

低温・高圧下のX線回折装置を用いた共同利用実験

電気・情報系（電気電子工学科） 林 純一

1. 研修日時・場所

日時 平成8年10月23日～28日
場所 高エネルギー物理学研究所放射光実験施設

2. 研修目的

低温、高圧下のX線回折実験はこれまで温度領域が約60Kまでの測定を行ってきたが、新装置が設置されたことにより約5Kまでの測定が可能になり、圧力測定装置や回折線検出装置も更新された。

本研修では新装置の測定技術及びサンプリング技術を習得するとともに、希土類リン化物の低温、高圧下での物性を調べることを目的とした。

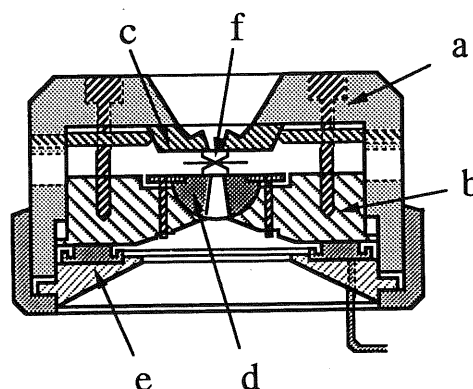
3. 研修内容

高圧下での物質の構造は、圧力発生装置としてダイヤモンドアンビルセルを使用することにより高圧下のX線回折実験で観測することができる。さらにクライオスタットにダイヤモンドアンビルセル(DAC)を内蔵し冷凍機で冷却することにより約5Kまでの低温を得ることができる。このような極限条件を作り出す装置でのX線回折実験には放射光のような強力な光源が必要である。

3. 1 試料準備・サンプリング

粉末X線回折実験に使用する試料は均一な粒度の粉末にする必要があり、乳鉢で2時間程度すり潰し粒径を揃える。粉末化した試料は充填時の密度を上げるためにハンドプレスで板状に固める。

本実験で使用したDACは銅-ベリリウム製でダイヤモンドの先端径は $400\mu\text{m}$ のものを使用した。図1にDACの断面図を示す。DAC本体には位置調整機構付き台座と上部ダイヤモンド、シリンダーに平行調整機構付き台座と下部ダイヤモンドで構成されており、加圧用にペローズが内蔵されている。ガスケットはインコネルを使用した。サンプリングはダイヤモンド先端位置調整、



a: DAC 本体 b: シリンダー
c: 上部ダイヤモンド台座
d: 下部ダイヤモンド台座
e: ペローズ f: ダイヤモンド

図1 低温用DAC断面図

平行調整、ガスケット作製、蒸留水を入れて水-氷-氷転移が見えるまで仮押し、試料とルビー結晶の充填、圧力媒体の充填、初期加圧の順に全て実体顕微鏡を使用し、各作業を確認しながら行われる。また、ダイヤモンドの先端面は常に洗浄し不純物の混入を防ぐ。特に重要な点は2つのダイヤモンドの平行度の調整は確実に行わないと、加圧時にガスケットが流れてしまい正常に加圧できなくなる可能性がある。

3. 2 測定

図2に光学系配置図を示す。本実験のX線は2結晶モノクロメータで単色化し、水平、垂直各ミラーで集光されている。ゴニオメータに設置したクライオスタットにDACを取り付け、ビームライン上にDAC内の試料位置を調整してビームを通す。回折像は図3のようにイメージングプレート(IP)でDebye-Scherrer-Ringとして検出する。IPは蛍光体膜を用いた2次元の検出器で、X線などの回折像を照射したIPは専用の読み取り機で検出し、解析ソフトにより回折線の積分強度と回折角を計算する。加圧はDAC内のペローズにヘリウムガスを導入し、圧力はコンテナ外に分光器、CCD検出器、Arレーザを設置し光ファイバーでコンテナ内に導き、ルビー蛍光法によりクライオスタットにDACを内蔵した状態でその場観測することができる。温度はヘリウムガス冷凍機で冷却し熱電対で測定した。

実験はPrRu₄P₁₂をサンプリングして、温度13Kまで冷却してから約7GPaまで加圧し温度を上昇させて、電気抵抗に異常が認められる60K付近に注目してX線回折実験を行った。

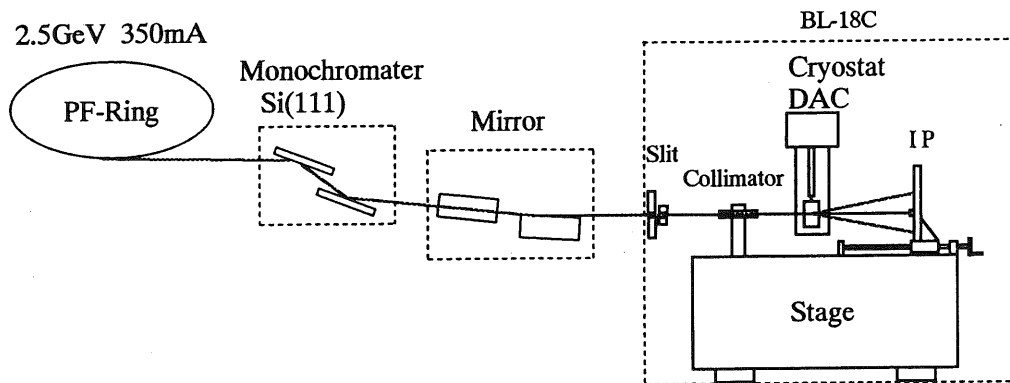


図2 BL-18C光学系概略図

4. 所感

図4に各温度における回折パターンを示す。ピーク上に面指数をつけたものがPrRu₄P₁₂の回折線で、Gと印したものはガスケットの回折線である。PrRu₄P₁₂の各測定での回折角には殆ど変化がなく、60K以下の低温では格子の異常は起きていないことが判明した。格子定数の計算結果では室温の状態に比べてわずかに減少していることがわかった。

