



Title	福島第一原子力発電所廃炉用高γ線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実用性向上に関する研究
Author(s)	織田, 堅吾
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16843号
Issue Date	2026-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16843
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/99688
Type	doctoral thesis
File Information	Kengo_0da.pdf, 全文



博士論文

福島第一原子力発電所廃炉用高 γ 線線量率対応

ダイヤモンド中性子計測システムの

実用性向上に関する研究

Improving the Practical Applicability of a Diamond Neutron Measurement System
Operable under High γ -Ray Dose-Rate Conditions for the
Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant

北海道大学大学院工学院

量子理工学専攻

織田 堅吾

目次

第1章 序論	1
1.1 研究背景	1
1.2 論文構成	4
第1章の引用文献	5
第2章 ダイヤモンド検出器の基礎と作製・評価手法	7
2.1 ダイヤモンド放射線検出器	7
2.1.1 ダイヤモンドの諸特性	7
2.1.2 ダイヤモンド放射線検出器の特長	9
2.1.3 ダイヤモンド放射線検出器の動作原理	10
2.2 試料作製方法	11
2.2.1 マイクロ波プラズマ CVD 法による単結晶ダイヤモンド合成	11
2.2.2 ダイレクトウエハー法によるダイヤモンドの作製	14
2.2.3 ダイヤモンド放射線検出器の作製	14
2.3 ダイヤモンド放射線検出器の評価方法	17
2.3.1 α 線誘導電荷量分布測定	17
2.3.2 γ 線照射試験	18
第2章の引用文献	20
第3章 高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実現可能性評価	23
3.1 研究背景および目的	23
3.2 実験	26
3.2.1 ダイヤモンド検出器の作製	26
3.2.2 作製したダイヤモンド検出器の基本特性評価	26
3.2.3 γ 線線量率応答性評価試験	27
3.2.4 中性子計測試験	27
3.2.5 KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性評価試験	29
3.2.6 高 γ 線線量率への対応性評価試験	30
3.3 実験結果と考察	30
3.3.1 γ 線線量率応答性のダイヤモンド結晶の品質による違い	30
3.3.2 中性子感度の評価	32
3.3.3 KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性評価	34
3.3.4 1 kGy/h の高 γ 線線量率への対応性評価	35
3.4 ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた課題	36
3.5 結論	37

第3章の引用文献	38
第4章 ダイヤモンドの加工による γ 線線量率対応性の向上	40
4.1 研究背景および目的	40
4.2 実験	40
4.2.1 ダイヤモンド検出器の作製	40
4.2.2 作製したダイヤモンド検出器の基本特性評価	42
4.2.3 γ 線線量率対応性評価試験	43
4.3 実験結果と考察	43
4.3.1 ダイヤモンドの加工による γ 線線量率対応性への影響	43
4.4 結論	45
第4章の引用文献	46
第5章 ダイヤモンド合成における酸素添加による検出器特性への影響評価	47
5.1 研究背景および目的	47
5.2 実験	48
5.2.1 酸素添加によるダイヤモンドの合成	48
5.2.2 検出器の作製、評価手法および測定条件	49
5.3 実験結果と考察	51
5.3.1 二次イオン質量分析法(SIMS)	51
5.3.2 表面形態	52
5.3.3 カソードルルミネッセンス(CL)測定	55
5.3.4 C-V 測定	58
5.3.5 I-V 測定	59
5.3.6 電荷キャリア輸送特性評価	60
5.3.7 γ 線線量率対応性の評価	64
5.4 結論	65
第5章の引用文献	67
第6章 ダイヤモンド中性子計測システムの動作実証	68
6.1 研究背景および目的	68
6.2 実験	69
6.2.1 中性子検出器用ダイヤモンド検出素子作製技術の構築	69
6.2.2 信号処理回路基板上へのダイヤモンド検出素子と ^6LiF コンバータの実装	72
6.2.3 日本原子力研究開発機構の放射線標準施設での中性子感度測定試験	73
6.2.4 近畿大学原子炉での中性子追従試験	75
6.2.5 九州大学 γ 線照射施設での γ 線線量率応答性評価試験	76
6.3 実験結果と考察	77
6.3.1 中性子感度評価	77

6.3.2 中性子束変動への追従性評価	79
6.3.3 γ 線線量率応答性評価	83
6.4 結論	84
第 6 章の引用文献	86
第 7 章 総括	87
本研究に関連して発表した論文・講演	88
謝辞	90

図表目録

図 2.1 不純物によるバンドギャップ内のエネルギー準位.....	9
図 2.2 マイクロ波プラズマ CVD 法の概略	11
図 2.3 ステップフロー成長の概略.....	12
図 2.4 オフ角制御後の結晶表面の概略.....	13
図 2.5 オフ角制御による異常成長の抑制の概略.....	13
図 2.6 ダイレクトウエハー法の概略.....	14
図 2.7 作製した検出器の構造.....	16
図 2.8 α 線誘導電荷量分布測定体系の概略.....	18
表 2.1 各種半導体の物性値	7
表 2.2 ダイヤモンドの分類表	8
図 3.1 ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプ of 概念図	25
図 3.2 ${}^6\text{LiF}$ 中性子-荷電粒子コンバータ (左)研磨前、(右)研磨後	28
図 3.3 KEK 設計のフロントエンド集積回路を用いた信号処理回路+ダイヤモンド検出器	30
図 3.4 空気中での各 γ 線線量率におけるダイヤモンド検出器の α 線応答関数の例 (a) Detector #3.1 (厚さ 66 μm)、(b) Detector #3.3 (厚さ: 50 μm)	32
図 3.5 ${}^{252}\text{Cf}$ 線源からの中性子に対する Detector #3.2 の応答関数例	33
図 3.6 KEK 設計のフロントエンド集積回路を使用した信号処理回路および一般的な信号処理回路に接続した場合の 300 Gy/h の γ 線線量率下での Detector #4.3 の α 線応答関数例	34
図 3.7 各線量率での γ 線応答関数(左)と計数率の時間変化(右).....	35
表 3.1 作製した検出器一覧.....	26
表 3.2 ダイヤモンド検出器の電荷収集効率とエネルギー分解能	27
図 4.1 試料表面の光学顕微鏡画像 (a) レーザー切断後の 9 mm 角ダイヤモンド膜(成長面)、(b) Detector #4.1~#4.3 で使用した各条件下での加工面	42
図 4.2 5.486 MeV α 線の応答関数の例	44
図 4.3 260 Gy/h の γ 線線量率下での 5.486 MeV の α 線応答関数の例.....	45
表 4.1 作製した検出器の一覧.....	41
表 4.2 検出器の電荷収集効率とエネルギー分解能.....	43

図 5.1 二次イオン質量分析法(SIMS)結果.....	52
図 5.2 表面微分干渉顕微鏡像 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4、(e) Met#1	53
図 5.3 表面レーザー顕微鏡像 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4	54
図 5.4 成長速度と表面粗さの散布図 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4	54
図 5.5 CL スペクトル例 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4、(e) Hu#1、(f) Element Six Ltd.製の市販ダイヤモンド試料.....	57
図 5.6 Oyg#1~4 の C-V 測定例.....	59
図 5.7 Oyg#1~4 の I-V 測定例.....	60
図 5.8 α 線誘起電荷分布測定から得られた波高分布スペクトル (a) Oyg#1、(b) Oyg#3、 (c) Oyg#4、(d) Hu#1、(e) Element Six Ltd.製の市販ダイヤモンド試料	62
図 5.9 電界に対する CCE の依存性 (a) Oyg#3($d \approx 44 \mu\text{m}$)、(b) Oyg#4($d \approx 25 \mu\text{m}$)、.....	64
図 5.10 γ 線応答関数例 (a) Oyg#3($d \approx 44 \mu\text{m}$)、(b) Oyg#4($d \approx 25 \mu\text{m}$)、(c) メタン濃度 0.5%、 酸素添加無しで合成した Detector #3.2($d \approx 46 \mu\text{m}$).....	65
表 5.1 各試料の合成条件.....	49
表 5.2 各試料の電荷キャリア輸送特性.....	61
図 6.1 ダイヤモンド基板を設置した $\Phi 57 \text{ mm}$ の Mo 製合成用基板ホルダー	70
図 6.2 合成後のダイヤモンド基板 4 枚の表面微分干渉顕微鏡像.....	70
図 6.3 リフトオフ後のダイヤモンド自立膜例.....	71
図 6.4 合成したダイヤモンドから作製した検出素子による $5.486 \text{ MeV } \alpha$ 線に対する応 答関数測定例.....	71
図 6.5 製作した中性子計測システム用ダイヤモンド検出素子 (左) $4.7 \times 4.7 \text{ mm}^2$ の Al 電極 1 つ、(右) $2 \times 2 \text{ mm}^2$ の Ti/Au 電極 4 つ	72
図 6.6 DSA 基板上へのダイヤモンド検出素子と ${}^6\text{LiF}$ コンバータの実装手順.....	73
図 6.7 熱中性子等方場の外観.....	74
図 6.8 中性子計測システムの外観.....	75
図 6.9 近畿大学原子炉での測定の様子.....	76
図 6.10 ダイヤモンド検出素子 1 枚のみの中性子計測システム.....	77
図 6.11 アナログ出力 4ch それぞれの中性子応答関数.....	78
図 6.12 アナログ出力 4ch での中性子応答関数の 1 秒ごとの計数率変化.....	78
図 6.13 アナログ出力 2ch それぞれの中性子応答関数.....	80
図 6.14 アナログ出力 2ch 分を足し合わせた計数率の時間変化.....	80
図 6.15 アナログ出力 2ch 分を足し合わせたドル単位反応度の推定結果.....	81
図 6.16 デジタル出力 32ch 分を足し合わせた計数率の時間変化.....	82

図 6.17 デジタル出力 32ch 分を足し合わせたドル単位反応度の推定結果	82
図 6.18 九州大学での ^{252}Cf 中性子源からの中性子の応答関数	83
図 6.19 九州大学での ^{252}Cf 中性子 + ^{60}Co γ 線 55Gy/h の応答関数	84

第1章 序論

1.1 研究背景

福島第一原子力発電所では、2011年3月11日に発生した地震により、運転中であった1～3号機すべてにおいて炉心溶融が発生した。溶融した燃料デブリは原子炉圧力容器内に留まらず、原子炉格納容器内に広がっていると推定されている。原子力災害対策本部は、2020年代前半までに燃料デブリの取り出しを開始し、10～15年以内に完了することを目標とした中長期ロードマップを策定した [1]。燃料デブリ取り出し作業においては、臨界管理が重要な技術課題となっている。臨界管理は燃料デブリ取り出し作業時の燃料デブリの形状や含水量の変化によって引き起こされる臨界を防止するとともに、万一発生した場合にも一般公衆および作業員の過度な被ばくを防ぐために必要不可欠である。この課題に対応するため、国際廃炉研究開発機構(IRID)は、燃料デブリの未臨界度測定・臨界近接監視のための技術開発を推進してきた [2]。未臨界度測定とは、燃料デブリ取り出し作業の開始前に、臨界状態からどの程度離れているかを評価するための測定であり、炉雑音法 [3]により中性子増倍率を評価することで、臨界までの安全余裕の確認を目的として実施される。一方、臨界近接監視は、燃料デブリ取り出し作業中に中性子計数率をリアルタイムで監視し、その時間変化から中性子源増倍法 [4]により中性子増倍率を評価することで、臨界状態を継続的に監視する手法である。この取り組みにおいて明らかになった大きな課題の一つは、燃料デブリからの微弱な中性子を原子炉格納容器内で想定される最大1 kGy/hの高 γ 線線量率下で測定可能で、かつ1時間程度の現実的な測定時間を実現する中性子感度を持つ軽量な中性子検出器の開発であった [5]。また、燃料デブリの初期取り出し段階で使用される中性子検出器は、アーム型アクセス装置を用い狭い貫通部を通して原子炉格納容器内へ挿入する必要がある。アーム型アクセス装置の可搬重量には厳しい制限があり、その想定ペイロードは20 kg未満であるため、十分な γ 線遮蔽の利用が困難であった [6]。

一般に、このような高 γ 線線量率下では中性子検出器として核分裂電離箱 [7]が用いられる。核分裂電離箱は、核分裂反応によって放出される重い分裂生成核を検出する電離型中性子検出器である。内部に ^{235}U などの核分裂物質を塗布した電極を有し、中性子が入射すると核分裂反応が起こり、高エネルギーの分裂生成核がガスを強く電離する。この電離によって生じる大きな電荷パルスを検出することで中性子を計測でき、 γ 線に対する感度が極めて低いという特徴を持つため、高 γ 線線量率下での中性子計測に適している。一方で、燃料デブリ取り出し作業における未臨界度測定および臨界近接監視に適用する中性子検出器としては、核物質を取り扱う核分裂電離箱の輸入許可が下りないことから、適用は事実上不可能であった [8]。このため、核物質を使用せず、高 γ 線線量率下でも中性子計測が可能な代替検出器の開発が求められていた。

これまでに評価が行われてきた代表的な中性子検出器としては、 ^{10}B 比例計数管などのガス入り検出器や4H-SiC半導体検出器が挙げられる [9]。 ^{10}B 比例計数管 [10]は、 ^{10}B の中性子捕獲反応を利用するガス入り検出器である。中性子が ^{10}B と反応すると、 $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ 反応

により α 線と ^7Li 核が放出され、これらの重荷電粒子がガスを電離する。生成された電離電荷を比例領域で増幅・検出することで中性子を計測する。中性子検出器としては、 1 kGy/h の γ 線線量率下で炉雑音法的一种である Feynman- α 法 [11]を用いて1時間の測定で未臨界度評価が可能とされる $2\text{ cps/n cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$ の中性子感度を持つために 2 cm の鉛遮へい厚が必要であると見積もられた。一方で、その総重量は約 150 kg となり、アーム型アクセス装置の想定ペイロード 20 kg ではハンドリングができず、燃料デブリ取り出し作業で用いる中性子検出器への適用は難しい [12]。4H-SiC 半導体検出器 [13]で使用される 4H-SiC は 3.20 eV のバンドギャップ [14]を持つワイドバンドギャップ半導体であり、高温動作、低リーク電流、高放射線耐性、高電界印加が可能といった特長から高線量率、高温での放射線計測に適した半導体放射線検出器材料として有望視されている。放射線によって生成された電子・正孔対を電界で収集し、その電荷量から放射線を検出する。荷電粒子の検出に適しており、中性子検出器としては ^6LiF や $^{10}\text{B}_4\text{C}$ などの中性子-荷電粒子コンバータと組み合わせた評価が報告されている [15]。加えて、 γ 線に対する応答性の評価も報告されている [16]。燃料デブリ取り出し作業で用いる中性子検出器としては、 100 Gy/h の γ 線線量率下での動作は確認されたが、 1 kGy/h での動作には課題が残ったため適用は難しい [17]。以上のように、 1 kGy/h という高 γ 線線量率下で動作する中性子検出器の実現は大きな課題となっている。

これまでに検討された中性子検出器以外の 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で動作する中性子検出器の候補としては、SiC よりも広いバンドギャップを有し、中性子検出器としての実用化検討が進んでいる GaN およびダイヤモンドが挙げられる。GaN とダイヤモンドにおいても、中性子検出器として中性子-荷電粒子コンバータと組み合わせた評価 [18,19]や γ 線に対する応答性の評価 [20,21]が報告されている。その中でも特にダイヤモンドは高 γ 線線量率下での使用に適した特長を持つ。ダイヤモンドの単位体積あたりの全電子密度は $10.6 \times 10^{23}\text{ electrons/cm}^3$ と GaN の $16.8 \times 10^{23}\text{ electrons/cm}^3$ と比べると $2/3$ 程度の値と比較的低く、燃料デブリ取り出し時に想定される γ 線のエネルギーが MeV 級であり、検出器に使用する半導体材料との主要な相互作用がコンプトン散乱であることを考慮すると、単位体積あたりの全電子密度が低いほど γ 線との相互作用が生じにくく、雑音が発生しにくいという利点がある。さらに、ダイヤモンドの電荷キャリア移動度は、電子と正孔でそれぞれ $2200\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 、 $1600\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ であり、4H-SiC の $1000\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 、 $150\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 、GaN の $1000\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ 、 $30\text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ と比較して高く、電子と正孔の移動度差も小さい [22]。このため、出力信号の立ち上がりが速く、シェーピングタイムを短縮することが可能となり、 γ 線によるパイルアップの影響を低減できる。加えて、ダイヤモンドの変位エネルギーは 43 eV であり、SiC の 21.8 eV 、GaN の 20 eV 程度と比較して2倍以上高く [23]、放射線照射に伴う結晶損傷を抑制できる。以上の特性から、ダイヤモンドは高 γ 線線量率に対応可能な検出器材料として有望であると考えられる。これらの特長を十分に活用することで、ダイヤモンド放射線検出器は、従来の半導体放射線検出器では動作が困難であった高線量率、高温においても、安定した検出器動作を実現できると期待される。

実際に、ITERなどの核融合炉では、反応率および出力評価を目的として、高時間分解能かつ高耐放射線性を有する中性子診断技術が要求されており、ダイヤモンド検出器を用いた中性子診断に関する研究が進められている [24,25]。これらの中性子診断では、核融合反応に起因する DD 反応および DT 反応によって発生する高エネルギー中性子の計測を行うと同時に、高線量率の γ 線が発生する環境下での動作が求められる。高エネルギー中性子はダイヤモンド検出器で直接的に検出が可能なため、これらの研究では中性子-荷電粒子コンバータを用いずに中性子計測が行われている。そのため、高 γ 線線量率下で中性子を計測するという点では燃料デブリ取り出し作業用の中性子検出器と類似した条件であるものの、中性子-荷電粒子コンバータの有無という点で測定原理および検出条件は異なる。一方で、中性子-荷電粒子コンバータを併用したダイヤモンド検出器を用い、高 γ 線線量率下における中性子計測特性を評価した研究例は限られており、既報における γ 線線量率は最大でも約 80 Gy/h 程度にとどまっている [21]。

このような背景から、福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業を念頭においたダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発が、北海道大学、高エネルギー加速器研究機構(KEK)、産業技術総合研究所、名古屋大学、九州大学、日本原子力研究開発機構による英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業により進められている [26]。その中で検討されたダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプは主にダイヤモンド中性子検出器部分と信号処理回路システム部分からなる。ダイヤモンド中性子検出器部分は北海道大学が中心となり、信号処理回路システム部分は KEK が中心となり開発を進めている。このダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプは、6 mm 角程度のサイズのダイヤモンド検出素子を 1024 枚用いることで、 $2 \text{ cps/n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の中性子検出感度を持ち、最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で中性子を測定可能で、総重量が 20 kg 未満となる設計となっている。

本論文では、福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業を念頭においた高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実用性向上に関する研究を行った。ダイヤモンドを用いて高 γ 線線量率に対応可能な中性子検出器を実現した報告はこれまではほとんどなく、燃料デブリからの微弱な中性子を最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で測定可能で、かつ現実的な測定時間を実現する中性子感度を持つ軽量なダイヤモンド中性子計測システムは全く実用レベルに達していないのが現状であった。そこで、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現可能性を検証するためにダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価、高 γ 線線量率への対応性評価などを実施した。その結果、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現が可能であることを明らかにした。その後、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた主要な課題へ対応するための研究を行った。はじめに、検出器用ダイヤモンドの加工によるダイヤモンド中性子検出器の高 γ 線線量率対応性の向上への影響を調べた。次に、ダイヤモンド中性子検出器の高 γ 線線量率対応性の向上に向けて、北海道大学が有するマイクロ波プラズマ CVD 装置を用いて、従来の合成

条件に酸素を添加した条件で検出器用ダイヤモンドを合成し、合成条件を変化させた際の高 γ 線線量率応答性をはじめとする検出器特性への影響を調べた。最後に、北海道大学による約100枚を最終目標としたダイヤモンド検出素子と ^6LiF 中性子-荷電粒子コンバータから構成されるダイヤモンド中性子検出器とKEKによる耐放射線性Si半導体集積回路を用いた信号処理回路システムを組み合わせた際のダイヤモンド中性子計測システムの動作実証を行うことで、高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実用性向上に寄与した。

1.2 論文構成

本論文は全7章で構成される。

第2章では、ダイヤモンド検出器の基礎と作製・評価手法について記した。基礎としてまず、ダイヤモンドの諸特性について述べ、その後ダイヤモンド放射線検出器の特長と動作原理について述べた。作製手法としては、マイクロ波プラズマCVD法、ダイレクトウエハー法、ダイヤモンド放射線検出器の作製方法について述べた。評価手法としては、 α 線誘導電荷量分布測定と γ 線照射試験について述べた。

第3章では、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現可能性を検証するためにダイヤモンド検出器部分に関わる、 γ 線線量率応答性の評価、ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価、KEK設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性の評価、高 γ 線線量率への対応性評価を実施した。その結果、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現が可能であることを明らかにした。

その後、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプ実現に向けた課題を整理し、課題に対応するための研究を第4章、第5章、第6章で実施した。

第4章では、結晶内捕獲準位の低減を目的として、合成後の検出器用ダイヤモンドに対する加工によって、 γ 線照射に起因するノイズ信号の低減による γ 線線量率対応性の向上が可能であるかを評価した。加工手法としては、イオンビームエッチングによるダイヤモンドドリフトオフ分離面の厚さ10 μm の除去およびダイヤモンドとTi/Auオーミック電極界面へのB添加ダイヤモンド合成によるp+ダイヤモンド層の導入を実施した。

第5章では、結晶内の捕獲準位が少ない高品質な検出器用ダイヤモンドを作製するための捕獲準位の低減手法として、捕獲準位の少ないダイヤモンドを得ることが可能な条件による合成を目的として、従来の水素とメタンのみの合成ガス雰囲気に加え酸素を添加した合成条件での合成を行いその影響を評価した。

第6章では、約100枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証として、中性子感度評価、中性子束変動への追従性試験、ならびに55 Gy/hの比較的低い γ 線線量率における応答性評価を実施した。

第7章では、研究全体の結論と今後の展望について述べた。

第1章の引用文献

- [1] K. Nakajima: Journal of the Atomic Energy Society of Japan, 56 (2014) 230. In Japanese. https://doi.org/10.3327/jaesjb.56.4_230
- [2] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID), 平成 29 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」燃料デブリ・炉内構造物の取り出し工法・システムの高度化(臨界管理方法の確立に関する技術開発) 平成 30 年度実施分最終報告, 令和元年 7 月, https://irid.or.jp/_pdf/20180000_04.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [3] C. Kong, D. Lee, and E. Lee: Ann. Nucl. Energy, 71 (2014) 245. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.04.013>
- [4] M. Tsuji, N. Suzuki, and Y. Shimazu: J. Nucl. Sci. Technol., 40 (2003) 158. <https://doi.org/10.1080/18811248.2003.9715346>
- [5] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID), 平成 27 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」(燃料デブリ臨界管理技術の開発) 最終報告, 平成 30 年 3 月, https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_05.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [6] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, 平成 28 年度補正予算廃炉・汚染水対策事業費補助金 「燃料デブリ・炉内構造物の取り出しに向けたサンプリング技術の開発」 平成 30 年度実施分最終報告, 令和元年 7 月, https://irid.or.jp/_pdf/20180000_07.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [7] R. Aves, D. Barnes, and R.B. Mackenzie: J. Nucl. Energy, 1 (1954) 110. [https://doi.org/10.1016/0891-3919\(54\)90003-0](https://doi.org/10.1016/0891-3919(54)90003-0)
- [8] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構, 平成 29 年度補正予算 廃炉・汚染水対策事業費補助金 「原子炉格納容器内部詳細調査技術の開発(X-6 ペネトレーションを用いた内部詳細調査技術の現場実証)」 平成 30 年度実施分成果 令和元年 7 月, https://irid.or.jp/_pdf/20180000_11.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [9] I. L. Fowler, and P. R. Tunncliffe: Rev. Sci. Instrum., 21 (1950) 734. <https://doi.org/10.1063/1.1745700>
- [10] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID), 令和 3 年度開始廃炉・汚染水対策事業費補助金安全システムの開発(液体系・気体系システム、臨界管理技術) 最終報告 (1) 液体系・気体系システム(2) 臨界管理技術, 2023 年 6 月, <https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2023/06/2022010anzensisutemu202306F.pdf> (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [11] R. P. Feynman, F. D. Hoffmann, and R. Serber: J. Nucl. Energy, 3 (1956) 64. [https://doi.org/10.1016/0891-3919\(56\)90042-0](https://doi.org/10.1016/0891-3919(56)90042-0)
- [12] 技術研究組合 国際廃炉研究開発機構(IRID), 平成 27 年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金」(燃料デブリ臨界管理技術の開発) 最終報告, 平成 30 年 3 月, https://irid.or.jp/wp-content/uploads/2018/06/20170000_05.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [13] M. D. Napoli: Front. Phys., 10 (2022) 898833. <https://doi.org/10.3389/fphy.2022.898833>

- [14] H. Umezawa: *Mater. Sci. Semicond. Process.*, 78 (2018) 147. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2018.01.007>
- [15] R. Bernat, L. Bakrač, V. Radulović, L. Snoj, T. Makino, T. Ohshima, Ž. Pastuović, and Ivana Capan: *materials*, 14 (2021) 5105. <https://doi.org/10.3390/ma14175105>
- [16] R. Bernat, I. Capan, L. Bakrač, T. Brodar, T. Makino, T. Ohshima, Ž. Pastuović, and A. Sarbutt: *Crystals*, 11 (2021) 10. <https://doi.org/10.3390/cryst11010010>
- [17] 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 京都大学, 放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発(委託研究)―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―, <https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2022-068.pdf> (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [18] Z. Zhu, Z. Sun, J. Zou, B. Tang, Q. Xiu, R. Wang, J. Qu, W. Deng, S. Wang, and J. Peng: *Chin. Phys. B*, 29 (2020) 090401. <https://doi.org/10.1088/1674-1056/ab9c05>
- [19] M. Marinelli, E. Milani, G. Prestopino, M. Scoccia, A. Tucciarone, G. Verona-Rinati, M. Angelone, M. Pillon, and D. Lattanzi: *Appl. Phys. Lett.*, 89 (2006) 143509. <https://doi.org/10.1063/1.2356993>
- [20] C. Zhou, A. G. Melton, E. Burgett, N. Hertel, and I. T. Ferguson: *Sci. Rep.*, 9 (2019) 17551. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-53664-7>
- [21] X. Xu, M. Hagiwara, M. Nakhostin, S. Kamada, and H. Iwase: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 62 (2025) 233. <https://doi.org/10.1080/00223131.2024.2407372>
- [22] J. Wang, P. Mulligan, L. Brillson, and L. R. Cao: *Appl. Phys. Rev.*, 2 (2015) 031102. <https://doi.org/10.1063/1.4929913>
- [23] P. J. Sellin, and J. Vaitkus: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 557 (2006) 479. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.10.128>
- [24] M. Passeri, D. Carnevale, B. Esposito, D. Marocco, S. Podda, F. Pompili, and M. Riva: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 974 (2020) 164195. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164195>
- [25] T. Shimaoka, J. H. Kaneko, Y. Arikawa, M. Isobe, M. Tsubota, K. Oda, T. Nagai, S. Kojima, Y. Abe, S. Sakata, S. Fujioka, Y. Iwasa, K. Yamanoi, M. Nakai, H. Shiraga, H. Azechi, A. Chayahara, H. Umezawa, and S. Shikata: *Sensors and Materials*, 36 (2024) 217. <https://doi.org/10.18494/SAM4671>
- [26] 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 高エネルギー加速器研究機構, 遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発(委託研究)―令和4年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業―, <https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2023-020.pdf> (最終参照日 : 2026 年 1 月)

第2章 ダイヤモンド検出器の基礎と作製・評価手法

2.1 ダイヤモンド放射線検出器

2.1.1 ダイヤモンドの諸特性

ダイヤモンド結晶は、極めて強固な共有結合で構成されており、物質中で最高の硬度を示すとともに、化学的にも非常に不活性である。このため、さまざまな工業分野に利用されている [1]。さらに、弾性率や熱伝導率の高さ [2,3]、広い光透過波長域 [4]、低い誘電率 [5] など、多くの物性において優れた特性を有している。

加えて、ダイヤモンドは半導体としての性質も併せ持つ材料であり、間接遷移型でバンドギャップ 5.47 eV を有する単元素半導体である [6]。表 2.1 にダイヤモンドおよび各種半導体材料の物性値を示す。単位体積あたりの全電子密度は計算で求めた。ダイヤモンドはワイドバンドギャップに起因する高い耐熱性や絶縁破壊強度、ならびに高い飽和ドリフト速度を有しており、一般的な半導体材料である Si、ワイドバンドギャップ半導体材料である SiC や GaN と比較して優れた特性値を示す。

以上の特性から、ダイヤモンドは「究極の半導体材料」と位置付けられ、エネルギー・情報通信分野における次世代エレクトロニクスや、耐環境性を要するセンシングデバイス材料として大きな期待が寄せられている。加えて、負性電子親和力を利用した電子放出材料としての応用 [11]、大きな弾性率を活かした SAW フィルタへの展開 [12]、さらには人体の平均原子番号(7.2~7.4)に近い生体等価物質である点から、医療放射線治療や保健物理分野への応用も見込まれている [13,14]。

表 2.1 各種半導体の物性値 (文献 [7,8,9,10]を基に著者作成)

物性値		Si	4H-SiC	GaN	ダイヤモンド
バンドギャップ (eV)		1.10	3.20	3.45	5.47
遷移型		間接	間接	直接	間接
密度 (g/cm ³)		2.3	3.2	6.2	3.5
全電子密度($\times 10^{23}$ electrons/cm ³)		7.0	9.6	16.8	10.6
熱伝導率 (W/m・K)		150	490	130	2200
相対誘電率		11.9	9.66	8.9	5.7
移動度 (cm ² /V・s)	電子	1450	800-1000	1000	1800-2200
	正孔	450	50-150	30	1200-1600
電子飽和ドリフト速度 (10 ⁷ cm/s)		1.0	2.0	3.0	2.7
変位エネルギー (eV)		13-20	21.8	Ga-20, N-10	43
絶縁破壊電界 (10 ⁶ V/cm)		0.3	3-5	~5	1-10

ダイヤモンドは、含有する窒素(N)やホウ素(B)の不純物量、およびそれらが結晶中に取り込まれる様式により分類され、Ia、Ib、IIa、IIb 型の 4 種類に分けられる。表 2.2 にダイヤモ

ンドの分類を示す。N 不純物を多く含むものはⅠ型に、ほとんど含まないものはⅡ型に分類される。Ⅰ型のうち、Ⅰa型は薄い層状のN 不純物が析出し、立方格子の特定面に平行に取り込まれたものであり、Ⅰb型はN 原子が結晶中に均一に分散し、単独置換型として格子位置に入り込んだものである。一方、Ⅱ型では、Ⅱa型はN 不純物濃度が低く、B 不純物よりもN 不純物が多いものを指し、Ⅱb型はN 不純物濃度が低い点では同様だが、B 不純物の方がN 不純物より多い場合に分類される。この中で、Ⅱa型は最も不純物量が少なく、無色透明で高い絶縁抵抗を示す。

表 2.2 ダイヤモンドの分類表 (文献 [15,16]を基に著者作成)

型		I a	I b	Ⅱ a	Ⅱ b
天然存在比 [%]		～98	～0.1	1～2	～0
含有不純物	窒素 [ppm]	～10 ³	～数100	～1.0	～1.0
	ホウ素 [ppm]	—	～1.0	～0.5	～100
色		無色	黄色	無色	青色
電気抵抗 [$\Omega \cdot \text{cm}$]		10 ⁴ ～10 ¹⁶	～10 ¹⁶	～10 ¹⁶	10～10 ⁴

ダイヤモンドの電氣的性質を左右する主要因として、炭素に対してドナーあるいはアクセプタとして働くNやBといった不純物が挙げられる [17]。Nが単独で格子点を置換した場合、価電子帯から3.8 eV(伝導帯から1.7 eV)下に位置する深い準位を形成するため、室温では電気伝導がほとんど起こらず、実質的に絶縁体として振る舞う。一方、Bは価電子帯端から0.37 eV上に浅い準位を作り出す。不純物によってバンドギャップ内に現れるこれらの準位の位置を図 2.1 に示す。ダイヤモンド中にBが高濃度で導入されるとp型の伝導性を示すようになり、現状では、結晶中の置換位置に入りアクセプタ準位を形成することが確認されている唯一の不純物がBである。

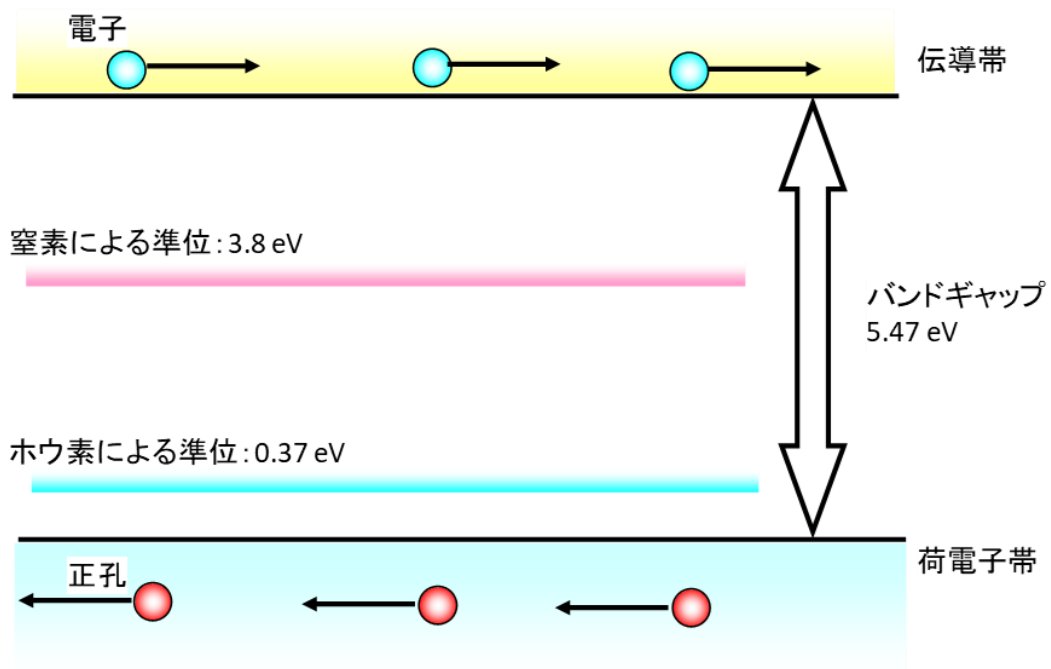


図 2.1 不純物によるバンドギャップ内のエネルギー準位

2.1.2 ダイヤモンド放射線検出器の特長

ダイヤモンド放射線検出器は、高い耐放射線性や大きなバンドギャップに起因する高温環境下での動作 [18,19]、さらに高い絶縁破壊強度、低リーク電流、可視光への不感性といった優れた特性を有している [20]。また、電荷キャリア移動度および飽和ドリフト速度が高いため高速応答が可能であり [21,22]、極限環境に適用可能な放射線検出器として期待されている。

半導体放射線検出器に用いられるダイヤモンドには単結晶と多結晶が存在する。単結晶ダイヤモンドは炭素原子が規則正しく並んだ 1 つの結晶の塊である。多結晶ダイヤモンドは小さな単結晶の粒が集まった構造をしている。単結晶ダイヤモンドは放射線によって生成された電荷キャリアが結晶内を妨げられることなく移動できるが、多結晶ダイヤモンドは結晶の継ぎ目である粒界がトラップとなり電荷キャリアの移動が妨げられる。そのため、基本的には単結晶ダイヤモンドの方が多結晶ダイヤモンドよりも優れた電荷キャリア輸送特性を示す [23]。しかし、多結晶ダイヤモンドは大面積合成が可能で低コストで作製できるため、電荷キャリア輸送特性がそれほど重要ではない用途では利用が進められている。本論文では電荷キャリア輸送特性に優れた単結晶ダイヤモンドを用いた。

