

平成 30 年 6 月 18 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03593

研究課題名(和文)磁気イメージングのためのWolter型中性子顕微鏡の研究

研究課題名(英文)Development of a neutron microscope using Wolter supermirror for magnetic imaging

研究代表者

曾山 和彦 (Soyama, Kazuhiko)

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 J-PARCセンター・研究職

研究者番号：90343912

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：中性子は、スピン1/2と高い透過性を有することから、磁気デバイスの深部磁気構造を観察する有力なプローブである。本研究では、高精度回転非球面多層膜スーパーミラーを用いて、高効率のWolter I型拡大結像光学系を開発し、ズームング管検出器と融合し中性子顕微鏡を実現することを目的とした。Wolterミラーは、石英ガラス製の高精度マンドレルを大気圧マイクロ波プラズマジェットを用いた化学的な形状創成法による形状修正を適用して作製し、NiC/Ti多層膜スーパーミラーをイオンビームスパッタ法によって成膜、その形状を保持するためNi電鍍膜を形成後離型することで自立型スーパーミラーを開発した。

研究成果の概要(英文)：In order to realize a neutron microscope, we are developing Wolter type I supermirror as a magnetic imaging device that is a rotationally symmetric mirror consisting of an elliptical mirror followed by a hyperbolic mirror. In this study, NiC/Ti supermirror device is fabricated by demolding of the multilayer deposited on the surface of the high-precision mandrel. Figure error of the mandrel is corrected by numerically controlled plasma chemical vaporization machining (NC-PCVM) which can correct the figure error deterministically without forming subsurface damage. NC-PCVM had been used to correct the flatness and/or thickness distribution of the plane substrate with nanometer order accuracy. We achieved submicrometer order figure accuracy (230 nm) by applying NC-PCVM figure correction with compensation of surface temperature change caused by plasma irradiation. We found the parameters of the coating, electroforming and demolding processes on the self stand supermirror.

研究分野：中性子科学

キーワード：中性子顕微鏡 大気圧マイクロ波プラズマジェット ウォルターミラー スーパーミラー イオンビームスパッタ法 レプリカ法

### 1. 研究開始当初の背景

既に開発が進んでいる軟X線顕微鏡は、“水の窓”領域と呼ばれる酸素と炭素のK吸収端のコントラストを利用して、Wolter (ウォルター) 全反射ミラー等の結像光学系で拡大し、生きたままの細胞組織等をサブミクロンの分解能でイメージングすることに成功している。

一方、偏極中性子は磁気モーメントと高い透過力を有し、スピナーモア歳差回転によって磁束をイメージすることができることから、N.Kardjilov らは*Nature Physics* **4**, (2008)においてユニークな磁場イメージングに成功している。もし中性子において拡大光学系が可能となれば物質内から漏れた磁束や磁性体内の磁区構造等を深部まで可視化することが可能となり、磁性物理学の開拓に貢献することが期待される。

しかし、これまでの中性子顕微鏡の開発では、X線顕微鏡を模して全反射ミラーにニッケル単層膜を用いたWolterミラー等が開発されてきたが、ニッケルの中性子全反射角が波長0.1nmで0.1°と小さいため、集光される中性子強度が非常に弱く拡大率も十分に取れなかった。また、中性子の物質との相互作用が弱いため、単純な吸収・散乱効果を用いた透過法ではサブミクロン厚さの試料の十分なコントラストが得られず、中性子線の特徴を活かすことができなかった。さらに中性子の場合には、X線のようなマイクロメートル領域の分解能をもつ2次元検出器が無かったことも大きな障壁となってきた。

もし、全反射ミラーに代えて、その全反射臨界角を増強できる多層膜スーパーミラーを応用したWolter I型拡大結像光学系が開発できれば、実用的な中性子顕微鏡が実現可能となる。

### 2. 研究の目的

中性子は、スピン 1/2 を有し起因する磁気モーメントと高い透過性をもつことから、磁気デバイス等の深部磁気構造を観察する最適なプローブである。しかし、これまで“中性子顕微鏡”が実現されないのは、中性子源強度がX線に比べて格段に弱いため、既に実用化されているX線顕微鏡を模した全反射ミラーの光学系では十分な中性子強度が得られないという要因があった。

