

# BL10XU 高圧構造物性

## 1. 概要

BL10XU高圧構造物性ステーションではX線回折を唯一の手段として、1) 地球・惑星内部構成物質の相同定等を目的として超高压・高温(300GPa+4000K以上)条件でのその場観測を研究手段とする分野と、2) 比較的穏やかな高压下での電子物性に関わる精密構造解析を行う分野での共同利用研究が行われている。最近では、100GPa以上の超高压領域あるいは極低温条件で発現する物性変化とそれに伴う複雑な構造相転移の研究や、地球内部条件でのマントル・コア物質の密度・音速や物性変化のその場精密測定等、純粋なX線構造解析だけでは実験的に完結できず詳細な物性測定との対比が必要とされるような、研究対象の大幅な広がりが見られている。BL10XUではこれに対応するための要素技術の高度化として、①高压X線回折測定に効果的・効率的な高エネルギーX線の利用と集光光学系の確立、②放射光X線回折と高压を基本軸とした多重極限環境での複合同時測定実験装置の開発が挙げられている。2007年度については①に関連した高エネルギーX線出力型挿入光源への交換と、②に関連したX線回折とラマン散乱の同時測定装置の開発が実施された。

## 2. 挿入光源の導入

2007年度にBL10XUでは、高エネルギーX線出力に対する高度化として、挿入光源を標準真空封止型アンジュレータ(周期長32mm、周期数140)から、ハイブリッド型アンジュレータ(周期長24mm、周期数186)への交換作業が実施された。本ハイブリッド型アンジュレータはそれまでBL46XUに設置していたもので、BL10XUに設置されていた標準型アンジュレータは今回の交換以降BL46XUで使用される。図1に上記2種類の光源による放射光発生強度(フラックス)のX線エネルギー分布に関する計算値を示す。3次光の利用領域が60keV以上に拡大されただけでなく、15~60keV領域全てにおいて数倍の強度増大が見られることがわかる。2006年度までに実施されてきた二結晶ダイヤモンド分光器への変更、及びグラッシーカーボン製X線屈折レンズへの改造に加えて、今回の改造を以ってBL10XUでの高エネルギー・高密度X線出力の高度化が完了した。

なお、本ハイブリッド型アンジュレータの磁場強度と周期数増大に伴う高出力化による高熱負荷対策のため、フロントエンド部の改造も同時に実施された。また、対放射線防御のための局所遮蔽増強や、放射線安全に関する変更申請に伴う漏洩検査が実施され合格が確認された。

