

非晶炭合金 $\text{Fe}_{78}\text{B}_{13}\text{Si}_9$ での中性子極小角散乱

日本原子力研究所 土井 健治

§. 1. はじめに.

非晶炭固体・ガラスの構造において、原子寸法の数倍程度の範囲内の秩序——いわゆる短距離秩序に関しては以前より広範な実験的・理論的研究が行われており、多くの精密な実験・解析の結果が蓄積されて来た。とくに、いわゆる金属ガラスと呼ばれる非晶炭合金については、これらの結果を基として乱雑最密充填模型(DRP模型)と呼ばれるものが提出され⁽¹⁾、多くの実験事実、コンピューター・シミュレーションをよく説明できるところから、この系についての標準的な構造模型として広く受容されるに至っている。

しかし、現在迄に蓄積されている種々の実験事実は主として短距離領域内における原子配置にかかわるものがその多くの部分を占めている。とくに、非晶炭固体の研究に重要な役割を占めて来たコンピューター・シミュレーションによる研究においては、計算機の容量における制限によって、取扱われる原子の数は高々1,000位程度に限られているのが現状である。

一方、非晶炭固体・ガラスの特性のあるものは、その中距離範囲、長距離範囲における原子配置の秩序度とくに密接な関連を持ち、非晶炭固体と結晶炭固体から特徴づける特性を形成するこれが知られるに至った⁽²⁾。これを構造模型によって表現しようとするものが、Sadocらによる曲った空間の最密充填模型である⁽³⁾。四次元空間の中に超球(hypersphere)を考えその表面を取るという正の曲率を持った三次元空間が得られる。この中に剛体球を最密充填すると結晶群では禁制されている五角形の対称性があらわれる。このような構造を三次元ユークリッド空間に写像したものを、非晶炭固体の基本的な構造模型として採用しようという考えである。この写像によって構造には欠陥が導入される。この欠陥によって影響されるのは短距離秩序より、中距離・長距離秩序なのである。

このような、非晶炭固体の構造に内在する欠陥をparameterizeするときは、原子構造論的には小角散乱、極小角散乱の測定によって、またエネルギー論的には残余エントロピー⁽²⁾、低温比熱の測定によってなされるべきが指摘されている。このような見地より、金属ガラス $\text{Fe}_{78}\text{B}_{13}\text{Si}_9$ の熱中性子小角散乱、とくにその磁場依存性の測定を行なった。

§. 2. 実験⁽⁴⁾

Fig. 1に実験配置を示す。原子力研究所 JRR-2(CR) での熱中性子束は pyrolytic 黒鉛(M)の00,2反射で単色化される。C₁, C₂は極めて完全度の高いSi結晶の111反射の111反射である。光路上に試料S_{1,2}を置いてそれによる散乱強度を、C₂の方位で4回測定させながらBF₃計数管(D)によって測定する。これはBonse-Hartの配置と呼ばれる小

