

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360428

研究課題名(和文) 2次元中性子集光デバイス製作法の確立と性能評価

研究課題名(英文) Development of fabrication technique for a two-dimensional neutron focusing mirror and the performance test

研究代表者

日野 正裕 (Hino, Masahiro)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：70314292

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円、(間接経費) 3,990,000円

研究成果の概要(和文)：量産可能な2次元中性子集光ミラー製作のキーデバイスとして、460mmの大面積でNiC/Tiスーパーミラーシート製作手法を確立した。これは従来の5倍以上の面積に相当しており、この大面積製膜を可能としたことで、J-PARC MLF BL06ビームライン建設や京大炉の小角散乱分光器等の高度化にも貢献をした。 $m>4$ のスーパーミラーシートはサポート材無しの自立膜でかつ歩留まりも100%に近い製作手法を確立した。しかし実用に足る形状の精密制御はいまだ道半ばである。そのため $m<4$ でかつ曲率があまり大きくないスーパーミラーに関しては、現時点では、精密切削・研磨等の他の手法が優位であることを確認した。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in fabricating large-scale self-supporting high- $m$  neutron supermirror and very small  $d$ -spacing multilayer sheets using ion beam sputtering (IBS) instrument at KURRI. Before this study, the maximum deposition size at the KUR-IBS was limited to 200 mm in diameter and it was not enough large to fabricate neutron guide tube. In this study, we have developed new fabrication techniques and enlarged the maximum size to 460 mm in diameter. This result was a significant contribution to build a new beam line at BL06 at J-PARC and improve SANS monochromators at KURRI. The supermirror sheet was peeled off by using replica technique and the reflectivity was almost same with that of supermirror fabricated by usual process. The sheet is self-supporting and one of ideal focusing device without support material. However, the shape control is still difficult. We studied the scope of application and so far another technique is more promising in case of low- $Q_c(m<4)$  with small curvature.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：中性子光学 スーパーミラー 集光 イオンビームスパッタ スピン干渉

### 1. 研究開始当初の背景

中性子を発生するには原子核反応を用いる必要があり、散乱実験に十分な強度の中性子ビームを得るためには、原子炉や大強度加速器等の大型施設が必要になる。そのため低速中性子ビームは物質研究において、非常に優れた特長を持つにもかかわらず、利用者数や使用法が限られる大変高価なものとなっている。この貴重な中性子を最大限に活用するために、中性子ビームをより高い効率で試料まで導き、さらに偏極やビーム整形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重要な位置を占めている。多層膜中性子ミラーはブラック反射を利用して、モノクロメーターや、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る(図1)。

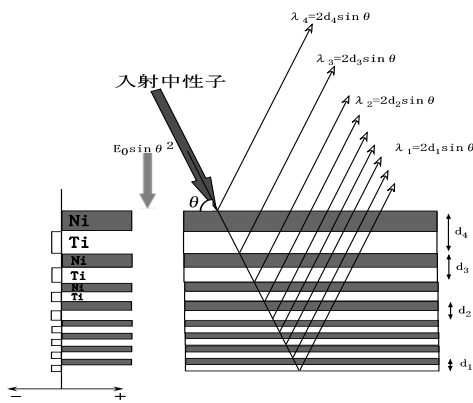


図1 スーパーミラーによる中性子反射の概念図(基板から薄→厚膜)

J-PARC等の大強度中性子源や中性子光学の発展による実効中性子源強度の増加により、微量試料測定の可能性も高まり、集光ミラー開発も活発になっている。しかしトロイダルミラーのような2次元集光は最近の表面加工技術の進展をもってしても容易ではなく、また製膜も難しく大面積化は大変困難である。中性子スーパーミラーの性能は、ニッケルの全反射臨界角の何倍まで反射出来るかで記述される(5Qcや $m=5$ のスーパーミラーとは、Niの全反射臨界角に対して5倍の入射角で全反射できるミラーのこと言う)。

