位においては、隣接する電子軌道間のエネルギーの差異は、一般的に原子核に近いほど大きい。禁制帯幅の大きさは、最外殻電子軌道とその内側の電子軌道との間のエネルギー準位の差異に依存するが、

一般的に原子番号の小さな物質ほど最外殻電子軌道が原子核の近くに存在するので、禁制帯幅の大きさが大きいという傾向を示す。従って、原子番号が小さな物質ほど耐熱性、耐放射線性に優れた半導体となり得る可能性を持っている。

Table 2.1.1 Number of electrons in steady state orbits at low atomic number elements<sup>1)</sup>.

元素	原子番号 Z	電子軌道					
		1s	2s	2p	3s	3p	3d
H	1	1					
He	2	2					
Li	3	2	1				
Be	4	2	2				
B	5	2	2	1			
C	6	2	2	2			
N	7	2	2	3			
O	8	2	2	4			
F	9	2	2	5			
Ne	10	2	2	6			
Na	11	2	2	6	1		
Mg	12	2	2	6	2		
Al	13	2	2	6	2	1	
Si	14	2	2	6	2	2	
P	15	2	2	6	2	3	
S	16	2	2	6	2	4	
Cl	17	2	2	6	2	5	
Ar	18	2	2	6	2	6	

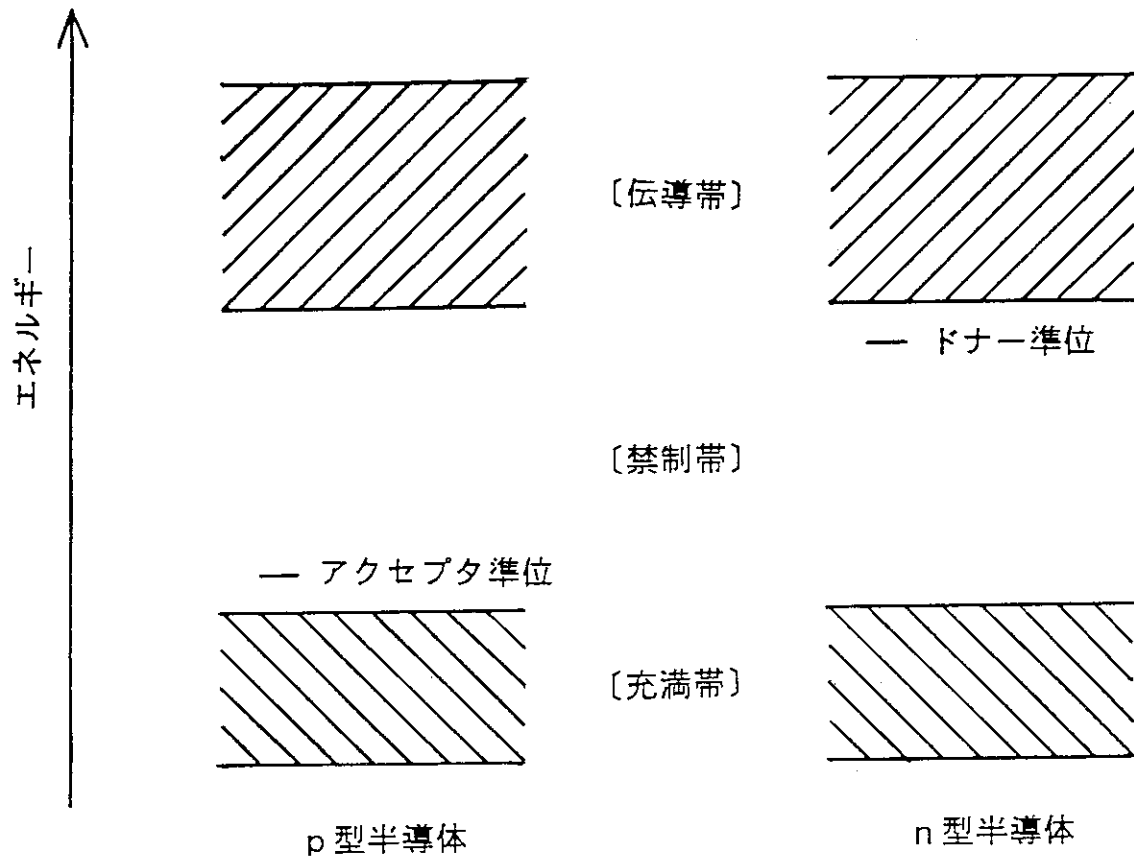


Fig. 2.1.1 Schematic illustration of energy band structure of semiconductor element.

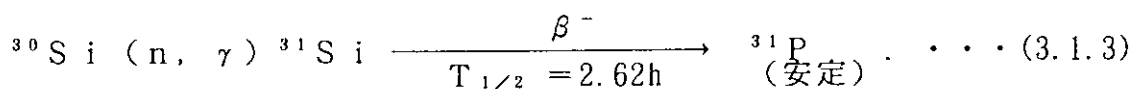
### 3. NTD法によるシリコン半導体製造の現状

中性子照射による半導体製造法はNTD (Neutron Transmutation Doping) 法と呼ばれている。現在実用化されているNTD法によるシリコン半導体の製造量は世界全体で約180トン/年(1992年)である<sup>3)</sup>。ここでは、NTD法の利点、国内外におけるNTD法による半導体製造の現状と問題点について述べる。国内においては原研の研究炉で製造を行っており、その実績及び製造技術についても併せて述べる。

#### 3. 1 NTD法の基礎原理と製造される半導体の特徴

##### 3. 1. 1 基礎原理

NTD法で現在実用化されているものは、原子炉内でシリコン単結晶の円柱状インゴットを照射し、 $^{30}\text{Si}$  の中性子捕獲反応を利用して不純物である $^{31}\text{P}$ を生成させるものである。この方法により製造される半導体は、4族元素のシリコンのうちの一部を5族元素のリンに置き換え、シリコンとリンの間の共有結合で一つ余った価電子が電荷の担い手となるn型半導体である。この場合、結晶格子位置にある原子に高エネルギー中性子が当たると、中性子により格子からはじき出された原子が更に他の原子を格子からはじき出す2次反応が生じるので、結晶の格子欠陥を低減するため照射には熱中性子が用いられる。天然に存在するシリコンの同位体存在比は、 $^{28}\text{Si}$ が92.23%、 $^{29}\text{Si}$ が4.67%、 $^{30}\text{Si}$ が3.10%であり、シリコンに熱中性子を照射した場合には以下の核反応が起こる<sup>4)</sup>。



式中の $T_{1/2}$  は半減期である。ここで、熱中性子(エネルギーが0.0253eVの中性子)に対する中性子捕獲断面積は $^{28}\text{Si}$ が0.08b(1b=10<sup>-28</sup>m<sup>2</sup>)、 $^{29}\text{Si}$ が0.28b、 $^{30}\text{Si}$ が0.4bである。中性子照射によりシリコンインゴット中にPを生成させる方法では、(3.1.3)式の反応を利用している。照射後十分に時間が経ち $^{31}\text{Si}$ の $\beta^-$ 崩壊による $^{31}\text{P}$ の生成が飽和した時点での $^{31}\text{P}$ の原子数密度は、中性子エネルギーを一群で考えると、以下の式により求めることができる<sup>4)</sup>。



$$[{}^{31}\text{P}] = [{}^{30}\text{Si}] \cdot \sigma_c \cdot \phi_{th} \cdot t \quad \dots (3.1.4)$$

$[{}^{31}\text{P}]$  :  ${}^{31}\text{P}$ の原子数密度 (cm<sup>-3</sup>) ,  
 $[{}^{30}\text{Si}]$  :  ${}^{30}\text{Si}$ の原子数密度 (cm<sup>-3</sup>) ,  
 $\sigma_c$  :  ${}^{30}\text{Si}$ の中性子捕獲断面積 (cm<sup>2</sup>) ,  
 $\phi_{th}$  : 熱中性子束 (cm<sup>-2</sup>・s<sup>-1</sup>) ,  
 $t$  : 照射時間 (s) .

また、中性子照射により生成した ${}^{31}\text{P}$ の原子数密度とシリコン半導体の抵抗率との間には、以下の実験式が成り立つ<sup>4)</sup>。

$$\rho = 5 \times 10^{15} / [{}^{31}\text{P}] \quad \dots (3.1.5)$$

$[{}^{31}\text{P}]$  :  ${}^{31}\text{P}$ の原子数密度 (cm<sup>-3</sup>) ,  
 $\rho$  : 半導体の抵抗率 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ ) .

このように、NTD法では照射時間により製造する半導体の不純物密度、すなわち半導体の抵抗率を容易に変えることができる。

### 3. 1. 2 製造される半導体の特徴

一般的なSi半導体への不純物混入方法は、シリコン単結晶のウェハの表面から熱拡散的に不純物を混入するものである(以下、熱拡散法と記す)。熱拡散法では、製造する半導体の抵抗率は混入する不純物の量により決まるので、半導体の製造ラインにおいて、ある特定の抵抗率の半導体を少量製造するのは経済性の面からは望ましいことではない。NTD法では、(3.1.4)及び(3.1.5)式により、照射量が多い場合には、不純物である ${}^{31}\text{P}$ の数が増えるので、半導体の抵抗率は小さく、逆に照射量が少ない場合には、生成する ${}^{31}\text{P}$ の数が少ないので、半導体の抵抗率は大きい。このようにNTD法では、照射量により半導体の抵抗率を容易に変えることができるので、ある特定の抵抗率の半導体を少量だけ製造する場合に適している。

熱拡散法においては不純物の偏析により、ウェハ内の不純物の分布が不均一になり、半導体の抵抗率の分布に差異が生じる。NTD法では、シリコン単結晶インゴットに均一に中性子が照射されれば、均一な抵抗率分布の結晶インゴットを製造することが可能であり、このインゴットをスライスすることにより均一な抵抗率分布のウェハが得られる。実際には、炉内中性子の空間分布等により、完全な均一照射は不可能であるが、熱拡散法に比べて半導体中の不純物分布の均一性はかなり高い。結晶塊の径方向の断面内における抵抗率の差異は、熱拡散法で約12~13%、NTD法で約3%が現状である<sup>4)</sup>。

### 3. 1. 3 NTD法による半導体製造工程

NTD法によるn型シリコン半導体製造工程の概要を以下に示す。

#### (1) 高純度単結晶シリコンインゴットの製造<sup>4), 5)</sup>

半導体材料として使用されるシリコンは単結晶シリコンであるが、天然の材料であ

る  $\text{SiO}_2$  (二酸化ケイ素) から単結晶シリコンを製造するには、金属シリコン、多結晶シリコン、単結晶シリコンという段階を経なくてはならない。

金属シリコンは  $\text{SiO}_2$  を電気分解して製造するが、金属シリコンを 1 kg 製造するのに 13000 kWh もの多量の電力が必要とされるので、金属シリコンは電力の安い海外からの輸入に 100 % 依存している。全世界での金属シリコンの生産量はおよそ 1 万トン/年であり、価格は約 300 円/kg である。

半導体材料として使用されるシリコンには、99.999999999 % もの非常に高い純度が要求される。金属シリコンの純度は約 98 % であるので、より高純度なシリコンを精製する必要がある。そのために、金属シリコンを気化させ高純度な多結晶シリコンを析出させている。1 kg の多結晶シリコンを作るのに 400 kWh の電力を必要とし、価格はおよそ 1 万円/kg である。多結晶シリコンの供給は国内加工と輸入の物が半々である。

中性子照射により単結晶シリコンインゴット中に不純物を生成させる場合、インゴット内の不純物分布の均一性を高めるため、あるいは、シリコン以外の物質が中性子を吸収して残留放射能を生じないように、高純度な単結晶が必要とされる。一般に半導体材料として多結晶シリコンから単結晶シリコンを製造する方法としては、CZ (Czochralski: 引き上げ) 法と FZ (Floating zone: 浮融帯) 法が採用されている。CZ 法は、多結晶シリコンを石英るつぼで加熱溶融し種結晶をつけて引き上げる方法である。この方法では、石英るつぼに含まれる不純物がシリコン融液に溶け出すため、NTD 用の高純度単結晶の製造には不向きである。しかし、磁場をかけながら種結晶を引き上げる MCZ (Magnetic-field-applied Czochralski) 法では、磁場の作用で溶融シリコンの対流を抑えることができるので石英るつぼから混入する不純物が少なく、CZ 法よりも高純度な単結晶を製造することができる。FZ 法は、多結晶シリコンロッドを垂直に保持し、一端から高周波加熱により溶融し、高周波コイルを移動することにより単結晶を得る方法である。FZ 法では、CZ 法や MCZ 法のように石英るつぼを用いないので、より高純度の単結晶を製造することができる。これらの方法で製造できる単結晶シリコンの最大抵抗率は、CZ 法で  $50(\Omega \cdot \text{cm})$  程度、MCZ 法で最大  $500(\Omega \cdot \text{cm})$  程度、FZ 法で  $2000(\Omega \cdot \text{cm})$  程度であり、MCZ 法や FZ 法で作られた単結晶が NTD に用いられている。MCZ 法は CZ 法の一つであり、磁場をかけてもやはり石英るつぼからの不純物の混入があるので、FZ 法ほど高純度の単結晶は得られない。また、CZ 法では製造する単結晶インゴットの径の大型化が容易で、現在、最大 8 インチ (1 インチ = 2.54 cm) 程度の径のインゴットの製造が可能であるが、FZ 法では高周波コイルの大型化が困難であり、現在、6 インチの径の物が最大である。単結晶シリコンはほとんどが国内で製造されたものであり、価格はおよそ 8 ~ 9 万円/kg である。

## (2) 中性子照射による不純物生成

NTD 法では、母材であるシリコン原子の中で中性子照射により核変換したものを不純物とするので、不純物分布の均一性が高い半導体を得るためには、インゴットに

対し熱中性子照射量が均一になるように照射を行う必要がある。また、抵抗率の大きな高純度単結晶に中性子を照射して不純物を生成させ抵抗率を下げていくので、目標とする抵抗率が小さいものほど必要とする中性子照射量が多い。Table 3.1.1<sup>4)</sup> は(3.1.4)式及び(3.1.5)式を用いて、中性子照射量が照射時間とともに増えることにより照射後抵抗率がどのように下がっていくかを示したものである<sup>4)</sup>。NTD法では一般的に50~300( $\Omega \cdot \text{cm}$ )程度の抵抗率のシリコン半導体の製造が行われており、 $1.0 \times 10^{13}$  ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )の中性子束で照射した場合、必要な照射時間は10~20時間程度で十分である。この時間は、研究炉で一般に行われている材料照射試験と比べるとかなり短い。

### (3) 熱処理(焼きなまし)<sup>4)</sup>

中性子照射により不純物を生成した単結晶シリコンは、原子炉内の中性子や $\gamma$ 線により損傷を受け、原子の配列が正規の結晶構造と異なった格子欠陥を生じている。このため、半導体素子として使用するためには焼きなまし(アニーリング)をして、格子欠陥を回復する必要がある。また、格子位置にある原子に高エネルギー中性子が当たると、中性子により格子からはじき出された原子が更に他の原子を格子からはじき出す2次反応が生じるので、熱中性子の割合が多い炉心で照射した方が格子欠陥が少なく、低温で短時間のアニーリングで格子欠陥が回復する。炉心のこの熱中性子の割合を表す尺度として、一般にカドミ比( $(\text{熱中性子数} + \text{高速中性子数}) / \text{高速中性子数}$ )が用いられる。カドミ比が大きな炉心ほど、炉内の熱中性子の割合が多い。

### (4) スライス

アニール後の円柱状インゴットを円柱の中心軸に垂直な方向にスライスして円盤状のウェハーを製造する。一般的な半導体素子はこのウェハーを更に小さくして使用するが、大電力用の大容量素子ではこのままの大きさで使用する。NTD法では均一性の高い不純物分布が達成できるので、大径のインゴットを使用し、1枚のウェハーから大量の素子を取るように、あるいは、大電力用の大容量ウェハーが製造できるようにしている。

## 3.2 生産量から見たNTD法の現状<sup>4)</sup>

NTD法によりシリコン半導体を最初に実用規模で生産したのはトップシル社で、1974年にデンマークのリゼ研究所の原子炉を利用して始められた。その後、世界各国の原子炉でシリコン照射が開始され、その製造の需要は世界全体で年間約180トン(1992年)であり、このうち日本の需要が約70%を占めている。Table 3.2.1<sup>6)</sup> に世界においてシリコン照射を行っている代表的な原子炉を示す。この他にもロシア、カナダ、ブラジル、ノルウェー、ポーランド、チェコ、オーストリア、スイス、中国、オーストラリア、インドネシア等の国々でもシリコン照射を行っている。生産量のイ

インゴットの径別の内訳は、3インチが29%、4インチが46%、5インチが26%である。結晶製造技術の面ではより大径化は可能であるが、既存の照射場の大きさの制限により、3、4、5インチのインゴットの照射が主体となっているのが現状である。また、日本においては現在、原研の研究炉のみでシリコン照射が行われており、JRR-2及びJRR-4により併せて年間約2トンの照射を行っている。JRR-2においては3インチ、JRR-4においては2.5インチと4インチのインゴットの照射を行っている。インゴットの径については、大電力に対応した素子の大容量化の要求から、大型化の傾向にあり、JRR-3Mにおいては5インチの径のインゴットの照射を準備中である。

### 3.3 原研の研究炉における実績

日本では現在、原研の研究炉JRR-4及びJRR-2によってシリコン照射が行われている。JRR-4、JRR-2における炉の分野別利用状況をFig. 3.3.1<sup>7)</sup>に、また、JRR-4及びJRR-2の炉心の特徴をTable 3.3.1<sup>3), 8)</sup>に示す。JRR-4は軽水減速冷却であるが、JRR-2は重水減速冷却である。一般に軽水炉と重水炉では、重水炉の方がカドミ比（熱中性子の割合）が大きく、照射による格子欠陥の発生が少ないので、アニーリングも低い温度で短時間で済む。また、JRR-4は6時間単位のデイリー運転であるのに対しJRR-2は12日単位のサイクル運転であるため、炉全体の処理量は、JRR-2はJRR-4の約5倍である。

#### 3.3.1 照射方法の概要

NTD法によるシリコン半導体製造において重要なことは、インゴット全体における抵抗率の均一性が高いこと、任意の抵抗率の半導体を製造できることである。言い換えれば、インゴット全体に対する中性子照射の均一性が高いこと、照射量を精度良く任意に変えることができることである。JRR-4やJRR-2でこれをどのように実現しているかについて述べる。

##### (1) 照射孔の特徴

原研では1975年シリコンメーカーの依頼によりNTDシリコンの製造に関する照射実験を開始し、1976年にJRR-4に大型試料用のD照射孔が設置され、1977年から（財）放射線照射振興協会によって実用照射が開始された。続いて、より大径のインゴットを照射するために、JRR-4にL照射孔を設置して1977年から実用照射を開始した。また、照射損傷による格子欠陥を抑えるため、重水炉であるJRR-2のVT-9照射孔で1983年から実用照射が開始された<sup>4)</sup>。

JRR-4における照射孔の位置をFig. 3.3.2<sup>8)</sup>に、JRR-2における照射孔の位置をFig. 3.3.3<sup>8)</sup>に示す。また、各照射孔の特徴をTable 3.3.2<sup>4)</sup>に示す。JRR-4 D照射孔では2.5インチ、L照射孔では4インチ、JRR-2 VT-9照射

孔では3インチのシリコンインゴットの照射が行われている。また、重水炉であるJRR-2は軽水炉のJRR-4に比べてカドミ比（熱中性子の割合）がかなり大きい。

## （2）試料の装荷方法

JRR-4やJRR-2では、シリコンインゴットを中性子吸収の少ないアルミニウムの容器に入れ、照射孔内に装荷している。アルミニウムの熱中性子吸収断面積は約0.23bであり、この値はシリコンのほぼ二倍（天然に存在するシリコンの同位体存在比で平均した熱中性子吸収断面積は約0.1b）であるが、炉内構造材や一般的な照射キャプセル等に使用されているステンレス鋼と比べると10分の1程度とかなり小さい。このため、容器に吸収される中性子が少なく炉内中性子を有効に利用することができる。

JRR-4及びJRR-2で行われている照射孔へのシリコンインゴット装荷形式をFigs. 3.3.4<sup>4)</sup>, 3.3.5<sup>4)</sup>に示す。JRR-4では照射孔上部からアルミニウム容器に入れたインゴットをチェーンで吊り下げ、必要とする中性子線量を照射後、炉内から引き上げ他のインゴットと交換している。なお、Fig. 3.3.4はJRR-4 D照射孔のものであるが、L照射孔も同様の形態である。JRR-2ではキャスク内に最大15本のインゴットを収容し、連続照射を行っている。この方法は、ターレットホルダーによりインゴットを円形に配置し、1番目のインゴットをホルダーから照射孔に挿入し、照射終了後そのインゴットを照射孔から引き上げてホルダーに移し、ホルダーを回転させ2番目のインゴットを照射孔の近くに移動させるものである。この方法ではインゴットの連続照射による炉内中性子の有効利用ができるが、機構が複雑であるので、その分故障の確率が高い。一方、JRR-4の方法は試料の交換に手間がかかるが、シンプルな方法なので確実性は高い。

## （3）残留放射能の減衰

目標とする中性子照射量に達した後、JRR-2ではキャスク内において、JRR-4では原子炉プール内において2、3日～1週間程度の冷却を行って、生成させた $^{31}\text{Si}$ の放射能を減衰させてから炉外へ取り出している。NTD法に使用するシリコンインゴットは純度が高く、インゴット中に含まれるSi以外の物質の中性子照射による放射化の影響は無視できるので、照射量があまり多くない場合、照射後の放射能は主に $^{31}\text{Si}$ の $\beta^-$ 崩壊に起因するものである。この場合、 $^{31}\text{Si}$ は2.62時間の短い半減期で安定な $^{31}\text{P}$ になるので数日間の冷却で放射能は十分に減衰する。照射量が多い場合には、この $^{31}\text{P}$ の中性子捕獲反応により $^{32}\text{P}$ が多数生成する。 $^{32}\text{P}$ は $\beta^-$ 崩壊して安定な $^{32}\text{S}$ となるが、その半減期が14.3日と比較的長いために、放射能の減衰にはかなりの期間を要する。従って、NTD法によりシリコン半導体を製造する場合には、この $^{32}\text{P}$ があまり生成しないよう照射量が制限されるので、抵抗率が小さな半導体の製造には適していない。

### 3. 3. 2 JRR-4及びJRR-2における照射技術

NTD法によるシリコン半導体製造において、最も重要な課題は、シリコン単結晶のインゴットにおいて、径方向、軸方向における抵抗率の分布の均一性が高いこと、言い換えれば、径方向、軸方向に均一に中性子を照射することである。シリコンインゴット内における抵抗率の均一性を(最大抵抗率-最小抵抗率)/(最小抵抗率) $\times 100$ (%)で評価すると(以降、このレポートではこれを抵抗率不均一度と言う)、商用生産においては同一抵抗率の素子の大量生産のため、径方向には3%以下、軸方向には10%以下程度に抑えることが要求される<sup>4)</sup>。JRR-2及びJRR-4における均一な抵抗率分布を得るための技術、照射量制御の方法を以下に記す。

#### (1) 径方向の抵抗率の均一化<sup>4)</sup>

炉心内の中性子束の分布は不均一であるので、JRR-2やJRR-4では中性子照射量を円柱状インゴットの径方向に均一にするために、照射中にインゴットを回転させている。シリコンは熱中性子吸収断面積が非常に小さく、インゴット内では中性子束の低下は小さいが、照射中にインゴットを回転させない場合には、JRR-2 VT-9、JRR-4 D, L照射孔においていずれも径方向の抵抗率不均一度は20%以上である。しかし、照射中にインゴットを回転させることにより径方向の中性子照射量の均一性を高めることができ、抵抗率不均一度を2%以内に抑えることが可能である。抵抗率分布を左右するものとしては、照射中性子のエネルギー・空間・時間分布、減速材や冷却材の中性子に関する特性、インゴットを入れる容器の材質、インゴットの回転速度等が挙げられる。

#### (2) 軸方向の抵抗率の均一化<sup>4), 6)</sup>

炉内中性子の空間分布の勾配により、インゴット内における軸方向の抵抗率の分布には差異が生じる。このため世界の各炉で、軸方向の抵抗率の均一性を高めるために以下の方法が採用されている。

① フィルターを用いて中性子束を平坦化する方法

② 照射位置を変える方法

③ 一定速度で移動させる方法

①のフィルターを用いる方法は、中性子束が高い所のインゴットの周囲にステンレス鋼、ニッケル、チタン等の中性子吸収材を置き、インゴットの全長にわたり中性子を均一に照射するものである。この方法では、中性子束の高い所を抑えるため、中性子損失が大きく、また、炉の運転状態により中性子束分布が変化するので、フィルターの形状、寸法等の最適化を図る必要がある。

②の照射位置を変える方法では、中性子照射量が目標値の半分となったところで、2分割したインゴットの上下を入れ換える方法、あるいは、上下の位置は変えずに各々の上下を反転させる方法がある。この方法では反転操作を行うスペースの確保が必要である。

③のインゴットを一定速度で移動させる方法は、インゴットを回転させながら一定速度で照射孔内を通過させる方法であり、原理的には中性子束の時間的な変動が無ければ、完全な均一性が得られるものである。この方法は①や②の方法に比べて複雑な機構が必要である。

主に、①の方法はデンマークのリゼ研究所のDR-3及びフランスの各炉で、②の方法はアメリカのミズリー大学のMURR及び原研のJRR-4で、③の方法は、スウェーデンのステドヴックのR-2で採用されている。これらの方法はそれぞれ長所短所があり、どの方法が最も良いかということは一概には言えない。また、JRR-4によるテストでは、①、②の両方法において、軸方向の抵抗率不均一度は5%以内に抑えられている。

### (3) 照射量制御

単結晶シリコンは、1 kgあたりおよそ8～9万円と非常に高価であるため、希望する抵抗率の半導体を製造するためには、中性子照射量の精密な制御が必要である。JRR-4やJRR-2では、中性子照射量の測定にSPND（自己出力型中性子検出器）を使用している。典型的なSPNDはインコネル等のさやとその中に収められるエミッタ、コレクタ、絶縁材により構成される。SPNDでは、エミッタが中性子を吸収した後、 $\beta^-$ 崩壊により放出される $\beta^-$ 線をコレクタで集めて電流として直接測定することにより中性子量を決めている。エミッタには、中性子に対する感度が良く、中性子束の変動に対する応答が早い物質として、ロジウムやバナジウムが使用されている。これらは、中性子吸収断面積が比較的大きく、かつ中性子を吸収して生成する核種の $\beta^-$ 崩壊の半減期が短い物質である。また、コレクタには通常、高純度ステンレス鋼やインコネルが使用され、エミッタとコレクタの間の空間は、酸化マグネシウムや酸化アルミニウムの絶縁物で満たされている<sup>9)</sup>。装荷するインゴットの寸法により中性子束は異なるので、試料にSPNDを取りつけて、その出力の積算値とインゴットの形状から統計データにより、目標とする抵抗率に対応する照射量を決めている。また、統計的データの蓄積のため、モニターとして金やアルミニウム等の放射化箔をインゴットに取り付けて同時に照射している。

