

## ボロンナノベルトの伝導機構と電子構造に及ぼす中性子照射の影響の解明

Effect of Neutron Irradiation on Electrical Transport and  
Electronic Structure of Boron Nanobelts

桐原 和大<sup>1)</sup>

川口 建二<sup>1)</sup>

Kazuhiro KIRIHARA

Kenji KAWAGUCHI

山本 博之<sup>2)</sup>

山田 洋一<sup>2)</sup>

社本 真一<sup>2)</sup>

Hiroyuki YAMAMOTO

Yoichi YAMADA

Shinichi SHAMOTO

<sup>1)</sup>産業技術総合研究所 界面ナノアーキテクニクス研究センター

<sup>2)</sup>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  $^{10}\text{B}$  からなる純ボロンナノベルトへ中性子を照射し、電気伝導特性の変化を調べた。ナノベルトのコンダクタンスは、熱中性子に有感な同位体  $^{10}\text{B}$  を濃縮したナノベルトと、熱中性子に不感な  $^{11}\text{B}$  濃縮ナノベルトのいずれの場合も  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$  の照射量の熱中性子照射により増加する傾向にあった。しかしながら、 $^{10}\text{B}$  を濃縮の効果を議論できる段階でなく、引き続き照射量を系統的に上げた実験を継続し、結果の信頼性を確保することが必要である。

**キーワード**：ボロン、ナノベルト、中性子照射、核変換、電気抵抗変化

### 1. 目的

同位体ボロン  $^{10}\text{B}$  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、金属ドーピング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、ボロンのナノ構造体として、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他、バルクと異なる光伝導性も発見している[1][2][3]。

我々は平成18年度において、中性子検出器の空間分解能が飛躍的に向上すると期待できる、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を得て、JRR-3の熱中性子ラジオグラフィ（TNRF）において、 $10^8 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度の線束の中性子ビームを、同位体ボロン  $^{10}\text{B}$  からなる純ボロンナノベルトへ照射し、リアルタイムで電気伝導特性の変化を調べた。結果として、 $\gamma$ 線によるコンダクタンス変化を明瞭に観測したが、ナノベルト1本あたり1時間に数～十数回の核変換数に応じたシグナルは観測できなかった。TNRFで中性子を観測するには、ナノベルトのキャリア移動度が数桁足りないためであると考えられる。しかしながら、TNRFよりも十分大きな線束で数桁大きな核変換数、具体的にはナノベルト1本中の実効キャリア数以上の数を与えることができれば、中性子照射の効果を電気伝導性変化として観測できる可能性があると考えた。

本研究は、ボロンナノベルトに中性子を照射して、その構造変化と電気伝導機構の関係を調べ、ナノ構造体特有の放射線特性を明らかにすることを目的とする。

### 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）上へのせ、ナノベルト両端に電子線リソグラフィ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  $^{10}\text{B}$  又は  $^{11}\text{B}$  をそれぞれ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・

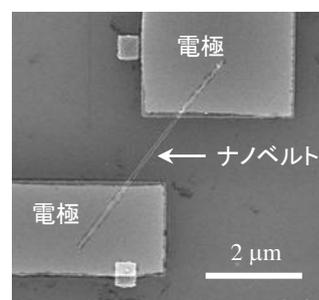


図1 微細電極を加工したボロンナノベルトの電子顕微鏡写真

表 1 19 年度上期の中性子照射実験条件

照射設備	①JRR4 気送	②JRR4 水力 T	③JRR3 水力 HR-1
熱中性子線束 [cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]	3.2 × 10 <sup>13</sup>	5.3 × 10 <sup>13</sup>	1.2 × 10 <sup>14</sup>
照射時間 [s]	6	720 (12 分)	21600 (6 時間)
熱中性子照射量 [cm <sup>-2</sup> ]	1.9 × 10 <sup>14</sup>	3.8 × 10 <sup>16</sup>	2.6 × 10 <sup>18</sup>
速中性子線束 [cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup> ]	7.8 × 10 <sup>12</sup>	1.3 × 10 <sup>13</sup>	1.7 × 10 <sup>12</sup>
(1) $\frac{\text{核変換数}}{\text{ナノベルト中のボロン原子数}}$	$\frac{70 \sim 700}{10^8 \sim 10^9}$	$\frac{1.5 \times 10^4 \sim 10^5}{10^8 \sim 10^9}$	$\frac{10^6 \sim 10^7}{10^8 \sim 10^9}$
(1)から見積もった ナノベルト中の Li 濃度 [at. %]	0.00007 (0.7 ppm)	0.015 (150 ppm)	~ 1

原子炉 JRR-3 の照射設備（水力 HR-1）、及び JRR-4 にある照射設備（気送照射及び水力 T パイプ）の照射孔にナノベルト基板を所定の時間投入して行った。ナノベルト 1 本の電流電圧（I-V）特性を、中性子照射前後で測定した。

### 3. 研究成果

19 年度上期の照射実験条件を表 1 にまとめた。それぞれの照射孔に応じて、中性子照射量、1 本のナノベルトにおける中性子核変換数とボロン原子数の比（ナノベルトの平均的なサイズから見積もった）などを比較できるように記した。