本研究では、我々が最近開発に成功した i) 高精度回転非球面多層膜スーパーミラーを用いて、高効率のWolter I型拡大結像光学系を開発し、かつ ii) 偏極中性子の”Depolarization”を用いたコントラスト法を構築し、さらに iii) 我々が開発した中性子ズーミング 2次元検出器と融合することで、物質中の磁区構造等を拡大イメージする初の中性子顕微鏡の要素技術を開発することを研究目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究を構成する4つの要素技術開発について以下に実験方法を記述する。

#### (1) Wolter I型拡大結像光学系の設計

Wolter ミラーは、同軸の回転楕円面と回転双曲面を組み合わせた光学系で、abbe の正弦

条件を満たすことから、物体に照射された光軸上の光線が像点に集まるだけでなく、光軸外の点を発した光線も像点に集まるコマ収差の非常に小さい光学系である。

実用的な中性子 Wolter ミラーを設計する上で重要な点は、十分な強度を得るため中性子波長領域の選択と、これに適合した多層膜スーパーミラーの臨界角の選択である。

本研究では、大強度パルス中性子源であるJ-PARCの物質・生命科学実験施設 (MLF) の結合型冷中性子減速材で供給される冷中性子ビームを用いることを想定し、RayTrace法による解析を行い結像光学系の形状とその精度を検討した。

#### (2) 自立型 Wolter スーパーミラーの創製

開発する拡大結像光学系においてサブマイクロメートルの空間分解能を達成するためには、非球面基板において数10nmの形状加工精度が求められる。本研究では、内面反射型のWolterミラーを高精度に作製するため、図1に示すレプリカ法を適用することとした。レプリカ法においては、高精度研削によって作製した石英ガラス製のマンドレル (型) の形状を数値制御プラズマCVM ( Numerically Controlled Plasma Chemical Vaporization: NC-PCVM) 法によって形状誤差がサブマイクロメートルオーダーになるまで修正する。次に中性子の散漫散乱の原因となる表面粗さを低減するための研磨を行った後、マンドレル上にイオンビームスパッタ法によってNiC/Tiを積層した多層膜スーパーミラーを成膜する。この際、離形処理がし易いように、マンドレルと多層膜スーパーミラーの間に、剥離膜を成膜するとともに、離形した際に多層膜スーパーミラーの形状精度が保持できるように、スーパーミラーにニッケルの電鍍膜を形成する。最後に、全体を加熱して石英ガラスと成膜したスーパーミラーを離形して自立型のWolterミラーを完成させる。

#### ① NC-PCVM法によるマンドレル創製

形状修正に用いるNC-PCVM法は、大気圧下で空間的に局在して発生させたマイクロ波プラズマジェットによって高密度の反応種を生成し、加工物表面原子と反応させて揮発性の物質に変えることにより除去を行う加工法である。

従って、工具等の接触が無い原子単位の加工法であることから、外乱の影響を受けずに幾何学的に優れた加工面が得られ、また、加工変質層も形成されないことから、スーパーミラーの膜応力による剥離等が発生しない利点がある。本研究では、主としてNC-PCVMの加工特性を評価した。表 1にPCVM加工における各種パラメータを示す。

表 1 PCVM における加工条件

投入電力 (W)	67.8
キャリア Ar ガス流量 (ml/min)	300
プロセス Ar ガス流量 (ml/min)	1000
CF <sub>4</sub> ガス流量 (ml/min)	150
加工ギャップ (mm)	5.2

