

## 中性子反射率測定法について — 原理と装置 —

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 研究員 武田全康  
京都大学 大学院工学研究科 高分子化学専攻 准教授 松岡秀樹

現在では、原子間力顕微鏡(AFM)などのプローブ顕微鏡(SPM)や走査型近接場光学顕微鏡などの表面ナノ構造解析手法、2次イオン質量分析(ESCA)などの表面分析の飛躍的な向上により、従来の手法では不可能であったナノオーダーの表面構造情報が得られるようになり、ナノテクノロジーの発展に大きく寄与している。表面が重要な機能を果たすのは、表面が物質と真空、あるいは大気との異種物質界面であるからで、一般に固体、液体、気体に限らず、異なる物質が接する界面では、界面の構造と機能が密接に結びついている。これらの表面に対するプローブは、物質内部に埋もれてしまっている界面に対しては全くの無力であることは言うまでもない。

X線や中性子をプローブとする反射率計は、測定対象となる物質の厚さ方向の構造変化を調べる装置であり、表面は言うまでもなく界面のナノ構造をも非破壊的に知ることのできる唯一の実験手法である。一般に反射率測定では、中性子やX線を非常に浅い角度(数度以下)で物質表面に入射し、その反射中性子強度の視射角及び波長依存性を調べる。特に中性子は、X線に比較して物質に対する透過力が非常に大きく、物質中に深く埋もれた界面にも容易に達する。また、X線が苦手とする軽元素に対する感度も大きく、さらに、磁気感受性や周期律表で隣り合う元素の識別能力を持つため、中性子反射率計は、金属、高分子、生物と測定対象を問わない理想的な表面・界面ナノ構造の研究手段である。

しかし、その一方で、X線が軽元素を苦手とするように、中性子が苦手とする測定対象が存在するのも事実である。さらに、X線では物質内部の電子雲の分布という電荷を通して構造を調べるのに対し、中性子は原子核の位置情報から構造を調べる手法であるため、同じ反射率測定であっても得られる情報が相補的であり、両者を組み合わせることで、X線だけあるいは中性子だけを使っているだけではわからない、より詳細な構造情報が得られる場合がある。また、水面上の単分子膜のように測定中に水の蒸発により、環境が変化してしまうような場合や、装置間で試料の環境を保ったまま移動するのが困難な場合には、中性子とX線の反射率同時測定が望ましい。

国外の中性子実験施設では、装置全体の数に占める割合で考えた場合、非常に多くの中性子反射率計が稼働している。世界最大の研究用原子炉を持つフランスのラウエ・ランジュバン研究所(ILL)には3台、2005年から稼働し始めたばかりのドイツミュンヘン工科大の原子炉FRM-IIに3台の反射率計が設置されている。現状で世界最高強度を誇るパルス中性子源を持つ英国ラザフォード・アップルトン研究所のISISには2台の反射率計が設置されているだけでなく、現在建設中の第2ターゲットステーシ

ョンにも3台の中性子反射率計の設置が進められている。

米国の中性子実験施設でも、国立標準技術研究所(National Institute of Standards and Technology, NIST)の原子炉に3台、ロスアラモス国立研究所のパルス中性子源である LANSCE に2台の反射率計が稼働中であり、さらに新しい大強度パルス中性子源である核破砕中性子源(the Spallation Neutron Source, SNS)では、2台の中性子反射率計が稼働し始めている。アジア・オセアニア地区ではオーストラリアの Bragg 研究所の原子炉 Opal に1台の中性子反射率計が設置されている。このように、国外では中性子反射率計は非常に需要の大きな装置である。

国内では、2006年3月に高エネルギー加速器研究機構の物質構造研究所にあったパルス中性子源(KENS)が運用を停止するまでは、KENS に設置されていた PORE (Polarized neutron REflectometer)と ARISA (Advanced Reflectometer for Interface and Surface Analysis)という、白色パルス中性子を利用した偏極中性子反射率計と試料水平型の反射率計に加え、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3 の中性子実験ガイドホールに設置されている2台を含む、計4台の反射率計が利用可能であった。KENS に設置されていた中性子反射率計はパルス中性子の特徴を活かした装置で、飛行時間法を使うことにより、試料や検出器を動かすことなしに、いわゆる $\theta$ -2 $\theta$ スキャンと同等の測定が可能であり、特に測定中に試料やその周辺の機器が動くことを嫌う自由表面の反射率測定には理想的な装置であった。

JRR-3 で現在も稼働している2台の中性子反射率計の内の1台は、京都大学原子炉実験所(KUR)が設置、管理、運営を行っている MINE(Multilayer Interferometer and Refractometer for Neutron)で、主として大学に属する研究者に開放されており、物性研の全国共同利用を通して利用申請を行う。MINE はその英名からも想像できるように、極冷中性子干渉実験装置であり、入射用の極冷単色中性子ビームを作るためのモノクロメータ部、測定部である反射率計、スピン干渉計及び Mach-Zender 型多層膜干渉計により構成される多目的の装置である。

