

BL04B2

高エネルギー X 線回折

1. はじめに

高エネルギー X 線回折ビームライン BL04B2は37.8keV以上の単色高エネルギー X 線を用い、非晶質の精密構造解析、ダイヤモンドアンビルセル (DAC) を用いた高圧下における回折実験、高圧ガス容器を用いた高温・高圧下における液体の小角散乱実験および単結晶構造解析を行うため、ランダム系ステーション (二軸回折計)、高圧ステーション・ガス容器ステーション (イメージングプレート)、ワイゼンベグカメラステーションの4つのステーションが設置されている。今年度においては、ランダム系ステーションでは二軸回折系用高温電気炉の立ち上げ、高圧ステーションで外熱式ガス駆動ダイヤモンドアンビルセルの導入を行ったので報告する。

2. ランダム系ステーション

ランダム系ステーションでは高温液体や溶融塩の実験をめざし、高温電気炉 (~1200) の立ち上げ実験を行った。こういった実験は、実験室光源の X 線を用いて反射法で測定するというのが一般的な方法であった。しかしながら、液体の回折パターンを測定する際、表面反射を利用する実験室光源の低エネルギーの X 線を用いた場合、液体の表面張力の影響を受けるため、散乱ベクトル Q ($Q = (4 / \sin)$) の低い領域を正確に測定することは困難である。こういった原因により生まれる誤差は透過法で測定を行った中性子回折の結果との差分を取ることでより導かれる単原子液体の電子 - イオン相関の研究 [1] を行う上で大きな障害となる。そこで、単原子液体の中でも比較的融点の低い液体 Zn を選んで実験高エネルギー X 線を用いた透過法による回折実験を試みた。

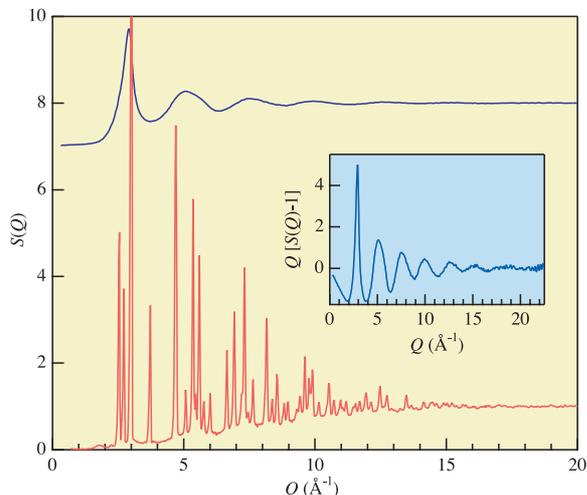


図1 亜鉛の構造因子 $S(Q)$. 赤線: 結晶, 青線: 液体(435)

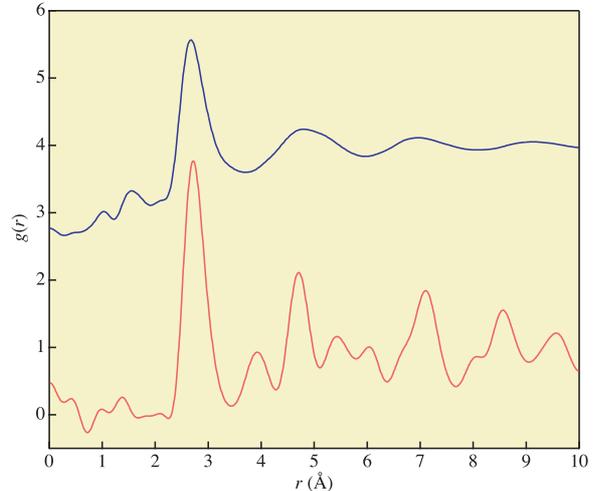


図2 亜鉛の二体分布関数 $g(r)$. 赤線: 結晶, 青線: 液体(435)