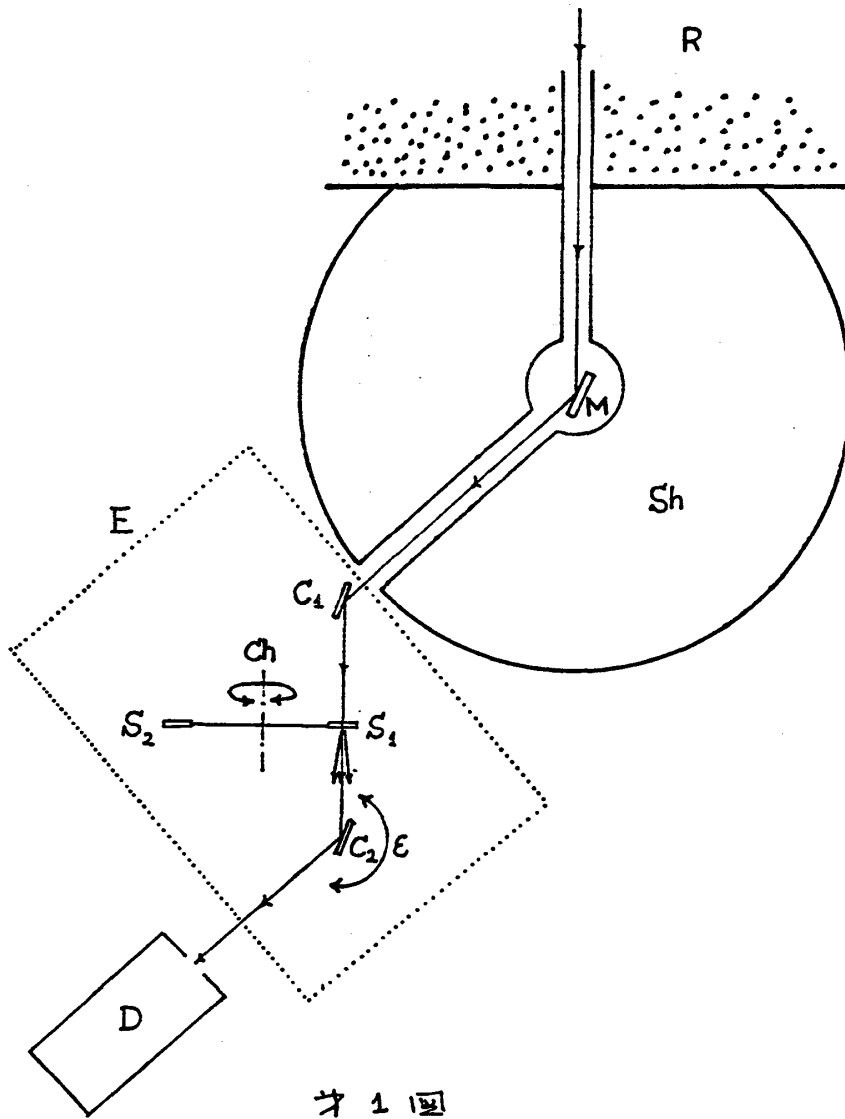


図 1

再散乱の測定法であるが、 C_1, C_2 に半値巾 1 秒程度の「ブラッグ」反射を有する極めて完全度の高い結晶を用いることにより、秒程度の散乱角における散乱強度、いわゆる極小再散乱強度の測定を可能にしたものである。(4)

測定条件に影響を及ぼすような外部の擾乱の効果も最小限にするために、 C_2 の方位 θ を一定にしておいて 20 秒間の計数値を記録し、そのまゝ試料をとり去って 20 秒間の計数値を記録し、次に θ を一定角度回転して同じく試料挿入の場合と試料なしの場合の計数値を記録する。これを、 θ の 0.08° 間隔で散乱角の角度範囲にわたって約 20 回繰返す。このためにサンプル・チェンジャー

(Ch) を設置した。これにより 7 個の試料と試料なしの場合の測定を自動的に行えるようにした。1 個の試料についての測定には、これと同時に試料なしの強度測定を併せて約 20 時間を要する。原子炉室のこの劣悪な条件下での長時間にわたる測定条件を安定に保つため、図の C_1, C_2, S_1, S_2, Ch 等を防護台上に配置し、断熱壁 (E) で覆い内部の温度の変動を 0.1°C 以下におさえた。2 の炉室内の気温の変動は ±5~6°C に達することはある。

試料は Applied Chemical 社製の金属ガラス 2605-S-2 である。厚さは約 30 μm のリボン状をしており、nominal な化学組成は $Fe_{28}B_{13}Si_9$ である。常温で磁性帯びており、鉄製のドライバーなどに吸引される。磁場の効果を系統的に調査して得られたデータは至っていいが、今まじに次のような覆圧の試料について測定を行なった：

- N° 1. 永久磁石による磁場中に約 40 時間置いたもの。磁場の方向はリボン面に平行、最初の 20 時間リボン長手方向 (R.D.) に垂直、次の 20 時間は磁場は R.D. に平行。
- N° 2. 磁場がリボン面 (R.D.) に垂直になるように永久磁石の間隙内に約 16 時間置いたもの。

