

先端計測技術の融合で実現する 高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発



高エネルギー加速器研究機構 (KEK)



物質・材料研究機構 (NIMS)



海上・港湾・航空技術研究所/海上技術安全研究所 (NMRI)

平成30年度～令和2年度「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」
課題解決型廃炉研究プログラムから

量子科学技術研究開発機構 萩原雅之

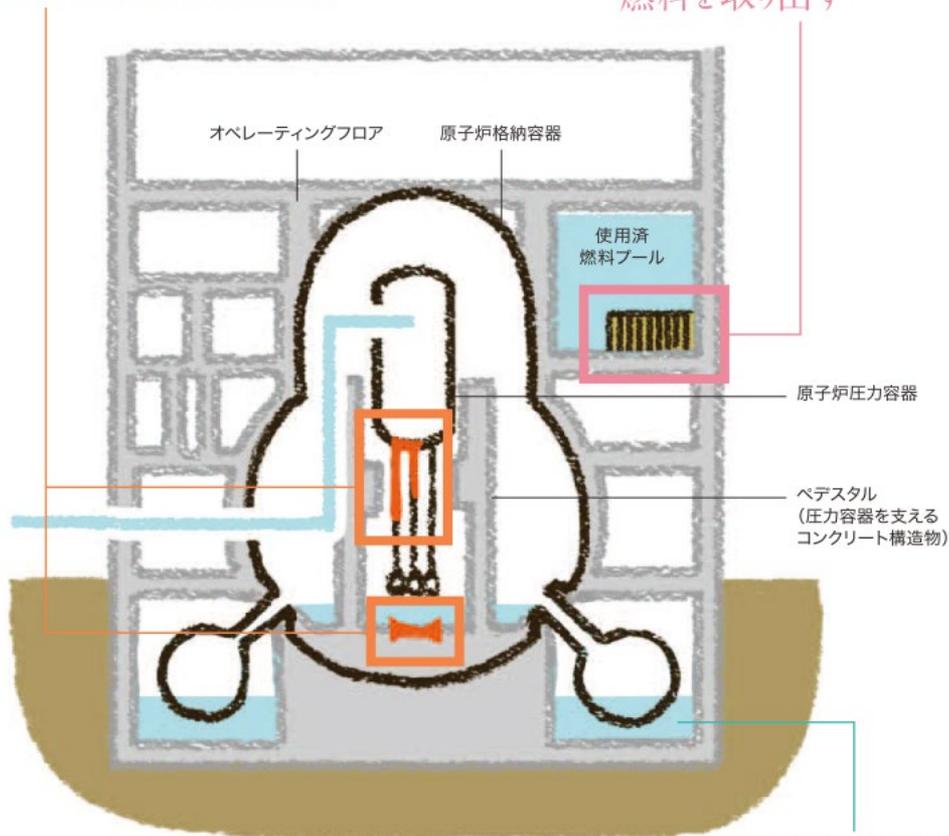
廃炉作業 全体概要



●燃料デブリを取り出す

※燃料デブリ: 燃料と構造物等が溶けて固まったもの

★使用済燃料プールから 燃料を取り出す



■汚染水対策

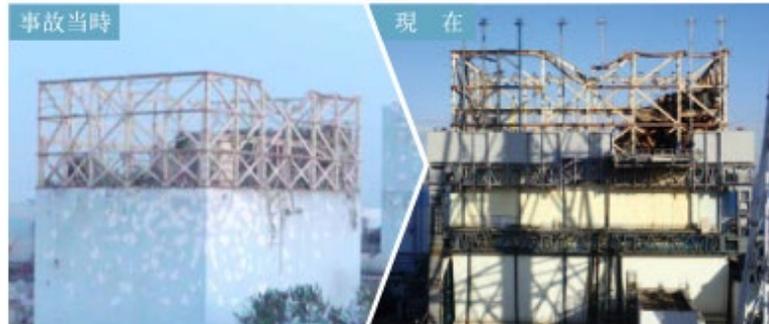
原子炉建屋(概念図)

福島第一原子力発電所の当面の課題



■ 発電所内の状況

1号機



福島第一原子力発電所の廃炉作業の安全性を確保するためには

- 燃料デブリ・炉内構造物等の状況把握
- 臨界リスク管理
- 燃料デブリ取出しの早期実現 が必要

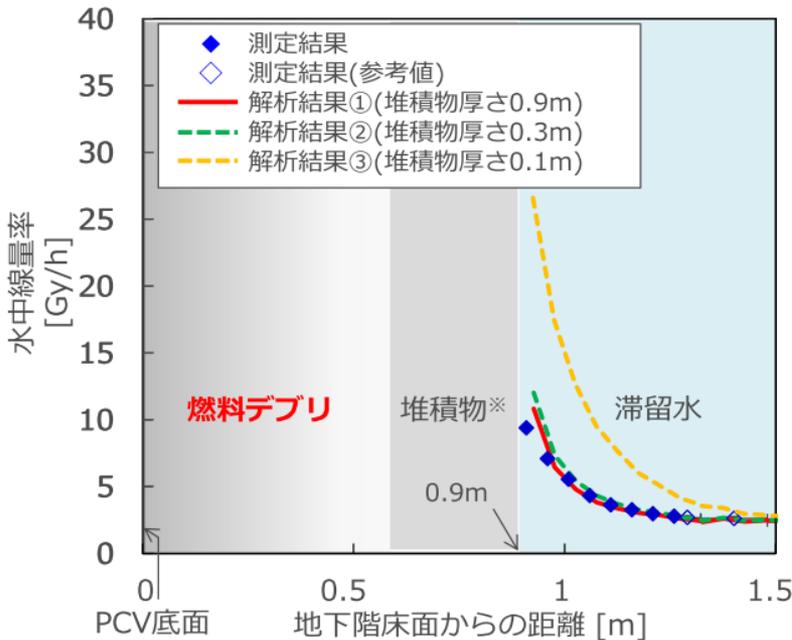
1号機原子炉格納容器内部調査について ～映像データ及び線量データの分析結果～

D2③ポイント

廃炉・汚染水対策チーム会合/
事務局会議(第44回) 2017/7/27
資料より



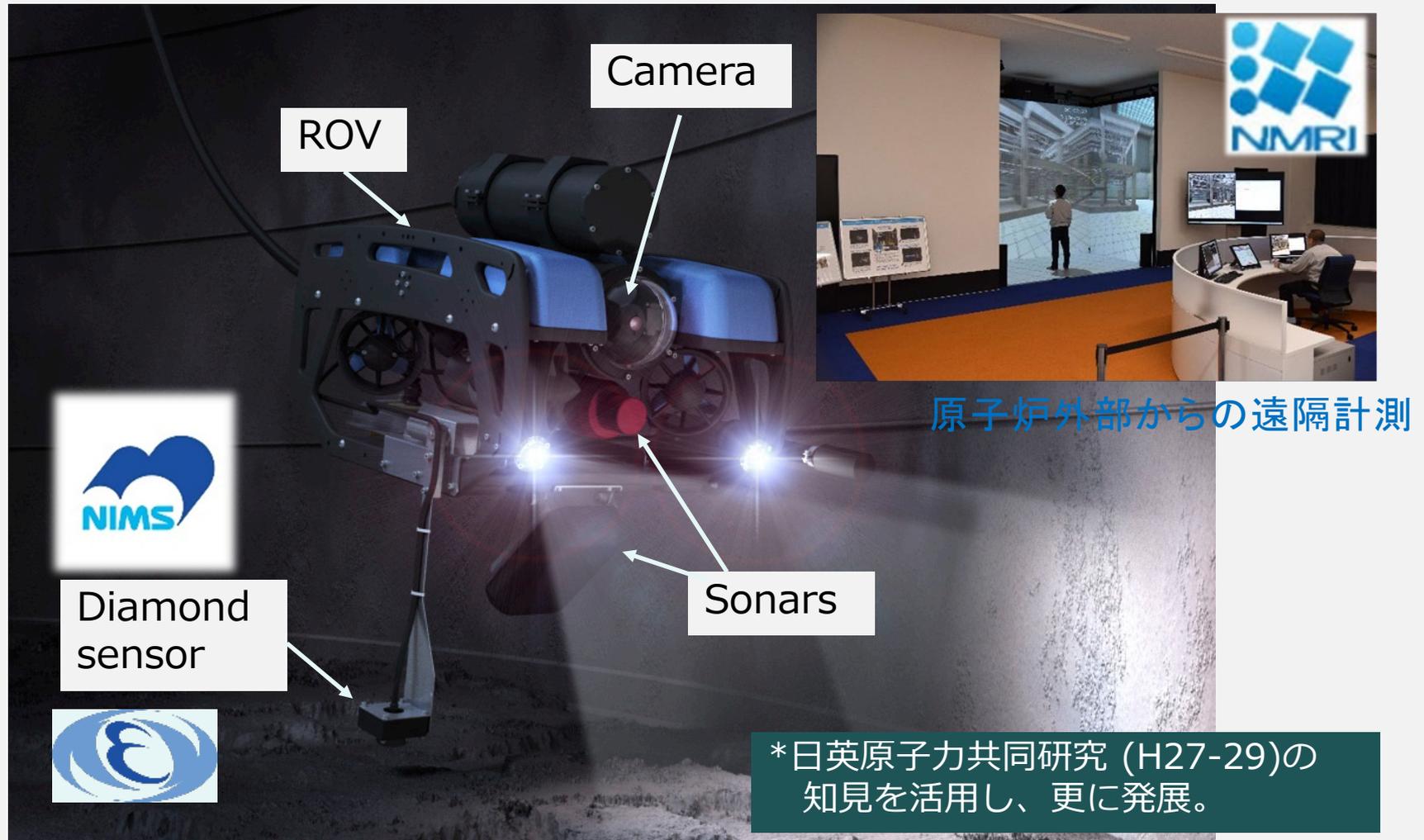
堆積物厚さが不明のため
燃料デブリの有無を判別
できず。



目標

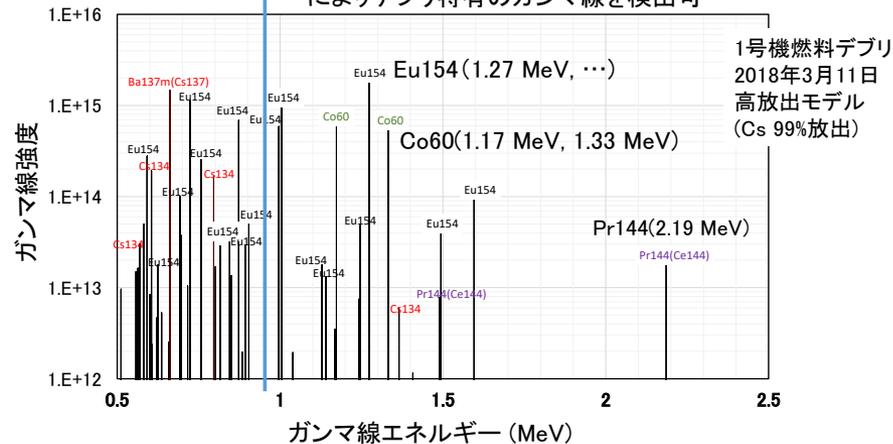
非常に高い放射線環境 (>数10 Gy/h) において
冠水し、堆積物に覆われている燃料デブリの分布状況や臨界性を
「その場」で測定・分析できる技術の開発。

