

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 13 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22604008

研究課題名（和文） 高精度ビーム集光による角度発散型中性子反射法の開発

研究課題名（英文） Development of angular-divergent neutron reflectometry using high-precision beam focusing techniques.

研究代表者

山崎 大（YAMAZAKI DAI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・J-PARCセンター・副主任研究員

研究者番号：80391259

研究成果の概要（和文）：

高精度集光ミラーにより、広く発散したビームを試料表面へ集光して入射させ、一度に広い入射角度範囲の中性子反射率測定を行う、角度発散型中性子反射法の開発を行った。

高精度集光ミラーの開発については、1次元集光で0.15mmを達成し、測定に十分な性能を得ることができた。また、角度発散型中性子反射法測定をJ-PARCの偏極中性子反射率計(BL17)で行い、反射計測位置によるフリンジのずれの観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：

We have developed "Angular-divergent" neutron reflectometry by illuminating divergent neutron beam focused on a sample surface using high-performance neutron focusing mirror. We have succeeded in observing, at a single measurement, reflectivity profiles at different reflection angles and finding shifts of the reflectivity patterns dependent on the detector pixel positions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：時限

科研費の分科・細目：量子ビーム科学

キーワード：量子ビーム，表面・界面物性，超薄膜，磁性

1. 研究開始当初の背景

(1)中性子反射法において、表面・界面の環境変化に対する応答をみる in-situ 測定、時分割測定は極めて重要である、そのためには、①各反射率プロファイルをできるだけ短時間で取得すること、②試料をできるだけ動かさずに測定を行うこと、の2点が重要である。(2)しかし、現在各施設で稼働している中性子

反射率計では、①ビーム強度は格段に上がってきているとはいえ、X線などと比べるとまだ桁違いに弱い。②また、入射角の精度の要請から入射ビームの平行度を上げるため、きつく絞って強度をさらに低下させている。③さらに原子炉中性子源では単色中性子を使って、入射角度を変えるために、頻繁に試料を動かす必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、前節1(1)①, ②を実現するため、以下の角度発散型中性子反射法を開発する。

- (1) 入射ビームは絞って平行化せず、発散したまま使用する。
- (2) 集光ミラーによって発散ビームを、試料表面へ集光して入射させる。
- (3) 試料表面では鏡面反射が起こると仮定し、反射ビームの強度と反射角を位置敏感型検出器により検出する。

これにより、一度に広い入射角範囲の反射率測定を行うことができる。測定に使えるビーム強度が格段に上がり、試料を動かす回数も大きく低減できる。

3. 研究の方法

- (1)高精度中性子ミラーの開発. 試料表面へビームを集光するための高精度中性子ミラーを日本原子力研究開発機構のイオンビームスパッタ装置を用いて開発する。
- (2)高精度非球面基板の開発. 集光するために必要な高精度楕円形状をもつ石英基板を大阪大学の加工装置を用いて開発する。この基板上に上記(1)の中性子ミラーを成膜したものが、中性子集光ミラーである。
- (3)ビームライン実験. 中性子ビームラインにおいて、高精度中性子集光ミラー試作機の特性試験及び、実機集光ミラーを用いた角度発散型中性子反射率測定を行う。

4. 研究成果

(1)高精度中性子集光ミラーの開発については、角度発散型中性子反射法を実現するために必要な大型1次元集光ミラー開発のため、そのミラー成膜技術および基板形状創成法を検討し、集光ミラーを試作した。試作したのは以下の2種であり、ともに400mm長さの1次元楕円形状をもつNiC/Tiスーパーミラーである。

①大阪大学で開発した数値制御ローカルウェットエッチング法による基板形状創成+日本原子力研究開発機構で開発したイオンビームスパッタ装置によるスーパーミラー成膜によるもの。

②数値制御機械加工による1次元楕円形状のアルミ基材へ、イオンビームスパッタ法で成膜した平板薄型スーパーミラーを貼付けて、ミラーの表面形状を出したもの。

各試作機の写真を図1に示す。

特性試験はいずれも単色ビームではなく広帯域波長のパルス中性子ビームのビームラインで行われ、測定は中性子用イメージングプレートを用いて行った。この結果、①のミラーで集光サイズ0.15mm, 強度ゲイン52, ②のミラーで集光サイズ0.64mm, 強度ゲイン6を達成した。また、いずれの集光ミラーで

