



実空間データと逆空間データの同時解析の基礎検討

富中 悟史

国立研究開発法人物質・材料研究機構

キーワード：二体分布関数、金属ナノ粒子、構造解析

1. 背景と研究目的

1 桁ナノメートルのナノ粒子材料の精密な構造解析には二体分布関数 (PDF) が必須であるが、結晶材料の場合、逆空間データ、即ち粉末回折データも解析に有用なことが多い。本研究では、あいち放射光施設の粉末回折実験で可能な高エネルギーX線を用いて、高角度までX線全散乱実験を行うことでリートベルト解析可能な回折データと、二体分布関数の両方を得て、逆空間データと実空間データの同時解析を行うことを目的とした。

2. 実験内容

あいち放射光の BL5S2 の粉末回折計を用いて、透過配置において二次元半導体検出器 (PILATUS 100K、4 連装) と高エネルギーX線 (20 keV) を用いて、カメラ長 340 mm にて 0.06 から 132.56 度まで X 線散乱データの収集を行った。サンプルは 0.5 mm φ のガラスキャピラリーに詰めて用いた。サンプルのパッキング密度が 50% として吸収率を計算し、解析に支障がない範囲 (μR , 0.5 以下) になるように、カーボンブラックで希釈した。サンプルと同様に空のキャピラリー、カーボンブラックのみを詰めたキャピラリー、および空気のみを散乱データを収集し、MaterialsPDF プログラム^[1]を用いて最終的な PDF データにカーボンやガラス由来の原子ペアの影響が見られないように、それぞれバックグラウンドデータとしてサンプルから引き、サンプルのみからの全散乱データとした。得られた全散乱データを上記のプログラムで PDF に変換した。全散乱データと PDF を TOPAS プログラム^[2]を用いて同時解析を行った。

3. 結果および考察

Fig. 1 に 60 秒露光で 5 ショットのデータ収集を行った場合の Ni 粒子の結果を示す。補正関数を導くための短時間露光のデータ収集であるが、高角度域で SN が多少悪いが散乱ベクトルの絶対値 Q の最大値が 18.5 \AA^{-1} の PDF が得られた。十分な角度分解能もあり、XRD と PDF の同時フィッティングも問題なく行えた。ある程度の結晶性があるサンプルであれば、短時間で十分な解析を行えることが分かった。実際の合成サンプルは 1 桁ナノメートルのサイズであり、バックグラウンドとの相関も強いため、2 時間程度の露光を行い、解析可能であることは確認できた。他の合成サンプルについては別途、論文で報告する。

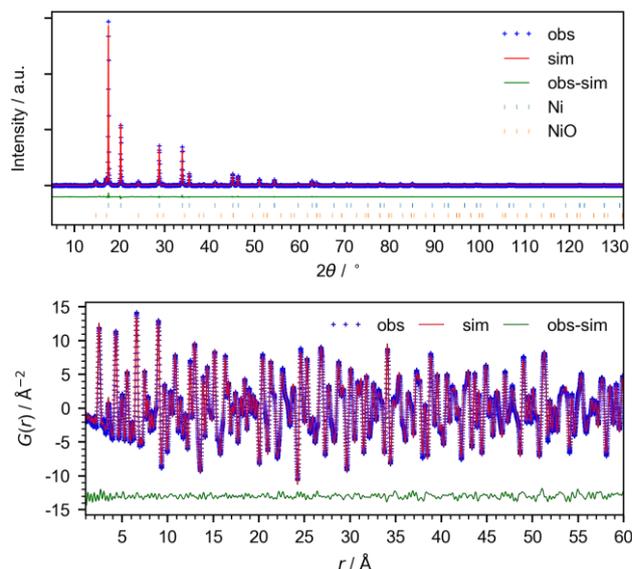


Fig.1 Ni の全散乱データ (上) と二体分布関数 (下)。それぞれ金属 Ni と NiO の結晶構造モデルを用いて全パターンフィッティングを行った。

4. 参考文献

1. Tominaka, S.; Yamada, H.; Hiroi, S.; Kawaguchi, S. I.; Ohara, K., *ACS Omega* 2018, 3 (8), 8874–8881.
2. Coelho, A. A. *J. Appl. Crystallogr.* 2018, 51, 210–218.