冠水した燃料デブリの分布状況を「その場」で測定・分析することを目的とした、ROV、ソナー、中性子センサーからなる複合計測技術の基盤研究

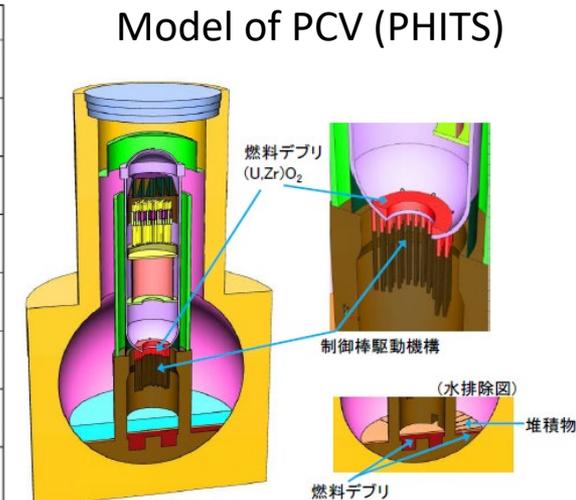
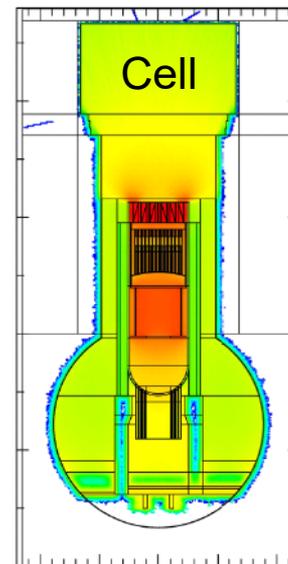


Most Probable dose rate distribution in PCV*

Cs汚染, コンプトン影響大 ← ある程度のエネルギー分解能を有するガンマ線検出器によりデブリ特有のガンマ線を検出可



- Photons > 1 MeV :Eu154(8.6y), Co60(5.3y), Pr144/Ce144(285d)
- Neutrons : Cm244 spontaneous fission, Actinides via (α, n) reactions: $10^2 \sim 10^6 \text{ cm}^2/\text{s}$
- High energy photons via (n, γ), (n,f) reactions



Upper side access Lateral side access

*UK Japan Collaborative Civil Nuclear Research Program (2015-2018)

- 非常に高いγ線環境 (>数10 Gy/h) . . . **パイルアップ対策**
- 微弱な中性子束 (<10⁶ cm²/s) . . . **高いS/N~10、感度が必要**
- **小型・軽量** . . . 重厚な鉛遮へいは困難
- 耐放射線性 . . . 測定回路も含めたシステム全体に要求
- 温度 (<60℃) . . . 熱雑音に弱い検出器は困難

➡ 熱中性子コンバータ+薄型ダイヤモンド検出器

Semiconductor device	Si	Diamond	SiC(4H)	GaN	GaAs
Bandgap(eV)	1.12	5.48	3.27	3.39	1.42
ε value (eV)	3.6	13	7.8	8.9	4.6
Electron mobility (cm ² /Vs)	1500	1800	1000	1200	9200
hole mobility (cm ² /Vs)	450	1500	115	~30	320
Dielectric constant	11.9	5.7	9.7	8.9	12.4
Thermal conductivity (W/cm/°C)	1.5	20.9	4.9	1.3	0.46

Low noise -> suitable to a sensor device under harsh environments

1. 中性子検出用ダイヤモンドセンサーの研究開発

- ① 高品質ダイヤモンド成長に関する研究 (NIMS)
- ② センサー開発プロセスに関する研究 (NIMS)
- ③ 中性子検出用センサー構造に関する研究 (NIMS+KEK)



2. 耐放射線集積回路開発と核分裂中性子測定システムの開発

- ④ 耐放射線センサー信号処理集積回路の研究開発 (KEK)
- ⑤ 核分裂中性子測定システムの開発 (KEK+NMRI)



3. 複合型センサーを搭載したROV(水中ロボット)による遠隔計測技術の開発

- ⑥ 音響探査装置と中性子センサーを組み合わせた複合型センサーの開発 (NMRI+KEK)
- ⑦ 原子炉外部からROVによる遠隔計測を可能にする遠隔操作技術の開発 (NMRI)

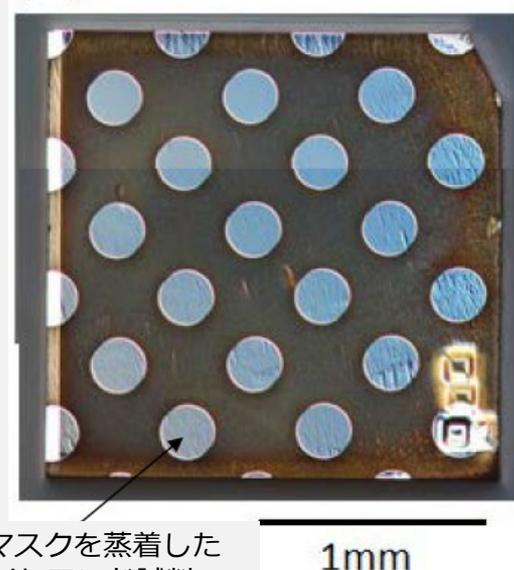


① 高品質ダイヤモンド成長に関する研究 (NIMS)

- 量子コンピューター用センサー開発技術を活かし、超高純度高品質膜の作製を行う。
γ線に対する感度を極限まで下げるため、センサーを小型化する。
(200μm角× ~4μm厚)

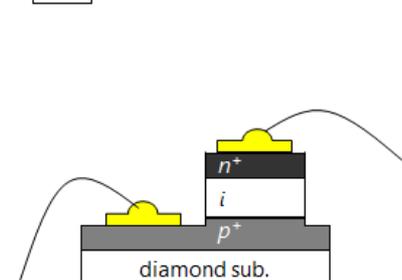
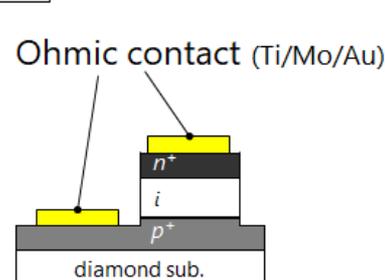
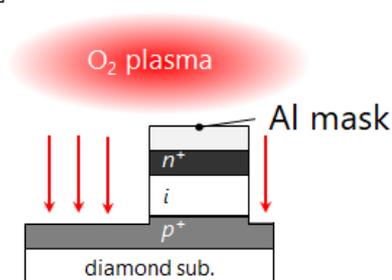
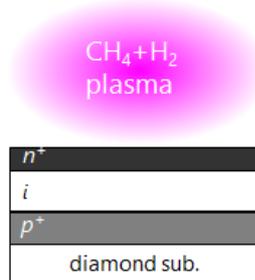
② センサー開発プロセスに関する研究 (NIMS)

- NIMSで世界に先駆けて開発されたダイヤモンドのn型ドーピング技術、pin接合技術を用いて、センサーのコアとなる感受層、接合構造形成、素子構造加工のプロセス研究を行う。



Alマスクを蒸着した
ダイヤモンド試料

- 1 化学気相成長
- 2 反応性イオンエッチング
- 3 オーミック電極形成
- 4 ワイヤボンディング



ダイヤモンドpinダイオード作製プロセス

γ線に対する感度を極限まで下げた薄膜ダイヤモンドpinダイオードを低電圧で動作可能な熱中性子センサへ応用

①高品質ダイヤモンド成長に関する研究

単結晶CVD (chemical vapor deposition) ダイヤモンドの不純物濃度を $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 以下に抑える成長条件の探索

低炭素濃度でかつ酸素を原料ガスに加えた特殊な成長条件において結晶成長面が原子レベルで平坦かつ結晶内ホウ素不純物濃度が $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ と極めて低い高品質 {111} ダイヤモンド薄膜の成長に成功

②センサー開発プロセスに関する研究

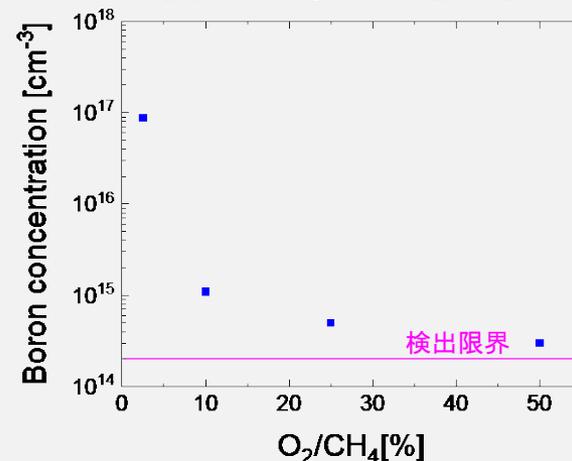
有感層 $3 \mu\text{m}$ 以上のダイヤモンドpinダイオードの形成

