

# ヴィジュアルな中性子反射率法の開発

Visualization in neutron reflectivity

利用者 桜井健次<sup>1,2)</sup>、Vallerie Ann Innis-Samson<sup>2)</sup>、水沢まり<sup>1)</sup>、Jakub Vaverka<sup>1)</sup>、Marek Vysinka<sup>1)</sup>、David Behal<sup>1)</sup>、武田全康<sup>3)</sup>

Kenji Sakurai<sup>1,2)</sup>, Vallerie Ann Innis-Samson<sup>2)</sup>, Mari Mizusawa<sup>1)</sup>, Jakub Vaverka<sup>1)</sup>, Marek Vysinka<sup>1)</sup>, David Behal<sup>1)</sup>, Masayasu Takeda<sup>3)</sup>

所属 <sup>1)</sup>物質・材料研究機構、<sup>2)</sup>筑波大学、<sup>3)</sup>原子力研究開発機構

キーワード visualization, imaging, reflectivity, surface, interface, thin films, multilayer, scattering length density

## 1. 目的

中性子およびX線反射率法は、薄膜・多層膜の深さ方向の散乱長密度分布を非破壊的に解析し、各層の膜厚や密度、表面・界面のラフネス等のパラメータを決定できる技術である。通常、微小角で数 $\sim$ 10 $\text{cm}^2$  (中性子)あるいは $\text{mm}^2\sim\text{cm}^2$  (X線)のような広面積に照射させて測定が行われており、サンプルがその面積のレベルで均一で、測定結果が良い代表値を与える(「木を見ずとも森を見ればすむ」という前提が成立し、さらに時間的に安定である場合については問題ないが、そうでないケースへの適用に制約があった。以前であれば、「木を見て森を見ない」リスクを回避することの利」だけでも有意義であったが、最近では、サンプル内での個々の場所における層・界面の構造の違いを議論することが避けて通ることができなくなっている。本研究では、中性子反射率法の測定技術に空間分解能を持たせ、visualizationを初めて実現することを目的とする。

## 2. 実験方法

中性子反射率は、単色中性子をサンプル表面に入射させ $\theta/2\theta$ 走査を行うか、白色中性子の反射スペクトルを飛行時間法により取得することにより測定される。そのプロファイルを解析することにより、表面近傍の深さ方向の散乱長密度分布が得られる。これは、サンプル内の場所によりむらがない均一なサンプルを前提としている。それでは、不均一なサンプル、人工的にパターンが作られたサンプルでは、どのようにすればよいだろうか。最も単純明快な方法は、微小ビームを使用し、注目しているサンプル内の各点についての反射率を測定し、必要とあればサンプルをXY走査してマッピングしつつことである。だが、中性子反射率の実験では、もともと十分な強度が取れているわけではなく、測定時間などの点で妥協を余儀なくされているのが実情である。従って、微小ビームを作るために弱い中性子をさらに弱くすることは現実的ではない。そこで、微小ビームを作る技術開発の方向とはまた別に、中性子ビームを小さく切り刻むことなく、大きなビームを利用して信号の統計精度を稼ぎつつ、数学的なアルゴリズムによりvisualizationを行う方向が重要と考えられる。こうした画像再構成法は、中性子散乱の分野ではあまり有名ではないと思われるが、微弱な可視・紫外光やX線・ $\gamma$ 線のイメージング技術としては知られており、当研究室においても、過去に微小ビームを用いない蛍光X線イメージングの方法として研究した経験がある<sup>1,2)</sup>。中性子反射率法へ適用については、中性子科学会でポスター発表した<sup>3)</sup>。

## 3. 実験結果

サンプルからの中性子反射は、ほとんどの場合一方向に長い矩形をしており、その矩形のなかの中性子強度分布は一様であるという仮定のもとに、ポイントディテクタにより積分強度が測定される。しかし、不均一なサンプル、人工的にパターンが作られたサンプルでは、そこに一様ではない強度プロファイルが生じる。そこで、積分強度ではなく、強度プロファイルを十分な空間分解能を持つ1次元または2次元の位置敏感型検出器を用いて測定することが重要である。本研究では、いくつかの特徴ある $\theta/2\theta$ の角度位置に着目し、そこで生じるサンプル面内の構造の違い(反射率の違い)のコントラストによりvisualizationを行うことを意図している。この角度の選び方により、表面、特定の界面、特定の層の内部といった特定の深さに着目した画像が得られる。Central section theoremによれば、サンプル内の(特定条件下での)反射率分布の2次元Fourier変換は、上述の実験で得られる特定の $\theta/2\theta$ 角度位置における中性子反射の1次元の強度プロファイルのFourier変換に対応する。すなわち、こうした中性子反射の強度プロファイルデータを何らかの変調をかけて多数取得した上で、上述の関係を利用したどのようなinversionによっても、サンプル面内の反射率分布を再構成することができる。本年度は、SUIRENにおいて、6月、8月、11月の3度にわたって実験を行い、標準的な中性子反射率測定の設定アップのうち、サンプル周辺部分と検出器部分のみに変更を加え、上述の考え方によるvisualizationの実現可能性を検証した。サンプルには、異なるコーティングによりパターンを施したものをを用いた。第1回目の6月は、SUIRENでの初めての実験でもあり、機器の詳細に習熟するとともに、均一なコーティングを行ったサンプルの中性子反射率プロファイル等、予備データの収集を行った。また実際に必要になる測定時間を見積もるための強度測定等を行った。第2回目の8月は、第1回目の検討を踏まえ、1つの強度プロファイルのデータ取得にも相当の積算を行ったほうがよいという結論のもとで、サンプルを厳選し、注意深くデータ収集を行った。しかし、収集した強度プロファイルの数が不足しており、またプロファイル形状の品質が十分ではなく、うまく説明できない結果になった。第3回目の11月は、第2回目の実験でのデータの品質の問題の検討を踏まえ、サンプルに入射する中性子ビーム自身が持つ形状を点検し良好な場所を選んだ上で、バックグラウンド低減の工夫を行い、サンプルと検出器の配置の関係を改良するなどした上で、第2回目の際の2倍の数の強度プロファイルを収集した。これらのデータより再構成された画像は、元の試料の表面のコーティングのパターンとよく一致した。従って、本研究で提案しているアプローチは基本的に有効であり、今回は表面についてのみであるが、特定深さの散乱長密度情報のvisualizationが実現可能であることが明らかになった。

## 4. まとめ

中性子反射率法の適用の難しかった不均一な薄膜・多層膜の場所ごとの情報のvisualizationについて、以前から提案していた方法を初めて検証した。今回の試みは、表面の反射率のコントラストを画像化するものであったが、有望なデータが得られた。今後は、中性子の特色をよりよく生かすことのできる埋もれた界面のvisualizationの実現に向けてさらに研究を進める必要がある。

## 5. 引用(参照)文献等

- 1) K. Sakurai et al, Jpn. J. Appl. Phys. 27, L1768-L1771 (1988).
- 2) A. Iida et al., Rev. Sci. Instrum. 60, 2458-2461 (1989).
- 3) 桜井、日本中性子科学会第8回年会(2008年12月、名古屋大学) P3-31