放射線検出器に用いられるダイヤモンドには天然および人工のものが存在する。しかし、天然ダイヤモンドのうち窒素含有量が少なくスペクトロメータとして動作する品質を有する IIa 型ダイヤモンドは 1000 個に 1 個程度しか得られない。そのため、人工ダイヤモンド

合成技術の発展が強く求められた [24]。

人工ダイヤモンドは、1950 年代に高温高压(HPHT)法 [25,26]、1980 年代初頭に化学気相成長(CVD)法 [27,28]による合成が報告されて以来、現在まで研究が進められてきた。これら 2 種類の合成方法は、HPHT 法がダイヤモンド基板合成技術、CVD 法がダイヤモンド層合成技術という役割を担っている。一般に、放射線検出器として用いる人工ダイヤモンドは、HPHT 基板上に CVD 法でダイヤモンド層をエピタキシャル成長させることで作製される。

ダイヤモンド放射線検出器は、ダイヤモンド基板を 2 枚の電極で挟む並行平板型構造が一般的であり、北海道大学では入射窓側に Al などのショットキー電極、裏面に Ti/Au のオーミック電極を用いることが多い。ダイヤモンドが絶縁性を示す場合には電離箱モードで動作し、弱い p 型導電性を示す場合にはショットキー電極近傍に形成される空乏層により検出器として機能する。構造が極めて単純である一方で、性能は使用するダイヤモンドの電荷キャリア輸送特性に大きく依存する。そのため、放射線のエネルギースペクトロメータとして利用するには、欠陥や不純物の混入が極めて少ない高品質ダイヤモンドが不可欠である。

2.1.3 ダイヤモンド放射線検出器の動作原理

ダイヤモンド放射線検出器は、物性物理学的には広義の半導体検出器に分類され、その動作原理は固体電離箱として理解される [29]。ダイヤモンドは 5.47 eV という大きなバンドギャップを有することから、室温においても真性半導体として振る舞い、熱励起による漏れ電流が極めて低いという特徴を示す。

入射放射線(荷電粒子、X 線、ガンマ線、中性子など)がダイヤモンド結晶内に入射すると、結晶格子を構成する炭素原子との相互作用を通じてエネルギーを失う。この付与されたエネルギーにより、価電子帯に存在する電子が伝導帯へ励起され、価電子帯には正孔が形成される。この過程で、入射粒子のエネルギーに比例した数の電子-正孔対が生成される。ダイヤモンドにおける電子-正孔対平均生成エネルギー(W 値)は約 13.1 eV であり、シリコンの 3.62 eV やゲルマニウムの 2.96 eV と比較して高い値を示す [30,31]。一般に W 値が小さい材料ほど生成されるキャリア数が多くなるため、信号強度が大きくなりエネルギー分解能の向上が期待できる。一方、ダイヤモンドのように比較的高い W 値を持つ材料は、熱励起による漏れ電流の抑制や高い絶縁破壊耐性といった観点で有利に働く。

並行平板型の検出器では、両面に形成された金属電極(オーミック接合またはショットキー接合)間に外部バイアス電圧を印加することで、結晶内部に一様な電界が形成される。放射線相互作用によって生成された電子および正孔は、この内部電界により加速され、それぞれアノード側およびカソード側へ向かってドリフト移動を開始する。外部回路で観測される信号電流は、式(1)に示すように Shockley-Ramo の定理 [32,33]に従い、キャリアが電極に到達した瞬間だけでなく、キャリアが電界中を移動する際に電極上に誘起される誘導電荷として記述される。

$$i(t) = q \cdot v(t) \cdot E_w \quad (1)$$

ここで、 q はキャリアの電荷、 $v(t)$ はドリフト速度、 E_w は重み付け電場を表す。ダイヤモンドは電子および正孔の双方について高いキャリア移動度を有するため、ns オーダーの極めて高速な信号応答が実現可能である。

2.2 試料作製方法

2.2.1 マイクロ波プラズマ CVD 法による単結晶ダイヤモンド合成

マイクロ波プラズマ CVD 法による単結晶ダイヤモンド合成は図 2.2 に示すように、マイクロ波を用いて水素プラズマを生成し、導入した炭化水素ガスをラジカル化したうえで、それらを単結晶ダイヤモンド基板上に堆積させることで新たな単結晶ダイヤモンド成長層を形成する手法である。この方法は電極を使用しないため、意図しない不純物の混入を抑制しやすく、結晶純度の向上やドーピング濃度の精密な制御が可能である。使用されるガスは主に水素とメタンの混合ガスであり、分解によって生成される原子状水素は、 sp^3 混成軌道による共有結合以外の構造のエッチング、成長中のダイヤモンド基板表面の水素終端による表面安定化、さらには成長種となる炭化水素ラジカルの生成など、多様な役割を担っている。

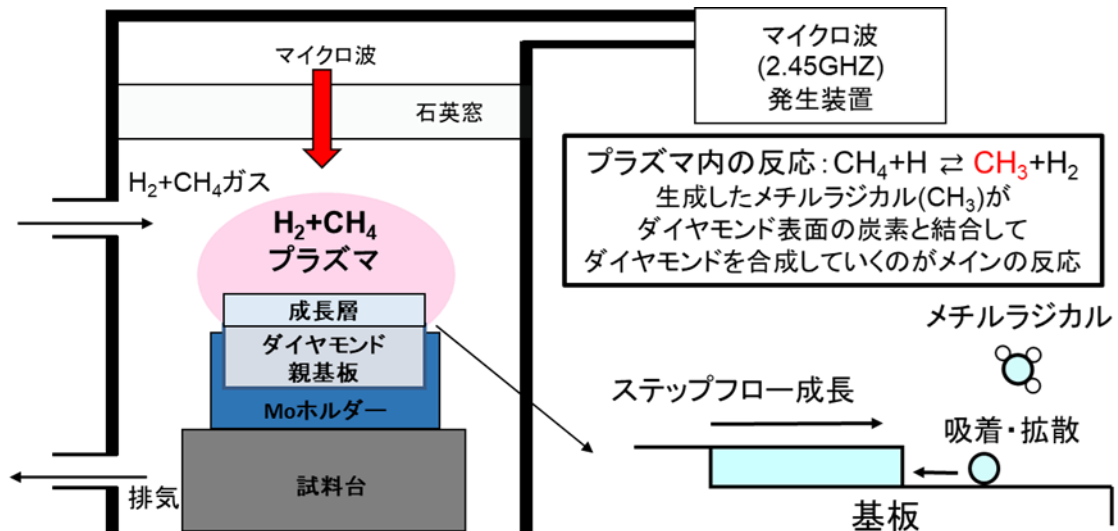


図 2.2 マイクロ波プラズマ CVD 法の概略

ラジカル化された炭化水素は基板上を流動しながら徐々にエネルギーを失い、最終的に基板と結合する。このとき、ラジカルが基板表面の原子ステップ端へと到達しながら成長が進行する場合、この成長様式をステップフロー成長と呼び、その概略を図 2.3 に示す。ステップフロー成長は、電子デバイス用途で求められる原子的に平坦な表面を実現できる理想的な成長モードである。メタン濃度は、総ガス流量に対するメタンガス流量の比で定義され、成長速度や欠陥量を制御する重要な合成パラメータである。メタン濃度を高めると、成長に

供給される炭化水素量が相対的に増加し、その結果成長速度が上昇する。しかし、成長が水素原子による欠陥エッチングの速度を上回ると、点欠陥の増加や異常成長密度の増加 [24] を引き起こす。放射線検出器用途では、極めて欠陥の少ない成長層が求められる。そのため北海道大学ではメタン濃度を 1%以下としているが、この条件では成長速度が低下し [35]、厚い成長層を得ることが難しくなる。

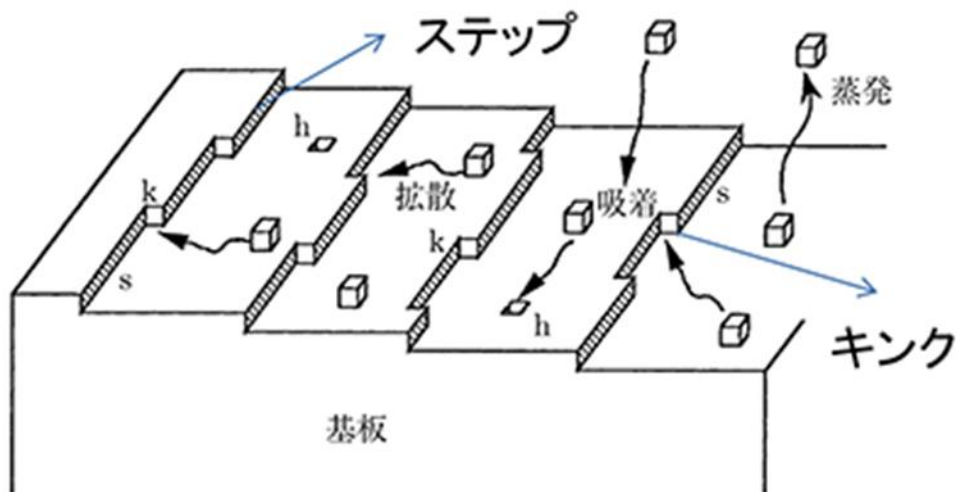


図 2.3 ステップフロー成長の概略 (文献 [36]より転載)

CVD 合成に用いる単結晶ダイヤモンド基板では、結晶成長面として(001)面が選択されることが多い。これは、単結晶ダイヤモンドの成長において(001)面と(111)面が主要な成長面となること、(001)面は他の面方位に比べて双晶が発生しにくいこと、さらに(111)面の研磨が困難であることなどが背景にある [37]。本論文でも、成長面として(001)面を採用している。しかし、(001)面を成長面とした場合でも、合成条件や基板表面に存在する傷・不純物などを起点として、(111)面を主体としたピラミッド状の異常成長が生じることがある。

この異常成長を抑制する方法として、オフ角制御が利用される [38]。オフ角制御とは、結晶の成長面である(001)面を $\langle 110 \rangle$ 方向に $2\sim 3^\circ$ 傾けて研磨し、ステップフロー成長を促進することで異常成長を抑制する技術である。図 2.4 にオフ角制御後の結晶表面の概略を、図 2.5 に異常成長抑制の概略を示す。

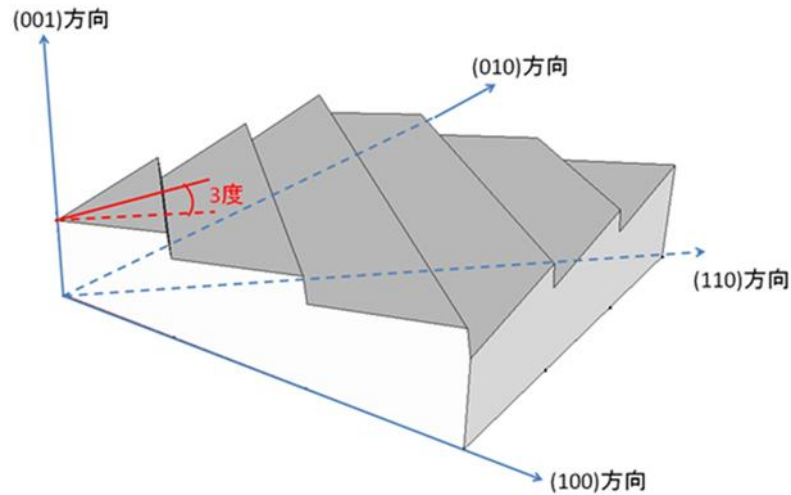


図 2.4 オフ角制御後の結晶表面の概略

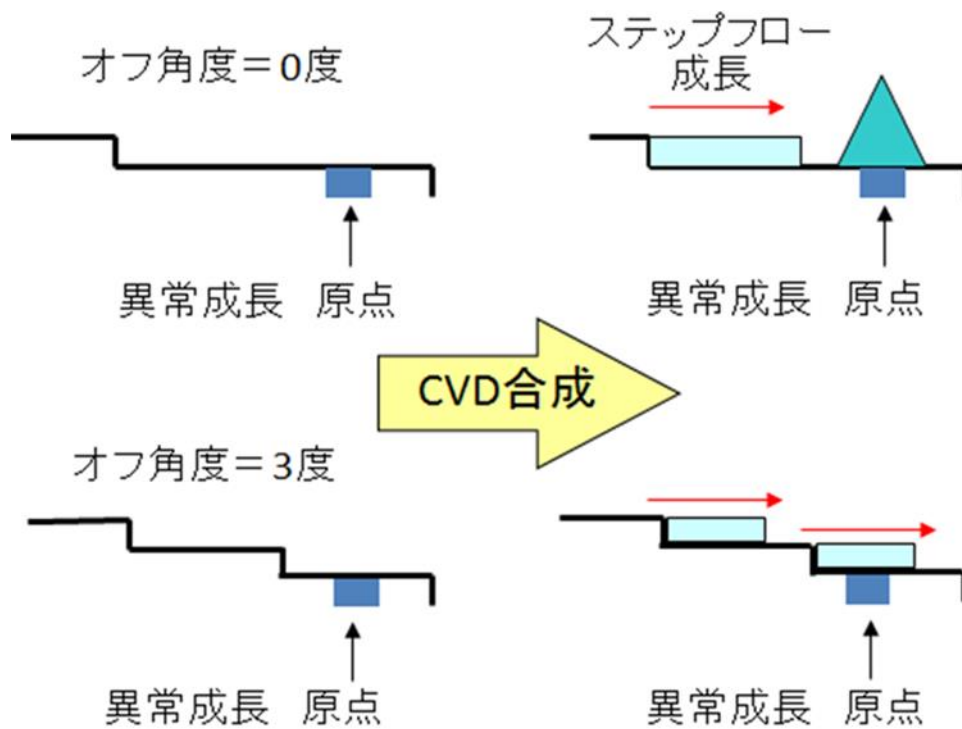


図 2.5 オフ角制御による異常成長の抑制の概略

オフ角制御により成長面上の原子ステップ密度が増加し、 $\langle 111 \rangle$ 面に起因する異常成長が大きく発達する前に、基板表面の異常成長核上へ $\langle 001 \rangle$ 面の成長層が形成されることで、異常成長を抑制することが可能となる [39]。なお、オフ角制御によるダイヤモンド表面の機械研磨では表面にダメージが残存するため、研磨後には約 $2\mu\text{m}$ 程度のイオンビームエッチング(IBE)を行い、損傷領域の除去を実施する。

2.2.2 ダイレクトウエハー法によるダイヤモンドの作製

ダイレクトウエハー法 [40]とは、CVD 合成後にダイヤモンド基板と成長層を分離することで基板を再利用可能とする手法である。図 2.6 にその概略を示す。北海道大学では産業技術総合研究所(産総研)の協力のもと、このダイレクトウエハー法を用いて放射線検出器用ダイヤモンドの作製を進めている。CVD 合成により得られるダイヤモンド成長層の品質は、使用するダイヤモンド基板に大きく依存する。そのため、ダイレクトウエハー法により同一基板を再利用しつつ合成条件だけを変化させることで、基板の違いによる影響を排除し、純粋に合成条件が結晶成長に与える効果を評価することが可能となる。また、オフ角制御を施した HPHT IIa 型基板は非常に高価であるため、基板再利用が可能となるダイレクトウエハー法は、ダイヤモンド作製コストの低減においても重要な手法となる。

CVD 合成に先立ち、オフ角制御および IBE 処理を施したダイヤモンド基板表面に対してイオン注入を行い、合成面直下数 μm にイオン注入層を形成した。CVD 合成後、このイオン注入層はグラファイト層へと変化し、電気化学エッチングを行うことでダイヤモンド基板と成長層を分離することが可能となる。分離後、成長層の分離面については、IBE により数 μm の厚さを除去することで残ったグラファイト層を取り除く。ダイレクトウエハー法を用いることで、厚さ数十 μm 程度の非常に薄い成長層を得ることができ、かつ基板の再利用も可能となる。得られた成長層は、放射線検出器用ダイヤモンドとして用いる。

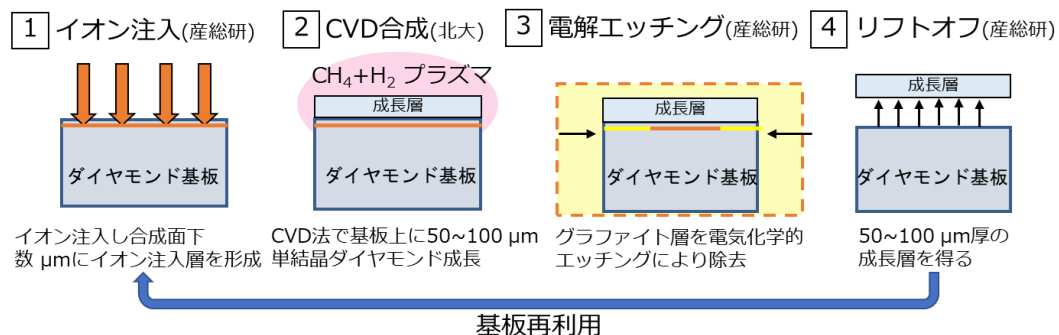


図 2.6 ダイレクトウエハー法の概略

2.2.3 ダイヤモンド放射線検出器の作製

北海道大学におけるダイヤモンド放射線検出器の作製工程について述べる。作製プロセスは大きく、(1) イオン注入、(2) CVD 合成、(3) リフトオフ、(4) 電極形成、(5) 検出器化、の5段階から構成される。以下に、それぞれの工程について順に説明する。また、各工程においてダイヤモンド基板の微分干渉顕微鏡像、偏光顕微鏡像、レーザー顕微鏡像などの撮影を実施している。

・作製工程(1) イオン注入

北海道大学では、ダイレクトウエハー法を用いて放射線検出器用ダイヤモンドの作製を行っている。外部より購入した HPHT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板あるいは単結晶 CVD ダイヤモンド基板上に、マイクロ波プラズマ CVD 装置を用いてダイヤモンド層をホモエピタキシャル成長させることで検出器用ダイヤモンドを得ている。ダイレクトウエハー法を適用するため、購入基板の合成面に対してイオン注入を行い、基板表面下数 μm にイオン注入層を形成する。基板表面に存在する微小な汚れや異物は均一なイオン注入を妨げるため、注入前に薬品洗浄を実施し、基板表面の汚染除去を行った。洗浄工程では、ピラニア溶液→フッ硝酸→熱混酸→ピラニア溶液の順で洗浄処理を行った。洗浄を終えたダイヤモンド基板は産総研へ送付し、イオン注入処理を委託している。

・作製工程(2) CVD 合成

イオン注入済みダイヤモンド基板の合成面上に、マイクロ波プラズマ CVD 装置(ASTeX AX5250 など)を用いてダイヤモンド層をホモエピタキシャル成長させる。合成に先立ち、イオン注入済み基板は薬品洗浄を行い、表面に付着した汚れを除去した。基板表面の微小な汚れや異物は、CVD 合成時に異常成長の核となることがあり、異常成長や転位の発生は放射線検出器としての性能劣化につながるため、その低減が必須である。洗浄処理では、ピラニア溶液→熱水→フッ硝酸→熱混酸→ピラニア溶液の順に薬品洗浄を行った。

洗浄後、イオン注入済み基板を Mo 製合成用基板ホルダーにセットし、CVD 装置の合成チャンバー内に設置して合成を実施する。マイクロ波プラズマ CVD 装置において外部から制御可能な主要パラメータには、メタン濃度、ガス総流量、ガス圧力、基板温度、マイクロ波出力などがある。当研究室における、高い電荷キャリア輸送特性を有するダイヤモンドが得られる標準的な合成条件は、メタン濃度 0.2%、総ガス流量 500 sccm、総ガス圧力 110 Torr、基板温度 870 $^{\circ}\text{C}$ である。マイクロ波出力については、基板温度を一定に保つため、合成ごとに調整を行っている。また、合成中にダイヤモンド基板の温度を 10 分間 1000 $^{\circ}\text{C}$ 程度にすることで、イオン注入層がグラファイト層となり電界エッチングが可能となる。

・作製工程(3) リフトオフ

放射線検出器用ダイヤモンド層の合成が完了したダイヤモンド基板は、産総研へ送付し、電界エッチングによるリフトオフ処理を委託している。リフトオフ処理により、CVD 成長したダイヤモンド層は元のダイヤモンド基板から分離される。

・作製工程(4) 電極形成

リフトオフした放射線検出器用ダイヤモンドに対しては、電極形成に先立ち薬品洗浄を行う。ダイヤモンド表面に汚れが残存していると、検出器動作時にリーク電流の増加や局所的な電界集中、さらには電極-ダイヤモンド界面への抵抗体の混入を引き起こし、動作不良

の原因となる。また、薬品洗浄によってダイヤモンド表面は酸素終端化され、強い絶縁性を示すようになり、表面リーク電流の抑制にも寄与する。洗浄処理は、熱混酸→ニクロム酸カリウム溶液→熱王水の順で実施した。

薬品処理後、ダイヤモンドの両面に蒸着法を用いて電極を形成した。リフトオフ分離面には、まずダイヤモンドを 400 °C に加熱した後、電子ビーム蒸着により厚さ 50 nm の Ti を成膜し、続いて再び 400 °C で加熱して TiC 層を形成した。その後、ダイヤモンドを 150 °C に加熱し、TiC 層上に厚さ 50 nm の Au を抵抗加熱蒸着することで Ti/Au オーミック電極を形成した。一方、成長面には室温で厚さ 100 nm の Al を抵抗加熱蒸着し、Al ショットキー電極を形成した。なお、電極の形状は使用した金属マスクによって決定した。

・作製工程(5) 検出器化

電極形成後の放射線検出器用ダイヤモンドは、使用を想定する環境に応じて専用の検出器筐体へ実装し、検出器として組み上げる。本論文で北海道大学において一般的に用いている検出器構造を図 2.7 に示す。この構造では、まず $\Phi 2$ mm の Ti/Au オーミック電極を形成した後、同寸法のすり鉢状の開口を設けた Al 板を準備する。Ti/Au オーミック電極の位置がこの開口位置と一致するように、ダイヤモンドを Al 板に絶縁ワニス(GE 7031)で固定し、さらにダイヤモンド成長面と穴の縁の間にエポキシを塗布して乾燥させる。このエポキシはリーク電流防止の絶縁の役割を果たす。エポキシ乾燥後、Al 板ごとダイヤモンド成長面に Al ショットキー電極を形成する。電極形成済みダイヤモンドが取り付けられた Al 板を検出器筐体へ実装し、Ti/Au オーミック電極は SMA 端子へ $\Phi 25$ μ m の金線を用い、銀ペーストとはんだ付けにより接続した。SMA 端子は同軸ケーブルを介して測定系へ接続する。Al ショットキー電極側は、Al 板を通して筐体に電氣的に接続されており、SMA レセプタクルを介してグラウンドへ落とす構成となっている。

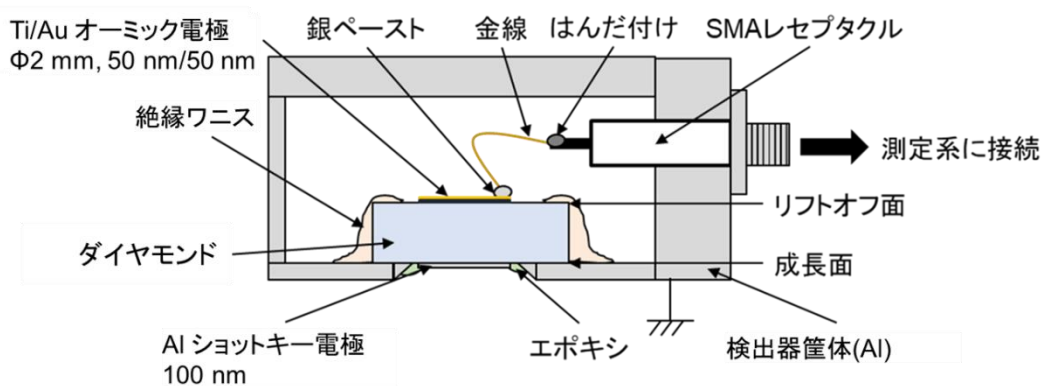


図 2.7 作製した検出器の構造

2.3 ダイヤモンド放射線検出器の評価方法

2.3.1 α 線誘導電荷量分布測定

ダイヤモンド放射線検出器の基本評価は、 α 線による誘導電荷分布測定で得られる波高分布スペクトルから電荷キャリア輸送特性を抽出することで行う。図 2.8 に、単結晶ダイヤモンド放射線検出器の α 線誘導電荷分布測定体系の概略を示す。 α 線源としては、一般的に ^{241}Am から放出される 5.486 MeV の α 線が使用される。ダイヤモンド中における 5.486 MeV の α 線の飛程は、ダイヤモンドの高い阻止能に起因して約 14 μm と極めて短い。そのため、電極表面近傍で生成された電子-正孔対のうち、一方のキャリアは照射面側の電極に即座に収集され、もう一方のキャリアのみが結晶の全厚をドリフトして対向電極へ到達する。このとき、バイアス電圧の極性を切り替えることで、電子または正孔のどちらか一方のみが結晶内をドリフトする単一キャリア輸送状態を選択的に実現することが可能となる。これにより、電子および正孔それぞれの輸送特性を独立に評価できる。なお、北海道大学における一般的な測定では、Al ショットキー電極側から α 線を入射する構成を採用している。

電荷有感型前置増幅器(Charge Sensitive Preamplifier: CSPA)は検出器直近に配置され、検出器と後段回路とのインピーダンス整合ならびに初期信号の電気的変換を担う最も重要なインターフェースである。ダイヤモンド検出器内で生成・収集された電荷 Q が CSPA に入力されると、帰還コンデンサ C_f によって積分される。この結果、入力された電荷量は式(2)に示すように電圧ステップ信号 V_{out} へと変換される。

$$V_{\text{out}} = -\frac{Q}{C_f} \quad (2)$$

CSPA の主要な役割は、検出器の静電容量の変動に依存することなく、収集電荷量に比例した電圧出力を得ること、そして初段 FET による低雑音増幅を行い、後段への伝送過程における信号雑音比(S/N 比)の劣化を最小限に抑えることにある。CSPA の出力波形は、急峻な立ち上がりを示す一方で、長い減衰時間定数を持つ階段状のテールパルスとなる。

主増幅器は、CSPA からのテールパルスを入力として受け取り、さらなる信号増幅と波形整形を行う。内部に構成された微分回路および積分回路を組み合わせることで、低周波ノイズと高周波ノイズを帯域制限フィルタとして除去し、S/N 比を最大化する。同時に、長く尾を引くテールパルスを、パルス波高分析に適した半ガウス型などのアナログパルスへ整形する。

マルチチャンネルアナライザ(Multi-Channel Analyzer: MCA)は、信号処理系の最終段に位置し、主増幅器から出力されるアナログパルスのピーク電圧(波高値)をデジタル値へ変換し、スペクトルを生成する装置である。内蔵された A/D 変換器によって、パルスの波高値は離散的なチャンネル番号へと変換される。MCA は、各チャンネルに対応するメモリアドレスへイベント発生回数を加算することで、横軸を波高値、縦軸を計数値とする波高分布スペクトルを構築する。

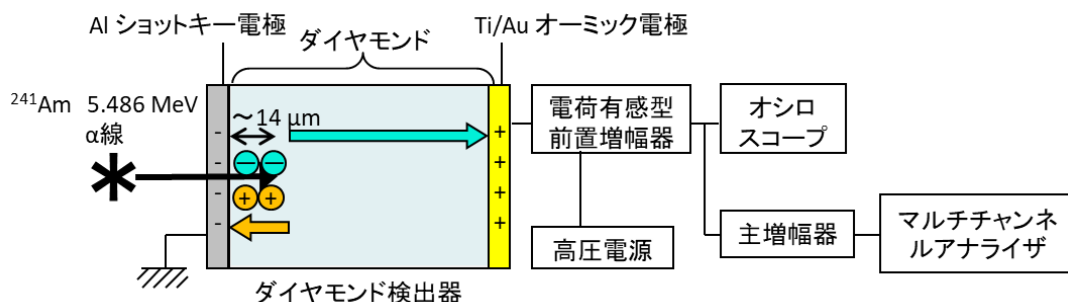


図 2.8 α線誘導電荷量分布測定体系の概略

外部回路で観測される誘導電荷量 Q_{col} (収集電荷)は、検出器内で生成された総電荷量 Q_0 に対して、キャリアが電極間を移動する過程でトラップに捕獲されることなく走行した距離に依存する。この関係は、一様電界近似の下で Hecht の式 [41]によって記述される。電子の輸送特性を評価する場合(照射面を負電位とした場合)、電荷収集効率(CCE)は式(3)によって表される。

$$CCE = \frac{Q_{col}}{Q_0} = \frac{\mu_e \tau_e E}{L} \times \left[1 - \exp\left(-\frac{L}{\mu_e \tau_e E}\right) \right] \quad (3)$$

ここで、 L は検出器の厚さ、 E は印加電場(V/L)、 μ_e は電子移動度、 τ_e は電子のキャリア寿命を表す。この式に基づき、印加電圧を変化させながら収集電荷量を測定し、得られたデータに対してフィッティングを行うことで、結晶品質の指標となる移動度-寿命積($\mu\tau$ 積)を導出することができる。単結晶ダイヤモンドでは、この値が大きいほど捕獲準位の密度が低く、より高品質であることを示している。

MCA によって得られる誘導電荷量の波高分布スペクトルの形状は、結晶の均質性を反映する。フルエネルギーピークは、生成された電荷が損失なく収集された場合に形成されるピークである。単結晶ダイヤモンドは粒界散乱が存在しないため、理想的な場合には非常に鋭いピークが観測される。エネルギー分解能はピークの半値全幅であり、統計的揺らぎに加えて、結晶内の欠陥分布に起因する局所的な電荷収集損失のばらつき、および回路ノイズに依存する。良好な分解能が得られることは、結晶全体にわたるキャリア輸送特性が均一であることを示唆する。一方、テーリングはピークの低エネルギー側に現れる非対称な広がりであり、不完全な電荷収集に起因する。これは、主に表面近傍の欠陥層や深い準位へのキャリア捕獲、あるいは分極効果による内部電界の遮蔽などを反映する指標として評価される。

2.3.2 γ線照射試験

ダイヤモンド放射線検出器のγ線照射試験は、基本的にはα線による誘導電荷分布測定と同様の手法で、α線とγ線の同時照射、またはγ線だけの照射により実施する。

本論文では実験に使用することが可能なγ線照射場の制約から、 ^{60}Co の1.17 MeVと1.33

MeV γ 線を使用している。しかし福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業時に主に想定される γ 線は ^{137}Cs の 0.662 MeV γ 線である。このような γ 線のエネルギーの違いによるダイヤモンド放射線検出器への影響について説明を行う。

各エネルギーは γ 線と物質の相互作用においてコンプトン効果が支配的な領域内のエネルギーとなっている。ダイヤモンドの原子番号が 6 と比較的小さいことも踏まえると、 ^{137}Cs および ^{60}Co からの γ 線とダイヤモンド間で発生する相互作用はコンプトン散乱であると考えられる。コンプトン散乱によるコンプトン電子がダイヤモンド検出素子に入射することで電子正孔対が生成され、その電荷キャリアが中性子の信号に対するノイズ信号として検出される。0.662 MeV、1.17 MeV、1.33 MeV の γ 線から発生するコンプトン電子の最大エネルギーはそれぞれ、0.45 MeV、0.92 MeV、1.07 MeV となる。

0.45 MeV、0.92 MeV、1.07 MeV の電子のエネルギーの違いによるダイヤモンド検出器への影響を考える。Kanaya-Okayama model [42]を用いてダイヤモンド中の電子の飛程を計算するとそれぞれ、510 μm 、1704 μm 、2205 μm となる。主に使用しているダイヤモンドの厚さ 50 μm 程度であることと電子の飛跡がランダムであることから高エネルギーの電子ほどごく一部しかエネルギーデポジットしない。これより主にダイヤモンドと相互作用するのは低エネルギーの電子であると考え、 ^{137}Cs と ^{60}Co の γ 線のエネルギーの違いによるダイヤモンド検出器への影響は少ないと考えられる。しかし、電子のエネルギーの違いによりダイヤモンド中の炭素原子のはじき出しによる放射損傷が発生する確率の違いはあると考えられるが、現状は損傷が発生するほど長時間 γ 線を照射したことがないためその影響は不明である。

ここで、同一の線量率(Gy/h)でエネルギーが異なる γ 線について考えると、直感的には線量率が同一の場合エネルギーの低い γ 線の方が単位時間当たりの γ 線の入射光子数は多いと考えられる。一般的にある量の物質が γ 線、X 線に一樣に照射されているときの、その物質の吸収線量を求める方法の原理を空洞原理と呼ぶ。空洞原理では γ 線の吸収線量の測定の際に有感体積内では γ 線のエネルギーの一部しかデポジットしないため、同一線量率の入射光子数は γ 線のエネルギーによって、少なくとも今回の ^{60}Co と ^{137}Cs の γ 線のエネルギーの差では大きくは変化しないと考えられる。

以上から、 ^{60}Co と ^{137}Cs の γ 線のエネルギーの違いによるダイヤモンド検出器への影響は、放射損傷以外にはほとんどないと考えられる。

第2章の引用文献

- [1] J. Robertson: Mater. Sci. Eng.: R: Rep., 37 (2002) 129. [https://doi.org/10.1016/S0927-796X\(02\)00005-0](https://doi.org/10.1016/S0927-796X(02)00005-0)
- [2] H. J. McSkimin, and W. L. Bond: Phys. Rev., 105 (1957) 116. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.105.116>
- [3] G. A. Slack: J. Appl. Phys., 35 (1964) 3460. <https://doi.org/10.1063/1.1713251>
- [4] D. F. Edwards, and H.R. Philipp: Handbook of Optical Constants of Solids, 1 (1997) 66 5. <https://doi.org/10.1016/B978-012544415-6.50033-9>
- [5] S. Bhagavantam, and D. A. A. S. Narayana Rao: Nature, 161 (1948) 729. <https://doi.org/10.1038/161729a0>
- [6] C. D. Clark, P. J. Dean, and P. V. Harris: Proc. R. Soc. London, Ser. A, 277 (1964) 31 2. <https://doi.org/10.1098/rspa.1964.0025>
- [7] J. Wang, P. Mulligan, L. Brillson, and L. R. Cao: Appl. Phys. Rev., 2 (2015) 031102. <https://doi.org/10.1063/1.4929913>
- [8] P. J. Sellin, and J. Vaitkus: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, 557 (2006) 479. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.10.128>
- [9] T. P. Chow, V. Khemka, J. Fedison, N. Ramungul, K. Matocha, Y. Tang, and R. J. Gutmann: Solid-State Electron., 44 (2000) 277. [https://doi.org/10.1016/S0038-1101\(99\)00235-X](https://doi.org/10.1016/S0038-1101(99)00235-X)
- [10] H. Umezawa: Mater. Sci. Semicond. Process., 78 (2018) 147. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2018.01.007>
- [11] M. W. Geis, N. N. Efremow, J. D. Woodhouse, M. D. McAleese, M. Marchywka, D. G. Socker, and J. F. Hochedez: IEEE Electron Device Lett., 12 (1991) 456. <https://doi.org/10.1109/55.119164>
- [12] H. kahata, K. gaki, A. Hachigo, S. Shikata, N. Fujimori, Y. Takahashi, T. Kajihara, and Y. Yamamoto: Jpn. J. Appl. Phys., 33 (1994) 324. <https://doi.org/10.1143/JJAP.33.324>
- [13] P. W. Hoban, M. Heydarian, W. A. Beckham, and A. H. Beddoe: Phys. Med. Biol., 39 (1994) 1219. <https://doi.org/10.1088/0031-9155/39/8/003>
- [14] I. Ciancaglion, M. Marinelli, E. Milani, G. Prestopino, C. Verona, G. Verona-Rinati, R. Consorti, A. Petrucci, and F. D. Notaristefani: Med. Phys., 39 (2012) 4493. <https://doi.org/10.1118/1.4729739>
- [15] H.B.ノビコフ: ダイヤモンドの物性, オーム社(1993)
- [16] 吉川昌範: やさしいニューダイヤモンド, 工業調査会(1991)
- [17] J. Walker: Rep. Prog. Phys., 42 (1979) 1605. <https://doi.org/10.1088/0034-4885/42/10/001>
- [18] Y. Tanimura, J. Kaneko, M. Katagiri, Y. Ikeda, T. Nishitani, H. Takeuchi, and T. Iida: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, 443 (2000) 325. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(99\)01048-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(99)01048-7)

