



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 117807347 A

(43) 申请公布日 2024.04.02

(21) 申请号 202311275932.2

(22) 申请日 2023.09.28

(30) 优先权数据

2022-157711 2022.09.30 JP

(71) 申请人 株式会社理学

地址 日本东京都

(72) 发明人 吉元政嗣 表和彦 伊藤和辉

(74) 专利代理机构 北京市隆安律师事务所
11323

专利代理人 权鲜枝 刘宁军

(51) Int.CI.

G06F 17/10 (2006.01)

G01N 23/207 (2018.01)

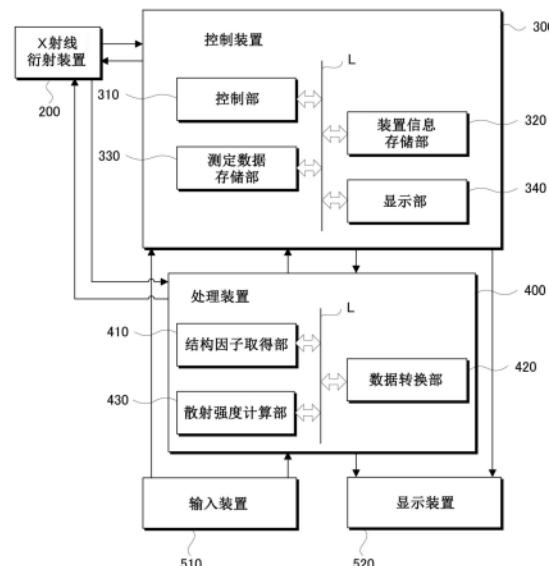
权利要求书1页 说明书12页 附图17页

(54) 发明名称

处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质

(57) 摘要

提供一种计算包含总散射数据和结构模型的数据的结构因子的处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质。处理结构因子的处理装置(400)具备：结构因子取得部(410)，其取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子；数据转换部(420)，其将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关；以及散射强度计算部(430)，其取得表示有限区域内的原子排列的结构模型，计算所述结构模型的短距离散射强度，根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子。



1. 一种处理装置，是处理结构因子的处理装置，其特征在于，具备：
结构因子取得部，其取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子；
数据转换部，其将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关；以及
散射强度计算部，其取得表示有限区域内的原子排列的结构模型，计算所述结构模型的短距离散射强度，根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子。
2. 根据权利要求1所述的处理装置，其特征在于，
所述短距离相关与所述长距离相关的边界的值是基于所述结构模型的区域的尺寸和形状来决定的。
3. 根据权利要求1所述的处理装置，其特征在于，
还具备计算所述第1结构因子与所述第2结构因子的一致度或背离度的结构评价部。
4. 根据权利要求3所述的处理装置，其特征在于，
还具备创建所述结构模型的结构推定部，
所述结构评价部输出所述一致度或背离度满足规定条件的所述结构模型。
5. 根据权利要求3所述的处理装置，其特征在于，
所述结构评价部在基于所述短距离相关与所述长距离相关的边界的值所决定的下限值以上的范围内计算所述第1结构因子与所述第2结构因子的所述一致度或背离度。
6. 根据权利要求4所述的处理装置，其特征在于，
所述结构推定部通过反向蒙特卡罗法创建所述结构模型。
7. 根据权利要求1所述的处理装置，其特征在于，
还具备结构因子算出部，所述结构因子算出部取得试样的总散射数据，基于所述总散射数据的射线源的种类、波长、本底、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数来算出所述第1结构因子，
所述结构因子取得部取得所述结构因子算出部所算出的所述第1结构因子。
8. 一种处理系统，其特征在于，具备：
X射线衍射装置，其具备产生X射线的X射线发生部、检测X射线的检测器、以及控制试样的旋转的测角仪；以及
权利要求1至权利要求7中的任意一项所述的处理装置。
9. 一种处理方法，是处理结构因子的方法，其特征在于，包含：
结构因子取得步骤，取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子；
数据转换步骤，将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关；以及
散射强度计算步骤，取得表示有限区域内的原子排列的结构模型，计算所述结构模型的短距离散射强度，根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子。
10. 一种记录介质，是记录处理结构因子的程序的计算机可读取且非暂时性的记录介质，其特征在于，
所述程序使计算机执行：
取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子的处理；
将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关的处理；以及
取得表示有限区域内的原子排列的结构模型，计算所述结构模型的短距离散射强度，根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子的处理。

处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质

技术领域

[0001] 本发明涉及处理结构因子的处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质。

背景技术

[0002] 对于材料功能的深入理解而言,三维的结构信息是必不可少的。以往的材料大多是结晶性材料,通过结晶结构的决定即能够达到目的。但是,近年来的电池、电子领域等的材料为了实现目标功能/物性的最大化,积极地降低了规整性的结晶性材料也在逐渐增多。

[0003] 以往,在结晶性材料的局部结构推定中,为了计算衍射峰,需要由用户进行复杂的参数设定。因此,要求无需进行复杂的参数设定的结晶性材料的局部结构推定法。

[0004] 非专利文献1公开了使用RMCPOW法的衍射峰的计算方法。非专利文献2公开了使用RMCPProfile法的衍射峰的计算方法。专利文献1公开了将对基于测定值的PDF进行再现的结晶结构模型和结构参数推导出的方法。

[0005] 现有技术文献

[0006] 非专利文献

[0007] 非专利文献1:A. Mellergård, R.L. McGreevy, Acta Crystallogr Acta Crystallogr. 55 (1999) 783-789.

[0008] 非专利文献2:M.G.Tucker, M.T.Dove, D.A.Keen, J.Appl.Crystallogr. 34 (2001) 630-638.

[0009] 专利文献

[0010] 专利文献1:特开2020-94945号公报

[0011] 但是,非专利文献1没有记载如何设定散射矢量Q的分辨率(resolution)函数,用户需要合适地设定使处理顺利进行的参数。另外,非专利文献2必须另外使用GSAS这一软件来计算轮廓(profile)函数的参数。该操作必须经由转换器,所花费的是与执行通常的Rietveld解析同样的计算成本。

[0012] 另外,专利文献1记载的方法针对分辨率函数、原子散射因子等具有波数依赖性的参数进行严格的处理,因此需要用户设定各种参数,并花费了计算成本。即,非专利文献1、非专利文献2以及专利文献1的方法均需要用户设定复杂且很多的参数,创建能够说明实测数据的结构模型是不容易的。另外,花费了计算成本。

[0013] 本发明的发明人们进行了锐意研究,结果发现通过计算包含实测到的总散射数据(total scattering data)和结构模型的数据的结构因子,在推定试样的局部结构时能够使由用户设定的参数变得简单,能够降低计算成本,另外,能够一并解析总散射数据和结构模型这两者的特征,而且能够创建能够说明实测数据的精度好的结构模型,并完成了本发明。

发明内容

[0014] 本发明是鉴于这样的情况而完成的,目的在于提供一种计算包含总散射数据和结

构模型的数据的结构因子的处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质。

[0015] (1) 为了达到上述的目的,本发明的处理装置是处理结构因子的处理装置,其特征在于,具备:结构因子取得部,其取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子;数据转换部,其将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关;以及散射强度计算部,其取得表示有限区域内的原子排列的结构模型,计算所述结构模型的短距离散射强度,根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子。

[0016] (2) 另外,在本发明的处理装置中,其特征在于,所述短距离相关与所述长距离相关的边界的值是基于所述结构模型的区域的尺寸和形状来决定的。

[0017] (3) 另外,本发明的处理装置的特征在于,还具备计算所述第1结构因子与所述第2结构因子的一致度或背离度的结构评价部。

[0018] (4) 另外,本发明的处理装置的特征在于,还具备创建所述结构模型的结构推定部,所述结构评价部输出所述一致度或背离度满足规定条件的所述结构模型。

[0019] (5) 另外,在本发明的处理装置中,其特征在于,所述结构评价部在基于所述短距离相关与所述长距离相关的边界的值所决定的下限值以上的范围内计算所述第1结构因子与所述第2结构因子的所述一致度或背离度。

[0020] (6) 另外,在本发明的处理装置中,其特征在于,所述结构推定部通过RMC法创建所述结构模型。

[0021] (7) 另外,本发明的处理装置的特征在于,还具备结构因子算出部,所述结构因子算出部取得试样的总散射数据,基于所述总散射数据的射线源的种类、波长、本底、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数来算出所述第1结构因子,所述结构因子取得部取得所述结构因子算出部所算出的所述第1结构因子。

[0022] (8) 另外,本发明的处理系统的特征在于,具备:X射线衍射装置,其具备产生X射线的X射线发生部、检测X射线的检测器、以及控制试样的旋转的测角仪;以及上述(1)至(7)中的任意一项所述的处理装置。

[0023] (9) 另外,本发明的处理方法是处理结构因子的方法,其特征在于,包含:结构因子取得步骤,取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子;数据转换步骤,将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关;以及散射强度计算步骤,取得表示有限区域内的原子排列的结构模型,计算所述结构模型的短距离散射强度,根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子。

[0024] (10) 另外,本发明的记录介质是记录处理结构因子的程序的计算机可读取且非暂时性的记录介质,其特征在于,所述程序使计算机执行:取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子的处理;将所述第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关的处理;以及取得表示有限区域内的原子排列的结构模型,计算所述结构模型的短距离散射强度,根据所述短距离散射强度和所述长距离相关来计算第2结构因子的处理。

附图说明

[0025] 图1是示出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的一个例子的坐标图。

[0026] 图2是示出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 、短距离相关 $F^S_{obs}(Q)$ 以及长距离相关 $F^L_{obs}(Q)$ 的一个例子的坐标图。

- [0027] 图3是示出结构模型的短距离散射强度 $F_{cal}^S(Q)$ 的一个例子的坐标图。
- [0028] 图4是示出第1结构因子 $S_{obs}(Q)$ 、第2结构因子 $S_{cal}(Q)$ 以及其残差的一个例子的坐标图。
- [0029] 图5是示出所输出的结构模型的一个例子的示意图。
- [0030] 图6是示出X射线衍射测定的系统的构成的一个例子的概念图。
- [0031] 图7是示出控制装置和处理装置的构成的一个例子的框图。
- [0032] 图8是示出控制装置和处理装置的构成的变形例的框图。
- [0033] 图9是示出控制装置和处理装置的构成的变形例的框图。
- [0034] 图10是示出处理装置的构成的变形例的框图。
- [0035] 图11是示出处理装置的构成的变形例的框图。
- [0036] 图12是示出处理装置的构成的变形例的框图。
- [0037] 图13是示出处理装置的构成的变形例的框图。
- [0038] 图14是示出处理装置的动作的一个例子的流程图。
- [0039] 图15是示出处理装置的动作的变形例的流程图。
- [0040] 图16是示出处理装置的动作的变形例的流程图。
- [0041] 图17是示出实测值、实施例以及比较例的PDF和残差的坐标图。
- [0042] 图18是根据用本发明的方法创建的结构模型计算的位移量的直方图。

[0043] 附图标记说明

- [0044] 100 系统
- [0045] 200 X射线衍射装置
- [0046] 210 X射线发生部
- [0047] 220 入射侧光学单元
- [0048] 230 测角仪
- [0049] 240 试样台
- [0050] 250 出射侧光学单元
- [0051] 260 检测器
- [0052] 300 控制装置
- [0053] 310 控制部
- [0054] 320 装置信息存储部
- [0055] 330 测定数据存储部
- [0056] 340 显示部
- [0057] 400 处理装置
- [0058] 405 结构因子算出部
- [0059] 410 结构因子取得部
- [0060] 420 数据转换部
- [0061] 430 散射强度计算部
- [0062] 440 结构评价部
- [0063] 450 结构推定部
- [0064] 510 输入装置