表 1 のうち、①JRR-4 気送における 6 秒間照射（熱中性子照射量 10<sup>14</sup> cm<sup>-2</sup>）について、照射前後の I-V 特性を評価した結果を報告する。この照射における核変換数は、核反応生成物である Li の濃度にして約 0.7 ppm と見積もられ、ナノベルト 1 本当りの実効キャリア数と同程度の数である。照射実験は、熱中性子に有感な同位体 <sup>10</sup>B を濃縮したナノベルトと、熱中性子に不感な <sup>11</sup>B 濃縮ナノベルトの両方に対して同時に行った。照射前後の I-V 特性を図 2 に示す。図のように、ナノベルトのコンダクタンスは、<sup>10</sup>B 濃縮及び <sup>11</sup>B 濃縮いずれの場合も中性子照射後に増加する傾向にある。さらに、<sup>11</sup>B 濃縮ナノベルトのコンダクタンスは、照射後 23 日経過後では、<sup>10</sup>B 濃縮ナノベルトより大きく増加したが、その後減少に転じた。複数のナノベルトで同様の結果が得られたが、測定したサンプル数・データ数は共に十分でないため、コンダクタンスの増加・減少傾向の違いが同位体比の違いとして意味のある結果かどうかを決めることができない。<sup>10</sup>B 濃縮ナノベルトの熱中性子核変換に応じた電気物性の変化を観測できているかどうか不明である。照射量をさらに上げた実験も含めて、この傾向の再現性を継続的に調べる必要がある。

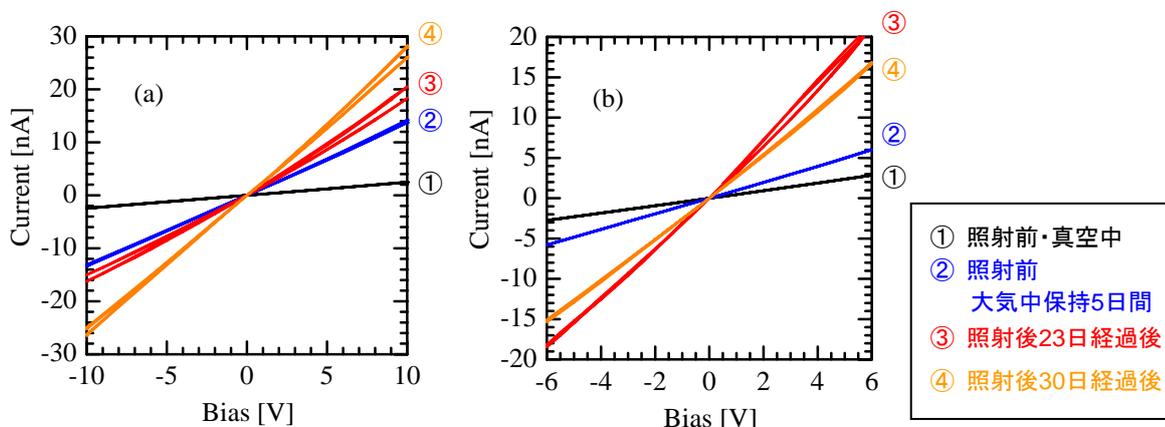


図 2 <sup>10</sup>B 濃縮ナノベルト(a) 及び <sup>11</sup>B 濃縮ナノベルト(b)における中性子照射前後の電流電圧特性（照射量 10<sup>14</sup> cm<sup>-2</sup> の場合）

表1に示した照射実験のうち、②JRR-4 水力 T パイプにおける 12 分間照射の照射後試料については現在、電気伝導測定を行っている。また、③JRR-3 水力 HR-1 における 6 時間照射の実験は、Si 基板の放射化が収まっていないため、現在も JRR-3 にて保管中であり、今後 I-V 特性を評価する予定である。

#### 4. 結論・考察

19 年度上期の実験で、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変化を測定した結果をまとめると次のとおりである。

ナノベルトのコンダクタンスは、熱中性子に有感な同位体  $^{10}\text{B}$  を濃縮したナノベルトと、熱中性子に不感な  $^{11}\text{B}$  濃縮ナノベルトのいずれの場合も  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$  の照射量の熱中性子照射により増加する傾向にあった。 $^{11}\text{B}$  濃縮ナノベルトのコンダクタンス増加が、照射後 27 日以内では、 $^{10}\text{B}$  濃縮ナノベルトのそれより大きかったが、その後減少に転じた。測定したサンプル数・データ数は共に十分でないため、 $^{10}\text{B}$  濃縮ナノベルトの熱中性子核変換に応じた電気物性の変化を観測できているかどうか不明である。

$^{10}\text{B}$  濃縮及び  $^{11}\text{B}$  濃縮のいずれについても、照射前に大気中で数日保持しているだけでコンダクタンスが増加することも、データの解釈を困難にしており、なるべく大気に曝さない条件での照射実験が必要と考えている。

今回の実験より照射量を上げた実験が必要と述べたが、具体的には今回よりも 4 桁以上照射量を上げ、核変換数が核反応生成物 (Li) の濃度にして数 at% 程度となる照射実験により、 $^{10}\text{B}$  濃縮の効果をより明確にすることが必要と考えている。実際に、19 年度下期でそれに取り組んでいる。表 1 ②JRR-4 水力 T パイプの実験、及び表 1 ③JRR-3 水力 HR-1 における 6 時間照射の実験についても、伝導測定実験の結果が出た際には、適切に下期の実験にフィードバックする。

#### 5. 引用(参照)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., **89**, 243121 (2006).