- [19] M. Tsubota, J. H. Kaneko, D. Miyazaki, T. Shimaoka, K. Ueno, T. Tadokoro, A. Chayahara, H. Watanabe, Y. Kato, S. Shikata, and H. Kuwabara: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A, 789 (2015) 50. <http://doi.org/10.1016/j.nima.2015.04.002>
- [20] D. R. Kania, M. I. Landstrass, M. A. Plano, L. S. Pan, and S. Han: Diamond Relat. Mater., 2 (1993) 1012. [https://doi.org/10.1016/0925-9635\(93\)90266-5](https://doi.org/10.1016/0925-9635(93)90266-5)
- [21] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikström, D. J. Twitchen, A. J. Whitehead, S. E. Coe, and G. A. Scarsbrook: Science, 297 (2002) 1670. <https://doi.org/10.1126/science.1074374>
- [22] C. Canali, E. Gatt, S. F. Kozlov, P. F. Manfredi, C. Manfredotti, F. Nava, and A. Quirini: Nucl. Instrum. Methods, 160 (1979) 73. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(79\)90167-8](https://doi.org/10.1016/0029-554X(79)90167-8)
- [23] J. Isberg, J. Hammersberg, H. Bernhoff, D. J. Twitchen, and A. J. Whitehead: Diamond Relat. Mater., 13 (2004) 872. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2003.11.065>
- [24] 金子純一, 磯部光考: J. Plasma Fusion Res., 85 (2009) 75. https://www.jspf.or.jp/Journal/PDF_JSPF/jspf2009_02/jspf2009_02-75.pdf (accessed December 2025)
- [25] H. P. Bovenkerk, F. P. Bundy, H. T. Hall, H. M. Strong, and R. H. Wentorf: Nature, 184 (1959) 1094. <https://dx.doi.org/10.1038/1841094a0>
- [26] F. P. Bundy: Science, 137 (1962) 1057. <https://dx.doi.org/10.1126/science.137.3535.1057>
- [27] M. Seiichiro, S. Yoichiro, T. Masayuki, and S. Nobuo: J. Mater. Sci., 17 (1982) 3106. <https://dx.doi.org/10.1007/BF01203472>
- [28] M. Kamo, Y. Sato, S. Matsumoto, and N. Setaka: J. Cryst. Growth, 62 (1983) 642. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90411-6](https://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90411-6)
- [29] J. F. Fowler: Proc. A, 236 (1956) 464. <https://doi.org/10.1098/rspa.1956.0149>
- [30] C. A. Klein: J. Appl. Phys., 39 (1968) 2029. <https://doi.org/10.1063/1.1656484>
- [31] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, P. Siffert: IEEE Trans. Nucl. Sci. 22 (1975) 160. <https://doi.org/10.1109/TNS.1975.4327634>
- [32] W. Shockley: J. Appl. Phys., 9 (1938) 635. <https://doi.org/10.1063/1.1710367>
- [33] S. Ramo: Proc. IRE, 27 (1939) 584. <https://doi.org/10.1109/JRPROC.1939.228757>
- [34] D. Takeuchi, H. Watanabe, S. Yamanaka, H. Okushi and K. Kajimura: Phys. Status Solidi Appl. Res., 174 (1999) 101. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1521-396X\(199907\)174:1<101::AID-PSSA101>3.0.CO;2-O](https://doi.org/10.1002/(SICI)1521-396X(199907)174:1<101::AID-PSSA101>3.0.CO;2-O)
- [35] T. Shimaoka, J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa and S. Shikata: Europhys. Lett. 113 (2016) 62001. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/113/62001>
- [36] 中央宝石研究所, CGL 通信, 52 (2019) 14. https://www.cgl.co.jp/latest_jewel/tsushin/pdf/CGLNo52.pdf (最終参照日 : 2025 年 12 月)
- [37] C. Wild, P. Koidl, W. Müller-Sebert, H. Walcher, R. Kohl, N. Herres, R. Locher, R. Sa

mlenski, R. Brenn: *Diamond Relat. Mater.*, 2 (1993) 158. [https://doi.org/10.1016/0925-9635\(93\)90047-6](https://doi.org/10.1016/0925-9635(93)90047-6)

[38] T. Tsuno, H. Shiomi, Y. Kumazawa, S. Shikata, and S. Akai: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35 (1996) 4724. <https://doi.org/10.1143/JJAP.35.4724>

[39] H. Yamada, A. Chayahara, Y. Mokuno, Y. Kato, and S. Shikata: *Diamond Relat. Mater.*, 57 (2015) 17. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2015.01.007>

[40] H. Yamada, A. Chayahara, Y. Mokuno, N. Tsubouchi, S. I. Shikata, and N. Fujimori: *Diamond Relat. Mater.*, 20 (2011) 616. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2011.01.001>

[41] K. Hecht: *Z. Angew. Phys.* 77 (1932) 235. <https://doi.org/10.1007/BF01338917>

[42] K. Kanaya and S. Okayama, *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 5 (1972) 43. <https://doi.org/10.1088/0022-3727/5/1/308>

第3章 高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実現可能性評価

3.1 研究背景および目的

福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業を念頭においたダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発が、北海道大学、高エネルギー加速器研究機構(KEK)、産業技術総合研究所、名古屋大学、九州大学、日本原子力研究開発機構による英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業により進められている [1]。その中で検討されたダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプ概念図を図 3.1 に示す。ダイヤモンド中性子計測システムは主にダイヤモンド検出器部分と信号処理回路システム部分からなる。ダイヤモンド検出器部分は北海道大学が中心となり、信号処理回路システム部分は高エネルギー加速器研究機構(KEK)が中心となり開発を進めている。このダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプは、6 mm 角程度のサイズのダイヤモンド検出素子を 1024 枚用いることで、 $2 \text{ cps/n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ の中性子検出感度を持ち、最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で中性子を測定可能で、総重量が 20 kg 未満となる設計となっている。

中性子計測システムプロトタイプに使用するダイヤモンド検出素子は図 3.1 (a)に示すように、約 6 mm 角で厚さ $50 \mu\text{m}$ 程度のものを使用する。厚さは薄い方が γ 線に対する感度を低減可能で高 γ 線線量率対応に有利だが、薄すぎると破損しやすく取り扱いが難しいため、経験的に取り扱いが可能な厚さである $50 \mu\text{m}$ 程度とした。また、信号処理回路系自体のノイズを低減させるために信号読み出し電極の静電容量が 10 pF 程度となるような電極サイズにした。よってダイヤモンド検出素子の片面に電圧印加用の 5 mm 角 Al ショットキー電極を 1 つ形成し、もう片面には信号読み出し用の 2 mm 角 Ti/Au オーミック電極を 4 つ形成した。これによりダイヤモンド検出素子 1 枚につき 4ch 分の信号を読み出せる。

ダイヤモンド検出素子は、図 3.1 (b)に示す信号処理回路基板上に実装する。信号処理回路基板上には KEK が設計したフロントエンド集積回路が 8 つ実装されている。フロントエンド集積回路は耐放射線性 Si 半導体 ASIC 技術を用いて作製されており、 1 MGy を超える耐放射線性を有している。フロントエンド集積回路 1 つで 8ch 分の信号処理が可能のため、信号処理回路基板 1 枚で 64ch 分の信号処理が可能となる。ダイヤモンド検出素子は 1 枚につき 4ch あるため、信号処理回路基板 1 枚に対してダイヤモンド検出素子を 16 枚実装できる。

信号処理回路基板上へのダイヤモンド検出素子の実装は図 3.1(c)に示すように、2 枚のダイヤモンド検出素子で ${}^6\text{LiF}$ 中性子-荷電粒子コンバータを挟み込む形で行う。ダイヤモンド検出器は中性子と相互作用を起こしにくいいため、 ${}^6\text{LiF}$ 中性子-荷電粒子コンバータを用いることで中性子を荷電粒子である α 線とトリトンに変換し、間接的に中性子を検出する。このような構造にすることで、 ${}^6\text{LiF}$ が中性子を捕獲した後、 180° 反対方向に放出される α 線とトリトンを 2 枚それぞれのダイヤモンド検出素子で検出することが可能となる。ダイヤモンド検出素子の電極と信号処理回路基板のパッドの電氣的接続は、スクリーンオフセット印刷装置を用いた銀ペーストの印刷配線により実施した。

中性子計測システムは図 3.1 (d)に示すように、1 ユニットにダイヤモンド検出素子を実装した信号処理回路基板を 16 枚接続することが可能である。よって、1 ユニットにはダイヤモンド検出素子を 256 枚実装可能である。さらに、最大 4 ユニットを縦方向に接続することが可能である。これにより、最大 1024 枚のダイヤモンド検出素子を用いた中性子計測システムが実現可能となる。また、1 ユニットの直径は約 6 cm、高さは約 20 cm であり、重量は 5 kg 未満であるため、4 ユニット接続した場合でも高さは約 80 cm、重量は 20 kg 未満となる。加えて、この中性子計測システムはケーブル 4 本で最大 70 m の信号伝送が可能であるため、図 3.1 (e)に示すような臨界近接監視システムとしての利用が期待されている。

本章では、前述したダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現可能性を検証するためにダイヤモンド検出器部分に関わる、 γ 線線量率応答性の評価、ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価、KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性の評価、高 γ 線線量率への対応性評価を実施した。その結果、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現が可能であることを明らかにした。その後、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプ実現に向けた課題について整理した。

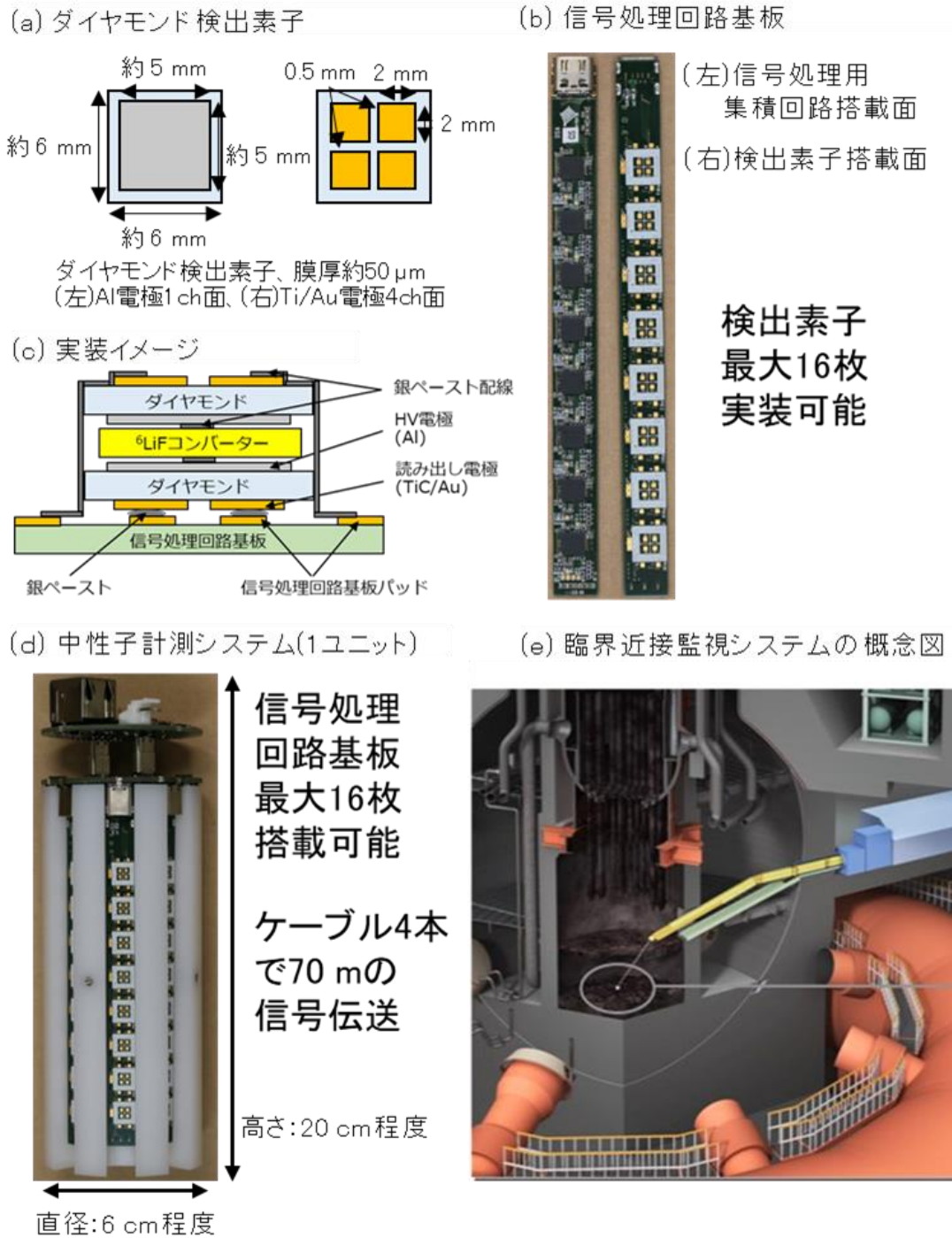


図 3.1 ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプ概念図 (文献 [1]を基に著者作成)

3.2 実験

3.2.1 ダイヤモンド検出器の作製

本論文では、表 3.1 に示すように、北海道大学で成長させたダイヤモンドおよび Element Six Ltd. から購入したエレクトロニクスグレードのダイヤモンドを用いて、合計 3 つのダイヤモンド検出器を作製した。北海道大学で成長させたダイヤモンドは合成条件を記載した。合成には高温高压(HPHT)法によって作製された住友電工製 IIa 型単結晶ダイヤモンド基板 [2] の(001)面を $\langle 110 \rangle$ 方向に 3 度程度傾斜させた基板を使用した。その上に化学気相成長(CVD)法 [3]により単結晶ダイヤモンドのホモエピタキシャル成長を行った。ダイレクトウエハー法 [4]によって自立したダイヤモンド層を得るため、基板にはあらかじめイオン注入層を形成している。合成に使用した雰囲気ガスは水素とメタンのみであった。CVD 法により成長したダイヤモンド層は、その後の電気化学エッチングによって基板から分離し、自立したダイヤモンド層として検出器の作製に使用した。

表 3.1 作製した検出器一覧

ID	作製者	$\text{CH}_4/[\text{H}_2+\text{CH}_4]$ (%)	圧力 (Torr)	マイクロ波 出力 (W)	基板温度 ($^{\circ}\text{C}$)	成長膜厚 (μm)	成長速度 ($\mu\text{m/h}$)
Detector #3.1	HU	0.25	110	655	850	66	0.40
Detector #3.2	HU	0.5	110	1150	750	46	0.28
Detector #3.3	E6	-	-	-	-	50	-

HU : 北海道大学, E6 : Element Six Ltd.

検出器の構造は、Al ショットキー電極と Ti/Au オーミック電極を備えた、単純な電極-ダイヤモンド-電極構成である。Al 電極はダイヤモンド成長面へ抵抗加熱蒸着法により形成し、Ti/Au 電極はダイヤモンドリフトオフ分離面へ Ti を電子ビーム蒸着法、Au を抵抗加熱蒸着法により形成した。Ti 形成後、400 $^{\circ}\text{C}$ で 30 分間アニールすることで TiC 層を形成し、その後 Au を抵抗加熱蒸着法で形成した。電極を形成したダイヤモンドは Al 製検出器筐体に設置した。Ti/Au 電極は SMA レセプタクルに接続し、Al 電極は検出器筐体のグラウンドに接続した。

3.2.2 作製したダイヤモンド検出器の基本特性評価

検出器の基本特性評価は α 線誘導電荷分布測定により行った。測定は、室温・真空中で ^{241}Am 線源からの 5.486 MeV α 線を検出器の Al 電極側へ入射させて実施した。結果を表 3.2 にまとめる。本測定には、前置増幅器(ORTEC 142A)、メインアンプ(ORTEC 672)、高電圧電源(ORTEC 428)、マルチチャンネルアナライザ(WE500)を使用した。電荷収集効率(CCE)は、シリコン半導体検出器(CU-1250-100; EG&G ORTEC)との比較に基づいて求め、電子・正孔対生成エネルギーとして、シリコンは $\epsilon_{\text{Si}} = 3.62 \text{ eV}$ [5]、ダイヤモンドは $\epsilon_{\text{Diamond}} = 13.1 \text{ eV}$ [6]を用いた。電荷収集効率の誤差については、 α 線ピーク部分の標準偏差とした。印加電圧は、 $\pm 1 \text{ V}/\mu\text{m}$ で動作させ、印加電圧の極性を反転することで電子・正孔双方の測定を行った。3

つの検出器の電荷収集効率は98～100%で、正孔のエネルギー分解能は0.3%台と優れた値であった。電子のエネルギー分解能は正孔よりも劣るものの実用上問題ない値であった。

表 3.2 ダイヤモンド検出器の電荷収集効率とエネルギー分解能

ID	電荷収集効率 (%)		エネルギー分解能 (%)	
	電子	正孔	電子	正孔
Detector #3.1	100.5 ± 0.1	99.4 ± 0.1	0.30	0.32
Detector #3.2	98.4 ± 0.2	99.1 ± 0.2	0.54	0.37
Detector #3.3	98.3 ± 0.3	97.9 ± 0.1	0.61	0.35

3.2.3 γ 線線量率応答性評価試験

γ 線線量率応答性評価試験は、Detector #3.1 と#3.3 を用いて名古屋大学 ^{60}Co γ 線照射施設において実施した。当試験では、 γ 線照射の影響を評価しやすくするため、室温・大気中で ^{241}Am 線源からの 5.486 MeV α 線を γ 線と同時に照射した。測定時における α 線源と検出器入射面の距離は 2.2 mm であった。Stopping and Range of Ions in Matter [7]を用いて、5.486 MeV α 線が 2.2 mm の空気中を通過する際のエネルギーロスを計算したところ、約 0.198 MeV であった。以上より、応答関数の横軸は、 α 線ピークのエネルギーを 5.288 MeV に設定して較正した。測定には 3.2.2 項と同様の一般的な信号処理回路を用いた。しかし、マルチチャンネルアナライザは ANSeeN ZMCAN-CH04-01 を使用した。表 3.2 で示すように、Detector #3.1 と#3.3 はどちらもエネルギー分解能が電子よりも正孔の方が良好であったため、正孔が支配的な走行電荷キャリアとなるように印加電圧は -1 V/ μm に設定した。照射位置の γ 線線量率を測定するために電離箱式線量計を使用した。

3.2.4 中性子計測試験

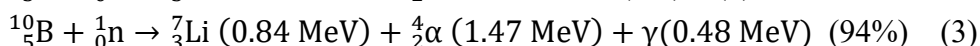
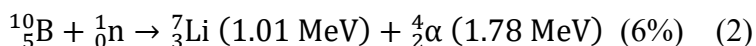
ダイヤモンド検出器は中性子と直接的な相互作用を起こしにくいため、中性子計測にはダイヤモンド検出器が感度を示す荷電粒子へ中性子を変換するコンバータを用いる必要がある。本論文では、コンバータとして ^6LiF [8]を使用した。式(1)に示すように、 ^6Li は中性子を捕獲することで、荷電粒子である α 線およびトリトンへ分裂する。



ダイヤモンド検出器の電極上に ^6LiF コンバータを実装した場合、 ^6Li が中性子を捕獲して生成する α 線およびトリトンは、運動量保存則に従い互いに 180°反対方向へ飛行する。そのため、ほとんどの場合 2つの荷電粒子のうちいずれか一方がダイヤモンド検出器に入射し、荷電粒子として検出される。したがって、 ^6Li によって捕獲された中性子の数と、ダイヤモンド検出素子により計測される荷電粒子の数は一致すると考えられる。

中性子-荷電粒子コンバータの候補としては、 ^6LiF のほかに $^{10}\text{B}_4\text{C}$ [9]が挙げられる。 ^{10}B は中性子を捕獲することで、式(2)、(3)に示すように荷電粒子である ^7_3Li と α 線へ分裂する。中

中性子吸収断面積は $^{10}\text{B}_4\text{C}$ の方が ^6LiF よりも約 4 倍大きく、この点では $^{10}\text{B}_4\text{C}$ を用いた場合の方が中性子検出効率に優れる。しかし、生成される荷電粒子のエネルギーは ^6Li の核反応によって得られるもののほうが高い。ダイヤモンド中性子計測システムでは、中性子と γ 線のエネルギーによる弁別が求められるため、より大きな S/N 比を確保できる ^6LiF を中性子-荷電粒子コンバータとして採用した。



^6LiF コンバータには、シグマアルドリッチ社から購入した濃縮度 95%、純度 99% の ^6LiF 粉末を用いた。粉末をプレート状に成形し、その後焼結および研磨を行うことでコンバータを作製した。作製手順として、まず ^6LiF 粉末 1 g に対してバインダー約 720 μl を加え、エタノールを適量添加しながら約 1 時間混合した。続いて、 ^6LiF 成形用の金型に 0.03 g を充填し、油圧式プレス機を用いて成形圧力 100 MPa で加圧し、 $5.7 \times 5.7 \times 0.48 \text{ mm}^3$ のプレートを成形した。成形後の試料は、焼結温度 400 $^{\circ}\text{C}$ まで 4 h で昇温し、10 h の焼結処理を行った後に炉冷した。焼結後の ^6LiF 焼結体の密度を測定したところ 1.92 g/cm^3 であり、 ^6LiF の理論密 2.64 g/cm^3 の約 0.73 倍であった。 ^6LiF コンバータを厚くすると、中性子捕獲反応により生成した荷電粒子のエネルギーが ^6LiF 内部で減衰し、信号出力の低下および S/N 比の悪化を招く。PHITS [10] による計算上は厚さ 20 μm で感度が最大となるが、厚さを 100 μm 以下まで研磨すると損傷が生じやすいため、本論文では図 3.2 に示すように、 ^6LiF コンバータを 150-200 μm の厚さまで研磨し、ダイヤモンド検出器への実装に用いた。



図 3.2 ^6LiF 中性子-荷電粒子コンバータ (左)研磨前、(右)研磨後

作製した ^6LiF 中性子-荷電粒子コンバータは適当なサイズにカットした上で Detector #3.2 の Ti/Au 電極上に取り付けた。 ^6LiF コンバータと Ti/Au 電極が重なっている中性子に対する有感面積は 2.53 mm^2 であった。Detector #3.2 の中性子応答関数は、大気中でポリエチレンブロック内に ^{252}Cf 中性子源設置した中性子照射場において評価し、その場の中性子束は校正済みの ^6Li ガラスシンチレータで測定した。測定には 3.2.2 項で使用したものと同様の一般的な信号処理回路を用いた。検出器性能は電子よりも正孔の方が良好であったため印加電圧は -1 V/ μm 、計測時間は 86400 秒に設定した。

3.2.5 KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性評価試験

中性子計測システムプロトタイプに求められる $2 \text{ cps/n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の中性子感度を満たすためには、6 mm 角程度のダイヤモンドが約 1000 枚必要である。よって、約 1000 枚のダイヤモンド検出器からの信号を読み出す信号処理回路も必要となるが、3.2.2 項で使ったような一般的な信号処理回路では対応できない。そこで、KEK で開発されたフロントエンド集積回路 [11,12]を用いた信号処理回路を使用することとなった。KEK 設計のフロントエンド集積回路は 1 つにつき 8ch 分の信号入力を同時に処理でき、多数のフロントエンド集積回路をまとめて一つの信号処理回路として扱うことが可能なため、約 1000 枚のダイヤモンド検出器からの信号を読み出す信号処理回路を実現できる。フロントエンド集積回路は耐放射線性 Si 半導体 ASIC 技術を用いて作製されており、1 MGy を超える耐放射線性を有している [1]。また、信号処理速度を高速化し、前置増幅器の減衰時間と主増幅器の積分時間を両方とも 0.1 μs 程度としている。3.2.2 項で使っていた ORTEC 社製の一般的な信号処理回路は、前置増幅器の減衰時間が 0.5 μs 、主増幅器の積分時間が 1.0 μs である。信号処理速度の高速化により、 γ 線照射の影響によりダイヤモンド結晶内の捕獲準位に電荷キャリアがチャージアップされ、その後、捕獲された電荷キャリア解放され、放電することで発生する疑似信号の影響を低減できると考えられる。

当試験では、図 3.3 に示すように KEK 設計のフロントエンド集積回路を使用した信号処理回路と北海道大学のダイヤモンド検出器を組み合わせ、読み出し信号 1ch 分で γ 線線量率応答性評価試験を行った。比較のため、ORTEC 社製の一般的な信号処理回路に同じダイヤモンド検出器を接続し、同様に γ 線線量率応答性評価試験を行った。どちらの信号処理回路の場合もマルチチャネルアナライザは ANSeeN ZMCAN-CH04-01 を使用した。当試験は、3.2.3 項と同様に名古屋大学 ^{60}Co γ 線照射施設において α 線と γ 線を用いて実施し、エネルギー較正も同様に行った。ダイヤモンド検出器には 4 章の Detector #4.3 を使用した。ここでは、信号処理回路の違いの比較が主目的となるため、Detector #4.3 の詳細については 4 章で説明を行うが、印加電圧は -1 V/ μm に設定した。照射位置の γ 線線量率を測定するために電離箱式線量計を使用した。



図 3.3 KEK 設計のフロントエンド集積回路を用いた信号処理回路+ダイヤモンド検出器

3.2.6 高 γ 線線量率への対応性評価試験

ダイヤモンド中性子検出器の 1 kGy/h の高 γ 線線量率への対応性の評価を行うために、Detector #3.2 と 3.2.4 項と同様の KEK 設計の信号処理回路を組み合わせ γ 線照射試験を実施した。この評価は、QST 高崎量子応用研究所 ^{60}Co γ 線照射施設で実施した。横軸は、真空中での α 線ピークのエネルギーもとに設定したテストパルスを用いて較正した。マルチチャンネルアナライザは ANSeeN ZMCAN-CH04-01 を使用した。表 3.2 で示すように、検出器性能は電子よりも正孔の方が良好であったため、印加電圧は $-1\text{ V}/\mu\text{m}$ に設定した。あらかじめ γ 線線量率が較正された位置に検出器を配置して、0 Gy/h、600 Gy/h、1000 Gy/h、1500 Gy/h で測定を実施した。測定時間は施設利用時間の兼ね合いから最大 2000 秒とした。

3.3 実験結果と考察

3.3.1 γ 線線量率応答性のダイヤモンド結晶の品質による違い

図 3.4 には、同じプロセスおよび構造で作製した Detector #3.1 と #3.3 の各 γ 線線量率における α 線の応答関数を示す。縦軸の計数率はそれぞれ γ 線線量率 0 Gy/h の際の α 線ピークの計数率を 10 として規格化した任意単位の計数率である。

Detector #3.1 は、北海道大学で成長させたダイヤモンドを用いて作製した検出器であり、 γ 線線量率 0 Gy/h では 5.288 MeV α 線によるエネルギーピークがみえている。 γ 線線量率 84.5 Gy/h では γ 線による影響で α 線によるエネルギーピークのエネルギー分解能の低下が

確認できる。このエネルギー分解能の低下は γ 線照射の影響により発生する電荷キャリアによりリーク電流が時間変動することで信号処理回路のベースラインが揺らぐことによって発生する。 γ 線線量率 400 Gy/h では、低エネルギー側に γ 線照射の影響によって発生すると考えられるノイズ信号が観測され、 α 線ピークのエネルギー分解能はさらに低下した。 γ 線線量率 832 Gy/h では、ノイズ信号が約 1.5 MeV 付近まで観測され、 α 線ピークのエネルギー分解能はさらに低下したものの、ピーク自体は確認することができた。

Detector #3.3 は、Element Six Ltd.から購入した市販のダイヤモンドを用いて作製した検出器であり、 γ 線線量率 0 Gy/h では Detector #3.1 と同様に 5.288 MeV α 線によるエネルギーピークがみえている。 γ 線線量率 10.4 Gy/h においては、 α 線ピークのエネルギー分解能の低下と低エネルギー側の γ 線の影響によるノイズ信号が 0.7 MeV まで確認された。 γ 線線量率 29.2 Gy/h では、 α 線ピークはかろうじて観測される程度で、ノイズ信号の計数率が高エネルギー側まで大幅に増加した。 γ 線線量率 81.2 Gy/h では、 α 線ピークはノイズ信号によって完全に埋もれてしまい識別不能となった。

以上から検出器に使用したダイヤモンドの違いにより、同じ γ 線線量率でも γ 線の影響によるノイズ信号のエネルギーと計数率が大きく異なることが分かった。本論文で想定する、MeV 級の γ 線とダイヤモンド検出器は直接相互作用せず、コンプトン散乱が支配的な相互作用なる。そのため、直感的には γ 線によるノイズ信号はコンプトン散乱によって発生したコンプトン電子とダイヤモンドの相互作用による信号およびパイルアップによる信号に起因すると考えられる。その場合、異なるダイヤモンドであっても同程度の膜厚であれば、 γ 線によるノイズ信号のエネルギーと計数率は同程度になるはずである。しかしながら、図 3.4 の結果からは検出器に使用したダイヤモンドの違いにより、 γ 線によるノイズ信号のエネルギーと計数率が大きく異なっている。

以上から、検出器に使用したダイヤモンド結晶の品質が γ 線照射の影響によって発生するノイズ信号のエネルギーと計数率に影響していると考えられる。そのように考えると γ 線によるノイズ信号は、 γ 線照射の影響によりダイヤモンド結晶内の捕獲準位に電荷キャリアが捕獲(チャージアップ)され、その後、捕獲された電荷キャリア解放され、放電することで発生する疑似信号であると考えられる。Detector #3.3 に使用した市販のダイヤモンドでは、一般的に不純物は二次イオン質量分析法における検出限界以下であるものの、転位、欠陥、不純物に起因する発光がカソードルミネッセンス測定で観測される。一方、北海道大学で作製されたダイヤモンドでは、転位、欠陥、不純物による発光は無視できるほど小さいことが示されている [13]。

したがって、市販ダイヤモンド検出器で観測された γ 線の影響によって発生するノイズ信号は、転位、欠陥、不純物により形成された捕獲準位に起因する可能性が高い。一方で、市販の単結晶ダイヤモンドを用いた検出器が約 100 Gy/h の γ 線線量率下でも動作したという報告もあり、これはダイヤモンド結晶の品質のばらつきや作製プロセスの影響などが要因である可能性がある。

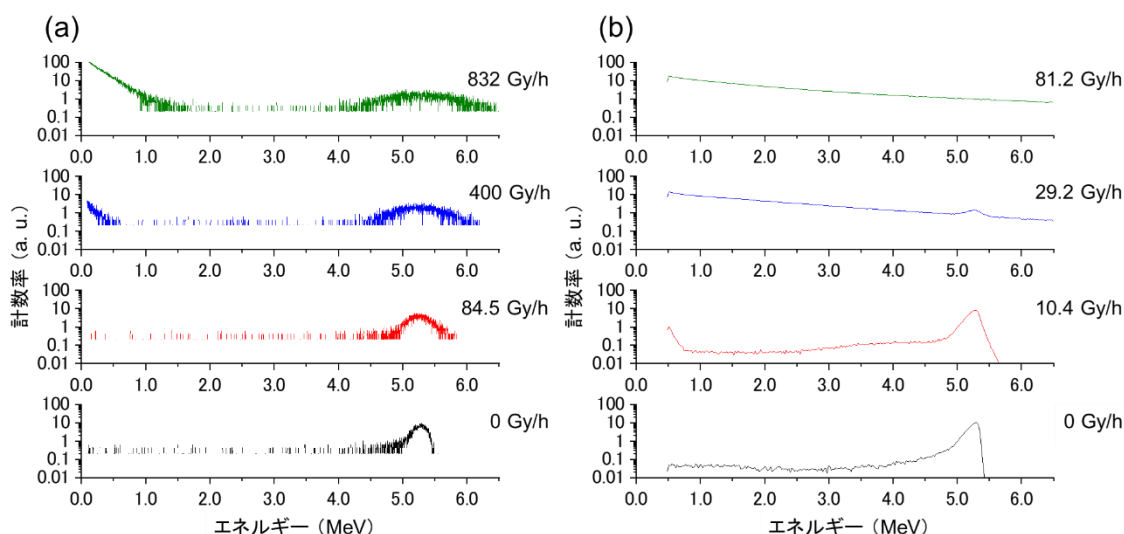


図 3.4 空気中での各 γ 線線量率におけるダイヤモンド検出器の α 線応答関数の例 (a) Detector #3.1 (厚さ 66 μm)、(b) Detector #3.3 (厚さ: 50 μm)

3.3.2 中性子感度の評価

図 3.5 に Detector #3.1 の中性子応答関数例を示す。応答関数の横軸は、同じ計測系で測定した 5.486 MeV α 線のピークエネルギーを基準としてエネルギー較正した。高エネルギー側は 2.6 MeV 付近まで信号がみえており、エネルギーは 5% 程減衰しているが 2.73 MeV のトリトンが検出できていると考えられる。 ^6LiF コンバータに 150-200 μm の厚みがあるため、 α 線とトリトンは自己遮蔽によりエネルギーがばらつき、エネルギーピークはみられず連続的なエネルギースペクトルになっている。0.7 MeV から低エネルギー方向では計数率が増加しており、この領域では中性子の信号に加えて信号処理回路由来のノイズ信号も含まれていると考えられる。

γ 線と中性子の弁別はエネルギーにしきい値を設けて行う。前項で示したように、 γ 線の影響によって発生するノイズ信号は基本的には γ 線線量率が高くなるにつれて、低エネルギー側から高エネルギー側の方まであらわれるようになる。また、 γ 線線量率と同じ場合でも、使用するダイヤモンド検出器の違いによってノイズ信号があらわれるエネルギーが異なる。 γ 線と中性子の弁別は γ 線によるノイズ信号を無視できるエネルギーをしきい値として設定し、しきい値以上のエネルギーの信号を中性子の信号とすることで行う。しかし、中性子による信号のエネルギーの最大値は使用する中性子-荷電粒子コンバータによって決定される。本論文では ^6LiF を中性子-荷電粒子コンバータとして使用しているため、中性子による信号のエネルギーの最大値は 2.73 MeV である。そのため、 γ 線によるノイズ信号が 2.73 MeV 以上の高エネルギー側にあらわれてしまうと、 γ 線と中性子の弁別が行えなくなる。よって、 γ 線によるノイズ信号は低エネルギー側に発生する方がよく、しきい値をより低エネ

ルギーに設定できれば、中性子感度を増加させることが可能となる。以上から、中性子検出器用ダイヤモンドとして結晶の品質が高く、捕獲準位が少ないダイヤモンドを用いて、 γ 線によるノイズ信号を低エネルギー側に抑えることが中性子感度を増加させるために重要となる。本論文では、中性子感度と γ 線によるノイズ信号のバランスを考えて、しきい値の目標を 1.0 MeV とした。そのため、 γ 線によるノイズ信号は概ね 1.0 MeV 以下の低エネルギー側に収める必要がある。

