試料水平型パルス中性子反射率計

鳥飼 直也

(三重大学 大学院工学研究科)

Pulsed-neutron Reflectometers with a Horizontal Sample Geometry

Naoya Torikai

Department of Chemistry for Materials, Mie University

Keywords : CRISP, SURF, SPEAR, 試料水平型パルス中性子反射率計

1. はじめに

中性子反射率法は、中性子が物質の界面で示す光学的な反射現象を利用して、一般に観察が難しい極薄な物質の表面・界面や薄膜の構造をサブ nm スケールの高い空間分解能でかつ非破壊で調べられる、物質界面の研究に極めて有力な測定手法である[1-4]。中性子反射率計は、装置コンポーネントの構成がシンプルで、かつ比較的安価であることから、原子炉、パルス中性子源に拘らず、多くの実験施設で複数台の反射率計が設置され物質界面研究に利用されている。

反射率計は、装置上での試料の置き方により垂直型と水平型に大別される。気/液や液/液界面のような自由界面は垂直に立てられないことから、その測定は試料水平型の装置に限られるが、それ以外ではどちらのタイプの反射率計でも測定できる。水平型の装置では、水平に保持した試料に中性子を斜入射させるために下方にビームを取出す必要がある、ビームライン設計にやや難しさがある。

ここでは、筆者がこれまでに利用した英国 ISIS と米国 LANSCE の試料水平型パルス中性子反射率計について簡単に紹介する。

2. 英国 ISIS の反射率計

筆者が主に訪れた 2000 年前後には、まだ J-PARC や SNS は立ち上がっておらず、当時、加速器出力が 160 kW の ISIS はパルス中性子源では世界最強であった。単純に加速器出力で比べると KENS (3 kW) と 50 倍もの強度差があり、当然ではあるが、初めて ISIS で実験を行った時に試料のアライメントが非常に短い時間で済むことに感銘を受けた。その当時の ISIS には、1980 年代前半に中性子反射率法による物質界面研究の先駆けとなった CRISP[5]と、1990 年代半ばに立ち上げられ基本的な設計思想は踏襲しているが CRISP よりも入射ビーム強度が増強された SURF[6]の 2 台の試料水平型の反射率計が稼働していた。

CRISP 及び SURF では、液体水素モデレータからの白色中性子が水平より 1.5 度下向きに取出されている。どちらのビームラインも試料がモデレータを直接見込む形で中性子が導かれているため、中性子発生の瞬間に生じる高エネルギー中性子に由来するバックグラウンドの軽減に T0 チョッパーが用いられている。加速器の運転周期 (50 Hz) と装置の全長から、測定には波長範囲が 0.05-0.65 nm の白色中性子が定常的に用いられる。CRISP と SURF の違いは、CRISP には中性子偏極デバイスが備えられ偏極中性子による反射率測定が可能なのに対し、SURF では集束ミラーにより高い入射ビーム強度が得られることから短時間での時分割測定が優先的に行われる。Fig.1 に、SURF 反射率計の試料台周辺の写真を示す。自由界面を有する試料に周囲から振動が伝わるのを防ぐために、実験室の床面から独立して据えられたコンクリートブロックの上に、アクティブ除振台を設置し、その上に液体トラフ等の試料が置かれる。検出器

Fig.1 A photograph of a sample stage of SURF, taken from downstream of the beamline. A large box for a liquid trough is mounted on it.

については、鏡面反射だけを測定する場合には ^3He 比例計数管、非鏡面反射の観測には位置敏感型検出器 (CRISP: ^3He 一次元 PSPC, SURF: ZnS 二次元シンチレーション検出器) が使われる。Fig.2にSURFの二台の検出器架台をビームラインの上流側から撮影した写真を示す。手前側が ^3He 比例計数管を支えている架台である。鏡面反射率測定では、複数の異なる入射角で得られた反射率曲線を継ぎ足すことで広い q 領域がカバーされる。しかし、自由界面の測定では、試料自身を傾けることが出来ないために、スーパーミラーによる反射を利用して1.5度より小さな角度の下方ビームを作り測定が行われる。Fig.3にはCRISPで一次元PSDを用いて測定したブロック共重合体薄膜[3,7]からの反射強度の二次元マップを示す。このように白色中性子に一次元PSDを組み合わせることで、鏡面反射と非鏡面反射の同時計測が可能である。

Fig.2 A photograph of two detector towers of SURF, taken from upstream of the beamline.

Fig.3 A two-dimensional map of the reflected neutron intensity from a block copolymer thin film forming an alternating lamellar structure.

試料環境装置としては、各種液体トラフ、高温セル等の他に、CRISPには電磁石が用意されている。定常的な測定については、試料ステージに複数の試料を一度にセットし、自動測定が行われる。

現在、ISISには第2ターゲットステーションが

立ち上がり、CRISP, SURFの他に、いずれも試料水平型で、ロングパルスの中性子を利用したそれぞれに特徴を持つ3台の反射率計 (INTER, POLREF, OFFSPEC) [8]が稼働している。

3. 米国 LANSCE の反射率計

LANSCE (加速器出力 80 kW) については、KENS のシャットダウン (2006 年 3 月) 後、海外プロジェクトとして、試料水平型の SPEAR 反射率計[9]を利用する機会を得た。SPEAR も最初の立ち上げは 1980 年代後半と歴史が古く、その後ビームライン設計の変更を経て、現在は液体水素モデレータから水平より下方に 0.9 度の角度で試料がモデレータを直接見込む形でビームが導かれている。高エネルギー中性子の軽減には T0 チョッパーが用いられている。加速器の運転周期が 20 Hz のため、ISIS の反射率計より波長の長い 0.45-1.6 nm の中性子が定常的に使われる。検出器は ^3He 一次元 PSPC が標準で、試料と検出器の間にはバックグラウンド軽減のために真空パスが検出器の上下動に連動するように設置されている。自由界面の測定では、作り出せる下方ビーム角度の制約により、 0.7 nm^{-1} と比較的狭い q 範囲に限られている。

参考文献

- [1]入門講座「中性子反射率測定」(0)-(8), 波紋 18, 220 (2008); 18, 221 (2008); 19, 34 (2009); 19, 101 (2009); 19, 105 (2009); 19, 161 (2009); 19, 165 (2009); 19, 234 (2009); 19, 238 (2009).
- [2]鳥飼直也, RADIOISOTOPES 59, 693 (2010).
- [3] N. Torikai et al., Polym. J. 39, 1238 (2007).
- [4] N. Torikai, In Neutrons in Soft Matter; T. Imae, T. Kanaya, M. Furusaka, N. Torikai, Eds.; John Wiley & Sons, Inc.: New Jersey, 2011; p 115.
- [5] J. Penfold and R. K. Thomas, J. Phys: Condens. Matter 2, 1369 (1990).
- [6] J. Penfold et al., J. Chem. Soc., Faraday Trans. 93, 3899 (1997).
- [7] N. Torikai et al., Physica B 283, 12 (2000).
- [8] J. R. P. Webster et al., Eur. Phys. J. Plus 126, 112 (2011).
- [9] M. Dubey et al., Eur. Phys. J. Plus 126, 110 (2011).