

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、放射光X線の持つ高輝度・高強度・高分解能な特性を利用して、高圧発生装置ダイヤモンドアンビルセル（DAC）を用いたX線回折法による高圧力下での精密結晶構造解析が行われている。主な利用研究分野は、高圧構造物性科学・材料科学（マテリアルサイエンス）と地球惑星科学である。単体元素から新奇化合物に至る多様で幅広い物質の高圧・低温条件で発現する複雑な構造相転移やそれら結晶構造と振動状態・電子物性相関に関する研究、及び地球深部に相当する高圧・高温条件におけるマントル・核物質の構造状態・相関係・密度変化に関する研究が行われ、年間30～40課題数が実施されている。

DAC内で実現される高圧環境下の試料は非常に小さく、さらに角度制限のあるダイヤモンド観測窓から透過X線を観測するため、BL10XUでは微小試料（5～数十 μm ）に対するX線回折測定技術の向上が不可欠である。それゆえ、X線挿入光源、X線分光器やX線集光光学系の高度化により、高エネルギーX線領域（14～60 keV）における高強度なマイクロビーム生成の性能向上と利用拡大を図っている。また、数百GPaに至る超高压発生やヘリウム媒体を利用した静水圧性の向上、印加圧力の遠隔操作等の高圧力発生技術に加え、高圧力下で低温/高温状態を発生させる多重極限環境制御技術やX線回折とブリルアン散乱/ラマン散乱/電気抵抗測定を組み合わせたオンライン複合同時測定といった実験装置・技術に関する高度化にも取り組んでいる。高圧実験の高精度・高信頼性・高効率性の確保及びユーザーフレンドリーなシステムにするため、試料環境周りの精密制御・計測技術の改善も進めている。

2010年度に行われたビームライン測定技術の高度化は、1）入射X線を1 μm のサイズまで圧縮する新規の集光ビーム光学系の開発と、2）低温高圧X線回折装置に同時物性測定系（電気抵抗測定）の開発を行っており、以下で詳細を記す。また、その他新規着手事項として、エネルギードメイン式メスbauer分光とX線回折の同時測定装置の開発を東北大学と共同で開始した。同装置はneV分解能を持つ結晶アナライザーを使用し、DAC試料の透過X線からメスbauer分光を行うものであり、高圧X線回折との同時測定が可能となる。地球内部条件での鉄含有鉱物の結晶構造・弾性特性と酸化・スピン状態の相関研究や、最近の鉄系超伝導物質に対する研究の推進に大きく貢献することが期待される。

2. ミクロンビームの生成試験：超高压X線回折実験への試用

地球中心部に相当する極限的超高压・超高温条件（360 GPa、6000 K）は、DAC試料室内の数ミクロン領域でのみ再現されるが、試料室内の圧力・温度勾配の影響を受けない高精度観測を行うためには、ミクロンサイズへのX線ビーム集光は必須技術である。BL10XUでは、集光デバイスとしてX線屈折レンズを導入しており、それは対応エネルギー可変・インライン光学配置での利用など他のミラー等の集光素子にない優位性を有するためである。しかしながら、原理的に放射光X線光源が点光源でなく、特に水平軸でのビームサイズが大きく広がっていることや、ダイヤモンド分光結晶の不完全性や熱負荷による乱れたビームの生成とそれに伴う発散が生じることから、レンズやミラー等の光学素子単体で理想的に集光することは困難である。この問題を解決するため、放射光X線ビームを一段目のX線屈折レンズで集光し、焦点位置にピンホールを置いて余分な散乱X線を除去した仮想的均質発散光源を形成した後、下流でその発散ビームを再度X線屈折レンズで集光する光学系（図1）を考案した。2010年度では、この仮想光源光学系の設計・試験測定を行った。図1 (b) に水平方向における実測値半値幅2.7 μm の集光状態と軽元素試料に対する測定結果を示す。しかしながら、最終目標である1ミクロンビームの実用化には、強度不足なため至っていない。本高度化と研究成果は、JASRIとパワーユーザーである東京工業大学廣瀬研究室及び独立行政法人海洋研究開発機構（IFREE/JAMSTEC）との間での共同研究によって実施された。

本件のような集光光学系による1ミクロンビームの実用化によって、超高压環境での高精度なX線回折その場構造解析が可能となり、地球科学分野における未解決な研究課題である地球中心核（液体の外核と固体の内核）に関する構造・物性・化学組成などの物質科学的解明等、世界に先駆けた大きな研究展開が期待される。また、このような極端条件を利用した新奇物質合成等への発展の可能性も考えられる。

3. 高圧低温X線回折・ラマン散乱同時測定実験装置への電気伝導測定の組み込み

低温・高圧状態では新奇で多様な物性発現が期待されるため、BL10XUでは結晶構造と物性相関の研究が重要な地位を占める。BL10XUで高度化を進めている低温・高圧X線回折・ラマン散乱同時測定装置は、試料に対して低温高圧