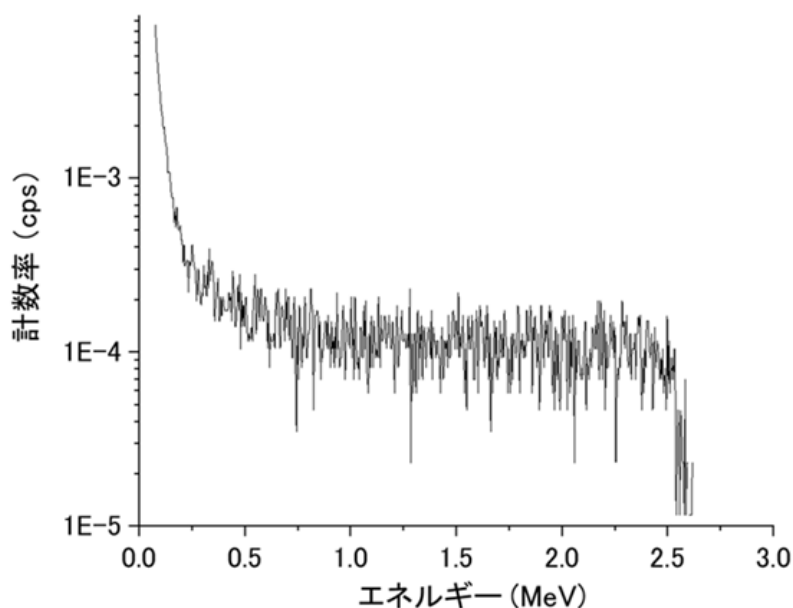


図 3.5 ^{252}Cf 線源からの中性子に対する Detector #3.2 の応答関数例

ポリエチレンブロックで構築した測定場の中性子束は、校正済みの ^6Li ガラスシンチレータを用いて測定し、その結果は $127.5 \text{ n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。図 3.5 でしきい値を 1.0 MeV に設定すると、1.0 MeV から 2.73 MeV までのエネルギーを持つ信号を中性子信号とした場合の計数率の合計は $4.08 \times 10^{-2} \text{ cps}$ であった。以上から Detector #3.2 の中性子検出効率、 $4.08 \times 10^{-2} / 127.5 = 3.2 \times 10^{-4} \text{ cps/n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ となった。

Detector #3.2 の中性子に対する有感面積は 2.53 mm^2 であることから、目標とする中性子計測システムに求められる $2 \text{ cps/n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の中性子感度を満たすためには、 $(2 / 3.2 \times 10^{-4}) \times 2.53 = 15813 \text{ mm}^2$ の有感面積を持つダイヤモンド中性子検出器が必要となる。作製しやすい範囲で大きな検出器用ダイヤモンド 1 枚のサイズは 36 mm^2 (6 mm 角) であった。有感面積は電極面積に依存するため電極面積を 6 mm 角の検出器用ダイヤモンド内におさまる 16 mm^2 とした場合、 $15813 / 16 = 988$ と 6 mm 角のダイヤモンドが約 1000 枚必要となることが分かった。

以上から、ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度の評価を行い、6 mm 角のダイヤモンドを約 1000 枚用いれば、 $2 \text{ cps/n cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の中性子感度を持つ中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。

3.3.3 KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性評価

図 3.6 に、Detector #4.3 を用いて 300 Gy/h の γ 線線量率下において、2 種類の信号処理回路をそれぞれ用いて測定した α 線応答関数の例を示す。どちらも、5.288 MeV の α 線ピークがみえている。低エネルギー側に現れる γ 線の影響によるノイズ信号は、一般的な信号処理回路ではおよそ 1.7 MeV 付近まで観測されるのに対し、KEK 設計の信号処理回路では約 1.0 MeV 付近までに抑制されている。KEK 設計のフロントエンド集積回路では、信号処理の高速化を目的として、前置増幅器の減衰時間および主増幅器の積分時間の双方を約 0.1 μ s に設定している。このような信号処理速度の高速化により、 α 線に起因する信号については従来どおり計測が可能である一方、 γ 線に起因するノイズ信号は α 線信号と比較して立ち上がり時間が長いいため、信号処理過程においてパルス後半成分が効果的に切り捨てられる。その結果、 γ 線によるノイズ信号は約 1.0 MeV 程度まで抑制されたものと考えられる。また、一般的な信号処理回路で 3.0 MeV 付近、KEK 設計の信号処理回路で 2.5 MeV 付近にブロードなピークのようなものが観察される。このエネルギー領域の信号は電荷収集効率が低く立ち上がり時間が長い α 線由来の信号であると考えられる。立ち上がり時間が長い α 線由来の信号と減衰時間と積分時間が短い KEK 設計の信号処理回路では信号処理過程においてパルス後半成分が効果的に切り捨てられ、ピークが低エネルギー側にシフトしていると考えられる。

以上から、KEK 設計の信号処理回路をダイヤモンド検出器と組み合わせることで γ 線照射の影響によるノイズ信号を低減しながら、複数のダイヤモンド検出器からの信号を読み出せる見込みを得た。

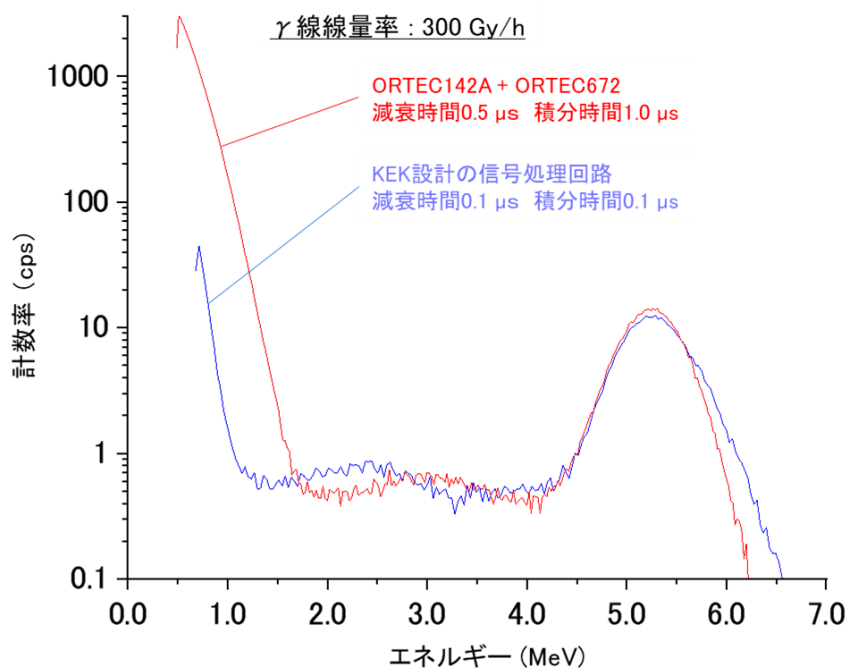


図 3.6 KEK 設計のフロントエンド集積回路を使用した信号処理回路および一般的な信号処理回路に接続した場合の 300 Gy/h の γ 線線量率下での Detector #4.3 の α 線応答関数例

3.3.4 1 kGy/h の高 γ 線線量率への対応性評価

図 3.7 に各線量率での γ 線応答関数と計数率の時間変化を示す。 γ 線応答関数では 0 Gy/h から 600 Gy/h、1000 Gy/h、1500 Gy/h と γ 線線量率が増加するにつれて、 γ 線照射の影響と考えられるノイズ信号が高エネルギー側にシフトしている様子が分かる。また、計数率の時間変化では計測を行った 2000 秒間では計数率の大きな変動はみられず、安定した動作をすることが分かった。

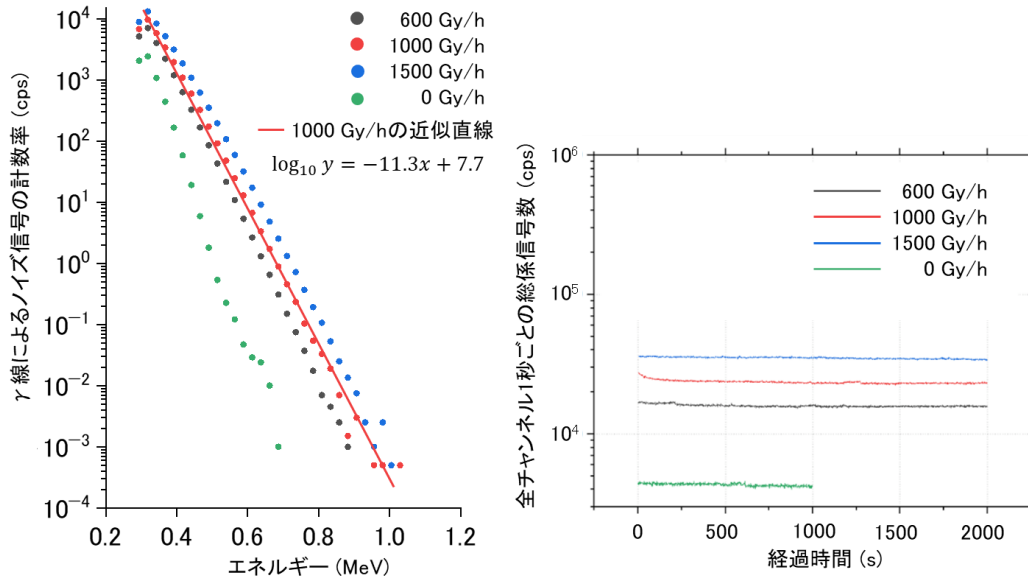


図 3.7 各線量率での γ 線応答関数(左)と計数率の時間変化(右)

未臨界度評価を行うための炉雑音法の一つである Feynman- α 法では、炉雑音測定データに含まれる γ 線計数/中性子計数の割合が大きくなるにつれて、Feynman- α 法による即発中性子減衰定数の測定誤差が大きくなる課題がある。そのため、 γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 となるように中性子を弁別することができれば、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α が測定できる見込みとなる [14]。

3.3.2 項より、しきい値を 1.0 MeV に設定し、1.0 MeV から 2.73 MeV までのエネルギーを持つ信号を中性子信号とした場合の計数率の合計は 4.08×10^{-2} cps であった。図 3.5 の応答関数はマルチチャンネルアナライザを用いて得たため、ch ごとに対応する計数率を離散的にプロットした後に ch をエネルギーに変換した。この応答関数を連続的とみなして、計数率を 1.0 MeV から 2.73 MeV まで積分すると、 1.75×10^{-4} cps $\cdot$ MeV となる。よって、1.0 MeV から 2.73 MeV までの γ 線の計数率の積分が 1.75×10^{-4} cps $\cdot$ MeV 以下であれば、 γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 となり、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α が測定できる。

図 3.7 の γ 線線量率が 1000 Gy/h の際の γ 線起因のノイズ信号のプロットに対して、線形近似を行うと以下の式で表せる。

$$\log_{10} y = -11.3x + 7.7 \quad (1)$$

ここで、 y は γ 線によるノイズ信号の計数率、 x はノイズ信号のエネルギーである。この(1)式を用いて、 γ 線によるノイズ信号の計数率を 1.0 MeV から 2.73 MeV まで積分すると、 $9.65 \times 10^{-6} \text{ cps} \cdot \text{MeV}$ となる。中性子の計数率は $1.75 \times 10^{-4} \text{ cps} \cdot \text{MeV}$ であることから、 γ 線計数/中性子計数は、 $9.65 \times 10^{-6} / 1.75 \times 10^{-4} = 0.06$ となり、 γ 線計数/中性子計数 <1 を満たす。

以上より、ダイヤモンド中性子検出器の 1 kGy/h の高 γ 線線量率への対応性を評価した結果、1 kGy/h の γ 線線量率下においても γ 線計数/中性子計数 <1 を満たして中性子の弁別が可能であり、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α を測定できる見通しが得られた。これらの結果から、最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で中性子測定が可能なダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。

3.4 ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた課題

ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプのダイヤモンド検出器部分に関わる実現可能性評価から、6 mm 角程度のサイズのダイヤモンド検出素子を 1024 枚用いることで、 $2 \text{ cps/n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の中性子検出感度を持ち、最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で中性子を測定可能で、総重量が 20 kg 未満となる設計のダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。総重量の部分に関しては KEK が中心となって開発を実施して実現可能であることを明らかにした。以上から、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることは明らかにしたが、実際の実現に向けた課題が存在している。

1 点目は、高 γ 線線量率下で動作する検出器用ダイヤモンドを安定して作製できないことである。3.3.4 項では、北海道大学で合成した高品質なダイヤモンドを使用したダイヤモンド検出器であれば 1 kGy/h の高 γ 線線量率下でも中性子検出器として使用可能であることを明らかにした。そのため、同様の合成条件を用いた検出器用ダイヤモンドの合成と評価を複数回実施したが、同様の性能をもつ検出器用ダイヤモンドを作製することはできなかった。このように、ダイヤモンド合成に使用するマイクロ波プラズマ CVD 装置の内部状況の経時変化の影響などから、合成条件を同様にしたとしても 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で使用可能な高品質なダイヤモンドを安定して合成することは難しい。したがって、検出器用ダイヤモンドの γ 線線量率対応性を向上させ、安定して高 γ 線線量率に対応させることが可能となる要素技術の開発が求められる。

2 点目は、1000 枚規模の 6 mm 角サイズのダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムプロトタイプの実現に向けては、そもそもこのような多数のダイヤモンド検出器を集積した中性子計測システム自体が、これまでに前例のない試みであり、技術的に大きな課題が存在することである。特に、検出器の大量実装に伴う信号処理回路の構成、検出器間のばらつきの影響、システム全体としての安定動作および信頼性の確保など、システムレベルでの動作実証が必要となる。

3.5 結論

本章では、ダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現可能性を検証するため、ダイヤモンド検出器部分に関わる γ 線線量率応答性の評価、ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価、KEK設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性の評価、高 γ 線線量率への対応性評価を実施した。 γ 線線量率応答性の評価では、ダイヤモンド結晶の品質によって γ 線線量率応答性が異なることを明らかにした。また、 γ 線照射に起因するノイズ信号は、ダイヤモンド結晶内の捕獲準位に電荷キャリアが捕獲され、その後の解放による放電により発生する疑似信号である可能性が高いことが示唆された。ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価では、6 mm 角のダイヤモンドを約 1000 枚用いれば、 $2 \text{ cps/n cm}^2\text{s}^{-1}$ の中性子感度を持つ中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。KEK 設計の信号処理回路を用いた γ 線線量率応答性評価では、当該回路をダイヤモンド検出器と組み合わせることにより、 γ 線照射に起因するノイズ信号を低減しつつ、複数のダイヤモンド検出器からの信号を同時に読み出せる見通しを得た。高 γ 線線量率への対応性評価では、1 kGy/h の γ 線線量率下で γ 線計数/中性子計数の割合 < 1 となるように中性子を弁別し、Feynman- α 法により即発中性子減衰定数 α を測定可能な中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。

以上から、6 mm 角程度のサイズのダイヤモンド検出素子を 1024 枚用いることで、 $2 \text{ cps/n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ の中性子検出感度を持ち、最大 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で中性子を測定可能で、総重量が 20 kg 未満となる設計のダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。一方で、(1) 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で動作する検出器用ダイヤモンドの再現性ある作製が困難であること、(2) 約 1000 枚規模のダイヤモンド検出素子を集積した中性子計測システムの実装・信号処理・安定動作に関する技術的課題が存在することが、今後のダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた主要な課題として明らかになった。

第3章の引用文献

- [1] 福島研究開発部門 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター 高エネルギー加速器研究機構, 遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発(委託研究)―令和4年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業―, <https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2023-020.pdf> (最終参照日: 2026年1月)
- [2] H. Sumiya, N. Toda, and S. Satoh: *New Diamond Front. Carbon Technol.*, 10 (2000) 233. <https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:000165889400002>
- [3] M. Kamo, Y. Sato, S. Matsumoto, and N. Setaka: *J. Cryst. Growth*, 62 (1983) 642. [http://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90411-6](http://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90411-6)
- [4] Y. Mokuno, A. Chayahara, and H. Yamada: *Diamond Relat. Mater.*, 17 (2008) 415. <http://doi.org/10.1016/j.diamond.2007.12.058>
- [5] G. F. Knoll: *Radiation Detection and Measurement*, B. Zobrist, R. Factor, and S. Malinowski Eds. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1989) 3rd ed., Chap. 11.
- [6] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert: *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-22 (1975) 160. <https://doi.org/10.1109/TNS.1975.4327634>
- [7] J. Ziegler - SRIM & TRIM: <http://www.srim.org> (最終参照日: 2026年1月)
- [8] D.S. McGregor, M.D. Hammig, Y.-H. Yang, H.K. Gersch, and R.T. Klann: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 500 (2003) 272. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(02\)02078-8](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(02)02078-8)
- [9] Carina Höglund, Jens Birch, Ken Andersen, Thierry Bigault, Jean-Claude Buffet, Jonathan Correa, Patrick van Esch, Bruno Guerard, Richard Hall-Wilton, Jens Jensen, Anton Khaplanov, Francesco Piscitelli, Christian Vettier, Wilhelmus Vollenberg, and Lars Hultman: *J. Appl. Phys.* 111 (2012) 104908. <https://doi.org/10.1063/1.4718573>
- [10] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, T. Furuta, S. Noda, T. Oga wa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, and L. Sihver: *Ann. Nucl. Energy*, 82 (2015) 110. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2014.08.023>
- [11] T. Kishishita, G. Sato, H. Ikeda, M. Kokubun, T. Takahashi, T. Idehara, H. Tsunemi, and Y. Arai: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 636 (2011) S143. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2010.04.099>
- [12] Y. Sato, Y. Fujita, E. Hamada, T. Kishishita, T. Mibe, O. Sasaki, M. Shoji, T. Suehara, M. Tanaka, J. Tojo, T. Tsutsumi, T. Yamanaka, and T. Yoshioka: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, 969 (2020) 164035. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2020.164035>
- [13] T. Shimaoka, J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, and S. Shikata: *Europhys. Lett.*, 113 (2016) 62001. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/113/62001>
- [14] 福島研究開発部門福島研究開発拠点廃炉環境国際共同研究センター 高エネルギー加速器研究機構, 遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術

開発(委託研究)－令和3年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業－,
<https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2022-031.pdf> (最終参照日：2026年1月)

第4章 ダイヤモンドの加工による γ 線線量率対応性の向上

4.1 研究背景および目的

第3章より、北海道大学で合成した高品質なダイヤモンドを使用したダイヤモンド検出器であれば1 kGy/hの高 γ 線線量率下でも中性子検出器として使用可能であることを明らかにした。そのため、同様の合成条件を用いた検出器用ダイヤモンドの合成と評価を複数回実施したが、1 kGy/hの高 γ 線線量率下でも使用可能な検出器用ダイヤモンドを作製することはできなかった。このように、ダイヤモンド合成に使用するマイクロ波プラズマCVD装置の内部状況の経時変化の影響などから、これまでの合成条件では合成条件を同様にしたとしても1 kGy/hの高 γ 線線量率下で使用可能な高品質なダイヤモンドを安定して合成することは難しい。したがって、検出器用ダイヤモンドの γ 線線量率対応性を向上させ、安定して高 γ 線線量率に対応させることが可能となる要素技術が求められる。

γ 線照射に起因するノイズ信号は、ダイヤモンド結晶内の捕獲準位に電荷キャリアが捕獲され、その後の解放による放電により発生する疑似信号である可能性が高い。したがって、 γ 線線量率対応性を向上させるためには、結晶内の捕獲準位が少ない高品質な検出器用ダイヤモンドを作製することが重要である。捕獲準位の低減手法としては、(1) ダイヤモンドへの加工による結晶内捕獲準位の低減、(2) 捕獲準位の少ないダイヤモンドを得ることが可能な合成条件による合成、の2つが考えられる。

本章では、(1) ダイヤモンドへの加工による結晶内捕獲準位の低減を目的として、合成後の検出器用ダイヤモンドに対する加工によって、 γ 線照射に起因するノイズ信号の低減による γ 線線量率対応性の向上が可能であるかを評価した。ダイヤモンド検出器への γ 線照射によるノイズ信号はダイヤモンド検出器中の捕獲準位への電荷キャリアの捕獲とその開放による放電が起因であると考えられるため、捕獲準位を減らすことができる加工として、以下の2点の加工を検討した。1点目は、イオンビームエッチング(IBE)によるダイヤモンドリフトオフ分離面の厚さ10 μm 分の除去である。北海道大学のリフトオフ法によって作製されたダイヤモンドは、経験的にリフトオフ分離面(初期成長層)には成長面(後期成長層)よりも多くの欠陥や不純物による捕獲準位が存在しているため、初期成長層をIBEにより除去することで捕獲準位を多く含む層を除去して γ 線線量率対応性の向上を目指した。2点目は、ダイヤモンドとTi/Auオーミック電極界面へのB添加ダイヤモンド合成によるp+ダイヤモンド層の導入である。北海道大学ではダイヤモンドのリフトオフ分離面にTi/Auオーミック電極を形成しているが、ダイヤモンドと電極の界面には捕獲準位が形成されやすい [1]。よって、導電性があるp+ダイヤモンド層をダイヤモンドと電極の間に追加合成することで、電極界面の捕獲準位を減らし、 γ 線線量率対応性の向上を目指した。

4.2 実験

4.2.1 ダイヤモンド検出器の作製

本章では、北海道大学で成長させた9 mm角のダイヤモンドを4分割してその内から合計

3 つのダイヤモンド検出器を作製した。表 4.1 に作製した検出器の一覧を示す。

表 4.1 作製した検出器の一覧

ID	作製者	膜厚	加工内容	検出器構造
Detector #4.1	HU	80 μm	-	Al/diamond/Ti/Au
Detector #4.2	HU	70 μm	IBE 10 μm	Al/diamond/Ti/Au
Detector #4.3	HU	72 μm	IBE 10 μm , p+ diamond 2 μm	Al/diamond/p+ diamond/Ti/Au

IBE: イオンビームエッチング, HU: 北海道大学

3 つの検出器用ダイヤモンドの作製のために北海道大学で用いたダイヤモンド成長法の概要を説明する [2]。まず、高温高压(HPHT)法によって作製された 9 mm 角の住友電工製 IIa 型単結晶ダイヤモンド基板 [3]の(001)面を<110>方向に 3 度程度傾斜させた基板を使用した。その上に化学気相成長(CVD)法 [4]により単結晶ダイヤモンドのホモエピタキシャル成長を行った。ダイレクトウエハー法 [5]によって自立したダイヤモンド層を得るため、基板にはあらかじめイオン注入層を形成した。合成条件は、 $\text{CH}_4/(\text{H}_2+\text{CH}_4)$ 比 0.2%、ガス圧力 110 Torr、基板温度 900 $^{\circ}\text{C}$ 、マイクロ波プラズマ出力 700-1100 W、成長速度 0.39 $\mu\text{m}/\text{h}$ である。CVD 法により成長したダイヤモンド層は、その後の電気化学エッチングによって基板から分離され自立したダイヤモンド層として検出器の作製に使用した。

検出器の構造は、Al ショットキー電極と Ti/Au オーミック電極を備えた、単純な電極-ダイヤモンド-電極構成である。Al 電極はダイヤモンド成長面へ抵抗加熱蒸着法により形成し、Ti/Au 電極はダイヤモンドリフトオフ分離面へ Ti を電子ビーム蒸着法、Au を抵抗加熱蒸着法により形成した。Ti 形成後、400 $^{\circ}\text{C}$ で 30 分間アニールすることで TiC 層を形成し、その後 Au を抵抗加熱蒸着法で形成した。電極を形成したダイヤモンドは Al 製検出器筐体に設置した。Ti/Au 電極は SMA レセプタクルに接続し、Al 電極は検出器筐体のグラウンドに接続した。

Detector #4.1~#4.3 は、 γ 線照射による捕獲準位への電荷キャリアの捕獲低減を目的としたダイヤモンドリフトオフ分離面への IBE およびダイヤモンドと電極間への p+ダイヤモンド層導入の効果を確認するために作製した。使用するダイヤモンド自体による影響を最小限にするため、図 4.1 (a)に示すように、80 μm 厚の 9 mm 角単結晶ダイヤモンドをレーザーカットにより 4 分割してその内から 3 つの検出器を作製した。Detector #4.1 は未加工の状態 で検出器化した。Detector #4.2 では、リフトオフ分離面を IBE により厚さ 10 μm 分除去して検出器化した。Detector #4.3 では、まずリフトオフ分離面を IBE により厚さ 10 μm 分除去し、その後、産業技術総合研究所の協力で CVD 法によりリフトオフ分離面に 2 μm の B 添加 p+ダイヤモンド層を合成した。この際、成長面にも B 添加 p+ダイヤモンド層が好ましくない形で成長したため、反対側の p+ダイヤモンド層は IBE により除去し、検出器化した。図 4.1 (b)には、各検出器に用いたダイヤモンドのリフトオフ分離面の光学顕微鏡画像を示す。IBE 加工を施した試料では、黒いパターンが観察された。この黒いパターンは IBE の影

響でダイヤモンドの一部がアモルファスカーボンに変質したものと考えられる。熱混酸などの化学洗浄による除去を実施したが、全てを除去することはできなかった。

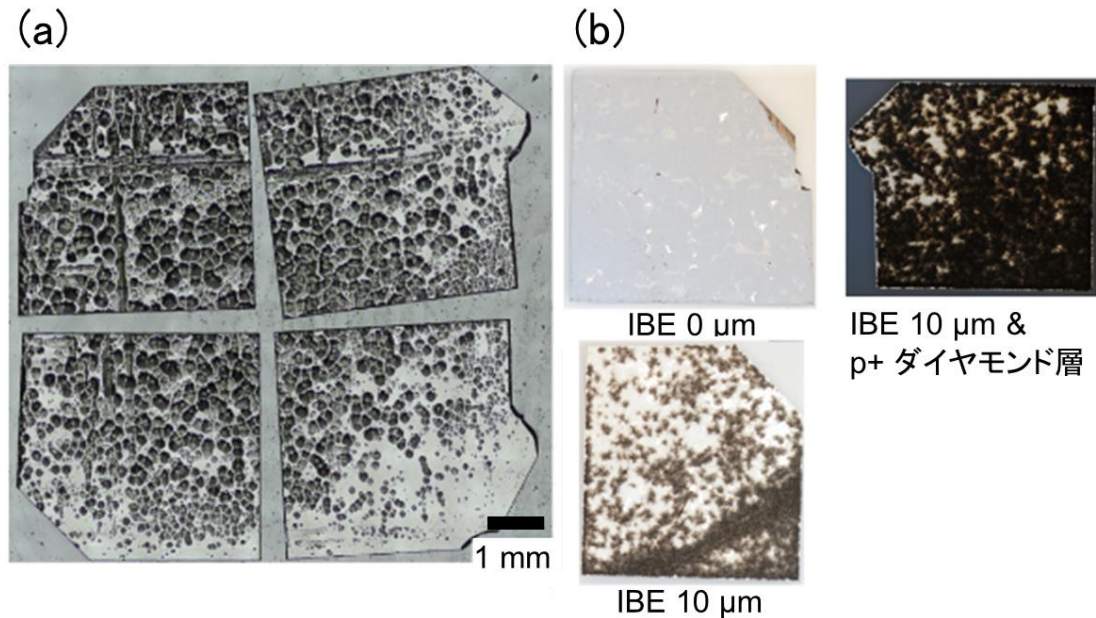


図 4.1 試料表面の光学顕微鏡画像 (a) レーザー切断後の9 mm角ダイヤモンド膜(成長面)、(b) Detector #4.1～#4.3 で使用した各条件下での加工面(リフトオフ分離面)。条件は、IBE 0 μm 、IBE 10 μm 、および IBE 10 μm & p+ダイヤモンド層 2 μm

4.2.2 作製したダイヤモンド検出器の基本特性評価

検出器の α 線誘導電荷分布測定は、室温・真空中で ^{241}Am 線源からの5.486 MeV α 線を検出器のAl電極側へ入射させて実施した。結果を表4.2に示す。3つの検出器の電荷収集効率は97～100%で、正孔のエネルギー分解能は0.5%程度で実用上問題ない値であった。電子のエネルギー分解能は正孔よりも劣るもののこちらも実用上問題ない値であった。本測定には、前置増幅器(ORTEC 142A)、メインアンプ(ORTEC 672)、高電圧電源(ORTEC 428)、マルチチャンネルアナライザ—(WE500)を使用した。電荷収集効率(CCE)は、シリコン半導体検出器(CU-1250-100; EG&G ORTEC)との比較に基づいて求め、電子・正孔対生成エネルギーとして、シリコンは $\epsilon_{\text{Si}} = 3.62 \text{ eV}$ [6]、ダイヤモンドは $\epsilon_{\text{Diamond}} = 13.1 \text{ eV}$ [7]を用いた。電荷収集効率の誤差については、 α 線ピーク部分の標準偏差とした。印加電圧は、 $\pm 1 \text{ V}/\mu\text{m}$ で動作させ、印加電圧の極性を反転することで電子・正孔双方の測定を行った。3つの検出器は使用するダイヤモンド材料の影響を排除するため、1枚のダイヤモンドから作製した。しかし、図4.1 (a)に示すように、各検出器の表面粗さは異なり、最大で $R_a \approx 10 \mu\text{m}$ 程度であった。表面粗さによる α 線の入射条件の変化が検出器動作に影響する可能性はあるものの、ダイヤモンド基板の厚さが70-80 μm であり、5.486 MeV α 線のダイヤモンド中の飛程が14 μm であることを考慮すると、表面粗さが10 μm あっても α 線はダイヤモンド内で完全に吸収

される。そのため、検出器動作への影響は無視できると考えられる。実際、表 4.2 に示す各値の差は小さく、表面粗さの影響はほとんど見られない。

表 4.2 検出器の電荷収集効率とエネルギー分解能

ID	電荷収集効率 (%)		エネルギー分解能 (%)	
	電子	正孔	電子	正孔
Detector #4.1	99.8 $\pm$ 0.3	99.0 $\pm$ 0.2	0.82	0.47
Detector #4.2	99.5 $\pm$ 0.3	98.5 $\pm$ 0.2	0.80	0.52
Detector #4.3	97.6 $\pm$ 0.4	97.5 $\pm$ 0.2	0.87	0.47

4.2.3 γ 線線量率対応性評価試験

本試験は、名古屋大学 ^{60}Co γ 線照射施設において実施した。本試験では、 γ 線照射の影響を評価しやすくするため、室温・大気中で ^{241}Am 線源からの 5.486 MeV α 線を γ 線と同時に照射した。測定時における α 線源と検出器入射面の距離は 2.2 mm であった。Stopping and Range of Ions in Matter [8]を用いて、5.486 MeV α 線が 2.2 mm の空气中を通過する際のエネルギーロスを計算したところ、約 0.198 MeV であった。以上より、応答関数の横軸は、 α 線ピークのエネルギーを 5.288 MeV に設定して較正した。測定には 4.2.2 項と同様の一般的な信号処理回路を用いた。しかし、マルチチャネルアナライザは ANSeeN ZMCAN-CH04-01 を使用した。表 4.2 で示すように、エネルギー分解能は電子よりも正孔の方が良好であったため、印加電圧は -1 V/ μm に設定した。照射位置の γ 線線量率を測定するために電離箱式線量計を使用した。

4.3 実験結果と考察

4.3.1 ダイヤモンドの加工による γ 線線量率対応性への影響

表 4.1 にまとめたように、Detector #4.1～#4.3 は、9 mm 角 HPHT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板上に成長させた単結晶 CVD ダイヤモンドを 4 分割して作製した。Detector #4.1 は加工を行わず、そのまま使用した。Detector #4.2 ではリフトオフ分離面を IBE で 10 μm 分除去した。Detector #4.3 では、リフトオフ分離面を IBE で 10 μm 分除去した後、p+ダイヤモンド層を 2 μm 合成して作製した。

Detector #4.1～#4.3 について、それぞれ α 線のみを入射し 180 秒間測定した際の α 線応答関数を図 4.2 に示す。3 つの検出器全てで 5.288 MeV の α 線ピークが同程度の計数率で測定出来ていることが分かる。全ての検出器で 5.5 MeV 以上、特に 8.0 MeV 付近で見られるエネルギーの大きな信号は、今回の実験系では対応するエネルギーの放射線が存在しないことから、 α 線の信号がパイルアップしエネルギーの大きな信号として見えている可能性がある。5.0 MeV 以下の計数率を見ると加工なしの Detector #4.1 は低エネルギー側に向かうにつれて計数率が減少しており、加工ありの Detector #4.2, #4.3 は高エネルギー側から 2.0 MeV 付

近までは Detector #4.1 と似た計数率変化をしているが、さらに低エネルギー側に向かうと計数率が増加している。この違いは加工による捕獲準位の低減に起因している可能性があるが、その原因は明らかではない。

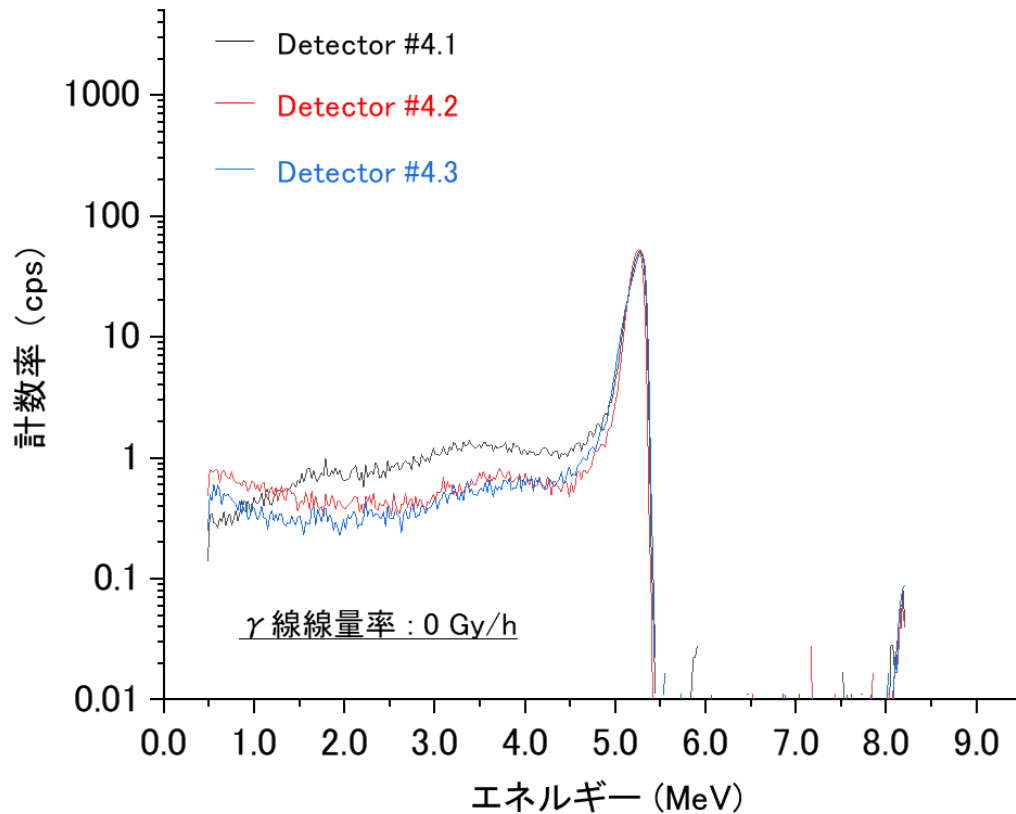


図 4.2 5.486 MeV α 線の応答関数の例(Detector #4.1: 加工なし、Detector #4.2: IBE 10 μm 、Detector #4.3: IBE 10 μm +p+ダイヤモンド層)

Detector #4.1~#4.3 について、それぞれ 260 Gy/h の γ 線線量率下で α 線を入射し 180 秒間測定した際の α 線応答関数を図 4.3 に示す。3 つの検出器全てで 5.288 MeV の α 線ピークが同程度の計数率で測定出来ていることが分かる。 α 線のみを照射した場合に比べて α 線ピークのエネルギー分解能が低下しているが、これは γ 線照射の影響により発生する電荷キャリアによりリーク電流が時間変動することで信号処理回路のベースラインが揺らぐことによって発生した。加工なしの Detector #4.1 の α 線ピークが最もブロードになっており、 γ 線照射の影響を大きく受けている。また、 α 線のみを照射した際にみられた 8.0 MeV 付近の信号についても、 γ 線照射の影響によりブロードに見えていいると考えられる。2.0 MeV 以下に現れる計数率が高い信号が γ 線によるノイズ信号で、ダイヤモンド検出器中の捕獲準位への電荷キャリアの捕獲とその開放による放電が起因であると考えられる。これらの γ 線によるノイズ信号は、Detector #4.1、#4.2、#4.3 の順に低エネルギー側に抑えられた。これは、

