

## 固液界面の高分解能反射率イメージング

High resolution reflectivity imaging of solid-liquid interface

水沢 多鶴子<sup>1)</sup>

Tazuko Mizusawa

山崎 大<sup>2)</sup>

Dai YAMAZAKI

桜井 健次<sup>3)</sup>

Kenji SAKURAI

<sup>1)</sup>総合科学研究機構 <sup>2)</sup>原子力機構/J-PARC センター <sup>3)</sup>イメージング物理研究所

### (概要)

界面構造を調べる有力な手段として知られる中性子反射率法に、近年イメージング機能が付与され、今後の展開が注目を集めている。本研究では空間分解能の向上を目指すとともに、電極/電解質界面の微細構造とイオン吸着に関連する課題への適用を行う。

**キーワード**：液界面、吸着、不均一構造、電極

(1行あける)

### 1. 目的

中性子・X線反射率法は、薄膜・多層膜のナノメートルスケールの層構造を非破壊的に精密解析を行う有力な手法である。このところは基板上に人工的にナノ構造を作りこみ、あるいはパターンニングを行った積層構造や、種々の不均質な微細構造を持つ電極などが重要な研究対象になっており、これまでのように広面積にわたる均質な層構造を前提とする解析には明らかに限界が生じている。そのため、他の回折・散乱・分光手法のように、反射率法にも空間分解能を付与し、イメージングが行われるようになってきた<sup>1-5)</sup>。

中性子反射率イメージングは、2010年にJRR-3 SUIRENの中性子反射率計に変更をくわえることにより初期的な検討が行われ<sup>2)</sup>、J-PARC MLFのBL17にて<sup>3He</sup>検出器とコーデッドマスクを用いる方法<sup>3,4)</sup>や、BL16にて2次元PSPCを用いる方法<sup>5)</sup>が検討されている。X線反射率イメージングがミクロンオーダーで行われているのに対し<sup>1)</sup>、中性子反射率イメージングは現状1mmもしくはそれよりも多少良いレベルにとどまっている。その際、十分な空間分解能を持つ検出器の利用が必要であるが、J-PARC MLFのように白色中性子を用いる場合は、TOF測定を行う能力が同時に求められる。本研究では、TOF測定を行う能力は持たないが50ミクロン程度の空間分解能を持つ中性子イメージングプレートを用い、単色中性子線による中性子反射率イメージングの技術開発と固液界面等の系の研究課題への展開を行う。

### 2. 方法

実験配置図を図1に示す。JRR-3 SUIRENの $\theta/2\theta$ ゴニオメータはそのまま使用し、面内回転機構および、その回転軸と試料法線方向を調整する機構を有する試料ステージを搭載し、検出器アーム上に中性子イメージングプレートを設置した。通常の中性子反射率法が反射強度(空間的に積分した全強度)を測定するのに対し、本研究では反射像として画像記録し、場所による強度の違いを数値として取得する。この反射投影像は試料の面内回転に伴って変化するので、多くの面内回転角で反射投影の画像を収集し、最終的には、コンピュータ・トモグラフィと共通する数学的な原理に基づいて画像再構成の処理を行って、試料上の位置と1対1対応する中性子反射率像を得る。

本実験では、組み立てた機器の基本的な性能を確認するための試験を行うとともに、ガラス基板上にコーティングされた金属薄膜のテストパターン試料の反射投影を最小限の数の面内角度にて、中性子イメージングプレートによって撮像した。撮像時間は1枚4.5時間とした。

### 3. 結果及び考察

中性子イメージングプレートの撮像結果から、正確に成形された均一なビームが照射されており、反射像はダイレクトビームと完全に分離していることが確認された。反射投影像の内部には、金属薄膜の有無に対応したコントラストが認められた。今回の検討は金属薄膜のテストパターン試料によって行われ、固液界面のサンプルセル等を持試料配置条件に

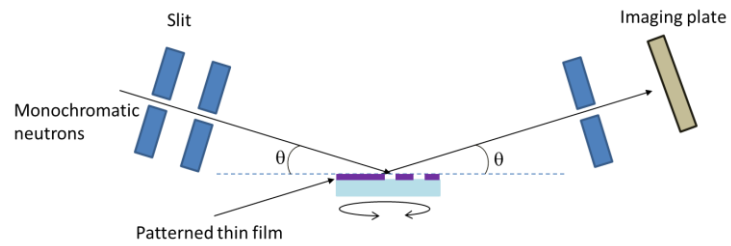


図1 実験配置図

についての参考になる知識が得られた。高空間分解能の中性子反射率イメージングを行うためには、良好な空間分解能を持つ中性子検出器を用いることは必要条件になるが、必ずしも十分条件ではない。次回以後に光学系の改良等によって空間分解能を向上させる種々の試行を行う前提条件が整ったと言える。中性子イメージングプレートに反射投影像を記録する測定時間としては 90~120 分程度必要と考えられる。実際にイメージングを行うために仮に 36 投影の撮像を行うとすれば、54~72 時間程度必要になる。試料準備に関して、事前に十分な検討を済ませておく必要はあるが、中性子反射率イメージングじたいはその程度の測定時間を念頭におけば実施可能と考えられる。

#### 4. 引用(参照)文献等

- 1) Jinxing Jiang, Keiichi Hirano and Kenji Sakurai, J. Appl. Cryst. 50, 712-721(2017).
- 2) 桜井健次, JRR-3 実験報告書 2010A-A49 「ヴィジュアルな中性子反射率法の開発」2010.
- 3) 桜井健次, 波紋, 28, 187 (2018).
- 4) Kenji Sakurai, Jinxing Jiang, Mari Mizusawa, Takayoshi Ito, Kazuhiro Akutsu and Noboru Miyata, Scientific Reports, 9, 571 (2019).
- 5) Hiroyuki Aoki, Hiroki Ogawa, Mikihiro Takenaka, Langmuir 37, 196-203 (2021).