## 3. 4 NTD法のこれまでの課題

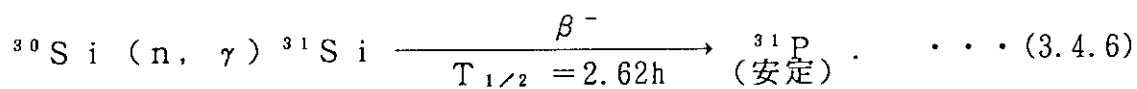
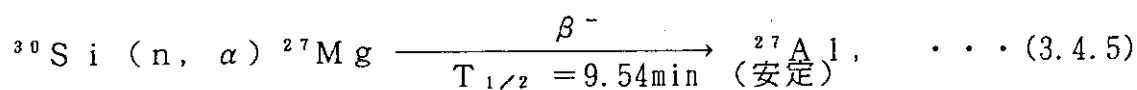
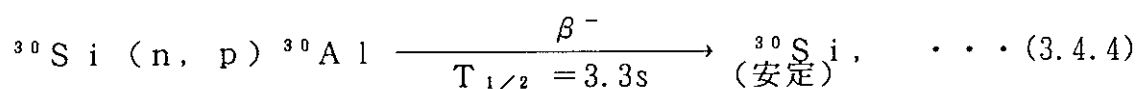
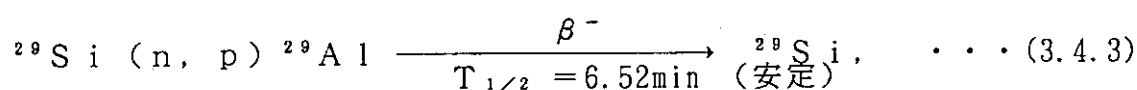
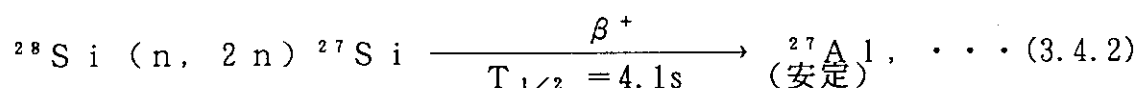
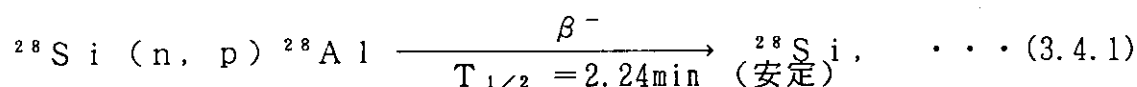
### 3. 4. 1 照射場の大きさの制限

近年、シリコン単結晶製造技術の発達により、大径の高純度シリコン単結晶の製造も可能になってきたが、照射場の大きさの制限により、大径のインゴットの照射ができないのが現状である。このため現在はインゴットの径は3～5インチが主体であるがさらに大径のインゴットの照射が行える照射場の要求が高まっている<sup>4)</sup>。

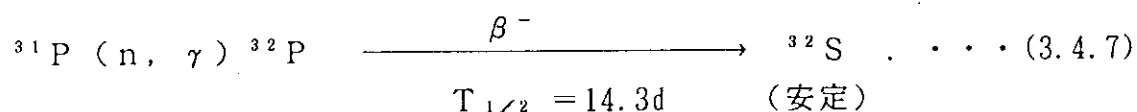
## 3. 4. 2 照射量の制限

## (1) 生成放射能による制限

天然に存在するシリコン中には安定な同位体として、 $^{28}\text{Si}$ 、 $^{29}\text{Si}$ 、 $^{30}\text{Si}$ が存在する。このことから、原子炉で中性子照射により単結晶シリコン中に不純物が生成する場合、中性子により放射性同位元素が生成する主な核反応は以下のものである<sup>4)</sup>。



式中の $T_{1/2}$ は半減期である。(3.4.1)～(3.4.5)式の反応は高エネルギー中性子によって起こるため、熱中性子炉を用いた場合にはその反応率は非常に小さく、また、各々の半減期も非常に短いので、これらの反応によって生成する放射能は重要な問題ではない。また、(3.4.6)式はシリコン中に不純物を生成させる主反応であるが、 $^{31}\text{Si}$ の半減期は2.62hと比較的短いので数日で十分に放射能は減衰する。以上のことから、放射能の面で問題になるのは、(3.4.6)式により生成した $^{31}\text{P}$ の以下の核反応により生成する $^{32}\text{P}$ による放射能である。



$^{32}\text{P}$ が放出する $\beta^-$ 線のエネルギーは1.71MeVと高いので、半導体素子として扱うには放射能を十分に減衰させる必要がある。しかし、 $^{32}\text{P}$ は半減期が約14日と長いので



で、放射能の減衰にはかなりの期間を要する。照射量が多い場合この $^{32}\text{P}$ の放射能が問題となるので、NTD法は抵抗率の小さなシリコン半導体の製造には適していない。NTD法によるSi半導体製造において、 $^{31}\text{P}$ があまり生成しないうちに照射を止めれば、この $^{32}\text{P}$ の放射能の問題は避けることができる。この場合、 $^{31}\text{Si}$ が $\beta^-$ 崩壊して $^{31}\text{P}$ になる半減期は2.62時間なので、そのための照射時間の目安は、数時間のオーダーであると考えられる。

## (2) 照射損傷による制限

中性子照射により不純物を生成した半導体材料は、中性子や $\gamma$ 線により損傷を受け原子の配列が正規の結晶構造とは異なる格子欠陥が生じている。このため、半導体素子として使用するためには、照射後、熱処理(アニーリング)により原子の配列を正規の状態に戻す必要がある。照射量が多いほど格子欠陥の割合は大きく、アニーリングに必要な温度や時間も増大する。このため、照射量をあまり多くすることは得策ではなく、このことも抵抗率の小さな半導体の製造に適していない一因である。

Table 3.1.1 Resistivity of a single-crystal Si semiconductor  
as a function of thermal neutron flux<sup>4)</sup>.

照射時間 (h)	熱中性子照射量 (n/cm <sup>2</sup> )	照射後抵抗率 (Ω · cm)
4.0	$1.5 \times 10^{17}$	200
5.4	$2.0 \times 10^{17}$	150
8.2	$2.9 \times 10^{17}$	100
16.3	$5.9 \times 10^{17}$	50

注) 照射熱中性子束を $1.0 \times 10^{13}$  (n/cm<sup>2</sup> · s)、照射前の抵抗率を  
照射後の抵抗率と比較して非常に大きいとして計算

Table 3.2.1 Key specification of nuclear reactors as utilized for Si-semiconductor production<sup>6)</sup>.

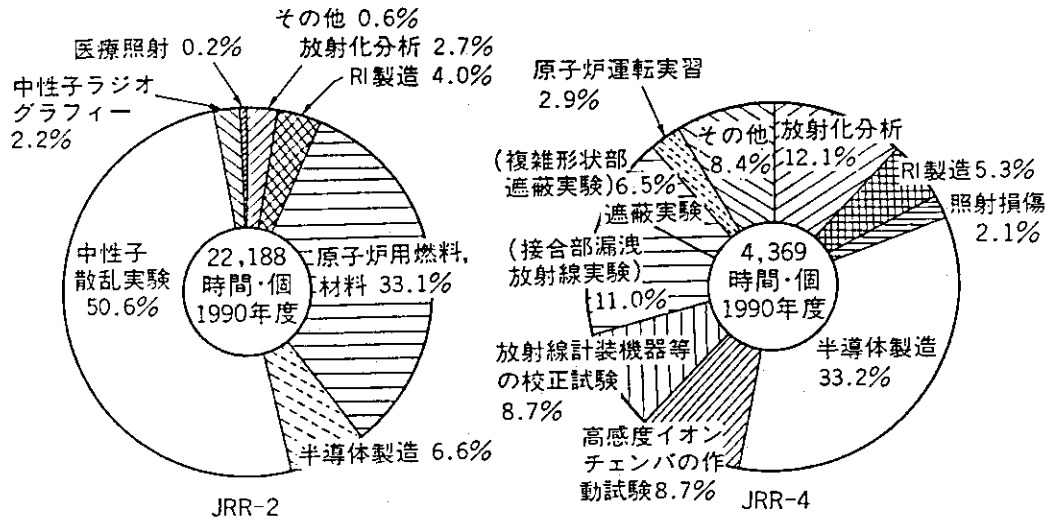
国	研究所	原子炉	減速材	炉出力 (MWt)
デンマーク	RISÖ	DR-3	D <sub>2</sub> O	10
スウェーデン	Studsvik	R-2	H <sub>2</sub> O	50
フランス	Saclay	OSIRIS	H <sub>2</sub> O	70
フランス	Saclay	ORPHEE	D <sub>2</sub> O	14
フランス	Grenoble	SILOE	H <sub>2</sub> O	30
米国	Missouri Univ.	MURR	H <sub>2</sub> O	10
日本	JAERI	JRR-4	H <sub>2</sub> O	3.5
日本	JAERI	JRR-2	D <sub>2</sub> O	10

Table 3.3.1 Major specification of JRR-2 and JRR-4 cores<sup>3), 8)</sup>.

項目	原子炉	JRR-2	JRR-4
型式		濃縮ウラン重水減速冷却 タンク型 (CP-5型)	濃縮ウラン軽水減速冷却 スイミングプール型
最大熱出力 (MW)		10	3.5
最大熱中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ )		$2 \times 10^{14}$	$7 \times 10^{13}$
最大高速中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ )		$6 \times 10^{13}$	$2 \times 10^{13}$
運転形態		12日連続サイクル運転	デイリー運転 6時間/日

Table 3.3.2 Key parameters of Si irradiation holes in JRR-2 and JRR-4<sup>4)</sup>.

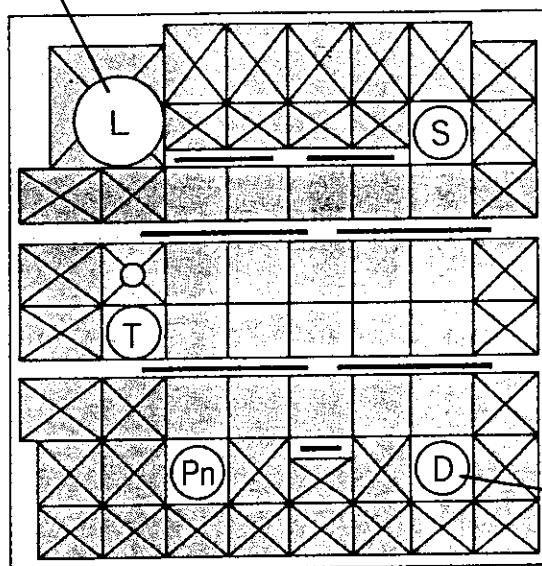
項目	照射場	JRR-4	
		D照射孔	L照射孔
	JRR-2 VT-9照射孔		
照射孔の内径 (mm)	88	74	118
熱中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ )	$2.5 \times 10^{13}$	$6 \times 10^{13}$	$2 \times 10^{13}$
カドミ比	200~250	7~10	7~10
最大試料寸法 (mm)	$79 \phi \times 310L$	$65 \phi \times 300L$	$100 \phi \times 300L$



注) "時間・個" は、当該年度における各々のキャプセルの照射時間とその数との積の総和を表す。

Fig. 3.3.1 Recent status of research activities by utilizing JRR-2 and JRR-4<sup>7)</sup>.

シリコン照射 (4インチサイズ)

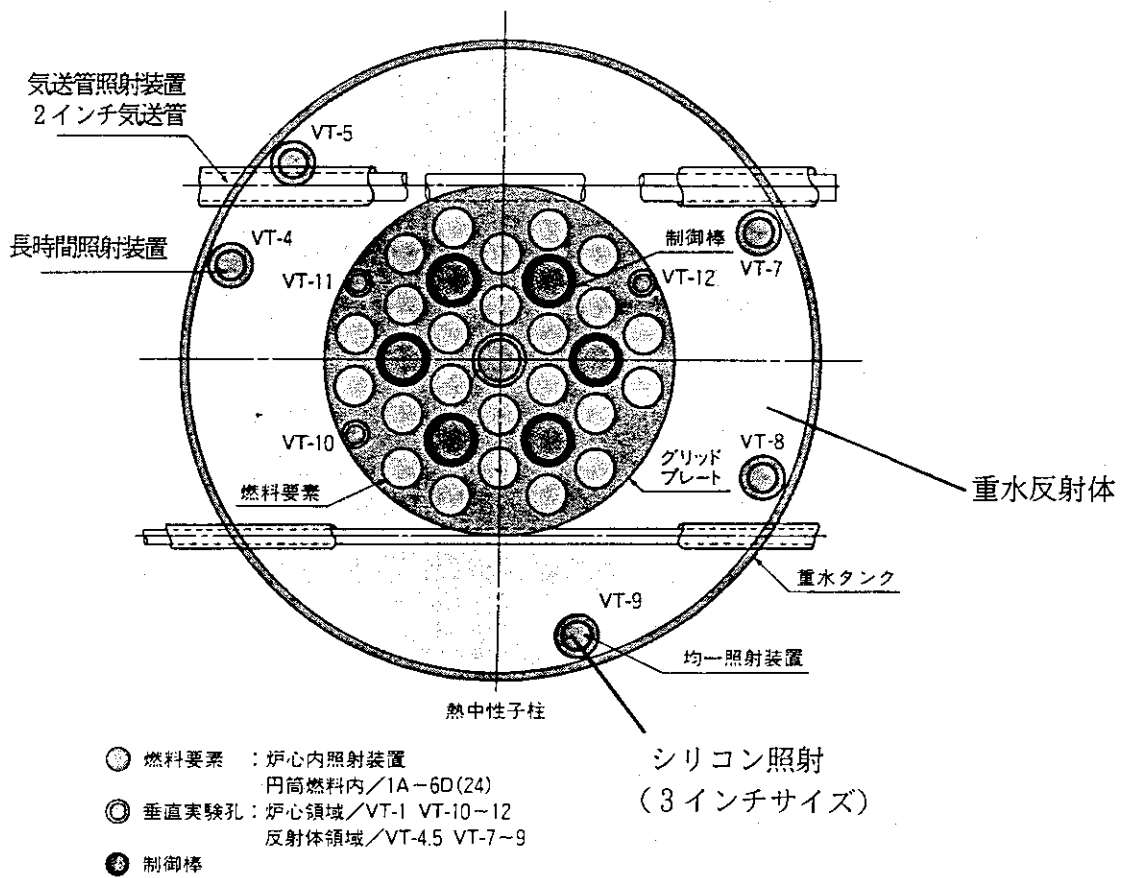


シリコン照射  
(2.5インチサイズ)

- 燃料要素
- ⊗ 反射体要素 (黒鉛)
- 制御棒
- 照射孔
- S : S照射孔
- D : D照射孔
- T : T照射孔
- L : L照射孔
- Pn : 気送管

	D照射孔	L照射孔
照射孔の内径 (mm)	74	118
熱中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ )	$6 \times 10^{13}$	$2 \times 10^{13}$
カドミ比	7~10	7~10
最大試料寸法 (mm)	$65 \phi \times 300 L$	$100 \phi \times 300 L$

Fig. 3.3.2 JRR-4 core configuration<sup>8)</sup>.



	VT-9 照射孔
照射孔の内径 (mm)	88
熱中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ )	$2.5 \times 10^{13}$
カドミ比	200~250
最大試料寸法 (mm)	79φ × 310L

Fig. 3.3.3 JRR-2 core configuration<sup>8)</sup>.



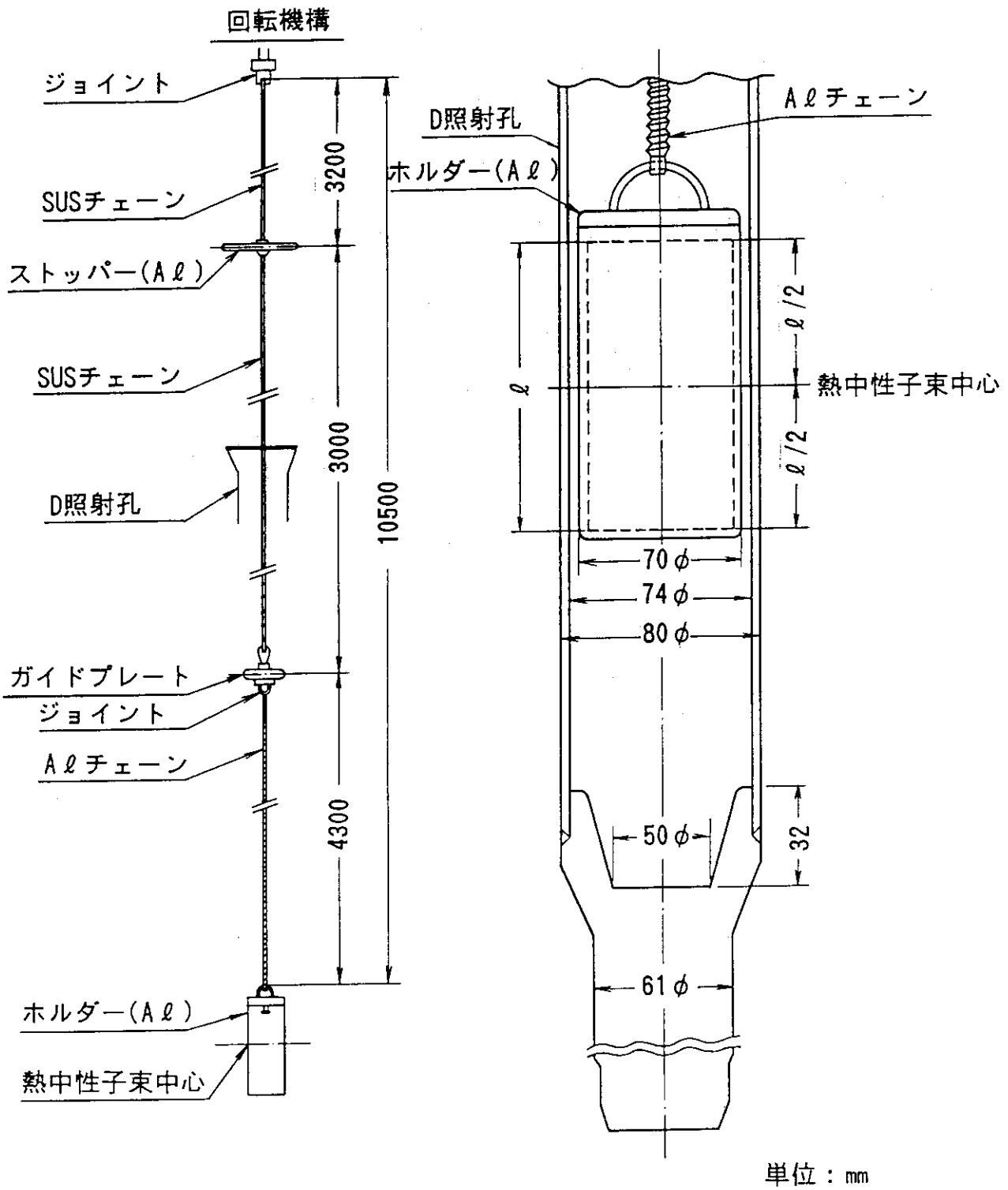


Fig. 3.3.4 Diagram of D-Irradiation pipe in JRR-4<sup>1)</sup>.

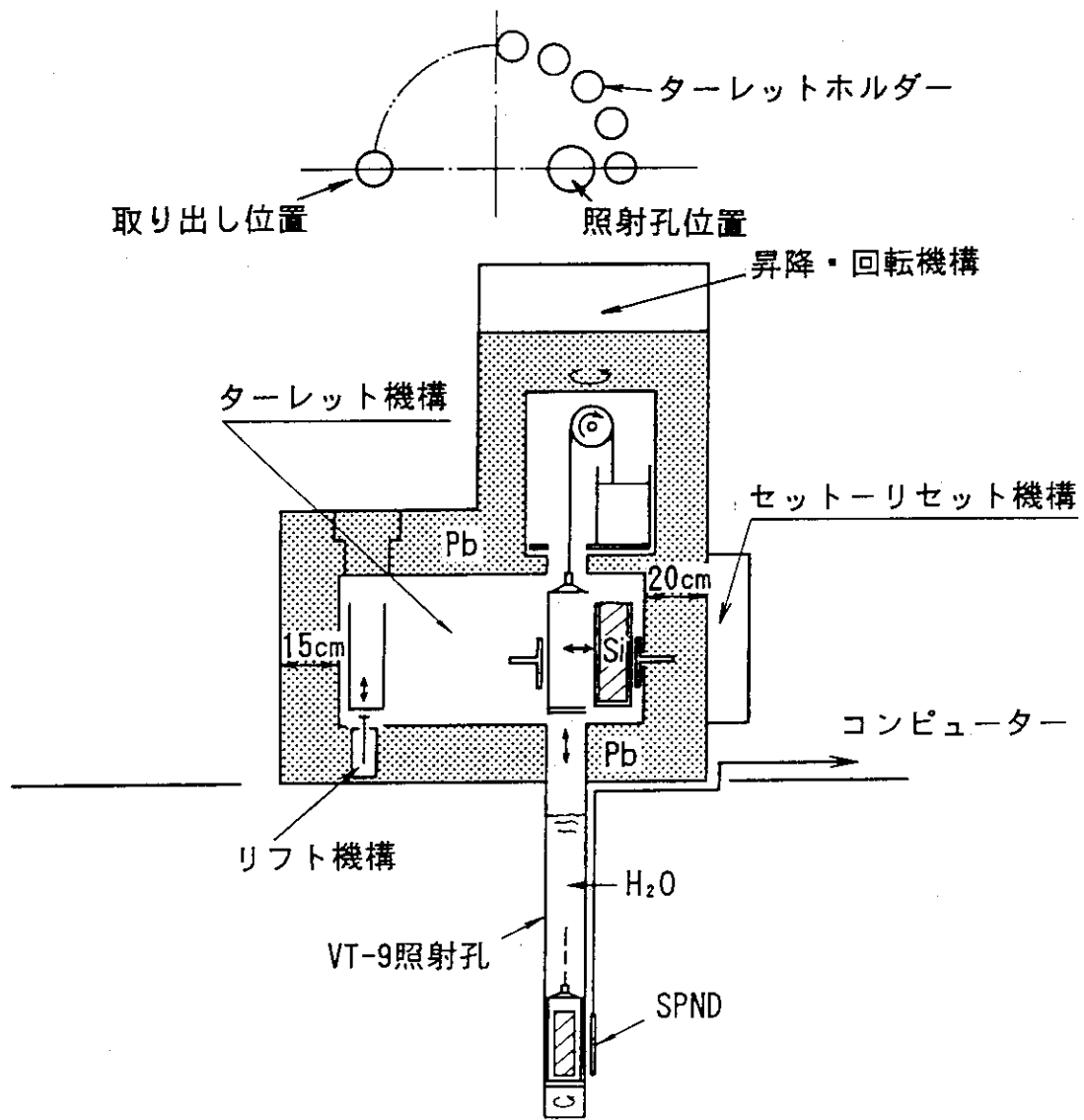


Fig. 3.3.5 Silicon irradiation facility in JRR-2<sup>2)</sup>.

## 4. NTD法による高温高性能半導体の製造可能性

H T T Rを用いた高温工学に関する先端的基礎研究の一つとして、高温環境下で使用可能な高性能半導体を中性子照射により製造する方法の研究が提案されている。具体的には、S i C<sup>\*</sup>)、立方晶窒化硼素、ダイヤモンドに中性子を照射して、核変換により結晶内部に不純物を生成するというものである。しかし、立方晶窒化硼素、ダイヤモンドに関しては結晶成長技術が未発達なため、電子素子としての実用化の見通しは立っていない。ここでは近未来的に実用可能な高温用半導体材料としてS i Cに着目し、現在実用化されている耐熱半導体素子であるG a A sと高温性能を比較する。また、S i Cへの中性子照射による不純物生成法の有用性について調べる。

\* ) S i Cには結晶構造の違いにより、立方晶S i Cと六方晶S i Cが存在するが、本レポートにおいて特に区別する必要がない場合には、S i Cとは立方晶S i Cのことを表すものとする。

### 4. 1 半導体の性能の比較と実現性の検討

半導体素子の耐熱性を決める支配的な物性値は電子軌道のエネルギーバンド構造における禁制帯幅の大きさである。高温時には電子が充満帯から伝導帯に熱励起し電子と正孔が発生するので、半導体の不純物濃度で決められたキャリア（電子又は正孔）の数が増加する。さらに高温になると熱励起によるキャリアが主体となり、p型やn型といった伝導型の区別がつかなくなるので（真性半導体領域）、整流作用やトランジスタ作用が不可能となる。このように、温度上昇に伴い充満帯から伝導帯へ熱励起する電子の数は増加し、同数の正孔が充満帯の中に発生することになる。不純物を混入していない半導体材料中において、この熱励起によるキャリアのエネルギー分布はフェルミ・ディラックの分布関数に従うので、キャリアの数密度 $n_i$ は温度 $T$ に対して次式で表す挙動を示す<sup>10)</sup>。

$$n_i \propto T^{3/2} \exp(-E_g/2kT) \quad \dots (4.1.1)$$

ここで $E_g$ は禁制帯幅の大きさである。不純物を混入していない場合、温度上昇によりキャリアの数密度が $10^{15}(\text{cm}^{-3})$ に達した場合に真性半導体状態になると仮定すると、禁制帯幅の大きさと真性半導体状態になる温度は、S iが1.1eVで約280℃、G a A sが1.5eVで約500℃、S i Cが2.2eVで約640℃であることが調べられている<sup>2)</sup>。このように、禁制帯幅が大きな半導体材料ほど電子の充満帯から伝導帯への熱励起が起こりにくいので、より高温での使用が可能である。しかし集積した半導体回路では、温度上昇による電気抵抗の低下が電流を増加させ、ジュール熱による半導体自身の温度上昇が素子の破壊を引き起こすので、半導体の使用可能な最高温度は上記の温度より低く、S iでは150℃程度と言われている<sup>2)</sup>。また、400℃におけるS i C

トランジスタの作動が、電子技術総合研究所で確認されている<sup>2)</sup>。このような、集積回路内で発生するジュール熱による素子の破壊は、熱伝導率が大きな半導体ほど起こりにくく、高集積化が可能である。以上のように、禁制帯幅や熱伝導率が大きな半導体素子ほど高温での使用が可能であり、熱伝導率が大きいほど高集積化が可能である。

また、禁制帯幅の大きさは耐放射線性を決める物性値の一つでもあり、禁制帯幅が大きい材料ほど放射線による電子の充満帯から伝導帯への励起は起こりにくいため、耐放射線性に優れた半導体となり得る<sup>2)</sup>。

電子素子としての実用性を考えた場合に、素子の高速性は重要な因子の一つである。演算素子やマイクロ波素子等の電子デバイスには高速性が要求されるが、その高速性を決める物性値の一つは、キャリア（電子又は正孔）の移動度である。半導体では、キャリアが電場  $E$  (V/m) による力を受けて平均的な移動速度  $v$  (m/s) を得るとき、

$$v = \mu E \quad \dots (4.1.2)$$

の関係が成り立つ。このときの係数  $\mu$  ( $\text{m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ ) をキャリアの移動度と言う<sup>11)</sup>。言い換えれば、移動度は単位電圧あたりの電子又は正孔の移動面積速度であり、移動度が大きな半導体材料ほど高速性に優れた素子となり得る。ただし、移動速度はあるところまでは電場の大きさに比例するが、電場が大きくなるとある一定値に近づくようになる（飽和領域）。このときの移動速度を飽和ドリフト速度といい、実際の電子デバイスではこの飽和領域で使用されることが多い。