酸素添加条件により高濃度Bドープ層表面にi(p+n-)層を成長させ、 $3 \mu\text{m}$ 以上の空乏層形成を確認

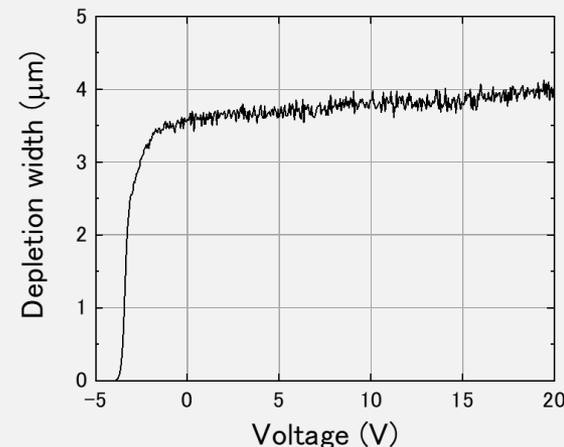
- 1 Al蒸着
- 2 反応性イオンエッチング
- 3 化学洗浄



成長したダイヤモンドのB濃度の酸素ガス比依存性

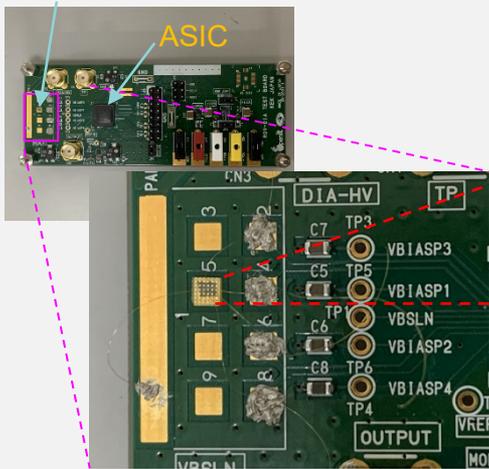


C-V特性から算出したpinダイオードの空乏層幅と印加電圧との関係

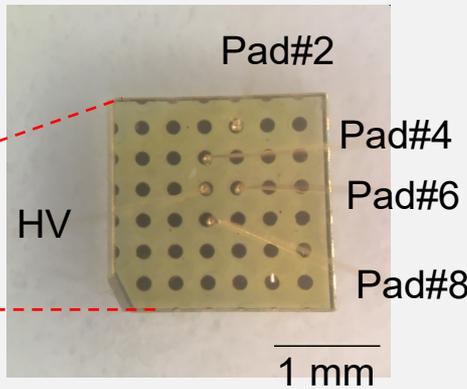


「④耐放射線トランジスタ及び集積回路の研究開発」で作製された信号処理集積回路とダイヤモンドpinダイオードを接続し、回路全体の動作を確認

ダイヤモンドpinダイオード

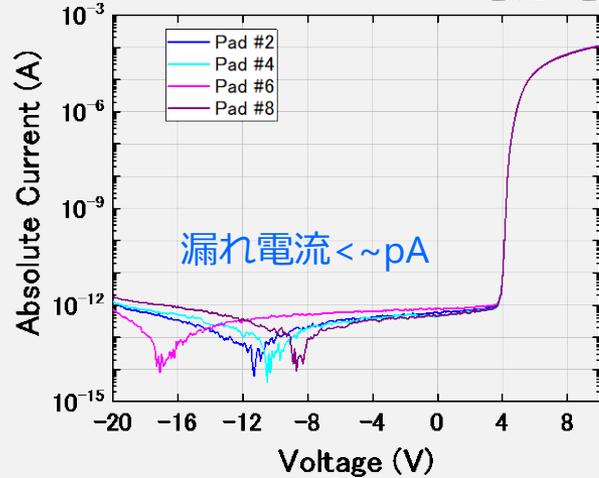


(a)



(b)

ダイヤモンドpinダイオードの電流-電圧特性



開発した回路でのα線応答波形



α線の明瞭な応答波形を確認し、信号処理集積回路とダイヤモンドpinダイオードとの接続動作を実証

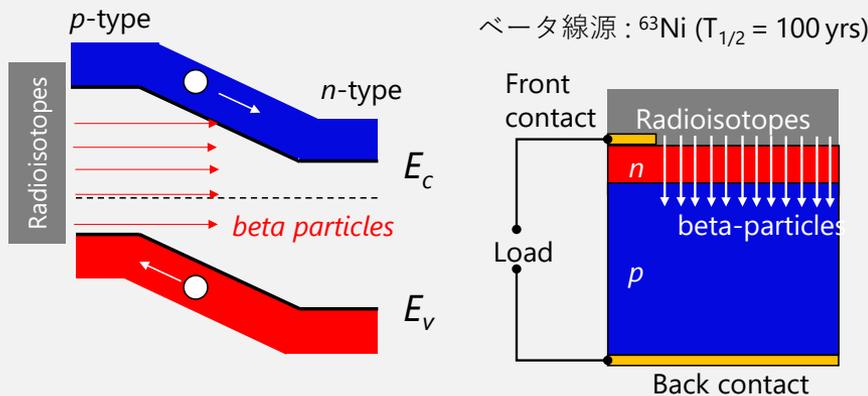
h¹⁰BNコンバータからのα線検出にも成功。

目標を上回る成果および研究の有効性・発展性・相乗効果

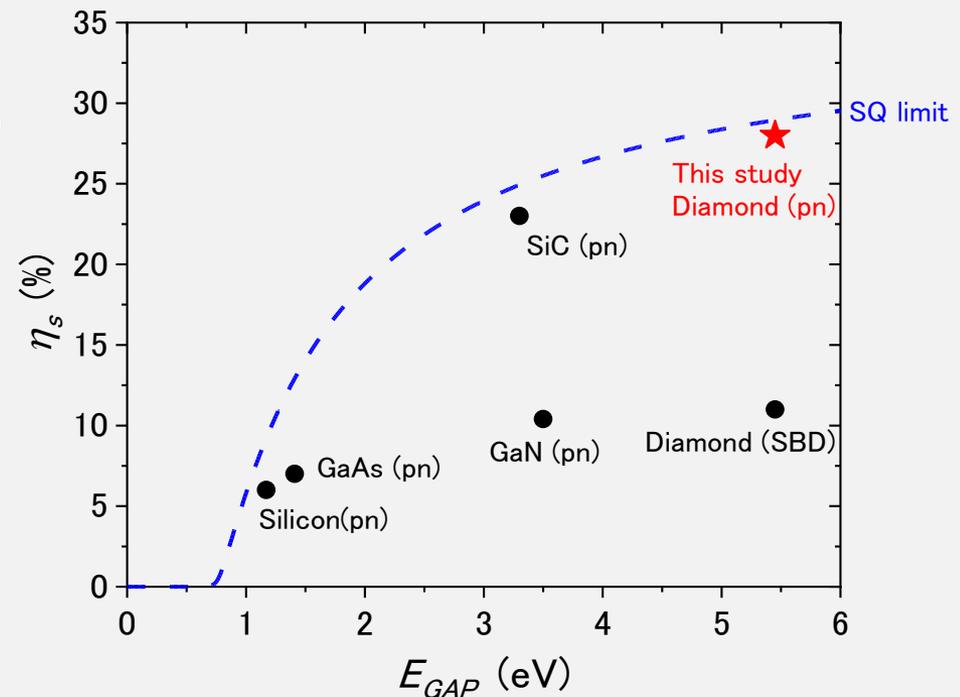
ベータボルタ電池

本研究で確立した高品質ダイヤモンド接合デバイス形成技術を原子力電池に応用。ベータボルタ電池として世界最高の発電効率を実証した。

T. Shimaoka, H. Umezawa, K. Ichikawa, J. Pernot, and S. Koizumi, "Ultrahigh conversion efficiency of betavoltaic cell using diamond pn junction", Appl. Phys. Lett. 117, 103902 (2020); doi: 10.1063/5.0020135



ベータボルタ電池の構造概念図

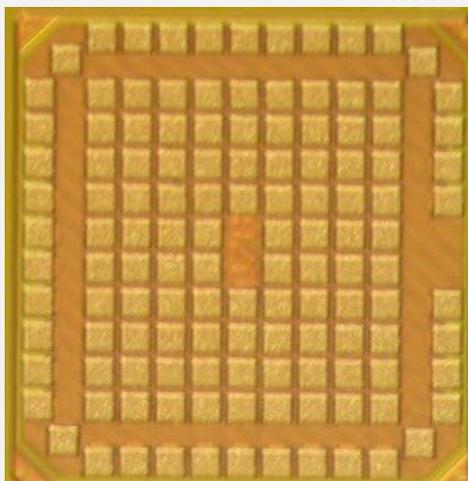


ベータボルタ電池の効率比較

γ線に対する耐放射線性を有するトランジスタを用いた信号処理集積回路及び、核分裂中性子測定システムの設計、評価を実施

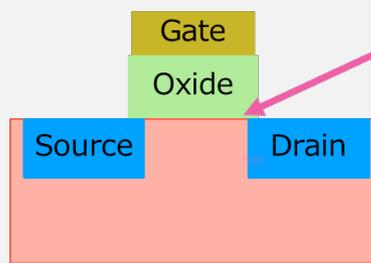
④耐放射線トランジスタ及び集積回路の開発研究

(1) 1 MGyまで動作するトランジスタの開発とTIDの評価



CMOS 65 nmプロセスを使用した耐放射線トランジスタサンプル

Suppress V_{th} sift after γ irradiation

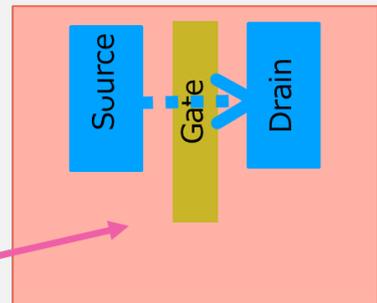


Side view of Transistor

1) Thinner oxide film suppress charge between source and drain

2) transistor layout suppress leak current

Suppress I leak after γ irradiation



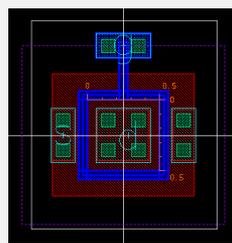
Top view of transistor

トータルドーズ効果

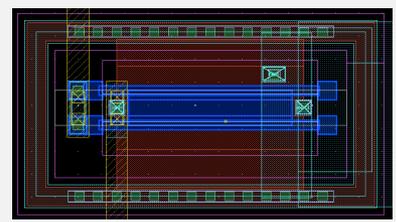
(TID : Total Ionizing Dose Effect)
 多量の放射線が入射し、電離作用によって生成された電荷が、固定電荷や界面準位を形成し、半導体素子の諸特性を劣化させる

