

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 20 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02670

研究課題名（和文）原子力プラント内で利用可能なポータブル高分解能ガンマ線スペクトロメータの実現

研究課題名（英文）Development of a portable high-resolution gamma-ray spectrometer for nuclear facilities

研究代表者

前田 茂貴（Maeda, Shigetaka）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・高速炉・新型炉研究開発部門 大洗研究所 高速炉サイクル研究開発センター・主任研究員

研究者番号：60421773

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,700,000円

研究成果の概要（和文）：アクセシビリティが十分とは言えない原子力プラント内でも容易に利用可能なポータブルかつ高エネルギー分解能のガンマ線スペクトロメータとして、高速実験炉「常陽」の燃料破損検出設備に用いているHP-Ge検出器の置き換えを念頭に、本研究で得られた製造条件をもとに製作する試作検出器による実証試験を実施し、核分裂片（Fission Product：FP）ガスの核種弁別に必要なエネルギー分解能の達成、ポラリゼーションを防いだ長期安定性を確認した。ポータブルかつ高エネルギー分解能のガンマ線スペクトロメータを、TlBr半導体検出器を用いて実現できる可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

重金属ハロゲン化物の代表的な1つである臭化タリウム半導体について、学術的な探求（不純物や欠陥に基づく検出器特性の把握、これらの相関関係を明らかにする）の先鞭をつけた。また、HPGe検出器の代替を目指したガンマ線スペクトロメータとして臭化タリウム検出器の実現可能性を大型結晶の動作や特性評価により十分示した。高価格化が止まらないHPGe検出器がオーバースペックな測定対象について、日本の技術力により、比較的low価格で大型のデュアービンや液体窒素による冷却が必要ななど、持ち運び、管理が楽な検出器開発期待できる。

研究成果の概要（英文）：As a portable and high-energy-resolution gamma-ray spectrometer that can be easily used even in a nuclear power plant where accessibility is not sufficient, it replaces the HP-Ge detector used in the fuel failure detection equipment of the experimental fast reactor Joyo. With this in mind, we conducted a demonstration test with a prototype detector manufactured based on the manufacturing conditions obtained in this research, and achieved the energy resolution necessary for nuclide discrimination of fission product (FP) gas and polarization. long-term stability was confirmed. We showed the possibility of realizing a portable and high-energy-resolution gamma-ray spectrometer using a TlBr semiconductor detector.

研究分野：放射線検出器

キーワード：TlBr半導体検出器 ガンマ線 スペクトロメータ エネルギー分解能

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ガンマ線スペクトロメータは様々な原子力プラントでも利用されており、代表的なものとして高純度 Ge (High Purity Ge: HPGe) 半導体検出器が用いられている。しかし、HPGe 半導体検出器は、非常に高いエネルギー分解能を示すが、そのバンドギャップは狭く室温では熱起因ノイズにより動作不能であるため、大型のデュアービンや液体窒素による冷却が必要など、持ち運び、管理に労力がかかる。一方、NaI シンチレータ検出器は室温動作可能であり可搬性も高いが、シンチレーション光子計測の統計精度が高くないことに起因し、そのエネルギー分解能は Cs-137 の 662 keV ガンマ線に対し 7%程度であり、0.2%程度の分解能を示す HPGe 検出器と比較すると非常に悪く、高精度の計測を行う目的には性能不足と言える。また、近年、CdTe や CdZnTe (CZT) 化合物半導体検出器の開発が進み、一部市販されている。しかし、実用的な検出効率・感度を得るためには大体積結晶を用いた検出器が必要であるが、現状では大体積の単結晶を育成することは困難で、結晶サイズが大きくなればなるほど歩留まりが悪くなり、結果として価格が指数関数的に跳ね上がるという問題があり、広く普及するには至っていない。

2. 研究の目的

原子力プラント内、特に可搬性が必要なアプリケーションでは、エネルギー分解能は、現状 TlBr 検出器が達成している 1%@662keV 程度でも十分なものもあり、むしろ検出感度あるいは探索核種に対する検出下限数量が求められている。このため、本研究の目的は、アクセシビリティが十分とは言えない原子力プラント内でも容易に利用可能なポータブルかつ高エネルギー分解能のガンマ線スペクトロメータを、TlBr 半導体検出器を用いて実現する。

3. 研究の方法

- (1) 検出器仕様の策定

実際の原子力プラント、特に日本原子力研究開発機構・大洗研究所内に潜在する TlBr 検出器の適用先を検討し、アプリケーションに応じた検出器に対する要求仕様をまとめる。
- (2) 結晶性評価

