

X線散漫散乱の強度分布の 画像処理

理学部 濱田 亮・山本惺史

1. はじめに

X線散漫散乱の強度分布は短距離秩序の相関を反映しており相転移機構を研究するうえで有用な情報を提供する。逆格子空間における強度分布は、以前は写真による測定がなされてきた。しかし、近年ではシンチレーションカウンタを用いて測定するのが一般的となっている。4軸回折計を用いると逆格子空間の散漫散乱の強度分布を定量的に測定することができる。測定されたデータの全体的な傾向を把握するためには等高線を用いた強度分布のマップを作成するが、視覚的に訴える力は写真には及ばない。

最近開発されたイメージングプレート(IP)はシンチレーションカウンタの持つ定量性と写真の持つ2次元性に加えてX線に対する高い感度と広いダイナミックレンジを持っており、新しい測定機器として注目を集めている。機器分析センターに導入されている動的構造解析装置(DIP 3000, DIP 220)にも用いられている。しかし、IPのデータは容量が膨大で画像処理には高価なワークステーションを必要とする。また、データのフォーマットが特殊で扱いも簡単とは言えない。

散漫散乱の強度分布は写真と同じように色の階調で表現することでより視覚的に把握することができるようになる。また、データを手軽に処理するためには画像データを低価格化、高性能化が著しいパソコンで扱えるようにすることが望まれる。このたび4軸回折計やIPで測定した散漫散乱の強度データを安価なパソコン上で画像化する一連のプログラムを作成した。プログラムの概要と得られた画像について報告する。

2. プログラムの概要

プログラムはIBM PC/AT互換機(DOS/V)のMS-DOS環境でgo32版のgccを用いて開発した。gccは基本的に32bit C コンパイラであり、DOS版ではメモリエクステンダgo32によりコンベンショナルメモリの限界(640kB)の問題を回避してい

る。gccを用いたことによりグラフィックデータの取り扱いに必要な大きな配列を確保する事ができた。グラフィックライブラリにはgccのcontribに含まれるgrxを用いた。ビデオカードのメモリの制限のために画面の解像度は1024×756とした。この解像度はビデオカードを交換すれば更に高くすることもできる。ディスプレイに表示された画像の取り込み・印刷には様々な経路で配布されているシェアウェアやフリーウェアを使った。プログラムの開発に国内で一般的なNECのPC-98シリーズではなくDOS/Vを使ったのは、PC-98よりも低価格でありハードウェア構成が柔軟であることや、高機能なシェアウェアやフリーウェアが豊富に存在することなどが理由である。

画像の表示はd_mapというプログラムによって行う。まず、予めパラメータ用のファイルに画像データの大きさ、色の階調範囲などのパラメータを記述しておく。強度データを画像に変換する原理は比較的単純である。d_mapはデータを読み込むごとにそれを色の階調値に変換し、描画位置に色を塗っていく作業をデータが終わるまで繰り返す。強度分布の画像を得るには描画すべきデータが格子上に並んでいさえすればよい。プログラムの作成はd_mapを作るよりはむしろ画像を表示させるためのデータを作ることに力点を置いた。

3. 強度分布の表示例

4軸回折計とIPで測定された散漫散乱の強度分布のデータを画像にした例を以下に示す。

3.1 4軸回折計のデータの表示

機器分析センターの理学電機4軸自動回折装置(AFC 5)で測定された散漫散乱の強度データは色の階調として写真的に表示するには粗いためデータの間を補完するプログラム(three, twin)を作成した。補完には補完点周りの第2隣接の測定点までのデータの距離の逆数を重みとした加重平均を用いている。しかし、強度が急激に変化するブラッグ反射の周りで強度分布の形が歪む傾向がある。ブラッグ反射の周りの散漫散乱強度分布を詳しく調べるためには別の補完方法を用いる必要がある。また、4軸回折計による測定データの並びをd_mapの描画順序に合わせるプログラム(river)も作成した。

