

単結晶中性子磁気回折用ハイブリッドアンビル技術の開発と応用

Development of hybrid-anvil technique and its application to single crystal magnetic neutron diffraction studies

長壁 豊隆 [1]

Toyotaka Osakabe[1]

[1] 原子力機構・量子ビーム・中性子物質

[1] QuBS, JAEA

中性子磁気散乱は、物質が高圧力下で示す磁氣的振る舞いを微視的に研究できる有力な実験手段である。しかしながら、単結晶中性子磁気回折実験における最高到達圧力は、殆どの場合 3 GPa 以下である。一般に、3 GPa 以上の圧力を発生するための最も適した方法は、アンビル技術を採用することである。最近、我々は 3 GPa 以上で単結晶中性子磁気回折実験を実現するため、圧縮強度が高く抗折力や破壊靱性に優れた超硬 (WC) アンビルとサファイアアンビルとを対向アンビルとして組み合わせたハイブリッドアンビルを開発した。図にハイブリッドアンビルを示す。図中の寸法は、実際の実験で使用したハイブリッドアンビルの寸法を示している。このデバイスで最も重要な部分は、超硬アンビルのキュレット面中央に設けた窪みである。ガスケットがアンビルで圧縮される際、試料室周辺のガスケット部分がアンビルの窪みの端部分で引っ掛かるために滑り止め効果が強く働き、その結果、ガスケットの変形が強く抑制される。これにより、次の三つの重要な効果が得られる。一つは、柔らかいガスケットを使用できるため、反対側のサファイアの破壊を防ぐことである。一般的には加圧時のガスケットの大きな変形を防ぐために硬いガスケットを使用するが、硬いガスケットにより生じる小さな傷からサファイアは簡単に破壊してしまう。もう一つは、使用可能な試料のサイズを拡大できることである。試料サイズは、加圧前の試料室の直径と加圧後のアンビル間の距離で決まるからである。同じ直径で平面状のキュレットを持つサファイアアンビルの場合と比較して、ハイブリッドアンビルでは利用可能な試料サイズは 4 倍以上に達する。最後は、圧力発生効率の改善である。圧力発生効率は、普通、加圧時にガスケットが滑ることによって下がってしまう。例えば我々の加圧実験では、2 トンの荷重を掛けた場合に、ハイブリッドアンビルの圧力発生効率はサファイアアンビルの 1.5 倍程度になる。もちろん、透明なサファイアアンビルを通して試料を顕微鏡で直接観察することもできるし、ルビー蛍光法で正確な圧力校正ができるという利点もある。我々は、ハイブリッドアンビルを使用して、加圧テストで 7 GPa、また実際の磁気回折実験で 6.2 GPa の圧力を発生させた。発生可能な圧力を 10 GPa 程度まで上げるため、我々は、WC とサファイアの代わりに焼結ダイヤモンドとモアサナイトの使用を検討している。

単結晶の回折実験において、圧力媒体は非常に重要な役割を持つ。加圧時に静水圧性が低かったり一軸性が強くなると、試料の単結晶性は著しく悪化してしまい、その結果、回折強度が大きく低下してしまう。一方、これまでの経験から、圧力クランプ型高圧力セル中の加圧試料の結晶性が冷却する過程で悪化することはない。従って、室温で加圧する際の圧力媒体の静水圧性が極めて重要になる。我々は加圧下における圧力媒体の静水圧性を調べる目的で、ハイブリッドアンビルを用いて数種類の圧力媒体中で NaCl 単結晶を加圧し、そのモザイクを室温で測定した。具体的には、フロリナート FC70 と FC77 の混合液、ダフネ 7373 オイル、シリコンオイル (KF96-50SC)、フォンプリンオイル (Y140/13)、グリセリン、そして、固体グラファイトについて調べた。フロリナートの混合液では、1 GPa 付近でモザイクの幅が急激に広がることを確認された。シリコンオイル及びダフネ 7373 オイルでは、それぞれ 1 GPa 及び 2.5 GPa 付近でモザイク幅が広がり始めることが判った。固体グラファイトでは、1.2 GPa で実に常圧の 10 倍以上のモザイク幅となった。一方、グリセリンでは、モザイク幅は加圧とともに非常にゆっくりと増加し、7 GPa においても常圧の 1.5 倍程度であった。このことは、グリセリンが 7 GPa においても静水圧に近い圧力を伝達していることを意味している。

我々はハイブリッドアンビルを用いて、これまでにモット絶縁体 TbVO_3 について 4.3 GPa まで、充填スクッテルダイト化合物 $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ について 3.8 GPa まで、また、価数転移物質 YbInCu_4 について 6.2 GPa までの単結晶中性子磁気回折実験を成功させた。特に、 YbInCu_4 については、Yb イオン当たりの磁気モーメントが約 $0.8 m_B$ と非常に小さいにも拘らず明瞭な磁気回折シグナルを検出できた。これは、ハイブリッドアンビルに熱中性子集光デバイスを組み合わせて実現できたものである。

