

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01917

研究課題名（和文）多層膜中性子ミラーシートによる集光光学系開発と応用

研究課題名（英文）Development and application of neutron focusing optical device by multilayer mirror sheets

研究代表者

日野 正裕（Hino, Masahiro）

京都大学・複合原子力科学研究所・准教授

研究者番号：70314292

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,000,000円

研究成果の概要（和文）：京大複合研のイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)を用いて多層膜中性子ミラーシートによる実用的な集光デバイスの実現は未だ道半ばであるが、多層膜中性子ミラーの反射性能向上及び膜応力の制御研究を通じて成膜プロセスの高度化に成功した。そしてこの知見を活かし、高臨界角かつ高反射率な回転楕円体集光スーパーミラーの量産に成功するとともにその集光ミラーを評価し、新しい中性子散乱手法である集光TOF-MIEZE測定法の新たな可能性も実験的に示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

中性子を利用した各種研究や材料等の分析は学術、産業利用の両面において発展を続けている分野であり、今後中性子科学の飛躍的向上には、如何に実効的中性子強度を上げるか重要で、その有力な一つとして中性子集光がある。中性子は、曲げることが大変難しい。低速中性子を曲げ（反射）、より高い効率で試料まで導き、さらに偏極等の中性子を制御するデバイスとして、多層膜中性子ミラーは非常に重要で、本研究は多層膜中性子ミラーを高度化し集光光学系を開発、応用研究を展開した。

研究成果の概要（英文）：We have succeeded in improving the coating process of neutron supermirror through research on improving the reflection performance of multilayer neutron mirrors and suppressing the film stress although the realization of a practical focusing device made of multilayer mirror sheets is still in the middle.

By using the improvement, we also succeeded in mass coating high-m supermirrors on ellipsoidal metal substrates with high reflectivity. We also experimentally showed new feasibilities of the focusing TOF-MIEZE spectroscopy, which is a new neutron scattering technique.

研究分野：中性子光学

キーワード：中性子光学 多層膜 低速中性子集光

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

東海村の J-PARC やアメリカの SNS が稼働し、ヨーロッパの ESS や中国の CSNS といった大規模中性子源が建設され数年以内にビーム運転を開始される(その後、ESS は 2026 年の稼働となった)。これらの中性子利用は生命・物質科学研究から高エネルギー物理研究、産業利用まで多岐にわたるが、その大多数は低速中性子ビームによる中性子散乱実験である。散乱実験に十分な中性子ビーム強度を得るために、大規模中性子源が必要となる。中性子科学は中性子ビーム強度に非常に制限された学術分野である。

J-PARC をはじめ現在の大規模中性子源は工学的にかなり最適化されており、今後の中性子科学の飛躍的向上には、如何に実効的中性子強度を上げるか重要で、その有力な一つとして中性子集光がある。低速中性子の運動エネルギーは室温以下であるため、生体試料でもほとんどダメージを与えることが無く、S/N も向上できる集光にデメリットは無い。しかし中性子は、曲げることが大変難しい。低速中性子を曲げ(反射)、より高い効率で試料まで導き、さらに偏極等の中性子を制御するデバイスとして、多層膜中性子ミラーは非常に重要な位置を占めている。

2. 研究の目的

多層膜中性子ミラーはブラッグ反射を利用して、モノクロメータや、膜厚を少しずつ変えながら積層することで広い波長範囲で全反射できるスーパーミラーとして使用でき、低速中性子ビーム輸送に必須なデバイスとなっている。この多層膜中性子ミラーの性能を究極まで上げた集光光学系を実現し、従来の実効中性子強度の限界を超えて中性子科学の飛躍的な向上への道を示すことを目指す。中性子反射性能を持つ多層膜だけで構成された自立膜(多層膜中性子ミラーシート)を用いた集光デバイス開発の可能性を探るとともに、多層膜中性子集光ミラーの利用展開を検討する。

