

BL02B1 単結晶構造解析

1. 概要

本ビームラインは、結晶構造解析と構造相転移の研究のために建設され、現在、単結晶精密構造解析を主軸とする物質構造と物性との相関研究が展開されている。本ビームラインの光学系は、二結晶分光器の前後にミラー（白金コート）が設置されており、それぞれX線ビームの平行化及び鉛直方向の集光を行っている。また、サジタル集光結晶（第二結晶）により水平方向の集光を行っており、精密単結晶構造解析を行うための光学系として最適化されている。また、実験ハッチには、大型湾曲イメージングプレート（IP）カメラと多軸回折計が設置されており、精密構造解析の実験が遂行されている。大型湾曲IPカメラは、検出器に大面積のIPを採用しており、高い統計精度を有しているだけでなく高エネルギーX線を用いた高分解能データを収集することが可能である。本ビームラインは、単結晶を用いた精密構造解析により機能性材料の物性を解明することを目的とし、光学系、回折装置、測定・解析ソフトの総合的な開発・高度化を進めている。本年度からパワーユーザー課題「単結晶高分解能電子密度分布解析による精密構造物性研究」（代表者：澤氏／名古屋大学）及び長期利用課題「内包フラーレンの単結晶電子密度分布解析による分子軌道状態と分子内電荷移動の精密決定」（代表者：北浦氏／名古屋大学）が新たにスタートした。今後、これらの課題による精密構造解析研究及びビームラインの高度化が期待される。本年度の一般公募課題としては、一般課題24課題、萌芽の研究支援利用研究課題3課題が採択され、主に電子密度分布レベルで物性を明らかにする課題が実施された。

2. BL02B1の整備状況

現在、BL02B1で進めている精密構造解析の実験は、主に大型湾曲IPカメラで行われている。大型湾曲IPカメラは導入されてから1年が経ち、新規ユーザーも増加傾向にあるため、ユーザーが使いやすく且つ負担を軽減するための制御・解析ソフトの開発及び高度化を行った。また、装置整備としては、単結晶を用いた電場印加の外場応答実験に対応するために高速・高電圧電力増幅アンプ及びファンクションジェネレータを導入した。これらの装置とSPring-8で開発されたX線チョッパーを用いることにより、単結晶にパルス高電場負荷とX線を同期させた回折実験が可能となる。現在、本システムの整備、調整を行っているところであり、次年度の供用を目指している。

2-1 測定監視・伝達ソフトの開発

大型湾曲IPカメラによる回折実験では、測定開始後、実験状況をユーザーに知らせるソフト「Watch & Report」の開発を行った（図1）。本ソフトでは、SPring-8の制御・情報のシステムとして稼働しているPHSのボイスメール機能を用いている。本ソフトは、測定開始後、測定を監視し、測定が正常に終了した場合や残り3枚（ユーザーによる設定変更可能）のイメージ測定となった時点で自動的にPHSにボイスメールが届くようになっている。また、不慮のトラブルにより測定が中断した場合やビームダンプした場合にもユーザーにボイスメールが届く仕組みになっている。単結晶による精密構造解析実験では、長時間測定となることが多いが、本ソフトを使用することによって、ユーザーが測定中に試料準備など他の作業を行えるようになり、限られたユーザータイムの中でロスタイムを最小限に抑え且つユーザーの負担軽減をはかることができた。

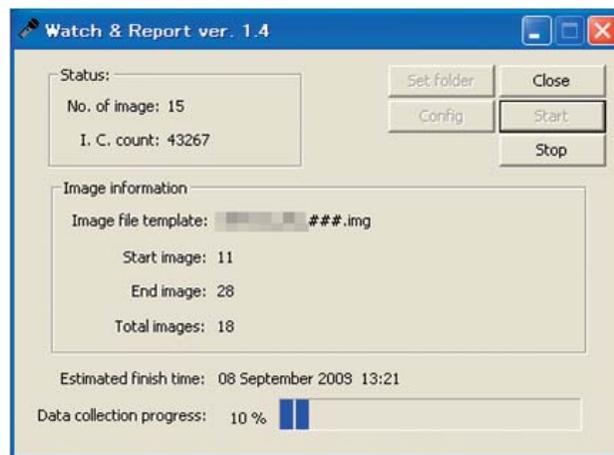
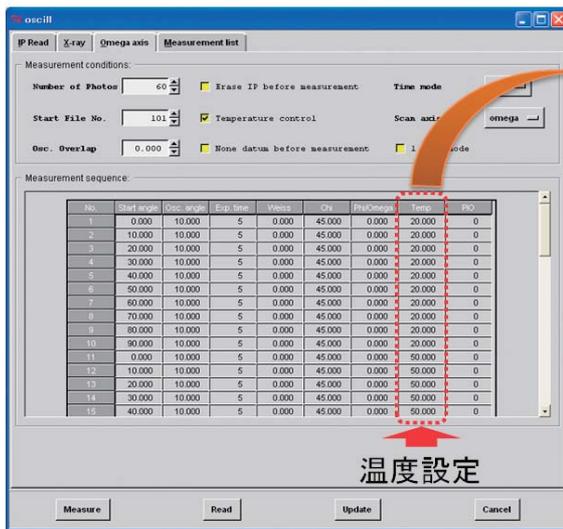