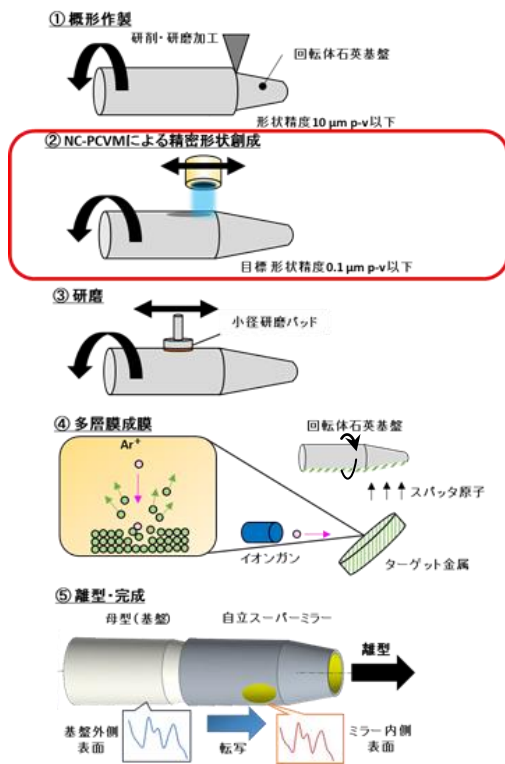


図1 レプリカ法による自立型Wolter I型スーパーミラー作製プロセス

## ② 回転非球面スーパーミラー成膜

NC-PCVM法で形状加工されたマンドレルを、サブナノメートルの表面粗さに研磨したのち、大面積イオンビームスパッタ装置を用いて、Ni/C/Tiスーパーミラーを成膜する。イオンビームスパッタ法は、スパッタ粒子のエネルギーが真空蒸着法やマグネトロンスパッタ法に比べて格段に高く、緻密で界面粗さが小さく、付着力の強い膜を形成できることから、回転非球面への成膜に適用した。本研究では、非球面基板であるマンドレルに対して均一で平滑な多層膜スーパーミラーを成膜する為、図1④のように基板を回転させながら成膜を行い、付着力、膜厚制御精度の検討を行った。イオンビームスパッタ装置のイオン源の取り出し電圧は600V、電流は680mAである。

## ③ 自立型ミラーのための電鍍加工

レプリカ法によりマンドレルに成膜した多層膜スーパーミラーを離形する際、多層膜スーパーミラーの膜厚は数10 μmと薄く形状とその精度を保てないため、スーパーミラーの最終成膜面であるニッケル層にニッケルの電鍍膜（数100 μm）を形成する。

## (3) 中性子ブーミング管検出器の適用

結像光学系で拡大したイメージ像を高分解能で観察する為、中性子ブーミング管検出器（浜松ホトニクス(株)製）を適用した。当該製品はX線電子顕微鏡を、日本原子力研究開発機構との協力のもと、中性子線用に改良した検出器である。光電面、電磁集束拡大電子レンズ、CCD撮像系から構成され、このうち光電面は、結像された中性子像を内部転換電子像

に変換するGd薄膜と、さらにこの像を光電子像に変換するCsI薄膜から構成される。光電面上に結像された中性子像は、ここで光電子像に変換され、電磁集束拡大電子レンズによりマイクロチャンネルプレート（MCP）の入力面上に拡大結像される。さらにMCPで電子増倍され、蛍光面で可視光像に変換され、この可視光像をCCDカメラで読み出したものを積算などの画像処理を行いモニター上で観察する。本研究では、J-PARC/MLFのパルス中性子源の中性子スペクトルに最適なGd薄膜及びCsI薄膜の膜厚を検討した。

## 4. 研究成果

### (1) Wolter I型拡大結像光学系の設計

本設計では、サブマイクロメートルの空間分解能を有する中性子顕微鏡を目指しWolter型結像光学系に使用するミラーは、製作実績を鑑みてニッケル薄膜ミラーの4倍の全反射臨界角（総積層数約1200層）、反射率90%の多層膜スーパーミラーとし、中性子検出器には15 μmの空間分解能を有する中性子ブーミング管検出器を想定した。RayTracing法を用い利用可能なMLFの中性子波長領域を考慮しながら検討した結果、光学系の拡大率を12.5倍と設定した。（図2参照）

