

BL40XU 高フラックス

本ビームラインはヘリカルアンジュレータを光源とし、分光器を使用せずに2枚の全反射ミラーでビームを集光することにより、準単色の高輝度X線ビームを使用できるビームラインである。これらのビーム特性を活かして、回折、散乱、XAFS、イメージングなど、多様な利用実験が行われている。本ビームラインには共同利用実験に供されている実験ハッチ1と、CREST研究プロジェクトにより建設された実験ハッチ2がある。

1. 実験ハッチ1

実験ハッチ1では、非結晶試料の時分割X線回折、X線1分子計測、マイクロビーム回折・散乱実験等が行われている。

2016年度末に導入した薄型で小型（厚さ20 mm、幅70 mm、高さ115 mm）のピクセルアレイ検出器Modupixの新たな利用検討を行った。Modupixは、CERNで開発されたTimePixチップをベースとし、ピクセルサイズ55 μm 角で検出面積は14 mm角（256 \times 256ピクセル）である。各ピクセルに入射した光子数を数える光子カウンティングモードの他に、各ピクセルに到達した光子到達時間を記録するToA（Time of Arrival）モードが利用可能である。データ読み出し時間5ミリ秒程度で利用できるため、小角・広角同時計測時の広角高速測定用の検出器としての利用が可能であるが、新たにToAモードについて、回折点の動きを高速に捉えるX線1分子追跡法・実験への応用を検討した。ToAモードでは100 nsといった高時間分解で光子の位置情報が取得可能であるため、この機能を最大限に活用することで、高時間分解、かつ低ドーズで回折斑点の動きをモニターすることが見込まれる。

図1-Aは、金粉末（325 mesh, Nilaco AU-174019）をポリイミドフィルムで挟み込んだ試料をガルバノスキャナ（千葉シチズンGVM-2510）の軸上に配置させ、傾斜方向に三角波状に往復走査させた（50度/秒）時のToA像である（クロック1 MHz, 10 ms/frame, 閾値エネルギー14 keV, サンプル-検出器距離120 mm）。入射光は14.5-16.5 keVのピンクビームを用いた。ToAイメージでは到達時刻を色（カウント）として表現する。図1-Aでは左から右方向に移動した軌跡と解釈できる。このようなToAイメージを連続撮影し（リードアウト5.1 ms）、各々の回折光子の到達位置と時刻から回折

光子の時系列変化を再構成したのが図1-Bである。50度/秒の想定される軌跡（太実線）と光子到達情報プロットが一致し、走査角速度を精度よく捉えられていることがわかる。図1-Cは10度/秒走査時のToA連続画像から再構成したもので、図1-Bと同様に角速度に反映した軌跡を捉えている（ただし、位置精度は悪い）。ToAイメージでは、各ピクセルに入射される第一光子のみに着目するため、ノイズとなる光子を極力落とす必要がある。入射X線のビーム径を10 μm 以下にすること、光子検出閾値を高く設定すること（入射X線と同程度）、入射X線を従来の1/100程度に抑えることなどが有効であった。これらの操作はサンプルのX線に対するダメージ回避に有効であり、限られたドーズ量で回折点移動を捉える、あるいは長時間観察を行う際に有効である。

