

ボロンナノベルトの電気伝導における中性子照射の影響の解明

Effect of Neutron Irradiation on Electrical Transport
of Boron Nanobelts

桐原 和大¹⁾

川口 建二¹⁾

Kazuhiro KIRIHARA

Kenji KAWAGUCHI

山本 博之²⁾

飯久保 智²⁾

社本 真一²⁾

Hiroyuki YAMAMOTO

Satoshi IIKUBO

Shinichi SHAMOTO

¹⁾産業技術総合研究所 界面ナノアーキテクtonics研究センター

²⁾原子力機構 量子ビーム応用研究部門

中性子吸収断面積の大きな同位体ボロン¹⁰B からなる、幅 150 nm、厚さ 20 nm、長さ 10 μm の純ボロンナノベルト 1 本へ中性子を照射し、電気伝導特性の変化を調べた。γ線によるナノベルトのコンダクタンス変化を明瞭に観測したが、中性子核反応の検知は今のところ観測できていない。

キーワード：ボロン、ナノベルト、中性子照射、γ線、電気抵抗変化

1. 目的

同位体ボロン¹⁰B は、比較的大きな中性子吸収断面積を有するため、原子炉における中性子線の遮蔽材などに使われる。ボロンは、ボロン 12 原子正 20 面体クラスターが周期配列した半導体結晶であり、その配列様式や欠陥導入、金属ドープ等により化学結合が変化し、金属転移、超電導発現の可能性、熱電変換特性など、多彩な物性を示す。その中で我々は、ボロンのナノ構造として、単結晶純ボロンナノベルトを作製してその電気伝導特性を調べ、バルクのボロン結晶よりも高密度な局在準位を介した、ホッピング伝導機構を明らかにしてきた[1][2]。

我々は本課題に先立ち、ボロンナノベルトを用いたナノスケールの中性子検出器開発の着想に至った。ナノベルト素子では、これまでの中性子検出器の空間分解能が飛躍的に向上することが期待できる。そのためには、中性子照射時の¹⁰B 核反応やガンマ線が電気抵抗の時間変化としてどのように検出できるかを調べる必要がある。そこで、本課題では、ボロンナノベルトへの中性子照射による電気抵抗の経時変化を測定し、電気伝導機構に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。

2. 方法

レーザーアブレーション法で作製したボロンナノベルトを、熱酸化膜（500 nm）付き Si 基板（15 mm 四方）上にのせ、ナノベルト両端に電子線リソグラフィーによる微細電極加工を施して中性子検出用素子とした（図 1）。ナノベルトは、同位体¹⁰B を 99% に濃縮したボロンで作製した。中性子照射は、原子力機構東海研究所・原子炉 JRR-3 にある熱中性子ラジオグラフィー（TNRF 7R）

の照射エリア内に素子を置いて行った。

基板から金線、3 重同軸ケーブルを通して照射室外のエレクトロメーターに接続し、ナノベルト 1 本の電流電圧（I-V）特性及びその時間変化を、中性子照射前後で測定した。γ線照射の効果を調べるために、厚さ 0.5 mm の

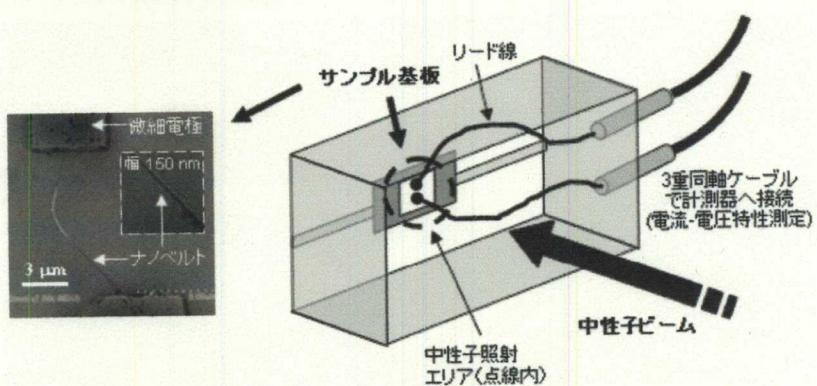


図 1 ボロンナノベルトを用いた検出器

Cd 板を照射する素子の直前に置き、中性子照射との比較を試みた。Si 基板の裏側に熱電対をつけて、中性子照射中の基板温度上昇の有無を調べた。

3. 研究成果

今回の中性子を照射したナノベルトは、幅 150 nm、厚さ 20 nm、電極間の距離（長さ）11 μm である（図 1 左）。TNRF 7R の中性子線束 ($10^8 \text{ s}^{-1} \text{cm}^{-2}$) と同位体 ^{10}B の吸収断面積から、この 1 本のナノベルトの核変換数は、1 時間あたり約 6 回と見積った。ナノベルトによる核反応の検知は、 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ の反応によって飛び出た α 線によるナノベルト内部の欠陥形成や、反応部分近傍の局所的な温度上昇によるコンダクタンスの変化が観測できるものと予測した。