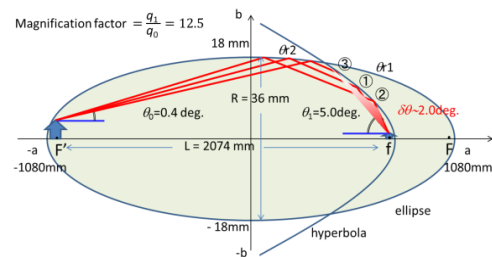


図2 Wolter I型拡大結像光学系

m=4のスーパーミラーを採用した結果、図中①の軌跡では $\theta_1=\theta_2=1.3\text{deg.}$ となり、 $3.3\text{ \AA}$ 以上の中性子を反射することができる。拡大率を27倍にした場合には、各反射面での反射角は大きくなるため（ $\theta_1=\theta_2=2.2\text{deg.}$ ）、臨界波長は長くなり（ $5.7\text{ \AA}$ ）強度は減少する。MLFの場合、中性子強度がピークとなる波長は約 $3\text{ \AA}$ で $6\text{ \AA}$ では強度は半減する。また、Ray Trace法により形状精度を検討した結果、サブマイクロメートルの空間分解能を得るためには、数10nmの形状精度が必要であることが分かった。さらに、当該寸法のミラーを用いた場合、拡大率が一定となる試料観察可能面積は $1\text{mm}\Phi$ 程度である。

### (2)自立型Wolterスーパーミラーの創製

#### ① NC-PCVM法によるマンドレル創製

PCVMで石英ガラス( $\text{SiO}_2$ )を加工する場合、図3に示すようにマイクロ波電界により発生させたArプラズマ中で $\text{CF}_4$ ガスを解離させてFラジカルを生成し、 $\text{SiO}_2$ と反応させて揮発性の $\text{SiF}_4$ となる化学反応を利用して除去加工を行う。目

的形状と単位時間あたりの体積加工量から計算されるプラズマの照射時間分布に従い、マイクロ波加工プラズマヘッドを数値制御走査することで、決定論的に目的形状を作製できる。

一方、化学反応を利用した加工法であるため、加工点における表面温度が高くなるほど加工速度は増加し、表面温度の変化による加工特性への影響を補正する必要がある。合成石英製の円柱試料に対する加工前後の形状は非接触三次元形状測定機により測定した。またプラズマジェットを円柱状の石英ガラス基板上を一軸走査した際の表面温度の変化をサーモグラフィカメラにより測定した。

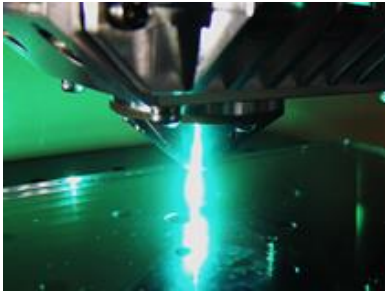
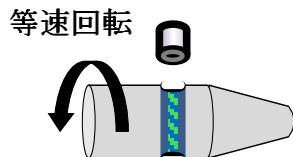


図3 マイクロ波プラズマジェットの外観

図4に一軸走査を行わずに試料を回転させながらPCVM加工を行うことで加工溝形状を作製する様子を示す。図5にPCVM加工によって実際に作製した加工溝形状の測定結果を示す。加工時間40minのPCVM加工を行い、最大加工深さ19.1 $\mu\text{m}$ の単位加工溝形状が得られた。次に図6に円柱試料の加工深さを1 $\mu\text{m}$ と10 $\mu\text{m}$ に設定して1軸走査加工をした際の表面温度を測定した様子を示す。また、図7にそれぞれの表面温度の変化の結果を示す。加工時間はそれぞれ13min及び130minで、この時の走査速度はそれぞれ1.73mm/minと0.16mm/minであった。本実験は粗加工用の条件として10 $\mu\text{m}$ の加工量、精密修正用の条件として1 $\mu\text{m}$ の加工量を模擬している。本結果より600sec後には試料表面の温度が十分に飽和しており、NC制御によるPCVM加工時には、表面温度は飽和した温度に達することが確認できた。



#### 単位加工溝

図4 単位加工溝の形成方法

これらの条件を満たす単位加工溝形状として図5に示す溝形状を用いて数値制御加工を行い、最大高さ1.4 $\mu\text{m}$ の楕円形状を作製した。図8に設定加工量と実際の加工量の比を示す。3回実施した加工において、1回目と2回目ではいずれも25%程度、設定加工量より多く加工されることがわかった。