TlBr 結晶および検出器の大型化・高品質化が必須項目となる。このために、結晶純化・育成について中性子回折法の一つである中性子ブラッグディフракチオン法及び走査電子顕微鏡 (SEM) による後方散乱電子回折 (EBSD) による結晶評価と検出器性能の相関を確認する。
- (3) 大型検出器の製作

目標のサイズとして、5 mm 径 x 20 mm 程度のサイズを実現することを目指す。
- (4) 実地模擬試験

製作した検出器を用いて、具体的なアプリケーションを想定した模擬試験により行う。

4. 研究成果

- (1) 検出器仕様の策定

実際の原子力プラントへの適用として高速実験炉「常陽」の燃料破損検出設備であるオンラインガンマ線モニタを 1 つの候補とする。図 1 にオンラインガンマ線モニタの概要を示す。従来、HP-Ge 検出器を用いて、Ar カバーガス中の希ガス FP (放射性 Xe, Kr) を測定することで、燃料破損やクリーブ破断試験の破断検知を行っている。しかし、液体窒素での冷却が必要であり、また、検出器が設置されている雰囲気は約 40~50 のため供給頻度が多く、簡便な冷却で作動する検出器が望まれている。図 2 にオンラインガンマ線モニタでの線スペクトルを示す。要求されるエネルギー分解能としては、最も近接したピーク (¹³⁵Xe : 249.8keV、¹³⁸Xe : 258.5keV) を分離する必要がある。また、「常陽」の定格運転日数は 60 日であり、長期安定性が必須である。HP-Ge 検出器の代替を目的として、検出器仕様を策定した。表 1 に検出器への要求仕様を示す。

表 1 検出器への要求仕様

要求仕様
● Xe-138(250keV)と Xe-135(258keV)、Xe-135m(527keV)と消滅ガンマ (511keV) の分離 (エネルギー分解能)
● 環境温度 : 25 ~ 45 (原子炉出力依存)
● 1 運転サイクル (60 日) の安定動作

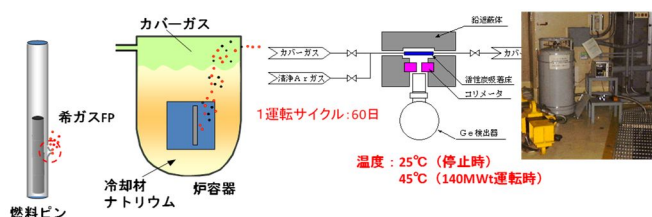
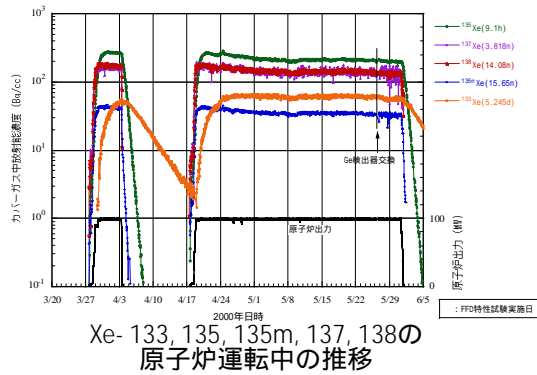
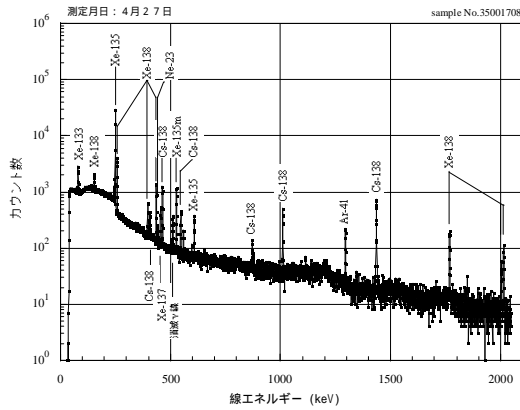


図 1 オンラインガンマ線モニタの概要



カバーガスのγ線スペクトル測定例

図2 オンラインガンマ線モニタでの線スペクトルとXe核種の運転中推移

(2) 結晶性評価

純化（帯域精製）条件は既往研究により200回以上とし、結晶育成（帯溶融）条件をパラメータとした。結晶性の評価、検出器特性としての評価は、1 mm/hにおける長尺結晶の部位ごとの評価結晶育成条件（2.5、50 mm/h）の違いの評価を実施した。