も、設計した全反射臨界波長3.5Å以上のパルス中性子ビームを、スーパーミラー反射率分布に従う効率で反射、集光していることが確認できた。

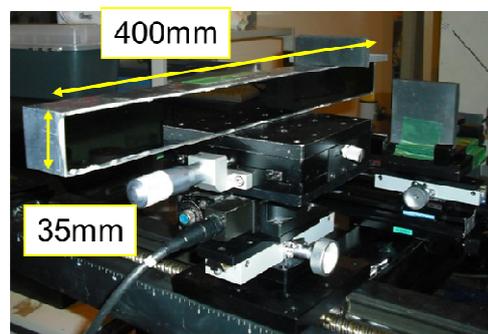
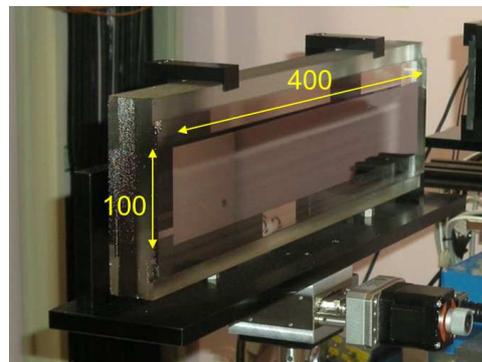
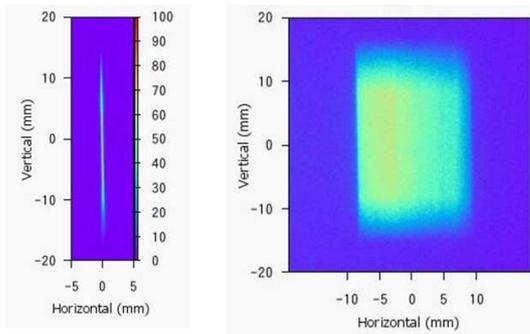


図1. (上) ①の手法で製作した集光スーパーミラー, (下) ②の手法で製作したもの。

特に①の集光ミラーについては、図2～4に集光の2次元強度マップおよび高さ中心で切り出した横方向(集光方向)の強度分布を示す。強度をしめす各軸(図1のz軸および図2, 図3のy軸)の単位はイメージングプレートから得られた蛍光強度で、検出した中性子数に比例する。

特に図4を見ると、赤で示した集光ビームプロファイルのバックグラウンドは、青で示した非集光ビームのそれと同等かそれ以下であることが分かった。したがって、集光ミラーへのビーム照射によるバックグラウンド上昇はほぼ認められなかった。これは楕円基板上に成膜したスーパーミラーでほとんど散漫散乱が起きていないことを示す。

以上試作機の開発と特製測定から、①の集光ミラーは角度発散型中性子反射法への適用へ十分か性能を持っている事が分かった。今回はスーパーミラーでの試作であったが、定常中性子源の中性子反射率計では準単色用多層膜を使えるため、さらに高精度の成膜が行える可能性がある。また、②の結果はまだ角度発散型中性子反射法へ適用するには不十分であるが、この手法は更なる集光ミラー大型化の可能性を秘めており、貼付け法の改善による高度化を検討している。



集光ビーム

非集光ビーム

図2. ①で製作した 400mm 1次元楕円集光ミラーによる集光ビームおよび非集光ビームの2次元強度マップ。

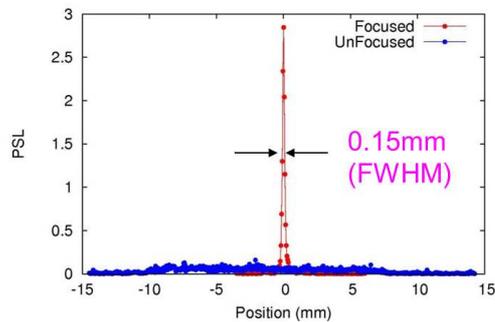


図3. 2次元強度マップ(図1)の高さ中心で横方向(集光方向)の強度分布を切出した図。

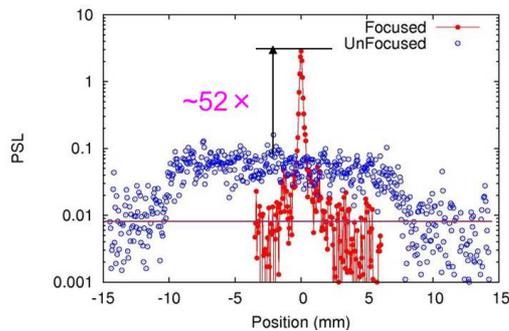


図4. 集光方向の強度分布を log 表示した図。

(2) 角度発散型中性子反射率測定

上記で十分な性能をもつ高精度中性子集光ミラーの製作に目途がついたので、次に角度発散型中性子反射法のための集光ミラー製作およびそれを用いた角度発散型中性子反射率測定を行うこととした。