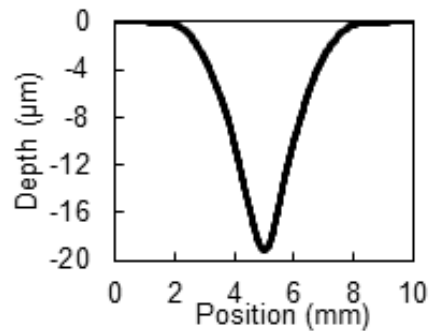


図5 得られた単位溝形状

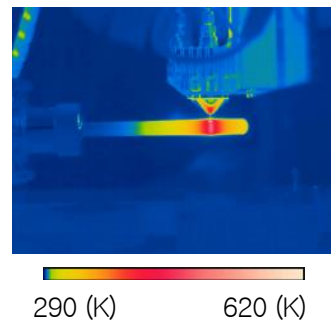


図6 サーモグラフィによる加工中の温度測定

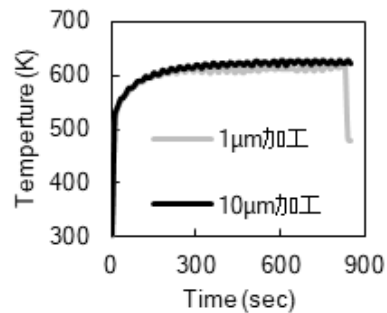


図7 1軸走査における表面温度の変化

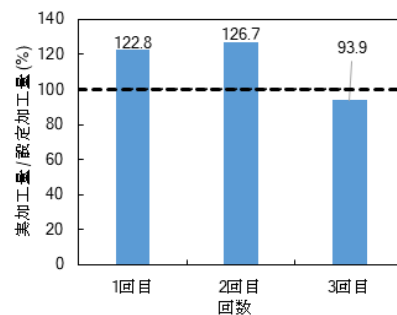


図8 実加工量 / 設定加工量

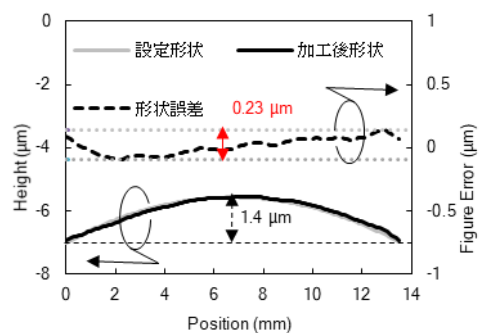


図9 NC-PCVMによる形状創成の結果

そこで3回目はシミュレーションに用いる単位加工溝形状分布を図5で得られたものに対して、1回目と2回目の加工において判明した加工量増加分の平均値として24.8%増加させる補正を行い、形状加工を行った。その結果、加工量誤差は-6.1%と大幅に低減できた。補正の精度を向上させることで加工量誤差はさらに低減できることが期待できる。

また、設定加工量との誤差が生じる原因に関しては以下のように考察した。本実験で単位加工溝として用いた加工溝形状は加工時間40minの試料の表面温度が十分に飽和状態になったものを用いたが、加工開始から600sec以下の温度が飽和していない時点での加工量も含まれるために設定加工量と実加工量に20~25%のズレが生じたと考えられる。

図9にプラズマ照射による表面温度変化の補正を行った単位加工溝を用いてNC-PCVMによる形状創成加工を行った際の設定形状、加工後の実形状、形状誤差を示す。形状誤差の最大値は0.23  $\mu\text{m}$ であり、サブミクロンオーダーの形状精度が得られた。最大加工深さは2.45  $\mu\text{m}$ であることから絶対加工量に対して9.38%の形状誤差であった。以上の結果より、形状測定と修正加工を繰り返すことで目標とする形状精度0.1  $\mu\text{m}$ を達成できる見通しを得た。

## ② 回転非球面スーパーミラー成膜

イオンビームスパッタ装置(成膜可能面積500 mm  $\phi$ )を用いて、回転非球面基板のマン ドレル周囲に多層膜スーパーミラーを成膜 するため、図10に示すように円筒形状のマン ドレルが2つの軸上を回転しながら均一な 成膜を行う基板回転機構を新たに整備した。 本装置では最大300mm長さ程度のミラーが4 個同時に成膜可能である。当該機構を用いて  $m=2$ (140層)のNiC/Ti多層膜スーパーミラ ーを楕円筒形状(長さ190mm、表面粗さ1nm) の石英ガラス基板に形成した(図11参照)。

