

BL14B2 産業利用 II

1. 概要

BL14B2は産業分野のXAFS測定を対象とした偏向電磁石を光源としたビームラインであり、利便性が高く高能率なXAFS測定を目指して研究支援及び機器開発を行っている。その一環としてユーザーがSPRING-8に来所しなくても実験を行うことが可能となる遠隔XAFS測定環境の整備を進めている。2014年度は、主に光学機器調整の遠隔化を行い、遠隔地からの接続実験を行った。また、吸収端近傍のXANESスペクトルの構造及び電子状態解析を行うために、第一原理計算による解析システムの導入を行った。これらの詳細を以下に示す。

2. 遠隔XAFS測定環境

BL14B2では、制御・情報部門と共同で、インターネット経由でXAFS測定や光学調整等の操作を可能とする「遠隔XAFSシステム」の開発を進めている。2015B第2期を目処に、透過配置型をユーザー提供開始予定である。2016年度以降、19素子ゲルマニウム半導体検出器による45°入射蛍光配置型、及び斜入射蛍光配置型の遠隔XAFSを順次提供していく予定である。

2013年度開発した、Quick XAFS測定「QXAFS」、試料搬送ロボット制御「Sample Catcher」、データリポジトリサーバに引き続き、2014年度は、自動光学調整「Auto-Optics」(図1)、イオンチャンバー用カレントアンプ自動ゲイン調整「amptune」、及び認証ファイルによるセキュアログインシステムの開発を行った。

Auto-Opticsは、吸収端とモノクロメータの結晶面(Si 111もしくは311)を指定するだけで、モノクロメータや高調波除去ミラー等すべての光学機器とイオンチャン

バーの検出ガス混合比を完全自動で調整する。各調整パラメータは、BL14B2専用のデータベースサーバで管理されている。amptuneは、XAFS測定エネルギー範囲(吸収端名と光電子波数で指定)の透過X線強度をサーベイし、最適なゲインに自動調整する。ログイン認証ファイルは、事前に各共同実験者に配布され、実験者は手持ちのウェブブラウザに認証ファイルをロードすることで、BL14B2にログインすることができる。認証ファイルは時限付きであり、実験期間外でのログインは許可されない(測定データのダウンロードは随時可能)。

課題番号2014B1900において、本システムを用いて、遠隔地(大阪市此花区)からBL14B2に接続する実験を行った。試験内容は実際の透過配置XAFS実験の手順に沿ったもので、(1)Auto-Opticsによる光学調整、(2)Sample Catcherによる光軸上への試料搬送、(3)amptuneによるカレントアンプゲイン調整、(4)QXAFSによる透過XAFS測定、(5)データリポジトリからの測定データのダウンロード、と一連の操作をすべて行った。接続状態は安定で、動作遅延も認められず、ストレスのない操作感で実験を遂行できることが確認された。

2015年度は、Auto-Optics、Sample Catcher、amptune、QXAFSを統括制御する「Auto-XAFS」の開発を行う予定である。実験計画に沿った光学調整や測定の手順を記述したCSVファイルをAuto-XAFSにアップロードすることで、完全自動での実験進行が可能となる。このAuto-XAFSの完成をもって、透過配置型での遠隔XAFSシステムのユーザー提供を開始する予定である。

3. 第一原理計算によるXAFSスペクトル解析環境の整備及び解析支援コードの開発

これまでXANESスペクトルの解析には主に指紋法が用いられてきたが、参照したい構造モデルのXANESスペクトルの測定は常に可能とは限らない。そのため、自由にモデル構造を作成しスペクトルの計算を行うことが可能な第一原理計算による解析法の導入が望まれている。また、第一原理計算によって測定により得られたスペクトルの起源やその物性の起源の解析が可能であり、それらとEXAFSやXANESの測定と組み合わせた相補的な解析が望まれている。今回、これらの解析が可能な計算機システムの導入とその環境整備、及びいくつかの計算の検証を行い、さらに計算及び解析支援のためのコード開

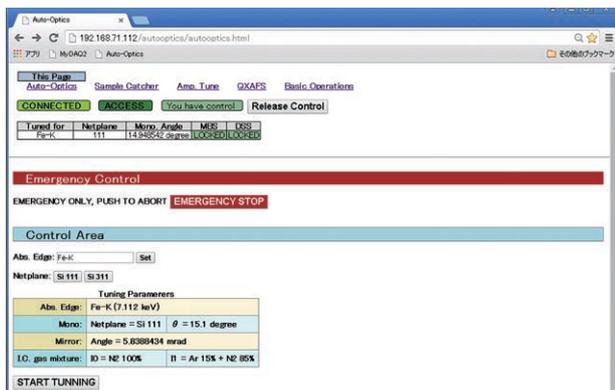


図1 Auto-Opticsのウェブクライアント

発を進めた。

導入した計算機は、合計16コアのIntel Xeonプロセッサに256 Gbyteのメモリを搭載したノードを2つ用意した。ノード間は InfiniBand による高速な接続を行い、最大32コアの高速なノード間並列を可能とした。計算機システムにはOpenPBSの一種であるTorqueを用いたジョブシステムを導入し、連続的なバッチ処理を可能とした。また、MPIライブラリにはOpenMPIを用い、さらにノード内の共有メモリ間の並列ではOpenMPを用いることにより、分散メモリ及び共有メモリにおける並列化計算を可能とした。