もう一台は、日本原子力研究開発機構(原子力機構)が、中性子光学デバイスの評価や物性研究を目的として設置した、中性子反射率計 SUIREN (Apparatus for Surface and Interface Investigations with Reflection of Neutrons) で、原子力機構の施設共用制度を通して、産業界を含む一般のユーザーに開放されている。SUIREN では、ここ数年、これまでの基礎科学の分野のユーザーからの課題に、中性子利用技術移転推進プログラム(トライアルユース)やトライアルユースを経て施設供用課題に展開していった課題が加わってきたこと、すなわち、産業界からの利用が急激に伸びているのが特徴で、慢性的にビームタイムが不足している状況にある。

このような状況下で、原子力機構の原子力科学研究所(東海村)の敷地内に建設中の J-PARC(Japan Proton Accelerator Research Complex)の実験施設の一つである MLF(Materials and Life Science Facility)で、完成時には世界最高強度を誇る核破砕

中性子源(パルス中性子源)の設置が進められ, 試験段階ではあるが, この5月末から稼働し始めた. MLF には, 自由表面・界面の構造を調べるための試料水平型中性子反射率計と磁性薄膜・多層膜の研究に有効な試料垂直型偏極中性子反射率計の 2 台の中性子反射率計の設置が計画されており, そのうちの試料水平型についてはすでに設置が進められている. これらの反射率計は, PORE, ARISA と同じように飛行時間法が使えるだけでなく, 大強度パルス中性子源の利用により KENS の数百倍から数千倍の測定効率が得られると予想されている.

講演では, 水面上の単分子膜, 細胞膜の表面モデルの構造を調べる手法として, この MLF に設置が進む試料水平型中性子反射率計と組み合わせることを想定した, 中性子や X 線を含む複数のプローブによる同時測定を狙った水面単分子膜複合測定システムの概要を紹介するとともに, 中性子反射率法の原理と, 飛行時間法と $\theta$ -2 $\theta$  スキャン法の特徴, 現在 JRR-3 で稼働中の中性子反射率計 SUIREN の紹介を簡単に行う.

## 水面単分子膜複合測定システム

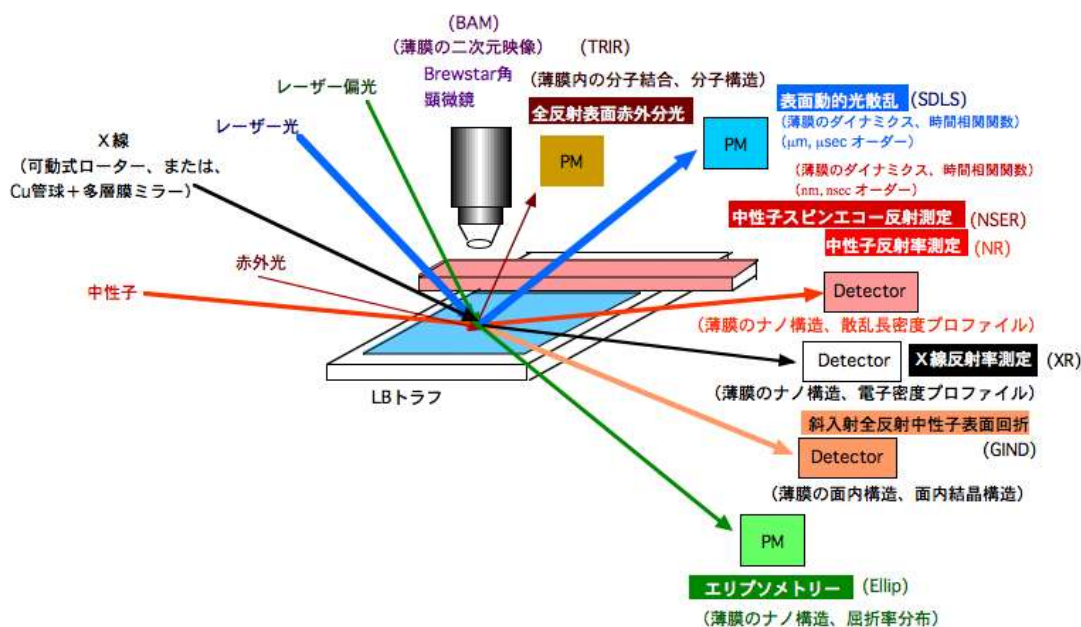


図 水面単分子膜複合測定システムの概念図(松岡).