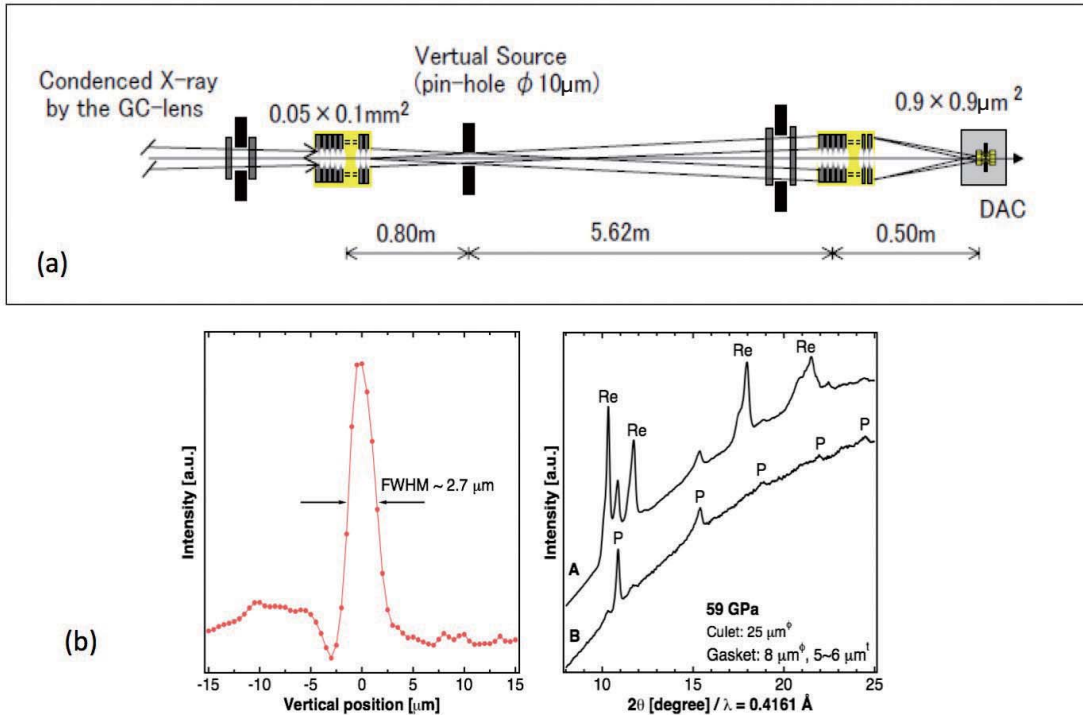


図1 仮想光源生成と集光のためのレンズ光学系 (a)、水平方向のX線ビームプロファイルと高压X線回折測定利用例 (b)

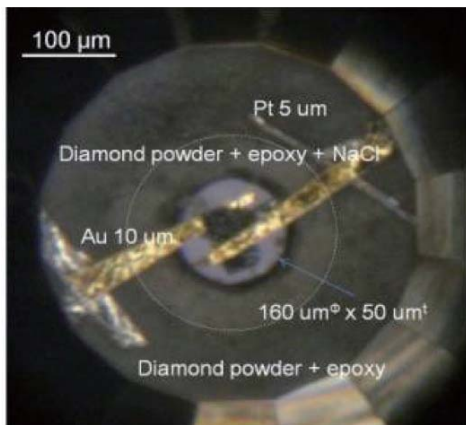
条件を印加した状態で、ラマン散乱-X線回折の同時測定、即ち分子振動状態と結晶構造を同時観察するための実験システムである。2010年度は、これに加えて電気伝導測定の物性同時測定の装置・技術開発及び計測ソフトウェアの開発を行った。高度化では、先駆けて開発した無振動型クライオスタットに四端子電気抵抗測定用ケーブル線コネクタを追加した。一方、試料準備設備として、DACに封入する試料に電極を溶接するため、実体顕微鏡下でマニピレータ操作が可能なスポットウェルド微小部溶接装置を導入した。これらの装置を用いて、鉄水素化物や希土類金属の電気抵抗の圧力変化、高压下での温度変化の観測実験が可能となり、成果として公表した。

本同時測定・計測システムの完成によって、試料が置かれている温度-圧力条件での結晶構造と振動状態の同一時間における観察が可能となり、極限環境制御条件下の物性発現機構の精密な解釈が格段に向上できる。さらに複数回要していた実験を単一の実験機会ですべて完了でき、限られたビームタイム内で多数の測定点を取得する上でも、ハイスループットの共同利用を実現させることが可能となった。

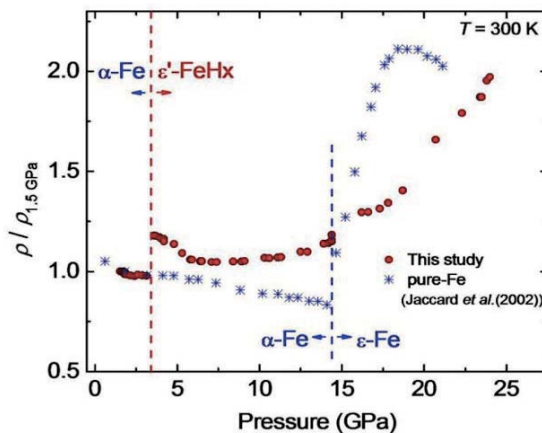
利用研究促進部門

構造物性 I グループ 極限構造チーム

大石 泰生、平尾 直久



(a)



(b)

図2 DAC内の電極溶接された試料写真 (a) と、鉄水素化物の高压下での電気抵抗測定例 (b)