

BL10XU

高圧構造物性

1. 概要

高圧構造物性ステーションBL10XUでは、ダイヤモンドアンビルセル (DAC) を高圧発生装置とし、挿入光源からの高輝度・高分解能なX線を利用した超高压下での精密X線回折による構造物性研究が実施されている。高圧構造物性分野においては、最近のDAC利用技術の進歩によって数百GPa (1GPa \approx 1万気圧) に及ぶ超高压発生が可能となり、このような超高压領域で物質が未知の複雑結晶構造を形成する等、新たなサイエンスへと展開され、一方、地球・惑星科学においては下部マントルや地球核に相当する条件でのその場観察による実験的解明へと進行している。BL10XUではその進展に対応するために、わずかナノメートル程度の超高压発生領域に高密度・大強度X線を照射するためのX線集光技術、また、圧力に加えて極低温 (\sim 4K) や超高温 (4000K) の多重極限環境を実現するための試料環境技術の開発、試料の構造や物性情報を同時に測定するための複合計測システム開発・構築が要求されている。2006年度については、これらの技術的高度化の一環として、X線レンズ集光光学系の改造と、X線回折とブリルアン散乱の同時測定装置の開発が行われた。その他、本年度より東工大・廣瀬グループがパワーユーザーとして、下部マントル・核領域の物質構造的研究を実施することになった。

2. X線集光素子の高度化

X線集光光学系に対する2006年度の高度化として、既存の積層型X線屈折レンズの改造と、10ミクロンオーダーのビーム集光を目標とする第2段レンズ系の導入を行った。2003年度に開発・導入されたX線屈折レンズは、軽金属のBe塊を切

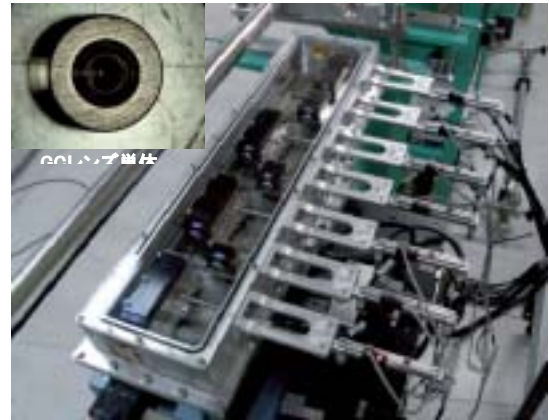


図1. GC製X線屈折レンズと自動交換ユニット

削研磨して放物面形状に加工されたものであったが、金属Beに関する安全性の問題で精密処理が困難であり、集光スポットが拡大するという問題があった。2006年度においては、レンズ素材に炭素材料 (グラッシーカーボン:GC) を採用して安全性と加工精度を確保し、同時に集光可能なX線エネルギー範囲の拡大のためにレンズ形状を小径 (曲率半径0.2mm) へと変更した。本改良によって、X線集光スポットサイズに関して従来の約半分の大さにあたる $55\mu\text{m}$ (垂直方向) \times $60\mu\text{m}$ (水平方向)、透過率80%と約8倍のスポット強度増加を確保することができた。今回のレンズ系改造に関しては、上記切削方法の検討を伴うと共に、レンズ使用枚数を自動変更するための動作機構の改造 (ホルダー等) を実施した (図1)。

また、プラスチック製 (SU8: 光硬化性プラスチック素材、

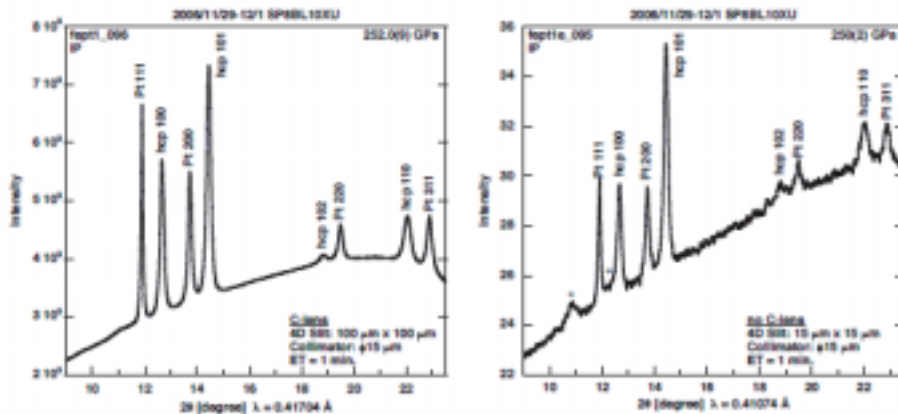


図2. 2段式レンズ集光光学系使用によって、統計精度、不純物反射の有無について大きく改善された超高压状態でのX線回折プロファイル (左図レンズ使用データ、試料Fe、200GPa、室温条件)。