TSMC65nmの場合は、ゲート酸化膜を薄くすることで酸化膜中に滞在する正孔が少なくなり、放射線性能が向上。これに加えてトランジスタ形状を変更しリーク電流系路を遮断することで照射によるリーク電流増加を抑制

ELT

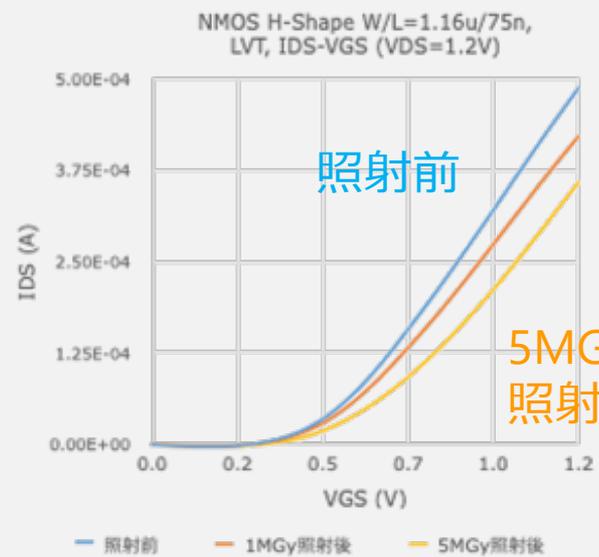
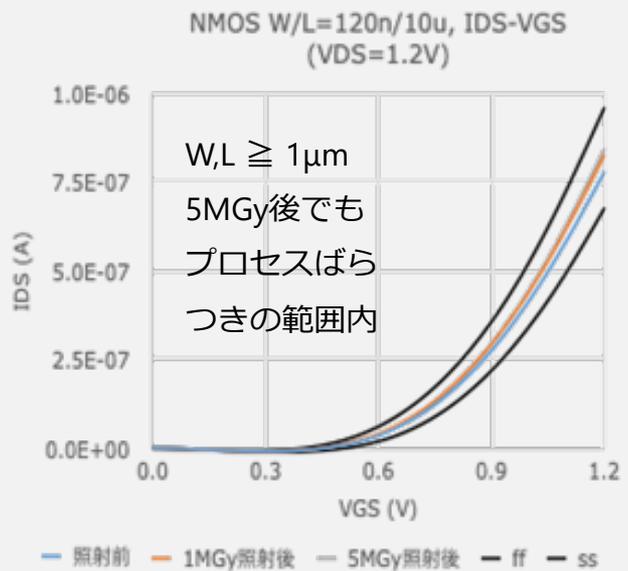


H-Shape





CMOS65nmプロセスで作成したトランジスタは1 MGy照射まで正常動作を確認
トランジスタ幅と長さを1 μm 以上にしたサンプルと
H-Shapeトランジスタは5 MGy照射まで正常動作を確認

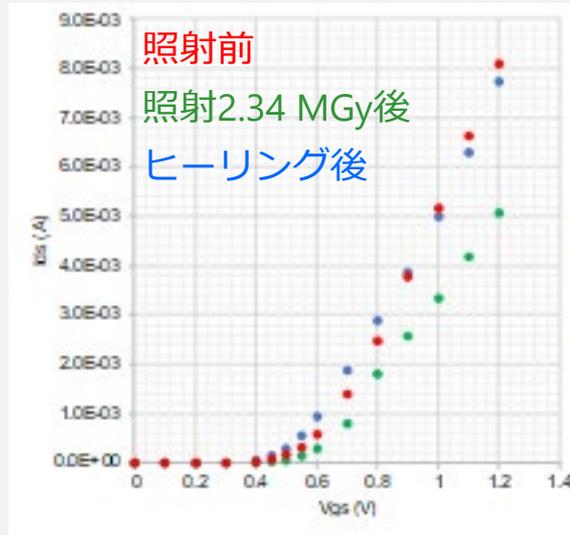


耐放射線強化型
(H-Shape) の
トランジスタ
5 MGy照射後でも
プロセスばらつき
の範囲内

目標を上回る成果および研究の有効性・発展性・相乗効果

電氣的ヒーリング効果の実証

電氣的な操作によってトランジスタの界面に
トラップされた電荷を消し去ることができる技術
を適用し2.34 MGy照射後のヒーリング効果を
確認

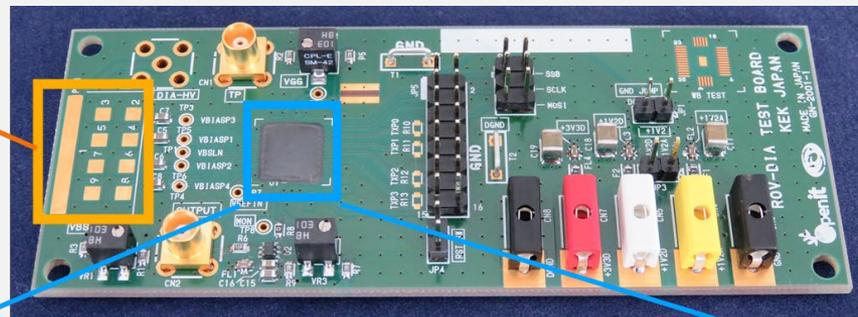


④耐放射線トランジスタ及び集積回路の開発研究

(2) CMOS 65 nm商用プロセスで作成した信号処理回路要素の耐放射線評価

CMOS65nmプロセスで作成した集積回路 (1 GHz高速応答の信号処理回路、10~100 Mサンプリング10ビットADC等) は1 MGy照射まで正常動作を確認

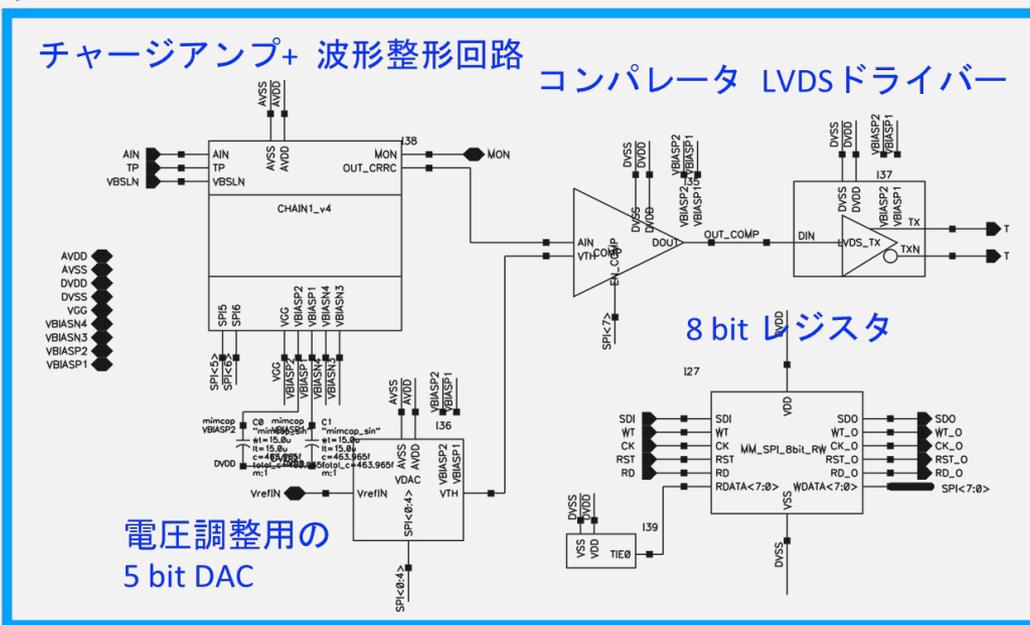
中性子検出用
信号処理ボード



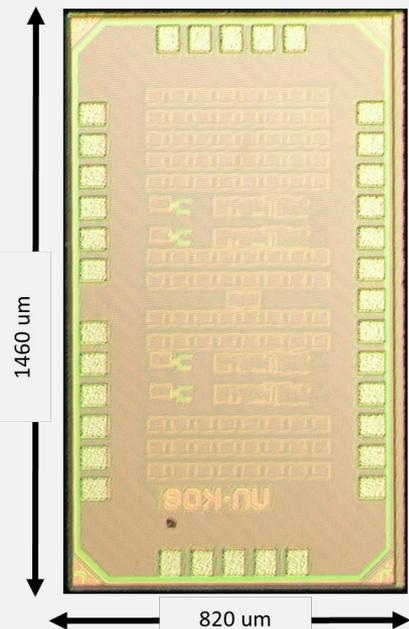
検出素子接続部

(多チャンネル化
を想定して4 ch)

中性子検出用
集積回路

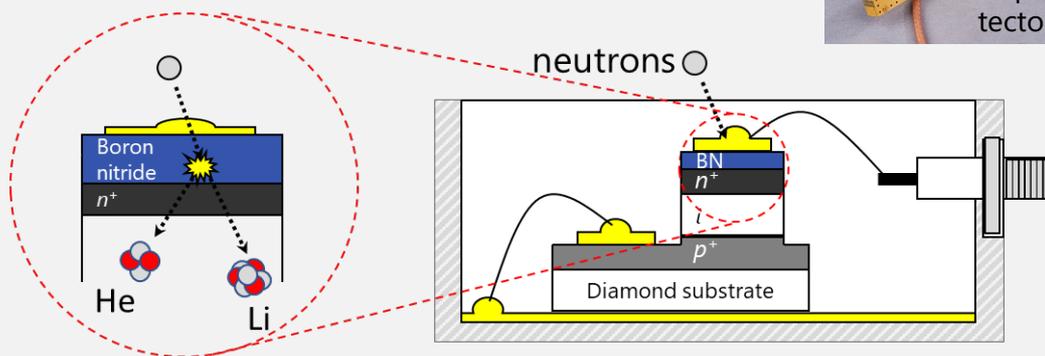


➡ 1 MGyまで動作する中性子検出ダイヤモンドセンサー用信号処理回路を作成し、「⑥音響探査装置と中性子センサーを組み合わせた複合型センサーの開発」で開発するROVへ実装