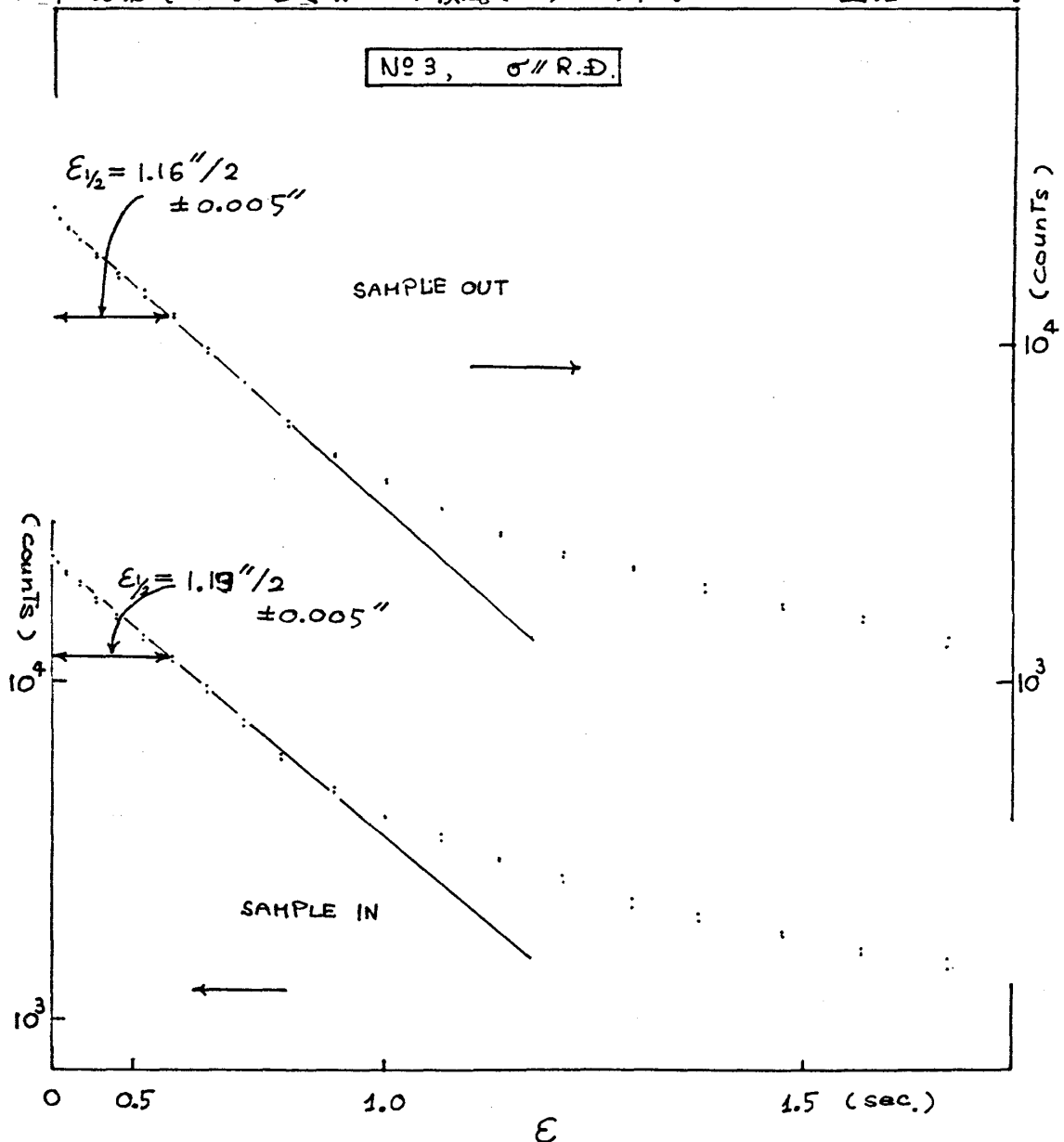
No 3. 全く磁場をかけていないもの。

No 3'. 同上の試料を、磁場がリボン面内でR.Dに平行にするように、永久磁石の空隙内に約16時間置いたもの。

これらの試料について入射線と散乱線を作る面(plane of incidence)がリボンの長さ方向(R.D)を向く場合と、それに垂直な場合の2つの散乱条件下で測定を行った。

§. 3. 結果と考察.