3. 研究の方法

京都大学複合原子力科学研究所はイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)を用いて世界最高クラスの高性能中性子ミラー成膜が可能であり、中性子導管等の大型の中性子ミラー開発も行ってきた。波長 0.1 nm の中性子のニッケル(Ni)の全反射臨界角は 0.1 度で、1 nm でも 1 度である(スーパーミラーは反射率とこの Ni の全反射臨界角に対して m 倍の入射角で全反射できる性能を指標とする)。そのため中性子ビームの強集光には高臨界角(つまり m の大きい)スーパーミラーが必須となるが、高性能な中性子スーパーミラーの実現には、層間の拡散だけでなく基板の表面粗さも 0.3nm 程度以下に抑える必要がある。また Porod 則で示されるように薄膜の中性子反射率は θ^{-4} で減衰するので、臨界角の大きい高性能スーパーミラーの実現には、薄い層が劇的に多く必要になる(層数は m^4 以上で増加： $m=4$ でも 1000 層程度必要)。高臨界角のスーパーミラーでは積層による界面粗さの成長や剥離のリスクも大幅に高まる(特に曲率の大きな曲面はそのリスクが劇的に高まる)。また界面粗さは膜厚と共にどうしても増加するため、ある程度で厚みを抑える必要がある。また膜厚が厚すぎると形状制御もさらに難しくなる。そこで多層膜中性子ミラー自体の性能向上検討とともに、多層膜中性子ミラーシートの製作、制御手法を探索した。多層膜中性子ミラーシートは、スーパーミラーの膜厚分布又は単一厚みの膜厚分布とし、全膜厚 5~15 μm 程度の適用範囲で、成膜条件を変化させ、ニッケルリンメッキ (NiP) 等の裏打ち材を含め形状制御の検討を行った。多層膜中性子ミラーとしての性能向上にも寄与するため、反射性能向上と膜応力を緩和する成膜条件の探索に注力した。成膜条件の最適化のための膜厚評価は X 線反射率計を中心に利用し、中性子反射率測定は、KUR CN-3 ビームライン、J-PARC MLF BL06(VIN ROSE)、BL16 (SOFIA) 等を用いた。

4. 研究成果

KUR-IBS を用いて多層膜中性子ミラーの反射性能向上及び膜応力の制御を行うための中間層の開発を行った。ここで中間層は NiC (ニッケルと炭素の合金) 膜と Ti(チタン)膜の間に、0.3nm 以下程度の中間層を入れることで、界面拡散を抑えかつ膜応力の緩和も目指した。中間層の材質は、中性子の散乱長や吸収を考慮し、炭素 (C)や炭化シリコン (SiC)等を中心に条件探索を行った。特にこれらの研究から SiC を用いて世界最高レベルの高臨界角となる $m=5.3$ の偏極スーパーミラーの新たな材質として利用できることを確認した(図 1)。また中間層に炭素をほとんどスパッタ収率が得られない低エネルギー条件で、厚み換算としては 0.1nm 未満を入れる

ことで、さらに界面粗さが改善する知見が得られた。これは $m=10$ に対応する面間隔 $d=3\text{nm}$ (1層の厚みは 1.5nm) のように薄い多層膜においても有効であった。ただ中間層の厚みは、多層膜の幕厚分布同様中性子反射率を維持するための制約もあり、膜応力については大きな改善は得られなかった。さらに中間層として炭素を入れることにより、多層膜シートとしては脆くなり、途中の成膜失敗及びシートとして取得すること自体が困難になってしまった。また裏打ち材として、NiC/Ti スーパーミラーに NiC 膜を追加することで、NiP メッキが再現性良く出来ることは確認できたが、裏打ち材についてもうねりを取り形状制御することが難しく、またメッキの課程で成膜が剥離せず、適切なメッキ条件を追い込めなかった。