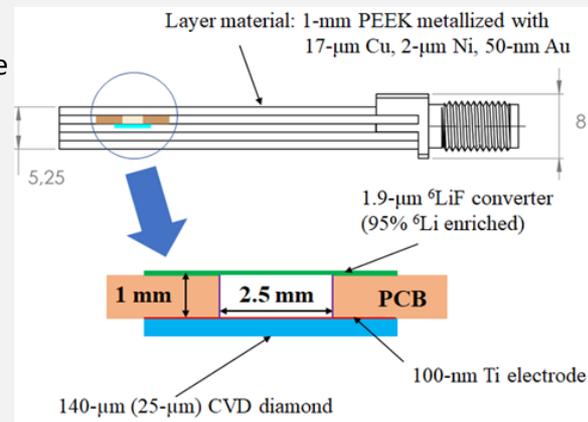
中性子検出用ダイヤモンドセンサー構造におけるγ線感度の評価

熱中性子センサー構造の例
NIMS pin 200μΦ×~4μmt

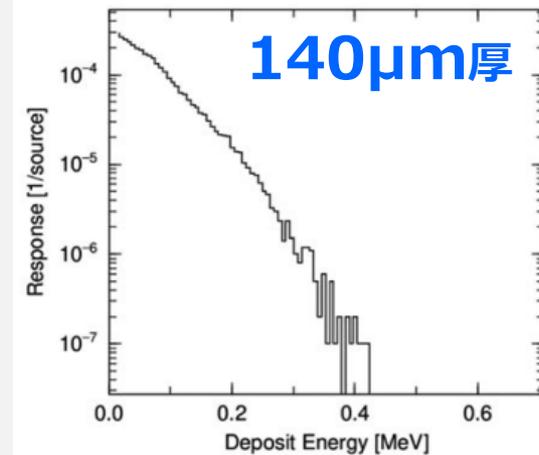
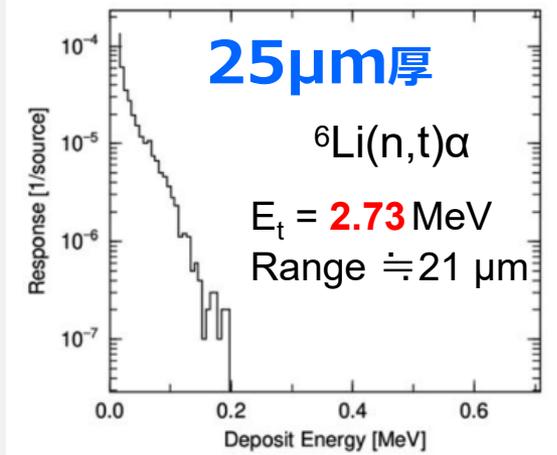
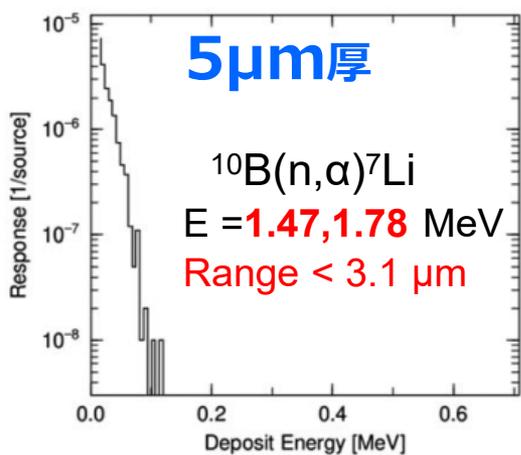


<https://cividec.at/detectors-B6-C.html>

Cividec社 B6C (25, 140μmt)
 (小型ダイヤモンド熱中性子センサー)



¹³⁷Cs (662 keV) γ-ray response by PHITS simulation (5 mm □ diamond)



γ線の検出感度はセンサーの厚さに依存

Characterization of diamond detector for the optimization of electronics



Leak current

< **20 nA** at operation voltages;
20 V (25 μm), 80 V (140 μm)

measured with Keithley SMU 2450



Charge collection efficiency (CCE)*

> **91 %** (3.183 MeV)
> **96 %** (5.486 MeV) @ operation
> **96 %** (5.805 MeV) voltages

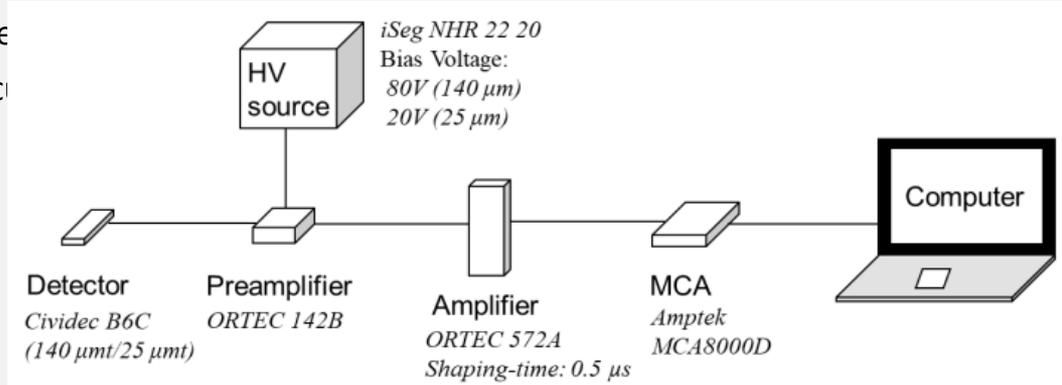
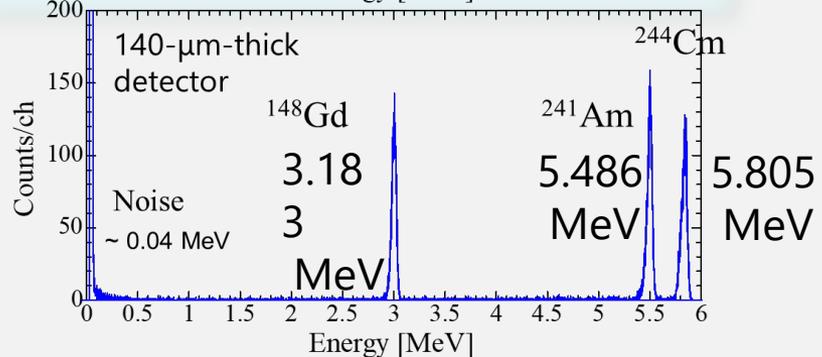
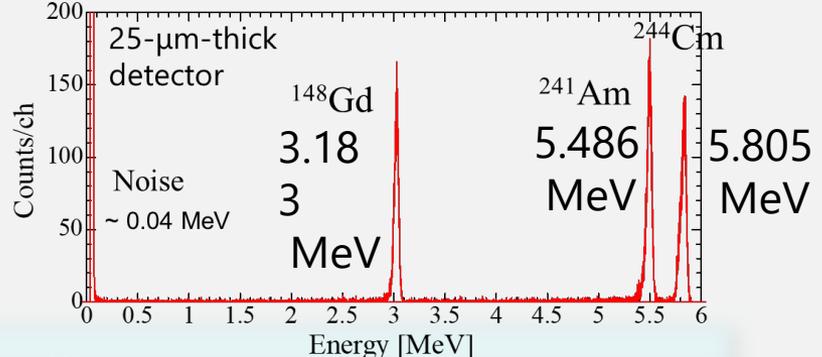


Energy resolution (ΔE/E@FWHM)*

< **1.7 %** (3.183 MeV)
< **1.0 %** (5.486 MeV) @ room temper
< **1.1 %** (5.805 MeV) in vac

measured with a conventional analog spectroscopy system
(Shaping time 0.5 μs)

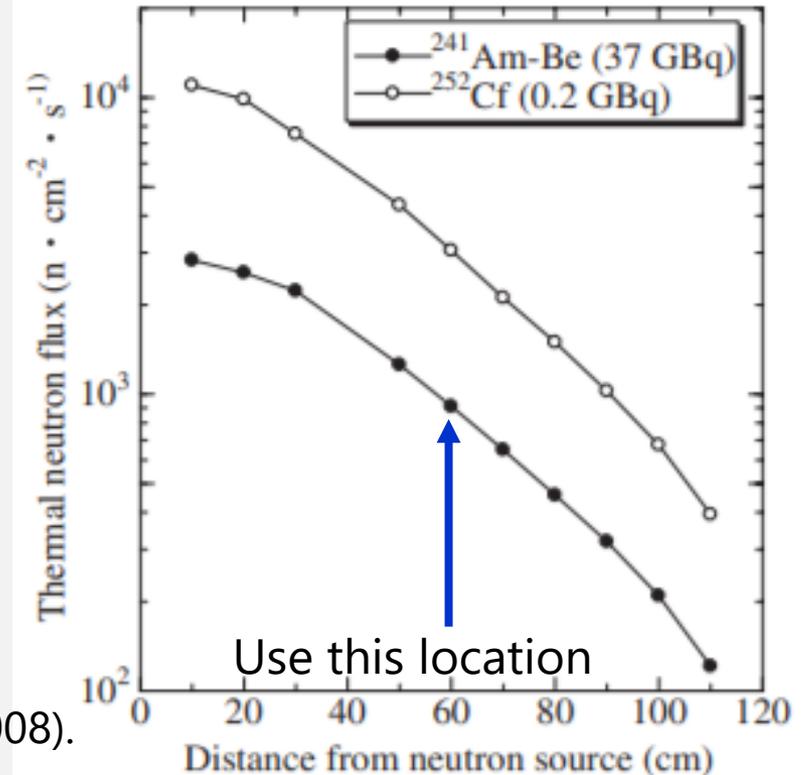
Energy spectra of the mixed source (¹⁴⁸Gd, ²⁴¹Am, ²⁴⁴Cm)



KEK graphite pile



High purity graphite cube
(250cm × 190cm × 190cm)
Put $^{241}\text{Am-Be}$ source into the
center and then make thermal
neutrons by slow-down process.