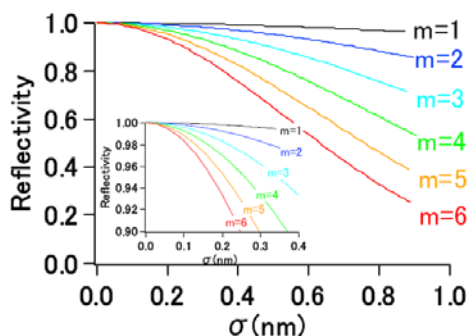


図2 表面・界面粗さによるスーパーミラーの反射率の減少

薄膜の反射率はPorod則で示されるように $\theta^{-4}$ 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、理論的にも $m$ の4乗、実際にはそれ以上で薄い層が劇的に多く必要になる。また反射率は層が薄くなるほど表面・界面粗さに敏感となり、高臨界角スーパーミラーの実現には、層間の拡散はもちろん、基板から0.3nm程度の表面粗さに抑える必要が出てくる(図2)。

最近の表面加工技術の進展によって、曲面でもナノメートルレベルの粗さで形状加工が可能となってきたが、中性子ミラーが必要な大面積でかつ均一にサブナノメートル以下にすることは、材料の結晶粒界の問題から難しい。また2次元集光では、入射角 $\theta$ が小さく、子午線(ビーム進行方向)の曲率はメートルのオーダーだが、それに垂直なサジタル面の曲率はセンチのオーダーである。曲率が大きく表面粗さを抑えた形状は、加工はもちろん、製膜も難しい。表面粗さの小さい基板であればあるほど加工に時間とコストがかかり、また曲率が大きいほど製膜にも時間がかかる。また性能の高い臨界角の大きなミラーほど製膜に時間がかかり、かつ膜の内部応力による剥離の可能性も劇的に高まるため、大面積が必要な2次元中性子集光ミラーの実現にはいくつもの越えなくてはならない課題がある。

### 2. 研究の目的

本研究では、最近申請者が発明した中性子スーパーミラーシート等の応用により、安価で量産可能な2次元中性子集光ミラーデバイスの製法に道を拓き、その適用範囲を評価することを目的とした。さらに、大型中性子源における既存の分光法の高度化だけでなく、中小型中性子源の利用効率の向上や新しい分光法の開拓に貢献し、低速中性子利用のすそ野を広げる一助となることも目指した。

### 3. 研究の方法

京大炉のイオンビームスパッタ装置(KUR-IBS)を用いて、平滑な基板にレプリカ法でスーパーミラーを製膜し、その形状評価を行った。レプリカ法とは平滑な母型に反射膜を成膜し、その反射膜を基板に転写して反射鏡を製作する方法であり、通常とは逆の順番(基板厚→薄膜)でスーパーミラーを製膜させ、それをポリエチレンテレフタレート(PET)等にサポート材を用いて剥離させ、スーパーミラーシートとし、求める形状の基板に転写させる。これにより製膜は平坦な基板の製膜とほとんど同じコストと時間で製作可能となる。

まず、スーパーミラーシートを歩留まり良く取り出すための製膜手法と剥離方法を確立した。また同時に製膜エリアの大面積化を目指した。そして精密形状制御サポートする

サポート材の探索、膜及び張り付け評価を行い、ミラーとしての適用範囲を評価し、実際の分光器への利用を試みた。

#### 4. 研究成果

KUR-IBS では $\phi 200\text{mm}$  が最大の製膜エリアの設計だったが、製膜条件や治具を改良することにより、 $\phi 460\text{mm}$  程度まで安定的にスーパーミラーの製作を可能とした。これは真空チャンバーに挿入可能な最大サイズである $\phi 500\text{mm}$  に迫る大きさであり、製膜サイズとしては現在の KUR-IBS の限界を達成した。この成果は J-PARC/MLF BL06 スピンエコー分光器群(VIN ROSE)のビームライン建設の礎となっており、約 30m 近い BL06 ビームラインの中性子スーパーミラーはすべて KUR-IBS で製作を行えた(全数反射率のチェックもしており、高い反射性能を有することを確認している)。