中性子ブラッグディップイメージングによる結晶性評価を実施した。これにより、結晶内のひずみの可視化に成功し、結晶育成時、上部に粒界が形成される傾向が確認できた。しかし、中性子ブラッグディップイメージングはバルス型中性子源が必要でマシンタイムの確保が難しいため、比較的簡単に結晶性が確認できる方法として、走査電子顕微鏡（SEM）による後方散乱電子回折（EBSD）による結晶方位解析を試み、中性子ブラッグディップイメージングと整合する結果を得ることを確認した。

長尺結晶の部位ごとの観察を実施した。育成時に下側に相当する部分から結晶が成長していく、上部は細かい結晶が集積することが確認された。この結晶方位の違い（結晶性）と検出器特性の関連性を明らかにするため、1つの軸位置における切り出したウェハに金電極を形成し、検出器を製作した。この検出器の中心位置における μ （移動度-寿命積）値の位置分布を測定したが、粒界を跨いでも検出器特性としては、大きな変化はないことが確認された。

結晶育成速度による影響を結晶方位分布により確認した。図3に育成速度2.5 mm/hと50 mm/hのEBSDによる結晶方位分布の評価を行った。育成速度2.5 mm/hもいくつかの結晶粒に分裂しているが、50 mm/hでは、細かな結晶粒が多数存在した。

育成速度2.5 mm/hと50 mm/hの長尺結晶の部位ごとにウェハを検出器化し、 μ 積を測定した（図4）。育成速度が遅い方が高い μ 積、すなわち検出器として優れていることが確認できた。

以上より、結晶性と結晶素子性能の相関に関する基礎データを取得した。

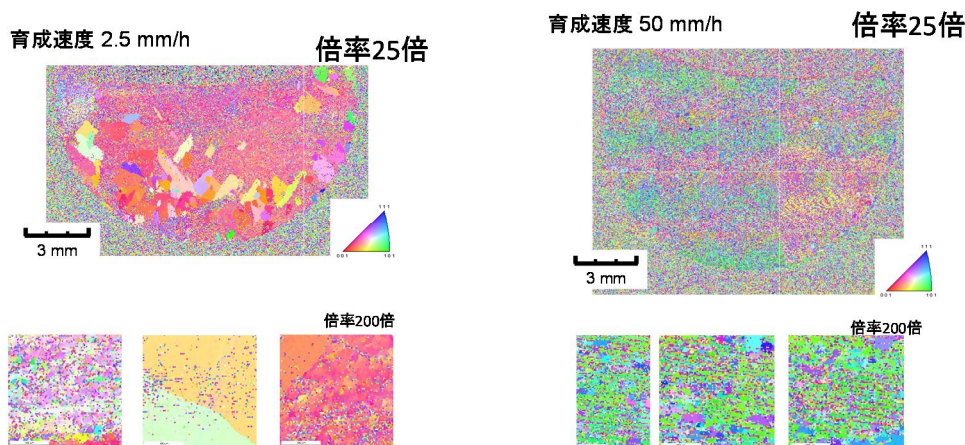
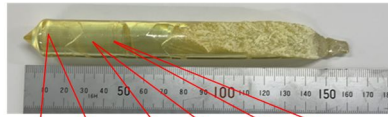


図3 結晶育成速度による影響（結晶方位分布）



A,Bは同一条件における識別記号

育成速度	μ 積 ($\times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{V}$)					
	A-3	B-3	A-12	B-12	A-15	B-15
2.5mm/h	1.89	1.95	1.58	1.63	2.48	1.55
50mm/h	1.03	—	—	—	1.10	未

—は測定不能

図4 部位ごとの μ 積

(3) 大型検出器の製作

HPGe 検出器の製品ラインナップに並ぶレベル(いわゆる相対効率(3インチ NaI シンチレータに対する比率)で最低でも10%以上)の実現として、TlBrで25mm径 \times 20mm以上の大型化を目指している。これまでの経験から帯域精製200回(50mm/h)縦型ブリッジマン炉により成長速度5mm/hにて大型結晶を作成した。これから $20 \times 20 \times 20\text{mm}$ の世界的にも最大級のTlBr検出器を作成した。図5に結晶及び完成した16pixel検出器を示す。本検出器によるBa-133のスペクトルを図6に示す。エネルギー分解能は、現状では5%@356keV程度であるが、大型検出器が安定して動作することを確認した。また、検出器の陰極側からAm-241線源からの60keVガンマ線を照射し、信号波高分布を取得した。60keVのガンマ線のTlBr内での平均自由行程は、0.3mm程度であり、ほぼすべてが陰極の極近傍で相互作用し、電子が検出器厚さ20mmに渡り移動し、信号を形成することを確認した。本検出器の μ 積を測定した結果を図7に示す。良好な値を得ており、大型の均一な結晶を作成できたことを確認した。