[0065] 520 显示装置。

具体实施方式

[0066] 接下来,参照附图来说明本发明的实施方式。为了容易理解说明,在各附图中对相同的构成要素标注相同的附图标记,省略重复的说明。

[0067] [原理]

[0068] 作为试样的局部结构推定法,有RMC(Reverse Monte Carlo:反向蒙特卡罗)法。RMC法是使用随机数使所给出的结构模型的原子配置移动并推定对实测值进行再现的结构模型的方法。基于RMC法的局部结构推定是以已知对局部结构进行推定的材料的结晶相、以及已知决定衍射峰的宽度的参数的值为前提的,用户必须每次设定用于计算衍射峰的参数或Q的分辨率函数。

[0069] 另外,为了根据结构模型计算衍射峰,需要根据结构模型计算总散射数据,所花费的是计算机的存储器或CPU等的能力、计算时间等计算成本。

[0070] 本发明的方法由于不是根据结构模型直接计算衍射峰,因此,用户无需设定用于计算衍射峰的参数或散射矢量Q的分辨率函数。另外,由于根据结构模型计算的仅是短距离散射数据,因此无需计算包含长距离相关的总散射数据,能够降低计算成本。

[0071] 在本发明的方法中,首先取得实测到的总散射数据,创建第1结构因子。总散射数据例如能够使用基于X射线的总散射数据、基于辐射光的总散射数据、基于中子射线或电子射线等粒子射线的总散射数据。结构因子被定义为物质中的电子密度分布(或核密度分布)的空间相关的傅立叶变换,并且是在求出弹性散射或相干散射强度时使用的值。第1结构因子是指根据实测到的总散射数据所创建的结构因子。接下来,将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关。短距离相关和长距离相关是将对结构因子进行傅立叶变换所得到的实空间上的相关函数以规定的边界的值进行分离而获得的。因而,短距离相关与长距离相关的边界的值是距离的维度的值。

[0072] 接下来,创建并取得表示有限区域内的原子排列的结构模型,并计算结构模型的短距离散射强度。结构模型是指表示有限区域内的原子排列的数据,例如,表示立方体、长方体或平行六面体内的有限个原子的排列。短距离散射强度是指根据有限区域内的原子排列计算的散射强度。为了根据结构模型对实测的总散射数据进行再现,需要进行包含长距离相关在内的计算,因此需要大的结构模型。另一方面,短距离散射强度不包含长距离相关,因此即使是小的结构模型也能计算。由于结构模型的大小与计算成本存在相关性,因此用于计算短距离散射强度的计算成本比用于进行再现实测的总散射数据的计算的计算成本小。即,本发明与现有技术相比,能够降低计算成本。

[0073] 接下来,根据结构模型的短距离散射强度和第1结构因子的长距离相关来计算包含总散射数据和结构模型的数据的第2结构因子。第2结构因子是指包含实测到的总散射数据和结构模型的数据这两者的结构因子。接下来,计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度。第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度是指表示第1结构因子与第2结构因子的接近程度的指标。并且,在一致度或背离度不满足规定条件的情况下,再次创建结构模型,计算第2结构因子。在一致度或背离度满足规定条件的情况下,将处理结束。

[0074] 如上述这样计算的第2结构因子包含实测到的总散射数据和结构模型的数据这两

者,因此通过对对其进行解析,能够对所给出的结构模型以哪种程度再现了实测到的总散射数据进行证实。另外,一致度或背离度满足规定条件的结构模型可以说是能够说明实测数据的精度好的结构模型。本发明的详细的处理方法通过实施方式来详述。

[0075] [实施方式]

[0076] 以下,详细地说明本发明的处理方法。以下,说明如下方法:处理基于由X射线衍射装置测定到的总散射数据的第1结构因子并计算包含总散射数据和结构模型的数据的第2结构因子的方法、计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度的方法、以及输出一致度或背离度为规定的阈值以下的结构模型的方法。但是,能够应用本发明的总散射数据不限于由X射线衍射装置测定到的总散射数据,能够应用于由与其类似的探测器测定到的总散射数据。具体地说,例如,能够针对基于辐射光的总散射数据、基于中子射线、电子射线等粒子射线的总散射数据进行应用。另外,本发明并非一定需要取得总散射数据,也可以将根据总散射数据算出的第1结构因子作为最初的数据。

[0077] 首先,取得由X射线衍射装置测定到的总散射数据。在将总散射数据作为最初的数据的情况下,优选也取得总散射数据的射线源的种类、波长、本底(background;背景)、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数等为了基于总散射数据算出结构因子而需要的信息。这些信息可以是预先存储的信息,也可以是从X射线衍射装置取得的信息。另外,也可以是由用户输入的信息。

[0078] 接下来,基于总散射数据算出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 。第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的算出优选基于总散射数据的射线源的种类、波长、本底、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数等进行算出。图1是示出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的一个例子的坐标图。

[0079] 接下来,将第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 分离为短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 和长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 。第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 是使用短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 和长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 如以下的数学式(1)那样来表示。图2是示出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 、短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 以及长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的一个例子的坐标图。图2的短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 和长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 示出了将图1的第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 分离后的曲线图。

$$[0080] F_{obs}(Q) = F_{obs}^S(Q) + F_{obs}^L(Q) \quad \dots (1)$$

[0081] 短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值优选基于结构模型的区域的尺寸和形状来决定。例如,在将结构模型所包含的最大的球的半径设为 r_{max} 时,优选将 r_{max} 设为短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值。以下,将 r_{max} 设为短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值,但也能够使用其它值。

[0082] 将第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 分离成短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 和长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的方法可以使用任意的方法。例如,算出对第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 进行了傅立叶变换的PDF(Pair Distribution Function:对分布函数) $G_{obs}(r)$ 、并使用 $G_{obs}(r)$ 来进行是简便且优选的。 $G_{obs}(r)$ 的算出是取得第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的最小值 Q_{min} 和最大值 Q_{max} 并通过以下的数学式(2)来进行。 Q_{min} 和 Q_{max} 是在算出第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 时附带的值。 Q_{min} 和 Q_{max} 也可以是由用户输入的值。

$$[0083] G_{obs}(r) = \frac{2}{\pi} \int_{Q_{min}}^{Q_{max}} Q^2 F_{obs}(Q) \frac{\sin Qr}{Qr} dQ \quad \dots (2)$$

[0084] 如以下的数学式(3)那样,通过对 $G_{obs}(r)$ 进行逆变换而成为第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 。因此,当将短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值设为 r_{max} 时,第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 能够如以下的数学式(4)那样进行分离。

$$[0085] F_{obs}(Q) = \int_0^\infty G_{obs}(r) \frac{\sin Qr}{Qr} dr \quad \cdots (3)$$

$$[0086] F_{obs}(Q) = \int_0^{r_{max}} G_{obs}(r) \frac{\sin Qr}{Qr} dr + \int_{r_{max}}^\infty G_{obs}(r) \frac{\sin Qr}{Qr} dr \quad \cdots (4)$$

[0087] 因而,在使用 $G_{obs}(r)$ 进行第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的分离的情况下,例如,能够通过以下的数学式(5)来定义短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 。另外,能够使用通过数学式(5)求出的短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$,并通过以下的数学式(6)来求出长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 。

$$[0088] F_{obs}^S(Q) = \int_0^{r_{max}} G_{obs}(r) \frac{\sin Qr}{Qr} dr \quad \cdots (5)$$

$$[0089] F_{obs}^L(Q) = F_{obs}(Q) - F_{obs}^S(Q) \quad \cdots (6)$$

[0090] 接下来,取得表示有限区域内的原子排列的结构模型,计算结构模型的短距离散射强度 $F_{cal}^S(Q)$ 。结构模型根据试样例如能够作为表示立方体、长方体或平行六面体内的有限个原子的排列的数据来给出。结构模型的短距离散射强度 $F_{cal}^S(Q)$ 的计算例如能够通过以下的数学式(7)来进行。此外,在数学式(7)中,N是结构模型内的原子的个数。 r_{ij} 是针对结构模型的原子排列 $n(x, y, z)$ 将第i个原子排列设为 $n_i(x_i, y_i, z_i)$ 、将第j个原子排列设为 $n_j(x_j, y_j, z_j)$ 而用数学式(8)来定义的。 f_i 和 f_j 分别是第i个和第j个原子散射因子。 Q 是散射矢量。图3是示出结构模型的短距离散射强度 $F_{cal}^S(Q)$ 的一个例子的坐标图。

$$[0091] F_{cal}^S(Q) = \frac{1}{N} \sum_i^N \sum_{j \neq i}^N f_i f_j \frac{\sin Qr_{ij}}{Qr_{ij}} \quad \cdots (7)$$

$$[0092] r_{ij} = \sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2} \quad \cdots (8)$$

[0093] 然后,根据结构模型的短距离散射强度 $F_{cal}^S(Q)$ 和第1结构因子的长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 来计算包含总散射数据和结构模型的数据的第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 。第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 的计算例如能够通过以下的数学式(9)来进行。由此,能够使用第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 对总散射数据和结构模型这两者的特征一并进行解析。另外,也可以根据第2结构因子的用途而将第2结构因子作为 $S_{cal}(Q)$ 来计算。第2结构因子 $S_{cal}(Q)$ 的计算例如能够通过以下的数学式(10)来进行。

$$[0094] F_{cal}(Q) = F_{cal}^S(Q) + F_{obs}^L(Q) \quad \cdots (9)$$

$$[0095] S_{cal}(Q) = F_{cal}^S(Q) + F_{obs}^L(Q) + 1 \quad \cdots (10)$$

[0096] 为了对所给出的结构模型以哪种程度再现了实测到的总散射数据进行证实,优选计算第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 与第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 的一致度或背离度。一致度或背离度的计算只要是包含第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 和第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 并表示接近程度的值即可,可以是任意的值。一致度的值越大,则接近程度越大。背离度的值越小,则接近程度越大。背离度例如

能够通过以下的数学式(11)的 $R_{P,S(Q)}$ 来计算。数学式(11)内的 w_i 是权重系数,例如使用 $w_i = 1/N$ 。另外, $S_{obs}(Q) = F_{obs}(Q) + 1$, $S_{cal}(Q) = F_{cal}(Q) + 1$ 。如数学式(11)那样,第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度的计算也可以使用 $S_{obs}(Q)$ 或 $S_{cal}(Q)$ 。图4是示出第1结构因子 $S_{obs}(Q)$ 、第2结构因子 $S_{cal}(Q)$ 以及其残差的一个例子的坐标图。计算一致度或背离度的数学式不限于数学式(11)。

$$[0097] R_{P,S(Q)} = \sqrt{\frac{\sum_i^N w_i (S_{obs}(Q_i) - S_{cal}(Q_i))^2}{\sum_i^N w_i (S_{obs}(Q_i))^2}} \times 100 \quad \dots (11)$$

[0098] 在计算第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 与第2结构因子 $F_{cal}(Q)$ 的一致度或背离度的情况下,优选在基于短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值所决定的下限值以上的范围内进行一致度或背离度的计算。从实测到的第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 向 $G_{obs}(r)$ 的计算能够通过上述数学式(2)来进行,但其是将以下的数学式(12)、数学式(13)合并后的数学式。 $\alpha(Q)$ 是阶跃函数,是将第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的短距离侧和长距离侧的数据截断(cut off)的函数的一个例子。

$$[0099] G_{obs}(r) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty Q^2 F_{obs}(Q) \alpha(Q) \frac{\sin Qr}{Qr} dQ \quad \dots (12)$$

$$[0100] \alpha(Q) = \begin{cases} 1, & Q_{min} \leq Q \leq Q_{max} \\ 0, & 0 < Q < Q_{min} \text{ or } Q_{max} < Q < \infty \end{cases} \quad \dots (13)$$