また KUR-IBS の大面積化及び膜応力制御の応用をかねて、京大炉の小角散乱分光器(KUR-SANS)のモノクロメーターの開発も行った。新たに鉄鋼材料研究に特化した、 $d=11\text{nm}$ (利用波長 $\lambda=0.44\text{nm}$ 、 $\Delta\lambda/\lambda\approx 20\%$ )の2回反射型ソーラーミラーモノクロメーターと従来からはビーム断面積を約 2.5 倍の 20mm に広げた  $d=7\text{nm}$ (利用波長 $\lambda=0.3\text{nm}$ 、 $\Delta\lambda/\lambda\approx 20\%$ )モノクロメーターの製作を行った。どちらの性能も高く、特に、 $d=7\text{nm}$  のものは、以前と同様の狭いスリット条件における比較でも、KUR-SANS の試料位置での実効中性子強度を約 2.5 倍向上させ、KUR-SANS の高度化に貢献した(今後、このモノクロメーターに適したサイズにビームを拡大することで、トータルで約一桁の性能向上を期待している)。

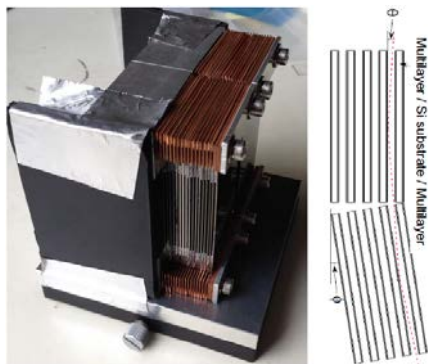


図3 KUR-SANS に実装された  $d=7\text{nm}$  ソーラーミラーモノクロメーターの写真とミラーの配置図

さらに Fe/SiGe 等の偏極ミラーについても大面積での製作に成功し、J-PARC BL06(VIN ROSE)はもちろん、ILL(ラウエ・ランジュバン研究所、フランス)の極冷中性子(VCN)ポートにおける京大グループを始めとした様々な干渉実験に利用されている。

大面積化に成功したことにより、スーパーミラーシートの製作は、当初 8 インチ( $\phi 200\text{mm}$ )シリコンウエファを基板として利用していたが、基板をシリコンからガラスに変更した。基板のコストダウンもはかれるが、ガラス板はシリコン基板ほど表面状態が管理されていない。そこで、フロートガラスを中心に、表面粗さの良い基板を探索し、コーニング社のオーバーフロー法で製作した #1737(現在はイーグル XG)を利用することにした。

図4に $\phi 460\text{mm}$  のガラス円板に製膜された  $m=5$  NiC/Ti スーパーミラー(総層数 3810 層)とそこから作成したスーパーミラーシートの写真を示す。また図5にこの $\phi 460\text{mm}$  のスーパーミラーシートから切り出して、平板のガラス板にシートを張り付けて中性子反射率測定をした結果を図5に示す。

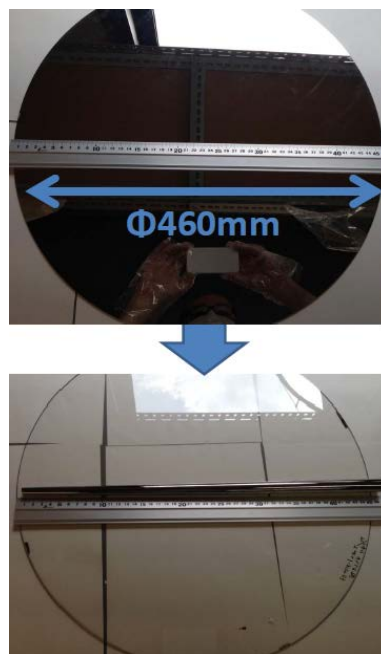


図4 平滑なガラス円板( $\phi 460\text{mm}$ )に製膜された  $m=5$  NiC/Ti スーパーミラー(上)とスーパーミラーシート(下)の写真