実験は、日本原子力研究開発機構の研究炉 JRR-3 に設置されている偏極中性子反射率計 SUIREN を想定していた。角度発散型中性子反射法の利点は原子炉の定常中性子ビームラインでより活きるためである。しかし、2011/3/11 の震災以来 JRR-3 は再稼働するこ

とができなかったため、予定を変更して、J-PARC の BL17 に新しく設置された中性子反射率計「写楽」で行うこととした。

SUIREN と「写楽」ではビームラインジオメトリが異なるため、集光ミラーの設計も変更を余儀なくされたが、震災後の J-PARC およびミラー成膜装置(イオンビームスパッタ装置)の復旧で製作が遅れるうちに、大阪大学の数値制御ローカルウェットエッチング装置等に故障がでたため、前記(1)①のミラーを期間中に製作することができなくなった。

そのため、前記(1)②の方式で集光ミラーを製作し、それを以て角度発散型中性子反射率測定を試みた。試料はシリコン基板上的ニッケル単層膜(厚み約 500 Å)であり、反射ビームは RPMT 2次元検出器を用いた。検出器のピクセルサイズ[px]は 100/128 mm である。集光ミラーの形状が十分でないため、試料位置での集光サイズは 2mm 程度と思わしくなかったが、試料ホルダー付属のナイフエッジによって入射させるビームを絞って、反射強度を測定した。ビームラインの概要を図5に示す。ただし、実際の実験では入射ビームを下向きに取出し、この図と上下逆転した形で行った。

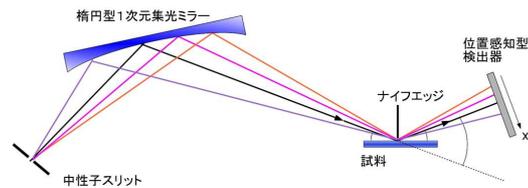


図5. 角度発散型反射率測定時のジオメトリの概要。

測定データは検出位置 (X, Y) および検出時刻 t の関数 $I(X, Y, t)$ として得られる。これから、試料面および集光方向に平行な方向 $(X$ とする) について積分した強度マップ $I(Y, t)$ を図5に示す。縦軸 t (中性子飛行時間) は面直方向の散乱ベクトル Q_z に反比例する量である。 $t = 10 \sim 25$ ms あたりで見える強度の縞が反射率のフリンジに対応する。この縞がやや斜めになっており、検出位置 Y によって異なる Q 領域を観測していることが分かる。

図5から Y 方向の中心付近に 2 ピクセルごとに縦に切りだしたものを、横軸を $1/t^2$ にして示したのが、図6である。 $1/t^2$ は Q_z に比例する値である。この図から、検出位置 Y による反射率フリンジのずれが明確に観測できた。

今回の測定では、実験ビームラインが急きょ変更されたため、最適化した集光ミラーを製作できず、そのため十分広い発散ビームを利用できなかった。最適な集光ミラーを製作すればより広い反射ビームでより明確な反