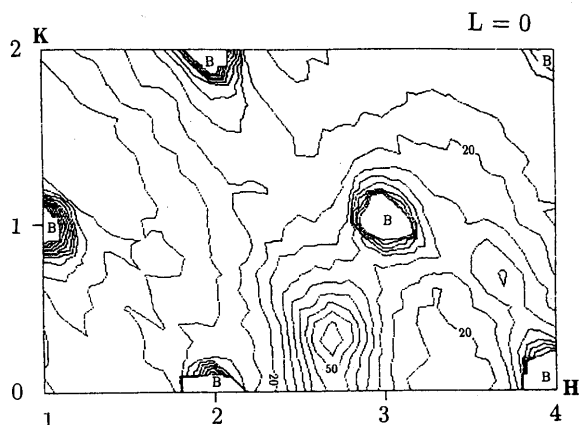


図1 C₂Cl₆の高温相のk=0でのhI面の散漫散乱の等高線による強度分布

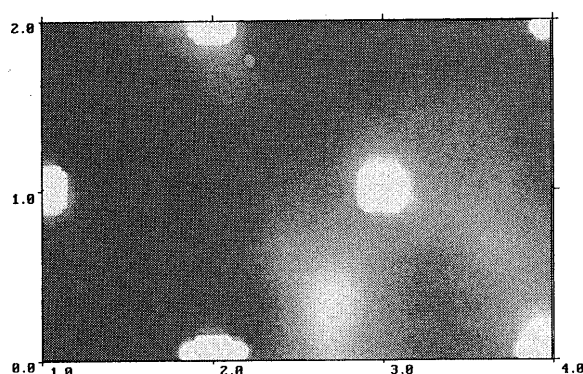


図2 C₂Cl₆の高温相のk=0でのhI面の散漫散乱の階調による強度分布

ヘキサクロエタン(C₂Cl₆)の高温相でhk面内で測定した散漫散乱強度分布を従来の等高線を用いて表したものを図1に、強度を階調にして画像化したものを図2に示す。逆格子点の鋭いブラッグ反射以外になだらかな散漫散乱のピークやその位置は、散漫散乱の強度を階調で表現した方が直感的によくわかる。このピークの中心は逆格子空間内の(2.7 0.3 0.3), (1.7 1.7 1.3), (2.7 0.7 0.7)などに存在する。図3にh=2.7のkl面内の散漫散乱の強度分布を画像にしたものを示す。C₂Cl₆の結晶の高温相は体心立方構造(bcc)であり、C₂Cl₆分子は分子位置の対称性を満たすように分子軸の向きが格子の<111>方向にそった4つの方位を無秩序に等確率でとるといわれている^{1),2)}。測定された散漫散乱のピークは、波数ベクトル $q=(2/3, 2/3, 2/3)$ で特徴づけられ、最隣接分子の向きがそろうような相関が大きいことに関連していると考えられる。

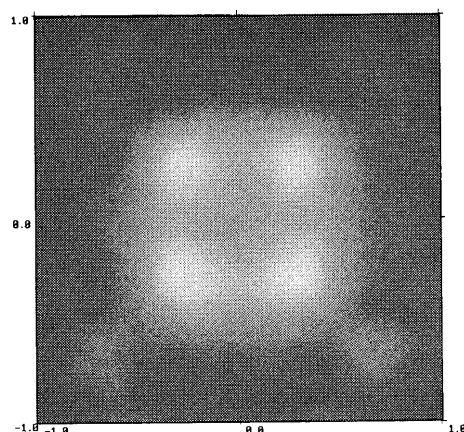


図3 C₂Cl₆の高温相のkl面のh=2.7での散漫散乱の強度分布

3.2 IPデータの表示

DIPシステムのIPデータはMXPフォーマットと呼ばれるバイナリ形式で記憶されている。その大きさは膨大でDIP 3000で20MB、DIP 220でも6MBあまりの容量がある。このままでデータを扱うことは困難なので、粗視化とアスキー形式への変換を行わなくてはならない。データの変換には理学部の増山博行教授が作成されたcndipfのローカルバージョンを使わせていただいた。さらに粗視化したDIP 3000のデータの一部を取り出すためのプログラム(cut)を作成した。