[0101] 从PDF $G_{obs}(r)$ 进行了逆变换的第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 受到阶跃函数的影响。 Q_{min} 的截尾(truncation)误差的影响是与 $G_{obs}(r)$ 的边界的值(在上述的数学式(4)中为 r_{max})有关的,当使用 r_{max} 时, Q_{min} 的 Q 的分辨率 $\Delta Q'_0$ 如以下的数学式(14)那样来表示。

$$[0102] \Delta Q'_0 = \frac{\pi}{r_{max}} \quad \dots (14)$$

[0103] 因而,通过如以下的数学式(15)那样确定进行了逆变换的第1结构因子 $F_{obs}(Q)$ 的 Q_{min} 的接下来的测定点 Q'_1 ,能够充分地降低由截尾误差带来的影响。即,优选将基于短距离相关 $F_{obs}^S(Q)$ 与长距离相关 $F_{obs}^L(Q)$ 的边界的值所决定的下限值设为 Q'_1 ,在 Q'_1 以上的规定的范围内进行一致度或背离度的计算。此外, Q_{min} 也可以设为实测到的 Q 的下限值。

$$[0104] Q'_1 = Q_{min} + \Delta Q'_0 \dots (15)$$

[0105] 以下,对使用本发明的方法来创建更合适的结构模型的情况进行说明。假设结构模型能够用某些方法反复创建。优选基于一致度或背离度来反复创建结构模型,并输出一致度或背离度满足规定条件的结构模型。图5是示出所输出的结构模型的一个例子的示意图。例如,在使用数学式(11)的背离度的情况下,能够将背离度的值为5%以下作为规定条件进行采用。

[0106] 在反复创建结构模型的情况下,创建结构模型的方法可以是任意的方法,但优选例如通过RMC法进行创建。RMC法具有广阔的搜索空间,能得到全局的极小解,因而作为复杂的最佳化问题的解法是有效的。因此,如果在本发明中应用RMC法,则能得到将实测到的散射数据再现的结构模型的可能性变高。在RMC法中,使结构模型的原子排列随机移动,在操作后的一致度或背离度比操作前的一致度或背离度好(接近程度大)的情况下,以该原子排

列为基础进一步进行随机的移动。另一方面,在操作后的一致度或背离度比操作前的一致度或背离度差(接近程度不大)的情况下,取消操作,从操作前的原子排列再次进行随机的移动。将这样的操作进行至一致度或背离度满足规定条件为止。此外,创建结构模型的方法也可以是MD法(Molecular Dynamics method:分子动力学法)或MC法(Monte Carlo method:蒙特卡罗法)。

[0107] 这样,能够创建以足够的精度再现实测到的总散射数据的结构模型。

[0108] [整体的系统]

[0109] 图6是示出X射线衍射测定的系统100的构成的一个例子的概念图。系统100具有X射线衍射装置200、控制装置300以及处理装置400。X射线衍射装置200构成使X射线入射到试样并检测从试样产生的衍射X射线的光学系统,在光学系统中具有测角仪。此外,图6所示的构成是一个例子,能采用其它各种构成。

[0110] 控制装置300连接到X射线衍射装置200,进行X射线衍射装置200的控制和所取得的数据的处理、存储。处理装置400进行结构因子的处理。控制装置300和处理装置400是具备CPU和存储器的装置,可以是PC终端,也可以是云上的服务器。另外,不仅是全部的装置设置在云上,也可以是一部分装置或装置内的一部分功能设置在云上。输入装置510例如是键盘、鼠标,进行向控制装置300或处理装置400的输入。显示装置520例如是显示器,显示结构因子、PDF、结构模型等。

[0111] 通过使用这样的系统100,能够测定总散射数据,处理根据总散射数据算出的结构因子。另外,能够创建结构模型,计算包含总散射数据和结构模型的数据的第2结构因子。其结果是,能够推定试样的局部结构。

[0112] 此外,在图6中,将控制装置300和处理装置400记载为同一PC。但是,如上述说明的那样,本发明的方法能够与X射线衍射装置200或控制装置300无关地取得总散射数据或结构因子来进行处理。因此,如图7所示,处理装置400也可以构成为与控制装置300不同的装置。图7是示出控制装置300和处理装置400的构成的一个例子的框图。另外,如图8所示,处理装置400也可以构成为控制装置300所包含的一部分功能。另外,如图9所示,处理装置400和控制装置300也可以构成为一体的装置。图8和图9是示出控制装置300和处理装置400的构成的变形例的框图。以下,说明控制装置300和处理装置400构成为不同的装置的情况。

[0113] [X射线衍射装置]

[0114] X射线衍射装置200构成为包括从X射线焦点即X射线源产生X射线的X射线发生部210、入射侧光学单元220、测角仪230、设置试样的试样台240、出射侧光学单元250、以及检测X射线的检测器260。构成X射线衍射装置200的X射线发生部210、入射侧光学单元220、测角仪230、试样台240、出射侧光学单元250以及检测器260只要是一般的装置即可,因此省略说明。

[0115] [控制装置]

[0116] 控制装置300由将CPU(Central Processing Unit/中央处理单元)、ROM(Read Only Memory:只读存储器)、RAM(Random Access Memory:随机存取存储器)、存储器连接到总线而成的计算机构成。控制装置300连接到X射线衍射装置200并接收信息。

[0117] 控制装置300具备控制部310、装置信息存储部320、测定数据存储部330以及显示部340。各部能够通过控制总线L发送和接收信息。输入装置510和显示装置520经由适当的

接口连接到CPU。

[0118] 控制部310控制X射线衍射装置200的动作。装置信息存储部320存储从X射线衍射装置200取得的装置信息。装置信息包含装置名、射线源的种类、波长、本底等与X射线衍射装置200相关的信息。除此之外，也可以包含试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数等为了基于总散射数据算出结构因子而需要的信息。

[0119] 测定数据存储部330存储从X射线衍射装置200取得的测定数据。在测定数据中，包含总散射数据。也可以与总散射数据相应地包含射线源的种类、波长、本底、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数等为了基于总散射数据算出结构因子而需要的信息。此外，在本底低的情况下，在为了算出结构因子而需要的信息中，也可以不包含本底。显示部340使显示装置520显示测定数据。由此，用户能够确认测定数据。另外，用户能够基于测定数据对控制装置300、处理装置400等进行指示、指定。

[0120] [处理装置]

[0121] 处理装置400由将CPU、ROM、RAM、存储器连接到总线而成的计算机构成。处理装置400也可以经由控制装置300连接到X射线衍射装置200。

[0122] 处理装置400具备结构因子取得部410、数据转换部420以及散射强度计算部430。各部能够通过控制总线L发送和接收信息。在处理装置400与控制装置300为不同的构成的情况下，输入装置510和显示装置520还经由适当的接口连接到处理装置400的CPU。在这种情况下，输入装置510和显示装置520可以与连接到控制装置300的输入装置和显示装置不同。

[0123] 结构因子取得部410取得基于实测到的总散射数据的第1结构因子。结构因子取得部410也可以取得别的设备基于X射线衍射装置200实测到的总散射数据所算出的第1结构因子。结构因子取得部410也可以取得后述的结构因子算出部405基于实测到的总散射数据所算出的第1结构因子。

[0124] 数据转换部420将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关。数据转换部420优选根据结构因子取得部410所取得的第1结构因子来算出PDF(Pair Distribution Function)，使用PDF将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关。数据转换部420也可以通过不使用PDF的方法将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关。

[0125] 数据转换部420将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关时的短距离相关与长距离相关的边界的值优选是基于结构模型的区域的尺寸和形状来决定的。

[0126] 散射强度计算部430取得表示有限区域内的原子排列的结构模型，计算结构模型的短距离散射强度。散射强度计算部430根据短距离散射强度和长距离相关来计算第2结构因子。散射强度计算部430也可以取得别的设备所创建的结构模型。散射强度计算部430也可以取得后述的结构推定部450所创建的结构模型。

[0127] 图10是示出处理装置400的构成的变形例的框图。如图10所示，处理装置400优选具备结构评价部440。结构评价部440计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度。由此，能够对结构模型以哪种程度再现了实测到的总散射数据进行证实。

[0128] 结构评价部440优选在基于短距离相关与长距离相关的边界的值所决定的下限值以上的范围内计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度。

[0129] 图11是示出处理装置400的构成的变形例的框图。如图11所示，处理装置400优选

具备结构推定部450。结构推定部450创建结构模型。结构推定部450优选基于结构模型的尺寸、形状、原子排列等确保计算区域，创建结构模型。结构模型的尺寸、形状、初始的原子排列等也可以构成为由用户来指定。在处理装置400具备结构推定部450的情况下，结构评价部440优选输出一致度或背离度满足规定条件的结构模型。

[0130] 结构推定部450优选通过RMC法创建结构模型。

[0131] 图12和图13是示出处理装置400的构成的变形例的框图。如图12或图13所示，处理装置400优选具备结构因子算出部405。结构因子算出部405取得试样的总散射数据，基于总散射数据的射线源的种类、波长、本底、试样的形状、配置、构成元素的种类、组成以及吸收系数来算出第1结构因子。此外，在本底低的情况下，也可以不使用本底地算出第1结构因子。在处理装置400具备结构因子算出部405的情况下，结构因子取得部410取得结构因子算出部405所算出的第1结构因子。在图10的框图中也可以进一步具备结构因子算出部405。

[0132] [测定方法]

[0133] 在X射线衍射装置200设置试样S，基于控制装置300的控制以规定条件使测角仪驱动。另外，使X射线入射到试样，并检测从试样产生的衍射X射线。由此，取得衍射数据。X射线衍射装置200将装置信息等和所取得的衍射数据作为测定数据发送到控制装置300。

[0134] [处理方法]

[0135] (到计算第2结构因子为止的流程的说明)

[0136] 图14是示出处理装置400的动作的一个例子的流程图。图14示出了到计算第2结构因子为止的动作的一个例子。首先，处理装置400取得第1结构因子(步骤S1)。接下来，将第1结构因子分离为短距离相关和长距离相关(步骤S2)。接下来，取得结构模型(步骤S3)。接下来，计算结构模型的短距离散射强度(步骤S4)。然后，根据短距离散射强度和长距离相关来计算第2结构因子(步骤S5)并结束。也可以根据需要输出第2结构因子或结构模型。这样，能够计算包含总散射数据和结构模型的数据的第2结构因子，能够使用第2结构因子对总散射数据和结构模型这两者的特征一并进行解析。

[0137] (到计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度为止的流程的说明)

[0138] 图15是示出处理装置400的动作的变形例的流程图。图15示出了到计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度为止的动作的一个例子。在以后的流程图的说明中，详细地说明特征性动作，有时省略已经说明过的动作的说明。从第1结构因子的取得(步骤T1)到第2结构因子的计算(步骤T5)为止是与从上述的步骤S1到步骤S5同样的。然后，处理装置400计算第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度(步骤T6)并结束。也可以根据需要输出第2结构因子或结构模型、第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度。由此，能够对结构模型以哪种程度再现了实测到的总散射数据进行证实。