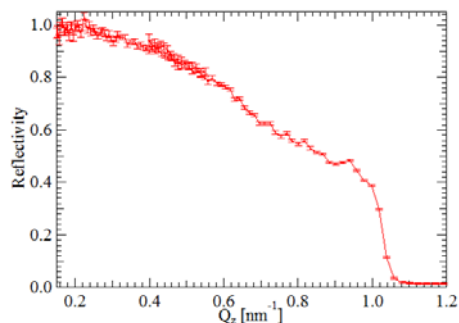


図5  $\phi 460\text{mm}$  の  $m=5$  NiC/Ti スーパーミラーシートより端の部分から $\square 50\text{mm}$  切り出してガラス板に張り付けた中性子反射率



これは、 $\phi 460\text{mm}$  シートの中心ではなく、端の部分から $\square 50\text{mm}$  切り出してガラス板に張り付けたものであり、性能としては最も落ちる部分である。しかし図5に示すように、シートの反射率は通常の製作手法でガラスに製膜したものとほとんど遜色無く、剥がしたことによる反射率の性能劣化はほとんど無かった。

実際、同様のガラス基板で  $d=2\text{nm}$  NiC/Ti 多層膜(総層数 9030 層)を製作し、J-PARC BL16(SOFIA)反射率計で中性子の明瞭な Bragg peak を観測している。 $d=2\text{nm}$  の場合、NiC 層及び Ti 層の各厚さはそれぞれ  $1\text{nm}$  であり、スーパーミラーでは  $m=15$  に対応する。この値は、従来の  $\phi 130\text{mm}$  程度の製膜サイズでの性能と同レベルであり、実効的な製膜レートは一桁以上の性能向上が達成出来た。またこれにより、比較的小型のイオンガンを用いても、大面積の中性子スーパーミラーの製作が可能であることを示せた。

図5において、シートは直径約  $1\text{cm}$  程度に丸めてあるサポート材無し自立膜である。ここでは、スーパーミラーの反射面(厚い膜側)を表面とした場合凹型になっている。PET をサポート材として、剥離させスーパーミラーシートを製作した当初は、転写したい形状とは逆の方向(厚い膜を表面とした場合凸型)に曲がってしまうことが多々あり、形状整形すると亀裂が入ったりして膜が破損した。そこで、製膜条件と剥離手法を改良することで、あらかじめ転写したい形状の方向に曲げることに成功した。これにより  $\phi 460\text{mm}$  の大面積であっても、平板ミラーの製作とほとんど変わらぬ歩留まりで製作出来るようになった。

ただし、これは  $m \geq 4$  の総厚が比較的大きい NiC/Ti スーパーミラーに関しての場合である ( $m=4$  の総厚みは  $7\mu\text{m}$  程度)。  $m < 4$  のスーパーミラーでは、膜厚が薄いため、剛性も弱く、作業中に破損することが多かった。



図6 レプリカ法で  $m=3$  NiC/Ti スーパーミラーに  $\text{Ti} 10\mu\text{m}$  を製膜した写真(KUR-IBS チャンバー内)。Ti の応力によりぼこぼこ浮き上がり全く平坦になっていない。

そこで、均一に厚みの制御も可能でかつ、応力のバランスをとることも考え、無電解ニッケルメッキ等をサポート材として、様々な厚みで試してみたが、圧縮応力であるスーパーミラーと引っ張り応力であるメッキとの応力バランスをうまく取りきれず、大面積のシートはうまく得られなかった。また、図6に示すように、 $10\mu\text{m}$  の Ti 等の単層膜を IBS で製膜し、サポート材の代わりとする試みも見事に失敗した。これは、薄い層の多層構造を持つスーパーミラーシート自体が、応力バランスをとれていることを示唆している。しかし、 $m=5$  のスーパーミラーシートにしても局所的な内部応力によるうねりは大きく、形状整形のためのエポキシ系の接着材が負けるなどしており、形状整形に手こずっており、本研究課題の期間内に集光実験結果が示せなかった。