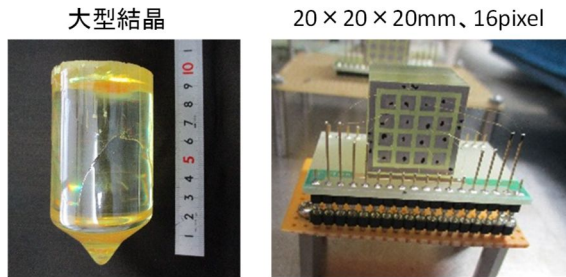


図5 大型結晶と20mm角TlBr検出器

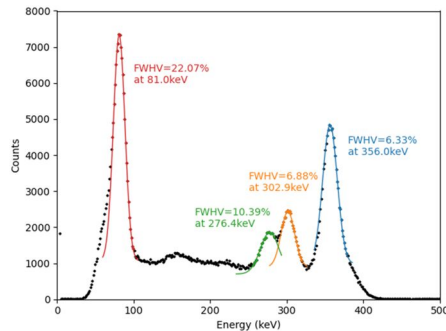


図6 20mm角TlBr検出器のエネルギースペクトル

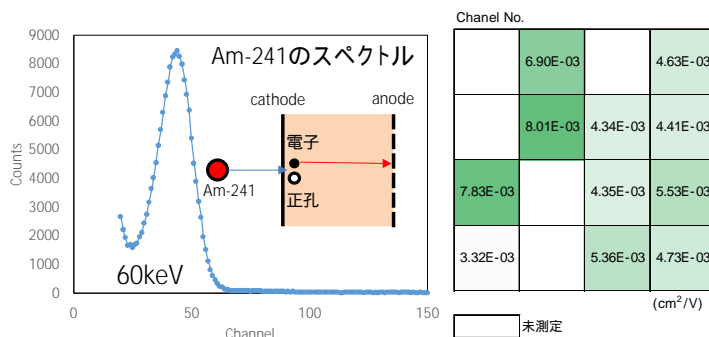


図7 μ 積測定結果

(4) 模擬試験

エネルギー分解能評価

帯溶融 5mm/h の結晶から作成した検出器について、高速実験炉「常陽」の燃料破損検出設備を対象に適用性試験のための実地模擬試験としてエネルギー分解能を評価した。Ba-133 のエネルギースペクトルを図 8 に示す。HP-Ge には現状は及ばないが、常温下においても数 keV@300keV の近接したピークを弁別できる可能性があり、Ge 検出器の代替となりえる可能性を確認した。

図 9 にエネルギー分解能の温度依存性を示す。30 未満の室温においては温度に依存はなく、30 以上において急速にエネルギー分解能が悪くなった。一方、室温未満においてエネルギー分解能は向上しなかった。一般的には冷却により熱雑音が低下して分解能は向上するはずだが、計測回路系のノイズ等の要因が考えられる。