リフトオフ分離面のIBEによる除去とダイヤモンドと電極の間へのp+ダイヤモンド層を形成によりダイヤモンド検出器中の捕獲準位の数が増加し、捕獲される電荷キャリアが増加したことで、放電によるノイズ信号のエネルギーが増加したからであると考えられる。

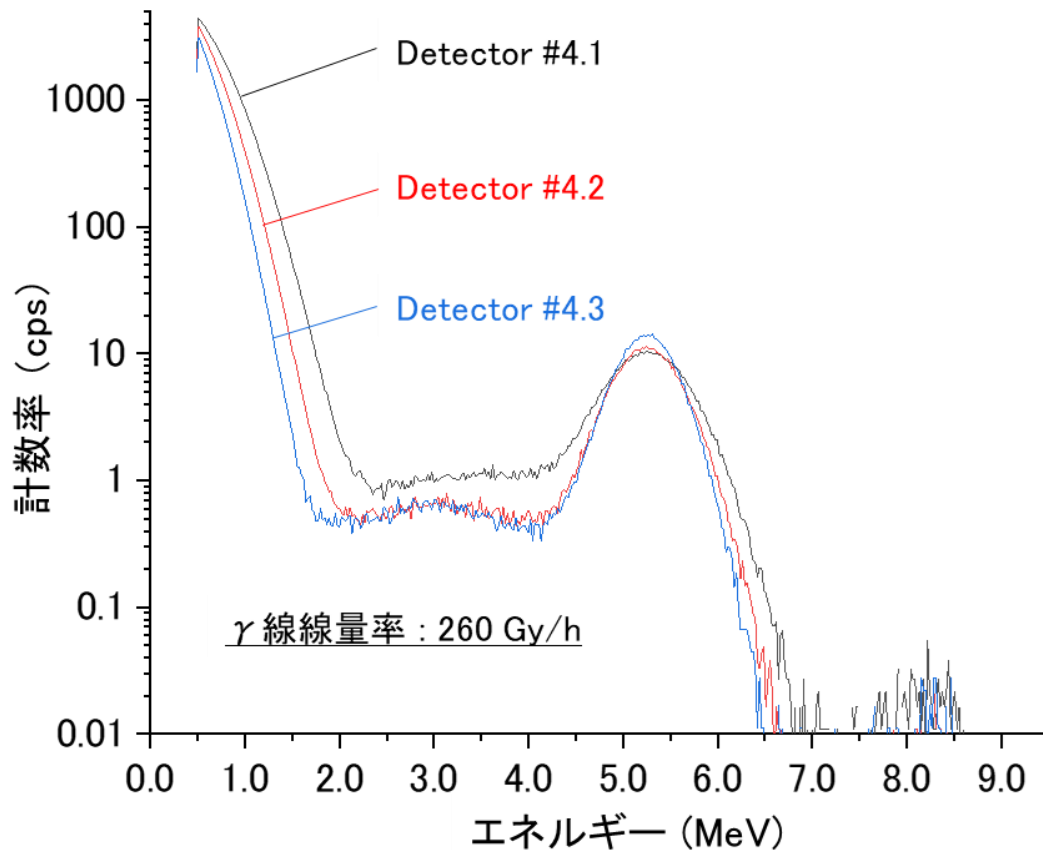


図 4.3 260 Gy/h の γ 線線量率下での 5.486 MeV の α 線応答関数の例(Detector #4.1: 加工なし、Detector #4.2: IBE 10 μm 、Detector #4.3: IBE 10 μm +p+ダイヤモンド層)

4.4 結論

本章では、ダイヤモンドの結晶内捕獲準位の低減を目的とした合成後の検出器用ダイヤモンドに対する加工が、 γ 線照射に起因するノイズ信号の低減を通じて γ 線線量率対応性の向上に寄与するかを評価した。捕獲準位の低減手法として、以下の2つの加工を検討した。1点目は、IBEによるダイヤモンドリフトオフ分離面から約10 μm の除去である。2点目は、ダイヤモンドとTi/Auオーミック電極界面に対して、B添加ダイヤモンド合成によりp+ダイヤモンド層を導入する手法である。これらの加工を施した検出器と未加工の検出器を用いて γ 線照射試験を実施した結果、いずれの加工においても γ 線線量率対応性の向上に有効であることが確認された。以上から、検出器用ダイヤモンドに対する加工を導入することで、 γ 線照射に起因するノイズ信号を低減し、 γ 線線量率対応性を向上させることが可能であることを明らかにした。

第4章の引用文献

- [1] A.Valentin, A.Tardieu, V.Mille, A.Tallaire, J.Achard, and A.Gicquel: Phys. Status Solidi A, 212 (2015) 2636. <https://doi.org/10.1002/pssa.201532205>
- [2] T. Shimaoka, J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, and S. Shikata: Europhys. Lett., 113 (2016) 62001. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/113/62001>
- [3] H. Sumiya, N. Toda, and S. Satoh: New Diamond Front. Carbon Technol., 10 (2000) 233. <https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:000165889400002>
- [4] M. Kamo, Y. Sato, S. Matsumoto, and N. Setaka: J. Cryst. Growth, 62 (1983) 642. [http://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90411-6](http://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90411-6)
- [5] Y. Mokuno, A. Chayahara, and H. Yamada: Diamond Relat. Mater., 17 (2008) 415. <http://doi.org/10.1016/j.diamond.2007.12.058>
- [6] G. F. Knoll: Radiation Detection and Measurement, B. Zobrist, R. Factor, and S. Malinowski Eds. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1989) 3rd ed., Chap. 11.
- [7] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, and P. Siffert: IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-22 (1975) 160. <https://doi.org/10.1109/TNS.1975.4327634>
- [8] J. Ziegler - SRIM & TRIM: <http://www.srim.org> (accessed March 2025)

第5章 ダイヤモンド合成における酸素添加による検出器特性への影響評価

5.1 研究背景および目的

本章では第4章に引き続き、結晶内の捕獲準位が少ない高品質な検出器用ダイヤモンドを作製するための捕獲準位の低減手法として、(2) 捕獲準位の少ないダイヤモンドを得ることが可能な合成条件による合成を目的として、従来の水素とメタンのみの合成ガス雰囲気中に酸素を添加した合成条件での合成を行いその影響を評価した。

北海道大学ではこれまでに、結晶性に優れた高温高压合成(HPHT) IIa 型単結晶ダイヤモンド基板 [1]を使用し、ダイレクトウエハー法 [2]を用いたマイクロ波プラズマ化学気相成長(CVD)法 [3]により検出器用ダイヤモンドの合成を行ってきた。合成は、水素およびメタンのみからなるガス雰囲気中で、メタン濃度を 0.2~0.5%程度とした低メタン濃度条件で実施しており、その結果、カソードルミネッセンス測定において自由励起子再結合発光のみが観測される高品質な単結晶ダイヤモンドの合成に成功している。この手法により、エネルギー分解能に優れたダイヤモンド放射線検出器が実現された [4]。さらに、本手法で作製したダイヤモンド放射線検出器は、500 °Cにおいても 5.486 MeV α 線エネルギースペクトル測定に成功しており、高温環境下での動作が可能であることが示されている [5]。第3章で 1 kGy/h の高 γ 線線量率への対応性を示したダイヤモンドも同様の手法で作製されたことから、本手法の再現性を検証するため、同様の合成条件を用いた検出器用ダイヤモンドの合成と評価を複数回実施したが、1 kGy/h の γ 線線量率下でも使用可能な検出器用ダイヤモンドを作製することはできなかった。このように、ダイヤモンド合成に使用するマイクロ波プラズマ CVD 装置の内部状況の経時変化の影響などから、従来の合成条件では合成条件を同様にしたとしても 1 kGy/h の高 γ 線線量率下で使用可能な結晶内の捕獲準位が少ない高品質なダイヤモンドを安定して合成することは難しい。さらに、低メタン濃度条件ではエッチングが優勢となるため、合成後のダイヤモンド表面に双晶を起点とする逆ピラミッド状のピットが多数形成され、表面凹凸が大きくなる。このような表面凹凸は、信号処理回路基板への実装時に応力集中を引き起こし、素子破損の要因となる可能性がある。したがって、捕獲準位の低減に加えて、ダイヤモンド表面の平坦化も重要な課題である。

最近、寺地によりダイヤモンド合成時に酸素を高濃度添加することで、酸素によるエッチングでの結晶欠陥の低減と B 等の不純物の取り込み抑制によるダイヤモンド結晶の高品質化や成長表面の異常成長の低減による平坦化を行えることが示された [6]。この酸素添加合成ダイヤモンドの電荷キャリア輸送特性評価を行った先行例はないことから、本章では合成時に酸素添加したダイヤモンドを用いて作製した検出器の電荷キャリア輸送特性を含む検出器特性の評価を通して、捕獲準位の少ないダイヤモンドを得ることが可能な合成条件の探索を行った。加えて、合成後のダイヤモンド表面の平坦化についても評価を行った。

5.2 実験

5.2.1 酸素添加によるダイヤモンドの合成

検出器用の酸素添加ダイヤモンドの合成に先立ち、不純物濃度を測定するため、HPHT IIb 型単結晶ダイヤモンド基板上に酸素添加ダイヤモンドをマイクロ波プラズマ CVD 法により合成した。合成には、マイクロ波プラズマ CVD 装置(5250; ASTeX/MKS Instruments Inc.)を使用した。合成時のガス圧と基板温度はそれぞれ 110 Torr、870 °C とした。成長時に酸素を添加するとエッチング効果が増加し、0.2%のような低メタン濃度ではエッチングが支配的な成長条件となるため、メタン濃度($\text{CH}_4/[\text{H}_2+\text{CH}_4+\text{O}_2]$)は 1%とした。また、酸素濃度($\text{O}_2/[\text{H}_2+\text{CH}_4+\text{O}_2]$)を 0%、0.2%、0.5%、0.8%の順に段階的に変化させることで酸素濃度の異なるダイヤモンド層を積層合成した。マイクロ波出力は 637-682 W で、各酸素濃度における目標層厚は 1 μm とした結果、実際の総膜厚は 6.2 μm となった。積層合成した酸素添加ダイヤモンド層について 2 次イオン質量分析(SIMS) [7]を実施し、不純物濃度を測定した。SIMS は固体試料表面に 1 次イオンビームを照射し、その衝撃によって試料表面から放出される 2 次イオンを質量分析することにより、試料中に含まれる元素および同位体の定性・定量分析を行う表面分析手法である。

検出器特性評価用のダイヤモンドとして、酸素添加濃度の異なる 4 種類の単結晶 CVD ダイヤモンド試料(Oxg#1~Oxg#4)を作製した。検出器用ダイヤモンドの合成には、HPHT 法によって作製された住友電工製 IIa 型単結晶ダイヤモンド基板の(001)面を<110>方向に 3 度程度傾斜させた基板を使用した。その上にマイクロ波プラズマ CVD 法により単結晶ダイヤモンドのホモエピタキシャル成長を行った。ダイレクトウエハー法によって自立したダイヤモンド層を得るため、基板にはあらかじめイオン注入層を形成した。CVD 合成時の雰囲気ガスには、水素およびメタンに加えて酸素を使用した。合成後、成長したダイヤモンド層は電気化学エッチングによって基板から分離され、自立したダイヤモンド層として検出器作製に用いた。合成には、住友電工製 HPHT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板を 4 枚使用した。成長領域を最大限有効に活用するため、基板は原石から切り出された形状のまま使用しており、その結果、基板形状は不規則で、面積も試料ごとに異なっている。合成時のガス圧および基板温度は、それぞれ 110 Torr、870 °C とした。メタン濃度は 1%に固定し、酸素濃度は Oxg#1 が 0%、Oxg#2 が 0.2%、Oxg#3 が 0.5%、Oxg#4 が 0.8%とした。基板温度を一定に保つため、マイクロ波出力は各条件に応じて調整した。これらの成長条件を表 5.1 に示す。また、比較のために、過去に北海道大学においてメタン濃度 0.2%、酸素添加無しの条件で住友電工製 HPHT IIa 型単結晶ダイヤモンド(001)基板上に合成された試料 Hu#1 [4]のデータも併せて表 5.1 に示した。Hu#1 は、電荷キャリア輸送特性に優れたダイヤモンドとして報告されており、本章における酸素添加ダイヤモンド試料との比較基準として用いた。

表 5.1 各試料の合成条件 (文献 [4]を基に著者作成)

試料 I.D.	CH ₄ /[H ₂ +CH ₄ +O ₂] (%)	O ₂ /[H ₂ +CH ₄ +O ₂] (%)	圧力 (Torr)	マイクロ波 出力 (W)	基板温度 (°C)	成長膜厚 (μm)	成長速度 (μm/h)
Oxg#1	1.0	0	110	835-900	870	93.3	1.94
Oxg#2	1.0	0.2	110	1035	870	35.7	0.83
Oxg#3	1.0	0.5	110	780	870	43.5	0.56
Oxg#4	1.0	0.8	110	670-770	870	24.8	0.26
Hu#1 [4]	0.2	0	110	1000	900	150	0.86

5.2.2 検出器の作製、評価手法および測定条件

検出器特性評価用ダイヤモンドの合成後、表面形態を観察するために微分干渉顕微鏡およびレーザー顕微鏡を用いて撮影した。その後、カソードルミネッセンス(CL)測定により CL スペクトルを取得した。CL 測定は、電子線を固体試料に照射することによって励起された発光を分光分析する手法であり、材料中の不純物準位、欠陥準位、結晶性を評価するために広く用いられている。CL 測定では 13 kV の電子ビームを使用し、ビーム電流と試料温度はそれぞれ 100 nA、80 K とした。測定領域は 190 μm × 190 μm である。CL スペクトルは CCD 検出器で検出し、回折格子は 300 lines/mm を用いた。

合成したダイヤモンド層は電気化学エッチングによって基板から分離され自立したダイヤモンド層として検出器の作製に使用した。検出器の構造は、Al ショットキー電極と Ti/Au オーミック電極を備えた、単純な電極-ダイヤモンド-電極構成である。Al 電極はダイヤモンド成長面へ抵抗加熱蒸着法により形成し、Ti/Au 電極はダイヤモンドリフトオフ分離面へ Ti を電子ビーム蒸着法、Au を抵抗加熱蒸着法により形成した。Ti 形成後、400 °C で 30 分間アニールすることで TiC 層を形成し、その後 Au を抵抗加熱蒸着法で形成した。電極を形成したダイヤモンドは Al 製検出器筐体に設置した。Ti/Au 電極は SMA レセプタクルに接続し、Al 電極は検出器筐体のグラウンドに接続した。

漏れ電流-電圧(I-V)測定には高電圧ソースメジャーユニット(237 ; Keithley Instruments Inc.)を使用し、静電容量-電圧(C-V)測定には半導体検出器用容量計(7500 ; CLEAR-PULSE CO., LTD.)を用いた。

検出器の電荷キャリア輸送特性は、α 線誘導電荷分布測定で得られた波高分布スペクトルから評価した。α 線誘導電荷分布測定は、室温・真空中で ²⁴¹Am 線源からの 5.486 MeV α 線を検出器の Al 電極側へ入射させて実施した。本測定には、前置増幅器(ORTEC 142A)、メインアンプ(ORTEC 672)、高電圧ソースメジャーユニット(Keithley 237)、マルチチャンネルアナライザ—(WE500)を使用した。メインアンプのゲインおよびシェーピング時間はそれぞれ 0.67 × 100 と 1 μs であった。また、印加電圧の極性を切り替えることで電子および正孔の輸送特性をそれぞれ測定した。さらに、検出器の γ 線線量率対応性を評価するために九州大学の ⁶⁰Co γ 線照射施設で測定を行った。

放射線によりダイヤモンド検出器に誘起される全電荷 Q_0 を求めるため、電荷収集効率(CCE)が100%のシリコン表面障壁型検出器(BU-011-025-300 ; Ortec)を使用した。 Q_0 は、このSi 検出器で測定した波高分布スペクトルのピークチャンネル値を用い、ダイヤモンド検出器で生成される電荷量を電子・正孔対の平均生成エネルギー値で補正して算出した。以上より、ダイヤモンド検出器のCCEは以下の式で表すことができる。

$$CCE = \frac{Q_{col}}{Q_0} = \frac{\text{Peak ch}_{Dia}}{\text{Peak ch}_{Si}} \times \frac{\varepsilon_{Dia}}{\varepsilon_{Si}} \times 100 \quad (1)$$

ここで、 Q_{col} はダイヤモンド検出器によって実際に収集された電荷量、 Peak ch_{Dia} および Peak ch_{Si} は、それぞれダイヤモンド検出器およびシリコン検出器の波高分布スペクトルのピークチャンネル値である。また、 ε_{Dia} と ε_{Si} はダイヤモンドおよびシリコンの電子・正孔対の平均生成エネルギーであり、それぞれ13.1 eV [8]と3.62 eV [9]である。

これに加えて、より詳細なCCEを求めるための補正式を(2)式に示す。この補正では、入力信号に対するマルチチャンネルアナライザのch 値の直線性から得られる傾き m と切片 c を用いる。さらに、検出器の電極でのエネルギー損失 E_{loss} も考慮する。補正後のCCEは次式で表される。

$$CCE = \frac{(\text{Peak ch}_{Dia} - c_{Dia})}{(\text{Peak ch}_{Si} - c_{Si})} \cdot \frac{\varepsilon_{Dia}}{\varepsilon_{Si}} \cdot \frac{m_{Si}}{m_{Dia}} \cdot \frac{5486 \text{ keV} - E_{loss, Si}}{5486 \text{ keV} - E_{loss, Dia}} \times 100 \quad (2)$$

電荷収集効率は100%が上限で、高い値の方が検出器としての特性が優れていると言えるが、ダイヤモンドを検出器として利用する場合、基本的にCCEは100%に近い値である必要がある。また、Si 検出器のCCEを基準に計算からダイヤモンド検出器のCCEの100%の基準を設定しているため、実際にはダイヤモンド検出器のCCEが100%を超える場合もある。

移動度-寿命($\mu\tau$)積は結晶品質の指標となり、ダイヤモンドではこの値が大きいほど捕獲準位の密度が低く、より高品質であることを示している。 $\mu\tau$ 積はCCEの電場強度依存性からHechtの式 [10]を用いて導出した。

$$\frac{Q_{col}}{Q_0} = \frac{\mu\tau}{L} E \left(1 - e^{-\frac{L}{\mu\tau E}}\right) \quad (3)$$

L は検出器の厚さ、 E は印加電場(V/L)、 μ は電荷キャリア移動度、 τ は電荷キャリア寿命である。この式に基づき、印加電圧を変化させながらCCEを測定し、得られたデータに対してフィッティングを行うことで $\mu\tau$ 積を導出した。印加電圧は絶縁破壊が起こらず、CCEが飽和する値まで各値に設定した。

エネルギー分解能($\Delta E/E$)は電荷キャリア輸送特性を示す指標の一つであり、互いに近接したエネルギーの放射線をどの程度識別できるかを表し、値が小さいほど近接したエネルギーの放射線を識別する能力が高いことを意味する。ピークの半値全幅(FWHM)とピークチャンネル値を用いることで、 $\Delta E/E$ は次の式で表すことができる。

$$\Delta E/E = \frac{\text{FWHM}_{\text{peak}}}{\text{Peak ch}_{Dia}} \times 100 \quad (4)$$

5.3 実験結果と考察

5.3.1 二次イオン質量分析法(SIMS)

図 5.1 は、水素、窒素、酸素、 ^{11}B について、メタン濃度を 1% に設定し、酸素濃度を 0%、0.2%、0.5%、0.8% と段階的に変化させながら HPHT Ib 型単結晶ダイヤモンド基板上に積層合成した試料の SIMS 測定結果を示している。縦軸は原子濃度、横軸は測定深さを表し、ダイヤモンド標準試料を用いて定量的な正規化処理を行っている。深さ $0\text{ }\mu\text{m}$ は試料表面を示し、水素および酸素濃度が大きく増加しているのは表面吸着種によるものである。深さ $6.2\text{ }\mu\text{m}$ 付近で窒素濃度が大きく上昇していることから、この位置が Ib 基板と成長層の境界であることが分かる。成長層は、Ib 基板側から表面側に向かって酸素濃度 0%、0.2%、0.5%、0.8% の順に段階的に積層されている。酸素濃度の変化に起因する原子濃度の顕著な変化は観察されなかった。したがって、全成長厚さが $6.2\text{ }\mu\text{m}$ であることから、各成長層の厚さは均等に $1.6\text{ }\mu\text{m}$ と見積もられる。図中の破線は、各酸素濃度に対応する推定成長層境界を示している。

水素、窒素、酸素の原子濃度は、いずれの酸素添加濃度においても SIMS 測定の検出下限付近であった。一方、 ^{11}B は酸素添加濃度 0% の条件において約 $1\times 10^{15}\text{ atoms/cm}^2$ 程度検出されたが、酸素添加濃度 0.2%、0.5%、0.8% の条件では検出下限付近まで低減した。これらの結果から、合成時に酸素を添加することで ^{11}B 不純物の取り込みが抑制されていることが示された。以上より、酸素添加合成を行うことで、 ^{11}B 不純物に起因する捕獲準位が低減されたダイヤモンドを作製可能であり、酸素添加合成試料では水素、窒素、酸素、 ^{11}B 不純物の原子濃度が SIMS 測定の検出下限付近まで抑制されているといえる。

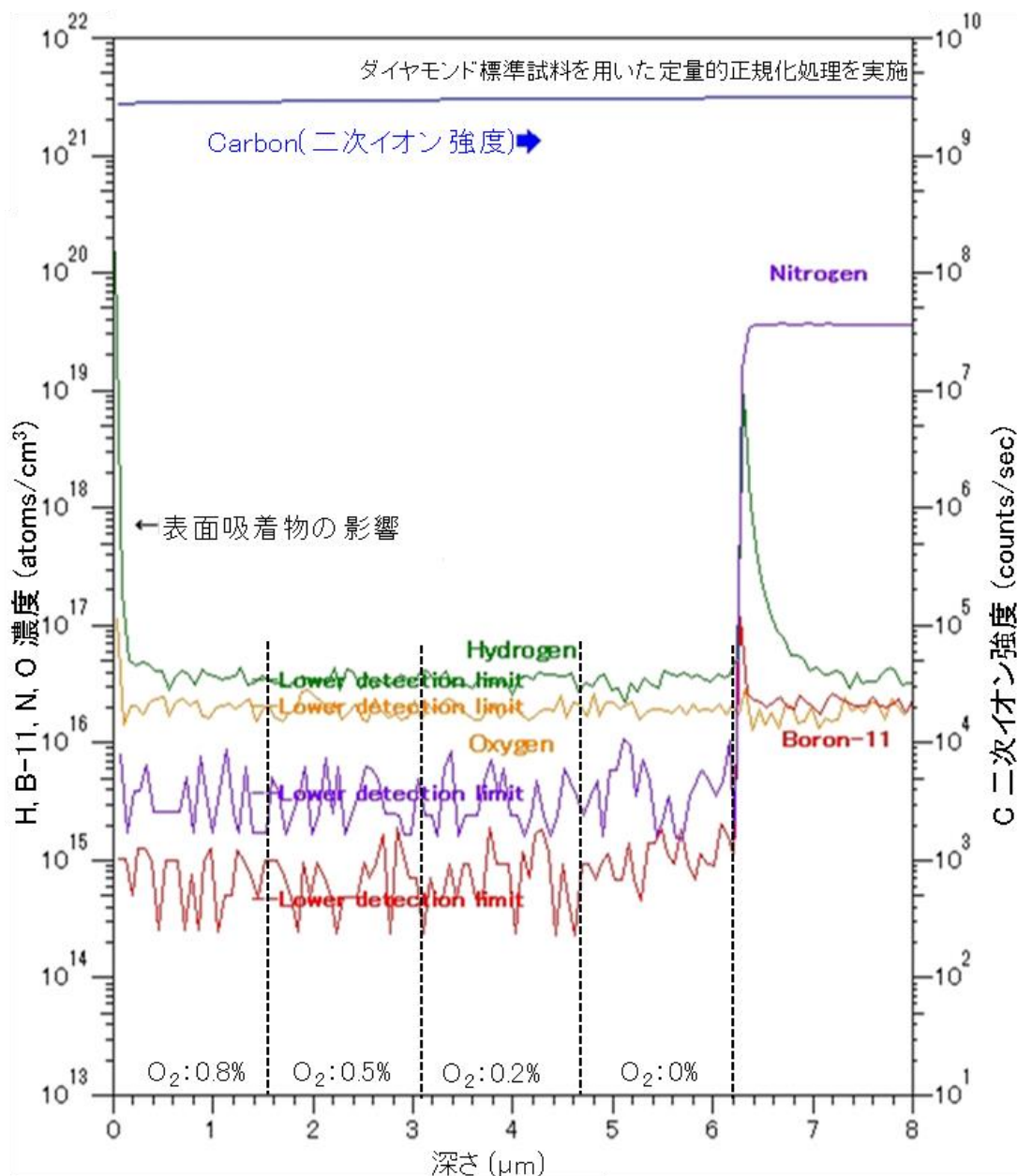


図 5.1 二次イオン質量分析法(SIMS)結果

5.3.2 表面形態

図 5.2 (a)~(d)は、Oxg#1~4 の表面を微分干渉顕微鏡で撮影した画像を示す。比較のため、図 5.2 (e)には酸素を添加せず、メタン濃度 0.2%で成長させた試料 Met#1 を示しているが、その表面には逆ピラミッド状ピットが多数存在する。北海道大学のマイクロ波プラズマ CVD 装置において、0.2%のような低メタン濃度で成長させた試料では、1%のような高メタン濃度で成長させた試料に比べ、表面に逆ピラミッド状ピットが多く形成される傾向があ

る。実際、Oxg#1 の表面は平滑である。これは、メタン濃度の増加により、成長中にエッチングよりも成長が優勢になった結果と考えられる。一方、Oxg#2~4 では酸素濃度の増加に伴ってエッチングが強まり、逆ピラミッド状ピットが出現している。

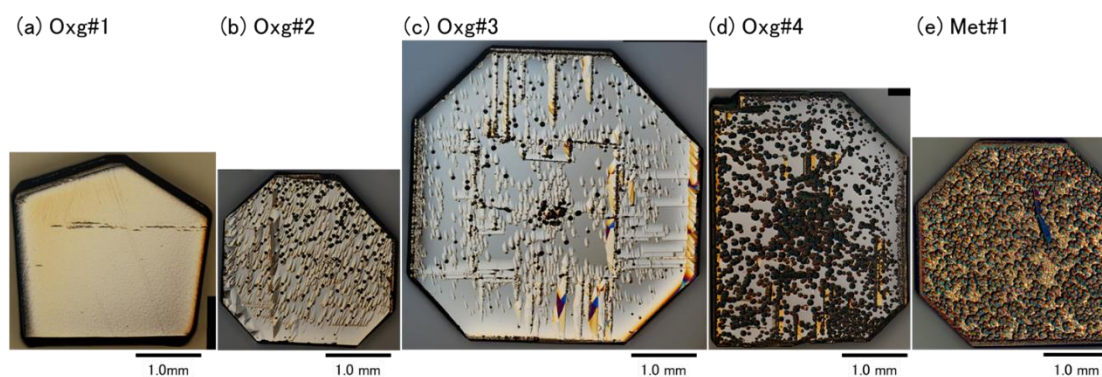


図 5.2 表面微分干渉顕微鏡像 (a) Oxg#1、(b) Oxg#2、(c) Oxg#3、(d) Oxg#4、(e) Met#1

図 5.3 (a)~(d)は、Oxg#1~4 の表面のレーザー顕微鏡像を示している。Oxg#1 では比較的平坦な表面形態を示し、研磨痕によって生じたと考えられる窪みが観察された。Oxg#2~4 では、上述した Met#1 で観察されたものと同様の、逆ピラミッド状のピット P1 および P2 が確認された。P1 および P2 は、偏光顕微鏡像で確認された基板結晶の欠陥や転位とは関連していなかった。したがって、合成中に生成した粒子が成長表面に付着し、双晶を形成した結果、主要な成長方位とは異なる方位で成長してピットが形成されたものと考えられる。P2 の見た目は P1 と異なるように見えるが、中央の粒子が成長して双晶として観察できる大きさになっているだけで、本質的には同じタイプのピットであると判断される。

参考文献 [11]では、ダイヤモンド成長後のエッチングによって同種の逆ピラミッド状ピットが生じることが報告されている。この報告と比較しながら得られた実験結果について考察する。参考文献 [11]の合成条件では、本章で作製した試料と同様に合成中に生成した粒子により双晶が発生しピット形成も起こるが、エッチングよりも成長が支配的なダイヤモンドの合成条件によりピット領域は埋没する。しかし、ピット内部のダイヤモンドは相対的に結合が弱いため、エッチングによってその部分が除去され、エッチピットが露出する。一方、Oxg#2~4 では参考文献 [11]の場合よりもエッチングが優勢であるため、結合の弱い領域が残らず、結合の強い領域のみが成長し、その結果として逆ピラミッド状ピットが結晶表面に現れると考えられる。

Oxg#2 および Oxg#3 においては、P1 と P2 が起点となり、ダイヤモンド基板の偏光顕微鏡像から判断すると、 $\langle 110 \rangle$ 方向から約 30 度傾いた方向への成長を阻害している。

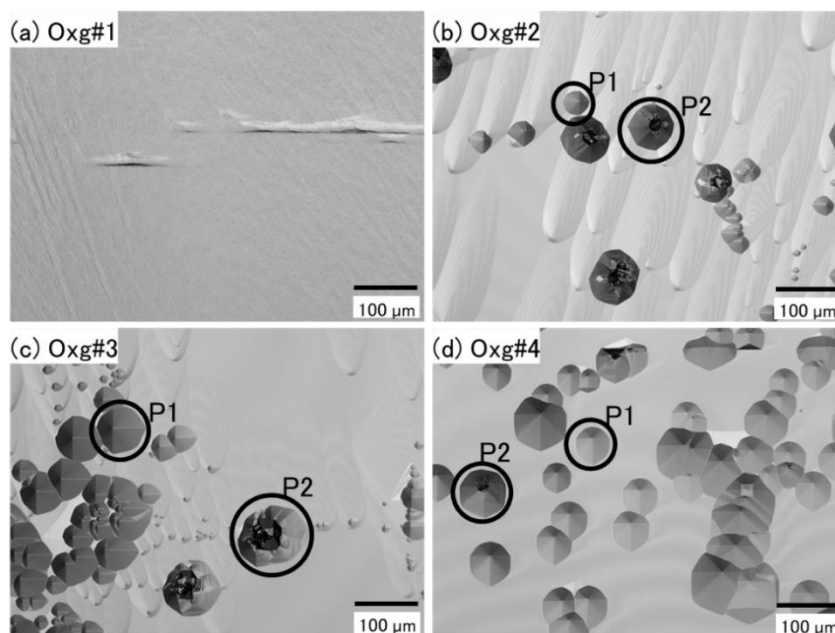


図 5.3 表面レーザー顕微鏡像 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4

図 5.4 は、Oyg#1~4 の成長速度と表面粗さの散布図を示している。表面粗さは、表面の一部($0.5 \times 0.7 \text{ mm}^2$)を複数回測定した平均値であり、誤差棒はその標準偏差を示す。酸素添加濃度が増加するとエッチングが促進され、成長速度は低下し、表面粗さは増大する。本章で用いた酸素添加の成長条件の範囲では、Oyg#4 で多数の逆ピラミッド形ピットが観察された。平坦性を重視する場合は、Oyg#3 が適している。

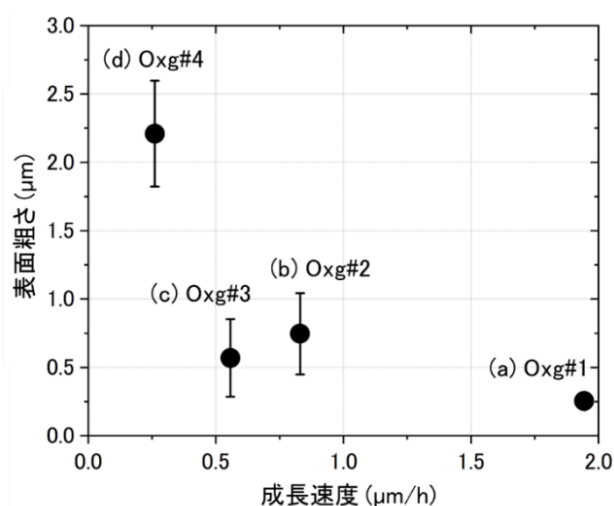


図 5.4 成長速度と表面粗さの散布図 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4

5.3.3 カソードルミネッセンス(CL)測定

図 5.5 (a)~(d)に O_{xg}#1~4 の CL スペクトルを示す。比較のために、(e) Hu#1 と(f) Element Six Ltd.の CL スペクトルを引用した [4]。(e) Hu#1 は過去に北海道大学においてメタン濃度 0.2%、酸素添加無しの条件で合成したダイヤモンド試料で、(f) Element Six Ltd.は Element Six 社から購入した市販のダイヤモンド試料である。引用図については、図番号と軸ラベルを本論文に合わせて変更した。また、(e),(f)の形式に合わせて(a)~(d)を作成したが、拡大図の横軸波長範囲は 300-800 nm から 250-800 nm に変更している。これは 300 nm 以下で特徴的な発光が観察されたためである。図中の x で示したピークは、235 nm の自由励起子再結合(FE)発光 [12]に起因する回折格子による高調波である。図 5.5 には 6 つの CL スペクトルが示されており、それぞれに拡大図を挿入した。全体のスペクトルは FE 発光強度の比較を目的としており、拡大図は点欠陥や転位などの結晶欠陥や不純物に由来する発光強度の比較を目的としている。

O_{xg}#1 では FE 発光ピークはほとんど観察されず、400~500 nm に分布する Band A 発光 [13]が観測された。Band A 発光は転位などの結晶欠陥に関連する発光である。O_{xg}#1 は Hu#1 と比較してメタン濃度が高いため、成長優勢の合成条件となり、結晶欠陥が残存したため Band A 発光が観測されたと考えられる。

O_{xg}#2 では FE 発光強度は 5×10^3 counts/sec まで増加した。O_{xg}#2 では、ダイヤモンド合成時に酸素を 0.2%添加することでエッチングの効果が高まり、sp³ 結合以外の結合が効果的に除去された結果、結晶欠陥が減少したと考えられる。このため、酸素濃度 0%の O_{xg}#1 と比較して FE 発光強度が増加し、Band A 発光も確認されなくなったものと考えられる。一方で、280~360 nm に広がる発光が観測された。この発光の起因は明確ではないが、窒素や B などの代表的な不純物発光波長とは一致しないことから、結晶欠陥に起因する発光である可能性が高いと考えられる。これは、酸素濃度 0.2%では合成時のエッチング効果が十分でなく、結晶内に欠陥が残存したことによるものと推察される。

O_{xg}#3 では FE 発光強度は 3×10^4 counts/sec と、本章で合成した試料の中で最も高い値を示した。FE 発光以外では 750 nm 付近に発光が観測された。この発光は、741 nm にピークを持つ中性単一空孔に起因する GR1 センター [14]に由来する可能性がある。酸素濃度 0.5%の O_{xg}#3 は 0.2%の O_{xg}#2 よりも酸素添加量が増加したことで合成時のエッチング効果がさらに高まり、結晶欠陥がより効果的に除去された結果、FE 発光強度が最大となったと考えられる。

O_{xg}#4 では FE 発光強度は 4×10^3 counts/sec と O_{xg}#2 と同程度であったが、FE 発光以外のピークは観測されなかった。酸素濃度を 0.5%から 0.8%に増加させたことで、合成時のエッチング効果が過度に高まり、本来は残されるべき結晶性の良好な sp³ 結合領域においてもエッチングが及んだ可能性が考えられる。実際に、図 5.4 に示すように表面粗さは 0.5 μm から 2 μm 超へと増大した。Teraji の報告 [15]によれば、電荷キャリアの輸送特性に優れたダイヤモンドでは、電子線によって生成された電荷キャリアが 18 μm 以上拡散し、FE 発光