このナノベルトの両端に一定のバイアス電圧を加え、中性子照射前後のナノベルトの電流値（つまりコンダクタンス）の時間変化を測定した結果を図 2 に示す。中性子の照射開始後約 200 min かけて、コンダクタンスはゆっくりと上昇し、照射前の電流値 ($I_0 = 7.8 \text{ nA}$) 約 1.4 倍の値で飽和した。照射を終えてから、コンダクタンスは同程度の時間をかけて元の値へと減衰した。Si 基板の照射中の温度変化は無かったことから、これは照射によるナノベルト自身のコンダクタンス変化を示す。しかしながら、変化はほぼ連続的であり、ナノベルトの中性子核変換数から予想されるパルス状・離散的な変化と対応しないことから、照射エリアに存在する γ 線による変化の可能性が高いと考えた。

γ 線の影響を調べるため、ナノベルト検出器の前に Cd 板を置き、入射した中性子ビームを γ 線に変換してナノベルトに照射した場合のコンダクタンスの時間変化を、中性子照射のそれと比較して図 3 に示す。両者の変化速度や変化割合はよく似ている。従って、中性子照射によるナノベルトのコンダクタンス変化は、今回の実験では、 γ 線の影響が最も大きいことが確かめられた。興味深いことに、コンダクタンスの時間応答は、最近我々が測定した可視光の光伝導のそれとよく似ている[3]。可視光の光伝導機構を用いて、 γ 線の照射による伝導機構を説明すると、次のようになる。まず、入射した γ 線のエネルギーの一部がナノベルトで吸収され、電子-正孔対が励起される。ボロンナノベルトは p 型半導体であることに加え[2]、バンドギャップ内には高密度に電子局在準位が存在しその殆どが長寿命の電子トラップとして働くため、コンダクタンスの変化は図 2 及び図 3 に見られるようなゆっくりとした時間応答となると考えられる。照射後の減衰は、トラップからの電子の熱励起によると思われる。

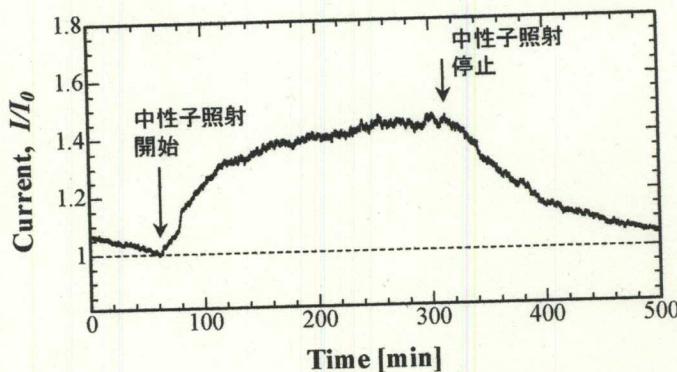


図 2 中性子照射前後の電流値の時間変化
(照射前の電流値 $I_0 = +7.8 \text{ nA}$ に対する比)
バイアスは +6 V。

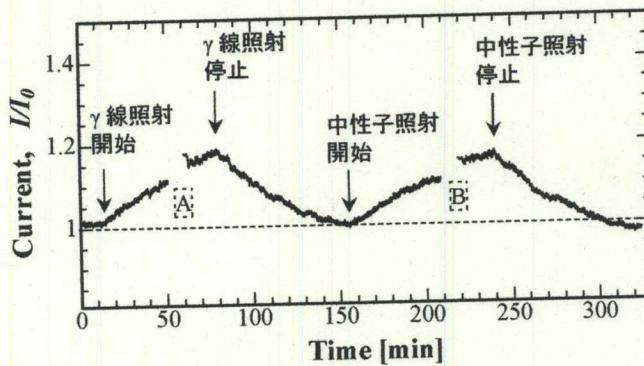


図 3 γ 線照射と中性子照射の比較
(照射前の電流値 $I_0 = +6.1 \text{ nA}$ に対する比
の時間変化) バイアスは +6 V。
図中 A, B で示した時間で I-V 特性を測定
(図 4)。