[0139] (到输出满足条件的结构模型为止的流程的说明)

[0140] 图16是示出处理装置400的动作的变形例的流程图。图16示出了到输出满足条件的结构模型为止的动作的一个例子。第1结构因子的取得(步骤U1)、第1结构因子的分离(步骤U2)是与上述的步骤同样的。接下来，创建结构模型(步骤U3)。结构模型可以是处理装置400来创建，也可以使用由其它装置或功能所创建的结构模型。

[0141] 从结构模型的取得(步骤U4)到第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度的计算(步骤U7)为止是与上述的步骤同样的。接下来，处理装置400判断一致度或背离度是否

满足所设定的规定条件,在不满足规定条件的情况下(步骤U8-“否”),回到步骤U3,再次进行到步骤U7为止的处理。另一方面,在一致度或背离度满足所设定的规定条件下(步骤U8-“是”),输出结构模型(步骤U9)并结束。也可以根据需要输出第2结构因子、第1结构因子与第2结构因子的一致度或背离度。由此,能够创建并输出满足规定条件的结构模型。

[0142] 此外,在上述的流程图中,都是将第1结构因子作为最初的数据而从取得第1结构因子的步骤开始的,但也可以将总散射数据作为最初的数据,在取得第1结构因子的步骤之前包含取得总散射数据的步骤和从总散射数据创建第1结构因子的步骤。

[0143] [实施例]

[0144] 使用如上述这样构成的系统100测定了Ni的总散射数据。使用该数据算出了第1结构因子和PDF。接下来,使用本发明的方法,在第1结构因子与第2结构因子的背离度变得足够小之前,通过RMC法反复进行了结构模型的创建。接下来,根据背离度满足了规定条件时的第2结构因子创建了PDF。然后,对根据第1结构因子所创建的PDF与根据第2结构因子创建的PDF的背离度进行了证实。背离度是使用以下的数学式(16)所示的 $R_{P,G(r)}$ 进行证实的。数学式(16)内的 w_i 是权重系数,例如使用 $w_i = 1/N$ 。另外, $G_{obs}(r)$ 表示从第1结构因子创建的PDF, $G_{cal}(r)$ 表示从包含结构模型的数据的结构因子创建的PDF。

[0145] 此外,背离度 $R_{P,G(r)}$ 是值越小则2个PDF的接近程度越大的指标。

$$[0146] R_{P,G(r)} = \sqrt{\frac{\sum_i^N w_i (G_{obs}(r_i) - G_{cal}(r_i))^2}{\sum_i^N w_i (G_{obs}(r_i))^2}} \times 100 \quad \cdots (16)$$

[0147] 另外,作为比较例,用作为现有方法的PDFgui从第1结构因子创建了结构模型,使用该结构模型创建了结构因子和PDF。然后,对从第1结构因子创建的PDF与用PDFgui创建的PDF的背离度 $R_{P,G(r)}$ 进行了证实。

[0148] 图17是示出从作为实测值的第1结构因子创建的PDF、从用本发明的方法所创建的第2结构因子创建的PDF、以及用比较例的方法创建的PDF各自的残差的坐标图。此外,0bs表示的是从第1结构因子创建的PDF,RMC表示的是用本发明的方法创建的PDF,PDFgui表示的是用比较例的方法创建的PDF。

[0149] 用本发明的方法创建的PDF的背离度 $R_{P,G(r)}$ 的值是6.55%。另一方面,用比较例的方法创建的PDF的背离度 $R_{P,G(r)}$ 的值是8.20%。由此,证实了本发明的方法与比较例的方法相比能够创建与基于实测到的数据的PDF更接近的PDF。另外,证实了用本发明的方法创建的结构模型与用比较例的方法创建的结构模型相比是能够说明实测数据的精度更好的结构模型。

[0150] 另外,对根据用本发明的方法和Rietveld解析进行精密化前后的Ni的原子配置所计算的位移量的直方图及其标准偏差进行了确认。图18是根据用本发明的方法创建的结构模型所计算的位移量的直方图。位移量的标准偏差在用本发明的方法求出的情况下是0.0920Å,而在用Rietveld解析求出的情况下是0.0756Å。由此,证实了根据用本发明的方法创建的结构模型计算的位移量是与Rietveld解析相同的程度。

[0151] 根据以上的结果,本发明的处理装置、处理系统、处理方法以及记录介质在推定试样的局部结构时能够使由用户设定的参数变得简单,能够降低计算成本。另外,能够一并解

析总散射数据和结构模型这两者的特征。而且,能够创建能够说明实测数据的精度好的结构模型。

[0152] 本发明当然不限于上述实施方式。本发明的范围涵盖本发明的技术思想所包含的各种变形和等同物。另外,各附图所示的构成要素的名称、结构、形状、数量、位置、大小等均是为了便于说明,能适当变更。

[0153] 此外,本申请主张基于2022年9月30日提交的日本专利申请第2022-157711号的优先权,将日本专利申请第2022-157711号的全部内容通过参照引用到本申请中。