図1 測定監視・伝達ソフト

2-2 温度可変自動測定ソフトの開発

測定と試料温度の制御を同期させるソフト「Temperature Controller」の開発を行った（図2）。本制御ソフトでは、20～400 Kまでの温度可変の条件を設定することにより、自動的に温度制御を行いながらデータ収集を行うことができる。PIDなどの値も自動的に更新され、相転移点近傍で温度の昇温及び降温の速度を設定することが可能である。また、温度制御の全ての履歴をログファイルに保存しておくことができ、測定中の温度制御状況を確認することが可能である。

測定条件設定画面



温度制御画面

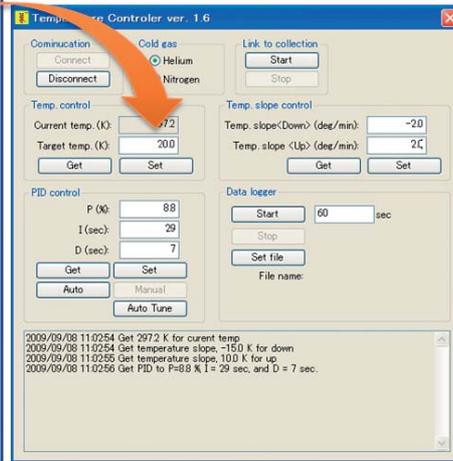


図2 測定条件設定及び温度可変自動測定ソフト

2-3 測定条件シミュレーションソフトの開発

精密構造解析では、高分解能データ且つその領域内の全ての反射を漏れなく観測しておく必要がある (Completeness)。また、統計精度を高めるために結晶学的に等価な反射をできる限り複数回繰り返して観測しておく必要もある (Averaged redundancy)。これらの条件を満たした測定条件を見つけるためのシミュレーションソフト「Strategy」を開発した。本ソフトは、振動写真法の測定に対応しており、指数付けの結果を用いてCompletenessとAveraged redundancyを見積もることが可能である。本ビームラインの大型湾曲IPカメラでは、 ω 軸が振動軸であるため、指数付けによって導かれた結晶方位とゴニオメータの関係に基づいて ω 軸の振動角度、 x 軸、 ϕ 軸を入力することにより、CompletenessとAveraged redundancyが計算される。振動写真法では、振動軸 (ω 軸) を大きく振動させることにより測定するイメージの枚数が減り、全測定時間を短縮することができる。しかしながら、あまり大きく振動させると回折点が重なって観測されるため正しく積分強度を見積もることができない。現在のところ、自動的に最適な測定条件を探索する機能はないが、ユーザーが上記のパラメータを指定することにより、簡便にCompletenessなどをシミュレーションすることができ、効率よく高分解能データを収集することが可能である。最適な条件を探索する機能については、今後、構築する予定である。

3. まとめ

本ビームラインでは、単結晶を用いた精密構造解析によって機能性物質の物性研究を展開するために、回折装置だけでなく光学系や制御・解析ソフトの総合的な開発・高度

化を行っている。本年度は、新規ユーザーであっても使いやすく、できるだけユーザーの負担を軽減することによって実験に集中してもらえることを念頭に置き、制御・解析ソフトの開発・高度化を行った。今後はマニュアル類なども整備していく予定である。次年度は、近年、注目される強相関電子材料などの遷移金属酸化物の機能相関研究を推進するために、より高いエネルギーのX線を用いたX線回折実験に着目した高度化を検討している。この他、単結晶による精密構造解析を行うための外場応答実験装置や高温実験装置の開発・高度化などを随時行っていく予定である。

利用研究促進部門

構造物性 I グループ 動的構造解析チーム

杉本 邦久、大隅 寛幸

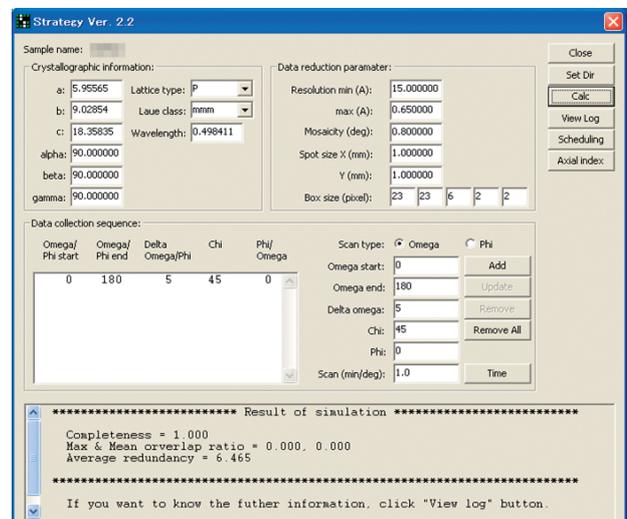


図3 測定条件シミュレーションソフト