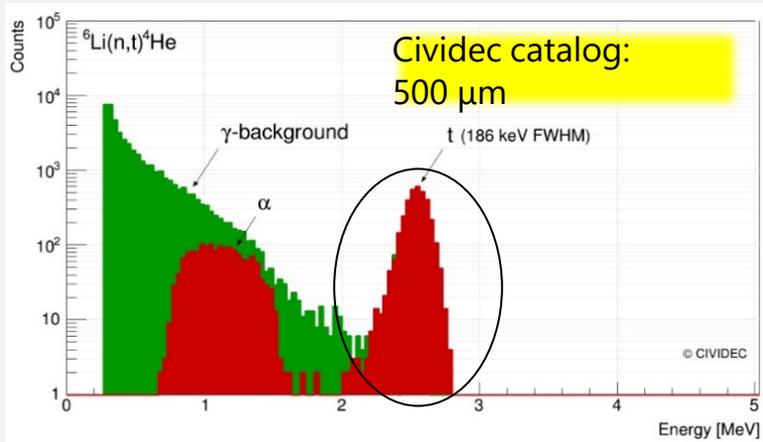
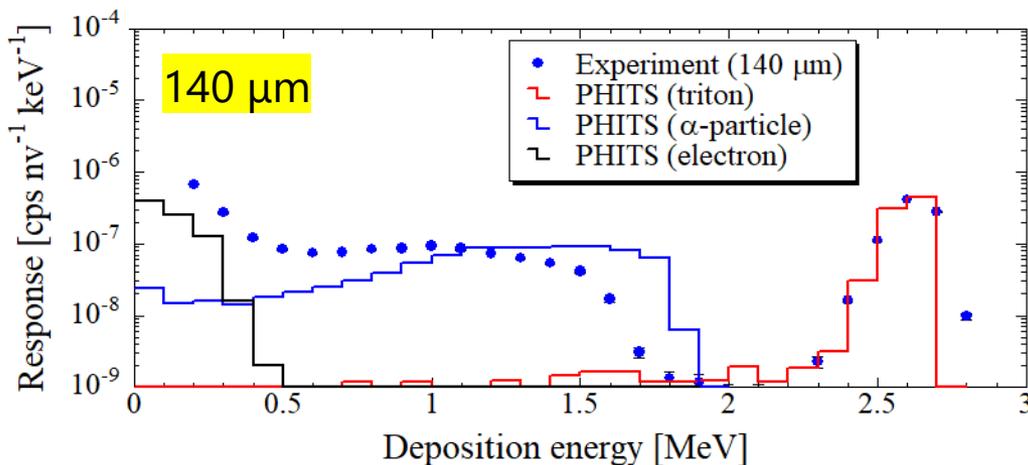
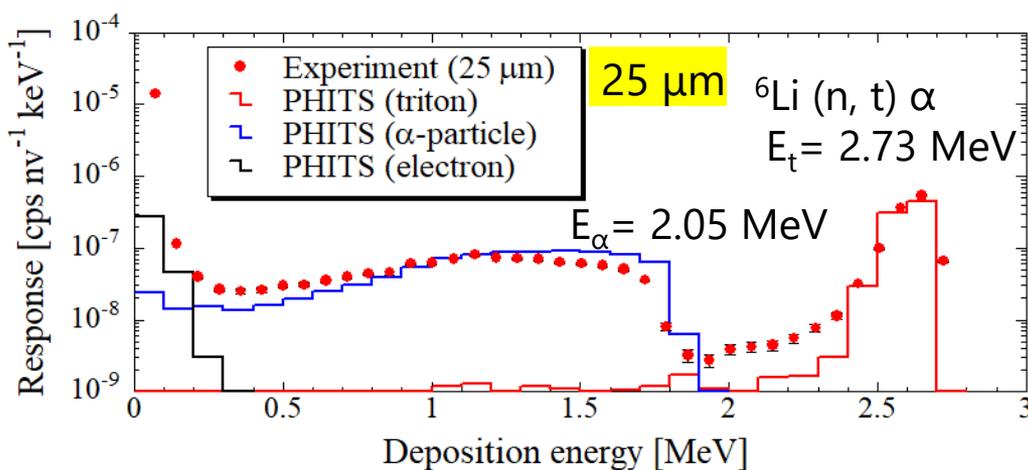
T. Michikawa et al., Jpn J Appl Phys **47**, 3635 (2008).

実測により熱中性子検出効率: ${}^6\text{Li}(n,t)$ $\sim 9 \times 10^{-5}$ cps/nvを決定

統計精度10%での検出
とすると (100カウント)

$10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ~ 90 cps ~ 1.1 秒で検出可
~
 $10^2 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ~ 0.009 cps ~ 3 時間で検出可

PHITSシミュレーションと実測で確認
 ${}^6\text{LiF}$ コンバータで決まるので、
中性子感度を変えずに、
ダイヤモンド検出器を薄くする
 $500\mu\text{m} > 140\mu\text{m} > 25\mu\text{m}$
ことで
 γ 線感度を低下させることが可能



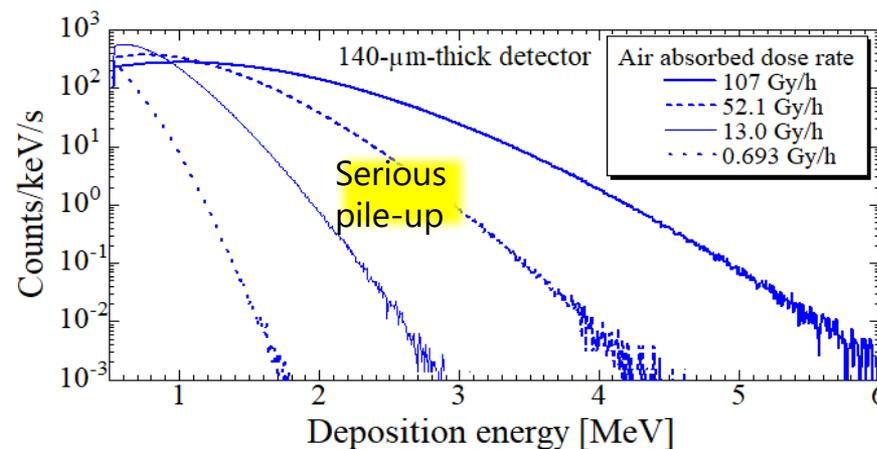
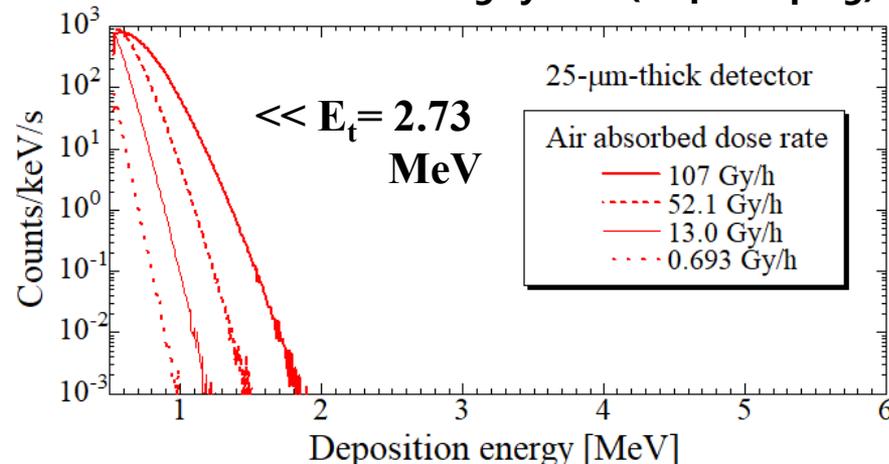
High-dose rate γ -ray irradiation at Kyoto university ^{60}Co gamma-ray facility



^{60}Co 線源

Distance from the ^{60}Co source [cm]	Air absorbed dose rate [Gy/h]
30	107
50	52.1
70	29.9
110	13.0
170	5.73
260	2.72
350	1.51
500	0.69

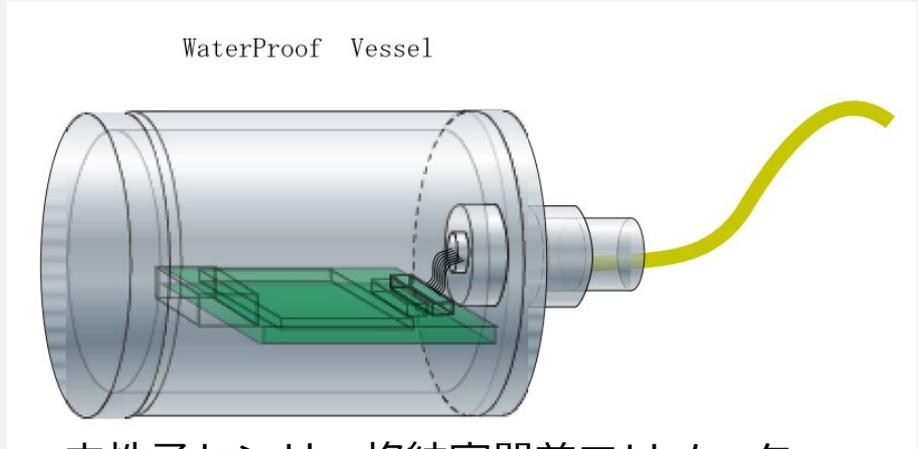
Measured spectra exposed to **high-dose rate γ -rays** with a conventional analog system (0.5 μs shaping)