コンダクタンスの時間応答は、最近我々が測定した可視光の光伝導のそれとよく似ている[3]。可視光の光伝導機構を用いて、 γ 線の照射による伝導機構を説明すると、次のようになる。まず、入射した γ 線のエネルギーの一部がナノベルトで吸収され、電子-正孔対が励起される。ボロンナノベルトは p 型半導体であることに加え[2]、バンドギャップ内には高密度に電子局在準位が存在しその殆どが長寿命の電子トラップとして働くため、コンダクタンスの変化は図 2 及び図 3 に見られるようなゆっくりとした時間応答となると考えられる。照射後の減衰は、トラップからの電子の熱励起によると思われる。

ただし、今回の実験ではいくつかの問題点も出てきた。たとえば、照射に用いたナノベルトの I-V 特性は、良好なオーム特性ではなく、多少不安定で行きと帰りのスキャンが一致しない場合が見られた（図 4）。これは照射による影響ではなく、湿気を含んだ大気に長時間曝されると、電極とナノベルトの接触が悪くなっている可能性が高い。従って、今後は検出器を乾燥した雰囲気に置く必要がある。

4. 結論・考察

18年度上期の実験では、ボロンナノベルトへの中性子照射によるコンダクタンスの経時変化を測定した結果をまとめると次のとおりである。

- ・中性子照射開始後及び照射停止後のコンダクタンスは、数十～数百分に及ぶ長い時間をかけて上昇及び減衰した。
- ・この時間応答は、Cd 板を介してガンマ線のみを照射した場合のそれとほぼ一致した。
- ・以上から、今回の中性子照射では主に γ 線によるコンダクタンス変化を明瞭に観測できたが、中性子核反応に起因するような変化は確認できていない。

今回、中性子核反応が検知できていない原因として、 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ で飛び出した α 線がナノベルト内に形成する格子欠陥形成による電気抵抗の変化の大きさが測定限度以下であることと、核反応で生じるナノスケールの温度上昇やキャリアの生成が、今回よりも短い時間で変化しているために、エレクトロメーターによる電流測定では追跡できなかったこと、などが考えられる。

そこで、上記の問題点も含め、今年度下期の実験では、次に挙げる改良点及び新しい実験方法に取り組んでいる。

- ・検出器周辺を乾燥した雰囲気にして、電極のオーム接觸の劣化を避けて照射実験を行なう。
- ・ナノベルト電流値のより高速な変化を捉えるため、電荷増幅器・マルチチャンネルアナライザを用いて電流パルスの波高スペクトルを測定する。
- ・また、ナノベルト自身の抵抗変化を測定する方法以外に、金属微細電極と（n 型）Si 基板との間にバイアス電圧をかけ、熱酸化膜を介したリーク電流を測定し、ナノベルトでの核反応で飛び出した α 線のエネルギー損失により、Si 基板で励起する電子-正孔対を電流パルスとして捕らえる。この場合も波高スペクトルを測定する。
- ・検出器へ接続する同軸ケーブルの周りを Pb 板で覆い、ケーブルの照射による絶縁性損傷の可能性を排除する。

5. 引用(参考)文献等

- [1] K. Kirihara *et al.*, Appl. Phys. Lett., **86**, 212101 (2005).
- [2] K. Kirihara *et al.*, J. Solid State Chem., **179**, 2799 (2006).
- [3] K. Kirihara *et al.*, Appl. Phys. Lett., (2006) in press.

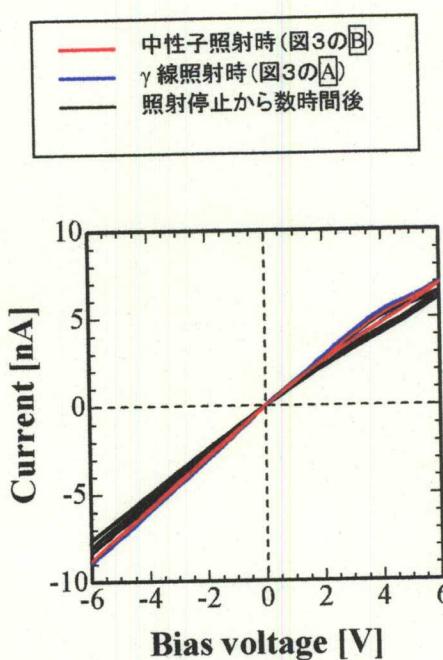


図 4 γ 線照射と中性子照射の場合の I-V 特性