立方晶 SiC について耐熱性、耐放射線性、高集積化の可能性、高速性に関する性能を調べるため、上述の物性値を Si、GaAs、六方晶 SiC 及びこれらの物性値が優れたその他の半導体材料と比較し、Table 4.1.1<sup>10), 12), 13), 14)</sup> に示す。これらの材料の中でも立方晶 SiC やダイヤモンドは禁制帯幅が大きく、更に熱伝導率も大きいので、耐熱性、耐放射線性に優れた材料であり、高集積化が可能である。一方、六方晶 SiC や GaAs は禁制帯幅が大きく耐熱性、耐放射線性に優れた材料であるが、熱伝導率が小さいので高集積化は期待できない。また、GaAs は電子移動度が Si の 4 倍以上であり高速性が期待される。飽和ドリフト速度を比較すると、Si では  $1 \times 10^5$  (m/s)、GaAs や立方晶 SiC は  $2 \times 10^5$  (m/s) と Si の 2 倍であり、実用条件下で GaAs や立方晶 SiC は高速性が期待される。Table 4.1.2<sup>13), 14)</sup> に、これらの材料の実用化の現状を示す。GaAs、アモルファスシリコンは既に実用化されているが、ダイヤモンドや立方晶並びに六方晶 SiC は、結晶の製造技術が発展途上であり実用化には至っていない。

以上より、立方晶並びに六方晶 SiC、ダイヤモンド、GaAs は Si に比べて耐熱性、耐放射線性に優れた半導体材料であると考えられる。中でも、立方晶並びに六方晶 SiC やダイヤモンドは耐熱性、耐放射線性に優れており、次世代の高性能半導体として期待されるが、大型の結晶の成長技術が確立されておらず、短期間での実用化は困難である。特にダイヤモンドは現時点では電子素子としての実用化の見通しは立っていない。また、六方晶 SiC は素子の高速性能に問題があり、実用化を考えた場合、全体的な性能としては高集積化も期待される立方晶 SiC の方に分があると考

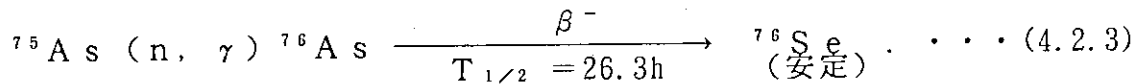
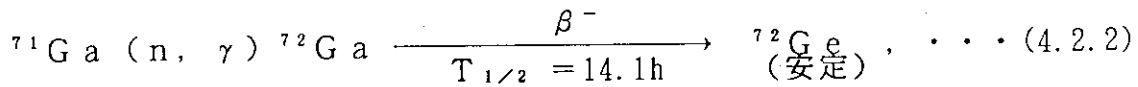
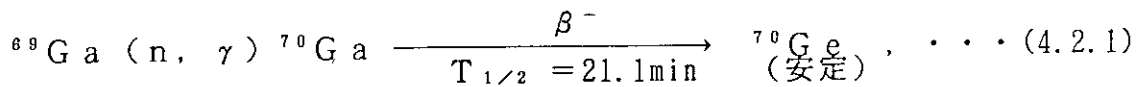
えられる。一方、GaAsは高速性が非常に優れており、耐熱性、耐放射線性も立方晶SiCやダイヤモンドに比べれば劣るものの、Siよりは優れている。また、GaAsは大型の結晶の成長技術も確立されている。

以下では、近未来的な実用性を重視し、高温高性能を有する半導体材料としてGaAs及び立方晶SiCに着目し、中性子照射により不純物生成を行う場合の利点、問題点について調べる。

#### 4.2 GaAs半導体製造の可能性

##### (1) 中性子照射による不純物生成の原理

天然に存在するGaの同位体存在比は、 $^{69}\text{Ga}$ が60.1%、 $^{71}\text{Ga}$ が39.9%である。また、Asについては、 $^{75}\text{As}$ が100%を占めている。このことから、GaAsに熱中性子を照射し不純物を生成する場合には、以下の核反応により生成する $^{70}\text{Ge}$ 、 $^{72}\text{Ge}$ 、 $^{76}\text{Se}$ が半導体中の不純物となる<sup>15)</sup>。



ここで、熱中性子(0.0253eV)に対する中性子捕獲断面積は、 $^{69}\text{Ga}$ が2.1b (1b =  $10^{-28}\text{m}^2$ )、 $^{71}\text{Ga}$ が5.1b、 $^{75}\text{As}$ が4.3bである。同位体存在比を考慮した天然のSiの熱中性子吸収断面積は約0.1bであるので、GaAsはSiに比べて10倍以上も熱中性子吸収断面積が大きい。これは、同一照射条件で比較した場合、GaAsはSiより核変換率が大きい、インゴット状の試料の照射においては、中性子束のインゴット内における低下の度合いがSiの場合と比べて激しいことを意味している。

##### (2) 伝導型

中性子照射によりSiインゴット中にPを生成させる方法では、PはSiより価電子が1つ多いので、Siに対してドナーであり、製造される半導体の伝導型はn型である。一方、GaAs中にNTD法により不純物を生成させる場合には、GaAsが2元素から構成されるため、伝導型はSiの場合と比べて少し複雑である。Gaは3族、Asは5族であり、中性子照射によって(4.2.1)～(4.2.3)式において生成されるGeは4族、Seは6族である。GeはGaに対してドナーであるがAsに対してはアクセプターである。また、SeはAsに対するドナーである。(4.2.1)、(4.2.

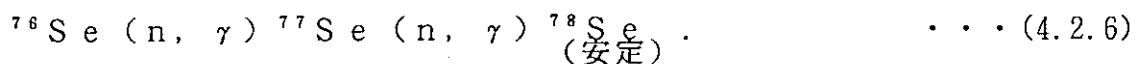
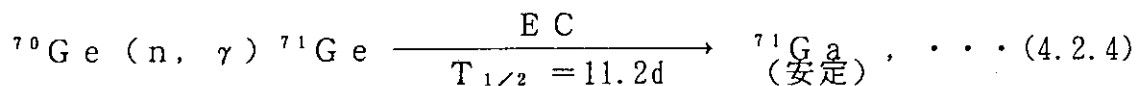
2)式における $^{69}\text{Ga}$ 、 $^{71}\text{Ga}$ の熱中性子に対する捕獲断面積を同位体存在比を考慮

して平均化すると、Gaの捕獲断面積は約3.3bである。一方、(4.2.3)式中の $^{75}\text{As}$ の捕獲断面積は4.3bであり、GaAsはGaとAsが1対1の割合で共有結合しているので、中性子照射によるGeの生成量とSeの生成量の間には大きな差異はない。母材であるGaAsに対してドナーとして働くのはGeとSeであるが、アクセプターとして働くのはGeだけである。従って、中性子照射により製造されるGaAs半導体はn型の伝導型の性質を示す。

### (3) 生成放射能

中性子照射によりSiインゴット中にPを生成させる場合には、不純物である $^{31}\text{P}$ が更に中性子を吸収して生成する $^{32}\text{P}$ の崩壊に伴う放射能の問題が生じ、抵抗率が小さい半導体の製造は困難である。ここでは、中性子照射によるGaAs中への不純物生成について、このような放射能の問題について検討する。

(4.2.1)～(4.2.3)式により生成した $^{70}\text{Ge}$ 、 $^{72}\text{Ge}$ 、 $^{76}\text{Se}$ は熱中性子照射により更に以下の核反応を起こす。



ここで熱中性子に対する中性子捕獲断面積は、 $^{70}\text{Ge}$ が3.4b、 $^{72}\text{Ge}$ が0.98b、 $^{76}\text{Se}$ が85b、 $^{77}\text{Se}$ が42bである。(4.2.4)式におけるECは軌道電子捕獲反応である。(4.2.5)式において、 $^{72}\text{Ge}$ の捕獲断面積は $^{76}\text{Se}$ 、 $^{77}\text{Se}$ と比べると非常に小さいので、 $^{73}\text{Ge}$ の生成率は小さく、これ以上の高次の反応は無視することができる。また、(4.2.6)式において、 $^{78}\text{Se}$ の捕獲断面積も0.4bと小さいので、これ以上の高次の反応は無視することができる。

(4.2.4)式における軌道電子捕獲反応は $\gamma$ 線の放射を伴い、その半減期が11.2日と長いので、Siの場合と同様に生成放射能に関しては問題があると考えられる。しかし、 $^{76}\text{Se}$ の熱中性子吸収断面積が $^{70}\text{Ge}$ の約25倍とかなり大きいので、中性子照射により $^{76}\text{Se}$ がある程度生成した場合には、中性子は主に $^{76}\text{Se}$ に吸収されるので、Siの場合に比べて生成放射能の問題は緩和される。

## 4.3 SiC半導体製造の可能性

### (1) 中性子照射による不純物生成の原理

SiC結晶はSi原子とC原子が1対1の割合で結合している。SiCに熱中性子を照射する場合を考えると、Cの熱中性子吸収断面積は0.004bであり、Siの同位体存在比あたりで平均した熱中性子吸収断面積は約0.10bであるので、Cの熱中性子吸収はSiのそれに比べて無視しうるほど小さい。したがって、SiCの中性子照射によって生成する不純物は、Siの場合と同じ核種であると考えられ、 $^{31}\text{P}$ が半導体の不純物となる。また、Cの熱中性子散乱断面積は4.8bとSiの1.7bの約3倍であり、かつSiCの分子あたりの熱中性子吸収断面積はSiの半分程度なので、SiCはSiに比べて熱中性子の吸収/散乱の比率がかなり小さく、Siより均一性の高い不純物分布が達成できると期待される。

### (2) 伝導型

SiCは基本的にはSi原子とC原子の共有結合であるので、不純物を混入していないSiC結晶は本質的に導電性を持たないはずである。しかし、実際には結晶成長時に、格子欠陥が発生したり大気中に含まれる窒素が混入したりするので、実際のSiC結晶は不純物を混入していてもn型半導体の性質を持っている。さらに、SiCへの中性子照射によって生成する不純物原子は、Siの場合と同じ $^{31}\text{P}$ が大半であると考えられるので、NTD法により得られるSiC半導体はn型の性質を示すと考えられる。

### (3) 生成放射能

SiCの場合、中性子照射により生成する新たな核種はSiの中性子吸収によるものなので、生成放射能に関して問題となるのはSiの場合と同様に、不純物である $^{31}\text{P}$ が中性子を吸収して生成する $^{32}\text{P}$ の $\beta^-$ 崩壊による放射能である。同じ体積のインゴットでは、SiCインゴットの中に含まれるSi原子の数はSiインゴットに比べて少ないので、照射量あたりの生成放射能もSiの場合に比べてかなり少ないと考えられる。

## 4.4 GaAs及びSiC半導体製造の有用性の検討

中性子照射による半導体の商用製造においてその重要な特徴の一つは、照射後のインゴット全体にわたって均一な抵抗率の分布が得られることである。そのためには、インゴット内の不純物分布の均一性が高くなるよう、インゴット内における中性子束分布の均一性が高いことが望ましい。

### (1) 板状試料内部における中性子ビームの減衰

中性子照射によりGaAs及びSiC中に不純物を生成する場合に得られる不純物分布の均一性を評価するために、Fig. 4.4.1に示すような板状の試料に片方の面から

面に垂直に中性子ビームを照射した場合の試料内部における中性子の減衰を調べた。この計算は、GaAs及びSiC内の中性子の減衰をSiの場合と比較することにより簡単に評価するために行った。板状試料を中性子ビームの方向に平行に微小セルに分割し、一つのセルに着目して、そのセル内における中性子ビームの減衰を考える。その際、ビームの進行方向をx方向とし、セル内の位置xにおける中性子数を $N(x)(\text{cm}^{-2})$ で表し、 $N(0)=N_0$ とする。

ここで、計算の簡略化のため以下の仮定を導入した。

- ・中性子エネルギーは熱中性子一群で考える。
- ・あるセル内で散乱した中性子は隣接するセルへ移るものとする。
- ・上記仮定により、散乱により着目しているセルから消失した中性子の分は、隣接する他のセルから飛来する中性子により補償されると考え、セル内における中性子の消失は吸収によるものだけとする。

以上の仮定に基づき、セル内の位置xにおける微小厚さdx内での吸収による中性子の消失は

$$-dN(x) = N(x) \Sigma_a dx, \quad \dots (4.4.1)$$

で表される。ここで、 $\Sigma_a$ は中性子吸収マクロ断面積である。 $N(0) = N_0$ の境界条件を用いてこれを積分すると、以下の式が得られる。

$$N(x) = N_0 \exp(-\Sigma_a x) \quad \dots (4.4.2)$$

GaAs、SiC及び比較のためSiについて(4.4.2)式を用いて試料内における中性子ビームの減衰を調べた。その際、中性子照射により製造されているSi半導体のインゴットの径は4~5インチが主体であることを考慮して、xの最大値は5cmとした。ただし、製造可能なSiCインゴットの最大径は現在のところ2インチ未満であるが、ここでは核的な特性を調べることを目的としているので、試料の大きさの現実性は考慮していない。結果をFig. 4.4.2に示す。SiCはSiに比べて吸収による中性子ビームの減衰の度合いは小さいが、GaAsはSiやSiCに比べて減衰の度合いは著しく大きい。以上より、SiCは中性子の吸収が弱く中性子照射により不純物分布の均一性の高い半導体を製造するのに適しているが、GaAsは中性子の吸収が強いため試料内の中性子分布の均一性は非常に悪くなり、中性子照射による半導体製造には適していないことがわかる。

## (2) 円柱状試料内部における中性子束分布

以上では、SiC、GaAs、Siについて板状試料の片方の面に垂直に中性子ビームを入射した場合の試料内のビームの減衰を評価したが、実際に商用生産を行う場合には円柱状試料を照射するので、試料の形状及び中性子の入射方向による影響を考慮しなくてはならない。以下では、中性子照射により不純物の均一性が高い半導体を製造できると考えられるSiCについて、円柱状試料内部における中性子束分布をSiと比較する。ここではSiC及びSiの円柱状試料について、中性子照射した場合のインゴット内の径方向における中性子分布を比較することを目的とし、Fig. 4.



4.3に示すようにインゴットの周から均等に中心軸方向に垂直に中性子を照射した場合について解析する。

$S_{iC}$ と $S_i$ は共に熱中性子吸収断面積が熱中性子散乱断面積に比べて無視できるほど小さいので、インゴット内の中性子束分布の計算には拡散近似を用いることができる。円柱座標 $(r, \theta, Z)$ における熱中性子エネルギー1群の定常状態での拡散方程式を以下に示す<sup>16)</sup>。

$$-D \nabla^2 \phi(r, \theta, Z) + \Sigma_a \phi(r, \theta, Z) = S(r, \theta, Z) \quad \dots (4.4.3)$$

ここで、 $D$ は拡散係数、 $\phi$ は熱中性子束、 $S$ は中性子源を表す。円柱状試料の周から中心軸方向に中性子照射した場合を考えると、試料内部では $S(r, \theta, Z) = 0$ であり、Fig. 4.4.2に示すような場合には、試料内部における中性子束の分布は $\theta$ 及び $Z$ に依存しないので、(4.4.3)式は以下のように書き換えることができる。

$$-D \nabla^2 \phi(r) + \Sigma_a \phi(r) = 0 \quad (r \neq R) \quad \dots (4.4.4)$$

ここで、 $R$ は円柱状試料の半径である。 $S_i$ 及び $S_{iC}$ について半径5 cmの円柱状インゴットを照射した場合を考え、入射中性子束を $\phi_0$ として、(4.4.4)式を $\phi(R) = \phi_0$ の境界条件を用いて解き、インゴット内の位置 $r$ における中性子束 $\phi(r)$ を $\phi_0$ で規格化した結果をFig. 4.4.4-(1)に、試料内の中性子束分布の不均一度を $(\phi_{MAX} - \phi(r)) / \phi_{MAX}$ で表した結果をFig. 4.4.4-(2)に示す。 $\phi_{MAX}$ は試料内における最大中性子束のことであり、この場合には $\phi_0$ に相当する。なお、解法の詳細は付録1に記す。円柱形状の場合であっても、 $S_{iC}$ は $S_i$ に比べて試料内における中性子束分布の均一性は高く、生成する不純物の分布の均一性も $S_{iC}$ の方が高くなると期待される。また、この計算で得られた試料内の中性子束分布の不均一度の最大値は $S_i$ の場合で約0.9%であり、JRR-2やJRR-4等で実際に得られている不均一度に比べるとかなり均一性が高い。これは、Fig. 4.4.3において中性子束が円柱状インゴットの周方向から均等に中心軸に向かって入射していると仮定したことに起因しており、実際には、中性子は様々な角度で入射し、なおかつ、周方向の分布も均等ではないからである。

Table 4.1.1 Electrical and thermal properties of typical semiconductor materials<sup>10), 12), 13), 14)</sup>

項目	半導体材料	Si	GaAs	立方晶 SiC	六方晶 SiC	ダイヤモンド	アモルファス シリコン
禁制帯幅(eV)		1.1	1.5	2.2	3.0	5.5	1.6~1.8
熱伝導率(W/m·K)		141	45.5	490	41.0	2000	141
電子移動度( $10^{-4} \text{m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ )		1900	8800	1000	462	2000	$10^{-1} \sim 10^{-2}$
正孔移動度( $10^{-4} \text{m}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ )		500	400	70	16	2100	$10^{-2} \sim 10^{-4}$

注) 数値は室温における値

Table 4.1.2 Present condition of typical semiconductor materials<sup>13), 14)</sup>.

材料	実用化の現状
Si	最も一般的に使用されている。高純度の結晶製造が可能であり、NTD法による不純物生成が実用化されている。
GaAs	実用化されているが、砒素の解離あるいは不純物元素の偏析により、融液から結晶を成長させる時に格子欠陥が発生し易く、成分の制御が必要である。このため、Siの場合に比べ複雑・高価な結晶成長設備を要する。
立方晶SiC	低温安定型の構造であるため、SiCの粒を高温で昇華させて種結晶上にSiC単結晶を成長させる昇華法を採用することができず、インゴット状の結晶の製造は難しい。近年、SiやCを含むガスを用いてSi基盤上に良質なSiC単結晶を製造させる方法が高度化したため、半導体材料として注目されているが、まだ基礎研究の段階である。
六方晶SiC	高温安定型の構造であるため、昇華法によりインゴット状の単結晶を製造することができるので、半導体材料としては立方晶SiCよりも研究開発は進んでいる。現時点では、 $\phi 30 \times L 13\text{mm}$ のインゴットの製造が可能である。
ダイヤモンド	粒子状(1~50 $\mu\text{m}$ )の結晶は人工的に製造できるが、高温(1000~3000 $^{\circ}\text{C}$ )・高圧(25~50GPa)下での製造のため、結晶内に乱れが生じ、電子材料としては使用できず実用化されていない。薄膜を使ったトランジスタは試作されている。
アモルファスシリコン	成膜時における不純物添加が実現されているが、非晶質構造がもつ構造柔軟性により配位結合が満たされてしまい効率が悪い。

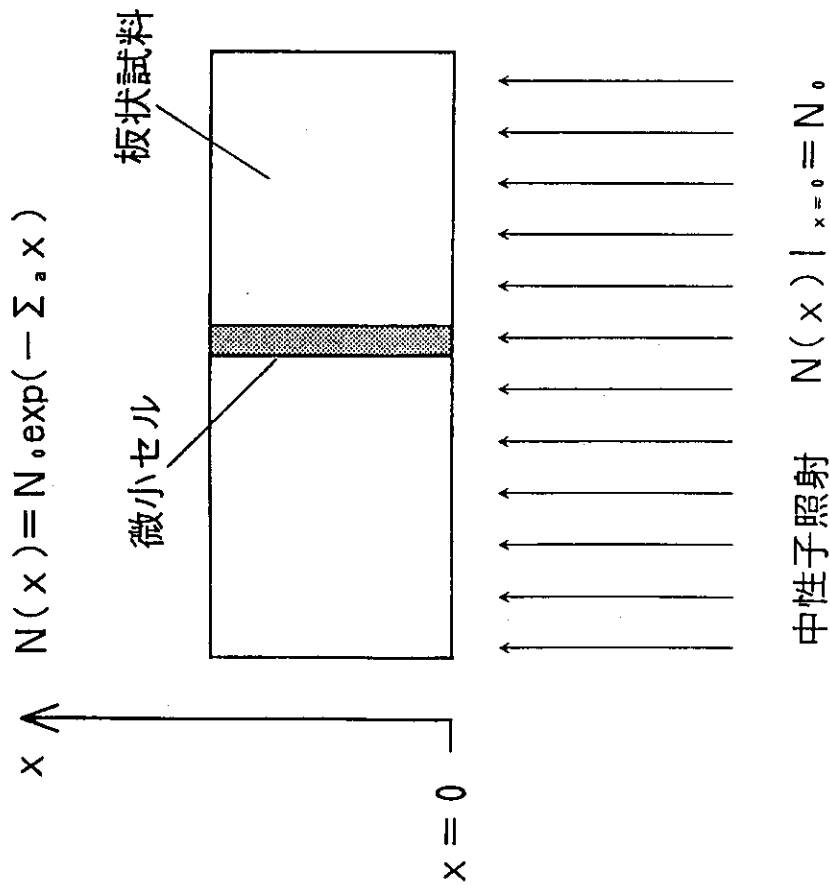
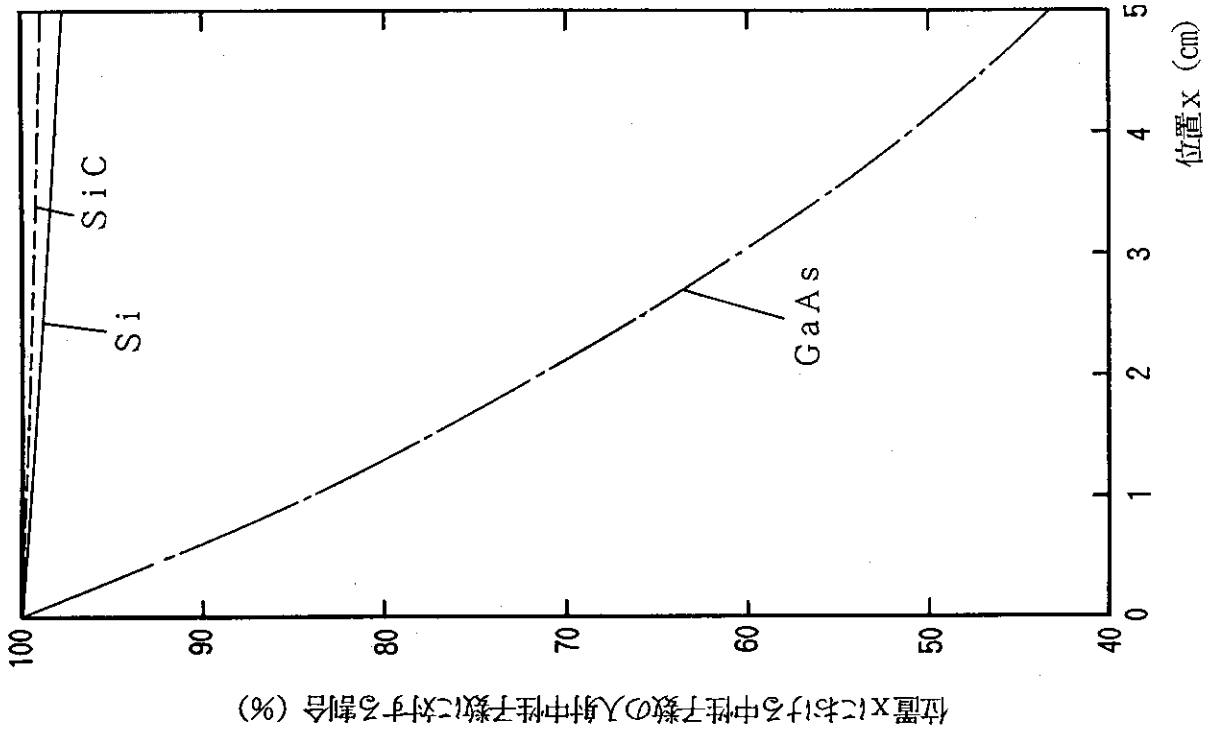


Fig. 4.4.1 Analytical model of flat plate type specimen of Si, Fig. 4.4.2 Decay of neutron beam as a function of the depth in Si, GaAs and SiC materials.



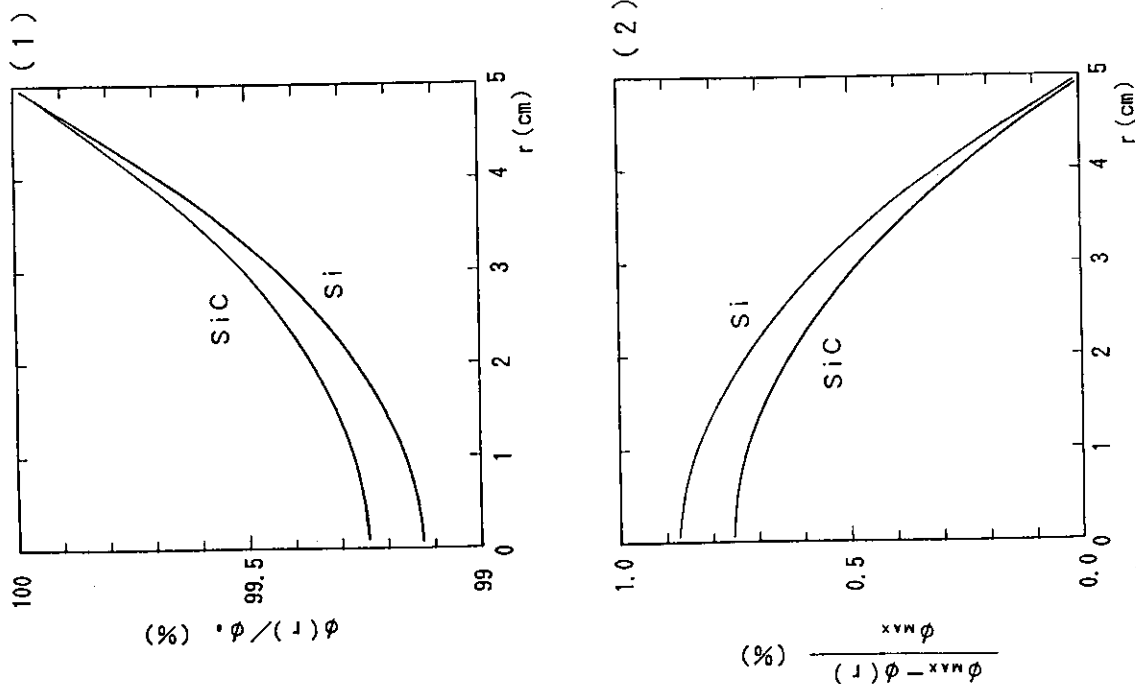


Fig. 4.4.4 Thermal neutron flux distribution in the cylindrical ingot of Si and SiC.

