

GM 冷凍機を用いた低温高圧下における粉末 X 線回折実験 Powder X-ray diffraction study under pressures and at low temperatures using GM refrigerator

上田諒大¹, 川村幸裕^{1*}, 谷田博司², 林純一¹, 武田圭生¹, 関根ちひろ¹,
富田崇弘³, 高橋博樹⁴

¹室蘭工業大学 〒050-8585 室蘭市水元町 27-1

²富山県立大学 〒939-0398 射水市黒河 5180

³東京大学物性研究所 〒277-8581 柏市柏の葉 5-1-5

⁴日本大学 〒156-8550 世田谷区桜上水 3-25-40

Ryodai UEDA¹, Yukihiko KAWAMURA^{1*}, Hiroshi TANIDA², Junichi HAYASHI¹,
Keiki TAKEDA¹, Chihiro SEKINE¹, Takahiro TOMITA³, and Hiroki TAKAHASHI⁴

¹Muroran Institute of Technology, 27-1 Mizumoto, Muroran 050-8585, Japan

²Toyama Prefectural University, 5180 Kurokawa, Imizu 939-0398, Japan

³ISSP, Univ. Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa 277-8581, Japan

⁴Nihon Univ. Sakurajosui, Setagaya 156-8550, Japan

1 はじめに

BL-18C ではダイヤモンドアンビルセルを用いて高圧力下におかれた物質の結晶構造を放射光の特徴を生かして研究することが可能である[1]。主に室温高圧下における粉末 X 線回折実験などが行われている。

我々は BL-18C に設置の GM 冷凍機（科研費基盤 B, 課題番号 24340088 代表：高橋博樹）を使用し、低温高圧下における粉末 X 線回折実験をおこなった。実験に使用した試料は単結晶を粉末にした CeCoSi である。CeCoSi の結晶構造は正方晶 CeFeSi 型(空間群 $P4/nmm$, No. 129)である[2]。この物質は $T_N \sim 10K$ 以下において反強磁性秩序を示す(相 III)。この秩序相は $P_1=1.3GPa$ 付近で消失する[3]。また $T_S \sim 12K$ 以下において長距離秩序相を持つ(相 II)。 T_S は圧力により上昇し、 $1.5GPa$ 付近で $40K$ に達する。その後、 $P^*=2.1GPa$ 付近で一次転移的に消失する[3]。上記の変化により P_1 , P^* の圧力付近で構造に由来する何らかの相境界がある可能性が考えられる。ゆえに $40K$ 以下の低温での実験が求められる。

既述の科研費課題が採択された直後の 2015 年頃は 4~5 グループによって本 GM 冷凍機は利用され、 $7K$ 以下の低温実験も報告されていた。しかし、近年ほとんど使われなくなり、さらに $50K$ 以下の低温を必要とする実験が行われてこなかったため、技術が途絶えつつあった。今回、第一回目の実験では試料空間が $30.0K$ までしか冷却できなかったが、様々な工夫を施すことにより、 $5.8K$ での低温実験に成功した。本アクティビティレポートではその過程を詳細に報告する。



図 1 : GM 冷凍機

2 実験および結果

メンブレン駆動式時計型圧力セル(シンテック株式会社, 以下 DAC)に粉末の CeCoSi を封入し、以下に示す 3 つの方法で実験を行った。アンビルのキュレット径は $\phi 0.6mm$ でガスケットは CuBe 製を用いた。圧力の同定はルビー蛍光法でおこない、圧力媒体はメタノール:エタノール=4:1 の混合液を用いた。試料の温度はガスケットに取り付けたセルノックス温度計で計測した。

1 つ目の方法は DAC を取り付ける枠に計 12 本のネジを使用したものである。図 2 は図 1 の GM 冷凍機に対し、上から撮影を行ったものである。図 2 に示す赤い丸で覆われた部分がネジを取り付ける場所である。その後、輻射シールドを通常通り被せる方法で行った。この方法において試料空間の最低温は $30.0K$ であった。 $7K$ 以下に冷却できなかった原因として室温の輻射シールド取り付け時に輻射シールド

と DAC に十分な空間がなく、低温下で触れている可能性があった。そのため輻射シールドから、DAC への熱流入があったと考えられる。

2 つ目の方法は図 2 のネジ取り付け部にネジを使用せず、枠のみで DAC を固定したものである。さらに図 3 の枠と DAC に対し、図 4 のように銅線での巻き付けを行うことにより、熱接触の向上を図った。この方法における試料空間の最低温は 17.5K であった。ネジでの固定をやめたことにより、DAC の設置位置が変更することができたため、輻射シールドからの熱流入の問題を解決することができた。

3 つ目の方法は 2 つ目の方法に加え、図 3 の枠と DAC の間の In シートの貼り直しを行った。また、図 5-1 のように輻射シールドは上流、下流ともに穴が開いている。上流側は大きく開いている必要がなく、図 5-2 のようにアルミテープを用いて穴を小さくした。取り付けるセルノックス温度計の温度が上昇している可能性も考え、セルノックス温度計の計測部をアルミテープで覆った。さらに図 6 のように DAC からセルノックス温度計が出る部分もアルミテープで塞いだ。この方法において試料空間の最低温は 5.8K であった。In シート張り直しによる DAC との熱接触性を高められたことやアルミテープを用いたことによる輻射熱の遮断性を高められたことが冷却機能の改善につながったといえる。



図 2 : ネジ取り付け部



図 3 : DAC を取り付ける枠

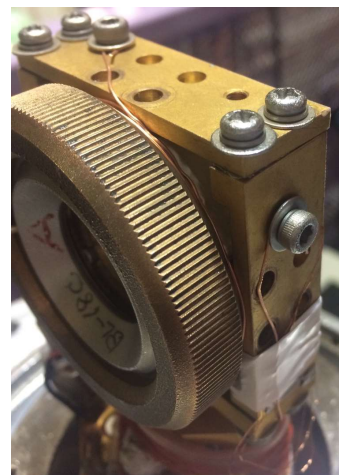


図 4 : 銅線の巻き付け



図 5-1 : 輻射シールド

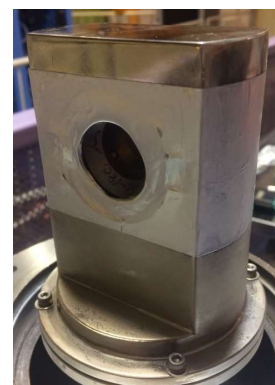


図 5-2 : 輻射シールド(アルミテープ取り付け後)

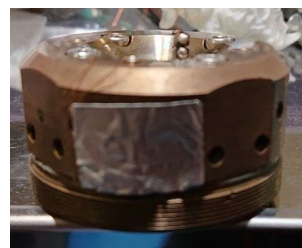


図 6 : アルミテープ取り付け部

3 まとめ

今回 KEK BL-18C の GM 冷凍機に DAC を設置する際に固定するネジを用いない枠のみによる固定、銅線の巻き付けと In シートの貼り直しによる熱接触の向上、アルミテープを用いた輻射熱の遮断を行うことにより、5.8K~300K までの低温高圧粉末 X 線回折実験に成功した。

参考文献

- [1] http://pfwww.kek.jp/users_info/station_spec/bl18/bl18c.html
- [2] O. I. Bodak, et al, J. Struct. Chem. **11**, 283 (1970)
- [3] R. Welter, et al, J. alloys Compd. **210**, 279 (1994)

* y_kawamura@mmm.muroran-it.ac.jp