中間層の有無に関係なく、多層膜ミラーシートは延伸させることが依然困難で、そのため平面から曲面を構築する時のつなぎ目によるデットスペースや接着剤による中性子ロス、バックグラウンド増加等の問題が無視できない。平面シートから曲面を構築することで、集光デバイスの製作スピードの飛躍的な向上が期待できるが、近年では金属を用いてもサブナノメートルレベルの非球面鏡面マンドリル (mandrel) が製作でき、その製作スピードとコストも中性子ミラー製作に十分に利用可能なレベルとなりつつあった。また形状精度が高く、つなぎ目もほとんどなく集光ミラーが再現性良く製作することを目指して、凸型の鏡面マンドリルから多層膜ミラーシートを転写する手法についても検討を行った。最大 Φ 130mm 、長さ 250mm までの凸型鏡面マンドリルを設置して多層膜成膜可能な治具を製作し、成膜条件の探索を行った。成膜レートが非常に限られるため、図 2 に示すように同時成膜し収量を稼ぐことを試みた。ただ、既に導入から 20 年が経過し、老朽化した KUR-IBS の駆動機構への負荷が大きく、装置の連続故障の原因になってしまった。

一方、マンドリルの製作は、金属基板の加工技術は様々な形状に展開可能であること、また成膜条件の探索に

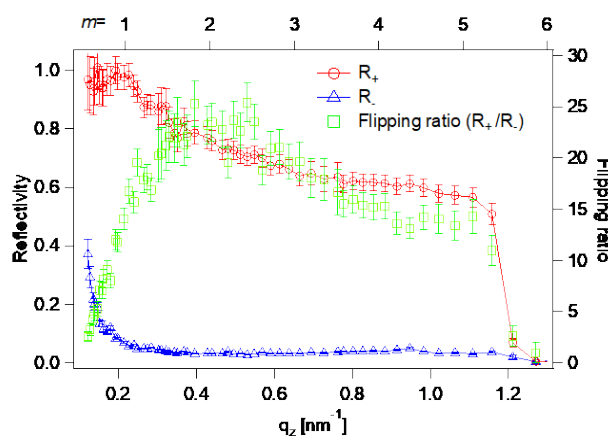


図 1 Fe/SiC(Si)偏極スーパーミラーの偏極反射率



図 2 製作した鏡面マンドリルを KUR-IBS 用ジグにセットした様子 (長さ 250mm (両端)、長さ 100mm (中心))。

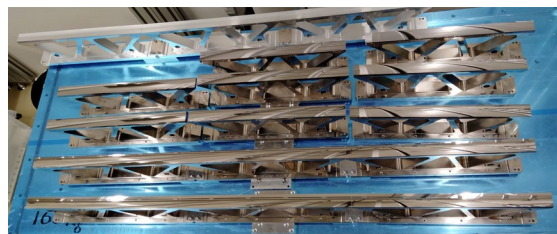


図 3 成膜量産に成功した $m=6$ NiC/Ti(C)回転楕円体スーパーミラー

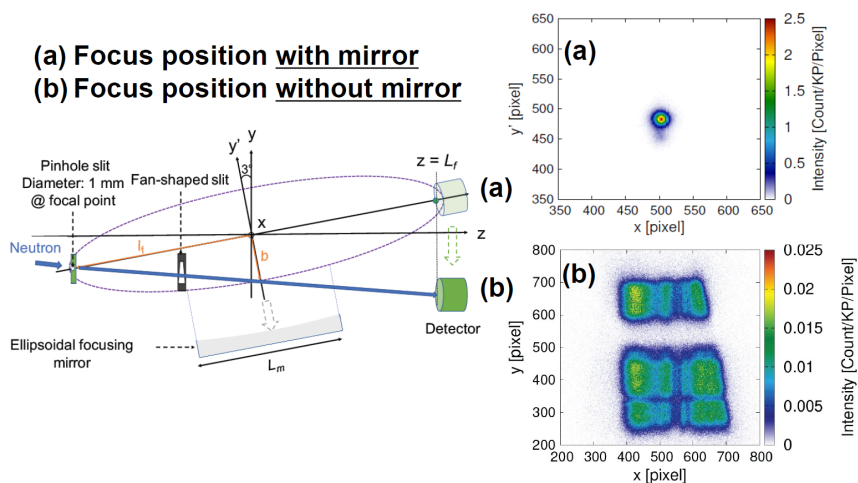


図 4 $m=6$ NiC/Ti(C)回転楕円体スーパーミラーによる集光スポットとミラーの無い場合のダイレクトビーム

より、可能な形状も広がった。また量産プロセスにおいて問題となった基板の洗浄管理技術も進展した。そこで中間層による反射性能向上及び膜応力の制御の知見を活かし、凹型の鏡面金属基板に直接成膜する集光スーパーミラーの高度化を行い、集光ミラーの利用展開を進めた。図3に長さ30cm回転楕円体基板[1]に $m=6$ NiC/Ti(C)多層膜を成膜し、量産に成功した写真を示す。またその集光ミラー実験配置及び集光スポットを図4に示す。ここで検出器の1pixelは0.11mmであり、 $\Phi 1\text{mm}$ のピンホールから扇状スリットを通過し2.5m飛行した中性子は長さ90cmの $m=6$ NiC/Ti(C)回転楕円体集光ミラーによって、図4(a)のように半値全幅(FWHM)は2.2

