

1. 申請者所属・職位(学年)・氏名：

日本原子力研究開発機構 J-PARC センター・主任研究員・服部高典

2. 申請者連絡先：

電話： 029-284-3150

FAX： 029-284-3889

e-mail： hattori.takanori@jaea.go.jp

住所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4 原子力科学研究センター HENDEL 棟 205 号室

3. 実験報告：

平成 25 年 9 月 29 日から 12 日間にわたり、英国ディドコットのラザフォード・アップルトン研究所にあるパルス中性子施設 ISIS で準弾性散乱実験を行った。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 μ eV)、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 $^{\circ}$ 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 ($\sigma_{inc} = 1.5 \text{ barn}$) 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、後方散乱のグラファイ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 μ eV) 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れた試料に対して、融点 (375 $^{\circ}$ C) \sim 600 $^{\circ}$ 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 $(Q, E) = (0 \text{ \AA}^{-1}, 0 \mu\text{eV}) \sim (1.0 \text{ \AA}^{-1}, \pm 50 \mu\text{eV})$ 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。