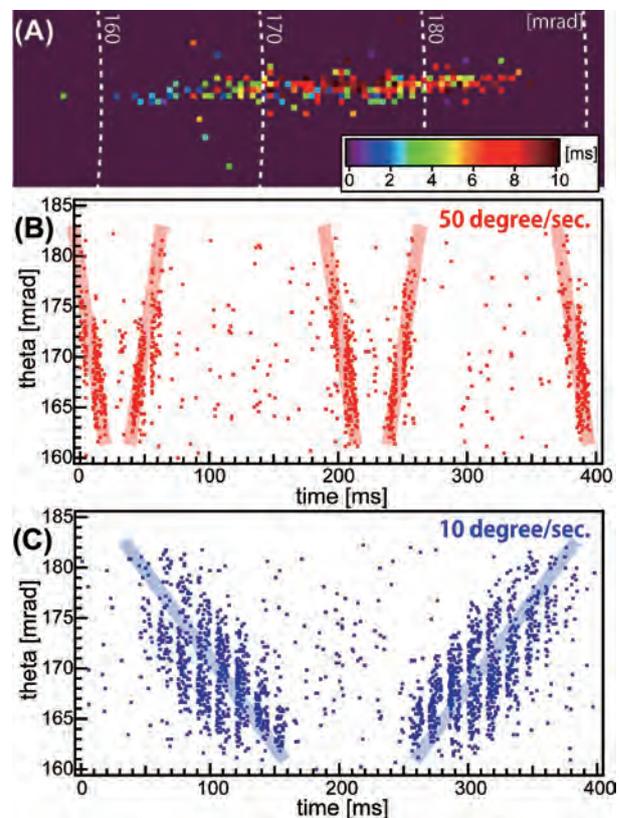


図1: TimePix-ToAイメージング機能・利用検討

(A) 金・粒子傾斜走査時におけるToAイメージ、(B) 回折光子再構成像50度/秒走査、(C) 10度/秒走査

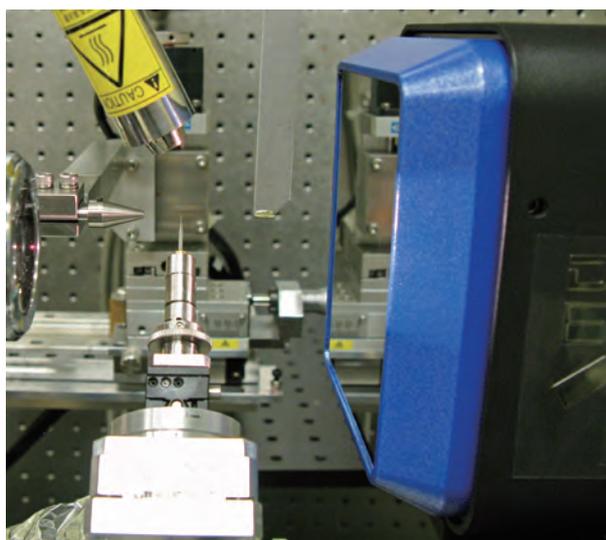


図2 光子計数型ハイブリッド検出器を利用した測定時の様子

2. 実験ハッチ2

実験ハッチ2では、ピンポイント構造計測装置を利用した集光X線による極微小単結晶構造解析や、シングルバンチからのピコ秒X線パルスを利用した次世代エンジンの燃料噴射ノズル開発のためのX線イメージング実験や半導体材料のポンプロープ分光実験が行われている。

微小単結晶X線構造解析実験においては合成化学系のユーザーが多いこともあり、一度のマシントimeに大量の試料を測定する。また、X線だけでなく空気や湿気によって劣化が進行する不安定な物質の測定も行われる。そのため、測定時間を短縮してスループットを向上させるとともに、ダイナミックレンジを広くして高精度な回折強度測定を実現するため、CCD検出器に代わり光子計数型ハイブリッド検出器であるDECTRIS社製EIGER X 1Mをピンポイント構造計測装置に導入し、立ち上げを行った(図2)。

本検出器は光子計数型の検出器であり導入にあたり特に以下の点を重視して選定した。

- 1) 読み出し時間：3マイクロ秒
- 2) 検出面積：77.2 × 79.9 mm²
- 3) ピクセルサイズ：75 × 75 μm²
- 4) 最大フレームレート：3,000 Hz
- 5) 高ダイナミックレンジ (32 bit)
- 6) 読み取りノイズ、暗電流がない

イメージ間の読み出し時間を短くしてデータの欠損をなくし、高フレームレート動作を行うことでアンジュレータの高強度X線を利用した短時間測定でも十分小さな ω 振動角 ($\Delta\omega$) で回折イメージを取得できる。また、広いダイナミックレンジとノイズフリーである特徴を活かし詳細な回折ピーク形状が測定できる。さらに、

表1 EIGERで測定したデータ比較

	Fast scan	Slow Scan
試料	シチジン (C ₉ H ₁₃ N ₃ O ₅)	
ω (°)	-90~90	
$\Delta\omega$ (°)	1	
露光時間 (s)	0.1	5
ϕ (°)	0, 90, 180, 270	
$2\theta_{max}$ (°)	56.2	
λ (Å)	0.78203	
測定反射数	11550	11597
独立反射数	1910	1927
R_{int}	0.0842	0.0254
$R_1 (>2\sigma(I))$	0.0252 (558反射)	0.0260 (1905反射)
R_{w2}	0.0409	0.0678
GOF	0.349	1.083
Flack	2.2 (10)	-0.1 (2)

検出面積はわずかであるがCCDよりも広がる一方で筐体寸法は小さいため、CCD利用を希望する場合の装置入れ替えも容易に行えるようになっている。

制御ソフトは、Labview (National Instruments) によって作製したソフトウェアでEIGERやゴニオメータなどすべての機器を制御しており、基本的な測定であれば、ウインドウ1つだけで測定が行えるようになっている。また、測定データの解析も既存ソフトが利用できるようにイメージ変換プログラムを作製した。

導入直後に装置評価を行うために標準試料 (シチジン、C₉H₁₃N₃O₅) の測定を行った。読み出し時間が短いため、装置シャッターを開けたままで ω 軸を-90度から90度まで連続駆動させながらX線を照射して測定を行っている (シャッターレス測定)。表1には比較的早い ω 軸回転での測定 (Fast Scan、総露光時間72秒) と露光時間を長めに設定し統計精度を上げた測定 (Slow Scan、総露光時間1時間) の測定結果を示している。Slow Scan がCCDと同程度の測定時間であるが、 R 値はFast Scanにおいても同程度であり、これは単に立体構造を知りたい測定であれば1分程度の測定で十分なことが確認された。

2018A期からは本格的なユーザー提供を予定しており、測定イメージに対して強度補正を行うことで精度を向上させることが可能になるため、測定法の確立やユーザーの利便性と合わせて改良を進めている。

JASRI 利用研究促進部門

回折・散乱Iグループ

関口 博史、岩本 裕之、青山 光輝
安田 伸広、福山 祥光