一方、本研究課題でも、無電解ニッケルメッキを用いて、それを研磨することで、金属基板においても  $0.8\text{nm}$  程度の表面粗さまで平滑な面が達成出来ることを確認した(その後、理研との共同研究等により、 $0.3\text{nm}$  程度まで行けることを確認している)。そのため、現状では、1次元の楕円ミラーや比較的曲率の小さい楕円ミラーでは形状精度が出せる分、シートよりも期待出来るようになってきている(ただし、2014年6月現在、こちらはまだ出来ている訳ではない)。

以上、スーパーミラーシートの製作手法自体は確立出来たが、その形状制御は道半ばである。また  $m < 4$  スーパーミラーの2次元集光に関しては精密切削・研磨による集光デバイス製作の方が現在は期待出来ることが分かってきた(1次元楕円ミラーは製膜まで成功している)。ただし、中性子ビームの究極的な強集光は、サポート材等の余分なものが無い自立膜のシートを形状制御して多重化することである。放射光と異なり、体積線源である中性子源では、形状精度は  $0.1\text{mrad}$  の精度充分であり、放射光の100倍以上条件は緩い。そのため、本研究課題で自立膜の製作手法が確立した  $m > 4$  スーパーミラーシートは魅力的な2次元集光デバイスのキーパーツである。本研究課題で、形状評価の環境も整ってきたので、引き続きシートの形状制御の改善を進めることが可能であり、形状精度要求の甘い極冷中性子から多重シートの利用を計画している。

## 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 3 件)

- ① Tatsuro Oda, Masahiro Hino, Masaaki Kitaguchi, Yuji Kawabata, Numerical Simulation of BL06 neutron beam line

for VIN ROSE at J-PARC/MLF, 査読有, Progress in Nuclear Science and Technology, Vol.4(2014), 214-217.

- ② Tatsuro Oda, Masahiro Hino, Masaaki Kitaguchi, Yuji Kawabata, Numerical simulation of a beam divergence correction for NRSE spectrometer using polygonal 2D focusing supermirrors, 査読有, Physics Procedia, 42(2013)121-124.
- ③ Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Masaaki Kitaguchi, Norifumi L. Yamada, Hidenori Sagehashi, Yuji Kawabata, Hideki Seto, Current Status of BL06 Beam Line for VIN ROSE at J-PARC/MLF, 査読有, Physics Procedia, 42(2013)136-141.

[学会発表] (計 25 件)

- ① 日野正裕, 川端祐司, 小田達郎, 遠藤仁, 山田悟史, 瀬戸秀紀, 北口雅暁, J-PARC/MLF BL06 中性子スピネコー分光器群 (VIN ROSE) 建設の現状、日本物理学会第 69 回年会、2014/3/30、東海大学湘南キャンパス (神奈川県)
- ② 日野正裕, 小田達郎, 安部豊, 川端祐司, ビーム利用のための指向性極冷中性子源の検討、日本原子力学会春の年会、2014/3/28、東京都市大学 (東京)
- ③ 日野正裕, 小田達郎, 遠藤仁, 山田悟史, 北口雅暁, 瀬戸秀紀, 川端祐司, 集光スーパーミラーと VIN ROSE 開発の現状、日本中性子科学会第 13 回年会、2013/12/12、さわやか千葉県民プラザ (柏)
- ④ Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Yutaka Abe, Yuji Kawabata, A numerical study of cold neutron moderator for neutron beam utilization facility, 4th International Meeting of Union for Compact Accelerator-driven Neutron Sources (UCANS-IV), 2013/9/27, Hokkaido University (札幌)
- ⑤ 小田達郎, 日野正裕, 北口雅暁, 川端祐司, Thomas Brenner, Peter Geltenbort, 極冷中性子を用いた高分解能 MIEZE 型スピネコー分光器の開発、日本原子力学会春の年会、2013/3/28、近畿大学 (大阪)
- ⑥ 日野正裕, 小田達郎, 北口雅暁, 川端祐司, 山田悟史, 下ヶ橋秀典, 瀬戸秀紀, J-PARC BL06 ビームライン建設と集光デバイス開発の現状、日本原子力学会春の年会、2013/3/28、近畿大学 (大阪)
- ⑦ 日野正裕, 小田達郎, 北口雅暁, 川端祐司, 山田悟史, 下ヶ橋秀典, 瀬戸秀紀, J-PARC BL06 ビームライン建設と VIN ROSE 開発の現状、日本中性子科学会第 12 回年会、2012/12/11、京都大学 (京都)
- ⑧ Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Masaaki Kitaguchi, Norifumi L. Yamada,