量は電荷キャリアの寿命に比例することが示されている。Oxg#4 では結晶欠陥や不純物に起因する発光は観測されないことから、FE 発光量の低下が結晶欠陥の影響を受けているという明確な証拠はない。一方で、表面粗さの増大が電荷キャリア寿命に影響を及ぼす可能性が考えられる。すなわち、エッチングの進行による表面荒さの増大により電荷キャリアが拡散可能な距離、すなわちキャリア寿命が短縮され、その結果として FE 発光強度が低下したものと推察される。

本章で検討した合成条件の中で最も FE 発光強度が高かった Oxg#3 は、検出器用途で広く使用されている市販試料である図 5.5 (f)と比較して、約 3 倍高い FE 発光強度を示した。一方で、Hu#1 と比較すると、Oxg#3 の FE 発光強度は約 1/4 にとどまっており、合成条件にはさらなる改善の余地があるといえる。これらの CL スペクトルの比較結果から、本章における合成条件では、酸素添加によるエッチング効果によって結晶欠陥を含む結晶性が劣った領域が選択的に除去されたと考えられる。この選択的エッチングにより、結晶欠陥に起因する捕獲準位も同時に低減され、その結果として Oxg#3 において FE 発光強度が最大となったものと解釈できる。

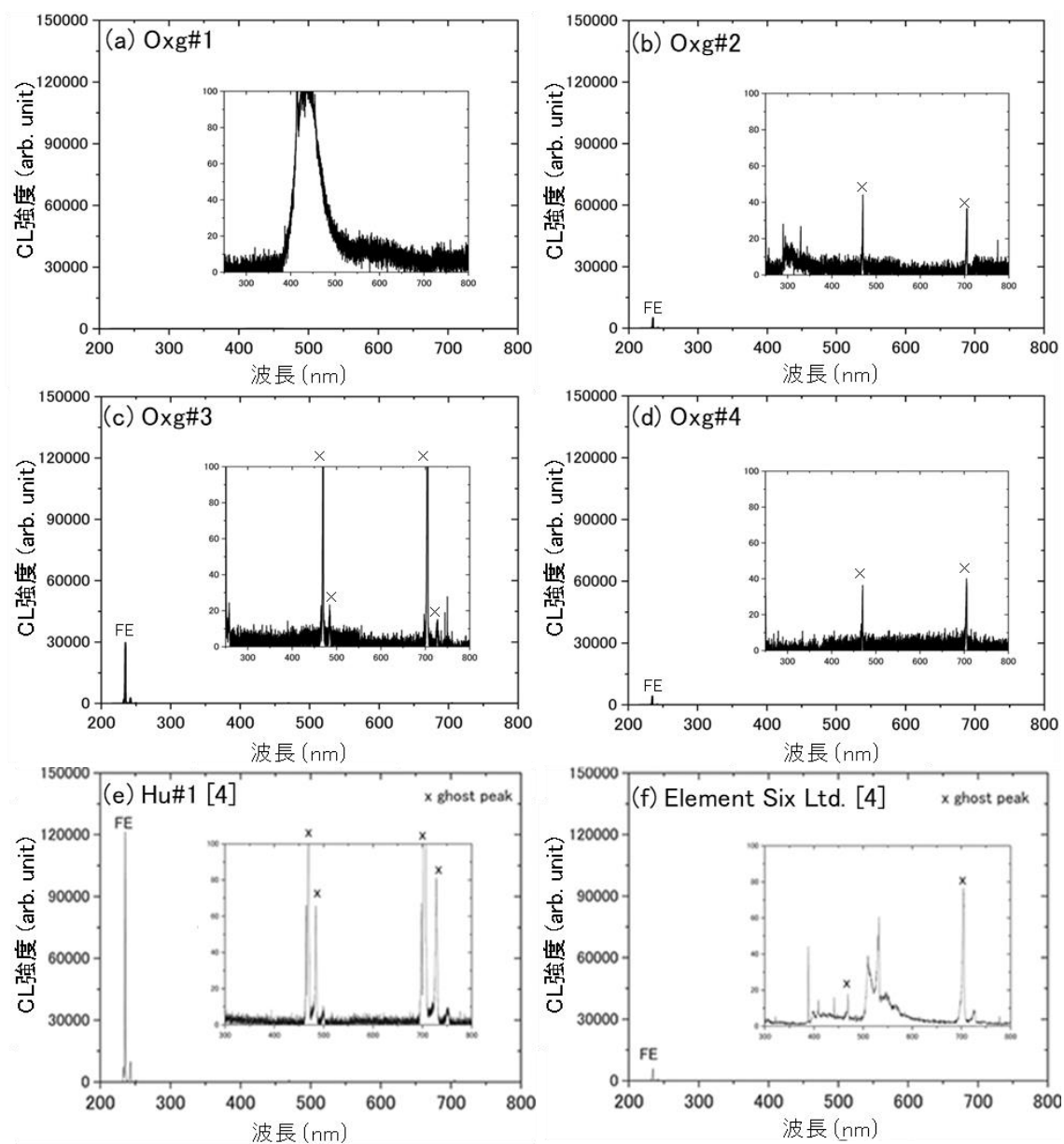


図 5.5 CL スペクトル例 (a) Oyg#1、(b) Oyg#2、(c) Oyg#3、(d) Oyg#4、(e) Hu#1、
(f) Element Six Ltd.製の市販ダイヤモンド試料 (文献 [4]を基に著者作成)

5.3.4 C-V 測定

図 5.6 は O_{xg}#1~4 の C-V 特性を示す。横軸は電界、縦軸は静電容量を表す。測定中の印加電圧は全ての試料で-300 V から+300 V の範囲で行ったが、試料ごとの膜厚の違いにより電界の範囲は異なる。静電容量は以下の式(5)で算出できる。

$$C = \epsilon_D \epsilon_0 \frac{S}{d} \quad (5)$$

ここで、C は静電容量、 ϵ_D はダイヤモンドの比誘電率、 ϵ_0 は真空の誘電率、S は電極面積、d は空乏層の厚みである。ダイヤモンドを絶縁体と考えると空乏層の厚さは試料の膜厚と一致する。

O_{xg}#1~4 の膜厚から求めた静電容量は、それぞれ 1.7 pF、4.4 pF、3.6 pF、6.4 pF であった。実際には、負極性での最大印加電圧における測定値はそれぞれ 2.8 pF、6.1 pF、5.8 pF、7.5 pF である。O_{xg}#1~4 では測定値が計算値を上回っており、これは検出器で使用した金線、銀ペースト、ハンダによる寄生容量の影響である可能性が高い。

図 5.6 において、O_{xg}#1 および O_{xg}#4 の静電容量は、印加電界に依存せずほぼ一定である。O_{xg}#3 においては静電容量にわずかな変化が認められるものの、全体として安定した挙動を示している。一方、O_{xg}#2 の静電容量は、電界 0 V/μm において 6.8 pF であったが、電界印加により極性の正負に関わらず 6.1 pF へと低下した。さらに、正極性電界印加時には 1~2 V/μm 程度から静電容量が安定に定まらなくなったため、測定を中止した。この静電容量の低下は、ダイヤモンド中に形成される空乏層の厚みが増加したことに起因すると考えられる。式(5)より、空乏層厚み d の増加に伴い静電容量が低下することが分かる。空乏層の拡大は、電界印加によってダイヤモンド中の捕獲準位に存在する電荷キャリアが引き出されることで生じた可能性が高い。以上の結果から、O_{xg}#2 は他の試料と比較して、より多くの捕獲準位を有していることが示唆される。

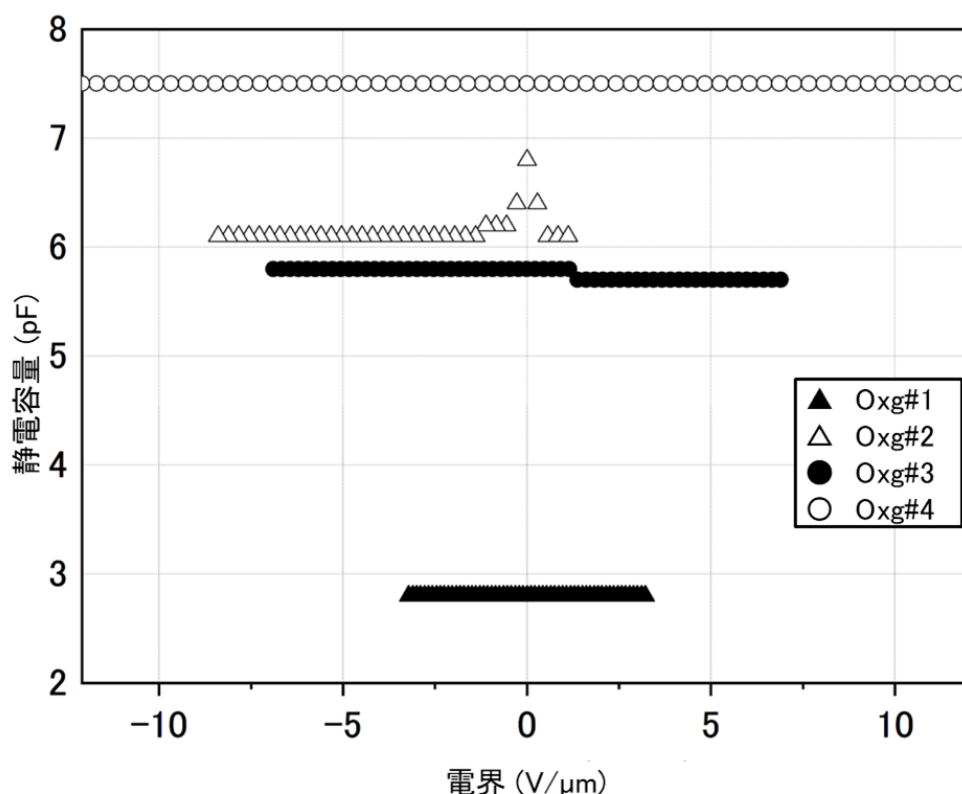


図 5.6 Oyg#1~4 の C-V 測定例

5.3.5 I-V 測定

図 5.7 は、Oyg#1~4 を用いて作製した検出器の I-V 特性を示す。横軸は電界、縦軸は漏れ電流を表す。測定中の印加電圧は全ての試料で-300 V から+300 V の範囲で行ったが、試料ごとの膜厚の違いにより電界の範囲は異なる。破線は設定した漏れ電流の測定上限を示している。

図 5.7 に示す I-V 測定例において、Oyg#1 は正極性の印加電圧下で、負極性と比較して漏れ電流が最大で約 3 桁増加する挙動を示した。北海道大学のマイクロ波プラズマ CVD 装置でメタンと水素のみの条件下で成長させたダイヤモンドは、I-V 特性において同様の挙動が観測される傾向があった。この挙動の詳細な発生機構は十分に解明されていないが、点欠陥、転位などの結晶欠陥ならびに B 不純物によるものと推測される。Oyg#2 では、漏れ電流は Oyg#1 よりもさらに増加し、設定した測定上限である $1\mu\text{A}$ を超えた。CL 測定の結果から、Oyg#2 は Oyg#1 と比較して FE 発光強度が高く、また SIMS 測定の結果から B 不純物の取り込みが抑制されていると考えられる。以上から、Oyg#2 では漏れ電流の低減が期待されたが、実際にはそのような挙動は観測されなかった。C-V 測定の結果から、Oyg#2 は他の試料と比較して、より多くの電荷捕獲準位を有していることが示唆され、それが漏れ電流の増加にもつながっていると考えられる。しかし、Oyg#2 が他の試料と比較してより多くの電荷捕

獲準位を有している理由については現状では明らかではない。Oxg#3 では Oxg#1 と比較して、正極性印加電圧下での漏れ電流が低減する傾向が確認された。さらに、Oxg#4 では Oxg#3 よりも漏れ電流が低下した。これらの結果から、ダイヤモンド合成時に酸素を添加することにより、点欠陥や転位などの結晶欠陥が低減されるとともに、B 不純物の取り込みが抑制され、その結果として漏れ電流が低減されたものと考えられる。

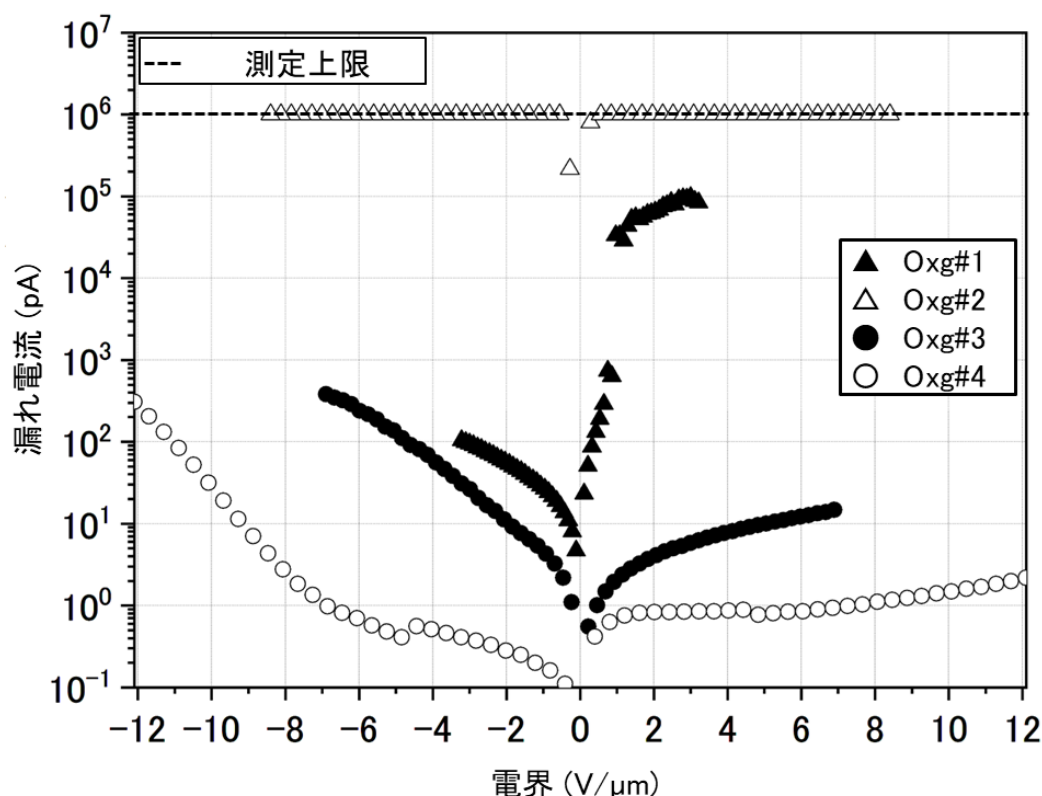


図 5.7 Oxg#1~4 の I-V 測定例

5.3.6 電荷キャリア輸送特性評価

図 5.8 (a)~(c)は、Oxg#1、Oxg#3、Oxg#4 に対する α 線誘起電荷分布測定の波高分布スペクトルを示す。横軸は CCE、縦軸はカウントを表す。Oxg#2 ではリーク電流が大きいため、電子および正孔の測定における波高分布スペクトルは取得できなかった。表 5.2 には、Oxg#1~4 の CCE、 $\Delta E/E$ 、および $\mu\tau$ 積をまとめている。図 5.8 (d)、(e)および表 5.2 には、比較のために引用した Hu#1 および図 5.5 (f)に CL スペクトルを示した市販の Element Six Ltd. 製試料のデータも示した [4]。引用した図では、図番号と軸ラベルを変更した。

Oxg#1 では、正孔に対する CCE は 10.6%と低い値にとどまった。図 5.5(a)に示す CL スペクトルでは、本試料において 430 nm にピークを持つ Band A 発光が観測されており、転位などの結晶欠陥などの存在が示唆される。さらに、図 5.1 に示した SIMS 測定結果からは B 不純物が混入している可能性がある。以上の結果から、Oxg#1 における低い CCE は、結晶

欠陥および B 不純物に起因して結晶内に多数の捕獲準位が形成されていることによるものと考えられる。

Oxg#3 では、正孔および電子の CCE はそれぞれ 100.0%および 100.2%、 $\Delta E/E$ はいずれも 0.33%である。Oxg#4 では CCE はそれぞれ 99.9%および 100.5%、 $\Delta E/E$ は 0.35%および 0.38%である。CCE が 100%を超えるのは、CCE の計算に用いた Si およびダイヤモンドの平均電子生成エネルギーがそれぞれ 3.62 eV および 13.1 eV であるためである。HU#1 では、正孔および電子の CCE はそれぞれ 100.1%および 99.8%、 $\Delta E/E$ はいずれも 0.38%である。したがって、Oxg#3 および Oxg#4 は $\Delta E/E$ に関して Hu#1 と同等かそれ以上であった。よって、エネルギー分解能の値からは、酸素添加によるエッチング効果によって結晶欠陥を含む結晶性が劣った領域が選択的に除去され Oxg#3、Oxg#4 のダイヤモンド中の結晶欠陥に由来する捕獲準位の数はいくつか少ないと考えられる。参考として示した Element Six の試料は厚さ 500 μm であり、北海道大学の試料の 4~10 倍の厚さがあるため、CCE や $\Delta E/E$ はやや低い、厚さを考慮すると性能は良好であった。

表 5.2 各試料の電荷キャリア輸送特性 (文献 [4]を基に著者作成)

試料 I.D.	膜厚 (μm)	CCE 正孔 (%)	CCE 電子 (%)	$\Delta E/E$ 正孔 (%)	$\Delta E/E$ 電子 (%)	$\mu\tau$ 積 正孔 (cm^2/V)	$\mu\tau$ 積 電子 (cm^2/V)
Oxg#1	93.3	10.6	—	49.9	—	—	—
Oxg#2	35.7	—	—	—	—	—	—
Oxg#3	43.5	100.0	100.2	0.33	0.33	$(5.1 \pm 2.1) \times 10^{-5}$	$(3.5 \pm 1.4) \times 10^{-5}$
Oxg#4	24.8	99.9	100.5	0.35	0.38	$(7.1 \pm 1.7) \times 10^{-5}$	$(2.1 \pm 1.1) \times 10^{-5}$
HU#1 [4]	150	100.1	99.8	0.38	0.38	$(3.1 \pm 0.5) \times 10^{-4}$	$(0.91 \pm 0.1) \times 10^{-4}$
Element Six [4]	500	95.0	94.7	0.43	0.52	$(2.1 \pm 0.5) \times 10^{-4}$	$(1.7 \pm 0.2) \times 10^{-4}$

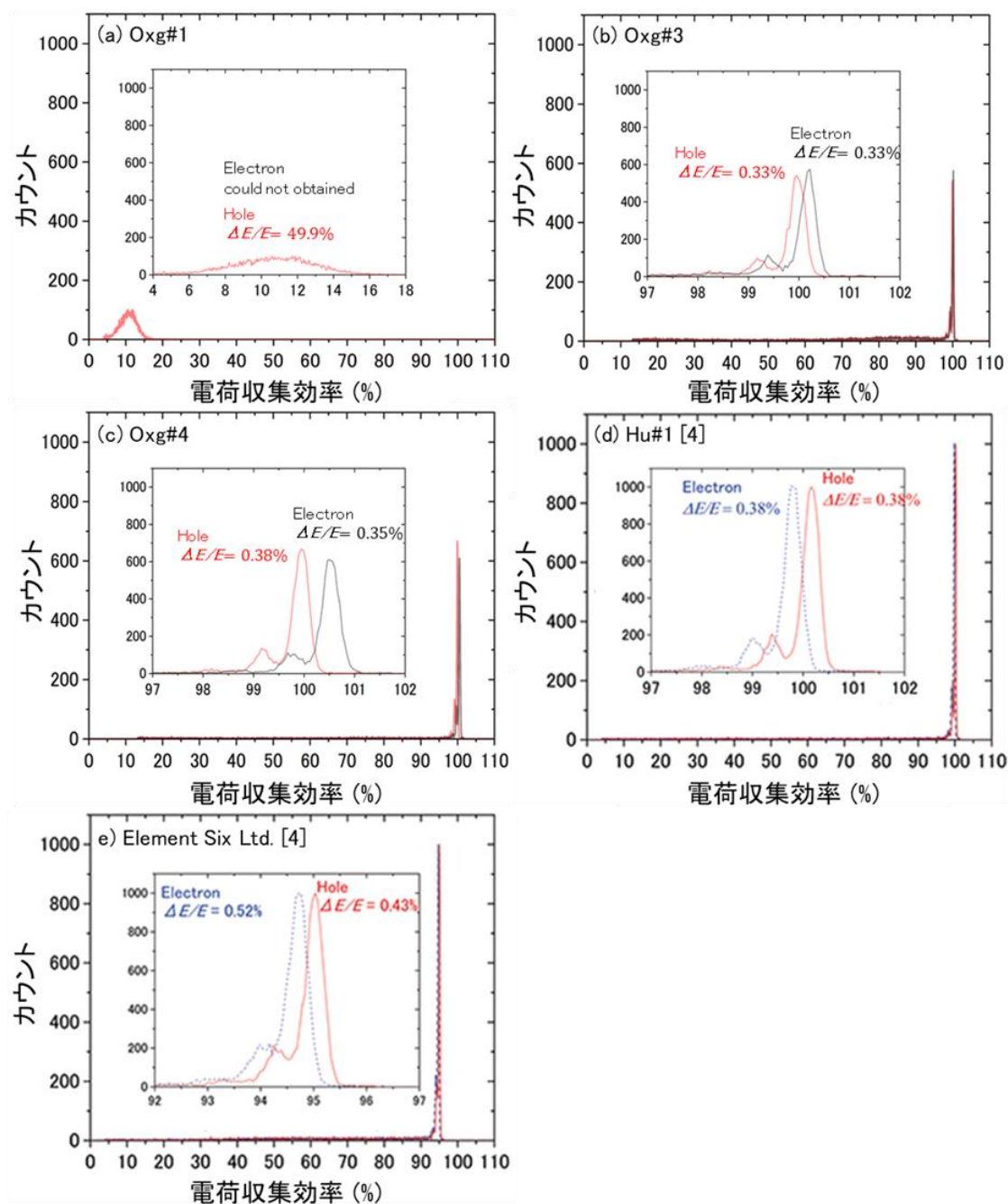


図 5.8 α 線誘起電荷分布測定から得られた波高分布スペクトル (a) OXg#1、(b) OXg#3、(c) OXg#4、(d) Hu#1、(e) Element Six Ltd.製の市販ダイヤモンド試料 (文献 [4]を基に著者作成)

図 5.9(a),(b)は OXg#3、OXg#4 に対する $\mu\tau$ 積を算出するために 5.486 MeV α 線を用いて測定した CCE の電界依存性を示す。比較のために(c) Hu#1 および(d) 市販の Element Six Ltd. 製試料のデータも引用した [4]。横軸は電界、縦軸は CCE を表す。引用図では図番号と軸ラ

ベルを変更した。白抜きの円は正孔の CCE、黒塗りの円は電子の CCE を示す。Oxg#1 は CCE が低いため、 α 線ピーク位置の電界依存性は取得できなかった。測定結果および式(3)によるフィッティングを用いて各試料について求めた $\mu\tau$ 積をにまとめた。

正孔については、HU#1 と Element Six の $\mu\tau$ 積がそれぞれ $3.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V}$ および $2.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V}$ であったのに対し、Oxg#3 と Oxg#4 の $\mu\tau$ 積はそれぞれ $2.0 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$ および $1.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$ であり、1 桁小さい値となった。電子については、HU#1 と Element Six の $\mu\tau$ 積がそれぞれ $0.91 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V}$ および $1.7 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V}$ であったのに対し、Oxg#3 と Oxg#4 の $\mu\tau$ 積はそれぞれ $1.3 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$ および $0.4 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V}$ であり、こちらも同様に 1 桁小さい値となった。

本章で検討した成長条件の中では、酸素濃度 0.5% および 0.8% におけるエッチングにより、主に結晶欠陥に起因すると考えられる捕獲準位が減少し、その結果として CCE およびエネルギー分解能の向上が確認された。一方で、正孔および電子の $\mu\tau$ 積は、比較として用いた HU#1 および Element Six 製試料と比べて 1 桁以上低い値を示した。エネルギー分解能がこれらの参照試料と同程度であったことから、結晶中に存在する捕獲準位の量は概ね同程度であると考えられる。このことから、 $\mu\tau$ 積の低下は結晶欠陥量の違いではなく、合成時の酸素添加による影響に起因する可能性が高い。合成時の酸素添加による影響として考えられる要因の一つは、酸素がダイヤモンド結晶格子中に取り込まれることである。酸素は炭素原子と比較して原子半径が大きいため、単独で結晶格子中に取り込まれるためには高いエネルギーを要するが、結晶欠陥との複合体として取り込まれる場合がある。このような形態で取り込まれた場合であっても、酸素濃度は SIMS の検出下限以下であると考えられる。結晶欠陥と酸素からなる複合体は荷電状態をとる可能性があり、これが電荷キャリアに対するイオン散乱を増大させることで、移動度および寿命が低下し、その結果として $\mu\tau$ 積が低下したものと推測される。

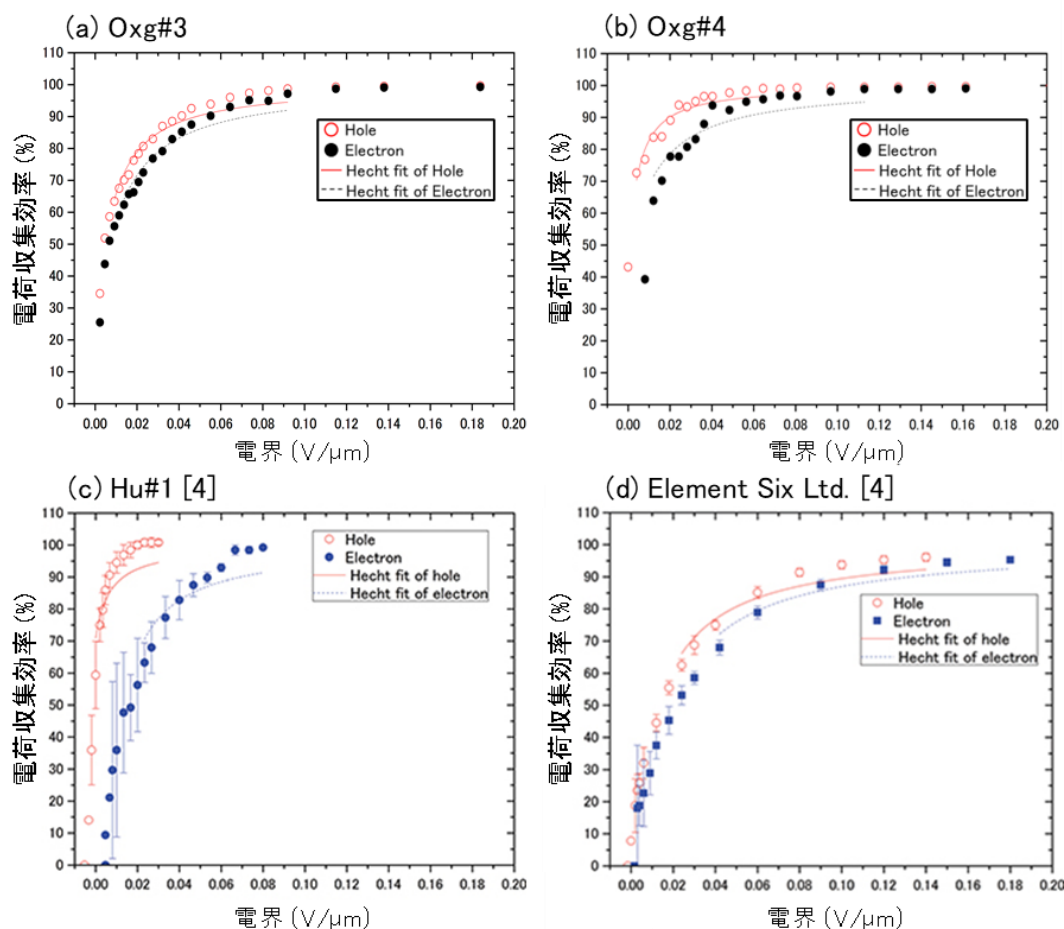


図 5.9 電界に対する CCE の依存性 (a) Oyg#3($d \approx 44 \mu\text{m}$)、(b) Oyg#4($d \approx 25 \mu\text{m}$)、
(c) Hu#1($d \approx 150 \mu\text{m}$)、(d) Element Six Ltd.製の市販ダイヤモンド試料($d \approx 500 \mu\text{m}$)
(文献 [4]を基に著者作成)

5.3.7 γ 線線量率対応性の評価

最後に、 γ 線線量率対応性の評価について議論する。図 5.10 は、Oyg#3、Oyg#4、および比較用に第 3 章で評価したメタン濃度 0.5%、酸素添加無しの条件で合成した Detector #3.2 の各線量率での γ 線応答関数を示している。図中の点線は、各検出器について 25 Gy/h で測定された最大エネルギーを示す。Detector #3.2 は 533 Gy/h においても、25 Gy/h と比較して高エネルギー側のカウントがわずかに増加しているが、顕著な変化は見られない。

一方で、Oyg#3 および Oyg#4 では、それぞれ 166 Gy/h および 65 Gy/h においてわずかに高エネルギー側の計数が現れ始め、533 Gy/h では両試料ともに高エネルギー側に多数の計数が観測された。 γ 線照射に起因するこれらのノイズ信号は、ダイヤモンド結晶内の捕獲準位に電荷キャリアが捕獲され、その後の解放による放電によって発生する疑似信号である可能性が高い。したがって、 γ 線線量率対応性を向上させるためには、結晶内の捕獲準位が

少ない高品質な検出器用ダイヤモンドを作製することが重要であると考えられる。本章でこれまでに実施した各種評価結果から、Oxg#3 および Oxg#4 は、酸素添加によるエッチング効果によって結晶欠陥を含む結晶性が劣化した領域が選択的に除去されており、ダイヤモンド中の結晶欠陥に由来する捕獲準位の数と比較的に少ないと考えられた。しかしながら、 γ 線線量率対応性は最大でも 166 Gy/h 程度にとどまり、1 kGy/h 級の高 γ 線線量率には大きく及ばない。その要因として、酸素添加合成試料では $\mu\tau$ 積が低いため、電荷キャリアが結晶内の捕獲準位に捕獲されやすくなっている可能性が考えられる。電荷キャリアが捕獲準位に捕獲されやすくなることで、その後の解放による放電も発生しやすくなり、結果として γ 線線量率対応性が低下したものと推測される。

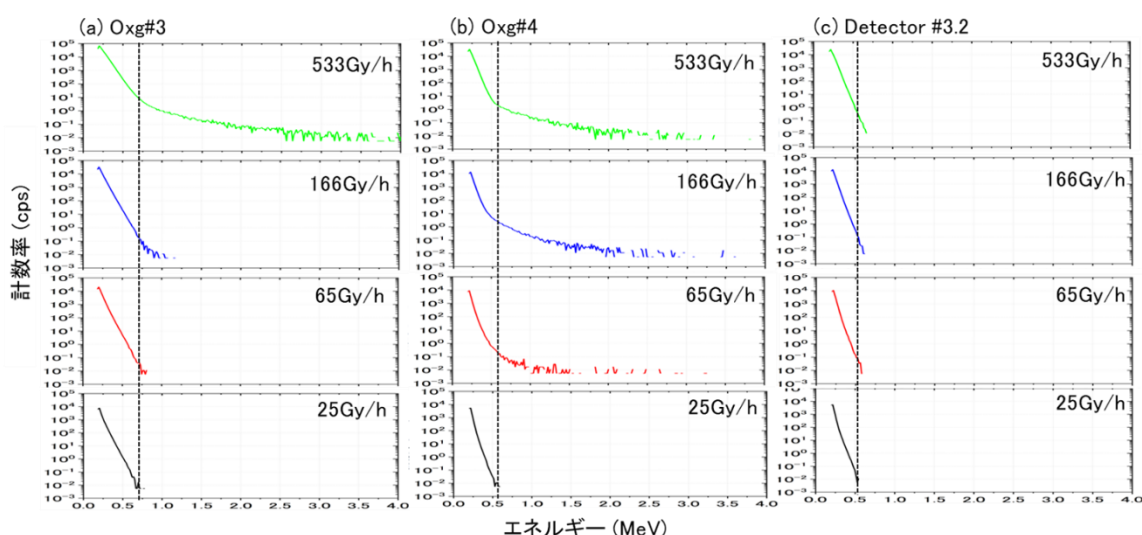


図 5.10 γ 線応答関数例 (a) Oxg#3($d \approx 44 \mu\text{m}$)、(b) Oxg#4($d \approx 25 \mu\text{m}$)、(c) メタン濃度 0.5%、酸素添加無しで合成した Detector #3.2($d \approx 46 \mu\text{m}$)

5.4 結論

本章では、合成時に酸素を添加したダイヤモンドを用いて作製した検出器について、電荷キャリア輸送特性を含む各種検出器特性の評価を行い、捕獲準位の少ないダイヤモンドを得ることが可能な合成条件の探索を行った。加えて、合成後のダイヤモンド表面の平坦化についても評価を実施した。

まず、HPHT Ib 型単結晶ダイヤモンド基板上において、合成時の酸素濃度を段階的に変化させながらダイヤモンド層を積層合成した試料について、SIMS を用いて元素濃度の評価を行った。その結果、酸素添加合成を行うことで、 ^{10}B 不純物に起因すると考えられる捕獲準位が低減されたダイヤモンドを作製できることが示唆された。また、酸素添加合成試料では、水素、窒素、酸素、および ^{10}B 不純物の原子濃度が、いずれも SIMS 測定の検出下限付近まで抑制されていることが確認された。

次に、住友電工製 HPHT IIa 型単結晶ダイヤモンド基板の(001)面上に、メタン濃度 1%、

酸素濃度 0～0.8%の条件で検出器用ダイヤモンドをそれぞれ成長させた。酸素濃度の増加に伴い、成長層表面には逆ピラミッド状のピットが観察されたが、酸素濃度 0.5%の試料では比較的平坦な成長面が得られた。

CL 測定の結果から、本章における合成条件では、酸素添加によるエッチング効果によって結晶欠陥を含む結晶性が劣化した領域が選択的に除去されたと考えられる。この選択的エッチングにより、結晶欠陥に起因する捕獲準位も同時に低減され、その結果として酸素濃度 0.5%の試料において FE 発光強度が最大となったものと考えられる。

エネルギー分解能は、酸素濃度 0.5%および 0.8%の試料において、過去に北海道大学で低メタン濃度 0.2%の合成条件により作製された電荷キャリア輸送特性に優れた比較用ダイヤモンドと同程度の値を示した。一方で、 $\mu\tau$ 積は比較用試料と比べて約 1/4 程度の値にとどまった。エネルギー分解能が優れていることから、酸素添加合成によりダイヤモンド結晶中の捕獲準位は低減されたと考えられる。一方、 $\mu\tau$ 積が低い要因としては、ダイヤモンド結晶中に酸素が結晶欠陥と酸素からなる複合体として取り込まれ、これが荷電状態をとることで電荷キャリアに対するイオン散乱を増大させ、移動度および寿命が低下した結果、 $\mu\tau$ 積が低下した可能性が考えられる。

本章の合成条件の中で最も高品質と考えられる酸素濃度 0.5%の試料について、これまでに実施した各種評価結果を総合すると、酸素添加によるエッチング効果によって結晶欠陥を含む結晶性が劣化した領域が選択的に除去され、ダイヤモンド中の結晶欠陥に由来する捕獲準位の数は比較的少ないと考えられた。しかしながら、 γ 線線量率対応性は最大でも 166 Gy/h 程度にとどまり、1 kGy/h 級の高 γ 線線量率には大きく及ばなかった。その要因として、酸素添加合成試料では $\mu\tau$ 積が低いため、電荷キャリアが結晶内の捕獲準位に捕獲されやすくなり、その後の解放過程に伴う放電が生じやすくなった結果、 γ 線線量率対応性が低下した可能性が考えられる。