試料容器には、円筒形の内径 3 のアモルファスカーボンを用いた。Zn は比較的重い原子であること、試料の回転中心からのずれ等から生じる吸収補正、偏光因子の補正の誤差の影響を抑えるには低角度に回折パターンを積み込むことが有効であるという観点から、実験には Si 111 から得られる 113.4keV の単色光を用いて実験を行った。測定にはアモルファスカーボンのバックグラウンド測定も含めて約 8 時間を要した。図 1 に Zn 結晶および 435 における構造因子 $S(Q)$ を示す [2]。内側に記した $S(Q)$ に Q の重みをかけた $Q(S(Q)-1)$ から分かるとおり、試料容器であるアモルファスカーボンのバックグラウンドの補正が完全でないものの、 $Q = 20^{-1}$ まで有意のある振動が統計精度良く観測できた。また低 Q 側においても中性回折の結果と差分を取るに値するデータの測定が行えた。図 2 に二体分布関数 $g(r)$ を示す [2]。 $Q = 20^{-1}$ まで測定した構造因子をフーリエ変換したことにより液体と結晶の構造の違いが十分な実空間分解能で捉えることのできるデータとなっている。

今回は、立ち上げ実験として実験を行ったため、非晶質物質としては比較的低い Q 領域に散乱強度の強いピークを有するアモルファスカーボンを試料容器として使い、回転中心の精度にも問題がある状態で実験を行った。今後さらに高精度のデータを得るためには、試料容器の材質、形状、回転中心の精度の向上等、まだ解決すべき課題は多い。しかしながら、こういった問題を解決することにより従来の実験室光源の X 線では到達できない高精度の液体の回折パターンを測定することができ、それにより新しいサイエンスが生まれることを期待する。

3. 高圧ステーション

DAC 中の試料を加熱する方法には、試料に直接レーザーを照射しレーザー光の吸収により試料を直接発熱させる方法 (レーザー加熱 DAC) と、ヒーター材を DAC の周囲に巻きつけ DAC 全体を熱伝導により加熱する方法 (外熱式 DAC) がある。高圧ステーションでは1000 までの高圧実験を目指し、外熱式 DAC にガス駆動加圧を合わせた DAC を導入した。

外熱式 DAC はセル全体が高温になるため、高温での圧抜けが顕著であり、かつ加圧に際してはセルの温度を室温にまで下げる必要がある。ガス圧駆動 DAC では、メンブレンに外部からヘリウム等のガスを通し、それを駆動圧力としてピストンを押すことにより加圧するため、遠隔からの加圧制御を可能にする。これにより、前述の問題が改善され、高温実験時における圧力制御やビームタイム中における効率的な加減圧が期待される。今までのところ、昇圧に関しては順調に立ち上げが進んでいるが、昇温に関してはヒーターやセル自身の問題のために期待されている温度発生を達成できていない。今後さらに高精度のデータを得るためには、ヒーターの形状や位置、セル自身の断熱、また、高温時の昇圧・圧力保持など解決すべき課題は多い。しかしながら、こういった問題を解決することにより従来の実験技術では到達できない条件を到達することができ、数100 の温度が必要な物性実験から1000 の温度が必要な地球科学実験に対して有用な手段になりうると考える。

また今回行った立ち上げ実験に際して、回折計上の問題点がいくつか明らかになっている。例えば、高温実験では加熱をすることでセルおよびステージが熱膨張をし、X 線に対する試料位置がずれてしまう。これを修正するために、回折計に設置されてある顕微鏡を用いる。今のところこの顕微鏡を用いる際、観察までに数分程度の時間が必要となる。外熱式加熱では、ダイヤモンドそのものを1000 という高温にさらすため、ダイヤモンドが耐えうる時間に限りがある。露光に必要な時間以外をいかに少なくするか、今後回折計の改良も加えていく必要がある。

参考文献

- [1] S .Takeda , Y .Kawakita , M .Inui , K .Maruyama , S . Tamaki and Y .Waseda , J .Non-Cryst . Solids ,205-207 (1996) 365 .
- [2] 小原真司、梶並昭彦、鈴谷賢太郎：電気化学会第69回大会講演要集。(2002) 309

利用研究促進部門
構造物性 グループ・極限構造チーム
小原 真司・一色麻衣子