

**Bi 系酸化物超電導線材の焼結過程の二次元検出器を用いた
in-situ X 線回折法の検討**
**A Preparative study of in-situ X-ray diffraction measurements of
Bi-based superconducting wire during sintering process
with two-dimensional detector**

上村重明^a, 飯原順次^a, 斉藤吉広^a, 山口浩司^a, 菊地昌志^a, 中島隆芳^a, 綾井直樹^a, 佐藤眞直^b

Shigeaki Uemura^a, Junji Iihara^a, Yoshihiro Saito^a, Koji Yamaguchi^a, Masashi Kikuchi^a,
Takayoshi Nakashima^a, Naoki Ayai^a, Masugu Sato^b

^a住友電気工業(株)解析技術研究センター, ^b(財)高輝度光科学研究センター

^aSUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD., ^bJapan Synchrotron Research Institute

PILATUS100K 検出器を Bi 系酸化物超電導線材の in-situ 回折実験に用いる際の問題点、測定可能条件などの評価を行った。それにより、PILATUS100K はイメージングプレートよりも、S/B 比の高さ、測定安定性が優れており、実験に適した検出器であることが分かった。

キーワード： PILATUS100K、Bi 酸化物超電導線材、in-situ 回折実験

背景と研究目的：

我々は、Bi 系酸化物超電導線材の高臨界電流(I_c)化を目的とし、焼成過程における超電導相等の相変化把握のため、超電導線材の in-situ 焼成回折実験を実施してきた。それにより、最終相である(Bi,Pb)₂Sr₂Ca₂Cu₃O_x(以下、Bi2223 相)の生成過程において、昇温中での非超電導物質の生成、分解過程と Bi2223 相の生成の相関が明らかになってきた。[1]

これまでの実験では、試料からの回折線をイメージングプレート(IP)に露光し検出していた。そのため、IP 露光、IP 交換、読み取り、試料交換等に必要時間を考慮すると 1 試料あたりの測定間隔は、4 連焼成炉を用いた場合最短 30 分を要した。これまでの解析により生成反応過程を詳細に把握するためには、測定間隔の短縮化が必要であることが分かった。そこで、IP に代わり高速二次元検出器である PILATUS 100K[2](以後 PILATUS)の利用を検討した。PILATUS は ms オーダーでの連続データ取得、低バックグラウンドの特性を有している。

本課題の目的は、PILATUS を in-situ X 線回折実験に用いる際の問題点を抽出し、測定可能条件の調査、及び適用可能状態にすることである。

実験：

in-situ X 線回折実験に用いる 4 連焼成炉は、高さ 40cm、長さ 60cm、幅 15cm、重量 15kg 程度あり、既存の回折計に取り付け出来ないため、実験ハッチ内に持ち込んだ定盤の上に設置した。PILATUS は独立定盤上に X、Z ステージと共に設置されており、水準器を用いて水平・垂直基準だしを入念に行った。PILATUS の受光面積、素子サイズは、それぞれ 83.8mm×33.5mm、172μm×172μm/1pixel である。これまでの IP を用いた実験で得られたピークプロファイルから必要な検出器分解能を 0.01 度としカメラ長を 1000mm と設定した。また、2θ 角度範囲を最大 20 度とするため、PILATUS(縦長配置)を Z 方向に 5 分割露光することで対応した。

実験は BL46XU で行った。用いた入射 X 線エネルギーは 25keV で、縦 0.1mm×横 0.5mm に整

形したビームを Bi 系超電導線材(外皮及びフィラメントは銀で構成)に透過配置で照射した。なお本実験は室温、大気中で実施した。

結果および考察：

図 1 に Ag111 の回折プロファイルを、IP 25 秒露光[3]、PILATUS 16 秒露光、32 秒露光、64 秒露光で測定した結果を示す。これより、PILATUS の回折プロファイルは露光時間に関わらず IP と比較して半値幅が狭いことが分かる。なお、IP の露光時間(25 秒)は他の強い回折ピークによって IP が飽和しない値に決められている。

これらの Ag111 回折プロファイルについて、回折強度(Intensity)、バックグラウンド(BG)、回折強度とバックグラウンドの比(S/B)、露光時間あたりの回折強度(Int/s)、露光時間あたりの BG 強度(BG/s)を求めたものを図 2 に示す。IP 25 秒露光、PILATUS 16 秒露光、32 秒露光、64 秒露光で比較(以後も同様に)すると、BG/s は、それぞれ 0.2、0.5、0.5、0.5 である。Int/s は、それぞれ 5.1、84、84、85 であり IP より PILATUS の方が 16 倍ほど大きな値を示すことが分かる。そのため、S/B は、それぞれ 26、170、170、171 となり IP より PILATUS の方が 6 倍以上も大きい値となる。

これより、PILATUS は IP と比べて、S/B 比が高くより短時間の測定が可能であることが分かる。また、PILATUS の露光時間を変化(16 秒、32 秒、64 秒)させても S/B 比に大きな変化が無いことが分かった。

