

実験報告書

慶應義塾大学理工学部 専任講師 千葉文野



1. 出張者

所属	氏名	E-mail
慶應義塾大学 理工学部物理学科	千葉文野	ayano@phys.keio.ac.jp
原子力研究機構 J-PARC センター	川北至信	kawakita.yukinobu@jaea.go.jp
原子力研究機構 J-PARC センター	服部高典	hattori.takanori@jaea.go.jp

上記出張者のうち、千葉と服部の計2名の出張分を東京大学物性研究所の震災対応旅費支援でお願いいたしております。

2. 出張内容

- (1) 出張件名：中性子散乱に関する共同利用実験
- (2) 主要出張先：ラザフォード・アップルトン研究所/英国
- (3) 出張期間：千葉/平成25年9月28日(土)～平成25年10月10日(木) (13日間)
川北/平成25年9月29日(日)～平成25年10月9日(水) (11日間)
服部/平成25年9月29日(日)～平成25年10月10日(木) (12日間)
- (4) 装置：OSIRIS
- (5) 物性研課題番号：13615・C3-1-1:AGNES
- (6) ISIS 課題番号：RB1320209
- (7) ISIS 課題名：Liquid-liquid transition and individual atomic diffusion in GeTe systems

3. 出張の具体的内容

(1) 概要

慶應義塾大学理工学部講師・千葉文野を実験代表者とする中性子散乱に関する共同利用実験を行った。ラザフォード・アップルトン研究所にあるパルス中性子施設 ISIS に設置された準弾性散乱分光器 OSIRIS を用い、液体ダイナミクスについて研究を行った。

過去の研究において約450℃付近で、熱膨張係数、粘性に異常が見られる $\text{Ge}_{15}\text{Te}_{85}$ 合金液体に関して、その微視的機構を調べるために中性子準弾性散乱実験を行った。準弾性散乱実験から得られた(マイクロな)拡散係数をアレニウスプロットした結果、測定した温度範囲において、約450℃を境に、活性化エネルギーが変化することが分かった。約450℃を境に異なる2つの液体が存在することを示すものであり、近年注目されている液体-液体相転移がこの液体で起こることを「拡散という観点」から示すことができた。

(2) 実験の詳細と成果

1980年代から運用されている ISIS には準弾性散乱装置として、IRIS 及び OSIRIS の 2 つのビームラインがある。今回は、試料からの散乱強度は微弱であることが予想された為、分解能は劣るが (24.5 μeV)、強度が約 4.5 倍強い OSIRIS を用いて実験を行った。その対象として、過去の研究において約 450°C 付近で、熱膨張係数、粘性に異常が見られる Ge₁₅Te₈₅ 合金液体に関して実験を行った。通常、ミクロな拡散係数は、運動量遷移 $Q \sim 0 \text{ \AA}^{-1}$ 近傍における非干渉性散乱強度のエネルギー幅の波数依存性から調べることができる。十分なカウント統計を得るために、非干渉性散乱断面積が大きい元素を含むことが好ましいが、自然同位体比を持つ Ge₁₅Te₈₅ を用いた場合、Ge, Te ともに非干渉性散乱断面積が小さいため、十分な非干渉性散乱強度が望めない。そこで今回、試料として Ge に関し、非干渉性散乱断面積の大きい ⁷³Ge ($\sigma_{\text{inc}}=1.5 \text{ barn}$) で同位体置換したものを使用した。

OSIRIS は逆転配置型の準弾性散乱分光器であり、後方散乱のグラフィート分光結晶の反射指数を変えることにより分解能、強度、それに伴う測定可能 (Q, E) 領域を変えることができる。今回、いくつかのセットアップのうちで、比較的高い分解能 (24.5 μeV) の得られる 002 反射を用いて実験を行った。実験には、ニオブウムホイルをヒーターとする高温炉を使用し、0.5mm 厚の石英管の中にいた試料に対して、融点 (375°C) \sim 600°C までの約 8 点で測定を行った。また、解析を行う際に必要な分光器の装置関数を得るために、試料の無い空の石英管のみのデータに関しても、いくつかの温度条件で測定した。典型的な露光時間は一点当たり 12 時間である。

結晶の融解とともに、 $E \sim 0$ 近傍に有意な準弾性散乱強度が現れた。結晶を完全に融解させるために、共晶温度より十分に高い温度で、十数時間アニールした後、測定を開始した。測定は、試料の再融解に伴う石英ガラスの破損、試料の漏洩を避けるために、高温から順に測定していった。温度の低下に伴い、準弾性散乱のエネルギー・プロファイルの半値幅は減少していき、液体中の Ge のミクロな拡散が減少しているのが観測された。解析における fitting は、バックグラウンドの少ない (Q, E) = (0 \AA^{-1} , 0 μeV) \sim (1.0 \AA^{-1} , $\pm 50 \mu\text{eV}$) 領域のデータに関して行った。まず、各温度での準弾性散乱強度を装置関数で Deconvolution し、Lorentz 関数で fit することにより、準弾性散乱ピークの半値幅の運動量遷移依存性 $f(Q, \Delta E)$ を導出した。その後、その依存性を 2 次関数で fit することにより各温度におけるミクロな拡散係数を得た。得られた係数はこれまで報告されているマクロな拡散係数と同様の温度依存性を示した。温度と拡散係数をアレニウスプロットした結果、測定した温度範囲において、約 450°C を境に、活性化エネルギーが変化することが分かった。これは約 450°C を境に異なる 2 つの液体が存在することを示すものであり、近年注目されている液体-液体相転移がこの液体で起こることを「拡散という観点」から示すことができた。