XANESスペクトルの計算には内殻の電子状態の計算が必要なために、計算可能な第一原理計算の手法には大きな制限があり、各種計算手法にはそれぞれ計算可能な物質系及び物理量がある。そのためビームラインで測定が行われる幅広い物質系に限られた時間で対応するためには、各計算手法の近似の範囲を正しく把握し、適切に使い分ける必要がある。主に検証を行った第一原理計算手法は、PP-PAW法を用いたVASP及びQuantum ESPRESSO、FP-(L) APW+lo法を用いたWEIN2k、PP-PAO法を用いたOpenMX、PP-GPW (Gaussian and Plane Wave) を用いたCP2K、及びFDM/LCAO/PAW基底に対応したGPAWを検証した(図2)。また、実空間差分法(FDM)を用いた電子状態計算からXANESスペクトルを求めるFDMNESの検証も行った。FDMNESコードはFDM法のみならず、FEFF等で用いられているのと同様のGreen関数を用いた多重散乱理論からのXANESスペクトルの計算も可能であり、比較検討を行った。他にも多くの論文^[1-3他]の再現が可能であることを確認した。

また、これら複数の計算手法を相互に横断して計算・

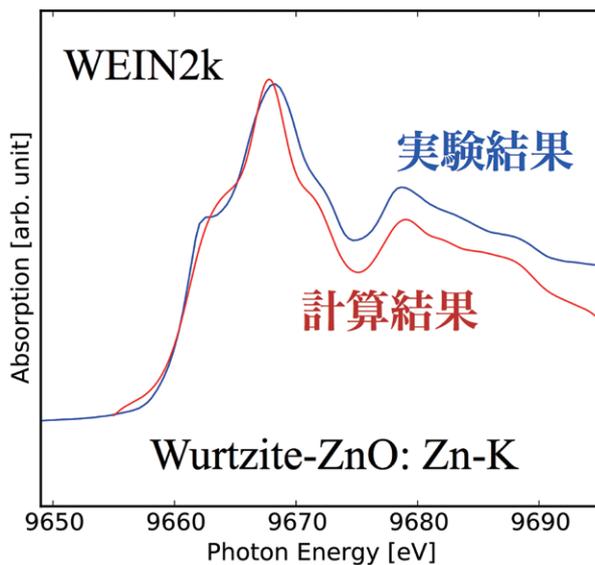


図2 ZnOのXANESスペクトル。理論計算と実験結果の比較

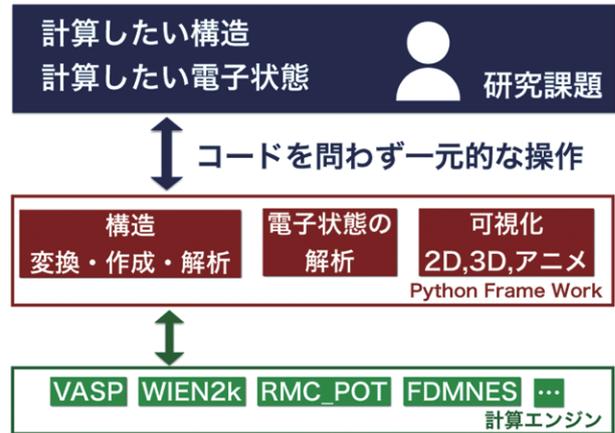


図3 統合的に計算・解析を行うためのフレームワークの模式図

解析を行うためのフレームワークをPythonにより実装した(図3)。フレームワークにより計算コードの違いを意識することなく、構造作成や解析などの計算コードの入出力・解析を統一的方法で実現できる。可視化部分は、Matplotlibを用いた2Dプロット、OpenGLを用いた3Dモデルに対応し、AIM法による電荷密度解析(Bader解析)の結果など、様々な物理量のプロットに対応した。さらに、第一原理計算のみならず逆モンテカルロ法コードのRMC_POTにも対応を行っており、容易に第一原理計算と逆モンテカルロ計算の行き来が可能である。

参考文献

- [1] V. Mauchamp *et al.*: *Phys. Rev. B*, **79** (2009) 235106.
- [2] T. Oguchi and H. Momida: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82** (2013) 065004.
- [3] C. Hebert *et al.*: *Micron*, **34** (2003) 219.

産業利用推進室 産業利用支援グループ
高垣 昌史、中田 謙吾、本間 徹生