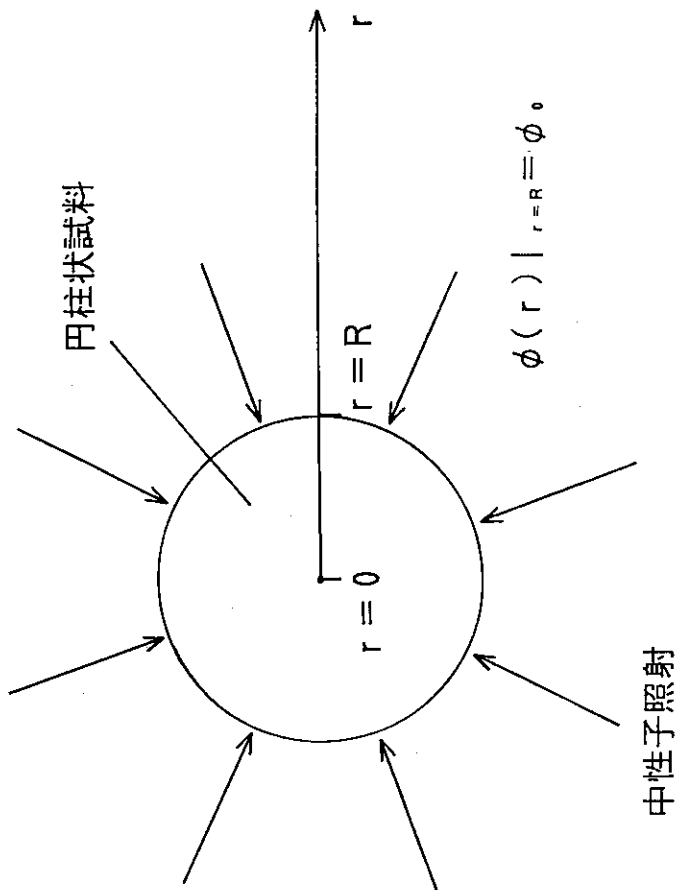


Fig. 4.4.3 Analytical model of a cylindrical ingot of Si or SiC under neutron irradiation.

## 5. HTTRによるNTD法の有用性

HTTRは、大型試料の高温での照射が可能であるという照射場としての特徴を持つ。ここでは、HTTRを用いてSiC結晶に中性子を照射して不純物を生成する場合に、その照射の実施方法について提案し、解決すべき課題を明らかにする。

### 5. 1 照射機能の概要

HTTRの炉心は、平径360mm、高さ580mmの六角柱状ブロックの燃料体及び可動反射体の積層構造であり、これらを垂直方向に10段積み重ねた1列をカラムと呼んでいる。また、炉心周辺には、黒鉛製の固定反射体が配置されている。HTTRの照射試料装荷領域をFig. 5.1.1(炉心縦断面)<sup>17)</sup>及びFig. 5.1.2(炉心横断面)<sup>17)</sup>に示す。中央カラム領域、可動反射体A領域、可動反射体B領域、固定反射体領域が材料照射に利用できる。中央カラム領域、可動反射体A領域、固定反射体領域の上部には、原子炉圧力容器の上蓋にスタンドパイプが設置されており、スタンドパイプを通じて、スィープガスラインや計測線を取り出すことが可能である。また、可動反射体A領域では、ループ照射が可能である。上記の各照射位置における照射条件の特徴をTable 5.1.1<sup>17)</sup>に示す。HTTRで利用できる照射孔は直径約100mm～約300mm程度であり、半導体照射に関しては最大12インチ程度の大型インゴットに対応が可能である。

Fig. 5.1.3<sup>17)</sup>に、冷却材の原子炉出口温度が850℃の場合のHTTRの炉内温度分布を示す。HTTRでは、雰囲気温度が400～1100℃とかなり高温であり、照射損傷の低減化が期待される。

Fig. 5.1.4<sup>17)</sup>に、原子炉出口冷却材温度が850℃という、定格出力運転時における燃焼初期の炉内中性子束分布を示す。NTD法による半導体製造では、生成する不純物分布の均一性の高さが重要なポイントの一つであるが、その実現のためには炉内中性子分布の均一性が高い炉心が適している。HTTRは減速材に中性子吸収の少ない黒鉛を使用しているうえに、温度分布が平坦化するような燃料の領域別装荷をしていることもあって、軽水炉や重水炉に比べると炉内の中性子束分布は平坦である。そこで、Fig. 5.1.5<sup>17), 18), 19)</sup>に、HTTR及びJMTR、JRR-2の炉心横断面における熱中性子束分布を示す。JMTRは軽水炉、JRR-2は重水炉であり、これらと黒鉛炉であるHTTRとの比較を行った。横軸は炉心横断面内の径方向における炉心中央からの距離、縦軸はその断面内における最大熱中性子束に対する各位置での中性子束の割合を表している。Fig. 5.1.5において注意すべき点を以下に示す。

#### (1) HTTR

0cmと約50cmの位置における計算点が、他の位置に比べてやや高くなっている。

これらの点は制御棒案内カラムの位置に相当しており、減速材黒鉛により高速中性子から熱中性子への強い減速が生じているうえに、この解析においては制御棒が挿入されておらず、この位置には熱中性子の強吸収体も存在していない。一方、その周辺の燃料部位では燃料物質が熱中性子をかなり吸収していることもあって、これら制御棒案内カラムの位置における中性子束は周辺に比べて高くなっている。

## (2) J M T R

約5cmの位置の計算点は約10cmの位置の点に比べて小さくなっている。これは、0cmに相当する位置に制御棒が挿入されているためである。また、約10cmの位置と約35cmの位置の計算点の間に他の計算点はないが、この間には制御棒は存在しないので中性子束は上方に凸のカーブになると考えられ、正確にはこれら約10cm及び約35cmの位置の中性子束は最大ではない。しかし、ここでは炉内の相対的な中性子束の大きさを比較することを目的としているので、便宜的にこの約10cmの位置と約35cmの位置の計算点の中性子束の値を最大中性子束として評価した。

## (3) J R R - 2

反射体部位内の燃料体部位側で熱中性子束が周囲に対して高くなっている。これもJ M T Rと同様に、反射体による中性子の減速及び反射体部位内に燃料体のような熱中性子の強吸収体が無いことに起因している。

反射体部位における熱中性子束の勾配は、J M T RとJ R R - 2は同程度であるが、H T T Rでは両者に比べて勾配はなだらかである。これらの原子炉の減速材の熱中性子に対する特徴をTable 5.1.2<sup>20)</sup>に示す。D<sub>2</sub>OとCの平均自由行程は共にH<sub>2</sub>Oのほぼ10倍であるが、中性子熱化に要する衝突回数は、CはD<sub>2</sub>Oのほぼ4倍、H<sub>2</sub>Oのほぼ7倍なので、黒鉛炉では炉内熱中性子束の分布は重水炉や軽水炉に比べてかなり平坦になる。従って、N T D法により生成する不純物の均一性の高さについては、黒鉛炉であるH T T Rは軽水炉や重水炉に比べて優れていると考えられる。

## 5. 2 照射試験のための設備

### 5. 2. 1 実験設備室と照射試験用の貫通孔<sup>21)</sup>

H T T Rで照射試験を実施するにあたり、スweepガス供給装置、検出装置、計測器、グローブボックス等を設置するための場所として、実験設備室を設置することになっている。実験設備室は、地上2階、地下3階から構成される原子炉建家の地上1階、原子炉格納容器の上部に位置する。

照射試験で使用するスweepガス供給ラインや計測線等は、実験設備室からその床、原子炉格納容器、スタンドパイプ室を貫通して、スタンドパイプ内部を通過して炉心に導かれる。

実験設備室及び各貫通孔の配置をFigs. 5.2.1<sup>21)</sup>, 5.2.2<sup>21)</sup> に示す。ここで、Fig. 5.2.1はFig. 5.2.2における①-①断面である。図中のELは、原子炉建家最下部からの高さを表している。また、A～Dは、貫通孔の位置を表しており、これらの位置には14Bと6B（14Bは外径355.6mm、6Bは外径165.2mmの管を表す）の貫通孔を設けることができる。A及びBはスタンドパイプ室側壁、Cは原子炉格納容器上部、Dは実験設備室の床における貫通孔を表している。照射用スタンドパイプN17～19は外径440mmの管であり、可動反射体A領域の上部に位置している。この他にも、固定反射体上部に位置するスタンドパイプが照射試験に使用できる。

## 5. 2. 2 照射量制御のための設備

Table 3.1.1 に示したように、 $1.0 \times 10^{13}$  (n/cm<sup>2</sup>・s)の熱中性子束でシリコンインゴットを照射する場合、実用的な抵抗率の半導体を製造するために必要な照射時間は数時間から十数時間である。JRR-4やJRR-2の運転サイクルはJRR-4では6時間、JRR-2では12日間であるので、必要とする半導体の抵抗率を達成するために要する照射時間が炉の運転サイクルより短い場合には、原子炉運転中にインゴットの炉内への挿入・炉外への取り出しを行っている。また、炉内中性子の有効利用及び生産性の向上のためにも、炉の運転中の試料の出し入れを実現することは重要なポイントである。

原子炉運転中の試料の出し入れに際して、JRR-4やJRR-2では雰囲気の水なので放射線や核分裂生成物の炉外への漏洩を容易に防ぐことができる。一方、HTTRでは、雰囲気が4MPaの加圧ヘリウムガスであり、かつ、放射線のストリーミングの問題があるので、原子炉運転中の試料の出し入れを実施するためには、放射線の遮蔽の点で工夫が必要である。また、必要とする照射量に合わせるためにHTTRの運転期間を極端に短くすることは現実的ではない。以下に、考案した照射量制御方法を記す。

### (1) スタンドパイプ内に試料を保管する方法

HTTRにおいて照射量制御を行うため、照射用スタンドパイプの内部に試料を一時保管しておくFig. 5.2.3に示す装置を考案した。これは、スタンドパイプ内に試料を上下方向に移動するための駆動装置を設け、炉の運転前に試料をスタンドパイプ内に保持しておき、炉が運転を開始してから炉心内に試料を装荷し、必要な照射量に達したら試料をスタンドパイプ内に引上げて炉の停止まで保管し、炉が停止してから試料を炉外に取り出すというものである。この場合、炉心温度は炉の出力に比例するので、照射損傷量と核変換率の相関への中性子照射量や照射温度の効果を調べるためには、炉の起動時にスタンドパイプ内で試料を保持しておき、炉が一定出力、すなわち一定温度になってから照射孔内に装荷すべきである。炉心への試料の装荷時には、急激な温度上昇により試料内に格子欠陥が生じる恐れがあるので、温度制御が可能な照射キャプセルによりあらかじめ照射温度に加熱しておくことも必要になる。同様に、



照射後スタンドパイプ内に引き上げた試料についても、急冷に伴う格子欠陥の発生を防ぐため温度制御が必要である。

この方法では、生成した試料の放射能をスタンドパイプ内で減衰させることができ、照射により生成する核種の半減期が短い場合には、放射能減衰用の設備を別途用意する必要がないという利点がある。しかし、試料の出し入れが可能なのは炉が停止した時だけであり、半導体材料の基礎物性の取得を目指した試験では、時間がかかりすぎて研究の進行が妨げられてしまう。また、商用生産を目指した場合にはその生産性の低さが大きな問題となる。

## (2) ラビット照射設備を用いる方法

JRR-2、JRR-3M、JRR-4やJMTRでは、炉の運転中に短時間で試料を照射する方法として、専用の照射筒において水流や空気流の力により試料の出し入れを行う設備が実用化されており、この設備はラビット照射設備と呼ばれている。ラビット（短時間照射用の小型キャプセル）の進行方向は、流体（水又は空気）の流れの方向により決まり、照射中に流体を流し続けることによりラビットの冷却も可能である。HTTRにおいて照射試験を行う場合、このような設備を設置する必要があるが、炉心への空気や水の浸入を避けるため、安全性の観点から流体としては1次冷却材と同じヘリウムガスを用いるのが適切である。HTTRにラビット照射設備を設置することを検討し、考案した配置方法の概略をFig. 5.2.4に示す。この場合、炉心からスタンドパイプを経て、Figs. 5.2.1, 5.2.2に示した14Bの貫通孔に6B程度の配管を通せば、最大4インチ程度の径の試料の照射が可能になると考えられる。

HTTRにラビット照射設備を設置するためには、いくつかの課題を解決する必要がある。以下に、今回検討した主要な課題を記す。

### (i) ブローするヘリウムガス流速と搬送可能なラビット寸法との関係

軽水炉や重水炉等の照射炉では流体（空気や水）をブローして、ラビットを炉心に出し入れしている。HTTRの場合、炉心への水侵入の危険を避けるため、ラビットの作動流体としては気体を用いた方がよい。しかし、半導体照射ではかなり大型の試料を照射するため、実用的な範囲の気体の流速ではラビット輸送が不可能である可能性がある。ここでは、ラビットの作動流体として不活性ガスであるヘリウムを採用した場合を考え、ラビット輸送の実現可能性を調べた。

ラビット輸送に最低限必要となるヘリウムガスの流速を調べるため、Fig. 5.2.5に示すように、ラビットに下方からヘリウムをブローしてラビットを気送管中に静止させる場合を考え、ヘリウムの流速とラビットの寸法との関係を調べた。今後、ラビットの下面をA面、上面をB面と呼ぶ。

ラビットを静止させている場合、ラビットに働く力はFig. 5.2.5に示すように浮力、重力、流体からの推進力であり、これらの力は以下のように釣り合う。

$$F_b - F_w + F_p = 0 \quad \dots (5.2.1)$$

$F_b$  : 浮力

$F_w$  : 重力

$F_p$  : 流体からの推進力

ここでは、力の方向は上方向を正としている。

パラメータとして、ラビットの直径  $d$ 、ラビットの有無によるヘリウムガス流路面積の差異の比率  $RS$  を選び、ヘリウムガスの流速  $u$  に対して (5.2.1) 式が成り立つようなラビットの長さ  $l$  を計算した。ここで、 $RS$  は以下の式により求めることができる。

$$RS = \frac{\pi (d_t/2)^2 - \pi (d_r/2)^2}{\pi (d_t/2)^2}$$

$$= \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2} \quad \dots (5.2.2)$$

$d_r$  : ラビットの直径

$d_t$  : 気送管の内径

計算手法の詳細を付録 2 に示す。実際の照射では、SiC インゴットを容器に入れて照射するが、今回の解析はラビットの搬送の実現可能性を調べることを目指しているので、計算を簡略化するために、ラビットを円柱状 SiC インゴットそのものとして取り扱った。

計算結果を Figs. 5.2.6、5.2.7、5.2.8 に示す。図中の斜線部より下が搬送可能領域である。現実的なヘリウムガス流速の範囲内で、直径 5~15cm の SiC インゴットの搬送が可能である。また、SiC インゴットを容器に入れた場合には、容器の質量が加算されるので、図中の曲線は全体的に下に下がると考えられる。

## (ii) 配管の引きまわしスペース

Figs. 5.2.1, 5.2.2 から明らかなように、林立するスタンドパイプや格納容器再循環冷却装置送風機のため、照射用スタンドパイプから実験設備室へラビット用の配管を引きまわすスペースはかなり制限される。この点から、ラビット照射設備を取り付けるには、貫通孔 A 又は B に最も近い照射用スタンドパイプ N18 を使用するのが妥当である。

ここで、(i) の解析に使用したパラメータ  $d_r$  及び  $RS$  を用いて、配管のベント部の半径  $R$  に対して搬送可能なラビットの長さ  $l$  を計算した。結果を Figs. 5.2.9, 5.2.10, 5.2.11 に示す。図中の斜線より下が搬送可能領域である。なお、計算手法の詳細を付録 3 に示す。気送管に半径 100 cm のベント部を設けた場合には、直径が 5~15cm のラビットでは約 20cm 以上の長さのものが搬送可能である。

配管の引きまわし経路として、照射用スタンドパイプ N18-貫通孔 A-C-D-実験設備室を考えた場合、スタンドパイプ N18-貫通孔 A の間はこのスペース上の

制限はなんとか解決できそうであるが、A～実験設備室の間ではこの制限が重要な問題となりそうである。この対策としては、①ラビットの寸法を小さくする、②Fig. 5.2.12 に示すような方向転換器を使用する、という方法が考えられる。

### (iii) 実験設備室における線量当量率

H T T R における線量当量率の基準は、人体への被曝防止の観点から4段階に分けられている。実験設備室は線量当量率がこの中で最も低いレベルである  $6 \mu\text{Sv/h}$  以下になるよう設計されており、ここでは週に48時間まで作業に従事することが可能である<sup>21)</sup>。この基準を満足するために、スタンドパイプ室の床に位置する1次上部遮へい体に相当する遮へい体がスタンドパイプ内部にも設置されているが、ラビット照射設備を設置するためには、このスタンドパイプ内の遮へい体を取り除かなくてはならない。その場合、高エネルギー中性子が原子炉压力容器の上部にまで達し、その際発生する2次 $\gamma$ 線により、実験設備室における線量当量率が増加して上記の基準を満足できなくなる恐れがある。これを防ぐために、スタンドパイプ室内部に新たに遮へい体を設置する必要がある、そのためには詳細な遮へい設計が必要である。

## 5. 3 照射方法の可能性

### (1) 試料の大きさ

H T T R における照射の手順としては、まず小型の試験片で中性子照射量と不純物生成量や損傷量との相関への温度依存性等の特性を解明し、照射量、照射温度、不純物分布の均一性等の情報を得て、その後に商用生産を目指した大型インゴットの照射方法を確立するのが妥当であると考えられる。小型の試験片を用いた特性解明の試験では、大きな照射スペースを利用することにより、照射による格子欠陥の発生や消滅、不純物原子の生成や崩壊等の照射中の基礎的なデータを得ることができる。また、これにより次の段階の商用生産を目指した照射を効率的に行うことが可能になる。将来、大型のSiCインゴットの製造が可能になっても、H T T R では最大12インチ程度までの径のインゴットの照射が可能であるので、N T D シリコンの場合に問題になっている、インゴットの大径化の要求が照射場の大きさにより制限されるということはない。

### (2) 照射容器

J R R - 2 や J R R - 4 におけるシリコンインゴットの照射では、インゴットをアルミニウムの容器に入れ、炉内に装荷している。アルミニウムは、炉内中性子の有効利用のため、熱中性子の吸収の少ない材料として選定されている。しかし、H T T R の高温の照射場では、雰囲気温度が最高1100°C程度にまで達するため、融点が約660°Cのアルミニウムを使用することは不可能であり、他の材料を使用する必要がある。

熱中性子の吸収の少ないSiC結晶をHTTRの高温の照射場で照射する場合、試料を入れる容器の材料に要求される特性は、炉内中性子の有効利用のため熱中性子吸収断面積が小さいこと、高温での強度が優れていることである。このような材料としては、①ステンレス鋼、②セラミックスが考えられる。

①のステンレス鋼は、軽水炉や高速炉における構造材や照射キャプセルの材料として広く利用されているが、鉄をベースとした材料なので、大型の半導体インゴットを照射するための容器としては熱中性子吸収断面積が大きく（Feの熱中性子吸収断面積は約2.6 b）適切ではない。また、ラビットとして照射する場合には、ラビット自体の質量が大きくなりすぎるという欠点もある。

②のセラミックスは、熱中性子の吸収が少ない材料であり、また、高温での強度が優れている。Table 5.3.1<sup>22)</sup>・<sup>23)</sup>・<sup>24)</sup>に代表的なセラミックスの熱的・機械的特性を示す。また、これらのセラミックスは熱中性子吸収断面積は小さく、Feにくらべて10分の1以下である。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は工業的によく確立されているセラミックスであるが、中性子照射によりスエリングが発生し、熱伝導率が低下する。BeOは熱伝導率が大きく、破壊に対する抵抗性に優れているが、人体に対する毒性が強く、(n, α)反応によるヘリウム生成量が多い。MgOはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に比べると耐放射線性は良いが、熱膨張係数が大きく高い熱応力の発生する所での使用には適していない。SiCとSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>は強度と耐放射線性に優れているが、SiCの方が熱伝導率が10倍以上大きい<sup>22)</sup>。以上より、HTTRでSiC結晶を照射する場合にはSiC製の容器を用いたものが適していると考えられる。しかし、実際の使用にあたっては更に詳細な検討が必要である。

### (3) 照射温度制御

中性子照射量と不純物生成量や損傷量の相関に対する温度依存性を調べるためには、温度制御を行う必要がある。

#### ① スタンドパイプ内に試料を保管する方法を採用した場合

温度制御の方法としては、キャプセルをひとつのカラムの照射孔内を軸方向に移動させて、雰囲気温度の違いを利用して照射温度を変える方法、あるいは、比較的温度の低い照射位置にキャプセルを装荷し、ヒーター等により加熱して昇温する方法が考えられる。これらの場合、Fig. 5.1.3に示したように炉心内における最低温度は約400℃であるので、これより低い温度での照射が必要な場合には、試料を冷却する必要がある。照射孔内で軸方向にキャプセルを移動させ照射温度を変える場合には、炉の運転状態による炉内温度の変動もあるため、温度をパラメータとするような試験における精密な制御は難しい。一方、照射孔内の低温部位にキャプセルを装荷し、ヒーター加熱により徐々に昇温させる方法では、複雑な機構が不要なので比較的簡単に温度制御ができ、温度をパラメータとするような試験に適している。

#### ② ラビット照射設備を採用した場合

照射中のラビットに、ラビット出し入れ用のヘリウムガスをブローすることにより、ある程度の温度制御は可能である。この場合、温度測定用の計装を別途設置する必要

がある。

照射温度をパラメータとして温度の効果を調べるためには、まず、試料の照射中の正確な温度測定が必要である。HTTRを用いた照射試験では、照射雰囲気の高温度に1000°C以上が要求される場合がある。このような1000°C以上の高温測定用の熱電対として、Pt-Rh系熱電対及びW-Re系熱電対が知られており、Pt-Rh系熱電対では1700°C程度まで、W-Re系熱電対では1900°C程度までの使用が可能である<sup>10)</sup>。しかし、これらの熱電対では、素線に熱中性子吸収断面積の大きな材料を用いており、その数値はPtが8.8b、Rhが149b、Wが19.2b、Reが86bである。このようにPt-Rh系熱電対及びW-Re系熱電対の素線材料は、Ptを除いて熱中性子吸収断面積がかなり大きいので、原子炉内で使用する場合には素線の中性子吸収による核変換の影響を考えなくてはならない。つまり、原子炉内での使用において照射中性子量が多い場合には、核変換により素線材料の原子数の変化による熱起電力特性の変動が大きく、正確な温度測定が不可能になるのである。原研では、Pt-Mo系熱電対の素線材料であるPtとMoの熱中性子吸収断面積が各々8.8b及び2.7bと小さいことに着目し、将来の高温ガス炉の炉内温度測定用、あるいは、HTTRを用いた照射試験の温度測定用にステンレス製シース及びAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>電気絶縁体を用いたシース型Pt-Mo系熱電対の研究開発を進めている<sup>25)</sup>。この熱電対を用いることで、HTTRの照射試験における正確な温度測定が可能になると考えられる。

#### (4) 均一照射

特性の解明を目指した試験片大の試料の照射においては、試料がそれほど大きくないので、試料への中性子照射量の均一性はそれほど問題とはならないが、キャプセル内に複数の試料を装荷して照射する場合には、他の試料による中性子の遮蔽の影響がないようにキャプセル内の試料の配置に注意しなくてはならない。

商用生産を目指したインゴット状の試料を照射する場合には、試料全体における中性子照射量の均一性が要求される。HTTRは、Fig. 5.1.5に示したように、水炉に比べて炉内中性子の分布がかなり平坦であり、SiCはSiに比べて中性子の吸収が半分程度なので、JRR-2やJRR-4で行っているような均一照射のための方法を用いなくても、均一性の高い中性子照射を達成できる可能性がある。どの程度の均一性が必要であり、どの程度の均一性が達成できるかは、小型試験片の照射において基礎データを取得すれば、ある程度の評価は可能である。

均一照射のための方法としては、以下のものが考えられる。

##### ① スタンドパイプ内に試料を保管する方法を採用した場合

試料を上下方向に移動する機構に加え、試料を回転する機構を設置する必要がある、本質的にはJRR-2やJRR-4と同じ機構である。しかし、スタンドパイプ内部という限られたスペース内に設置しなくてはならないので、機器類をコンパクトにする必要がある。

##### ② ラビット照射設備を採用した場合

ラビットらせん状の羽根を付け、照射中にヘリウムガスをブローすることにより、ラビットを回転させる方法が考えられる。この場合、ヘリウムガスのブローにより照射温度が変わってしまうので、温度制御との兼ね合いに工夫を要する。

#### (5) その場計測

中性子照射における不純物生成の特性解明の段階で、照射量と発生欠陥量あるいは生成不純物量との相関を調べるにあたり、試料を照射している段階で欠陥量や不純物量をその場計測（照射中の計測）することができれば、より本質的な特性を解明することができる。ラビットを採用した場合には、その場計測は不可能であるが、スタンドパイプ内に試料を保管する方法を採用した場合には、大きな照射スペースを利用したその場計測が可能である。そこで、現在半導体の評価に一般的に使用されている計測機器について、炉内での使用の可否について基礎的な検討を行う。

##### i) 格子欠陥の測定

一般に採用されている半導体の格子欠陥の評価方法には、欠陥の種類や分布の調査等の比較的巨視的な観察を行うものと、点欠陥や複合欠陥等の微視的な構造解明を行うものがある。巨視的な観察は、結晶表面の映像を目視することで、発生した転位、点欠陥の複合体、析出物、不純物のむら等の欠陥を観察し、その発生原因を解明するもので、結晶表面の観察と結晶内部の観察がある。表面の観察には一般に、光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡（SEM）、透過型電子顕微鏡（TEM）が用いられる。また、内部観察には一般に、試料が薄膜の場合にはTEMが、試料がウェハー状の場合にはX線トポグラフやエッチング溶液を用いて結晶内部を露出させた試料を光学顕微鏡で観察する方法が用いられる。また、点欠陥や複合欠陥等の格子欠陥の微視的な構造解明には、一般にESR（Electron Spin Resonance）が用いられる<sup>26)</sup>。

H T T RにおいてSiCの小型試験片に中性子を照射して不純物を生成させる場合に、格子欠陥の発生・消滅について基礎データの取得を考えると、その発生・消滅の状況を試料表面だけではなく試料内部までその場観察（照射中の観察）できることが望ましい。光学顕微鏡や電子顕微鏡では、光や電子により欠陥を映像化するので、観察可能なのは光や電子が届く結晶表面に限られ、深さ数 $\mu\text{m}$ 以上の位置の欠陥の観察は不可能である。これ以上の深さの欠陥を映像化して観察するためにはX線トポグラフを用いるが、結晶格子で回折させたX線により結晶内部の欠陥を映像として観察する方法なので、 $\gamma$ 線が大量に存在する原子炉内での使用は困難である。ESRは、格子欠陥に付随する不対電子（電子対を作っていない電子）が、自身のエネルギー準位に対応したエネルギーの電磁波を共鳴吸収する現象を利用する方法である。このため、X線トポグラフの場合と同様の理由で原子炉内での使用は困難である。以上の理由から格子欠陥に関しては、その発生・消滅の状況を直接的に炉内でその場観察することは現在の技術では非常に困難であると考えられる。代替的な方法として、複数の試験片を同一条件で照射量だけを変えて照射し、炉外における観察と解析により、照射量

と発生した格子欠陥量との相関を評価する方法が考えられる。また、格子欠陥はキャリア（電子や正孔）の活性を低下させるので、炉内で照射に伴う電気抵抗等の電気的特性の変化をその場測定することにより、間接的に格子欠陥の発生量を調べることは可能である。

## ii) 抵抗率の測定

半導体の抵抗率に関しては一般的に、等間隔で並べた4本の針の先端を試料に接触させ、外側の2本の間を電流を流して内側の2本の間で発生する電圧を測定して抵抗率を求める四探針法や、ホール効果によりキャリア密度を測定する方法が行われている<sup>26)</sup>。ここで注意すべきことは、この測定で得られる半導体の抵抗率やキャリア密度が直接依存するのは、生成不純物ではなく電氣的に活性なキャリアである、ということである。つまり、照射により生成したキャリアの量は不純物の量に比例するが、そのキャリアのうちいくつかは格子欠陥や逆の電荷のキャリアとの相互作用により電氣的活性がなくなってしまう。従って、これらの測定では照射によって生成したキャリアの全量を測定するのではなく、電氣的活性がなくなってしまったキャリアを除いた活性なキャリアを測定するのである。よって、これらの測定により、生成した不純物量を直接的に決めることはできず、補正が必要となる。しかし、ホール効果や抵抗率の測定にはあまり複雑な装置を必要としないので、その場計測も十分に可能である。

## 5. 4 今後の検討課題

H T T Rで半導体製造を実施するにあたって、解決すべき今後の検討課題について記す。

### (1) オンパワーハンドリング

スタンドパイプ内に試料を保管する方法を採用した場合、照射量制御のため、炉の運転中において照射孔内で試料の位置を変えることが必要であり、そのための信頼性の高い機構が必要である。また、商用生産を目指した大径インゴットの照射において、必要であれば試料を回転して均一照射が行えることが必要である。また、試験の効率向上や生産性の向上のためにはラビット照射設備の設置が望ましく、今回検討した範囲では、その設置の実現性は有望であるという結論に達した。今後、配管、遮へい、送風量、核設計、熱設計等に関する詳細な検討が必要である。

### (2) 炉内計装

最低限必要となるのが照射温度と中性子束の計測であり、現在、軽水炉では熱電対やSPND（自己出力型中性子検出器）等が一般的に使用されている。H T T Rでは大きな照射場を利用して計測線用のスペースを大きく取ることができるので、既存の

ものに耐熱用の保護管をつけることで、高温での使用が可能になると考えられるが、事前に炉外において精密な校正を行っておく必要がある。また、より精密な測定を行うためには、高温での使用が可能な計測機器の新たな開発が必要である。



Table 5.1.1 Irradiation characteristics of the HFTR as an irradiation bed<sup>1,7)</sup>.