以上の結果から、ダイヤモンド合成時に酸素を添加することで、捕獲準位が少なく、成長表面が平坦なダイヤモンドを合成可能であることを明らかにした。一方で、ダイヤモンド結晶中への酸素の取り込みに起因して $\mu\tau$ 積が低下することが示唆された。 $\mu\tau$ 積の低下は γ 線線量率対応性の低下を招くと考えられるため、今後は捕獲準位の低減と $\mu\tau$ 積の改善を両立可能な合成条件の探索を進める必要がある。

第 5 章の引用文献

- [1] H. Sumiya, N. Toda, and S. Satoh: *New Diamond Front. Carbon Technol.*, 10 (2000) 233.
<https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:000165889400002>
- [2] Y. Mokuno, A. Chayahara, and H. Yamada: *Diam. Relat. Mater.* 17 (2008) 415.
<https://doi.org/10.1016/j.diamond.2007.12.058>
- [3] M. Kamo, Y. Sato, S. Matsumoto, and N. Setaka: *J. Cryst. Growth*, 62 (1983) 642.
[https://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90411-6](https://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90411-6)
- [4] T. Shimaoka, J. H. Kaneko, M. Tsubota, H. Shimmyo, H. Watanabe, A. Chayahara, H. Umezawa, and S. Shikata: *Euro. Phys. Lett.* 113 (2016) 62001. <https://doi.org/10.1209/0295-5075/113/62001>
- [5] M. Tsubota, J. H. Kaneko, T. Shimaoka, A. Chayahara, H. Watanabe, Y. Kato, H. Umezawa, and Y. Mokuno: *NEW DIAMOND*. 130 (2018) 36. (in Japanese)
- [6] T. Teraji: *J. Appl. Phys.* 118 (2015) 115304. <https://doi.org/10.1063/1.4929962>
- [7] N. P. Lockyer, S. Aoyagi, J. S. Fletcher, I. S. Gilmore, P. A. W. V. D. Heide, K. L. Moore, B. J. Tyler, and L. Weng: *Nat. Rev. Methods Primers*, 4 (2024) 32. <https://doi.org/10.1038/s43586-024-00311-9>
- [8] S. F. Kozlov, R. Stuck, M. Hage-Ali, P. Siffert: *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 22 (1975) 160.
<https://doi.org/10.1109/TNS.1975.4327634>
- [9] G. F. Knoll: *Radiation Detection and Measurement*, B. Zobrist, R. Factor, and S. Malinowski Eds. (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1989) 3rd ed., Chap. 11.
- [10] K. Hecht: *Z. Angew. Phys.* 77 (1932) 235. <https://doi.org/10.1007/BF01338917>
- [11] M. Naamoun, A. Tallaire, F. Silva, J. Achard, P. Doppelt, A. Gicquel: *Phys. Status Solidi A* 209 (2012) 1715. <https://doi.org/10.1002/pssa.201200069>
- [12] H. Watanabe, K. Hayashi, D. Takeuchi, S. Yamanaka, H. Okushi, K. Kajimura, and T. Sekiguchi: *Appl. Phys. Lett.*, 73 (1998) 981. <https://doi.org/10.1063/1.122059>
- [13] D. Takeuchi, H. Watanabe, H. Sawada, S. Yamanaka, H. Ichinose, T. Sekiguchi, and H. Okushi: *Diam. Relat. Mater.* 10 (2001) 526. [https://doi.org/10.1016/S0925-9635\(00\)00491-X](https://doi.org/10.1016/S0925-9635(00)00491-X)
- [14] B. L. Green, A. T. Collins, and C. M. Breeding: *Rev. Mineral. Geochem.*, 88 (2022) 637. <https://doi.org/10.2138/rmg.2022.88.12>
- [15] T. Teraji, M. Hamada, H. Wada, M. Yamamoto, and T. Ito: *Diam. Relat. Mater.* 14 (2005) 1747.
<https://doi.org/10.1016/j.diamond.2005.06.021>

第6章 ダイヤモンド中性子計測システムの動作実証

6.1 研究背景および目的

第3章で述べたように、1000枚規模の6mm角サイズのダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムプロトタイプの実現に向けては、このような多数のダイヤモンド検出器を集積した中性子計測システム自体がこれまでに前例のない試みであり、技術的に大きな課題を有している。特に、検出器の大量実装に伴う信号処理回路の構成、検出器間特性のばらつきの影響、システム全体としての安定動作および信頼性の確保など、システムレベルでの動作実証が必要となる。そこで本章では、1000枚規模のダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた段階的検証として、約100枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証を中性子および γ 線の計測・評価を行うことで実施した。

ダイヤモンド中性子計測システムに使用するダイヤモンド検出素子の作製にあたって、これまでの第3～5章では、合成用基板として高品質なHPHT IIa型単結晶ダイヤモンド基板[1]を使用してきた。しかし、現行の合成条件では、検出素子用ダイヤモンド1回あたりの合成に要する時間は約10～15日と長く、将来的に1000枚規模の検出素子用ダイヤモンドを作製するためには、1回の合成で得られる素子数を増加させる必要がある。そこで、1回の合成で12mm角のダイヤモンド基板を4枚同時に使用し、合成後の検出素子用ダイヤモンドをレーザーカットによって4分割することで、6mm角サイズのダイヤモンド検出素子を最大16枚得る方法を検討した。この手法により、1000枚規模の検出素子作製が現実的となる。

しかしながら、12mm角のHPHT IIa型単結晶ダイヤモンド基板は1枚あたり約300万円と高額であり、ダイレクトウエハー法によって基板の再利用が可能であるとはいえ、予算上の制約から多数枚の使用は困難であった。そこで、本章では、1枚あたり約30万円と比較的安価な12mm角CVD単結晶ダイヤモンド基板[2]を用いてダイヤモンド検出素子を作製し、ダイヤモンド中性子計測システムの動作実証を行った。

一方で、CVD単結晶ダイヤモンド基板はHPHT IIa型単結晶ダイヤモンド基板と比較して、結晶欠陥や不純物を多く含む傾向がある[3]。検出器用ダイヤモンドの品質は合成条件に加えて合成に使用する基板の影響を大きく受けるため、CVD単結晶ダイヤモンド基板を用いた場合、 γ 線線量率対応性の低下が予想される。そこで、本章では、目標をあくまで約100枚のダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証に限定し、1kGy/hの高 γ 線線量率への対応については対象外とした。このため、本章で使用したダイヤモンド検出素子には、第4章で検討した加工による γ 線線量率対応性向上は適用していない。一方で、第5章で検討したダイヤモンド合成時の酸素添加については、本章においても適用した。酸素添加による γ 線線量率対応性の向上は期待できないものの、合成表面が平坦で、エネルギー分解能に優れた検出素子を安定して合成できることから、検出器作製の実装性および再現性の観点から酸素添加を採用した。

以上を踏まえ、本章では約 100 枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証を、中性子感度評価、中性子束変動への追従性試験、ならびに 55 Gy/h の比較的低い γ 線線量率における応答性評価により実施した。

6.2 実験

6.2.1 中性子検出器用ダイヤモンド検出素子作製技術の構築

北海道大学において 1 度に合成可能な検出素子用ダイヤモンドの面積は、従来は最大でも 10 mm 角程度に限られていた。ダイヤモンド中性子計測システムを実現するためには多数の検出素子用ダイヤモンドが必要となることから、1 度に 20 mm 角以上の広い合成領域で検出素子用ダイヤモンドを成長させることが可能な合成条件の探索を行った。この探索においては、図 6.1 に示す $\Phi 57$ mm の Mo 製合成用基板ホルダーをマイクロ波プラズマ CVD 装置内にセットし、CVD 法 [4]により検出素子用ダイヤモンドの合成を実施した。合成に使用したダイヤモンド基板は、ダイレクトウエハー法 [5]を用いるために、イオン注入処理が施された EDP 社製 CVD 単結晶ダイヤモンド基板であった。基板は 12×12 mm²のものを 4 枚用いており、合成範囲は合計で 24×24 mm²となった。合成条件は、メタン濃度 ($\text{CH}_4/[\text{H}_2+\text{CH}_4+\text{O}_2]$) 1.0%、酸素濃度 ($\text{O}_2/[\text{H}_2+\text{CH}_4+\text{O}_2]$) 0.5%、容器内圧力 80 Torr、マイクロ波出力 930 W、基板温度 870 °Cとした。この条件下における平均合成膜厚は 39 μm 、平均成長速度は 0.16 $\mu\text{m}/\text{h}$ であった。図 6.2 に合成した単結晶ダイヤモンドの表面微分干渉顕微鏡像を示す。得られたダイヤモンド層については、産業技術総合研究所にリフトオフ処理を依頼し、図 6.3 に示す例のように自立膜化した。さらに、自立膜両面に $\Phi 2$ mm の Ti/Au オーミック電極および Al ショットキー電極を形成し検出素子を作製した。作製した検出素子を北海道大学で一般的に使用している Al 製検出器筐体を用いて検出器化し、真空中で ^{241}Am からの 5.486 MeV α 線を入射して得られた応答関数の例を図 6.4 に示す。得られた α 線応答関数から、検出器性能の指標である電荷収集効率(CCE)は電子・正孔ともに 100%に近い値を示した。また、エネルギー分解能($\Delta E/E$)も実用上十分良好であった。これらの結果より、 24×24 mm²の広い合成範囲においてもダイヤモンド中性子計測システムの動作実証に使用可能な検出素子用ダイヤモンドの成長が可能であることが確認された。

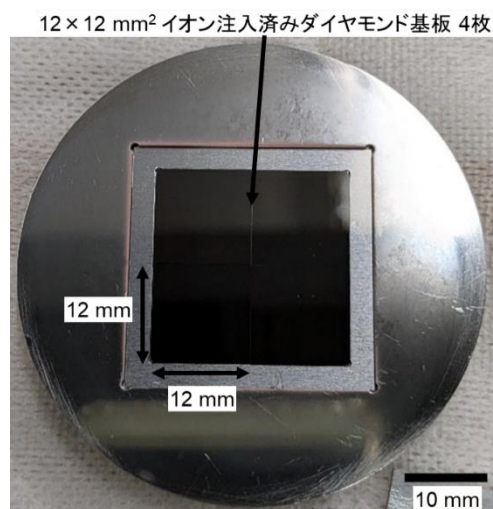


図 6.1 ダイヤモンド基板を設置した $\Phi 57$ mm の Mo 製合成用基板ホルダー

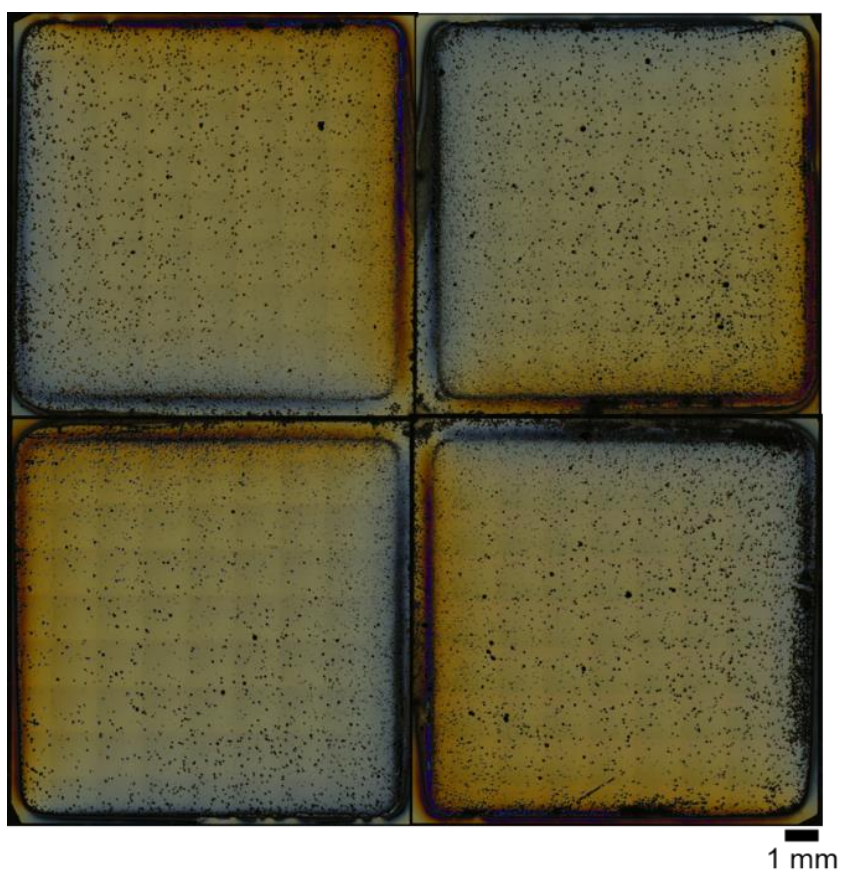


図 6.2 合成後のダイヤモンド基板 4 枚の表面微分干渉顕微鏡像



図 6.3 リフトオフ後のダイヤモンド自立膜例

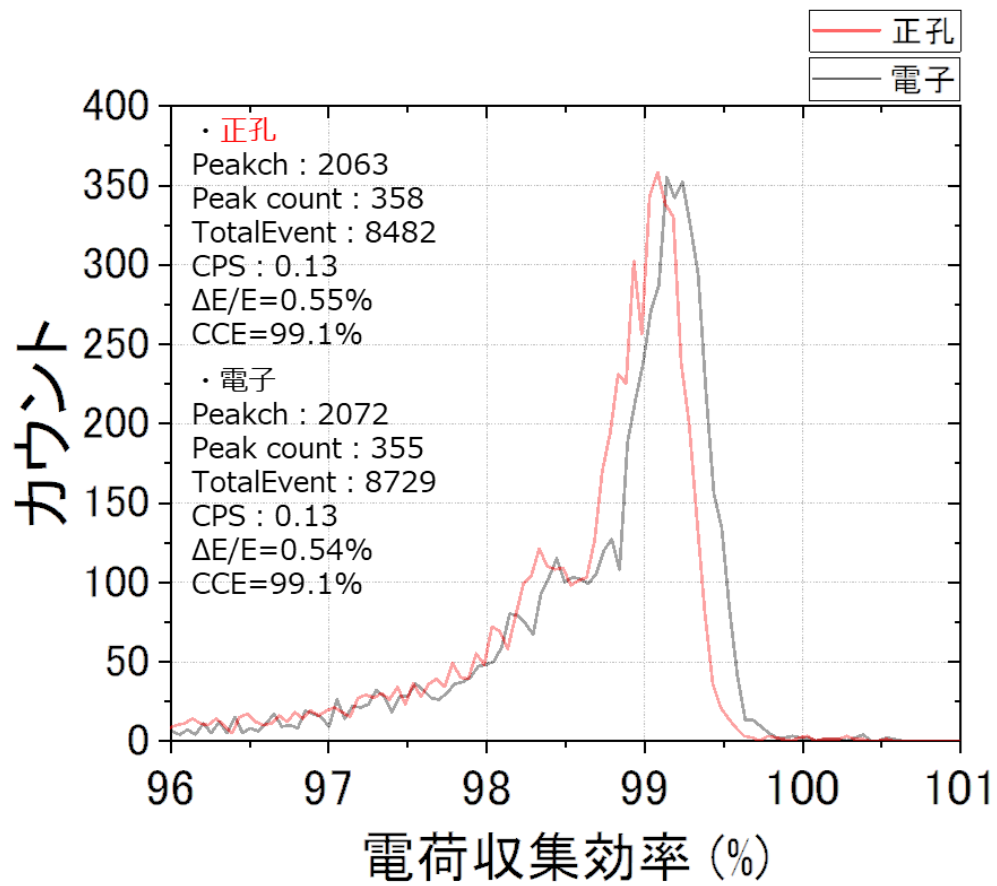


図 6.4 合成したダイヤモンドから作製した検出素子による
5.486 MeV α 線に対する応答関数測定例

前述した手法により作製した $12 \times 12 \text{ mm}^2$ の検出素子用ダイヤモンド自立膜をレーザーカットにより4分割し、約 $5.6 \times 5.6 \text{ mm}^2$ のダイヤモンド自立膜を得た。この自立膜の片面には $4.7 \times 4.7 \text{ mm}^2$ の Al ショットキー電極を1つ、もう片面には $2 \times 2 \text{ mm}^2$ の Ti/Au オーミック電極を4つ、いずれも蒸着法によって形成した。図 6.5 に、実際に製作した中性子検出器用ダイヤモンド検出素子を示す。これらの検出素子は、約 100 枚のダイヤモンド中性子検出器を組み込んだ中性子計測システムの動作実証を目的として、信号処理回路基板への実装を進めている。

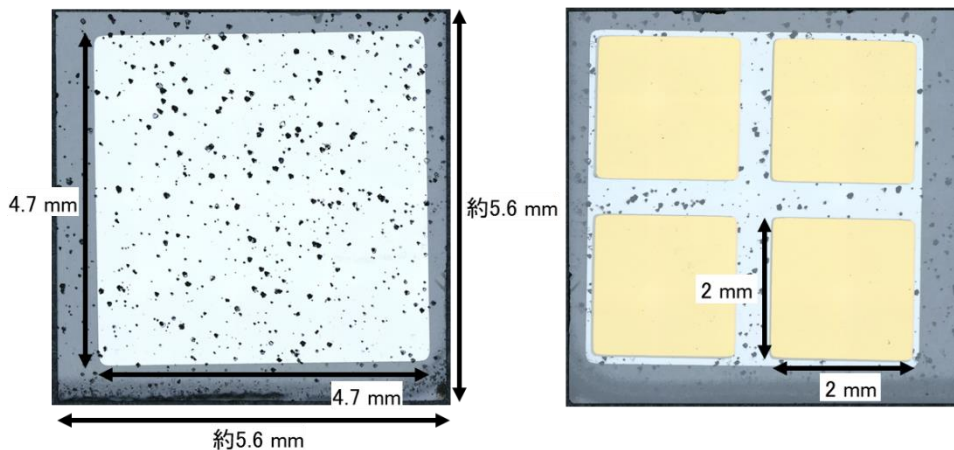


図 6.5 製作した中性子計測システム用ダイヤモンド検出素子 (左) $4.7 \times 4.7 \text{ mm}^2$ の Al 電極 1 つ、(右) $2 \times 2 \text{ mm}^2$ の Ti/Au 電極 4 つ

6.2.2 信号処理回路基板上へのダイヤモンド検出素子と ^6LiF コンバータの実装

ダイヤモンド検出素子と ^6LiF コンバータはスクリーンオフセット印刷装置(SOS-1010-C; 株式会社ミノグループ)を用いて形成した銀ペースト配線によって信号処理回路基板(DSA 基板)上に実装した。スクリーンオフセット印刷は、スクリーン印刷とオフセット印刷の特長を融合させた高精細印刷技術である。本手法は、スクリーン版を介して銀ペーストを弾性体ブランケットへ一旦転写し、その後基板上に間接的に印刷する点に特徴がある。これにより、銀ペーストを用いながらも $10 \mu\text{m}$ 級の微細パターン形成が可能となるほか、基板への直接加圧が不要であるため、多様な材料に対して高い適用性を有する。

実装手順を図 6.6 に示す。実装手順(1)では、スクリーンオフセット印刷装置を用いて DSA 基板の信号読み出しパッド上に銀ペーストを印刷する。実装手順(2)では、ダイヤモンド検出素子の $2 \times 2 \text{ mm}^2$ の Ti/Au オーミック電極が4つ形成されている面を表にして並べて置く。実装手順(3)では、DSA 基板をダイヤモンド検出素子に押し付けることで DSA 基板の信号読み出しパッドとダイヤモンド検出素子の Ti/Au オーミック電極4つをそれぞれ接続する。実装手順(4)では、高温で硬化する銀ペースト使用しているため 150°C で 30 分間銀ペーストを乾燥・硬化させた。実装手順(5)では、スクリーンオフセット印刷装置を用いて DSA 基板の HV パッドとダイヤモンド検出素子の Al 電極を接続する銀ペーストを印刷し、 150°C で

30 分間乾燥させた。実装手順(6)では、 ^6LiF コンバータをカプトンテープでダイヤモンド検出素子の Al 電極上に貼り付けて実装を完了した。このようにして、ダイヤモンド検出素子と ^6LiF コンバータを実装した DSA 基板を評価試験に使用した。



図 6.6 DSA 基板上へのダイヤモンド検出素子と ^6LiF コンバータの実装手順

6.2.3 日本原子力研究開発機構の放射線標準施設での中性子感度測定試験

日本原子力研究開発機構(JAEA)・原子力科学研究所の放射線標準施設(FRS)において、前項で実装した DSA 基板を用いた中性子計測システムの中性子感度測定試験を実施した。試験には、FRS に整備されている $^{241}\text{Am-Be}$ 線源 2 個と、黒鉛パイル減速材(164 cm × 150 cm × 150 cm)を用いた熱中性子標準場(等方場)を用いた。熱中性子等方場では、図 6.7 に示すように、黒鉛パイル中央を挟んだ左右 2 箇所に設けられた線源装荷孔に $^{241}\text{Am-Be}$ 線源 2 個を装荷し、黒鉛パイル中央の空洞(27 cm × 30 cm × 47 cm)内に被照射試料を配置して照射を行う。2 個の $^{241}\text{Am-Be}$ 線源から放出された中性子は、黒鉛パイル内部で減速・熱化された後に空洞内へ入射する。このため、試験位置における中性子の入射角度分布は等方的となることが特徴である。

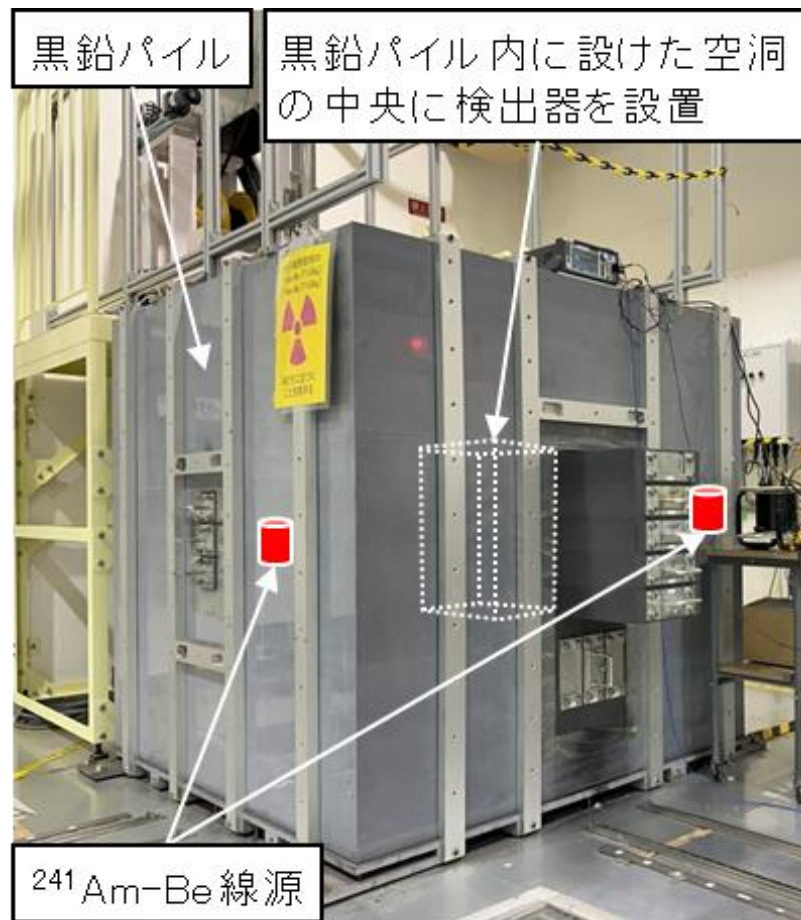


図 6.7 熱中性子等方場の外観

中性子感度測定試験に使用した中性子計測システムは、図 6.8 に示すように DSA 基板、TX 基板、RX 基板から構成される信号処理回路であり、DSA 基板を 4 枚接続できる構造となっている。DSA 基板 1 枚にダイヤモンド検出素子を 8 素子(4ch × 8 素子 = 32ch)実装し、各検出素子に対して事前に α 線を用いた動作試験を実施した。その結果一部動作しない検出素子も存在したため、動作する検出素子にのみ ^6LiF コンバータを実装した。今回使用したシステムでは、DSA 基板 4 枚からそれぞれ同時に中性子計測をすることが可能となっている(最大 4ch × 8 素子 × 4 枚 = 128ch)。中性子計測結果の出力方法は、(1) アナログ出力、(2) デジタル出力の 2 通りある。(1) アナログ出力は、1ch 分の応答関数を 4 枚の DSA 基板からそれぞれ得ることができる(最大 1ch × 4 枚 = 4ch)。(2) デジタル出力は、各 ch のアナログ出力にしきい値となるエネルギーを設定し、 γ 線に起因するノイズ信号と中性子に起因する信号を弁別する。しきい値を超えるエネルギーの信号があれば中性子として 1 カウントする。 γ 線と中性子を弁別するためのしきい値についての説明は 3.3.2 項を参照のこと。設定した時間間隔での DSA 基板 1 枚分(最大 32ch)のカウント数の合計値を 4 枚の DSA 基板からそれぞれ得ることができる(最大 32ch × 4 枚 = 128ch)。なお、ダイヤモンド中性子計

測システムプロトタイプで使用を想定しているのはデジタル出力である。

本章では、図 6.8 に示す最大 32 枚の検出素子を実装可能な中性子計測システム 1 ユニットの用いて評価を行った。本システムは同一仕様のユニットを合計 4 台準備しており、今後は検出素子を最大 128 枚実装した中性子計測システムによる評価が可能である。

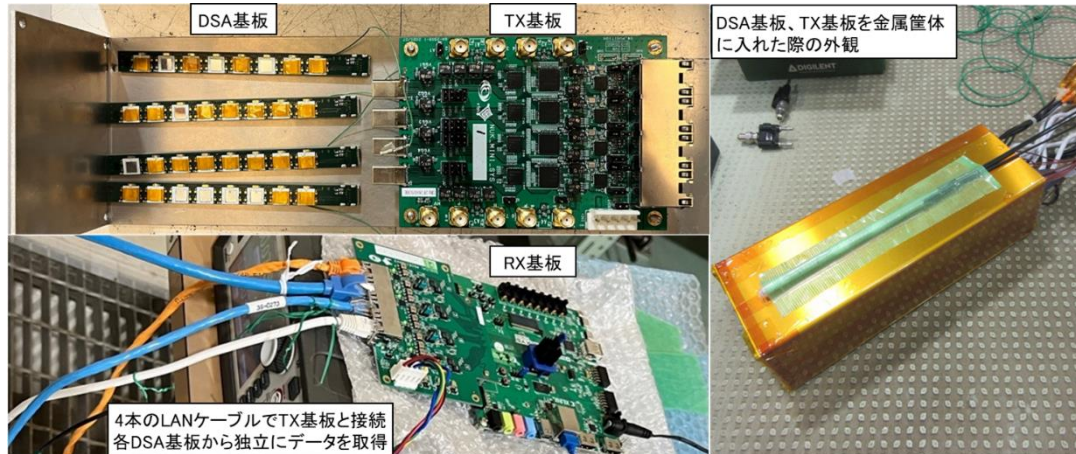


図 6.8 中性子計測システムの外観

6.2.4 近畿大学原子炉での中性子追従試験

これまで、福島第一原子力発電所廃炉事業における燃料デブリ取り出し作業の安全管理を目的とした臨界近接監視システムを念頭にダイヤモンド中性子計測システムの開発を進めてきた。しかし、最近では燃料デブリ取り出し作業時の実効増倍率は 0.4~0.7 程度と推定されており、深い未臨界状態にあると考えられている。実効増倍率が 0.7 程度の場合であっても、中性子感度が数 cps/nv 程度の中性子計測システムでは反応度の推定は困難であり、反応度を推定するためにはより高い中性子感度が求められる。一方、ダイヤモンドを用いた中性子計測システムにおいて中性子感度をオーダー単位で向上させることは、ダイヤモンド検出素子の量産性の観点から現状では現実的ではない。しかしながら、対象が深い未臨界状態である場合、必ずしも反応度の直接推定が必要となるわけではなく、中性子数の変化を追従して計数率を安定して測定できれば、安全管理の目的は十分に達成し得る。以上の観点から、制御棒操作により中性子束を変化させることが可能な近畿大学原子炉 [6]において、前項と同様のダイヤモンド中性子計測システム 1 ユニットの用いた中性子追従試験を実施した。

図 6.9 に示すように、原子炉上部の挿入口からダイヤモンド中性子計測システムを炉内に設置した。その後、制御棒操作により中性子束を変化させ、ダイヤモンド中性子計測システムを用いて中性子計数率の時間変化を測定した。測定はアナログ出力およびデジタル出力の双方について実施し、名古屋大学の協力のもと、得られた計数率データに対してバイラテラルフィルタ [7]を適用したのち、最小二乗逆動特性法 [8,9]および改良単純フィードバ

ック法 [10]を用いてドル単位反応度の時間変化を逆推定した。バイラテラルフィルタはエッジ保存平滑化フィルタの一種であり、中性子計数率測定に伴う統計的不確かさを低減する目的で使用した。最小二乗逆動特性法は、中性子検出器から得られる時系列データをもとに、反応度外乱投入後の体系反応度だけでなく、中性子源の実効強度も同時に推定する解析手法である。改良単純フィードバック法は、最小二乗逆動特性法により推定された中性子源の実効強度を利用し、計数率の時間変動からドル単位未臨界度を推定する解析法である。

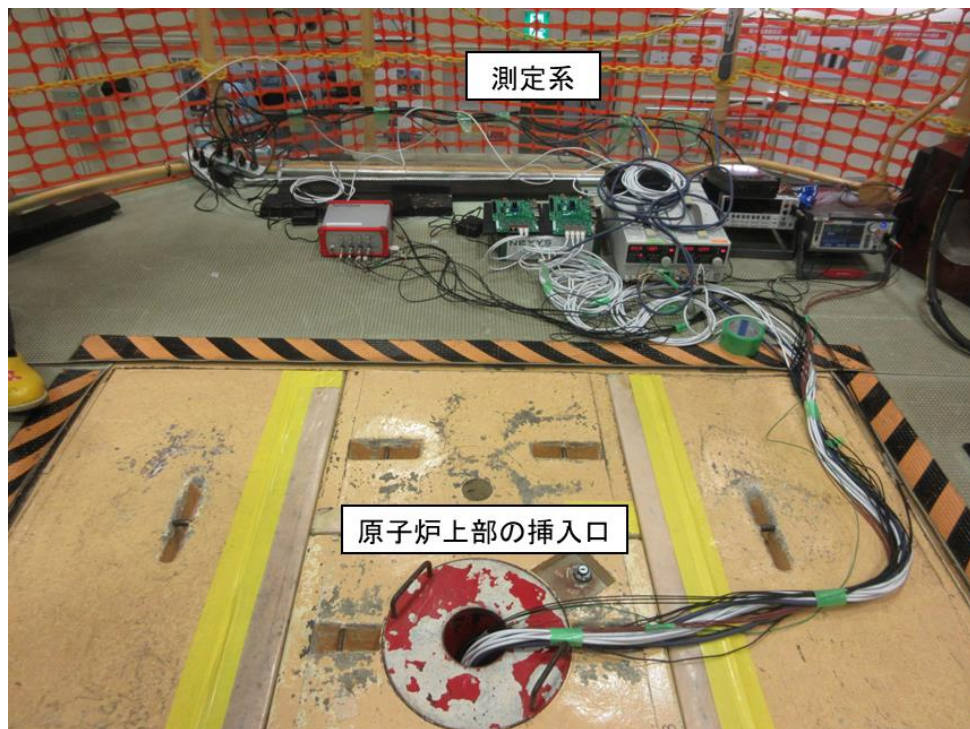


図 6.9 近畿大学原子炉での測定の様子

6.2.5 九州大学 γ 線照射施設での γ 線線量率応答性評価試験

九州大学加速器・ビーム応用科学センターの ^{60}Co γ 線照射施設にて、中性子計測システムに対して γ 線と中性子の同時照射を行い、 γ 線線量率応答性評価試験を行った。本試験では図 6.10 に示すダイヤモンド検出素子を 1 枚だけ実装した中性子計測システムを用いて、アナログ出力による応答関数の計測を実施した。この中性子計測システムは図 6.8 の中性子計測システムと同等の信号処理回路を使用しており、得られる測定結果は同様と言える。はじめに ^{252}Cf 中性子源からの中性子の応答関数を測定した。続いて ^{252}Cf 中性子源からの中性子に加えて ^{60}Co からの線量率 55 Gy/h の γ 線を照射して応答関数を測定し、 γ 線線量率応答性評価試験を行った。なお、照射位置の γ 線線量率を測定するために電離箱式線量計を使用した。

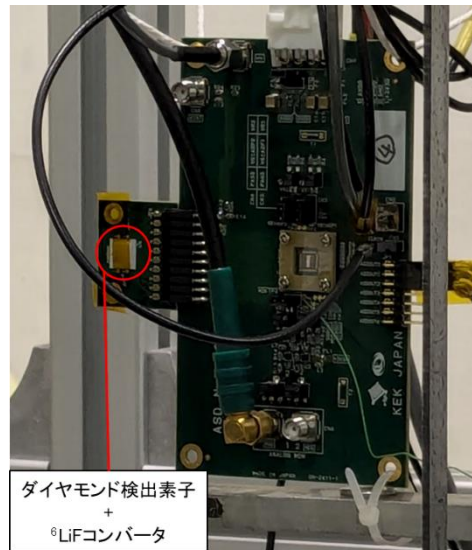


図 6.10 ダイヤモンド検出素子 1 枚のみの中性子計測システム

6.3 実験結果と考察

6.3.1 中性子感度評価

JAEA FRS にて中性子計測システムを黒鉛パイル空洞内に設置し、 $^{241}\text{Am-Be}$ 線源から入射する中性子に対して、アナログ出力 4 ch を用いて各チャンネルの応答関数を測定した。測定した中性子の応答関数を図 6.11 に示す。計測条件として検出素子への印加電圧は+10 V、計測時間は 50400 s であった。 ^6LiF コンバータは中性子を捕獲して 2.05 MeV の α 線と 2.73 MeV のトリトンを放出することから、高エネルギー側のエッジをトリトンの最大エネルギー 2.73 MeV としてエネルギー校正した。ch2 と ch3 の中性子の応答関数は図 3.5 で計測した際の形状と同等であることから、中性子を計測できていると判断した。しかし、ch1 と ch4 の応答関数は形状が異なっている。最大エネルギーが小さくなっている点と 0.5 MeV 以下の低エネルギー信号が増加している点が大きな違いである。また、図 6.12 のアナログ出力 4ch での中性子応答関数の 1 秒ごとの計数率変化を見ると ch2 と ch3 は計測時間内で計数率が一定であるが、ch1 と ch4 は計数率がスパイク上に増加している部分が見られた。ch1 と ch4 の応答関数の形状が異なっている理由として考えられるのが印加電圧の銀ペースト配線での電流のリークである。計測開始前には数 nA であった印加電圧の電流値が計測終了後には数十 μA となっていた。この電流のリークにより、ch1 と ch4 の印加電圧が設定した +10V を下回ったことで電荷収集効率が低下し応答関数の最大エネルギーが小さくなったと考えられる。また、リーク電流増加によってノイズが発生したことで低エネルギー側のノイズ信号が多く出たと考えられ、計数率のスパイク状の増加が発生したと考えられる。この電流のリークは DSA 基板の HV パッドとダイヤモンド検出素子の Al 電極の間に存在する DSA 基板のビアホールと銀ペースト配線間で発生していた。このリーク電流はデジタル出力の測定にも悪影響を与えたため、デジタル出力での中性子感度評価は実施できなかった。次