Hidenori Sagehashi, Yuji Kawabata, Hideki Seto, Current status and perspective of VIN ROSE at BL06 at J-PARC/MLF, QENS&WINS2012, 2012/10/2, Nikko Public Meeting Hall (日光)

- ⑨ 日野正裕, 小田達郎, 北口雅暁, 川端祐司, Thomas Brenner, Peter Geltenbort, ILL における極冷中性子 MIEZE 分光器開発、日本原子力学会秋の大会、2012/9/19、広島大学 (広島)
- ⑩ Masahiro Hino, Development of an advanced neutron guide system at J-PARC/MLF BL06 for VIN ROSE, International Workshop on Neutron Delivery Systems 2012, 2012/7/9, ILL Grenoble (France)
- ⑪ 日野正裕, 小田達郎, 北口雅暁, 川端祐司, 山田悟史, 下ヶ橋秀典, 瀬戸秀紀 中性子共鳴スピネコー分光器群 (VIN ROSE) 建設の現状と展望、日本物理学会第 67 回年会、2012/3/25、関西学院大学 (兵庫県)
- ⑫ 日野正裕, 小田達郎, 北口雅暁, 川端祐司, 山田悟史, 下ヶ橋秀典, 瀬戸秀紀 J-PARC BL06 中性子共鳴スピネコー分光器群 (VIN ROSE) 用ビームライン建設の現状と展望、日本原子力学会春の年会、2012/3/20、福井大学 (福井)
- ⑬ Masahiro Hino, Development of BL06 (VIN ROSE) beam line at J-PARC/MLF, The 20 Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS-XX), 2012/3/8, Bariloche (Argentina)
- ⑭ Tatsuro Oda, Masahiro Hino, Masaaki Kitaguchi, Yuji Kawabata, Toru Ebisawa, N. L. Yamada, Hideki Seto, Numerical Simulations of Neutron Beam Line for Resonance Spin Echo Spectrometers (VIN ROSE), AOCNS2011, 2011/11/22, エポカルつくば (茨城県)
- ⑮ Masahiro Hino, Tatsuro Oda, Masaaki Kitaguchi, Yuji Kawabata, N. L. Yamada, Hideki Seto, Toru Ebisawa, Current status of VIN ROSE for J-PARC and large-scale supermirror developments at KURRI, 1st Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering2011 (AOCNS2011), 2011/11/22, エポカルつくば (茨城県)
- ⑯ 日野正裕, 北口雅暁, 川端祐司, 小田達郎, 2 次元中性子集光デバイスの開発、日本原子力学会秋の大会、2011/9/20、北九州国際会議場 (福岡県)

[図書] (計 0 件)

〔産業財産権〕

○取得状況（計 1 件）

名称：中性子ミラーの製造方法及び中性子ミラー

発明者：日野正裕、北口雅暁、川端祐司

権利者：同上

種類：特許査定中(2014年6月12日現在)

番号：特許査定中(2014年6月12日現在)

取得年月日：2014年6月末（予定）

国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/neutron/optics/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

日野 正裕 (Masahiro Hino)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号：70314292

### (2) 研究分担者

北口 雅暁 (Masaaki Kitaguchi)

名古屋大学・現象解析センター・准教授

研究者番号：90397571

川端 祐司 (Yuji Kawabata)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号：00224840

杉山 正明 (Masaaki Sugiyama)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究者番号：10253395