mmの集光スポットになった。一方、集光ミラーが無い場合は図4(b)のように扇状スリット形状を残し、約 $4.5 \times 3\text{cm}^2$ に広がっている。またここでピンホールに入射する中性子は、中性子導管によって輸送されたものであり、角度分布に応じた強度むらが生じている。図5に図4(b)のダイレクトビーム強度で図4(a)の反射ビーム強度を割った波長依存のスペクトルを示す。右軸は反射率に対応し、全波長におけるダイレクトビーム強度 263 ± 0.25 [Count/KP] に対して反射ビーム強度は 222 ± 0.22 [Count/KP] であり、図4(b)のように広がった中性子ビームの85%が図4(a)の集光スポットに集まったことを確認した。これらの開発した多層膜ミラーを用いて新しい中性子散乱分光法である集光TOF-MIEZE測定法の新たな可能性を実験的に示し[2-5]、さらに中性子共鳴スピンエコー分光器で達成できなかった1neV以下のエネルギー分解能の実現に道を拓く新たな集光ミラー利用法の提案[4,6]につながった。

参考文献

- [1] T. Hosobata, M. Hino, H. Yoshinaga, T. Kawai, Hitoshi Endo, Yutaka Yamagata, Norifumi L. Yamada, K. Hori, T. Oda and S. Takeda, JPS Conf. Proc. 22, 011010 (2018) (7 pages)
- [2] F. Funama, M. Hino, T. Oda, H. Endo, T. Hosobata, Y. Yamagata, S. Tasaki, Y. Kawabata, JPS Conf. Proc. 33, 011088 (2021) (7 pages)
- [3] F. Funama, M. Hino, T. Oda, H. Endo, T. Hosobata, Y. Yamagata, S. Tasaki, Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques 14 (1) (2020) S50-S55.
- [4] 船間史晃、京都大学 博士論文, 2022
- [5] M. Hino, T. Oda, H. Endo, N. L. Yamada, H. Seto, H. Oshita, Yuji Kawabata, J. Phys.: Conf. Ser. 1316 012006(2019) (9pages)
- [6] F. Funama, S. Tasaki, M. Hino, T. Oda, H. Endo, Nucl. Inst. Meth. A1010 (2021) 165480 (6pages).