IPデータを取り込み表示させた例としてシアノアダマンタン(C₁₀H₁₅CN: CN-ADM)の散漫散乱の強度分布を室温で測定した結果を図4に、室温から150Kに急冷した結晶で測定した結果を図5に示す。急冷した結晶では逆格子点のブラッグ反射以外の点に散漫散乱の強度のピークが成長していることがわかる。CN-ADMは室温では面心立方構造(fcc)が安定で、分子位置の対称性を満たすようにCN-ADM分子が6つの方位を無秩序に等確率にとっていると考えられている。246K以下では単斜晶系が安定となる。しかし、室温から170K以下に急冷することにより過冷却状態を経てガラス転移をすることが知られている^{3),4)}。観測された散漫散乱のピークはガラス相においてCN-ADMの分子が互いに反平行を向く相関に関連したものと解釈されている⁵⁾。

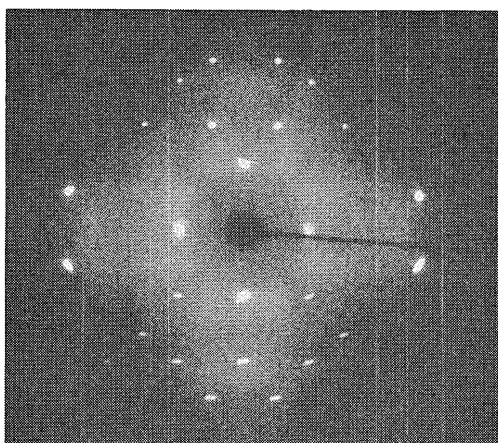


図4 室温でのCN-ADMの散漫散乱強度分布

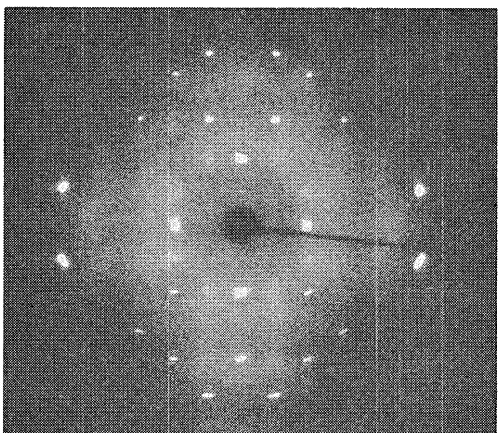


図5 室温から150Kへ急冷したCN-ADMの散漫散乱強度分布

4. おわりに

d_mapを作成したことにより散漫散乱の強度分布を簡単に画像化できるようになった。このプログラムはこれからの我々の研究にとって有用な道具となるものと考えている。また、d_mapの扱うデータはアスキー形式なので散漫散乱だけではなく、様々な強度の2次元分布を表現する手段として用いることもできる。さらに他機種やほかの処理系・環境への移植も比較的簡単にできるようにプログラムのモジュール化を行っている。今後はWindows環境への対応を含めてマンマシンインターフェースの改良を行いより汎用性のあるソフトウェアへと発展させて行きたいと考えている。

最後になりましたが、DIPシステムのデータを粗視化するcndiptのソースプログラムを快く提供して下さった理学部の増山博行教授に厚く御礼申し上げます。プログラムのほとんどすべてのコーディングと、最終的なチューニングを施してくれた4年生の吉村育宏君に感謝いたします。

参考文献

- 1) T. Koide, M. Tsujino, K. Sawada and T. Oda (1974); Phase transition of solid hexabromoethane. Bull. Chem. Soc. Jpn. 47, 2998-3000.
- 2) P. Gerlach, D. Hohlwein, W. Prandl and F. W. Schuls (1981); The plastic phase of hexachloroethane, C_2Cl_6 : A neutron powder and single-crystal investigation. Acta. Cryst. A37, 904-908.
- 3) M. Foulon, J. P. Amoureux, J. L. Sauvajol, J. Lefebvre and M. Descamps (1983); Different aspects of an interesting glassy crystal: 1-cyanoadamantane. J. Phys. C16, L265-L269.
- 4) M. Foulon, J. P. Amoureux, J. L. Sauvajol, J. P. Cavrot and M. Muller (1984); Evidence of a 'glassy crystal' phase obtained by the quenching of the plastic phase of the cyanoadamantane. J. Phys. C17, 4213 - 4229.
- 5) M. Descamps and C. Causheteux (1984); The orientational glassy state and glass transition in cyanoadamantane: Kinetics of metastable ordering and cluster reversion. J. Phys. C20, 5073 - 5095.