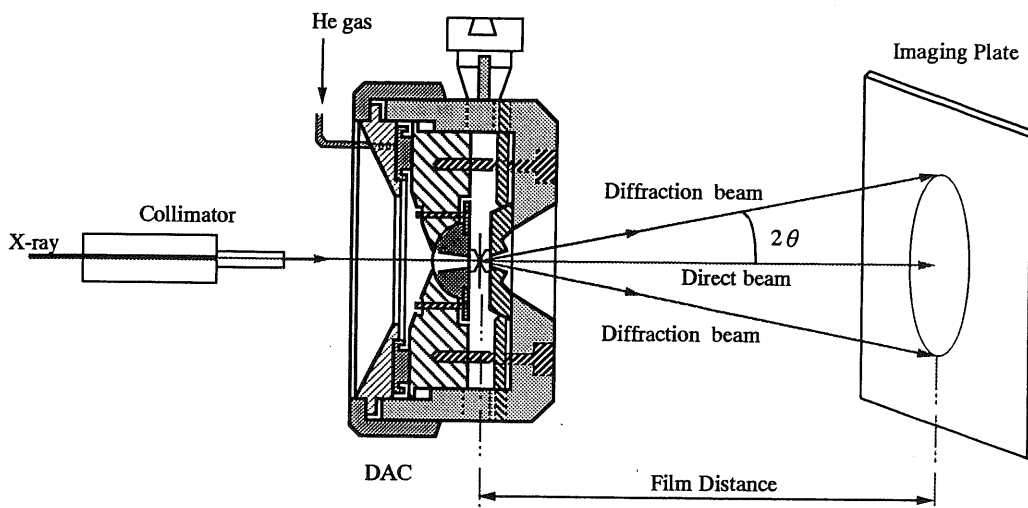


図 3 測定法概略図

今回は装置の立ち上げ後初めての実験でもあり、いくつかの問題点を確認した。まず、ゴニオメータに設置したクライオスタットが冷凍機より発生する振動により試料位置が不安定になり、試料の回折線とガスケットの回折線を同時に検出してしまうことや、クライオスタットのマイラ窓の気密の悪化による断熱セルの真空度の悪化などの改良点があげられる。また、サンプリングもDACの調整機構が簡略化されており、複数のネジを常時使用して平行調整やガスケットの仮押しを行うために熟練を必要とする装置であった。

最後に本研修においてDACのサンプリング技術及び測定技術をご教授下さいました慶応大学理工学部 辻和彦教授、高エネルギー研放射光 下村理教授に謝意を表す。また、本学技術部長 花岡裕教授ならびに研修担当の皆様へ感謝する。

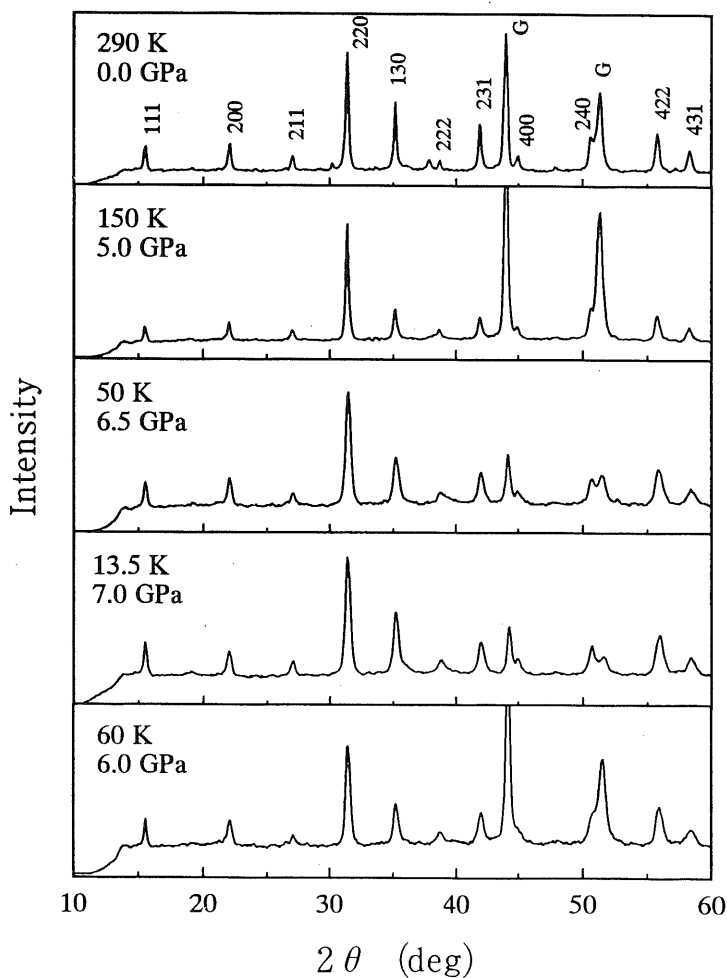


図 4 PrRu₄P₁₂のX線回折パターンの温度依存性