

## 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<sup>1)</sup>

川口 建二<sup>1)</sup>

Kazuhiro KIRIHARA

Kenji KAWAGUCHI

山本 博之<sup>2)</sup>

飯久保 智<sup>2)</sup>

社本 真一<sup>2)</sup>

Hiroyuki YAMAMOTO

Satoshi IIKUBO

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<sup>10</sup>Bからなる、幅150 nm、厚さ20 nm、長さ10 $\mu$ m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。18年度上期で明らかになった実験上の課題への対策を施した実験を行った。結果として、 $\gamma$ 線によるナノベルトのコンダクタンス変化は上期と同様に観測したが、中性子核反応の検知は観測できなかった。キャリア移動度を増加するなどの工夫が必要と思われる。

**キーワード**：ボロン、ナノベルト、中性子照射、 $\gamma$ 線、電気抵抗変化

### 1. 目的

同位体ボロン<sup>10</sup>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、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<sup>10</sup>B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。18年度上期の施設共用による実験では、ナノベルトに印加する電界の強度が中性子の検出に十分でない可能性や、ナノベルト素子周辺の雰囲気依存してコンダクタンスが変化する可能性の他、ビームポート内の素子から外部の計測器へ接続するケーブルが中性子やガンマ線から遮蔽されていない等の問題があった。また、計測のサンプリング周期が長く、核変換による電流パルスを計数できていない可能性もあった。そこで、今回は、これらの課題への対策を施して、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、中性子検出を実現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

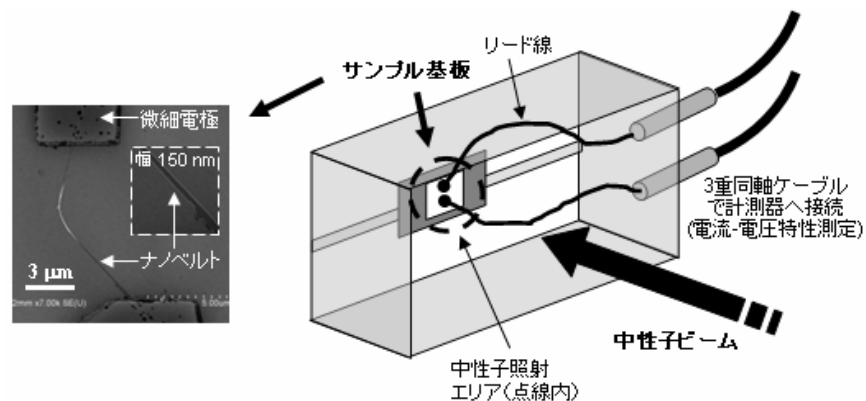


図1 ボロンナノベルトを用いた検出器

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)。ノベルトは、同位体  $^{10}\text{B}$  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、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。今回は、エレクトロメーターの他に、参照抵抗と2段の増幅器を介して A-D 変換ボードで比較的短いサンプリング周期 (50  $\mu\text{s}$ ) で電流変化を計測した。 $\gamma$  線照射の効果調べるために、厚さ 0.5 mm の 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 (図2)。今回は、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した。

### 3. 研究成果

今回の中性子を照射したノベルトは、18年度上期の実験と同様に、幅 150 nm、厚さ 20 nm、電極間の距離(長さ)約 10 $\mu\text{m}$  の試料を採用した(図1左)。TNRF 7R の中性子線束 ( $10^8 \text{ s}^{-1}\text{cm}^{-2}$ ) と同位体  $^{10}\text{B}$  の吸収断面積から、この1本のノベルトの核変換数は、1時間あたり約6回と見積った。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  $\alpha$  線や Li 原子によるノベルト内部の欠陥形成や電子-正孔対の形成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3に示す。今回の実験では、ノベルトに加える電界の強度を、18年度上期の実験よりも数~10倍程度大きくし、1700 V/mm 及び 6100 V/mm とした。図3を見ると、中性子の照射開始後約 100~200 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 ( $I_0$ ) の約 1.1~1.7 倍値まで増加した。照射を終えると、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。電界強度を大きくすると、コンダクタンスの変化率も大きくな

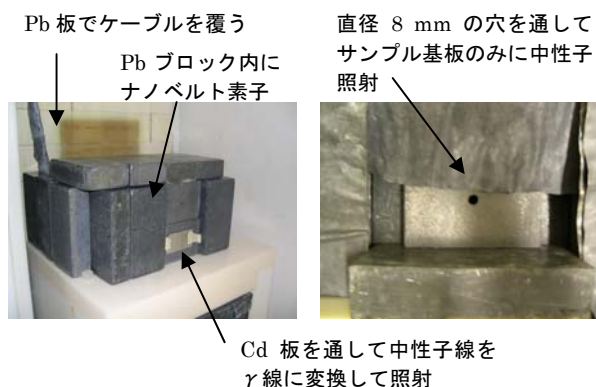


図2 中性子ビームポート (JRR-3 TNRF) 内でのノベルト素子とケーブル、Pb ブロック、Cd 板などの配置の様子

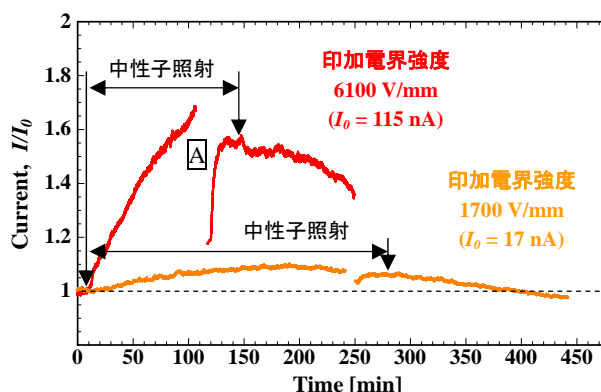


図3 中性子照射前後の電流値の時間変化 (照射前の電流値  $I_0$  に対する比)