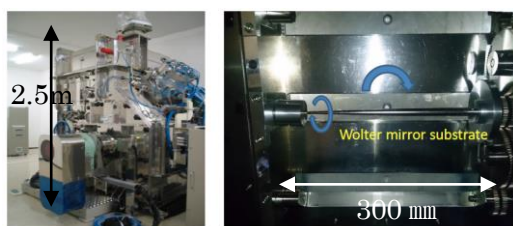


図10 非球面マン ドレルに成膜機構を 整備した大面積スー パーミラー成膜装置



図11 楕円筒状石英ガラスに成膜した NiC/Ti多層膜スー パーミラー ( $m=2$ 、長さ190mm、表面粗さ1nm) さらに、スーパーミラーを離形した後、形状

を保持できるようにスーパーミラーの最終成膜面であるニッケル層(約200nm)にニッケル電鍍膜を500 $\mu\text{m}$ 程度形成した。電鍍処理を行う場合に、最終成膜面との密着性が問題となったが、表面脱脂処理を最適化することによって、良好な電鍍膜の形成が行われた。マン ドレルにはスーパーミラー成膜前に離形材として低融点金属薄膜を成膜し、離形作業は高温状態を保ちながらマン ドレルからスーパーミラーを離形した。

次に、Wolter型ミラー用のマン ドレルにNiC/Tiスーパーミラー( $m=2$ )を成膜し、さらに電鍍膜形成を行って、レプリカ法により製作した自立型 Wolter スーパーミラーを図12に示す。

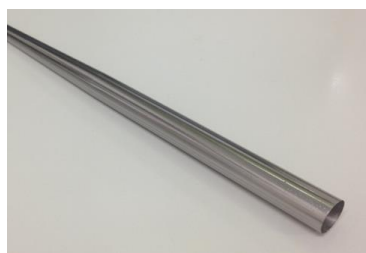


図12 レプリカ法により製作された Wolter型 NiC/Ti スーパーミラー( $m=2$ 、全長200mm)

## (3) 高分解能中性子ズーミング管検出器検討

中性子ズーミング管検出器を顕微鏡システムに応用する為、J-PARC物質・生命科学実験施設の特性試験装置(NOBORU、BL10)で性能試験を実施した。光電面について、結像された中性子像を内部転換電子像に変換するGd薄膜(6 $\mu\text{m}$ )と、さらにこの像を光電子像に変換するCsI薄膜(100nm)とし、Cd薄膜のエッジを観察し空間分解能を評価した。その結果、J-PARCの中性子ビームを用いることでマイクロメートル領域のイメージングに十分な中性子検出効率が得られることを確認するとともに、15 $\mu\text{m}$ の超高空間分解能が得られた(図13参照)。

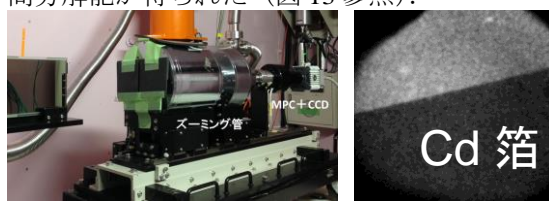


図13 MLF(BL10)で測定した中性子ズーミング管検出器によるCd箔エッジの2次元イメージ像

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

- ① R. Maruyama, D. Yamazaki, K. Akutsu, T. Hanashima, N. Miyata, H. Aoki, M. Takeda, K. Soyama, Development of high-polarization Fe/Ge neutron polarizing supermirror: Possibility of fine-tuning of

scattering ength density in ion beam sputtering、 Nucl. Instrum. Methods. Phys. 査読有、 Res. A 888 (2018) 70-78、 doi:10.1016/j.nima.2018.01.068

- ② D. Yamazaki, M. Nagano, R. Maruyama, H. Hayashoda, K. Soyama, K. Yamamura, Neutron focusing by a Kirkpatrick-Baez type super-mirror、 査読有、 JPS Conf. Proc. 8 (2015) 051009(6pp). 、 doi:10.7566/JSPSC8.051009

〔学会発表〕(計 13 件)