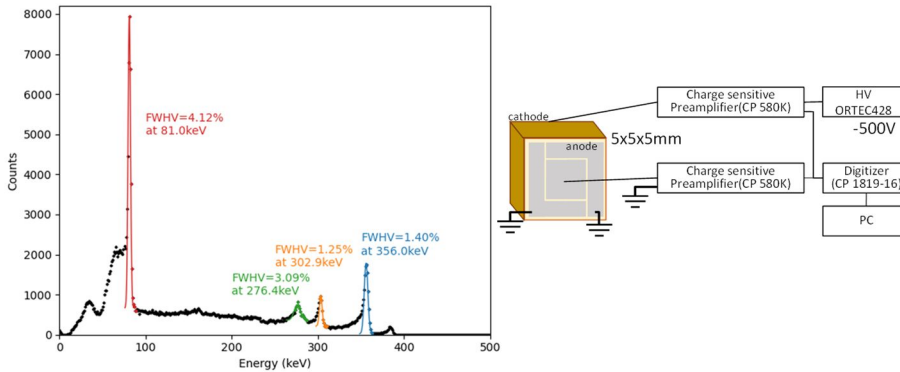


図 8 エネルギー分解能の評価（室温）

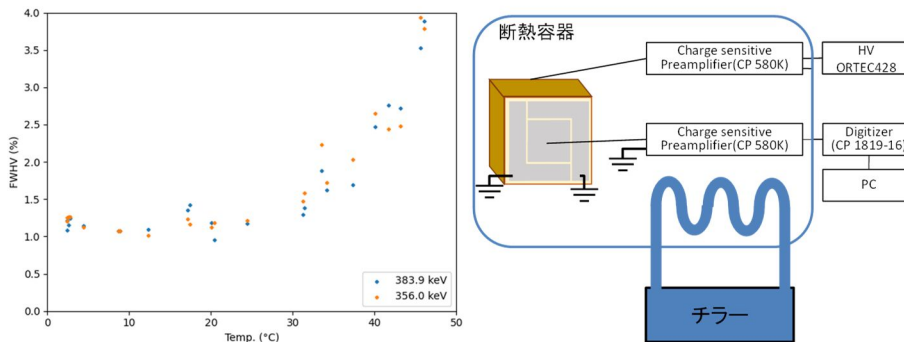


図 9 エネルギー分解能の温度依存性

長期安定性

検出器及び電極構造については、既存 Pixel 型検出器における長期安定性を確認し、OLGM に求められる 60 日以上安定動作ができることを確認した。図 10 に結果を示す。662 keV の全吸収ピークチャンネルは徐々に下がっていき、約 600 時間後に安定したピークチャンネルの減少率は約 5%であった。しかしながら、ベースラインが揺らぐ傾向もなく、放電現象を示さずに 2160 時間連続で TlBr 検出器が安定動作することが確認できた。

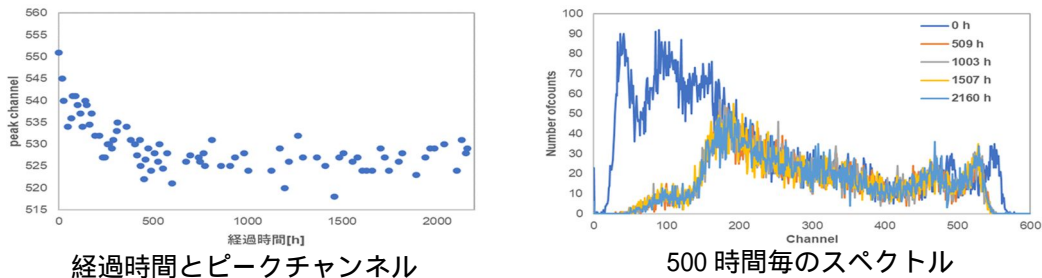


図 10 長期安定性試験結果

(5) まとめ

ポータブルかつ高エネルギー分解能のガンマ線スペクトロメータを、TlBr 半導体検出器を用いて実現できる可能性を示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 渡辺 賢一、人見 啓太郎、野上 光博、前田 茂貴、伊藤 主税、丹野 敬嗣、尾鍋 秀明
2. 発表標題 TlBr結晶の中性子回折イメージとEBSD像の比較
3. 学会等名 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前田茂貴、伊藤主税、野上光博、人見啓太郎、渡辺賢一
2. 発表標題 原子力プラント内で利用可能なポータブル高分解能ガンマ線スペクトロメータの開発(1)研究計画
3. 学会等名 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野上光博、人見啓太郎、伊藤主税、前田茂貴、椿山邦見、渡辺賢一
2. 発表標題 原子力プラント内で利用可能なポータブル高分解能ガンマ線スペクトロメータの開発（2）室温でのTlBr検出器の長期安定性
3. 学会等名 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡辺賢一、椿山邦見、野上光博、人見啓太郎、伊藤主税、前田茂貴
2. 発表標題 原子力プラント内で利用可能なポータブル高分解能ガンマ線スペクトロメータの開発（3）中性子ブラッグディップイメージングによる結晶性評価
3. 学会等名 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 人見啓太郎、前田茂貴、野上光博、伊藤主税、渡辺賢一
2. 発表標題 Fabrication of 2-cm thick TlBr detectors
3. 学会等名 2022 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference and Room Temperature Semiconductor Detector Conference (2022 IEEE NSS MIC RTSD) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡辺賢一、野上光博、人見啓太郎、前田茂貴
2. 発表標題 Crystal quality evaluation of TlBr semiconductor detectors using neutron Bragg-dip imaging and electron backscattering diffraction
3. 学会等名 2022 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference and Room Temperature Semiconductor Detector Conference (2022 IEEE NSS MIC RTSD) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	渡辺 賢一 (Watanabe Kenichi) (30324461)	九州大学・工学研究院・教授 (17102)	
研究分担者	人見 啓太郎 (Hitomi Keitaro) (60382660)	東北大学・工学研究科・准教授 (11301)	
研究分担者	野上 光博 (Nogami Mitsuhiro) (10847304)	東北大学・工学研究科・助手 (11301)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	伊藤 主税 (Ito Chikara) (90421768)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・安全・核セキュリティ統括本部・研究主幹 (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関