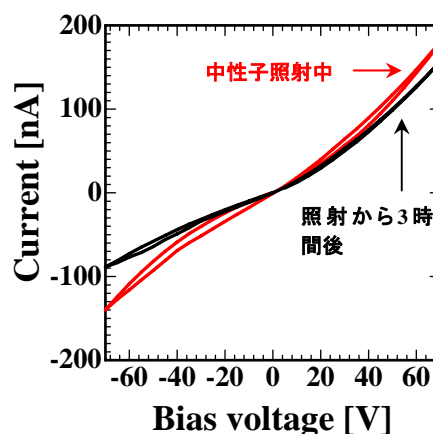


図4 中性子照射中と照射後の電流電圧特性 (図3で、Aで示した時間での測定結果)

ることが分かる。しかしながら、最大 6100 V/mm の電界強度では、核変換に伴い生成する電子-正孔対に起因したシグナルを検出するには至らなかった。ナノベルト電流測定のスプリング周期を 50  $\mu$ s まで小さくした測定も行ったが、中性子及び $\gamma$ 線の両者において、照射前と照射後の電流のパルス波高値の分布には、ノイズレベルを越えた有意な差は見られなかった。また、6100 V/mm よりも大きな電界強度では、ナノベルトが破損してしまった。ジュール加熱による焼損と思われる。

18 年度上期の実験において、中性子照射中にナノベルト素子の温度は全く変化しないことを確認していることから、このコンダクタンス変化は、照射エリアに存在する $\gamma$ 線による変化であると考えられる。

ナノベルト素子のガス雰囲気を通常の大気と、乾燥窒素にそれぞれ置換した場合のコンダクタンス変化を測定したが、両者に大きな差は見られず、湿気によるナノベルトや電極接触の劣化は、照射時間の範囲では起きないことも分かった。

#### 4. 結論・考察

18 年度下期の実験で、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。ナノベルト核変換数に応じた変化ではなく、この変化は $\gamma$ 線によるものと考えられる。
- ・ コンダクタンス変化は、照射実験の時間内では、周囲のガス雰囲気に依存しない。
- ・ 電界強度を数～10 倍程度に上げ、電流測定のスプリング周期を 50  $\mu$ s 程度に小さくしたが、ナノベルト中性子核変換に対応するシグナルは検出できなかった。

以上のように、今回の中性子照射でも、主に $\gamma$ 線によるコンダクタンス変化は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なかった。

ナノベルトを構成しているのは同位体  $^{10}\text{B}$  であるから、中性子核反応が一定の確率で、ナノベルト中で起きていることは間違いない。しかしながら、核反応が検出できなかった原因として考えられるのは、現在のところ、ナノベルトのキャリア移動度が低いことであると考えている。一般的に半導体検出器の検出効率、キャリアの移動度と寿命の積 ( $\mu\tau$ 積) で定量的に表すことができ、実用レベルとしては  $10^{-6}$   $\text{cm}^2/\text{V}$  程度は少なくとも必要であると言われている。ナノベルトの電界効果特性から見積もられたキャリア移動度は、 $10^{-3} \sim 10^{-1}$   $\text{cm}^2/\text{Vs}$  であったことと、(ナノベルトは未評価であるが)純ボロン結晶のキャリア寿命は  $10^{-7}$  s 程度であることを参考にすると[4]、 $\mu\tau$ 積は  $10^{-10} \sim 10^{-8}$   $\text{cm}^2/\text{V}$  の程度と推測され、100 倍以上の向上が必要と考えられる。従って、結晶構造や組成を変えて、キャリア移動度を 3 桁以上大きくしたボロンナノベルトを作製する必要がある。この問題を解決するのは容易ではなく、時間を要する。現在、ナノベルトへの金属ドーピング並びに、ボロン系化合物半導体のレーザーアブレーションによるナノ構造体の探索を行っている。具体的に何か改善が見られた場合、再度、TNRF 7R で今回行った実験と同様の、リアルタイムでの中性子検出実験の提案を行う予定としている。

ただし、現状のナノベルトでも、核変換数をナノベルト中のキャリア数 ( $10^5$  程度) と同程度以上に増やした中性子照射では、核変換に起因するコンダクタンス変化が、ナノベルト内の欠陥形成や Li 原子ドーピングの効果として検出できる可能性がある。そのため 19 年度は、JRR-3 並びに JRR-4 の照射設備で、今回の TNRF に比べて熱中性子線束が 5 桁程度大きな中性子照射実験を行っている。

#### 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).
- [4] H. Werheit and R. Schmechel, "Boron", in: O. Madelung (Ed.), Landolt-Bornstein New Series, Group III, Vol. 41C, Springer, Berlin, p.3-148 (1998).