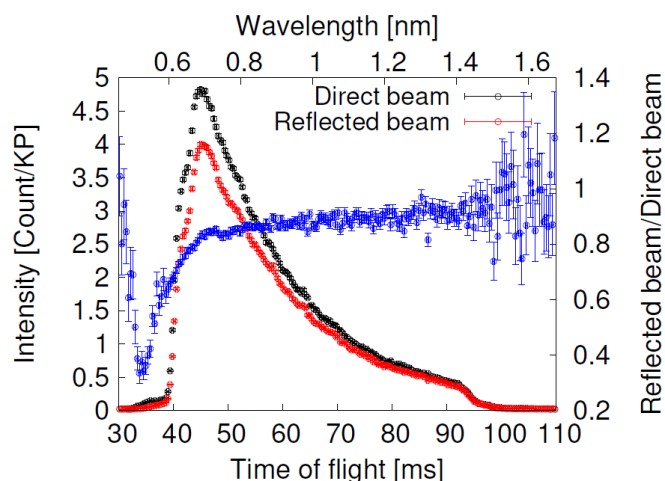


図5 ダイレクトビーム（ミラー無）と反射ビーム（ミラー有）のTOFスペクトルの比較。右軸は反射ビーム強度をダイレクトビーム強度で割った値(青点)に対応

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Hino Masahiro, Oda Tataro, Endo Hitoshi, Yamada Norifumi L., Seto Hideki, Ohshita Hidetoshi, Kawabata Yuji	4. 巻 1316
2. 論文標題 A study of TOF-MIEZE reflectometry for nanomagnetic dynamics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012006 ~ 012006
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/1316/1/012006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 F. Funama, M. Hino, T. Oda, H. Endo, T. Hosobata, Y. Yamagata, S. Tasaki,	4. 巻 14
2. 論文標題 Observation of TOF-MIEZE signals with focusing mirrors at BL06, MLF, J-PARC	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques	6. 最初と最後の頁 S50-55
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1134/S1027451020070149	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 F. Funama, M. Hino, T. Oda, H. Endo, T. Hosobata, Y. Yamagata, S. Tasaki,	4. 巻 33
2. 論文標題 A Study of Focusing TOF-MIEZE Spectrometer with Small-angle Neutron Scattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc	6. 最初と最後の頁 11088
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.33.011088	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 3件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Masahiro Hino
2. 発表標題 Neutron resonance spin echo spectrometers at BL06, "VIN ROSE" at J-PARC MLF and ellipsoidal focusing supermirror developments
3. 学会等名 AOCNS 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M.Hino, T. Hosobata, T. Oda, H. Endo, N.L. Yamada, K.Hori, F. Funama, Y. Yamagata, Y. Kawabata
2. 発表標題 Recent development of multilayer neutron mirror at KURNS
3. 学会等名 ECNS2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M.Hino, T. Oda, H. Endo, K.Mori, F. Funama, Y. Kawabata
2. 発表標題 Towards larger-m polarizing neutron supermirror
3. 学会等名 J-PARC Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 日野正裕, 細畠拓也, 山形豊, 川端祐司
2. 発表標題 低速中性子用大面積精密吸収パターンの製作手法開発
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 日野正裕, 細畠拓也, 山形豊, 川端祐司
2. 発表標題 低速中性子用大面積精密吸収パターンの製作手法開発
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masahiro Hino
2. 発表標題 Current status and perspective of VIN ROSE at J-PARC MLF
3. 学会等名 Polarized Neutron for Condensed Matter Investigation (PNCMI2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 日野正裕, 小田達郎, 細畠拓也, 遠藤仁, 河合利秀, 吉永尚生, 武田晋, 山田悟史, 山形豊, 瀬戸秀紀, 川端祐司
2. 発表標題 J-PARC/MLF BL06 中性子スピネコー分光器群(VIN ROSE)と集光ミラー開発
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 日野正裕, 細畠拓也, 吉永尚生, 小田達郎, 遠藤仁, 山田悟史, 河合利秀, 竹田真宏, 池部壮太郎, 山澤建二, 山形豊, 川端祐司
2. 発表標題 回転楕円体中性子集光スーパーミラー開発と展望
3. 学会等名 日本中性子科学会第18回年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 日野正裕, 小田達郎, 遠藤仁, 細畠拓也, 船間史晃, 山田悟史, 河合利秀, 吉永尚生, 中島多朗, 山形豊, 瀬戸秀紀, 川端祐司
2. 発表標題 J-PARC MLF BL06 中性子共鳴スピネコー分光器群(VIN ROSE)と集光スーパーミラー開発
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 日野正裕
2. 発表標題 中性子反射鏡用多層膜の製作と中性子利用
3. 学会等名 2019年度精密工学会春季大会公開シンポジウム「精密光学部品の加工技術と計測技術」(招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/neutron/optics/

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	細畠 拓也 (Hosobata Takuya) (00733411)	国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・ 研究員 (82401)	
研究分担者	山形 豊 (Yamagata Yutaka) (70261203)	国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・ チームリーダー (82401)	
研究分担者	小田 達郎 (Oda Tatsuro) (70782308)	京都大学・複合原子力科学研究所・助教 (14301)	2021年8月まで

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	吉永 尚生 (Yoshinaga Hisao) (90795535)	京都大学・複合原子力科学研究所・技術職員 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関