才2画に測定結果の一例を示す。横軸に散乱角の自乗 ϵ^2 、縦軸に散乱強度の対数を目盛ったいわゆる Guinierプロットである。上下に重なっている2位の測定はそれぞれ正、負の ϵ の値に対応する。下の曲線が試料を光路中に挿入したとき、上が試料を光路から取り出した時の結果である。 $\epsilon < 1.0$ の領域ではプロットはきれいに一直線上にある。試料



才 2 画

の挿入によりわずかに直線の傾斜がゆるくなるのが見られる。各試料についてこの半値中 $E_{1/2}$ を表1に示す。左から3行目は試料を抜いたとき、4行目が試料を挿入したときの値である。これらの数値に伴う測定誤差はいろいろの原因によるものをよくめて0.01"程度と見積られる。表2図から明

らかかようにこれらの強度曲線のプロファイルは Gauss 曲線で近似できるから試料のないものの散乱曲線の形も Gauss 型であり、その半値幅とこれら2つの測定された半値幅より求められる。その結果を表1表一番左の行に示す。これらの数値に伴う誤差は0.05"程度と見積られる。

表1表より、この金属ガラスには何等かの構造不均一が存在し、これらは No. 3' の試料を除いては等方的な構造を持つことが推定される。より詳細な結果に至る

SAMPLE	SCAT. COND.	$E_{1/2}$ (sec. arc)		
		SAMPLE		DECONVOLUTED
		OUT	IN	
No. 1	$\sigma \perp$ R.D.	1.138	1.161	0.23
	$\sigma \parallel$ R.D.	1.182	1.202	0.22
No. 2	$\sigma \perp$ R.D.	1.154	1.182	0.25
	$\sigma \parallel$ R.D.	1.144	1.168	0.24
No. 3	$\sigma \perp$ R.D.	1.161	1.184	0.23
	$\sigma \parallel$ R.D.	1.163	1.186	0.23
No. 3'	$\sigma \perp$ R.D.	1.158	1.178	0.22
	$\sigma \parallel$ R.D.	1.154	1.182	0.26

σ : normal to the plane of incidence.
R.D: ribbon direction.

表1表

ためは、次の2つの点についての考察を行わねばならない:

- (i) 観測された現象は、はたして散乱によるものか、あるいは屈折によるものか?
 - (ii) 散乱によるものとした場合、多重散乱の効果はどのようなものか?
- (i) に関しては、試料の寸法、中性子波長、試料の屈折率の値から、どちらの機構がまいていられるかを判断する方法がある。これによれば、我々の場合を観測された現象は大部分散乱の機構で説明されること結論される。したがって表2図のプロット上の直線の傾斜から、試料内に存在する構造不均一の慣性半径 R_G を求めることができる。
- (ii) については、散乱強度曲線に direct beam の trace がどの程度観測されるかによって散乱の平均多重度を見積り、測定された R_G の値にたいする補正係数を求める方法がある。これらの解析の結果、表1表の試料について R_G の値は $(5 \pm 1) \times 10^5 \text{ \AA}$ ($\lambda = 1.7 \text{ \AA}$) と求められる。一軸性の磁場を3かしたもの (No. 2, No. 3) について $E_{1/2}$ の値に変化があるように見えること、またリボン面での異方性があるように見えること (No. 3') については更に実験的に検討を加えねばならない。

本研究は東大工学部、菊田惺志、高橋敏雄; 産研物理部、富満広の諸君との共同研究である。

(1) J. D. Bernal: Proc. Roy. Soc. A280 (1964) 299.
 (2) K. Doi: J. Non-Cryst. Sol. 68 (1984), 17; 結晶構造 24 (1982) 195; 同誌 27 (1985) 270.
 (3) J. F. Sadoc: J. Non-Cryst. Sol. 44 (1981), 1.
 (4) T. Takahashi et al: Physica 120B (1983), 362; J.J.A.P. 20 (1981) L837.