図 3 は、PILATUS を用い Bi 系超電導線材の回折プロファイルを測定したものである。BG レベルが低く、S/B 比も高い為、数カウント程度のピークも認識することが出来た。Bi 系超電導線材は外皮及びフィラメントに含まれる Ag の吸収により回折強度が大幅に減少するが、PILATUS を用いることで微小な超電導相および非超電導相のピークを細微にわたり検知出来ることが分かった。

また、分割測定した PILATUS のデータを連結する際のピクセルずれは確認出来なかった。これは、Z、X ステージの繰り返し位置再現性および、PILATUS 保持部の精度、剛性が十分である為と思われる。

上記の結果より、Bi 系酸化物超電導線材の in-situ 回折実験を行うにあたり PILATUS は IP よりも、S/B 比の高さ、測定安定性が優れており、実験に適した検出器であることが分かった。

今後の課題：

本課題は、PILATUS 2M(24 枚の素子使用、総素子面積は 25.4cm×28.9cm)で実施予定であったが未納入のため、PILATUS100K での実施となった。PILATUS100K と 2M に基本性能に差はないため、大素子面積化した PILATUS 2M を用いることが出来れば、回折プロファイルの分割測定の必要が無くなるため、より短時間間隔の in-situ 回折実験が可能となる。

参考文献：

- [1] 飯原、山口、松本、斎藤、山崎、山出、加藤、菊地、綾井、佐藤 SEI テクニカルレビュー 172 66(2008)
- [2] H. Toyokawa, M. Suzuki, Ch. Brönnimann, E. F. Eikenberry, B. Henrich, G. Hülsen, and P. Kraft *AIP conference proceedings* 879 1141(2007)
- [3] SPring-8 Experiment Report 2007B1824

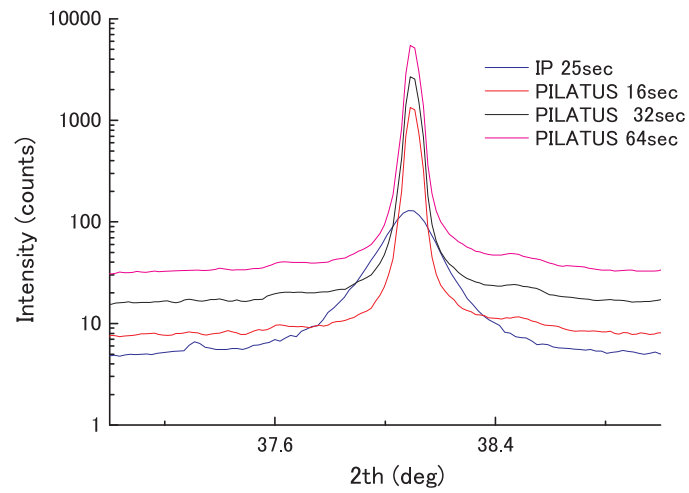


図 1. Ag111 の回折プロファイル

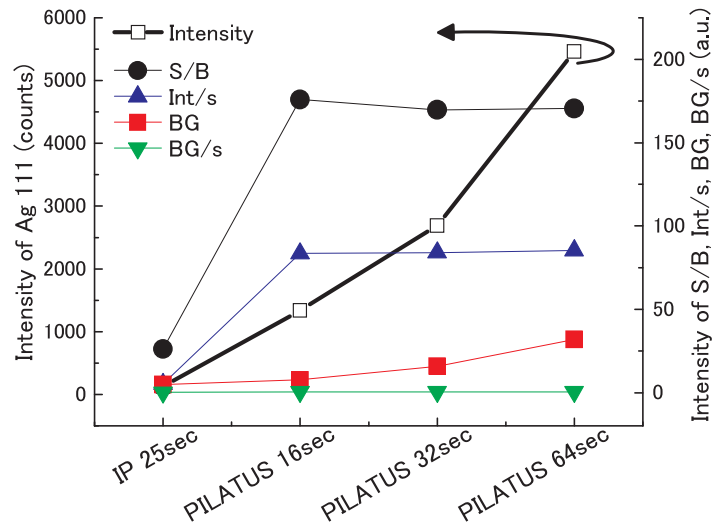


図 2. Ag111 の回折プロファイルから求めた IP、PILATUS の S/B 比について

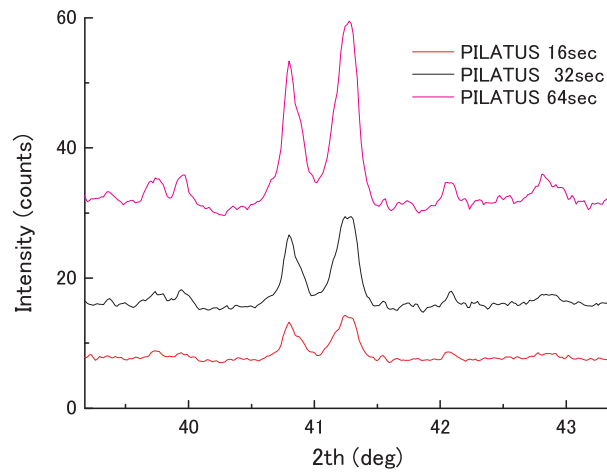


図 3. PILATUS100K を用いた超電導線材の回折プロファイル