

超精密結晶構造解析を実現するー単結晶構造解析BL02B1/SPring-8

杉本 邦久

高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・構造物性Iグループ

Challenge to super-precise crystal structure analysis
ーSingle crystal analysis beamline, BL02B1/SPring-8ー

Kunihisa Sugimoto

Materials Structure Group 1, Research & Utilization Division, JASRI/SPring-8

機能構造相関研究での放射光 X 線回折による電子密度解析は、原子の荷電状態や電子軌道状態、原子間の結合状態といった、物性と密接に関連した電子状態を直接観測できる強力な手法である。しかしながら、電子密度解析を行うためには、高分解能領域の微弱な強度を持つ回折点についても統計精度の高い回折強度データを準備する必要がある。これまで、単結晶による電子密度解析では、粉末試料を用いた場合に比べ、結晶サイズによる吸収や消衰効果、また同時反射の影響による回折強度の誤差が問題となっていた。そこで、本ビームラインでは、微小結晶による高分解能データにより、複雑な相互作用が内在する系の電子状態について議論可能な超精密構造解析の実現を目的としてビームラインの整備を行っている。

まず、回折実験装置であるが上記の目的を達成するために大型湾曲 IP カメラを導入した(図1)。検出器には、電荷密度分布レベルでの解析に必要とされる高精度なデータ収集を実現するために定量性に優れたイメージングプレート(IP)を採用した。IP は、X 線エネルギーの選択性がほとんどなく、広いダイナミックレンジを有することから、本研究において最適な検出器である。また、本装置には、汎用性を高めるために2つのゴニオメータ(1軸および3軸)が搭載されており、実験に応じて使い分けることが可能である。湾曲 IP カメラの半径は、191.3mm であり、高い X 線エネルギーを用いた実験においても、十分な分解能が保てるように設計されているだけでなく、外場応答などアタッチメントの取り付けを必要とする実験のための自由度も確保されている。データ測定および処理ソフトは、汎用ラボ装置と類似のインターフェースを採用しており、単結晶回折実験の経験者であれば、直感的に操作が可能である。

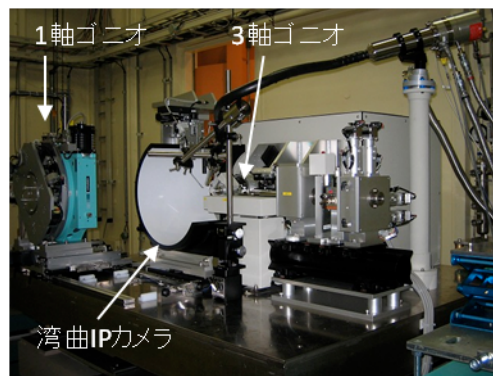


図1 大型湾曲IPカメラ(3軸ゴニオ使用時)

次に光学系であるが、BL02B1 はベンディングビームラインであり 2 結晶 Si(311)を用いて分光を行っている。Si(111)結晶に比べ分光後のトータルフラックスは劣るが、エネルギー分解能を $\Delta E/E=10^{-4}$ 以下にすることにより、空間分解能を向上させるだけでなく、同時反射が起こる条件を軽減することにより回折強度の誤差を軽減した。さらに、単結晶試料位置での X 線輝度を上げるために、第2結晶を湾曲しサジタル集光を行っており、数十マイクロン以下の結晶を測定することが可能である。また、現在 SPring-8 は、トップアップモード運転を行っており、蓄積ビームの強度変動が 0.1%以下であることから、光学コンポーネントへの熱負荷に対する安定性も担保されている。これにより、実験ハッチに入射される X 線の位置および強度の変動がほとんど無くなった。

蓄積ビームの安定性、光学コンポーネントの最適化、定量性に優れた単結晶回折装置を複合的に組み合わせることによって超精密構造解析の実現を目指している。最近、本ビームラインのデータにより Li^+ イオンを内包させた C_{60} 分子の電子密度解析から外場に応答する電子の振る舞いを精密に議論できる可能性が明らかになった¹⁾。当日は、ビームラインの詳細と最近の成果について紹介したい。

1) S. Aoyagi, E. Nishibori, H. Sawa, *et al.*, *Nature Chemistry*, **2**, 678-683.