項目	照射位置	燃料領域		㉞ 可動反射体A領域	㉟ 可動反射体B領域	㊱ 固定反射体領域
		㉠ 中央カラム領域	㉡ 試験燃料装荷領域			
照射条件 形式 最大寸法 試料数 (最大)		六角柱状ブロック 平径: 360mm 高さ: 580mm 1カラム	同 左 同 左 同 左 3カラム	円柱状 直径: 300mm 高さ: 500mm 3カラム	円柱状 直径: 130mm 高さ: 500mm 12カラム	円柱状 直径: 100mm 高さ: 2900mm 4孔
最大中性子束 ( $n/cm^2 \cdot s$ ) 高速中性子束 ( $>0.18MeV$ ) 熱中性子束 ( $<2.38eV$ )		$\sim 2 \times 10^{13}$ $\sim 7 \times 10^{13}$	$\sim 2 \times 10^{13}$ $\sim 5 \times 10^{13}$	$\sim 2 \times 10^{12}$ $\sim 4 \times 10^{13}$	$\sim 2 \times 10^{12}$ $\sim 4 \times 10^{13}$	$\sim 8 \times 10^{10}$ $\sim 3 \times 10^{13}$
$\gamma$ 線強度 (Gy/s)		$\sim 1 \times 10^2$	$\sim 1 \times 10^2$	$\sim 3 \times 10^1$	$\sim 3 \times 10^1$	$\sim 3$
炉囲気温度 ( $^{\circ}C$ )		400~1100	400~1100	400~800	400~800	400~600

注1) ㉠㉡㉢㉣㉤はFig. 5.1.1及びFig. 5.1.2中の記号に対応

注2)  $\gamma$ 線強度は放射線防護のうえで必要な炉内における $\gamma$ 線の線量当量の分布から算出したものである。

Table 5.1.2 Nuclear properties of typical moderator materials<sup>20)</sup>.

特性 減速材	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	吸収断面積 (b)	散乱断面積 (b)	平均自由行程 (cm)	中性子熱化のための 所要衝突回数
H <sub>2</sub> O	1.0	0.66	103	0.290	19
D <sub>2</sub> O	1.1	0.001	13.6	2.22	32
C	1.6	0.004	4.8	2.59	114

注) 吸収断面積、散乱断面積、平均自由行程は熱中性子(0.0253eV)に対する値

Table 5.3.1 Thermal and mechanical properties of typical ceramic materials<sup>22), 23), 24)</sup>.

材料 特性	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	BeO	MgO	SiC	Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>
密度(g/cm <sup>3</sup> )	3.98	3.03	3.58	3.2	3.2
ヤング率(GPa)	400	33	248	350~450	100~330
熱伝導率(W/m·K)	21	260	320	42~270	2.6~38
熱膨張係数(10 <sup>-6</sup> K <sup>-1</sup> )	8.6	7.5	14.7	2.9~4.8	2.3~3.8

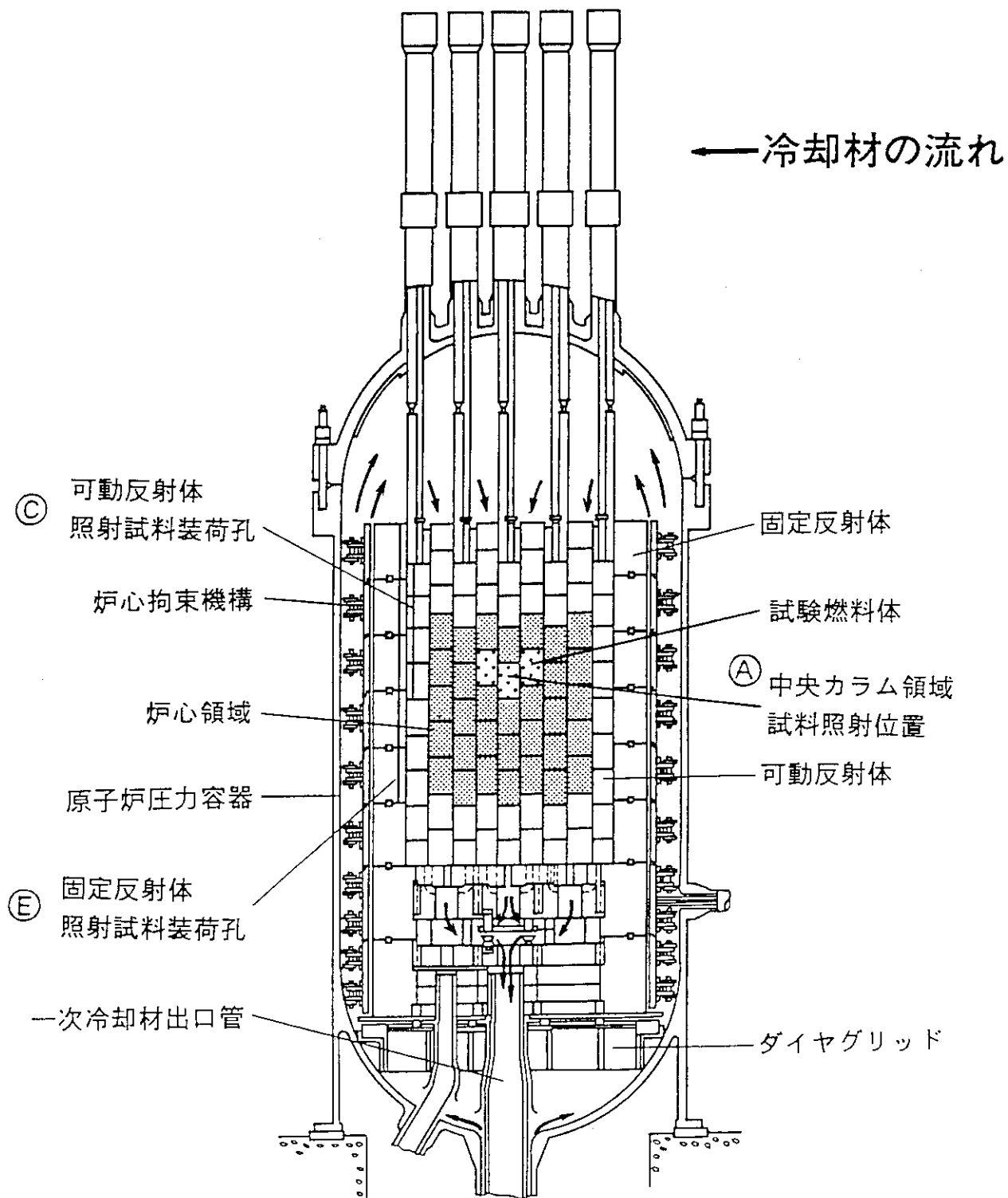


Fig. 5.1.1 Irradiation region in HTTR (vertical section)<sup>17)</sup>.

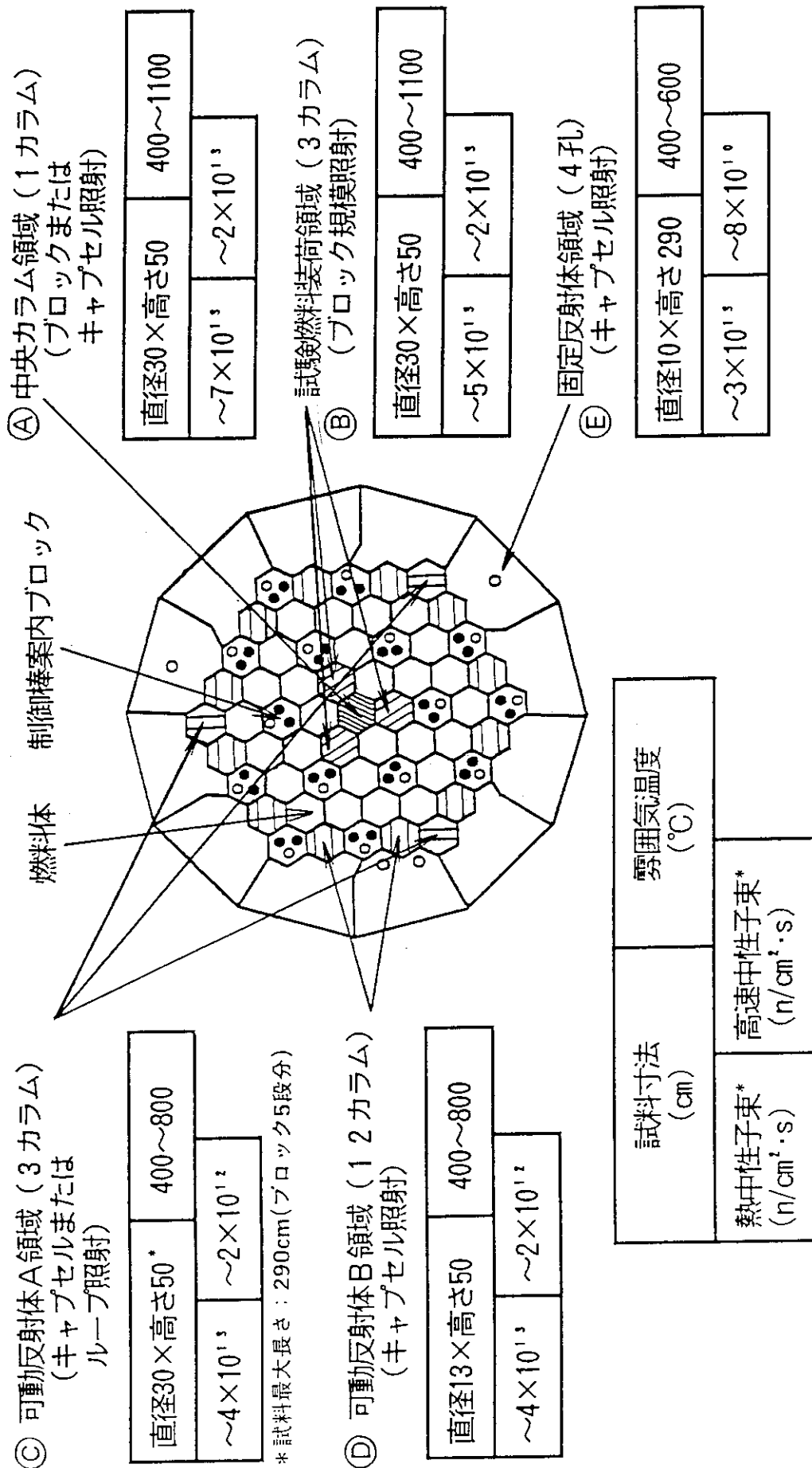
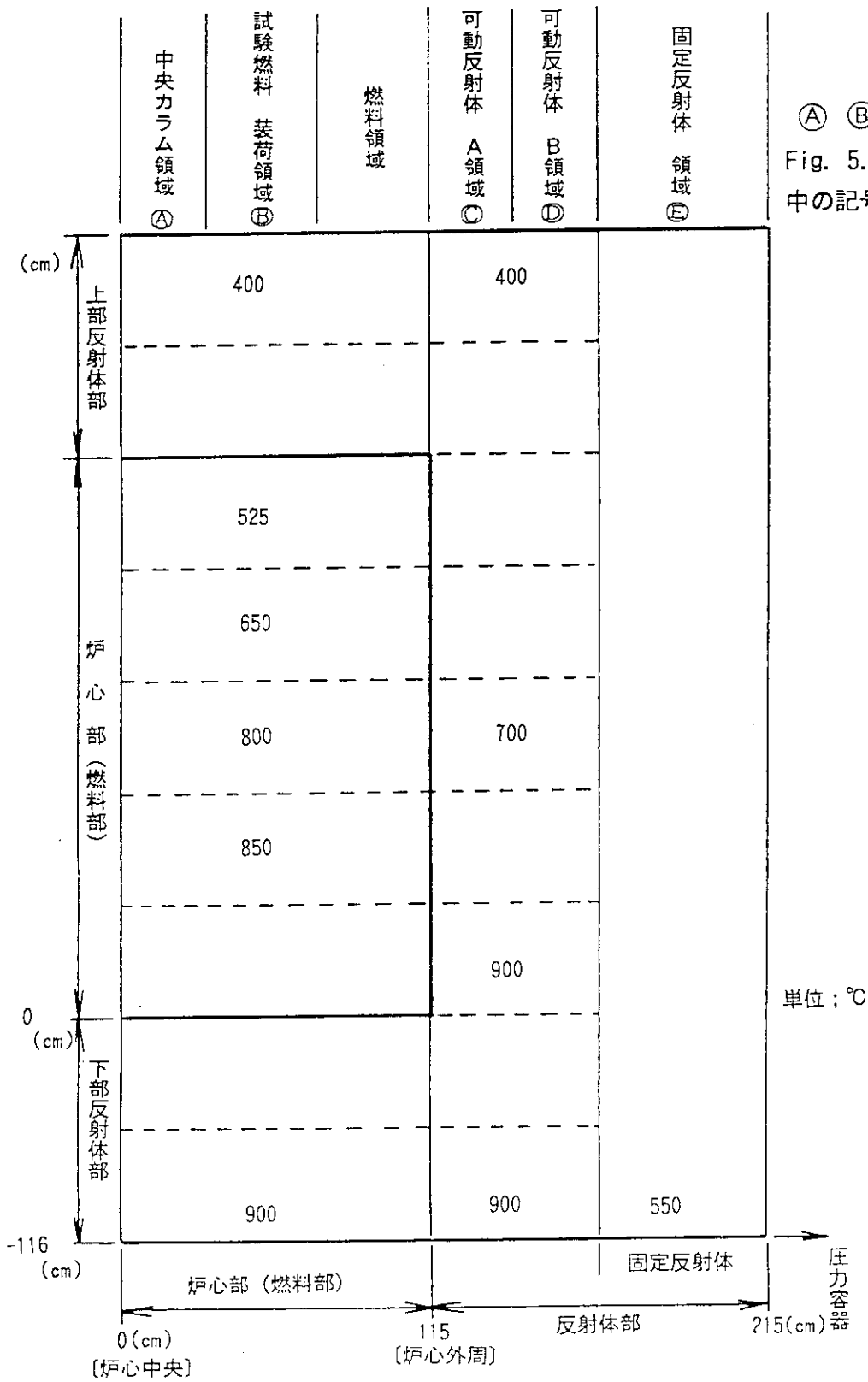


Fig. 5.1.2 Irradiation characteristics of HTR irradiation regions (horizontal section)<sup>17)</sup>.



① ② ③ ④ ⑤ は Fig. 5.1.1及びFig. 5.1.2 中の記号に対応

Fig. 5.1.3 Temperatures at representative locations in HTTR core.

(Outlet coolant temperature is 850°C)<sup>17)</sup>.

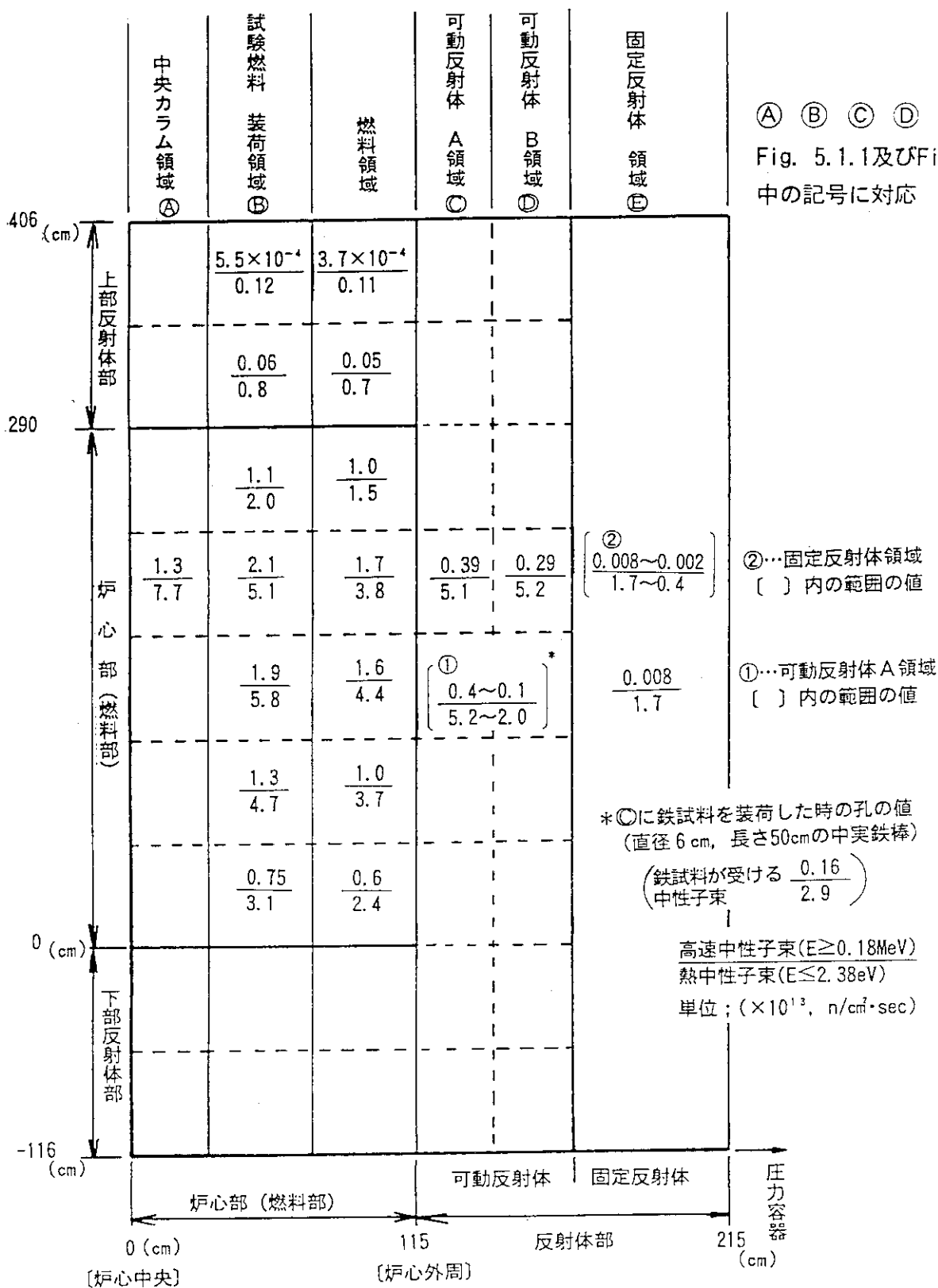


Fig. 5.1.4 Neutron flux at representative locations in HTTR core.

(Outlet coolant temperature is 850°C)<sup>17)</sup>.

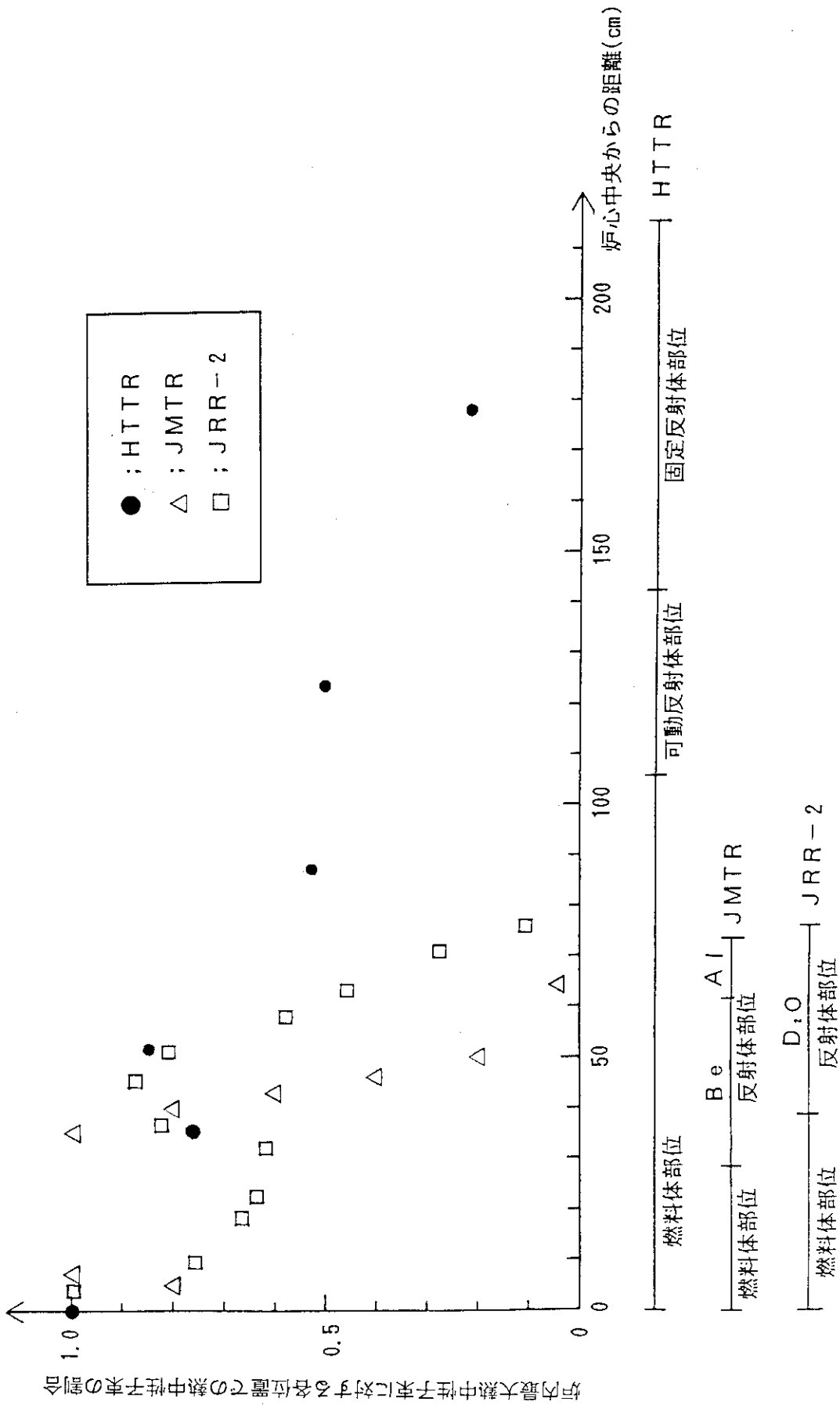
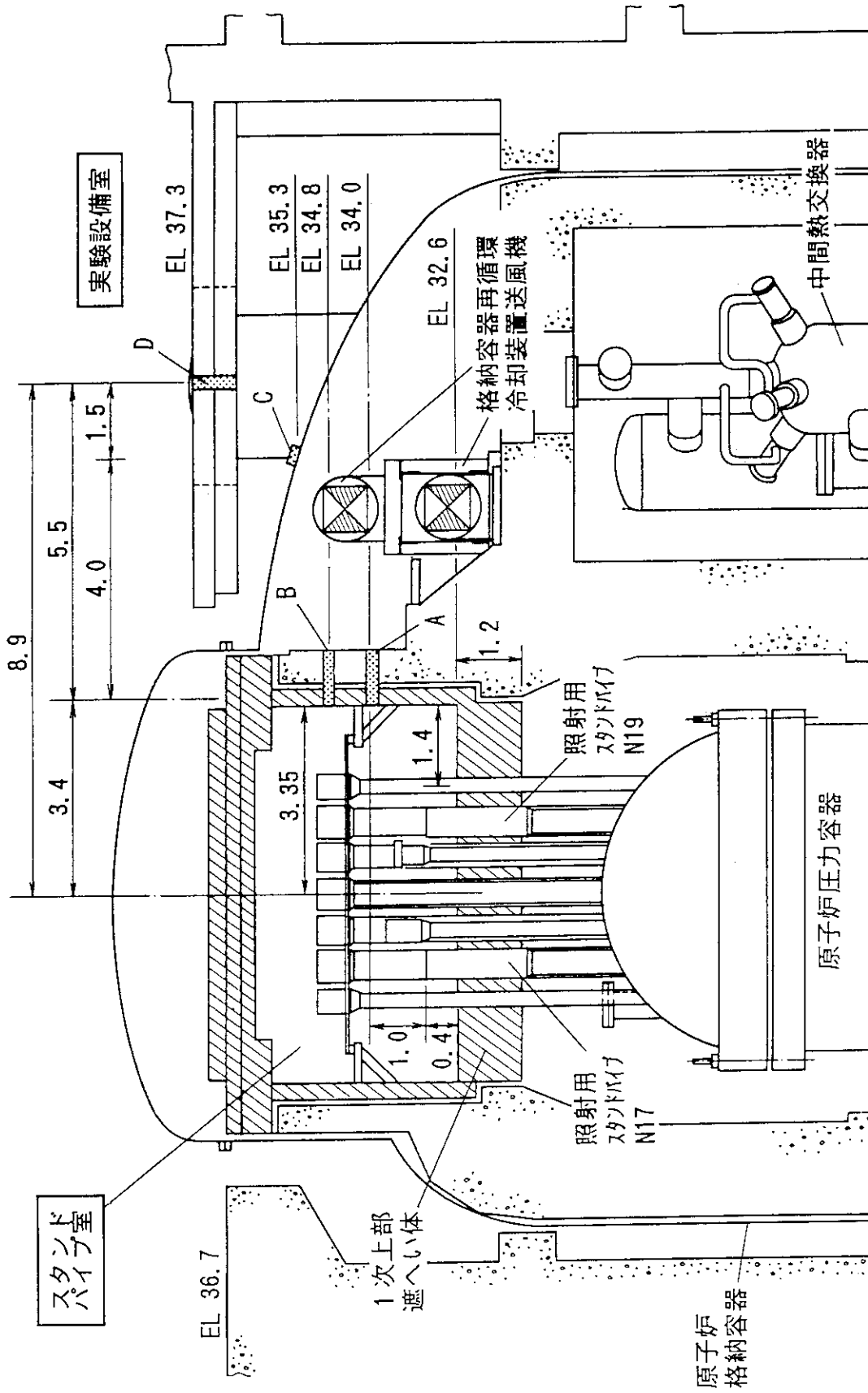


Fig. 5.1.5 Thermal neutron flux distribution at horizontal section of HTTR, JMTR and JRR-2<sup>(17), (18), (19)</sup>.