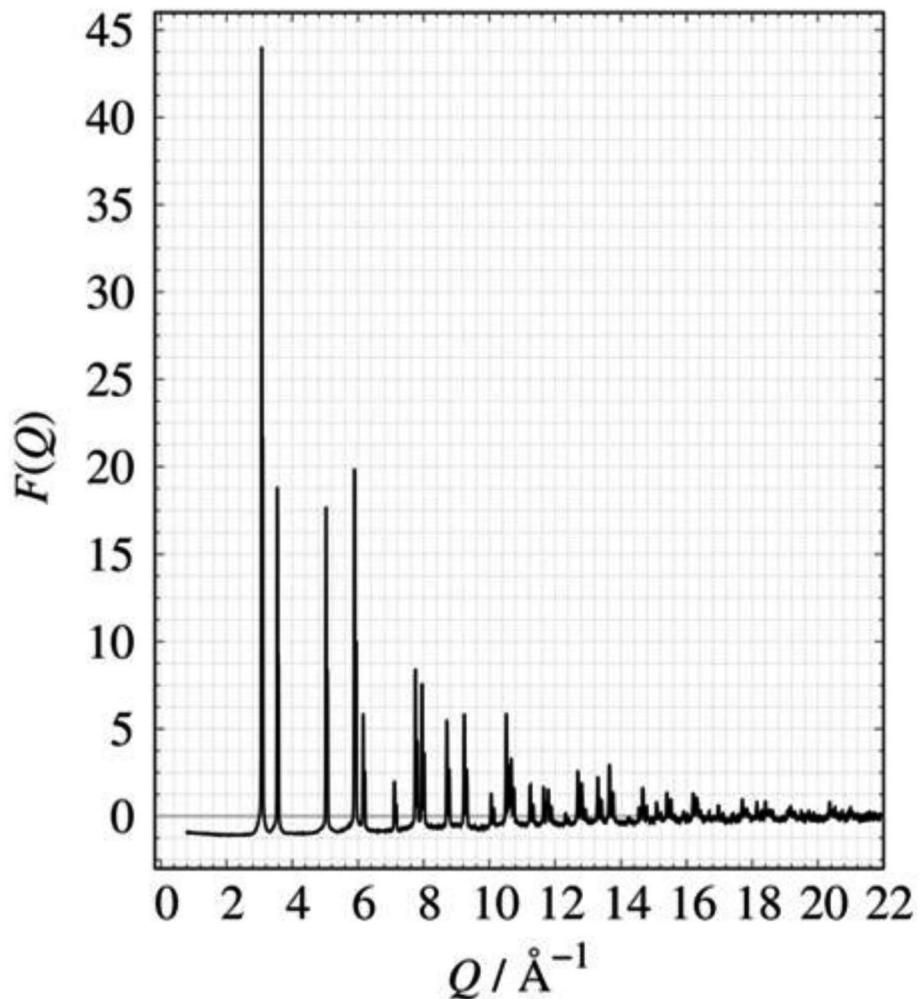


图1

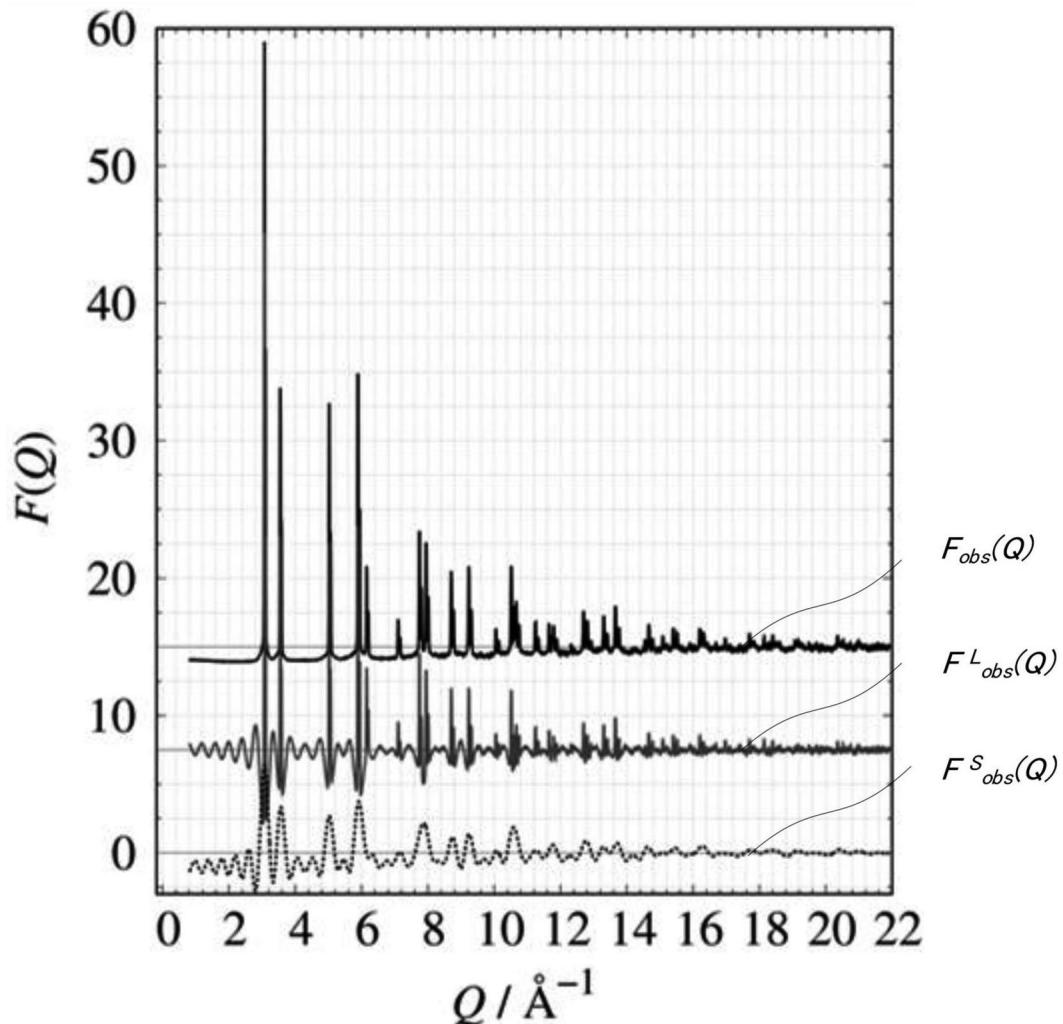


图2

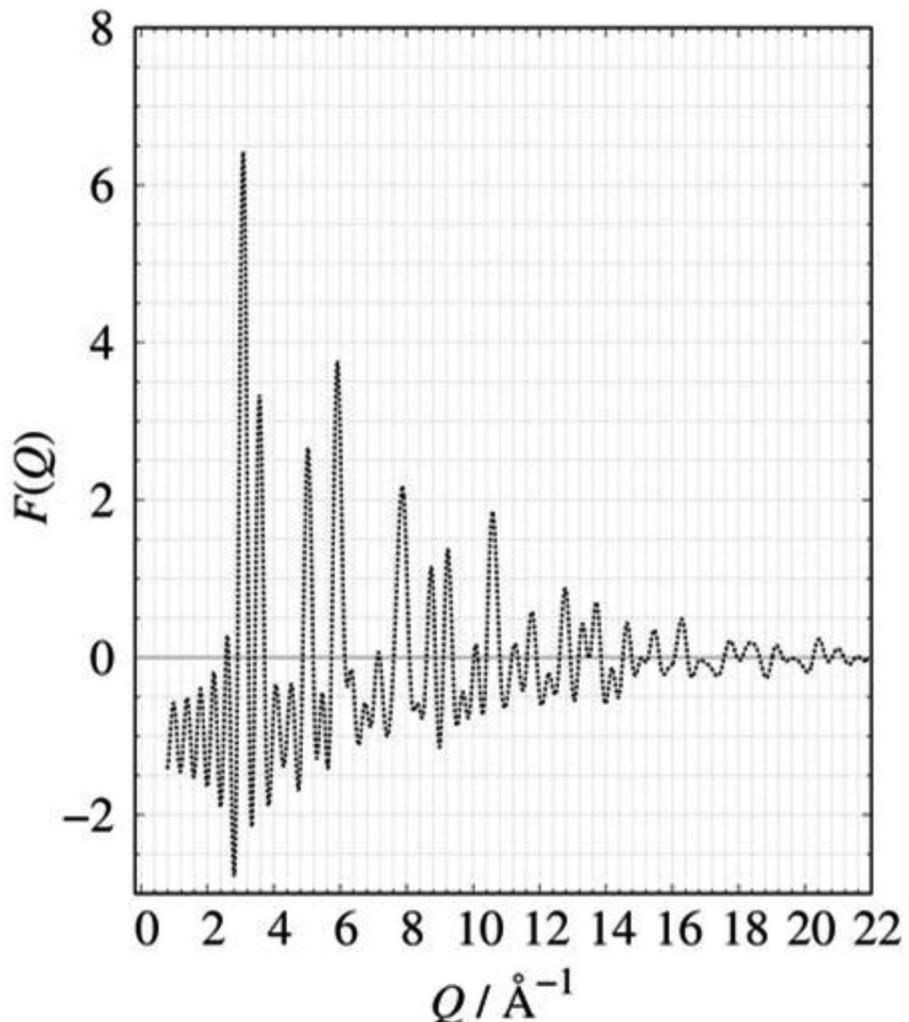


图3

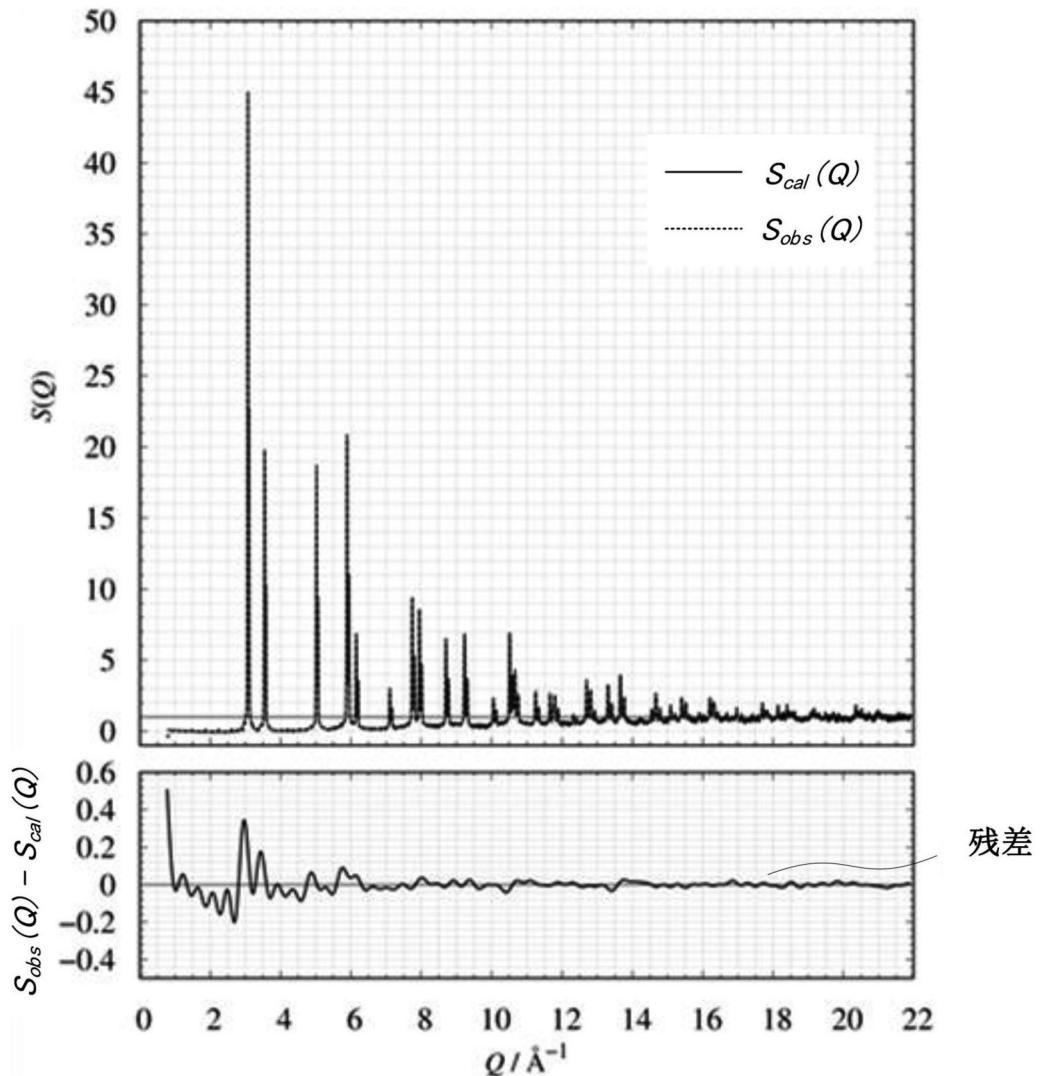


图4