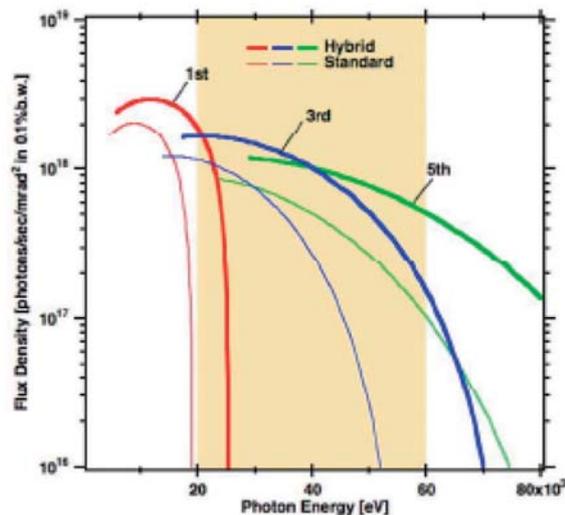


図1 BL10XUに移設されたハイブリッドアンジュレータ光源と標準アンジュレータ光源からの発生光子数のエネルギー分布

## 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

2005年度以降、BL10XU実験ハッチ1に低温高压での精密構造解析を主目的とする新規IP回折計の整備を進めている。既に2006年度には精密X線回折用IP検出器R-AXISとその搭載ステージが導入された。2007年度の高度化・開発機器としては、①低振動・横倒し型DAC-X線回折用4Kクライオスタット、②同クライオスタット搭載用横型ゴニオメータの導入である。従来何日も必要とされた低温・高压実験であるが、専用でユーザーフレンドリーな装置開発によって、1シフト1ラン(固定温度・圧力ステップ、あるいはその逆)を可能とするハイスループットの共同利用を実現させることができる。図2に①と②を組み合わせることで実験ハッチ1に装備された低温・高压X線回折測定システムを示す。予備的な実験を行い、クライオスタット性能(DAC搭載条件で7Kまでの冷却、10ミクロン程度の振動等)が一連のX線回折測定実験に利用可能であることを確認した。なお今後、カーボンミラー式長焦点型光学ユニットによる常時ラマン散乱測定及び圧力モニターシステムの開発を行う。これらシステムの構築によって、ラマン散乱-X線回折の同時測定、即ち分子振動状態と結晶構造を同時観察が可能となり、温度・圧力ステップの連続的測定に対応した環境制御(温度・圧力)及び測定系の自動化を可能な限り実現できるようになる。実験ハッチ1にはさらに、4Kあるいは1K極低温領域大型冷凍機搭載用ステージを

特定のユーザーからの大型外部資金調達（NEDO等）によって導入する計画がある。



図2 低温・高圧実験用クライオスタットとX線回折・ラマン散乱同時測定用ゴニオメータ（右；BL10XU実験ハッチ1に装備された状態）

#### 4. 2007年度、BL10XUで行われた主な研究成果

##### 4-1 MgSiO<sub>3</sub>のポストペロブスカイト相の電気伝導度その場観測

太田らは、地球のマントル層最下部（D''層）の主要構成物とされるMgSiO<sub>3</sub>試料に対して、高圧下でのレーザー加熱中におけるX線回折と電気伝導度の同時測定・その場観察を行い、高温・高圧相であるポストペロブスカイト構造への相転移に伴ってその電気伝導度が劇的に増加し、金属的な性質を持ち始めることを発見した<sup>[1]</sup>。今回の知見からは、このような金属的電気伝導特性とは地球核との間の電磁氣的相互作用によって、例えば地球の自転の周期的“振れ”を引き起こしている可能性が示唆されている。

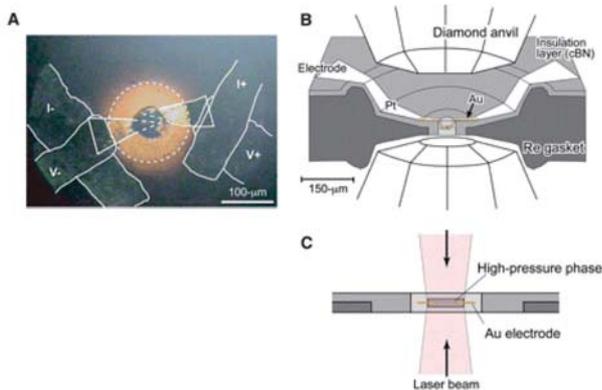


図3 X線回折と電気伝導度その場観測用DACの試料部の模式図。X線回折像は加熱レーザービームと同軸上で測定され、MgSiO<sub>3</sub>試料の相同定が行われた。

##### 4-2 黒リンIV相で発見された非整合変調構造

黒リンは室温条件において、常圧から250GPaの高圧領域までに4回の結晶構造相転移、5種類の結晶相をとることが知られている。藤久らは、BL10XUで取得された高分

解能X線回折データを基に、これまで解析出来ていなかったIV相の複雑構造の決定に成功した<sup>[2]</sup>。黒リンIV相は非整合の変調構造をとってヨウ素やイオウの高圧相と同系をなしており、金属系のホストゲスト構造とは対比される。ここで予想される超伝導転移機構などと共に高圧構造物性に新たな興味を与えた。

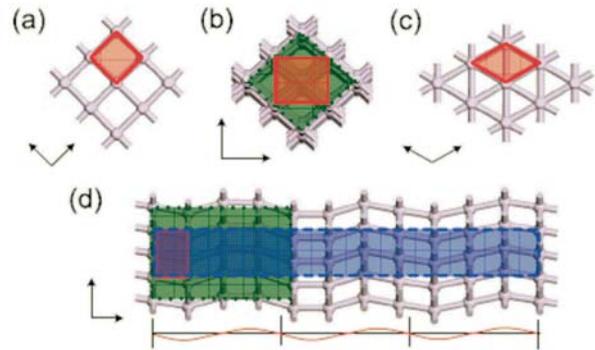


図4 リンのVI相で発見された非整合格子の模式図

#### 参考文献

- [1] K. Ohta et al.: Science **320** (2008) 89.
- [2] H. Fujihisa et al.: Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 175501.

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