単位：m

Fig. 5.2.1 Arrangement of perforations to lead lines served at irradiation tests at vertical section in the HTTR<sup>21)</sup>.

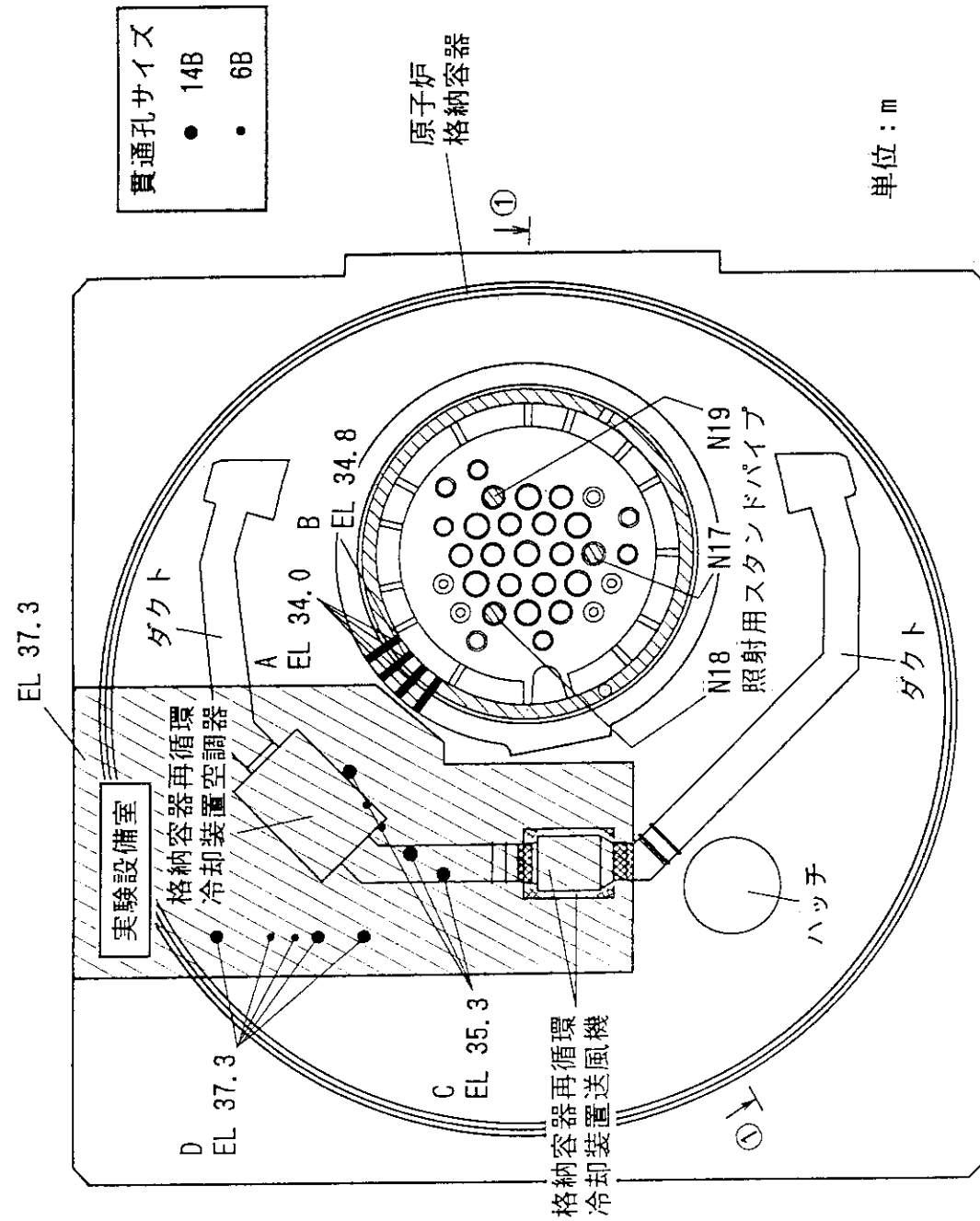


Fig. 5.2.2 Arrangement of perforations to lead lines served at irradiation tests at cross section in the HTTR<sup>21)</sup>.

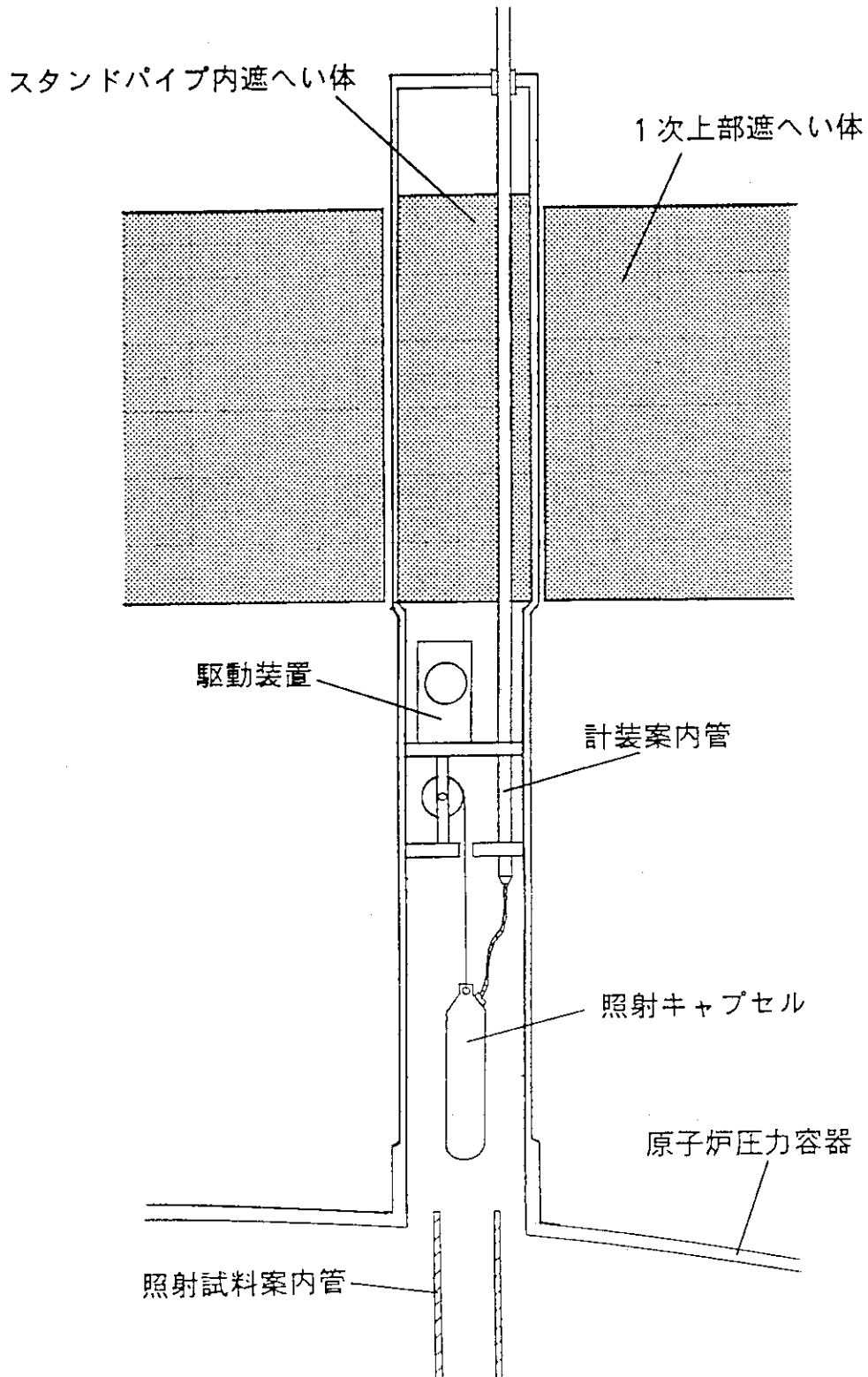


Fig. 5.2.3 Proposal scheme of irradiation facility for on-power measurement in HTTR stand pipe.

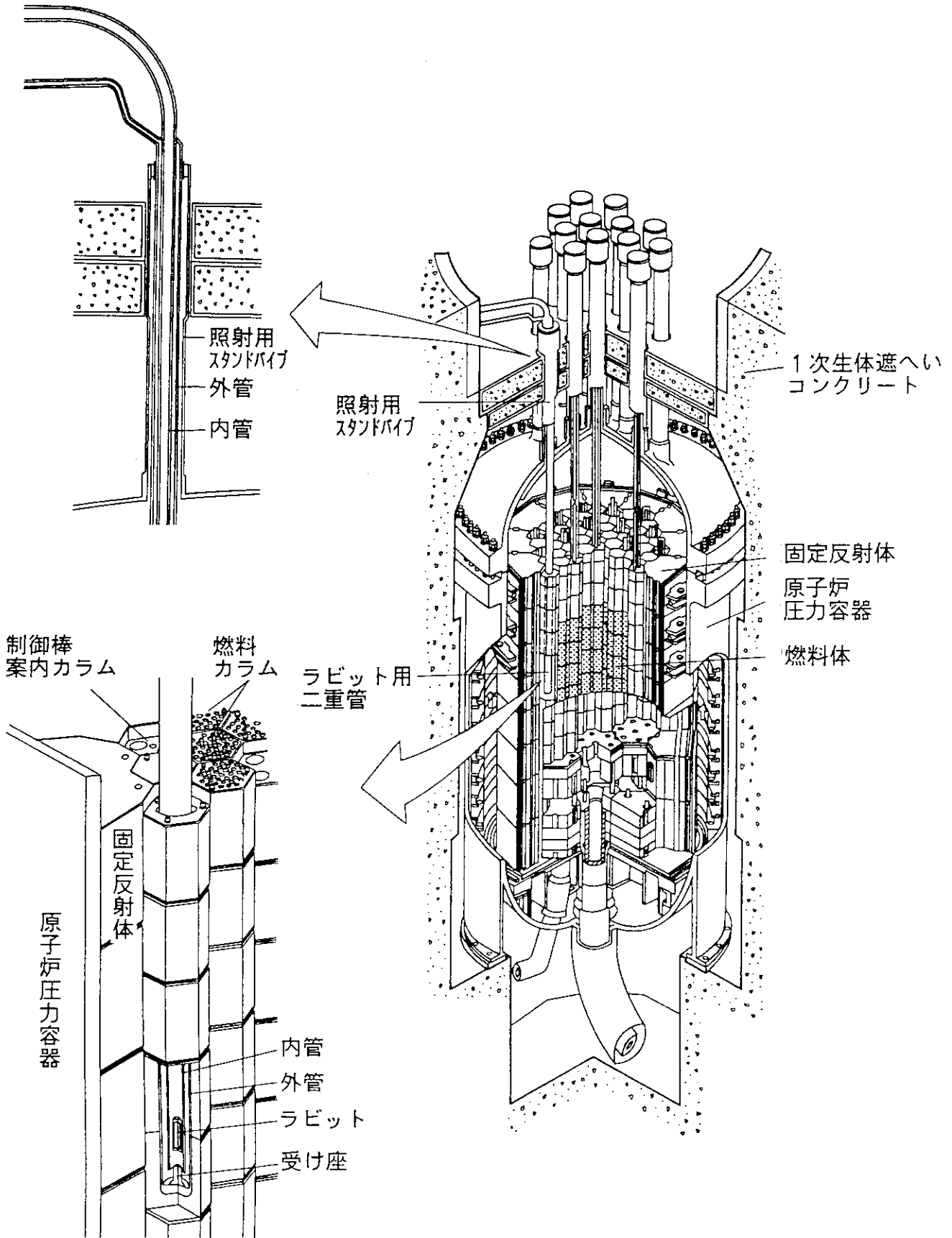


Fig. 5.2.4 Proposal arrangement of pneumatic tube for rabbit irradiation facility in the HTTR.

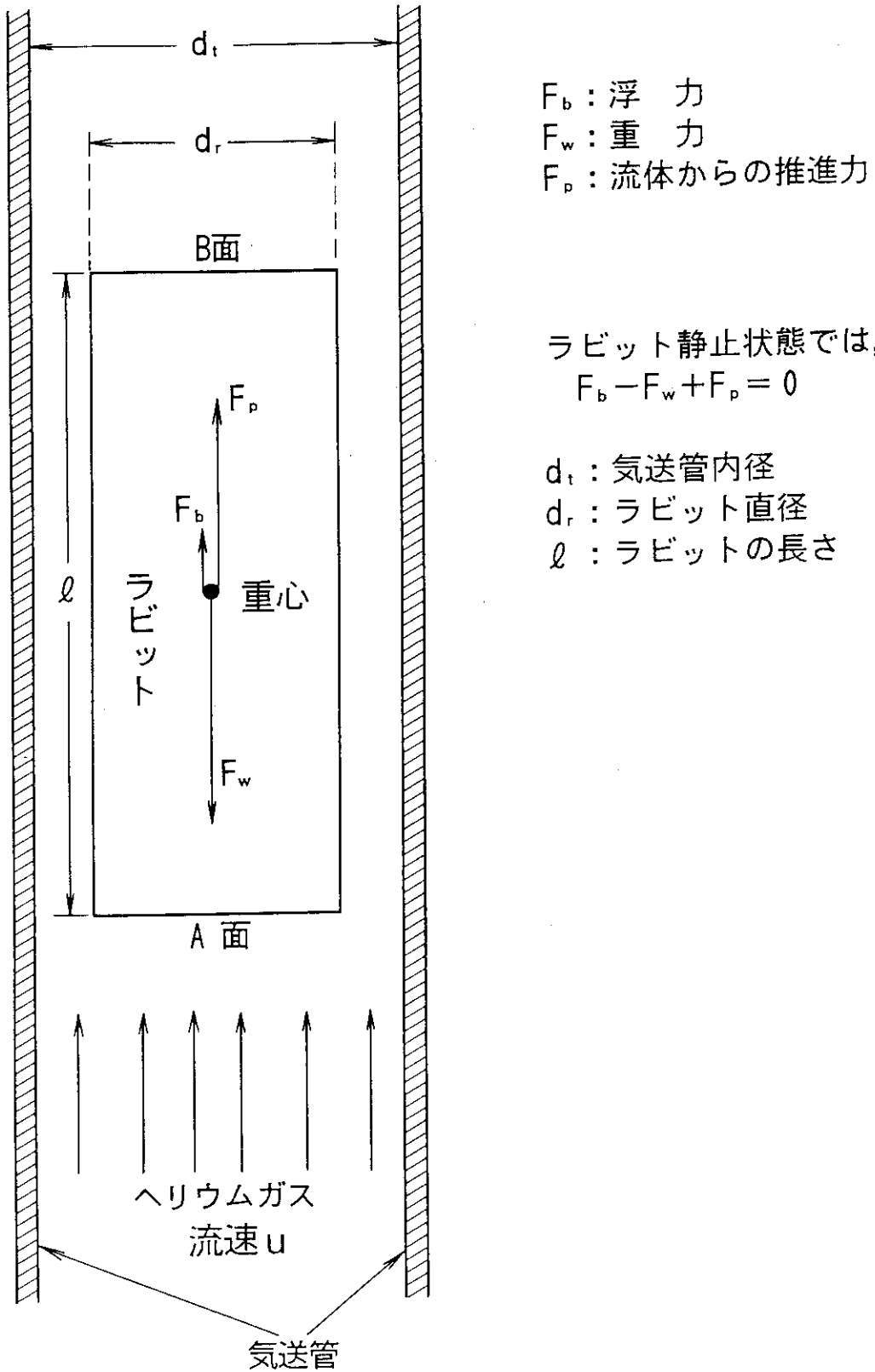
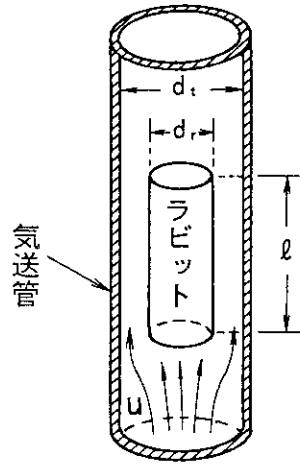


Fig. 5.2.5 Analytical model of pneumatic tube for rabbit irradiation facility.  
(vertical section).



RS : ラビットの有無による  
ヘリウムガス流路  
面積の差異の比率

$$RS = \frac{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2 - \pi \left(\frac{d_r}{2}\right)^2}{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2} = \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2}$$

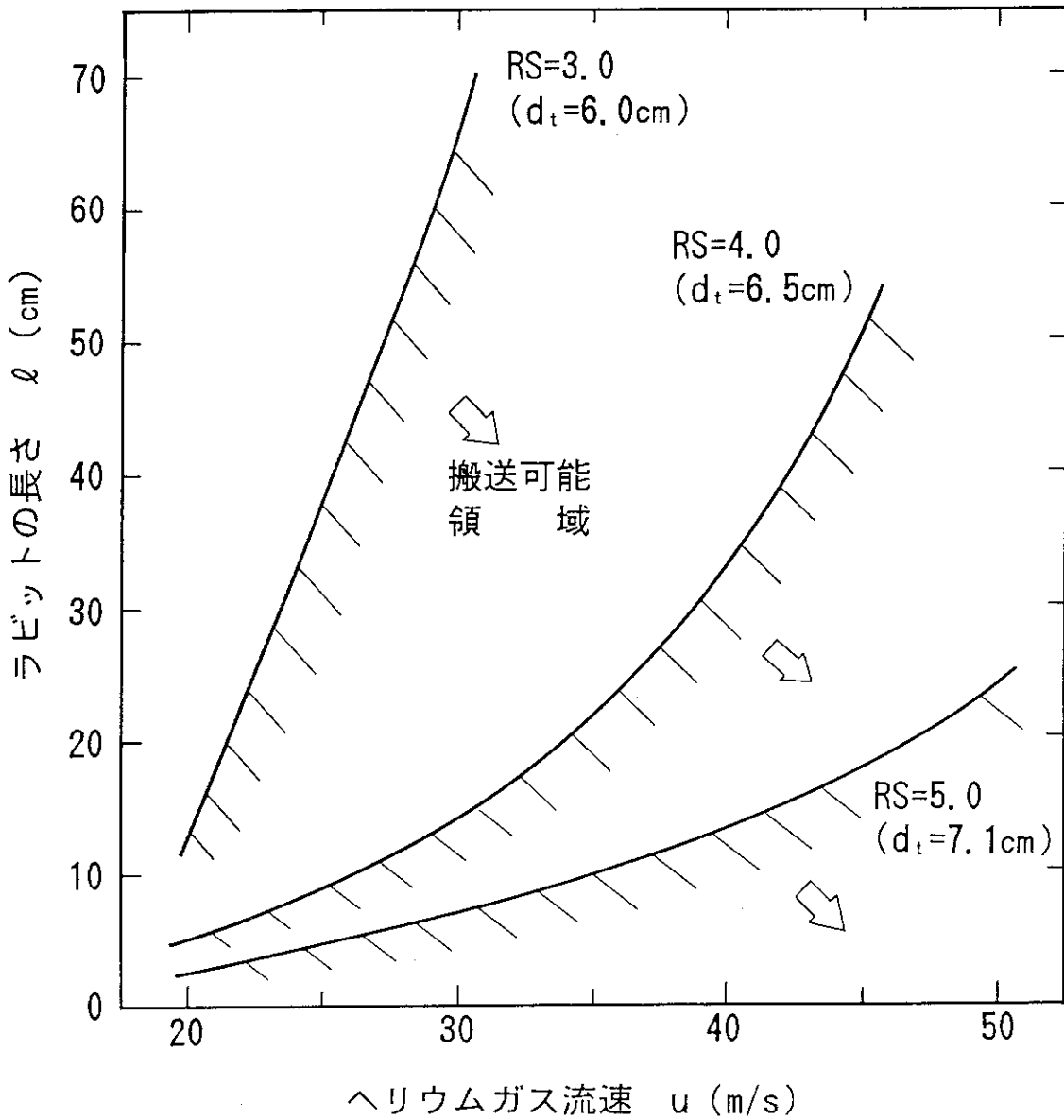
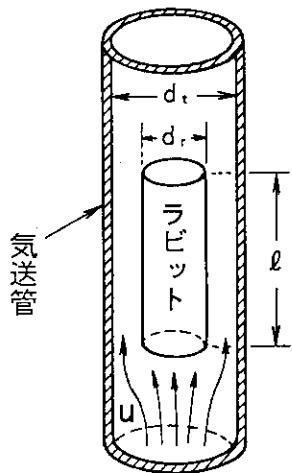


Fig. 5.2.6 Dimensions of rabbit for transportation as a function of helium gas velocity.

(Diameter of rabbit  $d_r=5.0\text{cm}$ )



RS: ラビットの有無による  
ヘリウムガス流路  
面積の差異の比率

$$RS = \frac{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2 - \pi \left(\frac{d_r}{2}\right)^2}{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2}$$

$$= \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2}$$

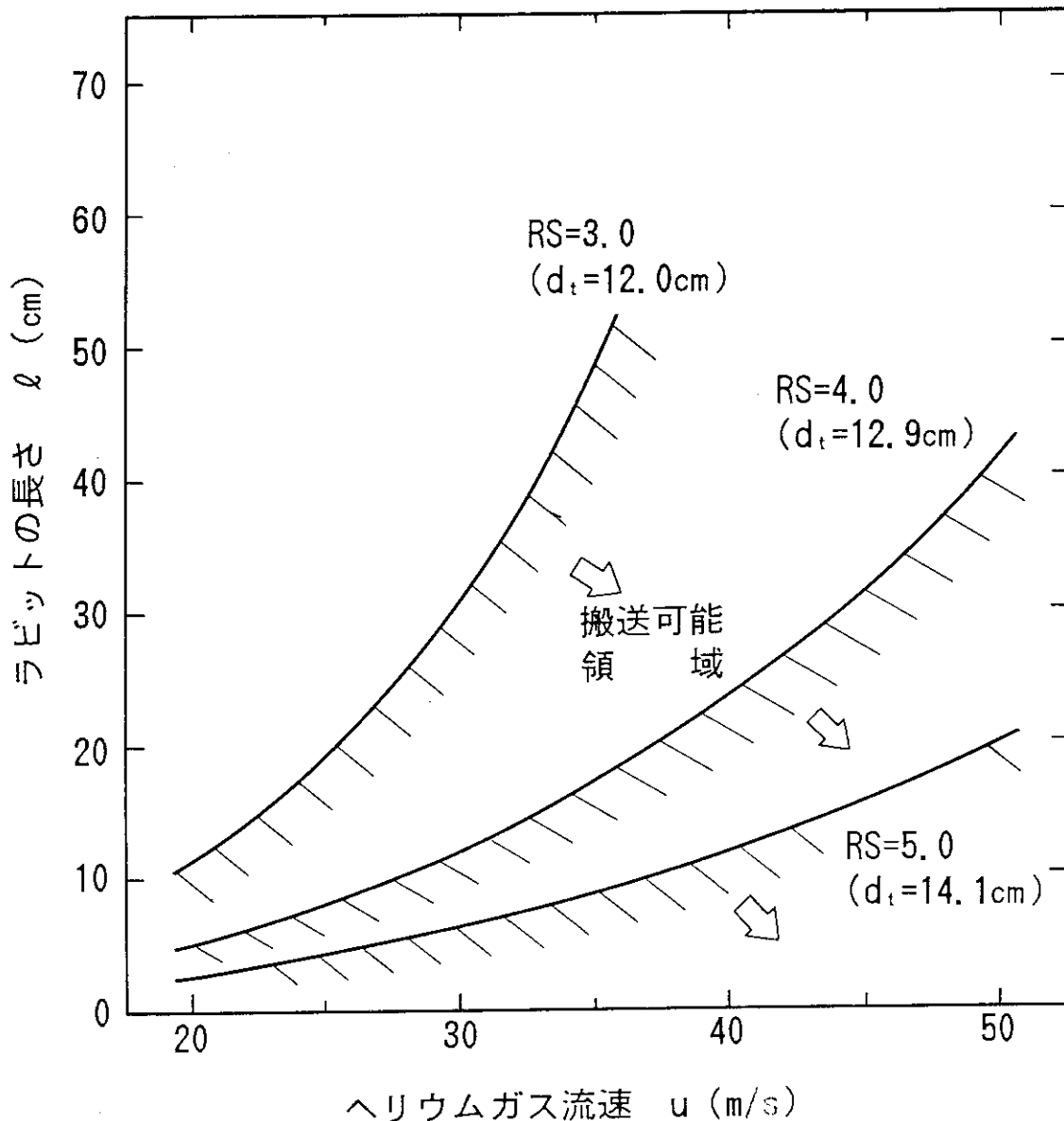
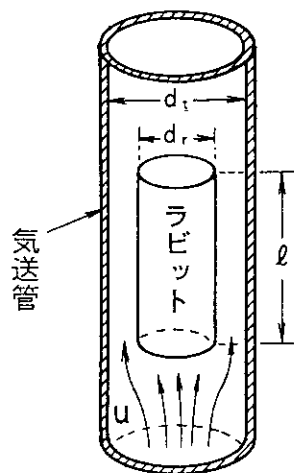


Fig. 5.2.7 Dimensions of rabbit for transportation as a function of helium gas velocity.