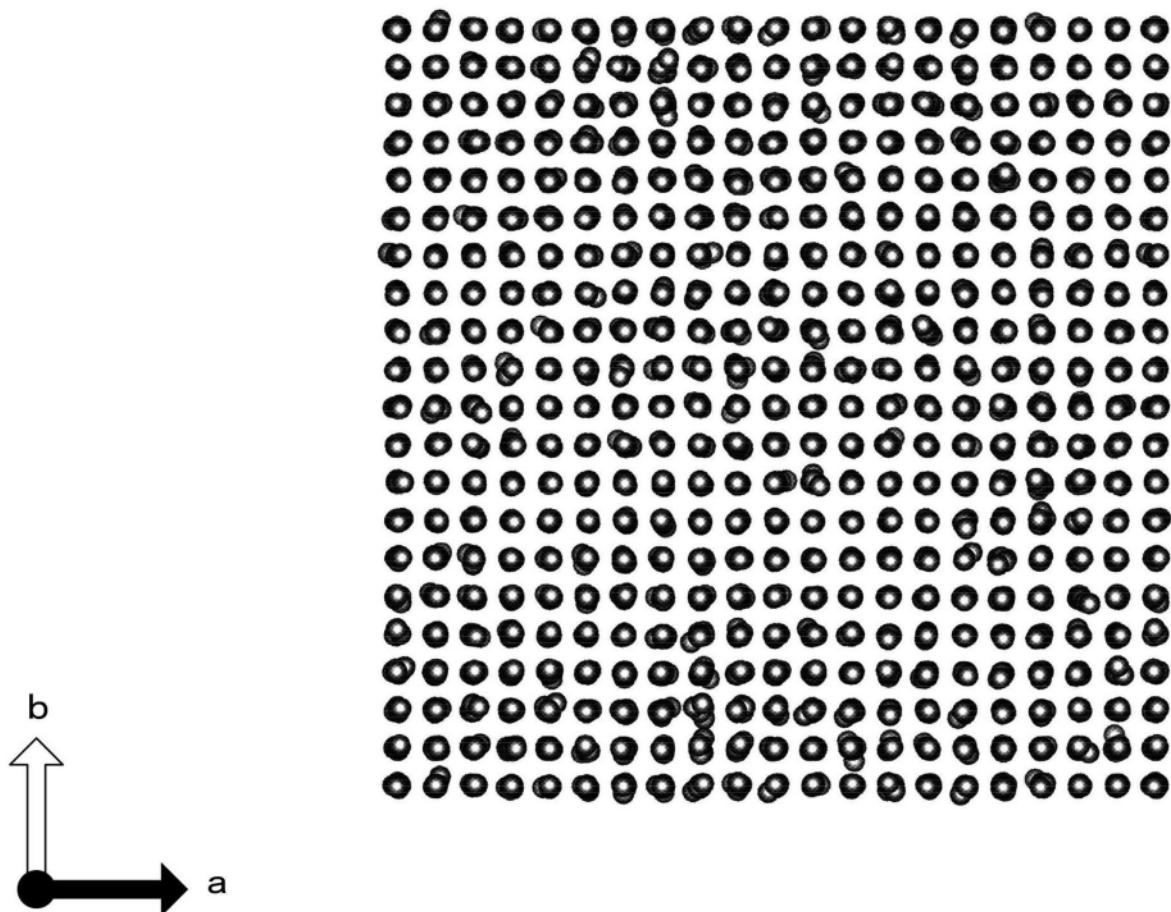


图5

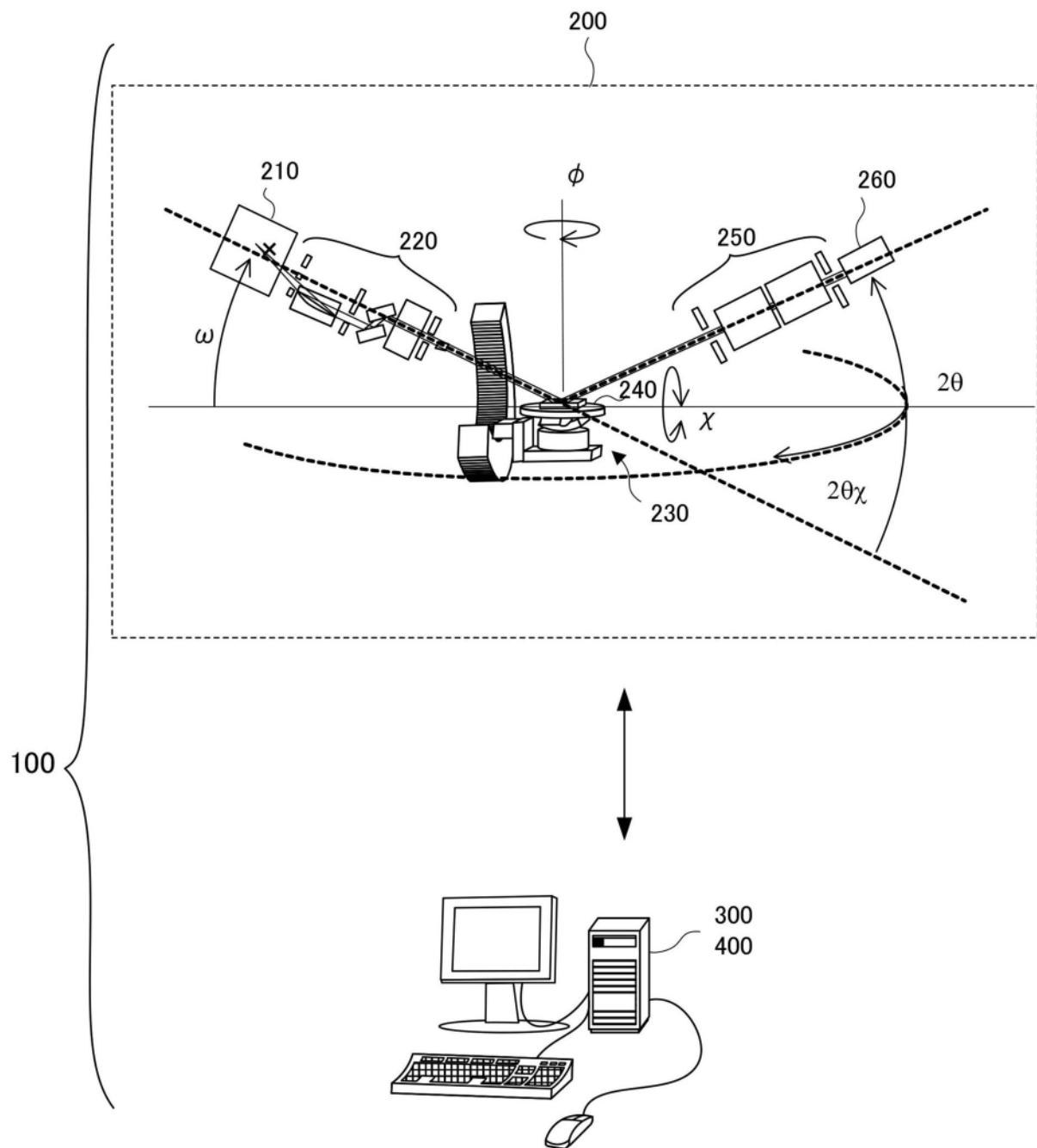


图6

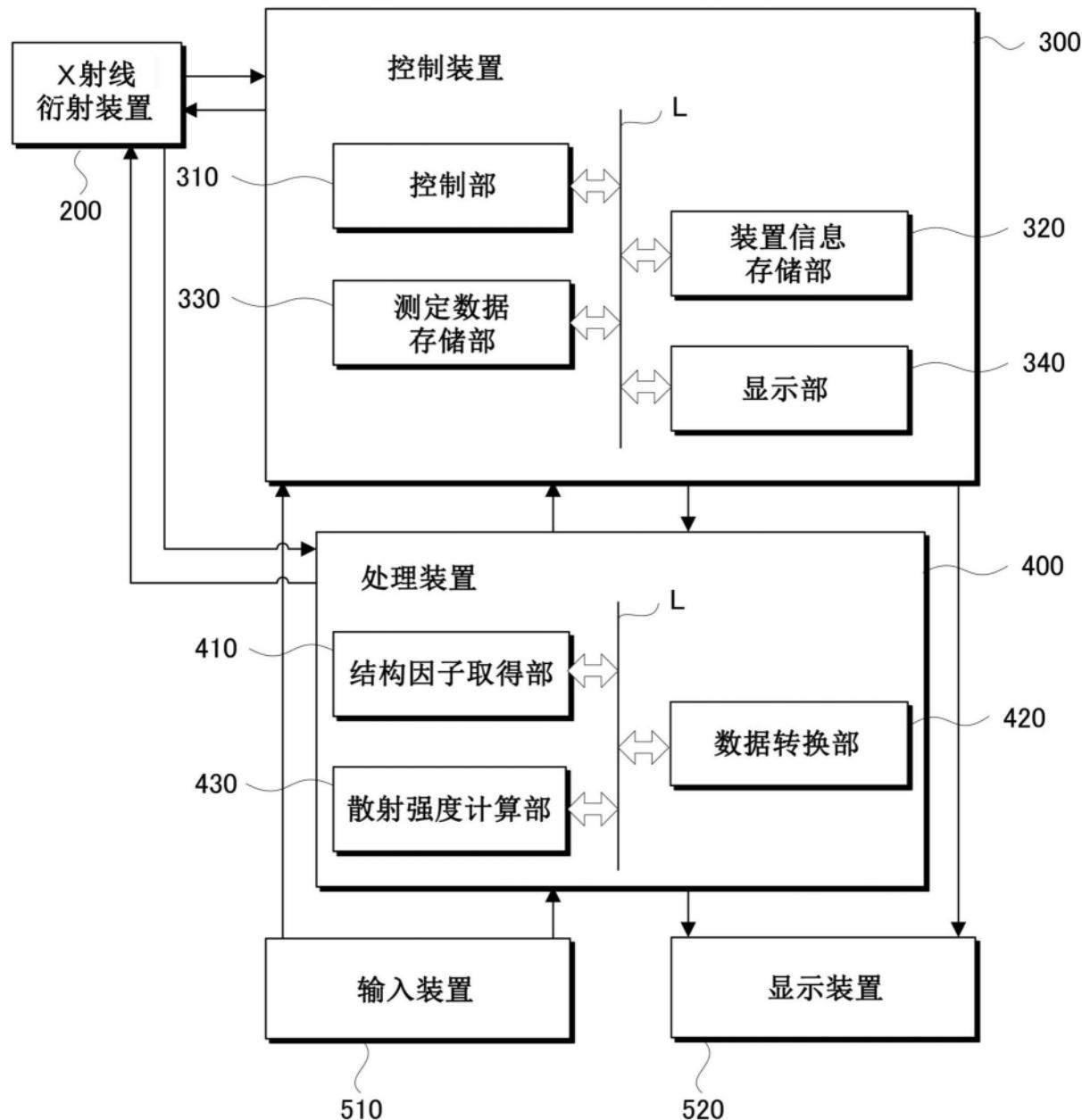


图7

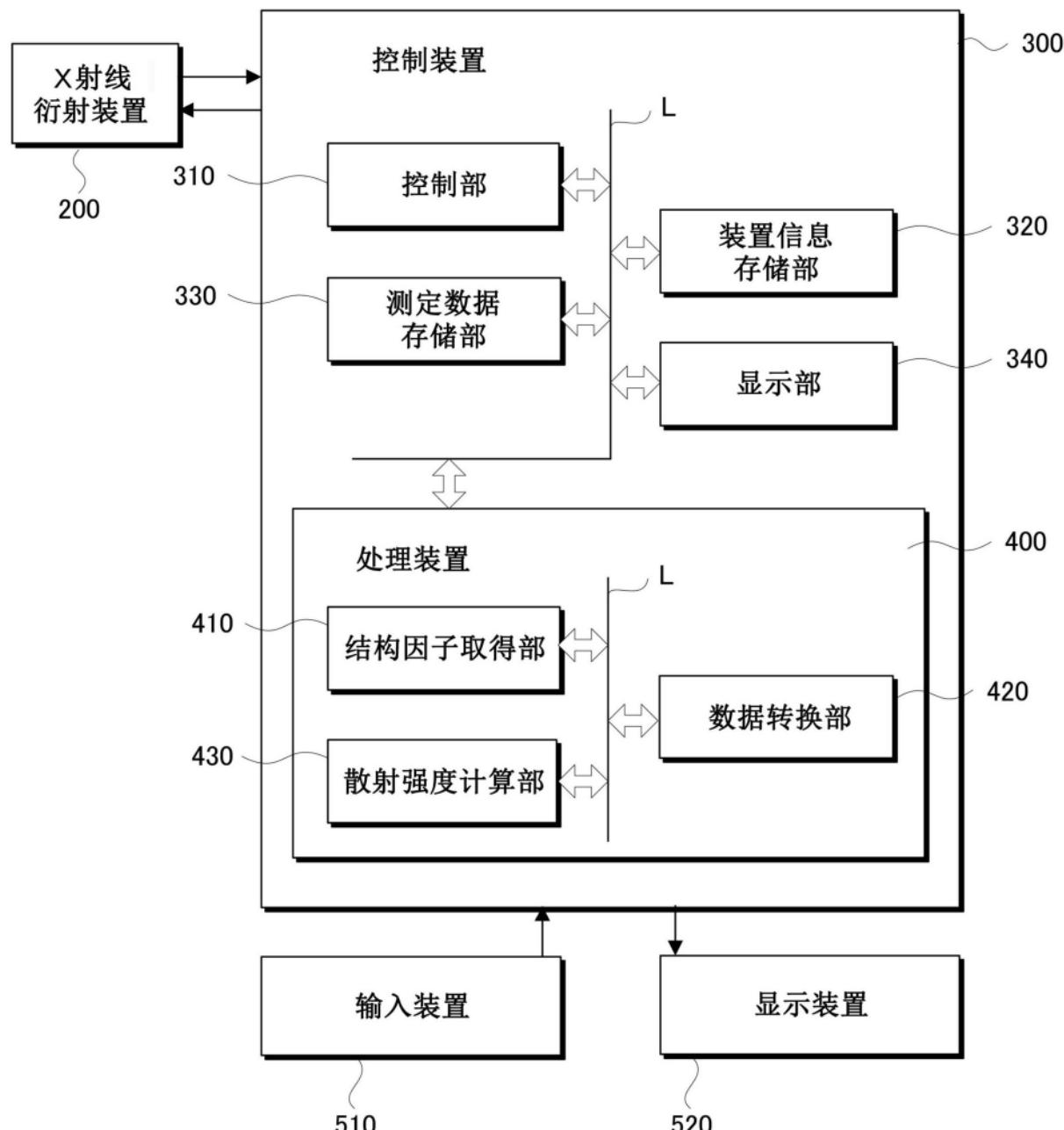


图8

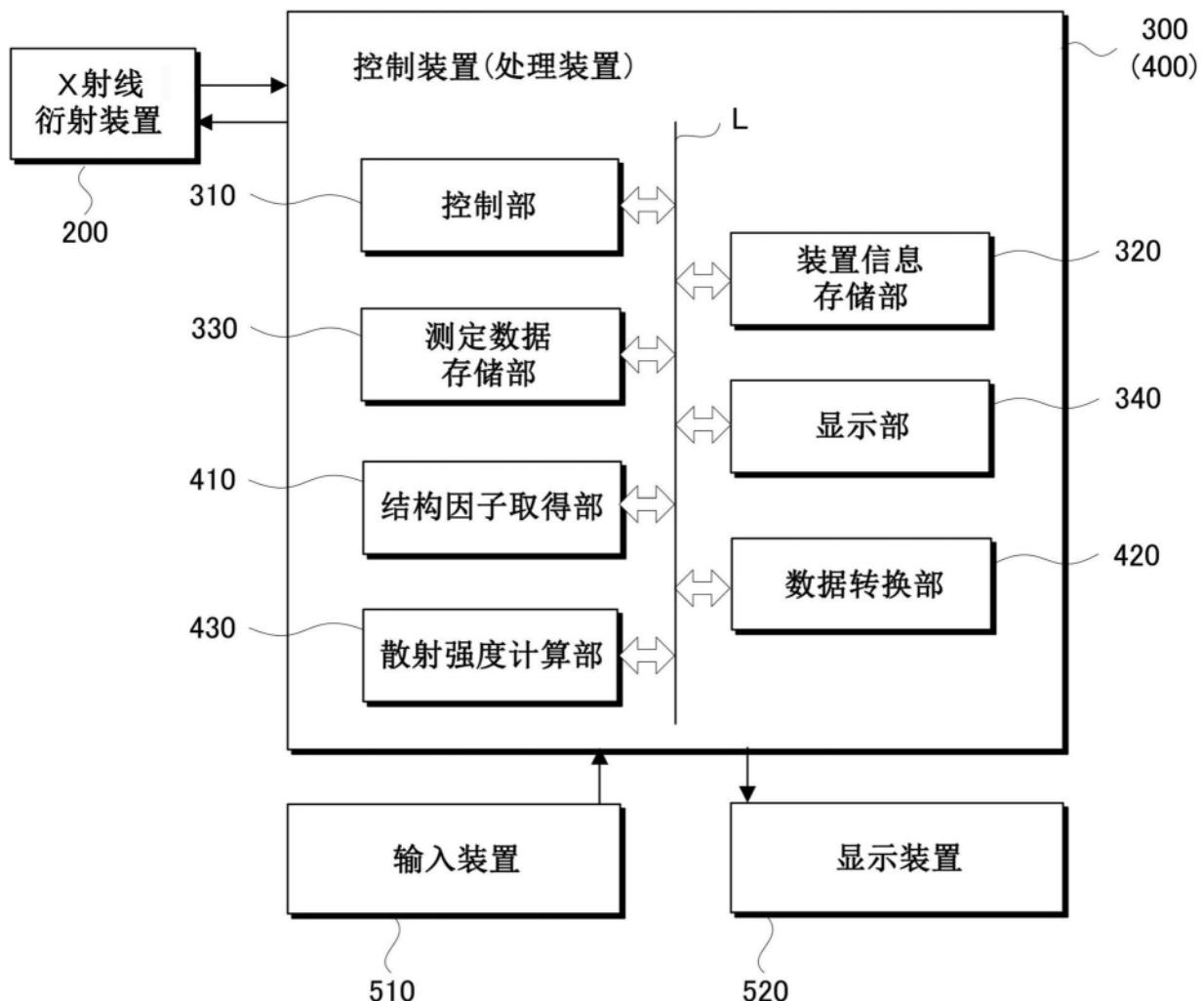