- ① 荒川翔平、山村和也、曾山和彦、林田洋寿 他、数値制御プラズマ CVM 加工による中性子顕微鏡用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製、精密工学会第 25 回学生会員卒業研究発表講演会 (3.15@中央大学後楽園キャンパス)(2018)
- ② 曾山和彦、林田洋寿、山村和也 他、深部磁気モーメント可視化の為にウォルタースーパーミラー中性子顕微鏡の開発、2017 年度量子ビームサイエンスフェスタ(3.3@つくば国際会議場)(2018)
- ③ 小林勇輝、山村和也、曾山和彦、林田洋寿 他、中性子集光用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製(第 5 報) - PCVM 加工における加工変質層が及ぼす加工特性への影響の評価-、2017 年度精密工学会秋季大会学術講演会 (9.21@大阪大学-豊中キャンパス) (2017)
- ④ 曾山和彦、林田洋寿、山村和也 他、深部磁気モーメント可視化の為にウォルター型スーパーミラー中性子顕微鏡の開発、2016 年度量子ビームサイエンスフェスタ(3.14@つくば国際会議場)(2017)
- ⑤ 小林勇輝、山村和也、曾山和彦、林田洋寿、小林勇輝 他、中性子集光用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製(第 4 報) - 石英ガラス製回転体基盤に対するプラズマジェット加工特性の評価 -、2016 年度精密工学会春季大会学術講演会 (3.13@慶應大学-矢上キャンパス) (2017)
- ⑥ Y. Goto, H. Hayashida, K. Soyama, K. Yamamura et al., Precise correction of cylindrical shape by numerically controlled plasma chemical vaporization machining、16th International Conference on Precision Engineering (ICPE2016) (Nov. 14-16 (Nov.15), Hamamatsu, Japan) (2016)
- ⑦ 後藤惟樹、林田洋寿、曾山和彦、山村和也 他、中性子集光用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製(第 3 報) - 石英ガラス基板のプラズマジェット加工における加工速度の基板温度依存性 -、2016 年度精密工学会秋季大会学術講演会 (9.8@茨城大学-水戸キャンパス) (2016)
- ⑧ 小林勇輝、林田洋寿、曾山和彦、山村和也 他、中性子集光用高精度 Wolter

ミラーマンダレルの作製(第 2 報) - マイクロ波プラズマジェット加工における加工速度の  $CF_4/O_2$  組成依存性 -、2016 年度精密工学会秋季大会学術講演会 (9.8@茨城大学-水戸キャンパス) (2016)

- ⑨ 後藤惟樹、林田洋寿、曾山和彦、山村和也 他、中性子集束用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製 - 集束性能に影響を及ぼす形状誤差の光線追跡シミュレーションによる評価 -、2016 年度精密工学会春季大会学術講演会 (3.16@東京理科大学 野田キャンパス) (2016)
- ⑩ 小林勇輝、林田洋寿、曾山和彦、山村和也 他、中性子集束用高精度 Wolter ミラーマンダレルの作製 - 円筒石英ガラス基盤に対するプラズマジェット加工特性の評価 -、日本機械学会 関西学生会平成 27 年度学生会員卒業研究発表講演会(3.10@大阪電気通信大学 寝屋川キャンパス) (2016)
- ⑪ 曾山和彦、林田洋寿、山村和也 他、ウォルター型中性子スーパーミラー顕微鏡のオプティクス、日本中性子科学会第 15 回年会 (12.10@和光市民文化センター) (2015)
- ⑫ 後藤惟樹、山村和也、中性子集束用 Al 合金製楕円面ミラー基盤の表面仕上げにおける表面硬化研磨の適用、2015 年度砥粒加工学会学術講演会(9.10@慶応大学) (2015)
- ⑬ K. Soyama, H. Hayashida, K. Yamamura et al., Development of a Neutron Microscope using Wolter Supermirrors、4th International Workshop on Neutron Delivery Systems, ILL- Grenoble, France) (2015).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

曾山 和彦(Soyama, Kazuhiko)

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 J-PARC センター・研究職

研究者番号:90343921

### (2) 研究分担者

林田 洋寿(Hayashida, Hirotoishi)

一般財団法人総合科学研究機構(総合科学研究センター・総合科学研究室)及び中性子科・中性子科学センター・

副主任研究員

研究者番号:50444477

山村 和也(Yamamura, Kazuya)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号:40414544