射率FRINGEの変化が観測できるはずである。

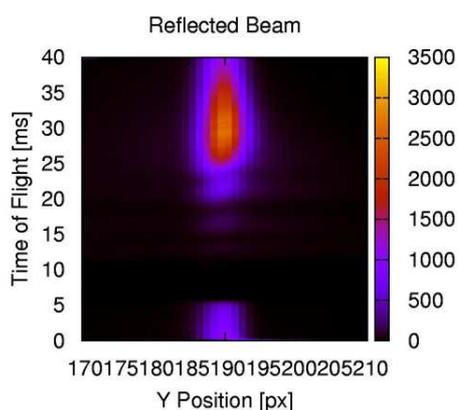


図5. 反射ビーム強度のY-T分布. 横縞の斜め具合が反射率の検出位置Y依存性を示す。

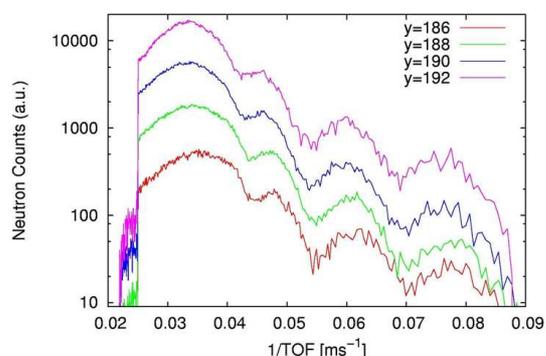


図6. Y-t分布図(図6)から. 中心付近で2ピクセルおきに縦方向にカットしたもの. 見やすくするためオフセットをつけてある. 1ピクセル=100/128mm. 横軸は $1/t \propto Q_z$.

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5件)

- ① Nagano M, Yamaga F, Yamazaki D, Maruyama R, Hayashida H, Soyama K, Yamamura K, “One-dimensional neutron focusing with large beam divergence by 400mm-long elliptical supermirror”, J Phys Conf Series 340: 012034_1-6 (2012).
- ② Takeda M, Yamazaki D, Soyama K, Maruyama R, Hayashida H, Asaoka H, Yamazaki T, Kubota M, Aizawa K, Arai M, Inamura Y, Itoh T, Kaneko K, Nakamura T, Nakatani T, Oikawa K, Ohara T, Sakaguchi Y, Sakasai K,

Shinohara T, Suzuki J, Suzuya K, Tamura I, Toh K, Yamagishi H, Yoshida N, Hirano T, “Current Status of a New Polarized Neutron Reflectometer at the Intense Pulsed Neutron Source of the Materials and Life Science Experimental Facility (MLF) of J-PARC”, Chin J Phys 50, 161-170 (2012).

- ③ Maruyama R, Yamazaki D, Okayasu S, Takeda M, Zettsu N, Nagano M, Yamamura K, Hayashida H, Soyama K, “Effect of Si interlayers on the magnetic and mechanical properties of Fe/Ge neutron polarizing multilayer mirrors”, J. Appl. Phys. 111, 063904 (2012).
- ④ Nagano M, Yamaga F, Zettsu N, Yamazaki D, Maruyama R, Soyama K, Yamamura K, “Development of fabrication process for aspherical neutron focusing mirror using numerically controlled local wet etching with low-pressure polishing”, Nucl Instrum Meth A 634, S112-S115 (2011).
- ⑤ Yamazaki D, Maruyama R, Soyama K, Takai H, Nagano M, Yamamura K, “Neutron beam focusing using large-m supermirrors coated on precisely-figured aspheric surfaces”, J Phys Conf Series 251, 012076 (2010)

[学会発表] (計5件)

- ①山崎 大, 「高性能中性子集光ミラーの開発」, 日本原子力学会春の年会, 2013/3/28, 近畿大学(東大阪)
- ②山崎 大, ” Neutron Beam Focusing for GISANS Measurements at Polarized Neutron Reflectometer “SHARAKU” (BL17)”, GISAS2012, 2012/11/14, 京都工芸繊維大学
- ③山崎 大, “Development of Focusing Supermirrors for GISANS Measurements at BL17 “SHARAKU” of J-PARC/MLF”, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering, 2011/11/23, エポカルつくば
- ④山崎 大, 「高精度楕円スーパーミラーによる白色中性子集光(II)」, 日本物理学会 2010 秋季大会, 2010/9/24, 大阪府立大学

⑤山崎 大, 「大型中性子集光ミラーの開発」,
日本原子力学会 2010 秋の大会, 2010/9/17,
北海道大学

〔その他〕

科学新聞 2011/8/12 に記事掲載
「世界最高性能の中性子集光技術」

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山崎 大 (YAMAZAKI DAI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・J
- P A R Cセンター・副主任研究員
研究者番号：80391259

(2) 研究分担者

丸山龍治 (MARUMYAMA RYUJI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・J
- P A R Cセンター・研究員
研究者番号：90379008

(3) 研究分担者

曾山和彦 (SOYAMA KAZUHIKO)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・J
- P A R Cセンター・研究主席
研究者番号：90343912

(4) 研究分担者

山村和也 (YAMAMURA KAZUYA)
大阪大学・工学研究科・准教授
研究者番号：60240074