图9

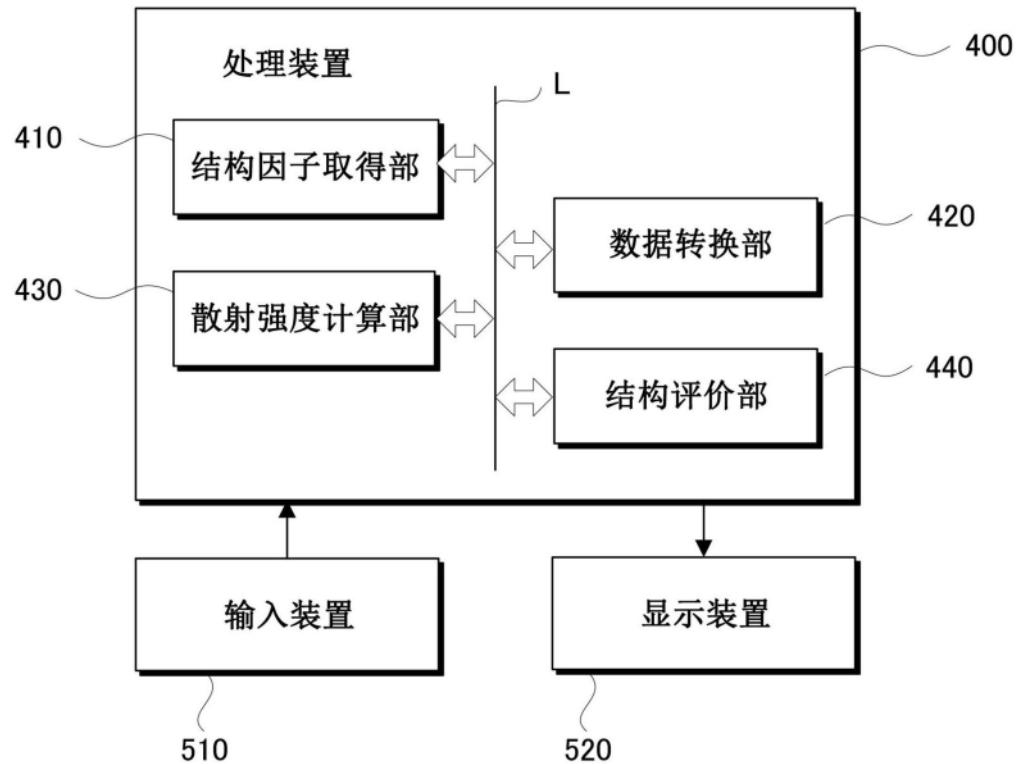


图10

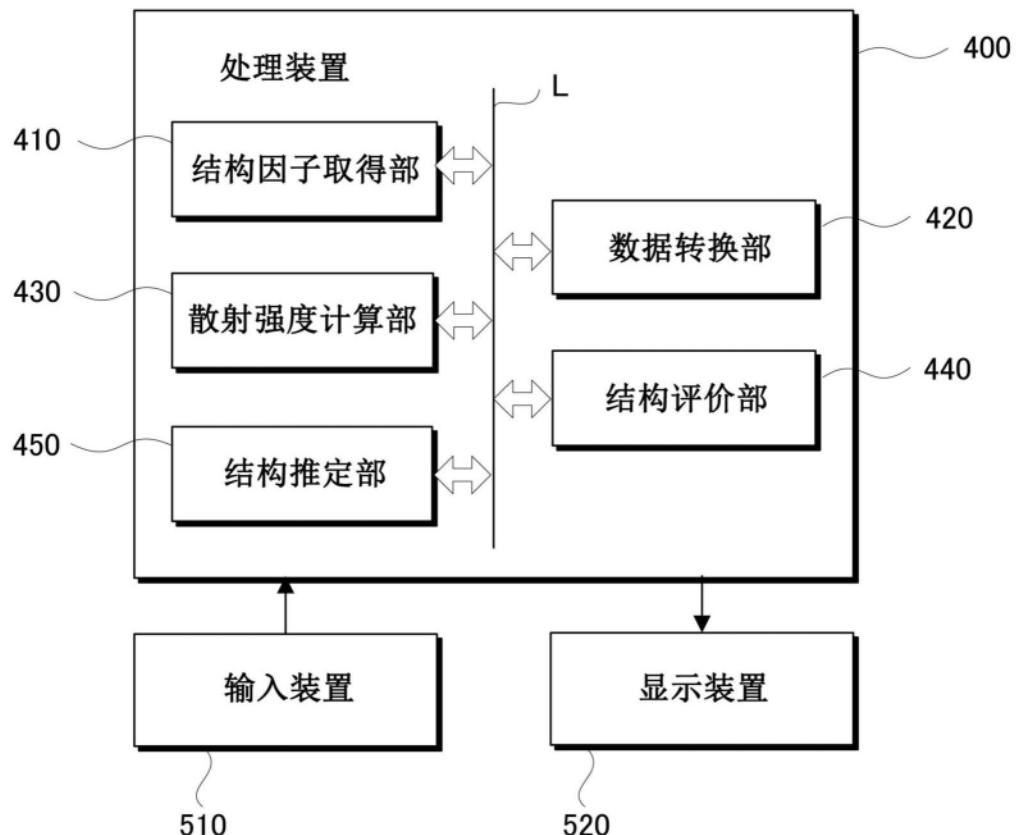


图11

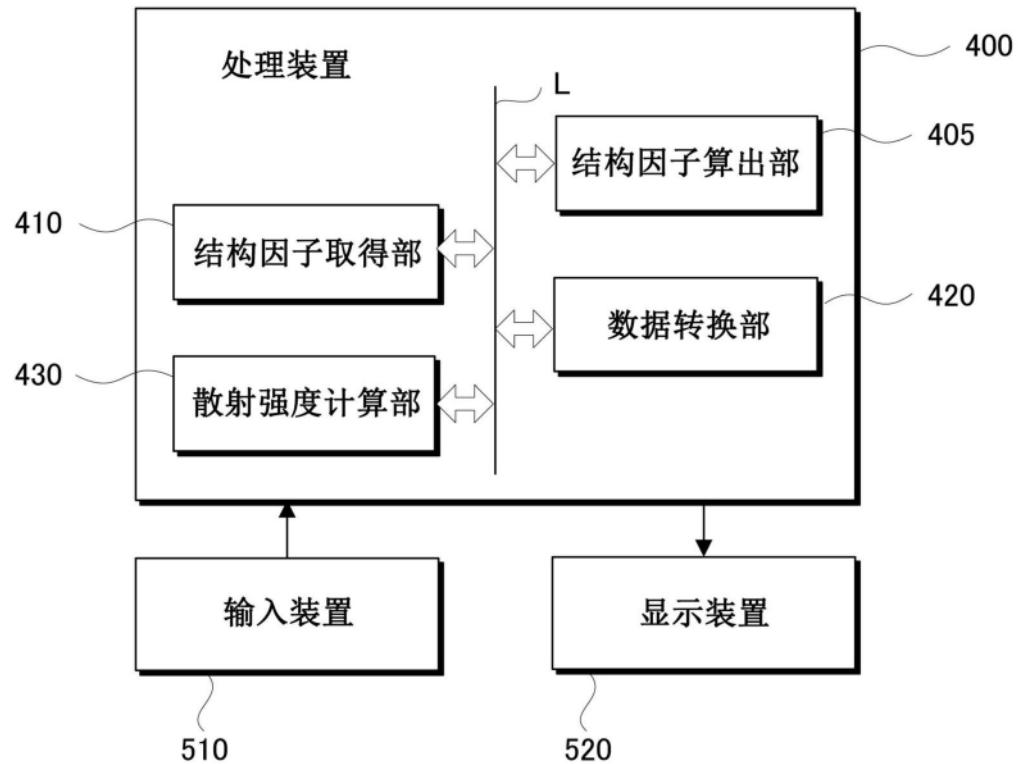


图12

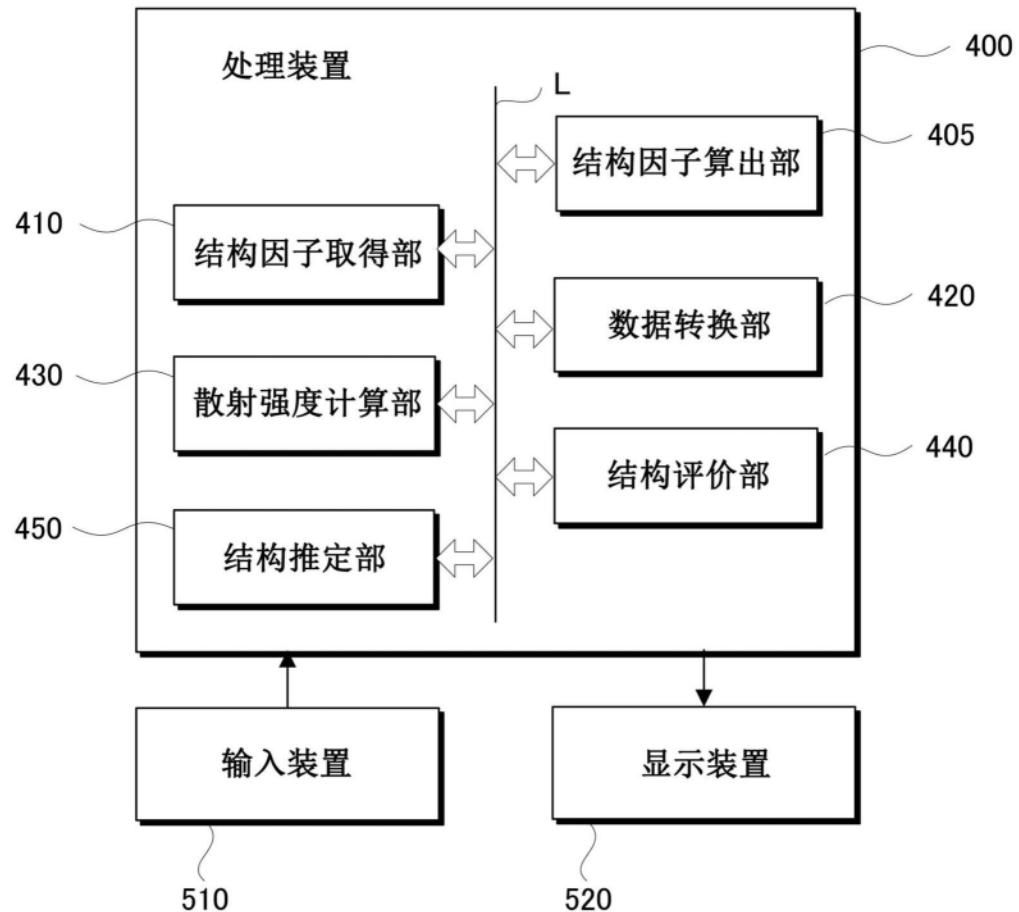