項の中性子追従性試験では、リーク電流が発生しない構造になるように検出素子を再実装した中性子計測システムを使用した。

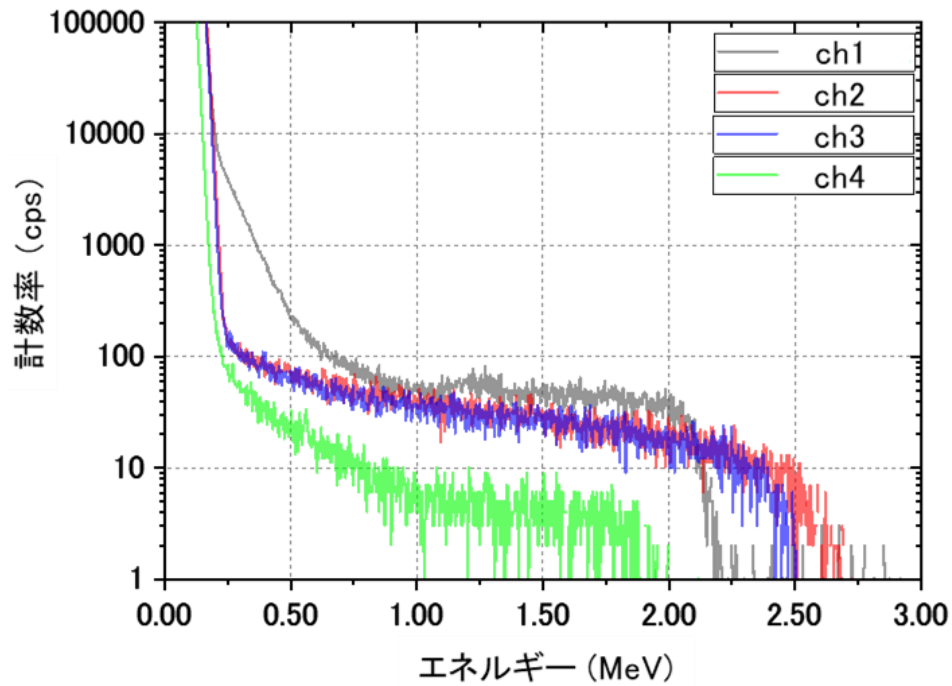


図 6.11 アナログ出力 4ch それぞれの中性子応答関数

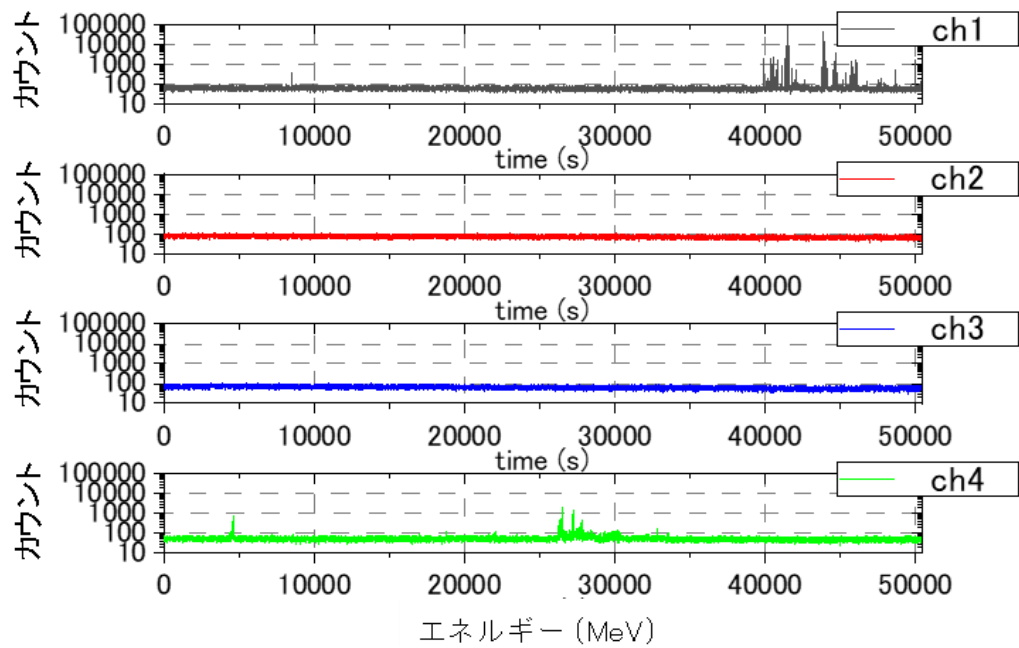


図 6.12 アナログ出力 4ch での中性子応答関数の 1 秒ごとの計数率変化

図 6.11 の ch2 の応答関数の中性子と γ 線を弁別するためのしきい値を 1 MeV として中性子感度を求めた。得られた計数率は 4.8×10^{-1} cps であった。中性子感度評価に必要な試験点における中性子束は、中性子感度が既知の BF₃ 比例計数管を用いて測定を行った。ダイヤモンド中性子計測システムの試験時と同様に、BF₃ 比例計数管を黒鉛パイル空洞内に設置し測定した結果、中性子束として、 $1.16 \times 10^3 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を得た。以上より、本試験に用いたダイヤモンド中性子計測システムの 1ch(検出面積 4.0 mm^2)あたりの中性子感度として、 $4.8 \times 10^{-1} \text{ cps} / 1.16 \times 10^3 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1} = 4.1 \times 10^{-4} \text{ cps/n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ が得られた。この値は 3.3.2 項で求めた中性子感度とオーダーで一致したことから、今回使用した中性子計測システムでの中性子計測が十分可能であることが示された。

6.3.2 中性子束変動への追従性評価

中性子計測システムを近畿大学原子炉内に設置し、制御棒を操作し中性子束を変化させてアナログ出力 2 ch を用いて各チャンネルの中性子応答関数を測定した。中性子計測システムの配線上の問題で、アナログ出力 4ch 中 2ch 分しか出力を得られなかった。制御棒操作として起動用の PuBe 中性子源がある状態で、安全棒 1 を全引き抜きした後、安全棒 2 も全引き抜きし、その後シム安全棒を 0%(全挿入)→20%→40%→60%→80%→90%→100%(全引き抜き)の順で引き抜き中性子束を変化させた。全引き抜き時は、ドル単位の反応度が-0.04 \$の極めて浅い未臨界であった。測定した中性子の応答関数を図 6.13 に示す。計測条件として検出素子への印加電圧は+10 V、計測時間は約 6000 s であった。⁶LiF コンバータは中性子を捕獲して 2.05 MeV の α 線と 2.73 MeV のトリトンを放出することから、高エネルギー側のエッジをトリトンの最大エネルギー2.73 MeV としてエネルギー校正した。中性子の応答関数の形状は 2ch の間で違いがみられるが、図 6.11 で計測した際の形状と概ね同等であることから、中性子を計測できていると判断した。この 2ch の応答関数の形状の違いは、ダイヤモンド検出素子の電荷収集効率の違いや、⁶LiF コンバータの貼り付け状態などが原因であると考えられる。

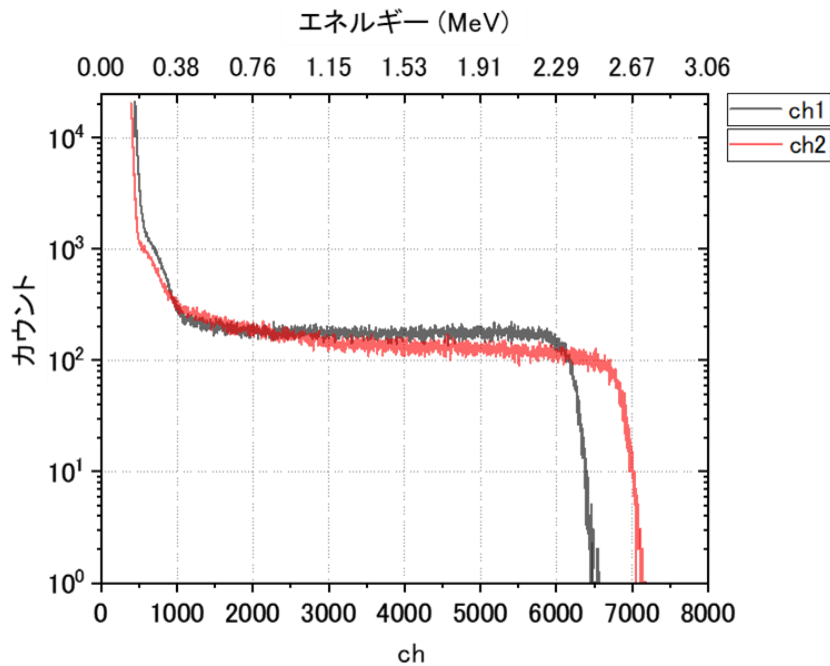


図 6.13 アナログ出力 2ch それぞれの中性子応答関数

2ch 分の応答関数に対して中性子と γ 線の弁別のためのしきい値のエネルギーを 0.76 MeV として、2ch 分を足し合わせた計数率の時間変化を図 6.14 に示す。図中の薄い青線で示されている部分が 2ch 分を足し合わせた計数率の時間変化の測定結果で、濃い青線が測定した計数率の時間変化にバイラテラルフィルタを適用した後の計数率の時間変化である。未処理の場合の計数率の時間変化は統計的ばらつきが大きい、バイラテラルフィルタを適用することで統計的ばらつきを平滑化できた。また、2ch 分合算した中性子感度は約 0.004 cps/n cm⁻² s⁻¹ であった。

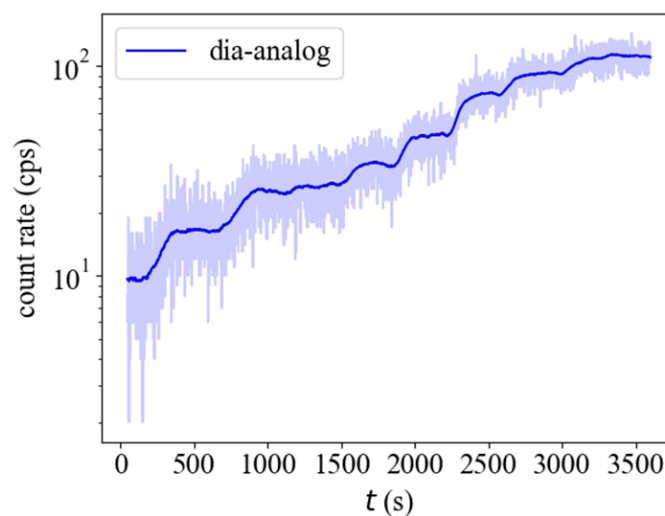


図 6.14 アナログ出力 2ch 分を足し合わせた計数率の時間変化

バイラテラルフィルタ適用前の計数率の時間変化では反応度の推定が不可能であったが、バイラテラルフィルタを適用した計数率の時間変化に対して最小二乗逆動特性法と改良単純フィードバック法を利用することで、図 6.15 に示すようにドル単位反応度の時間変化を概ね逆推定できる見込みがあることが分かった。図中の黒点線は制御棒価値から推定したドル単位反応度の参照値である。

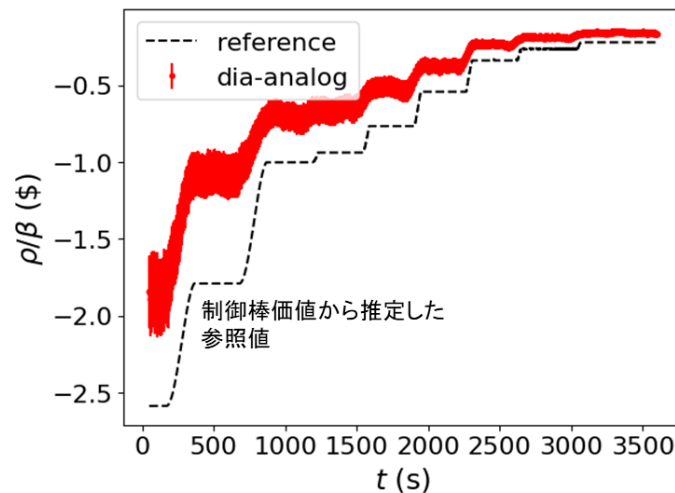


図 6.15 アナログ出力 2ch 分を足し合わせたドル単位反応度の推定結果

続いて、デジタル出力での測定を安定して実施可能であったダイヤモンド検出素子 8 素子(4ch × 8 素子 = 32ch)分の計数率の時間変化を測定した。制御棒操作として起動用の PuBe 中性子源がある状態で、安全棒 1 を全引き抜きした後、安全棒 2 も全引き抜きし、その後シム安全棒を 0%(全挿入)→20%→40%→60%→80%→100%(全引き抜き)の順で引き抜き中性子束を変化させた。しきい値は計数率がアナログ出力 2ch の場合のおおよそ 10 倍程度になるエネルギーに設定した。測定した計数率の時間変化を図 6.16 に示す。計測条件として検出素子への印加電圧は+10 V、計測時間は約 3600 s であった。図中の薄い青線で示されている部分が 8 素子(32ch)分を足し合わせた計数率の時間変化の測定結果で、濃い青線が測定した計数率の時間変化にバイラテラルフィルタを適用した後の計数率の時間変化である。しかし、フィルタ適用前の計数率の時間変化では、スパイク状の計数率の増加が生じている。このスパイク状の計数率の増加は信号処理回路に起因しており、今後は発生しないように信号処理回路の調整を進めている。また、バイラテラルフィルタを適用することでこのようなスパイク状の計数率の増加についても除去可能であった。32ch 分合算しての計数率は約 0.03 cps/n cm² s⁻¹ であった。

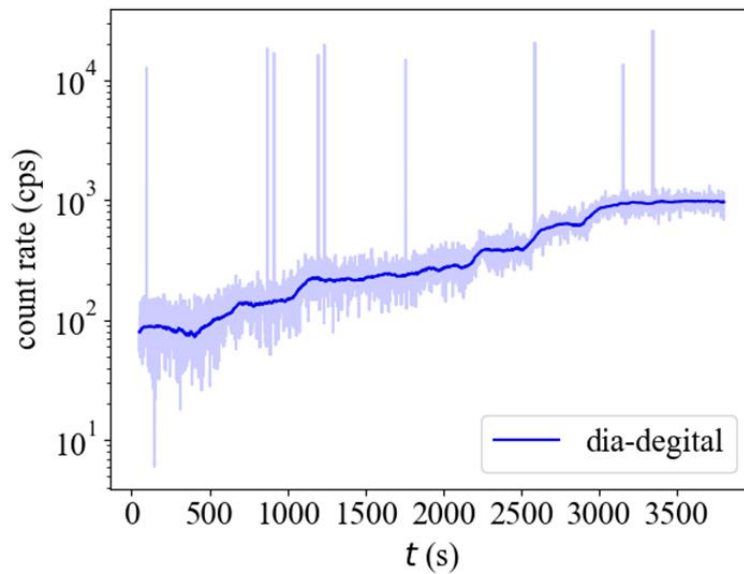


図 6.16 デジタル出力 32ch 分を足し合わせた計数率の時間変化

バイラテラルフィルタ適用前の計数率の時間変化では反応度の推定が不可能であったが、バイラテラルフィルタを適用した計数率の時間変化に対して最小二乗逆動特性法と改良単純フィードバック法を利用することで、図 6.17 に示すようにデジタル出力 32ch 分でもドル単位反応度の時間変化を概ね逆推定できる見込みがあることが分かった。図中の黒点線は制御棒価値から推定したドル単位反応度の参照値である。

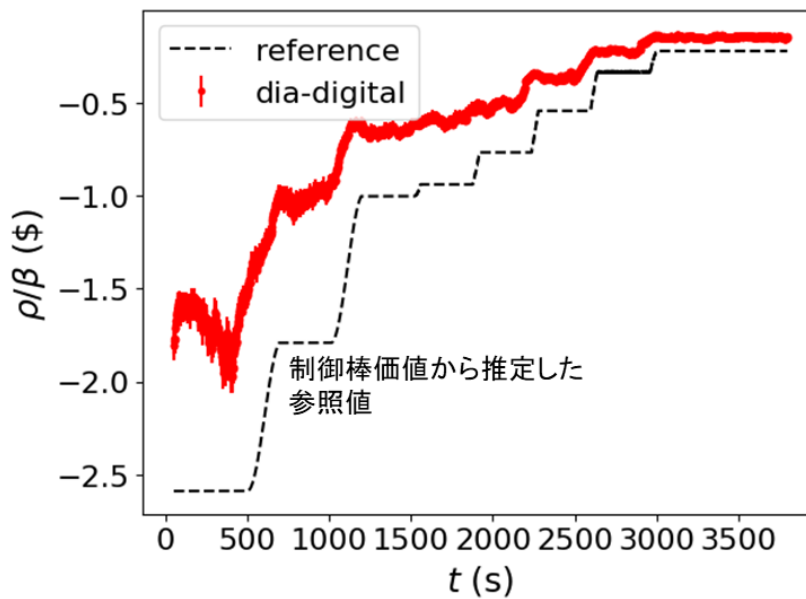


図 6.17 デジタル出力 32ch 分を足し合わせたドル単位反応度の推定結果

図 6.15 に示すアナログ出力 2ch 分と図 6.17 に示すデジタル出力 32ch 分のドル単位反応度の推定結果を比較すると、デジタル出力 32 ch 分の結果では統計的ばらつきが相対的に大きいことが確認された。一般に、計数率が高いほど統計的ばらつきは低減すると考えられるが、今回の測定結果ではその傾向は認められなかった。デジタル出力における統計的ばらつきの増加は、計数率の時間変化においてスパイク状に発生したノイズを含む、信号処理回路由来のノイズに起因している可能性が考えられる。しかしながら、その発生機構については現時点では明確に特定できていない。

以上の結果から、デジタル出力を用いた中性子計測結果に基づいても、ドル単位反応度の時間変化を概ね逆推定できる見通しが得られた。よって、燃料デブリ取り出し作業における安全管理用途へのダイヤモンド中性子計測システムの適用に対する有効性を明らかにした。一方で、今後より高精度な反応度推定を実現するためには、信号処理回路由来のノイズに起因する統計的ばらつきを低減することが重要な課題である。

6.3.3 γ 線線量率応答性評価

はじめに、ダイヤモンド検出素子を 1 枚のみ実装した中性子計測システムを用いて、 ^{252}Cf 中性子源からの中性子の応答関数を測定した。図 6.18 に ^{252}Cf 中性子源からの中性子の応答関数を示す。計測条件として検出素子への印加電圧は+10 V、計測時間は 6000 s であった。 ^6LiF コンバータは中性子を捕獲して 2.05 MeV の α 線と 2.73 MeV のトリトンを放出することから、高エネルギー側のエッジをトリトンの最大エネルギー 2.73 MeV としてエネルギー校正した。応答関数の形状は、図 6.11 で計測した際の形状と同等であることから、中性子を計測できていると判断した。

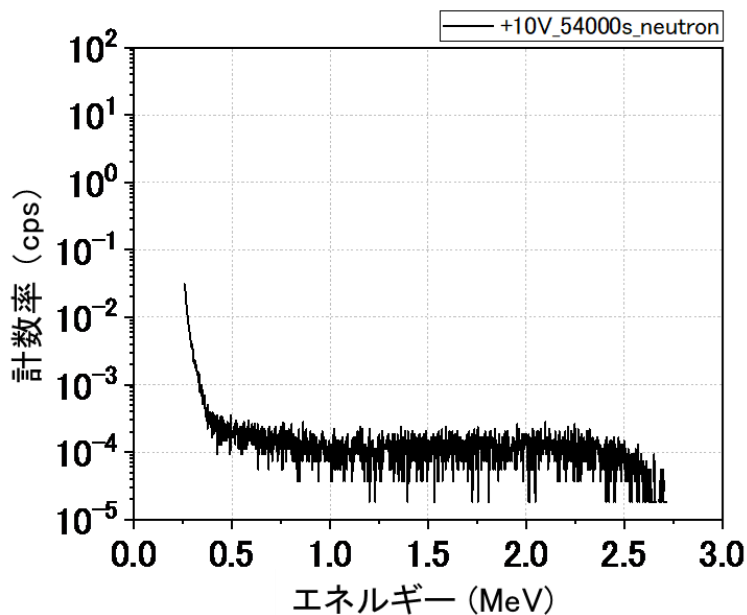


図 6.18 九州大学での ^{252}Cf 中性子源からの中性子の応答関数

続いて ^{252}Cf 中性子源からの中性子に加えて ^{60}Co からの線量率 55 Gy/h の γ 線を照射し応答関数を測定した。図 6.19 に ^{252}Cf 中性子源からの中性子と ^{60}Co からの線量率 55 Gy/h の γ 線の応答関数を示す。計測条件として検出素子への印加電圧は $+10\text{ V}$ 、計測時間は 52200 s であった。中性子のみの計測時と同様にエネルギー校正を行った。図 6.18 と比較すると 0 MeV から 1 MeV までの計数率が増加しているが、 γ 線を照射したこと以外の条件は同一であることから、 γ 線に起因するノイズ信号であると考えられる。 1 MeV 以上では計数率の増加はみられないことから 1 MeV にしきい値を設けることで、 55 Gy/h の線量率において 1 MeV 以上のエネルギーでは中性子と γ 線の弁別が可能であると言える。

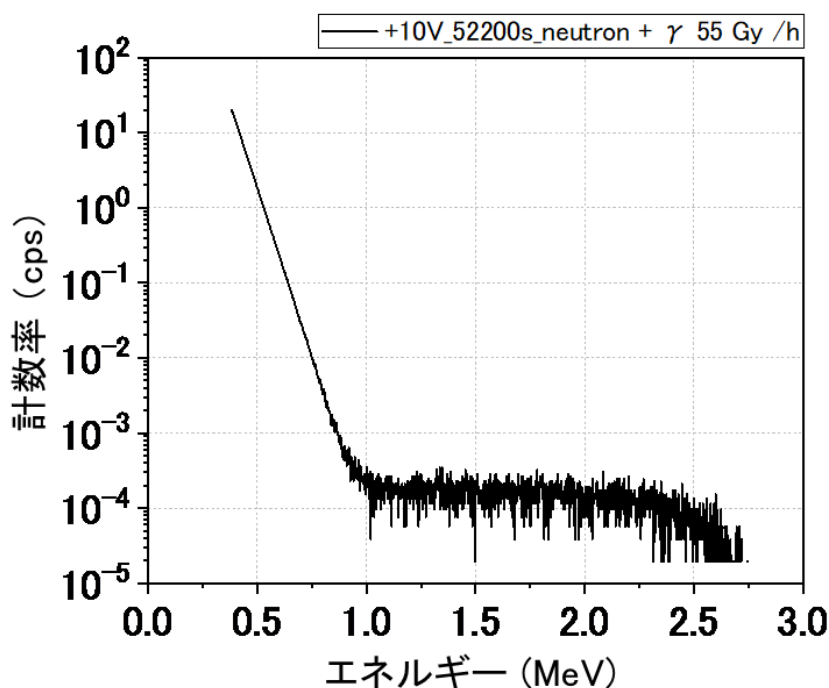


図 6.19 九州大学での ^{252}Cf 中性子 + ^{60}Co γ 線 55 Gy/h の応答関数

6.4 結論

本章では、約 100 枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証を、中性子感度評価、中性子束変動への追従性試験、ならびに 55 Gy/h の比較的低い γ 線線量率における応答性評価により実施した。

まず、検出素子用ダイヤモンドの大面积合成($24 \times 24\text{ mm}^2$)の合成条件探索を行い、ダイヤモンド中性子計測システム構築に必要な多数の検出素子を確保するための技術的基盤を整えた。また、信号処理回路基板上(DSA 基板)にダイヤモンド検出素子および ^6LiF 中性子-荷電粒子コンバータを直接実装する技術を確認した。

続いて、DSA 基板を用いた中性子計測システムによる動作実証により、以下の成果を得た。日本原子力研究開発機構での中性子感度評価試験では、ダイヤモンド検出素子 1ch(検出

面積 4.0 mm^2)あたりの中性子感度として $4.1 \times 10^{-4} \text{ cps/n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を取得した。また、近畿大学原子炉における中性子束変動への追従試験では、制御棒操作による反応度変化に伴う中性子束変動に対し、計測された計数率が追従することを確認した。さらに、測定データを基に炉のドル単位反応度を逆推定可能であることが示され、燃料デブリ取り出し作業における安全管理用途へのダイヤモンド中性子計測システムの適用に対する有効性を明らかにした。加えて、九州大学の γ 線照射施設において γ 線線量率応答性評価試験を実施した結果、 55 Gy/h 程度の γ 線線量率において 1 MeV のしきい値で中性子信号が取得可能であり、一定の γ 線線量率対応性を有することが確認された。

以上から、約 100 枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証により、燃料デブリ取り出し作業の安全管理に必要なダイヤモンド中性子計測システムの実現に向けた見通しが得られた。

第 6 章の引用文献

- [1] H. Sumiya, N. Toda, and S. Satoh: *New Diamond Front. Carbon Technol.*, 10 (2000) 233. <https://www.webofscience.com/wos/woscc/full-record/WOS:000165889400002>
- [2] A. Chayahara, Y. Mokuno, N. Tsubouchi, and H. Yamada: *Synthesiology English edition*, 3 (2010) 259. <https://doi.org/10.5571/syntheng.3.259>
- [3] T. N. T. Thi, J. Morse, D. Caliste, B. Fernandez, D. Eon, J. Härtwig, C. Barbay, C. Mer-Calfati, N. Tranchant, J. C. Arnault, T. A. Lafford, and J. Baruchela: *J. Appl. Crystallogr.*, 50 (2017) 561. <https://doi.org/10.1107/S1600576717003831>
- [4] M. Kamo, Y. Sato, S. Matsumoto, and N. Setaka: *J. Cryst. Growth*, 62 (1983) 642. [https://doi.org/10.1016/0022-0248\(83\)90411-6](https://doi.org/10.1016/0022-0248(83)90411-6)
- [5] Y. Mokuno, A. Chayahara, and H. Yamada: *Diamond Relat. Mater.*, 17 (2008) 415. <https://doi.org/10.1016/j.diamond.2007.12.058>
- [6] G. Wakabayashi: *Ann. Nucl. Energy*, 210 (2025) 110852. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2024.110852>
- [7] C. Tomasi, and R. Manduchi: *Sixth International Conference on Computer Vision*, (1998) 839. <https://doi.org/10.1109/ICCV.1998.710815>
- [8] J. E. Hoogenboom, and A. R. V. D. Sluijs: *Ann. Nucl. Energy*, 15 (1988) 553. [https://doi.org/10.1016/0306-4549\(88\)90059-X](https://doi.org/10.1016/0306-4549(88)90059-X)
- [9] S. Tamura: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 40 (2003) 153. <https://doi.org/10.1080/18811248.2003.9715345>
- [10] K. Moribe, T. Endo, A. Yamamoto, and J. H. Kaneko: *International Conference on Physics of Reactors (PHYSOR2024)*, (2024) 97. <https://www.ans.org/pubs/proceedings/article-55482/> (accessed December 2025)

第7章 総括

本論文では、福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業を念頭においた高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムの実用性向上に関する研究を行った。ダイヤモンドを用いて高 γ 線線量率に対応可能な中性子検出器を実現した報告はこれまではほとんどなく、燃料デブリからの微弱な中性子を最大1 kGy/hの高 γ 線線量率下で測定可能で、かつ現実的な測定時間を実現する中性子感度を持つ軽量なダイヤモンド中性子計測システムは全く実用レベルに達していないのが現状であった。

そこで第3章にて、ダイヤモンド中性子検出器の中性子感度評価や高 γ 線線量率への対応性評価などにより、6 mm角程度のサイズのダイヤモンド検出素子を1024枚用いることで、 $2 \text{ cps/n cm}^2 \text{ s}^{-1}$ の中性子検出感度を持ち、最大1 kGy/hの高 γ 線線量率下で中性子を測定可能で、総重量が20 kg未満となる設計となるダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプを実現可能であることを明らかにした。一方で、今後のダイヤモンド中性子計測システムプロトタイプの実現に向けた主要な課題として、(1)1 kGy/hの高 γ 線線量率下で動作する検出器用ダイヤモンドの再現性ある作製が困難であること、および、(2)約1000枚規模のダイヤモンド検出素子を集積した中性子計測システムの実装・信号処理・安定動作に関する技術的課題が存在することを明らかにした。

(1)の課題に対応するために、検出器用ダイヤモンドの γ 線線量率対応性を向上させることを可能とするための要素技術開発を行った。第4章では検出器用ダイヤモンドに対するイオンビームエッチングおよびp+ダイヤモンド層の導入という加工により、ダイヤモンドの結晶内捕獲準位を低減し、 γ 線照射に起因するノイズ信号の低減を通じて γ 線線量率対応性の向上に寄与することを明らかにした。第5章では、ダイヤモンド合成時に酸素を添加することで、捕獲準位が少なく、成長表面が平坦なダイヤモンドを合成可能であることを明らかにした。一方で、ダイヤモンド結晶中への酸素の取り込みに起因して $\mu\tau$ 積が低下することが示唆され、 γ 線線量率対応性の低下を招いた。合成時の酸素添加による γ 線線量率対応性の向上は見込めなかったが、エネルギー分解能に優れた検出器用ダイヤモンドを合成することは可能であることを明らかにした。

(2)の課題に対応するために、第6章で、約100枚を最終目標としたダイヤモンド検出器を用いた中性子計測システムの動作実証を行った。動作実証として、中性子感度評価、中性子束への追従性評価、55 Gy/hの低 γ 線線量率応答性評価を実施した結果、燃料デブリ取り出し作業の安全管理に必要なダイヤモンド中性子計測システムの実現に向けた見通しが得られた。

以上より、本論文にて、福島第一原子力発電所廃炉事業の燃料デブリ取り出し作業を念頭に置いた高 γ 線線量率対応ダイヤモンド中性子計測システムが実現可能であることを明らかにするとともに、その実用性向上のための技術的基盤を前進させた。

本研究に関連して発表した論文・講演

1. 論文(学位論文関係)

- (1) **K. Oda**, J.H. Kaneko, A. Chayahara, H. Watanabe, H. Umezawa, and Y. Kobayakawa, “Evaluation of the effect of oxygen addition on charge carrier transport properties in single-crystal diamond growth”, *Diamond and Related Materials*, Volume 148, 111441 (2024)
- (2) **Kengo Oda**, Junichi H. Kaneko, Yusuke Kobayakawa, Kenichi Watanabe, Youichi Fujita, Eitaro Hamada, Tetsuichi Kishishita, Masaya Miyahara, Masayoshi Shoji, Hironori Uchinoyae, Sho Nishino, Yoshihiko Tanimura, Akiyoshi Chayahara, Takehiro Shimaoka, Hideaki Yamada, Tomohiro Endo, Yuto Akashi, and Manobu M. Tanaka, “Reduction of γ -ray-induced Noise of Diamond Detector Elements and Estimation of Neutron Detection Efficiency for the Development of a Criticality Proximity Monitoring System for the Decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant”, *Sensors and Materials*, Volume 37, Number 5(2), pp. 1977-1991 (2025)

2. 論文(その他)

- (1) **Kengo Oda**, Junichi H. Kaneko, Akiyoshi Chayahara, Takehiro Shimaoka, Hideaki Yamada, Hitoshi Umezawa, and Naohisa Hoshikawa, “Alpha Particle Measurement of Radioactive Substances in Nitric Acid Using a Single-crystal CVD Diamond Radiation Detector”, *Sensors and Materials*, Volume 37, Number 5(2), pp. 1949-1957 (2025)
- (2) **Kengo Oda**, Junichi H. Kaneko, Daisuke Matsunaga, Takanori Hanada, Tsukasa Mizukoshi, and Shintaro Hirano, “Energy Spectroscopy for Low-energy Photons Using Diamond Detector Combined with Micro-CMOS Preamplifier”, *Sensors and Materials*, Volume 36, Number 1(2), pp. 251-260 (2024)
- (3) Takehiro Shimaoka, Junichi H. Kaneko, Yasunobu Arikawa, Mitsutaka Isobe, Masakatsu Tsubota, **Kengo Oda**, Takahiro Nagai, Sadaoki Kojima, Yuki Abe, Shohei Sakata, Shinsuke Fujioka, Yuki Iwasa, Kohei Yamanoi, Mitsuo Nakai, Hiroyuki Shiraga, Hiroshi Azechi, Akiyoshi Chayahara, Hitoshi Umezawa, and Shinichi Shikata, “Measurement of Neutrons Produced by Inertial Fusion with a Diamond Radiation Detector”, *Sensors and Materials*, Volume 36, Number 1(2), pp. 217-223 (2024)
- (4) Ryoga Hirota, Taiyo Moribe, Tomohiro Endo, Akio Yamamoto, Kenichi Watanabe, Genichiro Wakabayash, Hiroshi Shiga, Atsushi Sakon, **Kengo Oda**, and Junichi H. Kaneko, “Absolute measurement of subcriticality in dollar units based on lag-1 autocovariance of zero-power reactor noise”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, (2025)

3. 講演(学位論文関係)

- (1) **織田堅吾**、金子純一、茶谷原昭義、渡邊幸志、梅沢仁、小早川友佑：「ダイヤモンド単結晶合成における酸素添加の電荷キャリア輸送特性に対する影響評価」
ニューダイヤモンドフォーラム、第36回ダイヤモンドシンポジウム (2022年) 104 口頭発表 神奈川県横浜市 2022年11月16日
- (2) **Kengo Oda**, Junichi Kaneko, Akiyoshi Chayahara, Hideyuki Watanabe, Hitoshi Umezawa, “Evaluation of the effect of oxygen addition on charge carrier transport properties in single crystal diamond growth”, 33rd International Conference on Diamond and Carbon Materials (2023) P9.17
ポスター発表 スペイン マヨルカ 2023年9月12日

謝辞

本研究は多くの方々より多大な御助力を賜りました。ここに感謝の意を表します。

北海道大学大学院工学研究院応用量子科学部門の金子純一准教授には本論文の主査として多大なるご指導ご鞭撻を頂きました。また、同部門、千葉豪教授、加美山隆教授には本論文の副査として多大なるご指導を頂きました。

産業技術総合研究所関西センターの嶋岡毅紘博士、山田英明博士、茶谷原昭義博士、にはダイヤモンドのリフトオフプロセスをはじめ本研究の推進に多大な御助力を頂きました。

産業技術総合研究所つくばセンターの渡邊幸志博士、梅沢仁博士にはカソードルミネッセンス測定をはじめ本研究の推進に多大な御助力を頂きました。

高エネルギー加速器研究機構素粒子原子核研究所エレクトロニクスシステムグループの田中真伸教授、岸下徹一准教授、宮原正也准教授、庄子正剛様、濱田英太郎様、藤田陽一様、内之八重広宜様、には信号処理回路の開発をはじめ本研究の推進に多大な御助力を頂きました。

名古屋大学大学院工学研究科総合エネルギー工学専攻の遠藤知弘准教授、廣田諒我様、森部太陽様、および近畿大学原子力研究所の若林源一郎教授、志賀大史助教、左近敦士博士、には近畿大学原子炉実験において多大なる御助力を頂きました。

九州大学大学院工学研究院エネルギー量子工学部門、渡辺賢一教授、には γ 線照射試験において多大なる御助力を頂きました。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門の西野翔様、谷村嘉彦博士、には中性子照射試験で多大なる御助力を頂きました。

北海道大学大学院工学院量子理工学専攻耐環境半導体デバイス工学研究室スタッフの山石直也様、樋口幹雄様、関裕平様、金子佳子様、学生の山口卓宏さん、川又俊介さん、明石悠宇斗さん、奥野朝陽さん、森皓平さん、上原さくらさん、松浦諒馬さん、出縄修造さん、臼田奏太さん、吉田りかこさんにはダイヤモンド合成、検出器作製・評価をはじめとする日々の研究活動において多大な御助力を頂きました。また、同研究室の高堂優子秘書、高桑皓子秘書には研究業務に関わる多くの事務手続において多大な御助力を頂きました。その他多くの研究室OBの皆様にもお世話になりました。皆様のおかげで研究を継続していくことができました。

最後に博士後期課程まで進学させてくれた両親に感謝と尊敬の意を表します。

織田堅吾