(Diameter of rabbit  $d_r=10.0\text{cm}$ )



RS: ラビットの有無による  
ヘリウムガス流路  
面積の差異の比率

$$RS = \frac{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2 - \pi \left(\frac{d_r}{2}\right)^2}{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2}$$

$$= \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2}$$

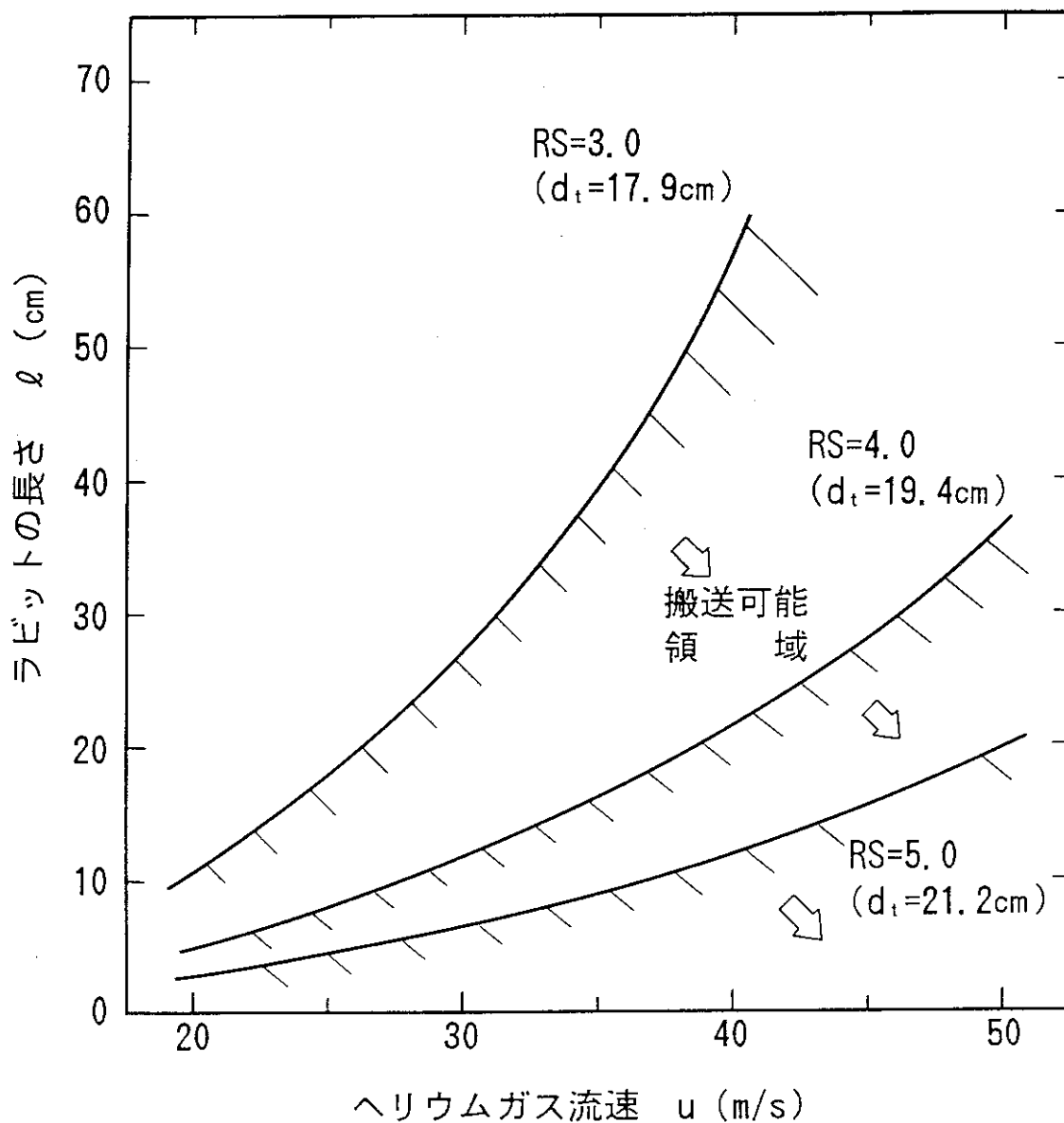
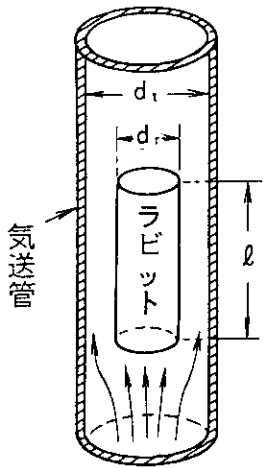


Fig. 5.2.8 Dimensions of rabbit for transportation as a function of helium gas velocity.

(Diameter of rabbit  $d_r=15.0$ cm)





RS: ラビットの有無による  
ヘリウムガス流路  
面積の差異の比率

$$RS = \frac{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2 - \pi \left(\frac{d_r}{2}\right)^2}{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2}$$

$$= \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2}$$

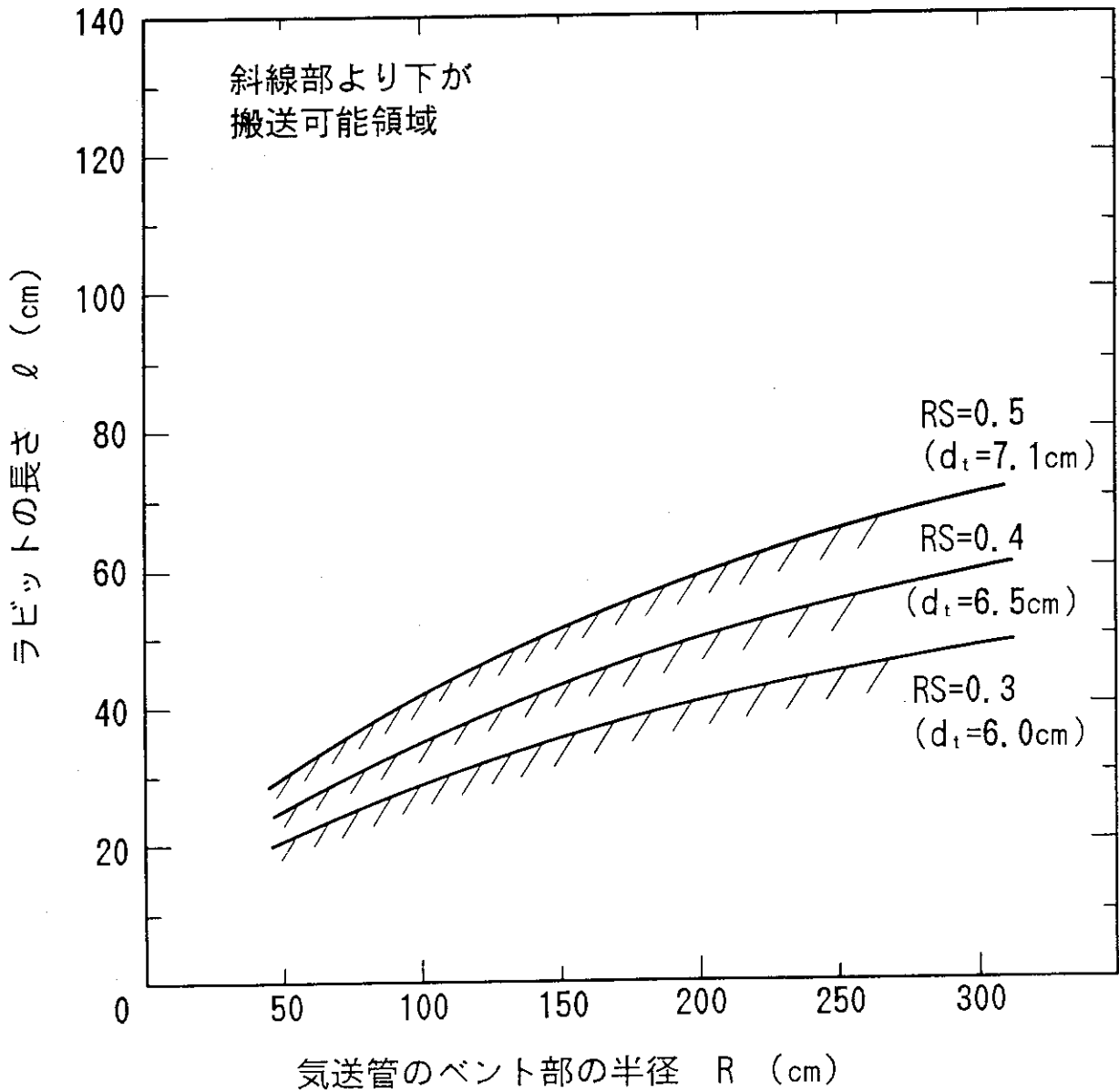
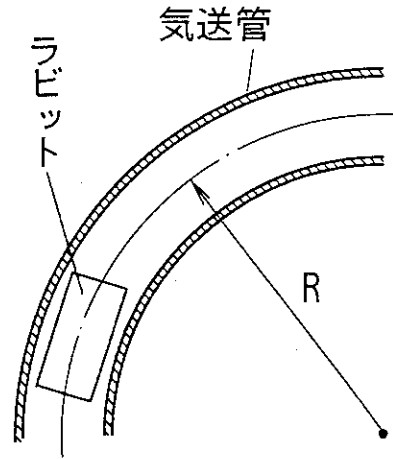
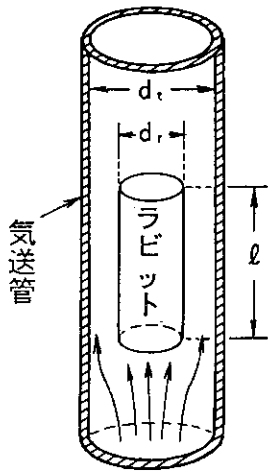


Fig. 5.2.9 Dimensions of rabbit for transportation as a function of radius of pneumatic tube bent part.

(Diameter of rabbit  $d_r=5.0\text{cm}$ )



RS: ラビットの有無による  
ヘリウムガス流路  
面積の差異の比率

$$RS = \frac{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2 - \pi \left(\frac{d_r}{2}\right)^2}{\pi \left(\frac{d_t}{2}\right)^2}$$

$$= \frac{d_t^2 - d_r^2}{d_t^2}$$

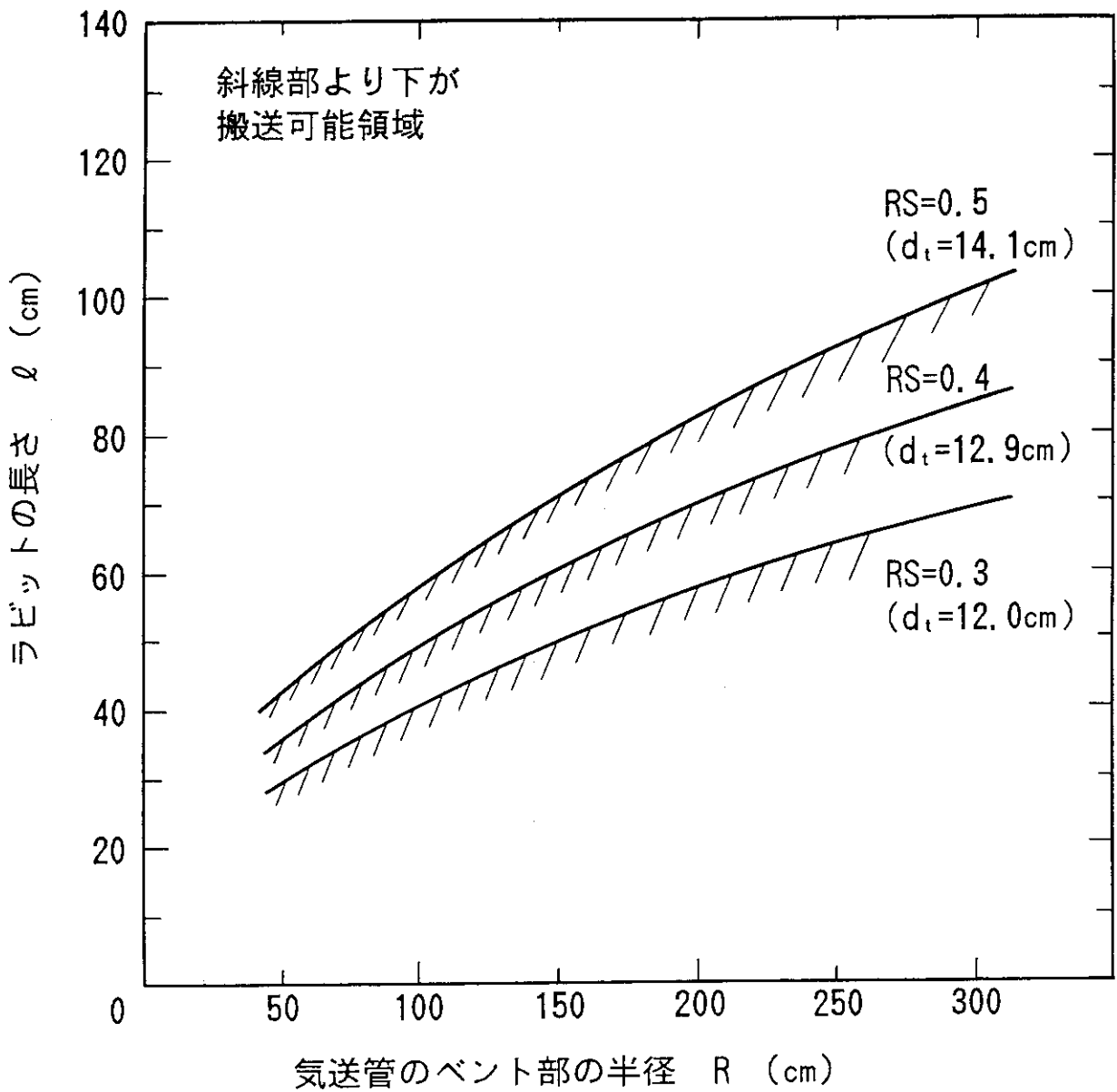
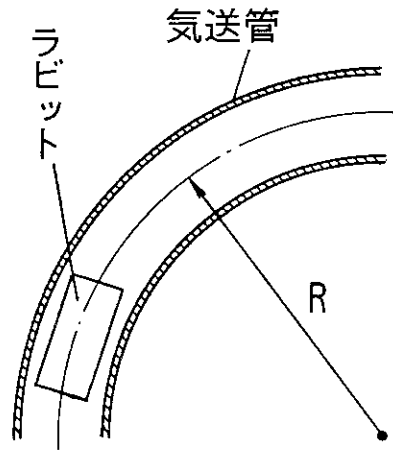


Fig. 5.2.10 Dimensions of rabbit for transportation as a function of radius of pneumatic tube bent part. (Diameter of rabbit  $d_r=10.0\text{cm}$ ).

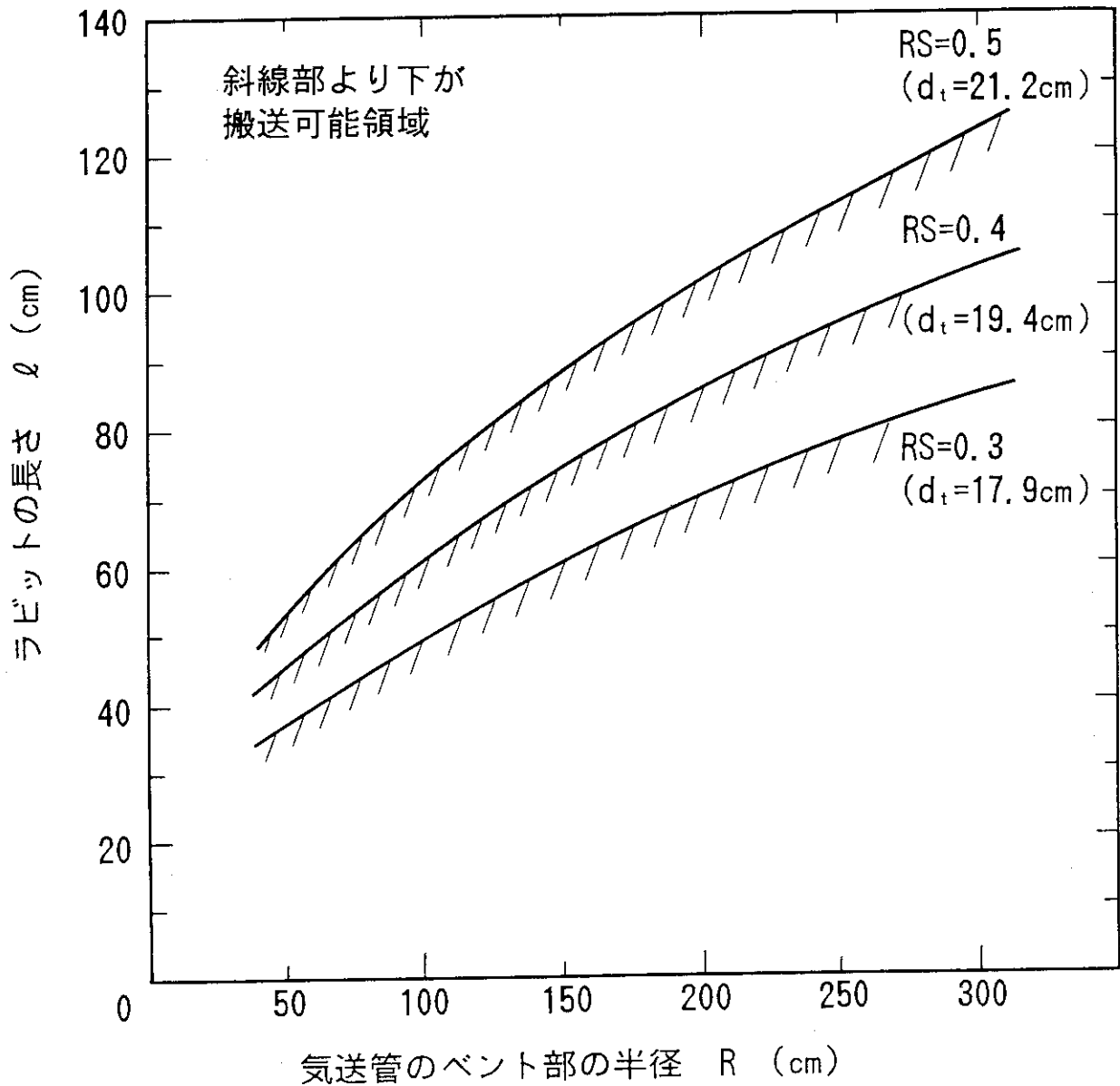
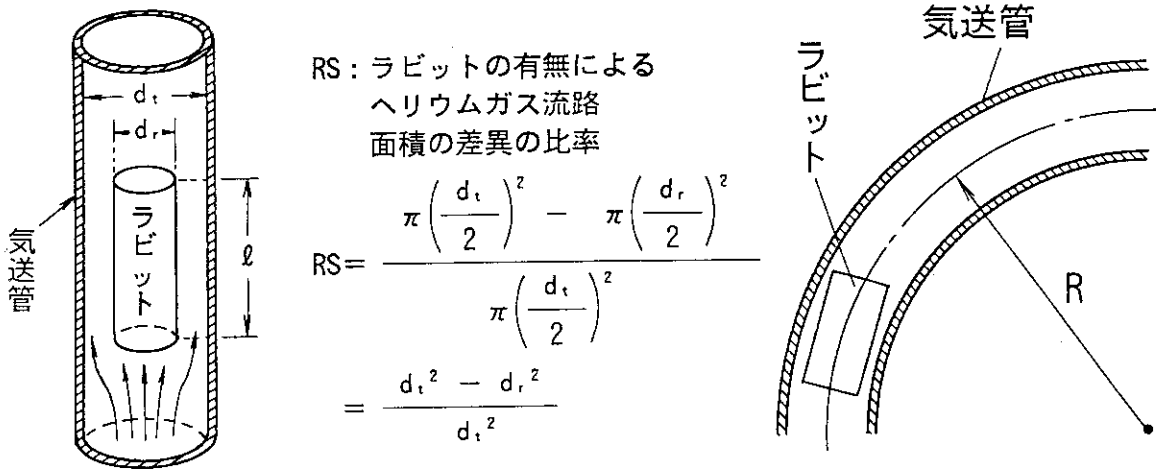


Fig. 5.2.11 Dimensions of rabbit for transportation as a function of radius of pneumatic tube bent part. (Diameter of rabbit  $d_r=15.0\text{cm}$ ).

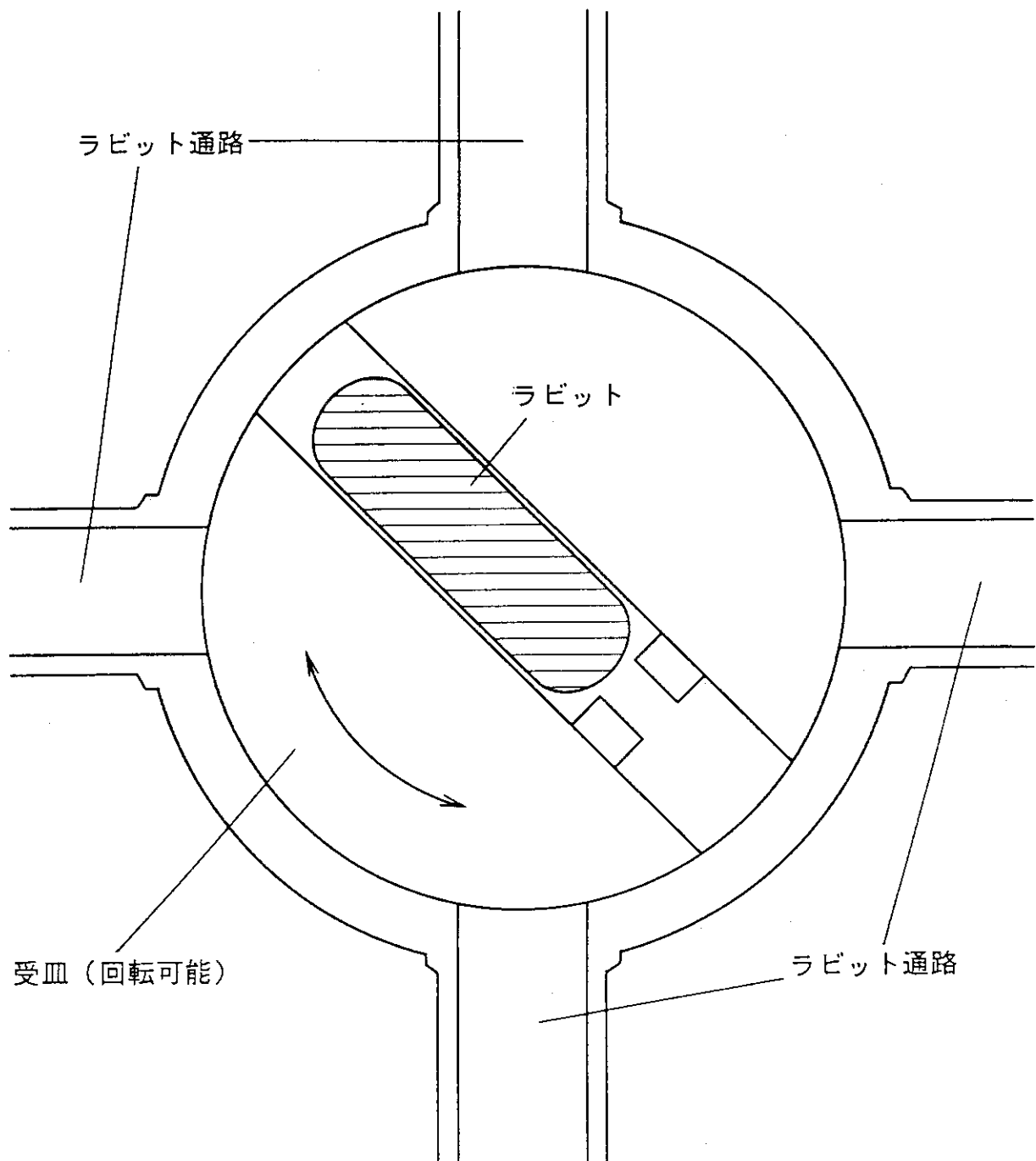


Fig. 5.2.12 Inner structure of route changer for rabbit irradiation facility.

## 6. まとめ

シリコン半導体に比べて耐熱性、耐放射線性に優れた高性能を有する半導体として、現在GaAsが一般的に使用されているが、結晶成長中に不純物を熱拡散的に混入する従来の方法では、シリコンに比べて複雑な製造技術や機器を必要とする。また、近未来的に実現可能な高性能半導体としてSiCが注目されており、耐熱性や耐放射線性に関しての性能はGaAsより優れているが、拡散係数が小さいため熱拡散的な不純物混入が困難であり、さらに、大型の結晶の製造技術が確立されていないため実用化には至っていない。

半導体製造技術としてのNTD法は、既にシリコンについては実用化されている。この方法は、単結晶シリコンインゴットに熱中性子を照射して不純物を生成させ半導体を製造するものである。HTTRは大型試料の高温での照射が可能であるという照射場としての特徴を有しており、次世代の高性能半導体として期待されるGaAsやSiCにHTTRの高温環境下で中性子を照射することで、照射損傷を抑制して不純物を生成し、効率的に高性能半導体を製造することができる可能性がある。

本報告書では、まず、NTD法によるSi半導体製造の現状について調べ、その利点・問題点として、

- ・NTD法では熱拡散的に不純物を混入する従来の方法に比べ、不純物分布の均一性の高い半導体を製造できること、
- ・半導体中の不純物量すなわち半導体の抵抗率は、中性子照射量を変えることにより容易に変えられること、
- ・大量生産による採算性の向上や大電力用の大容量素子を製造するためには、大径のインゴットを照射することが望ましいが、照射場の制限により現在は3、4、5インチの径のインゴットの照射が主流であること、
- ・ $^{30}\text{Si}$ が中性子を吸収して生成した不純物である $^{31}\text{P}$ が、更に中性子を吸収して $\beta^-$ 崩壊する際に放出する放射線の量を低減するため、中性子照射量をあまり多くできず、小さな抵抗率の半導体の製造には適していないこと、

を記した。

次に、HTTRを用いた高性能半導体の製造に関して以下の事柄を明らかにした。

(1)耐熱性、耐放射線性に優れた高性能半導体として期待されているSiC、GaAsについて、NTD法による製造の適用性について検討し、

- ・GaAs、SiCともに、同一照射量で比較した場合には、Siほど生成放射能は多くならないこと、
- ・GaAsはSiと比べると熱中性子の吸収が強く、大型のインゴットに熱中性子を照射して不純物を生成させる場合には不純物分布の均一性は非常に悪くなるの

で、NTD法による半導体製造には適していないこと、

- ・ SiCはSiに比べて中性子の吸収が弱いので、Siより均一性の高い不純物分布が達成できること、

を明らかにした。

(2)大型試料の高温での照射が可能なHTTRでNTD法による半導体製造を行う場合の有用性について検討し、

- ・ 高温で中性子照射を行うことにより、結晶成長中に生じた格子欠陥の回復、あるいは照射損傷の低減化が期待され、高品質の半導体素子が得られること、
- ・ HTTRは減速材に中性子吸収の少ない黒鉛を用いており、なおかつ温度分布が平坦化するような燃料の領域別装荷をしていることもあって、水炉に比べて炉内中性子束の分布はかなり平坦であり、かつ、SiCは中性子吸収断面積が小さいので、不純物分布の均一性の高い半導体を製造できること、
- ・ 大型試料の照射が可能であり、将来、大型の結晶の製造が可能になった場合には、大電力用の大容量素子の製造や素子の大量製造による生産性の向上が期待されること、
- ・ 最適な製造方法を究明するための照射試験段階においても、計測器や計測線用のスペースを大きくとることができ、その場計測を行うことで、物性の基礎データの取得に資することができること、

を明らかにした。

(3)HTTRでのNTD法による半導体製造の実現可能性について検討し、

- ・ 照射制御のため、スタンドパイプ内に試料を保持する方法、ラビット照射設備を設置する方法があることを提案し、それに基づき、原子炉の運転中の試料の取り扱いが必要であること、
- ・ 炉心からスタンドパイプを経て実験設備室への配管の引き回しルートを検討し、このルートを用いてラビット照射用の気送管を設置できる可能性があること、
- ・ Figs. 5.2.6、5.2.7、5.2.8に示したように、実用的なヘリウムガスの流速で実用的な寸法のラビットが搬送可能であること、

を明らかにした。

今後の検討課題としては、以下の事柄があることを明らかにした。

- 照射量制御の設備を実現するためには、配管、遮へい、核設計、熱設計、材料等に関して詳細な検討が必要である。
- 高温用炉内計測機器の開発が必要であり、HTTRを用いた高温工学に関する先端的基礎研究としても、熱電対、フルエンスモニタ、イオンチェンバー、SPND等の計測機器や中性子スペクトル、 $\gamma$ 線スペクトルの測定法の開発が研究テーマとして提案されている。

## 謝辞

本報をまとめるにあたり、有益な御指導と数多くの御指摘をいただいた高温工学試験研究炉開発部H T T R原子炉開発室利用開発グループリーダー 羽田一彦氏に深く感謝します。また、貴重なコメントをいただいた高温工学試験研究炉開発部長 飛岡利明氏、同部調査役 田中利幸氏、同部H T T R原子炉開発室長 塩沢周策氏、同室長代理 新藤隆一氏、同部H T T R計画室長 馬場治氏並びに前H T T R計画室長代理（現高温工学部H E N D E L管理室長） 茂木春義氏に感謝の意を表します。さらに、査読して頂き貴重なコメントをいただいた高崎研究所 材料開発部技術開発課長 梨山勇氏並びに討論いただいた同課 伊藤久義氏に深く感謝します。

## 参考文献

- 1) E. CARTMELL, G. W. A. FOWLES, "原書4版 原子価と分子構造" (久保昌二 訳), 丸善株式会社, 東京, (1980).
- 2) 吉田 貞史, 電子技術総合研究所彙報, 54, 第8号(1990).
- 3) 石野 栞, 日本原子力学会誌, 35, No.5(1993).
- 4) 堀口 洋二、梅井 弘: JAERI-M 86-002, "中性子照射によるシリコンドーピング" (1986).
- 5) 那野 比古, "わかりやすい半導体のはなし", 日本実業出版社, 東京, (1987).
- 6) 辻村 重男: JAERI-M 85-149, "シリコンドーピングの最近の動向について", (1986).
- 7) 石樽 顕吉, 原子力工業, 39, 第11号(1993)
- 8) 日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部, "研究炉 — 現状と役割 —", (1992).
- 9) GLENN F. KNOLL, "放射線計測ハンドブック" (木村 逸郎、阪井 英次 訳), 日刊工業新聞社, 東京, 第14章(1983).
- 10) "応用物理ハンドブック", 応用物理学会 編, 丸善株式会社, 東京, (1990).
- 11) "岩波 理化学辞典 第4版", 久保 亮五 他3名 編, 岩波書店, 東京, (1987).
- 12) "半導体ハンドブック(第2版)", 半導体ハンドブック編纂委員会 編, オーム社, 東京, (1977).
- 13) "ニューマテリアルハンドブック", ニューマテリアルハンドブック編集委員会 編, 株式会社昭晃堂, 東京, V編(1993).
- 14) "新素材応用戦略", 新素材R & D G 編, オーム社, 東京, (1993).
- 15) M. H. Young et al., "Neutron Transmutation Doping of Semiconductor Materials", Edited by Robert D. Larrabee, Plenum Press, New York, (1984).