独ANKA社製) レンズを第2段レンズとして新たに導入した。LIGA法を用いて微細加工された本レンズは、サブミクロンの集光能力があるとされるが、受光径が約 $100\mu\text{m}$ と小さいために単体としての強度増大には不向きである。これを解決するために我々は上記の第1段GCレンズと組み合わせて、SU8レンズへの $100\mu\text{m}$ 径のビーム照射による全ビーム集光を考案した。ビーム発散を伴うために現状では $7\mu\text{m}$ (垂直方向) $\times 9\mu\text{m}$ (水平方向)の集光スポットとなったが、実際の超高压X線回折実験に対してはむしろ都合がよく、図2に示すような約200倍の強度増大を確認することができた。この改良によって、 $10\mu\text{m}$ サイズ試料のX線回折測定での照射時間も数分で十分となり、300GPaを超す超圧力下での精密構造解析、地球内部核に対するその場観察研究がいよいよ実施可能となった。

3. 実験ステーションの高度化：多重極限・複合同時測定実験装置の開発

最近の超高压構造物性研究では、100GPaを超える超高压領域での複雑構造と物性変化の観測や、マントル物質の密度や物性変化のその場精密測定等、X線構造解析だけを唯一の手段として完結できない研究対象の広がりが見られている。今後BL10XUにおいて世界的な超高压研究のイニシアティブを



図3. X線回折・ブリルアン散乱・レーザー加熱複合同時測定装置(写真)。

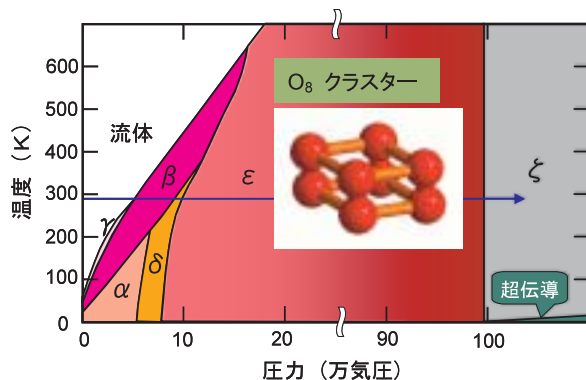


図4. 固体酸素 ϵ 相で発見されたO8クラスター構造と固体酸素のP-T相図。

得るためには、圧力を基本軸とした多重極限環境での放射光X線回折と他の測定法との複合同時測定実験を開発・導入・展開していくことが必要と考えられる。2006年度においては、ブリルアン散乱とX線回折の同時測定システムの開発に着手した。本装置は高温状態を確保するための CO_2 レーザー加熱システム、ブリルアン散乱を測定するための入射光レーザー及び干渉計、放射光X線回折測定装置からなり、 $10\mu\text{m}$ 以下のビーム交差精度で組み上げられたシステムであり(図3)、高温超高压下にある試料に関して、ブリルアン散乱で得られる弾性波速度と、X線回折によって得られる試料の相状態や密度のその場同時測定を行う。本システムで得られる地球深部物質の弾性波速度は地震波観測の解釈に不可欠であり、弾性波速度と密度を同時決定することによる絶対圧力スケールの構築も可能となり、地球・惑星科学における画期的な成果創出につながるものと考えられる。なお、本件はパワーユーザーの開発支援研究である。

4. 2006年度の主な研究成果

・ 固体酸素中の O_8 クラスターの発見

藤久らは、25年間不明とされていた固体酸素 ϵ 相の結晶構造をBL10XUにおける超高压X線粉末回折実験によって解明した^[1]。本構造解析により、結晶構造中に4個の O_2 分子が集まった O_8 クラスター構造の存在が発見され、酸素に関する2原子分子、オゾンに次ぐ第3の形態として注目を集めた。

・ 正勾配を持つ MgSiO_3 ポストペロブスカイト相境界

廣瀬らは、下部マントル主要構成好物である MgSiO_3 ペロブスカイト(Pv)のPost-Pv構造相転移に関して、BL10XUでの高温・超高压X線回折実験によって、温度・圧力相図上で

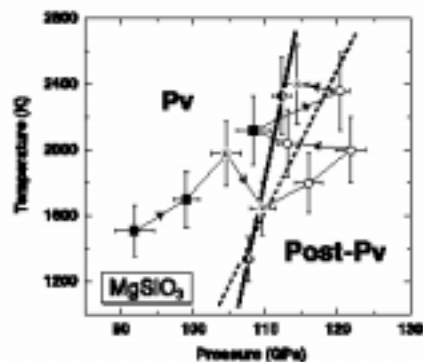
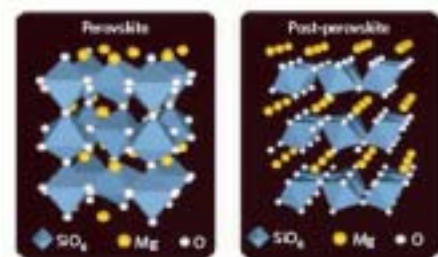


図5. MgSiO_3 ペロブスカイトとポストペロブスカイトの構造と得られた相境界。

の相境界が正の勾配を持つことを示した^[2]。この結果から、P-Pv相がコア-マントル境界においてPv構造へと再度相転移する可能性を示唆する。すなわち、回帰した低密度のPvがマントル対流を促進する原動力となり得ることを示した。

[1] Phys. Rev. Lett. 97, 085503 (2006)

[2] Geophys. Res. Lett., Vol. 33-1, L01310(2006)

利用研究促進部門

構造物性Iグループ 極限構造チーム

大石 泰生、平尾 直久