

非晶炭合金 $\text{Fe}_{78}\text{B}_{13}\text{Si}_9$ からの中性子極小散乱

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・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・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と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らによる出た空間内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。これは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ことを指摘されている。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⁾

本図に実験配置を示す。原子研究炉JRR-2(CR)からの熱中性子束はpyroliが黒鉛(CM)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444反射と555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の方をE面散乱させながら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

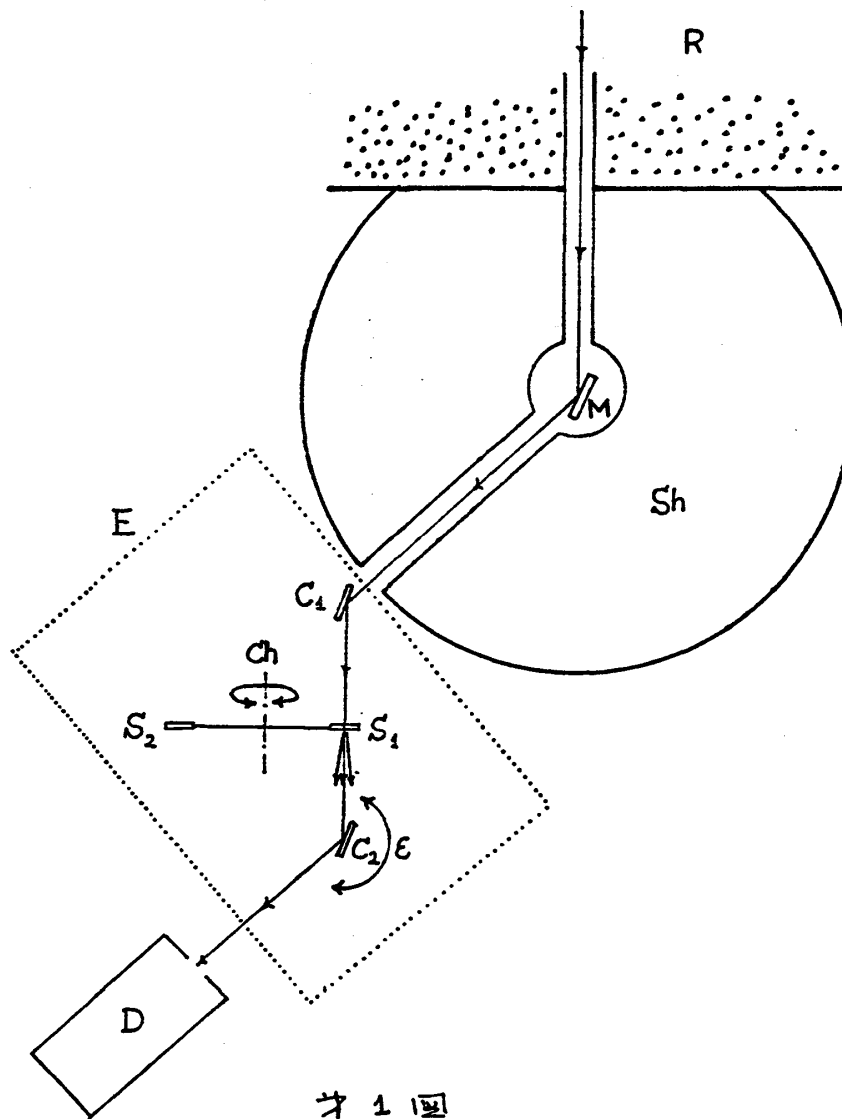


図 1

再散乱の測定法であるが、 C_1, C_2 に半値や1秒程度のブラッグ反射をなす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も可能としたものである⁽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、次にこれ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こなすようにした。1個の試料についての測定には、それと同時に試料なしの強度測定をふくめて約20秒間を要する。原子炉室内という劣悪な条件下で長時間にわたる測定条件を一定に保つため、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)で覆い内部の温度変動を0.1°C以下におさえた。2の炉内室の気温の変動は±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。厚は約30μmのリボン状をしており、nominalな化学組成は $Fe_{88}B_{13}Si_9$ である。常温で磁性を帯びており、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ようとするデータを得るには至っていないが、今ま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時間リボン長さ方向(R.D.)に垂直、次の20時間は磁場はR.D.に平行。
- N° 2. 磁場がリボン面の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。