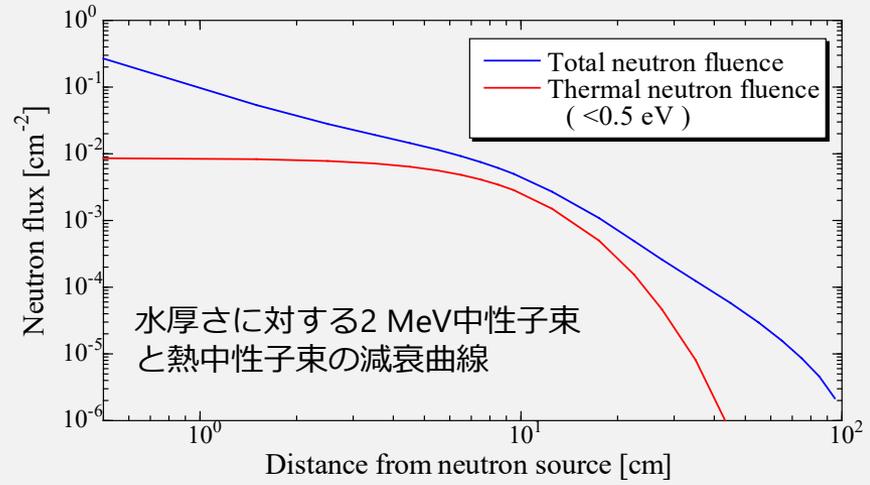
25 μm はPile-upの影響を考慮しても、 n - γ のしきい値を2MeV以上に設定することで、100Gy/hの γ 線環境でもS/N > 10を満たす。



センサーの小型化によってγ線感度の低減と高速信号処理を実現、その結果、ROVの重量制限で問題となる鉛遮へいを用いないコリメータを設計
センサーは60℃の温度環境でも正常に動作することを確認した。



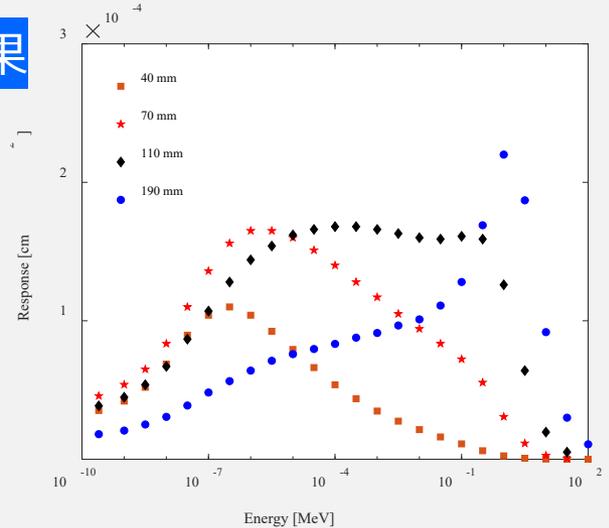
中性子センサー格納容器兼コリメータ



目標を上回る成果および研究の有効性・発展性・相乗効果

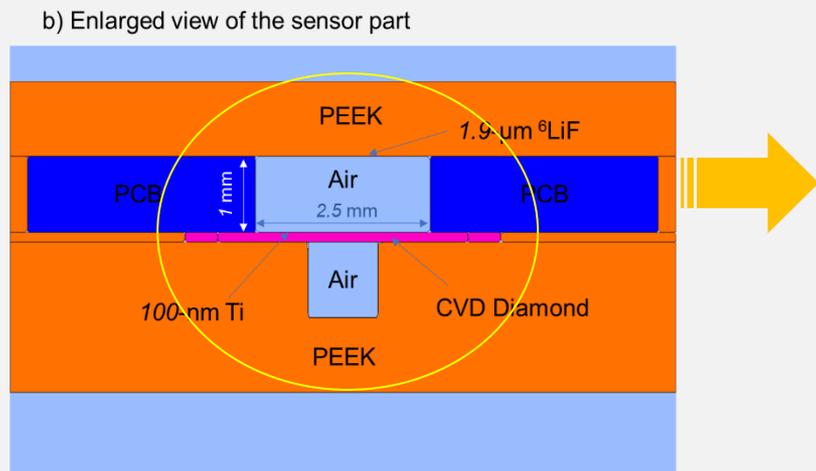
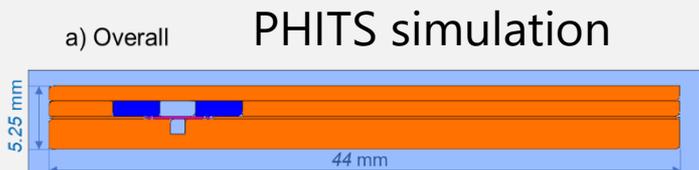
気中における中性子センサーへの適用

気中においても、水素を含むポリエチレン等の減速材を利用することで、自発核分裂反応から発生する2 MeV付近に感度のピークを持つ中性子センサーで制作することが可能であることを確認



ポリエチレンの厚さに対する中性子応答関数のシミュレーション

Cividec B6-Cの構造



熱中性子の高効率化

1. ダイヤモンド検出器になるべく⁶LiFコンバータを近づける
2. ダイヤモンド検出器の両面に⁶LiFコンバータを配置。

⁶LiFコンバータ

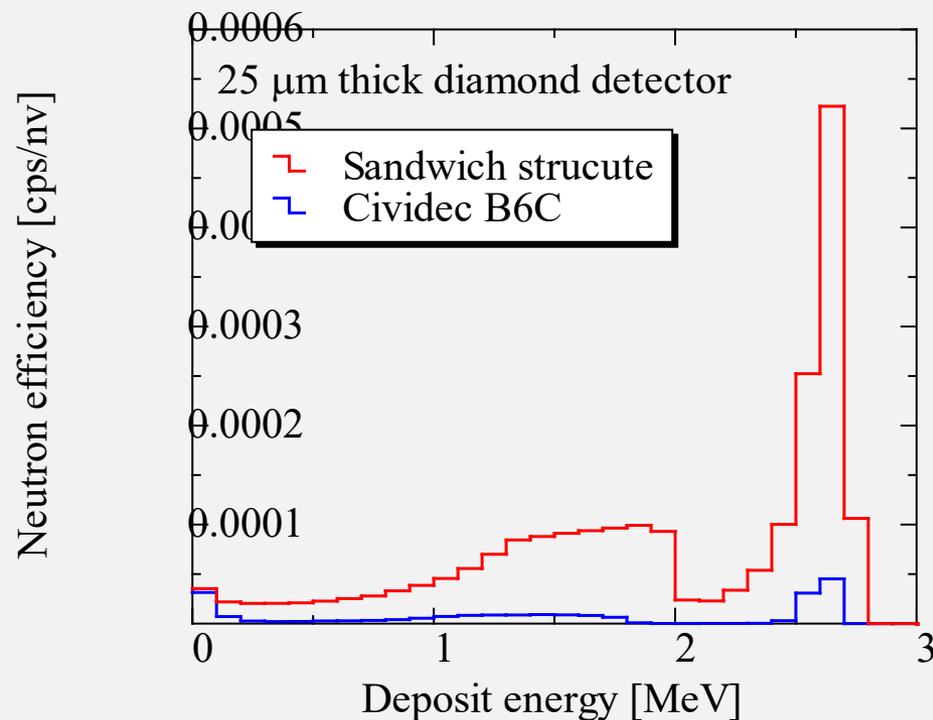


ダイヤモンド検出器

⁶LiFコンバータ

Sandwich構造にすることで
 γ 線感度を変えず熱中性子効率13倍
 デブリの中性子束 $10^2 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

B6C	➡	Sandwich
~0.009cps		~0.12cps
~3時間で100計数		~14分で100計数
統計精度 $\pm 10\%$の精度で検出可		

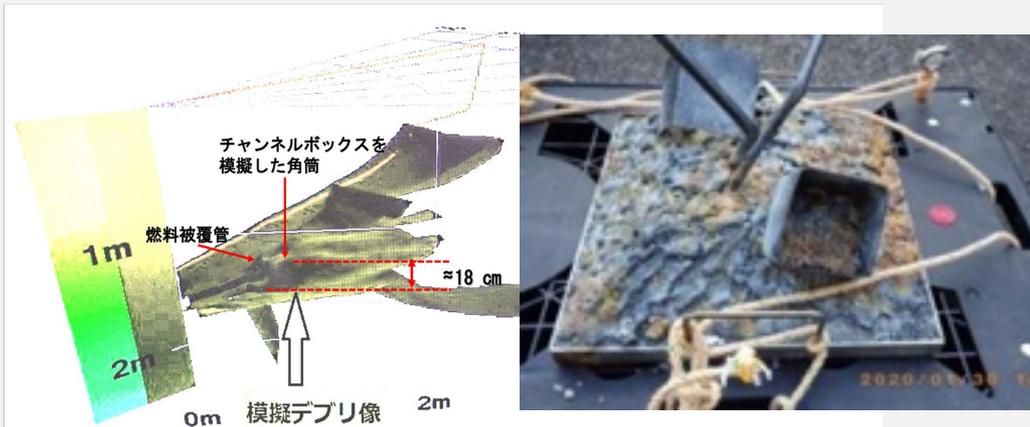


各種ソナーの性能試験及び、ROV搭載での動作試験、通信試験を実施

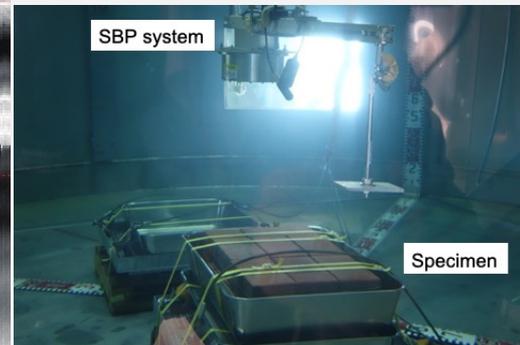
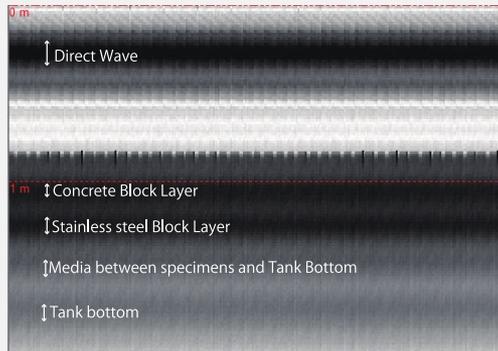
⑥音響探査装置と中性子センサーを組み合わせた複合型センサーの開発