## 謝辞

本報をまとめるにあたり、有益な御指導と数多くの御指摘をいただいた高温工学試験研究炉開発部H T T R原子炉開発室利用開発グループリーダー 羽田一彦氏に深く感謝します。また、貴重なコメントをいただいた高温工学試験研究炉開発部長 飛岡利明氏、同部調査役 田中利幸氏、同部H T T R原子炉開発室長 塩沢周策氏、同室長代理 新藤隆一氏、同部H T T R計画室長 馬場治氏並びに前H T T R計画室長代理（現高温工学部H E N D E L管理室長） 茂木春義氏に感謝の意を表します。さらに、査読して頂き貴重なコメントをいただいた高崎研究所 材料開発部技術開発課長 梨山勇氏並びに討論いただいた同課 伊藤久義氏に深く感謝します。

## 参考文献

- 1) E. CARTMELL, G. W. A. FOWLES, "原書4版 原子価と分子構造" (久保昌二 訳), 丸善株式会社, 東京, (1980).
- 2) 吉田 貞史, 電子技術総合研究所彙報, 54, 第8号(1990).
- 3) 石野 菜, 日本原子力学会誌, 35, No.5(1993).
- 4) 堀口 洋二、梅井 弘: JAERI-M 86-002, "中性子照射によるシリコンドーピング" (1986).
- 5) 那野 比古, "わかりやすい半導体のはなし", 日本実業出版社, 東京, (1987).
- 6) 辻村 重男: JAERI-M 85-149, "シリコンドーピングの最近の動向について", (1986).
- 7) 石樽 顕吉, 原子力工業, 39, 第11号(1993)
- 8) 日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部, "研究炉 — 現状と役割 —", (1992).
- 9) GLENN F. KNOLL, "放射線計測ハンドブック" (木村 逸郎、阪井 英次 訳), 日刊工業新聞社, 東京, 第14章(1983).
- 10) "応用物理ハンドブック", 応用物理学会 編, 丸善株式会社, 東京, (1990).
- 11) "岩波 理化学辞典 第4版", 久保 亮五 他3名 編, 岩波書店, 東京, (1987).
- 12) "半導体ハンドブック(第2版)", 半導体ハンドブック編纂委員会 編, オーム社, 東京, (1977).
- 13) "ニューマテリアルハンドブック", ニューマテリアルハンドブック編集委員会 編, 株式会社昭晃堂, 東京, V編(1993).
- 14) "新素材応用戦略", 新素材R & D G 編, オーム社, 東京, (1993).
- 15) M. H. Young et al., "Neutron Transmutation Doping of Semiconductor Materials", Edited by Robert D. Larrabee, Plenum Press, New York, (1984).



- 16) John J. Ramarsh, "原子炉の初等理論"(竹田、仁科 訳), 吉岡書店, 東京, (1974).
- 17) 日本原子力研究所 私信
- 18) 日本原子力研究所 大洗研究所 材料試験炉部, "JMTR照射ハンドブック", (1987).
- 19) 黒沢 正義、鳥居 義也: JAERI-M 86-052, "JRR-2中濃縮炉心の核設計"(1986).
- 20) James J. Duderstadt, Louis J. Hamilton, "原子炉の理論と解析"(成田、藤田 訳), 現代工学社, 東京, (1981).
- 21) 日本原子力研究所 私信
  
- 22) "新版 原子力ハンドブック", 浅井 忠一 他5名 監修, オーム社, 東京, (1989).
- 23) "ファインセラミックス事典", ファインセラミックス事典編集委員会 編, 技報堂出版株式会社, 東京, (1987).
- 24) "化学便覧 応用化学編", 社団法人 日本化学会 編, 丸善株式会社, 東京, (1986).
- 25) Masaharu YAMADA and Katuyuki ARA: J. Nucl. Sci. Technol., 31, 609(1994).
- 26) 河東田 隆, "半導体評価技術", 産業図書株式会社, 東京, (1989).

## 付録1 Si及びSiC円柱状インゴット内における中性子束分布

Si, SiC円柱状インゴットを照射した場合のインゴット内における中性子束の分布を調べるにあたり、インゴット表面を中性子源としたインゴット内における中性子連続の方程式を考える。ここで、中性子エネルギーを1群として定常状態を仮定した場合、円柱座標で表したインゴット内の点 $(r, \theta, z)$ における中性子連続の方程式は、

$$\text{div } J(r, \theta, z) + \Sigma_a \phi(r, \theta, z) - S(r, \theta, z) = 0 \quad \dots (1)$$

と表すことができる。ベクトル $J$ は中性子流、 $S$ は中性子源、 $\phi$ は中性子束、 $\Sigma_a$ は中性子マクロ吸収断面積である。Si、SiC共に、中性子の吸収断面積が散乱断面積に比べて無視できるほど小さいので、Si、SiCの円柱状インゴット内では拡散近似を適用することができる。その場合、中性子流に関する項は、

$$\text{div } J(r, \theta, z) = -D \text{grad } \phi(r, \theta, z) \quad \dots (2)$$

と表すことができる。ここで、 $D$ は拡散係数であり、

$$D = \frac{1}{3 \Sigma_s (1 - \mu)} \quad \dots (3)$$

で表される。 $\Sigma_s$ は中性子マクロ散乱断面積、 $\mu$ は実験室系における平均散乱角余弦である。(1)式に(2)式を代入すると、

$$-D \nabla^2 \phi(r, \theta, z) + \Sigma_a \phi(r, \theta, z) = S(r, \theta, z) \quad \dots (4)$$

となる。ここで、本節Fig. 4.4.3に示したように、円柱状インゴットの円周から軸に向かって中性子が照射される場合を考えると、円柱座標 $(r, \theta, z)$ において $r$ 方向のみ考えれば良い。また、中性子源はインゴット内に存在しないので、(4)式を円柱座標を用いて書き換えると、

$$\frac{\partial^2 \phi(r)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \phi(r)}{\partial r} - \frac{1}{L^2} \phi(r) = 0 \quad \dots (5)$$

となる。ここで、 $1/L^2 = \Sigma_a/D$ である。(5)式をインゴットの半径 $R$ において、 $\phi(R) = \phi_0$ の境界条件で解けば、インゴット内の中性子束分布を調べることができる。(5)式の基本解は、0次の第1種変形ベッセル関数 $I_0$ を用いて、

$$\phi(r) = C \cdot I_0(r/L) \quad (C = \text{const.}) \quad \dots (6)$$

と表される。境界条件 $\phi(R) = \phi_0$ を用いると、

$$\phi(r) = \phi_0 \frac{I_0(r/L)}{I_0(R/L)} \quad \dots (7)$$

となる。

Si、SiCに関して、ここで使用した熱中性子に対する吸収断面積及び各種定数を付表1-1<sup>20)</sup>に示す。

付表I-1 Si、SiCの熱中性子に対する断面積及びその他の定数<sup>2,0)</sup>

項目 半導体材料	原子数密度 $N(\text{cm}^{-3})$	マイクロ吸収断面積 $\sigma_a(b)$	マイクロ散乱断面積 $\sigma_s(b)$	$1-\mu$
Si	$4.99 \times 10^{22}$	0.0992	1.7	0.9762
SiC	$4.82 \times 10^{22}$	0.0516	3.3	0.9603

注) 計算においては、 $\Sigma = N \times \sigma$  の関係を用いた。

## 付録2 ラビット輸送計算

## 1. 計算方法

ラビット輸送に最低限必要となるヘリウムの流速を調べるため、Fig. 5.2.5に示すように、ラビットに下方からヘリウムをブローしてラビットを気送管中に静止させる場合を考え、ヘリウムの流速とラビットの寸法との関係を調べた。今後、ラビットの下面をA面、上面をB面と呼ぶ。

ラビットを静止させている場合、ラビットに働く力はFig. 5.2.5に示すように浮力、重力、流体からの推進力であり、これらの力は以下のように釣り合う。

$$F_b - F_w + F_p = 0 \quad \dots (1)$$

$F_b$  : 浮力

$F_w$  : 重力

$F_p$  : 流体からの推進力

ここでは、力の方向は上方向を正としている。

## (1) 浮力

浮力 $F_b$ は、ラビットがその体積の分だけヘリウムを押しのけたことにより上向きにかかる力であり、以下の式により求めることができる。

$$F_b = \rho V_r g \quad \dots (2)$$

$\rho$  : ヘリウムの密度

$$= 1.4766 \text{ kg/m}^3 \text{ (4MPa, 1300K)}$$

$V_r$  : ラビットの体積

$g$  : 重力加速度

$$= 9.8 \text{ m/s}^2$$

## (2) 重力

重力 $F_w$ は、ラビットの自重により下向きにかかる力であり、以下の式により求めることができる。

$$F_w = \rho_r V_r g \quad \dots (3)$$

$\rho_r$  : ラビットの密度

$$= 3.2 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$$

## (3) 流体からの推進力

流体からの推進力 $F_p$ は、以下に示すように、流体の動圧とラビット上下における静圧差により上向きにかかる力である。

$$F_p = F_{pd} + F_{ps} \quad \dots (4)$$

$F_{pd}$  : 流体の動圧によりラビットA面(下面)にかかる上向きの力

$F_{ps}$  : ラビット上下における静圧差による上向きの力

(i) 流体の動圧による力  $F_{pd}$

流体の動圧による力  $F_{pd}$  は以下の式により求めることができる。

$$F_{pd} = \frac{1}{2} \rho u_0^2 S_r \quad \dots (5)$$

$u_0$  : ラビットA面に当たるヘリウムの流速

$S_r$  : ラビットA面の面積

(ii) ラビット上下における静圧差による力  $F_{ps}$

ラビット上下における静圧差による力  $F_{ps}$  は以下の式により求めることができる。

$$F_{ps} = \Delta p S_r \quad \dots (6)$$

$\Delta p$  : ラビット上下における静圧差

ここで、ラビット上下における静圧差  $\Delta p$  は以下の式で表される。

$$\Delta p = \Delta p_a + \Delta p_b + \Delta p_c + \Delta p_d - \Delta p_e \quad \dots (7)$$

$\Delta p_a$  : ラビットA面後における流速の増加による静圧の減少分

$\Delta p_b$  : ラビットA面後における流路の急縮小による損失分

$\Delta p_c$  : ラビットに沿ってA面からB面まで進む間の摩擦損失分

$\Delta p_d$  : ラビットB面後における流路の急拡大による損失分

$\Delta p_e$  : ラビットB面後における流速の減少による静圧の増加分

$\Delta p$  の各成分とラビットの垂直軸に沿ったそれぞれの位置におけるヘリウムの圧力及び流速を付図2-1に示す。 $\Delta p$  の各成分とそれぞれの位置におけるヘリウムの圧力は以下のように対応している。

$\Delta p_a$  :  $p_0 \rightarrow p_1'$  による静圧の減少分

$\Delta p_b$  :  $p_1' \rightarrow p_1$  による静圧の減少分

$\Delta p_c$  :  $p_1 \rightarrow p_2$  による静圧の減少分

$\Delta p_d$  :  $p_2 \rightarrow p_3'$  による静圧の減少分

$\Delta p_e$  :  $p_3' \rightarrow p_3$  による静圧の増加分

①  $\Delta p_a$  の導出

ラビットA面の前後において、ベルヌーイの式が成り立つとすると  $p_1'$  は以下の式で表すことができる。

$$p_1' = p_0 - \frac{1}{2} \rho (u_1^2 - u_0^2) \quad \dots (8)$$

ここで、ラビットA面前後における連続の式から  $u_1$  は以下の式で表すことができる。

$$u_1 = u_0 \frac{S_t}{S_g} \quad \dots (9)$$

$S_t$  : 気送管水平断面の流路面積

$S_g$  : ラビット側部の水平断面の流路面積

また、 $S_t$  及び  $S_g$  は以下の式で表すことができる。

$$S_t = \pi \frac{d_t^2}{4} \quad \dots (10)$$

$$S_g = \pi \frac{d_t^2 - d_r^2}{4} \quad \dots (11)$$

$d_t$  : 気送管内径

$d_r$  : ラビットの水平断面の直径

したがって、 $\Delta p_a$  は以下の式により求めることができる。

$$\begin{aligned} \Delta p_a &= p_0 - p_1' \\ &= \frac{1}{2} \rho (u_1^2 - u_0^2) \quad \dots (12) \end{aligned}$$

### ② $\Delta p_b$ の導出

ラビットA面後において、流路の急縮小による圧力損失  $\Delta p_b$  は以下の式で求めることができる。

$$\Delta p_b = \zeta \frac{1}{2} \rho u_1^2 \quad \dots (13)$$

$\zeta$  : 急縮小損失係数

### ③ $\Delta p_c$ の導出

ラビット側部を流体が通過するにあたり、気送管及びラビットとの摩擦により圧損  $\Delta p_c$  が生じる。この摩擦により、気送管及びラビットには以下に示すせん断応力が加わる。

$$\tau_t = \frac{\lambda}{8} \rho u_1^2 \quad \dots (14)$$

$$\tau_r = \frac{\lambda}{8} \rho u_1^2 \quad \dots (15)$$

$\tau_t$  : 気送管に加わるせん断応力

$\tau_r$  : ラビットに加わるせん断応力

$\lambda$  : 管摩擦係数

$$\lambda = 0.1688 R e^{-1/6} \quad \dots (16)$$

$$Re = \frac{u_1(d_i - d_r)}{\nu} \quad \dots (17)$$

Re : レイノルズ数

$\nu$  : 動粘性係数

$$= 20.13 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s} \text{ (4MPa, 900K)}$$

ラビットが静止しているので、摩擦による力の釣り合いは以下の式で表される。

$$\Delta p_c S_g = \tau_i \pi d_i l + \tau_r \pi d_r l \quad \dots (18)$$

$l$  : ヘリウム流路方向のラビットの長さ

よって、 $\Delta p_c$  は以下の式で表される。

$$\Delta p_c = \frac{\lambda l}{(d_i - d_r)} \cdot \frac{1}{2} \rho u_1^2 \quad \dots (19)$$

#### ④ $\Delta p_d$ の導出

ラビットB面後において、ヘリウムの流速は連続の式により  $u_0$  に等しくなるので、流路の急拡大による圧力損失  $\Delta p_d$  は以下の式で求めることができる。

$$\Delta p_d = \xi \frac{1}{2} \rho (u_1 - u_0)^2 \quad \dots (20)$$

$\xi$  : 急拡大損失係数

#### ⑤ $\Delta p_e$ の導出

ラビットB面の前後において、ベルヌーイの式が成り立つとすると  $p_3$  は以下の式で表すことができる。

$$p_3 = p_3' + \frac{1}{2} \rho (u_1^2 - u_0^2) \quad \dots (21)$$

したがって、 $\Delta p_e$  は以下の式により求めることができる。

$$\begin{aligned} \Delta p_e &= p_3 - p_3' \\ &= \frac{1}{2} \rho (u_1^2 - u_0^2) \quad \dots (22) \end{aligned}$$

以上では、ヘリウムの流路においてベルヌーイの式が成り立つとしているため、 $\Delta p_d$  と  $\Delta p_e$  は等しくなり、(7) 式中で両者は打ち消しあう。したがって、(7) 式は以下のように書き換えることができる。

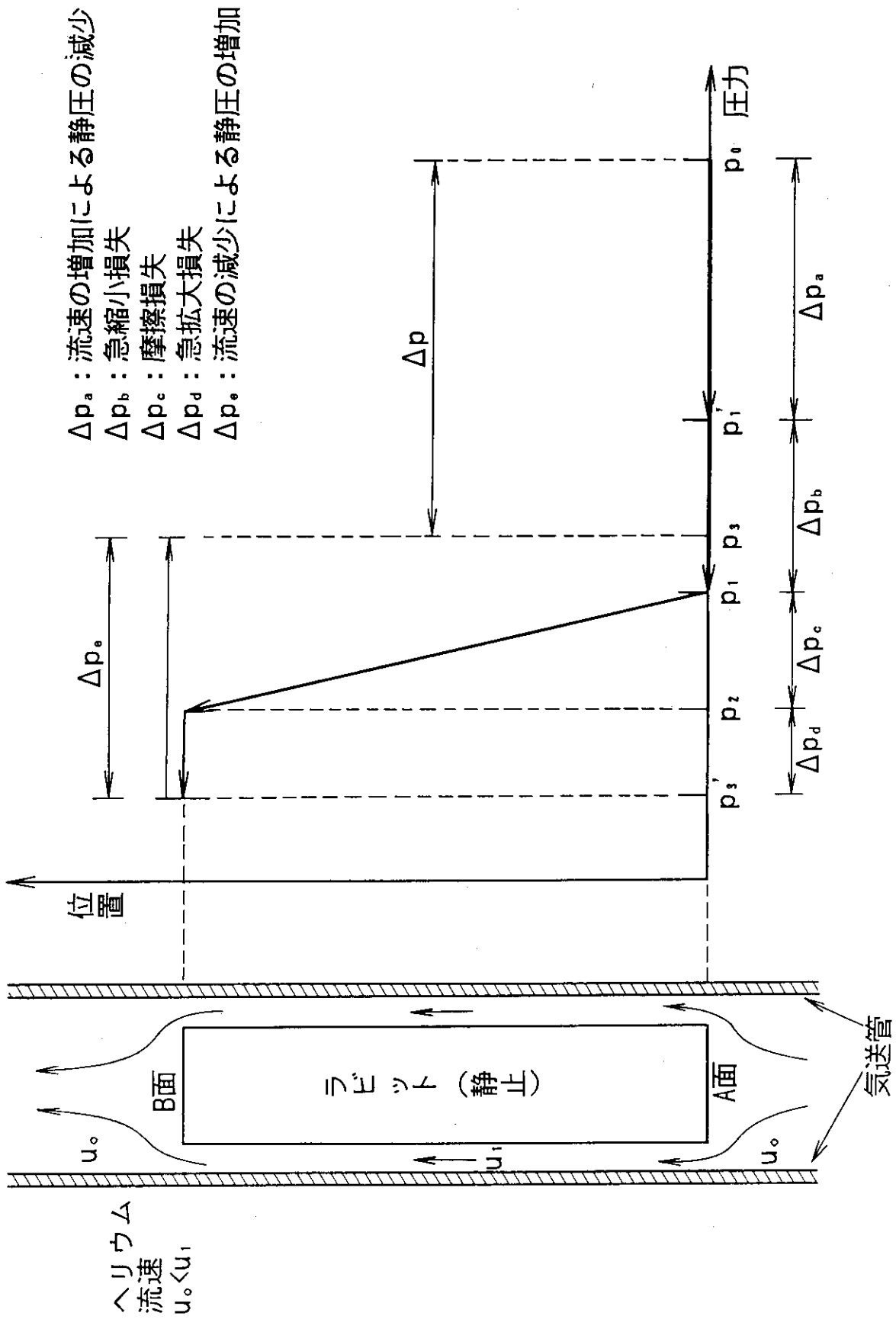
$$\Delta p = \Delta p_b + \Delta p_c + \Delta p_d \quad \dots (23)$$

## 2. 解析上の仮定

急縮小損失係数  $\zeta$  や急拡大損失係数  $\xi$  は文献から読み取った値を採用することとし

たが、ラビットが管中に存在することにより生じる流れの急縮小や急拡大について詳細に調べられた文献を見つけることはできなかった。今回は、ラビット輸送の実現可能性を調べる初期的な解析であるので、急縮小損失係数や急拡大損失係数は流路面積の変化率に比例するものと仮定し、管の径が急激に細くなる場合、あるいは、急激に太くなる場合の各々の係数を管中にラビットが存在する事により生じる流路面積の急拡大や急縮小に対して、その流路面積の変化率に合わせて適用することとした。





付図2-1 ラビット静止時の各位置におけるヘリウムの圧力

## 付録3 ラビット用気送管のベント部に必要な半径の計算

ラビットを炉心から原子炉格納容器の外に取り出すには、気送管を曲げて引きまわさなくてはならないが、その際、管を急激に曲げて引きまわすとラビットがスムーズに進行しない。ここでは、付図3-1に示すように、径が $d_r$ 、長さ $l$ の円柱状ラビットを内径 $d_i$ の管内を通す場合に必要となる管のベント部における半径を求める。 $R$ は管の中央、 $r$ は管の内壁におけるベント部の半径である。ここで、

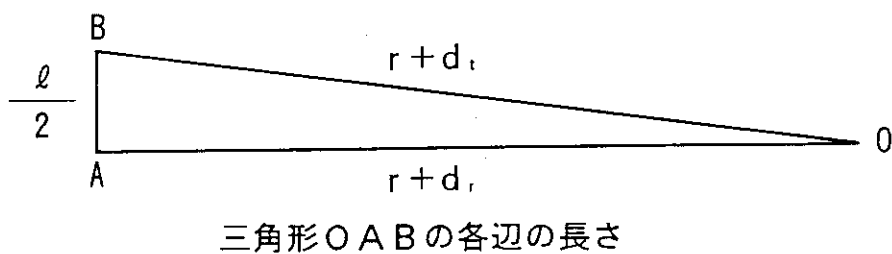
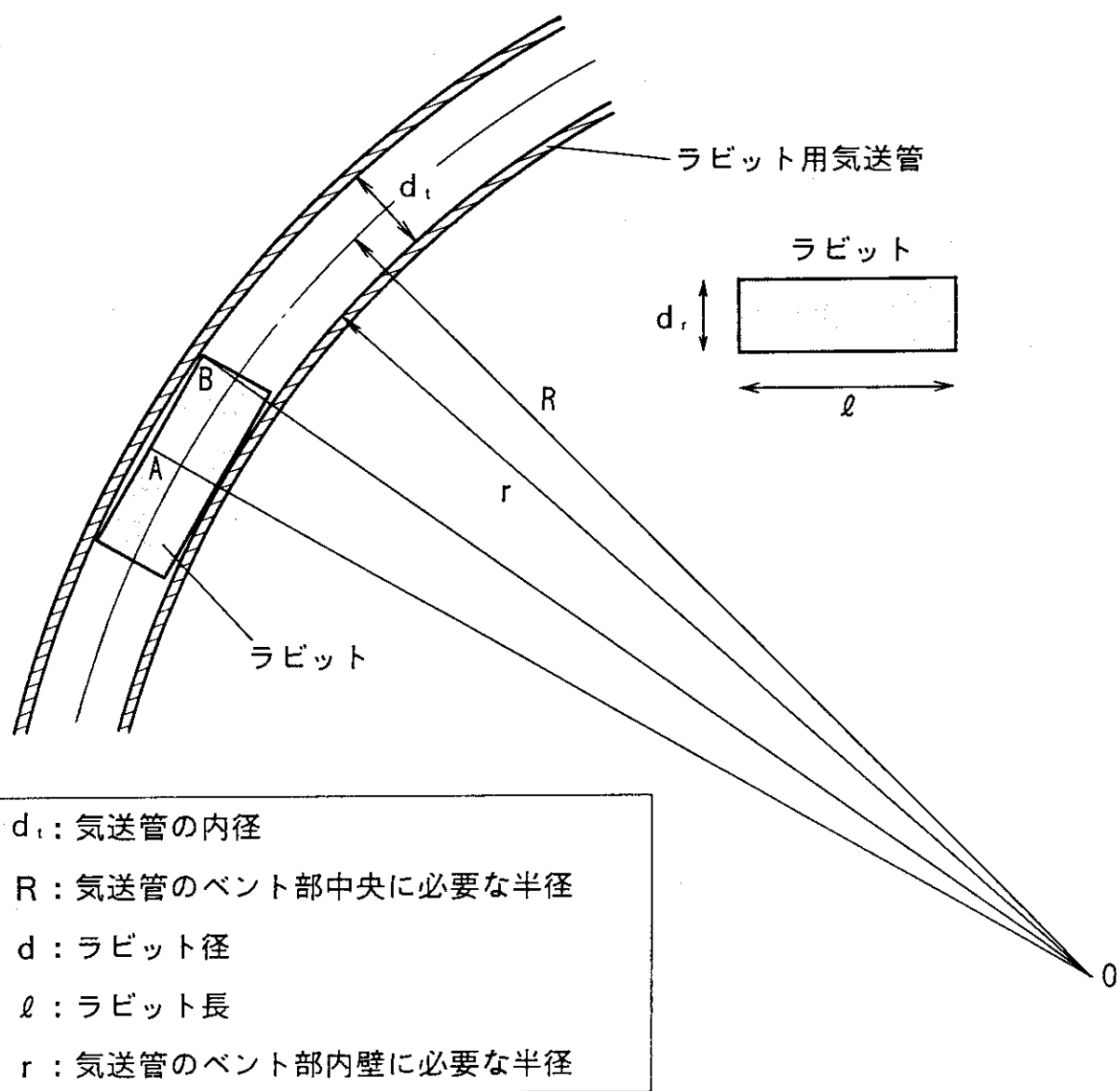
$$R = r + d_i / 2 \quad , \quad \dots (1)$$

が成り立つ。必要となる $R$ の最小値は、付図2-1に示す様に、ラビットの両端及び中央部が管の内壁に接触する場合のものである。この場合、三角形 $OAB$ において、

$$(r + d_i)^2 = (r + d_r)^2 + (l / 2)^2 \quad , \quad \dots (2)$$

が成り立つ。

本文(5.2.2)式で定義した $RS$ 及び $d_r$ をパラメータとし、(1)、(2)式より $R$ に対して搬送可能なラビットの長さ $l$ を求める。



付図3-1 気送管のベント部におけるラビットの通過を評価するためのモデル