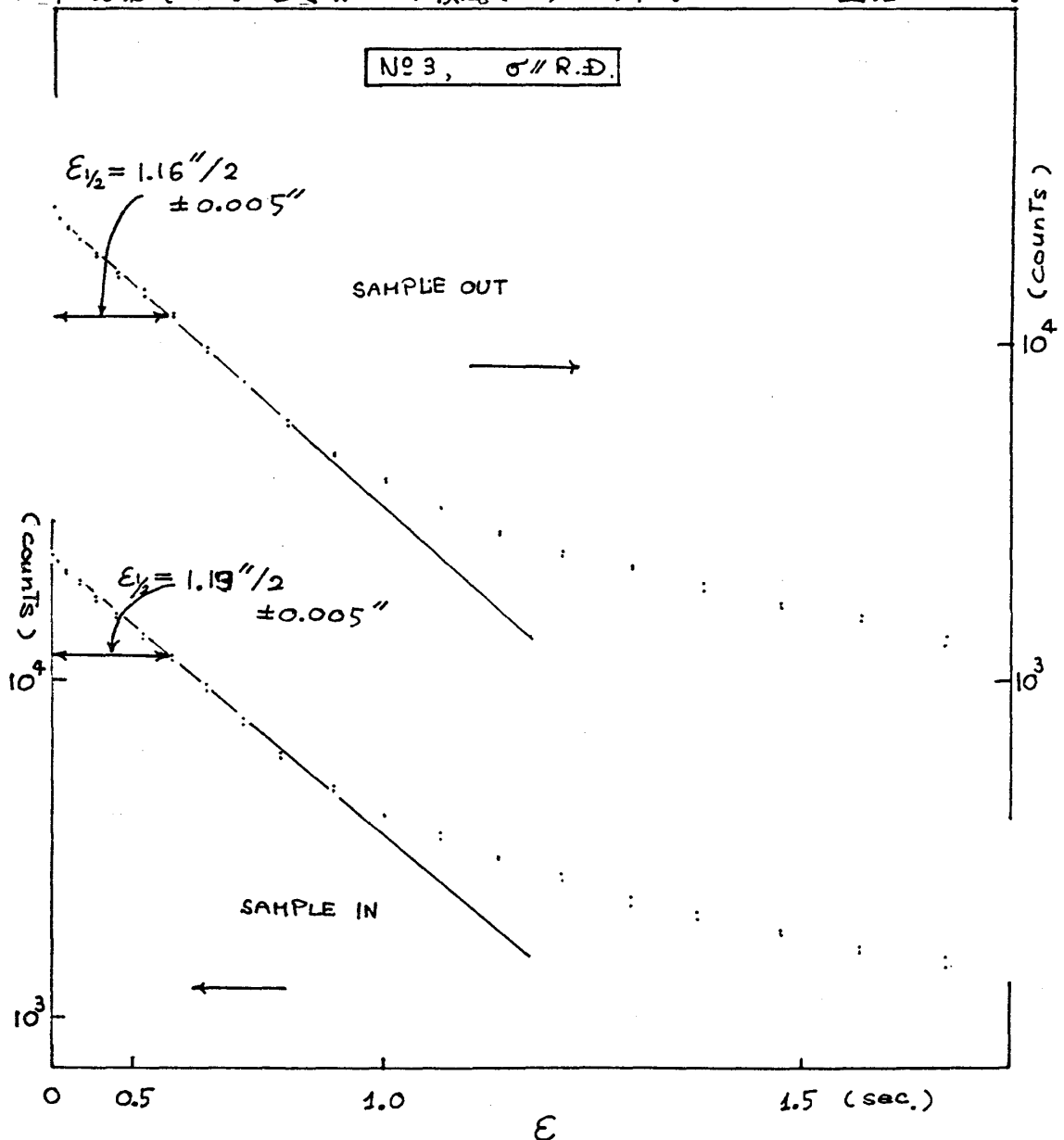
№ 3. 全く磁場をかけていないもの。

№ 3'. 同上の試料を、磁場ガリボン面内で 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) がガリボンの長さ方向 (R.D) とぶく場合と、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 図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見立てたいわゆる Guinier プロットである。上下に重なっている 2 本の測定値はそれぞれ正, 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外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 図

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な原因によるものをふくめて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ものの散乱曲線の形もGauss型であり、その半値中とそれら2つの測定された半値中より求められる。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、2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'の試料を除いてめ

SAMPLE	SCAT. COND.	$E_{1/2}$ (sec. arc)		
		OUT	IN	DECONVOLUTIONED
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

ためには、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、試料の厚さ、中性子波長、試料の屈折率の値から、どちらの機構が主としていえるかを判定する方法がある。それによれば、我々の場合観測された現象は大部分散乱の機構で説明される2ことが結論される。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加したもの (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；奈研物理部、富満広、諸井の共同研究である。

(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.