(1)音響探査装置によるデブリ探査

- ・ 汎用マルチフェイズドアレイ・ソナー (Garmin PS-31) による形状模擬デブリの観測
- ・ SBP(Sub Bottom Profiler)による堆積物とデブリの識別



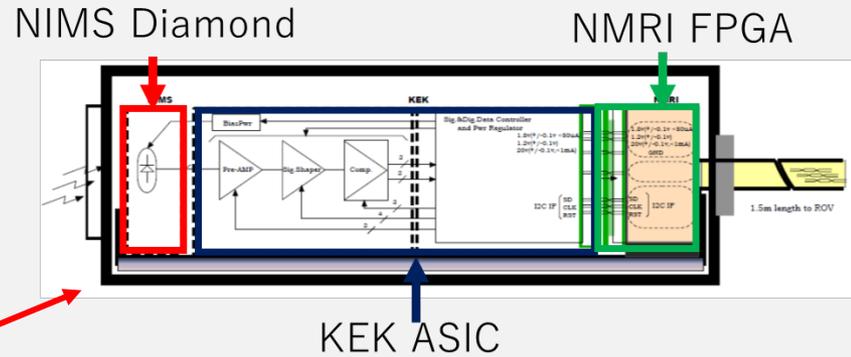
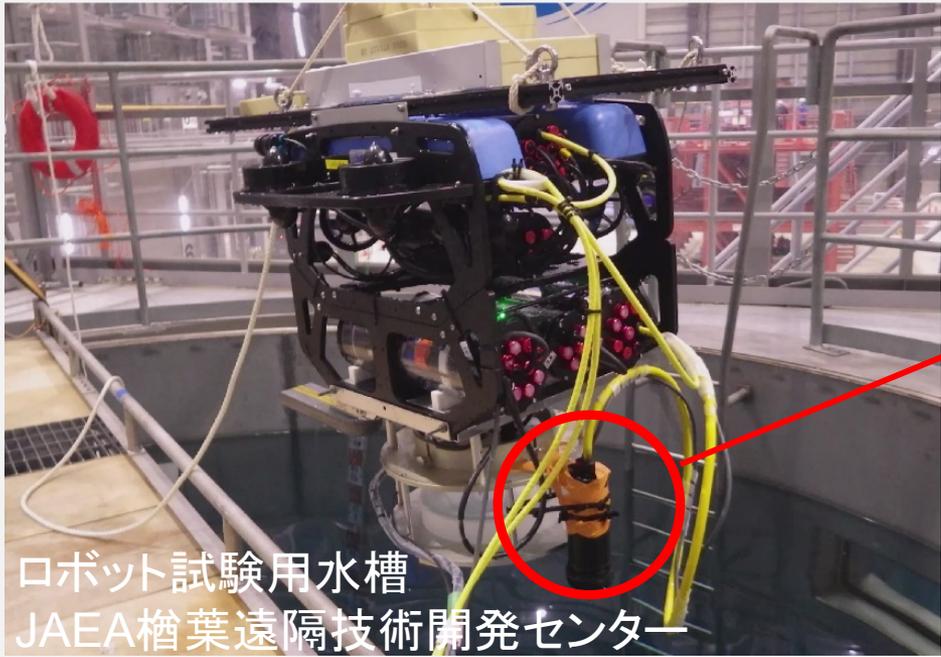
汎用マルチフェイズドアレイ・ソナーによる模擬デブリのソナーイメージを取得



汎用の水中スピーカー（音源）、 hidroホン（受波器）を用いた音波のTOF測定と音圧測定を合わせることで対象物の深度プロフィールを取得

(1)中性子センサー制御回路の制作

- ・ 中性子センサーを動作させるためのFPGAの設計・製作
- ・ 耐放射線性能の試験

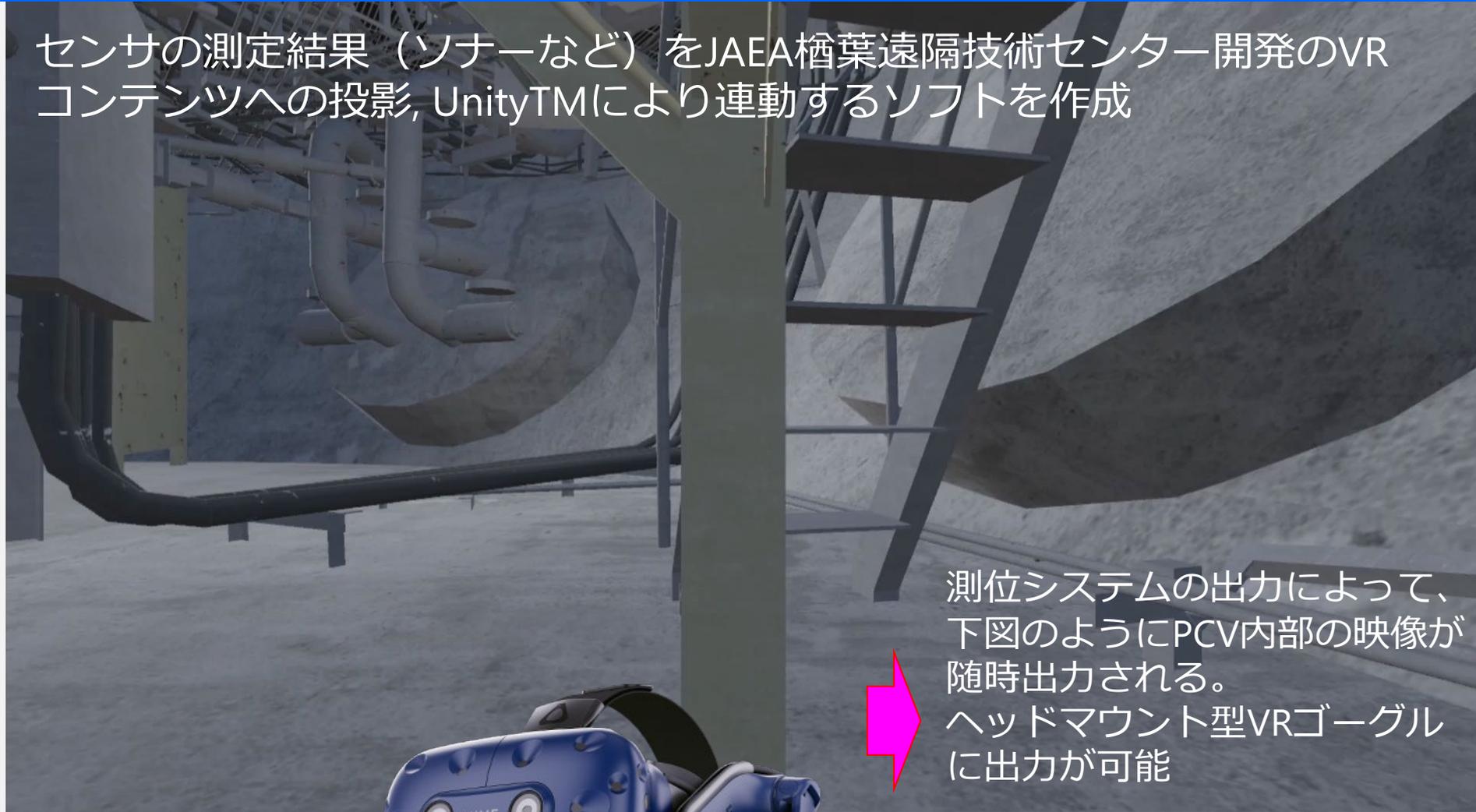


ダイヤモンド検出器—ASIC
での信号処理したアナログ
信号を、TTLに変換、
EthernetでPCに転送

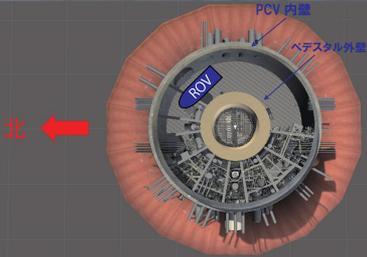


京大複合研のコバルト60線源を
用いた照射試験にて、1.13 kGy/h
で1時間以上の照射において正常
動作することを確認

センサの測定結果（ソナーなど）をJAEA櫛葉遠隔技術センター開発のVRコンテンツへの投影, UnityTMにより連動するソフトを作成



測位システムの出力的によって、
下図のようにPCV内部の映像が
随時出力される。
ヘッドマウント型VRゴーグル
に出力が可能



* 測位システムの出出力例としては、H27-29
実施の日英共同研究によって、海技研と英
国マンチェスター大学と共同開発したもの
(極座標、直交座標)がある。

1. 中性子検出用ダイヤモンドセンサーの研究開発

極薄型の高品質ダイヤモンドpin検出器を作成し熱中性子の検出に成功
今後、中性子感度を向上させるべく

中性子コンバータ、放射線感受層の最適化、多素子化を進める。

R2年度採択課題(KEK 田中代表「遮蔽不要な臨界近接システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発」)として実施予定

2. 耐放射線集積回路開発と核分裂中性子測定システムの開発

トランジスタの1 MGyまでの動作確認、ヒーリング技術の検証を実施
集積回路へのヒーリング機能の付加に関する研究開発を推進

100Gy/hの過酷なγ線環境下において中性子検出が可能であること実証

R2年度採択課題(KEK 田中代表「遮蔽不要な臨界近接システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発」)として実施予定

3. 複合型センサーを搭載したROVによる遠隔計測技術の開発

ROVによる遠隔計測技術が問題なく動作することを確認

今後、IRID等との情報の共有が必要

PCV内部の詳細調査を反映させたVRコンテンツデータが

燃料デブリ取り出し作業時の遠隔操作に活用されることを期待

R2年度採択課題(NMRI 鎌田代表「無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発」)で継続予定