图13

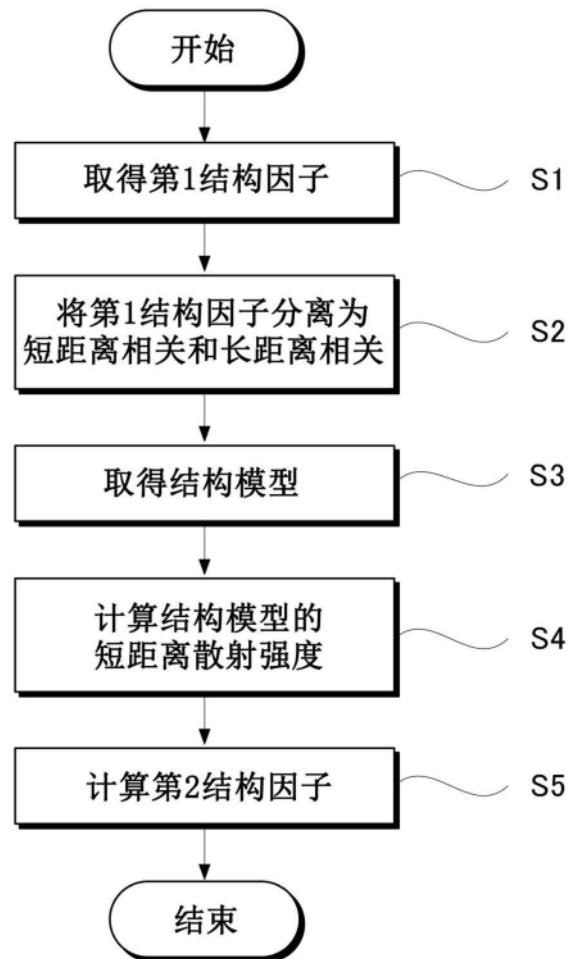


图14

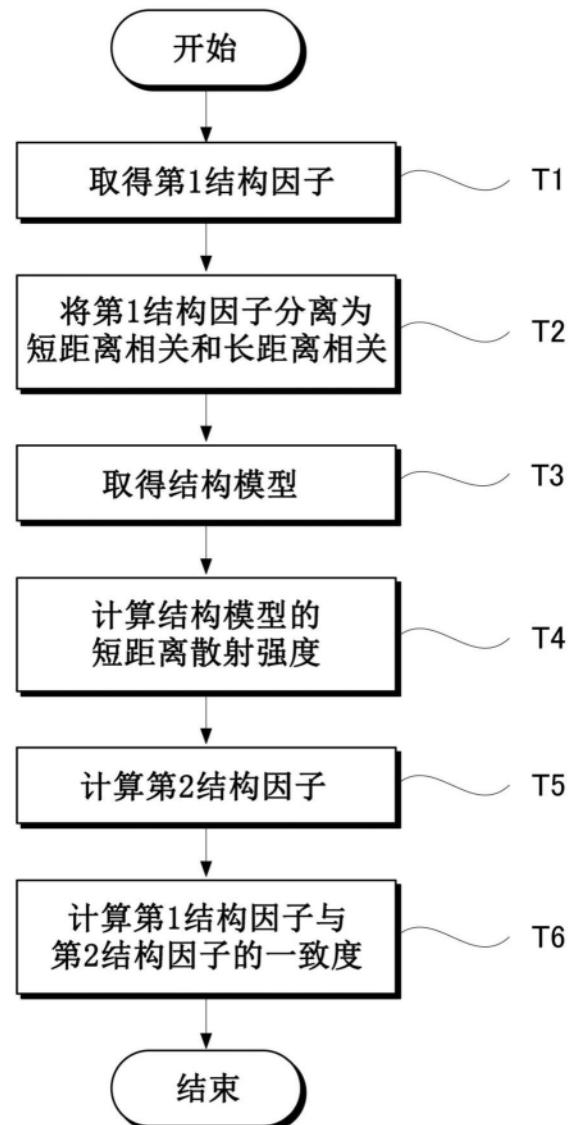


图15

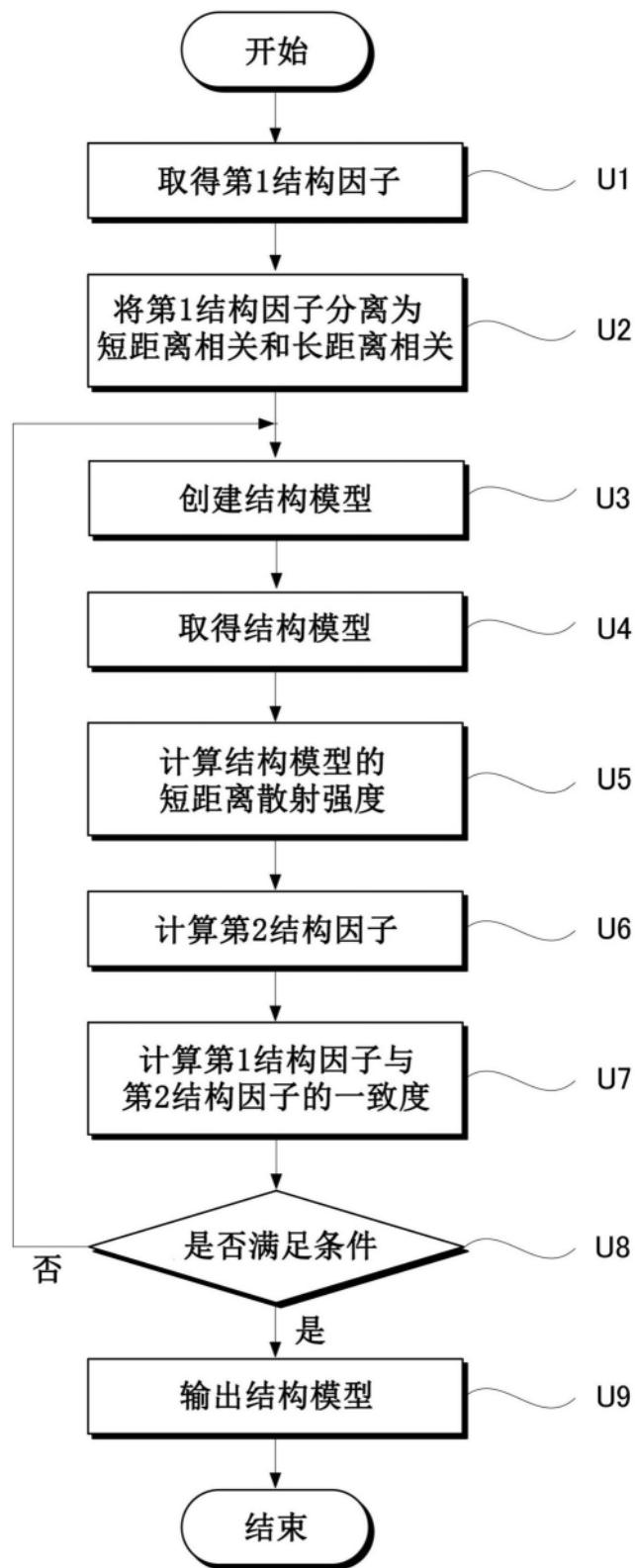


图16

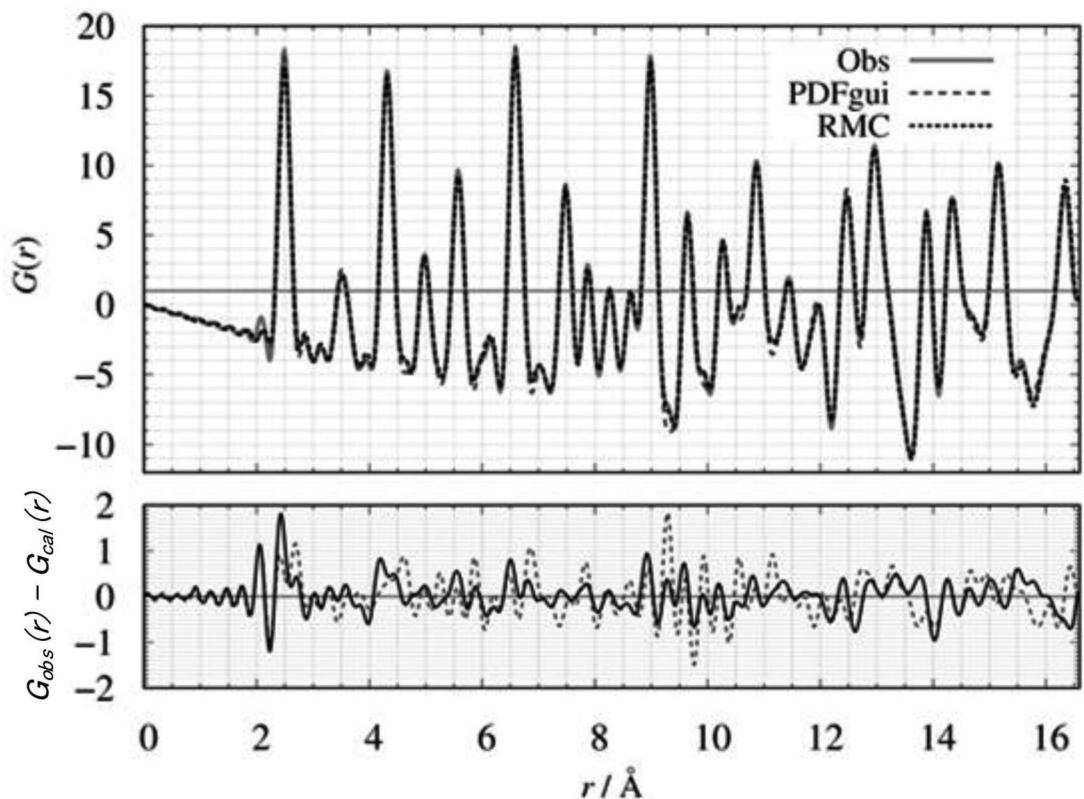


图17

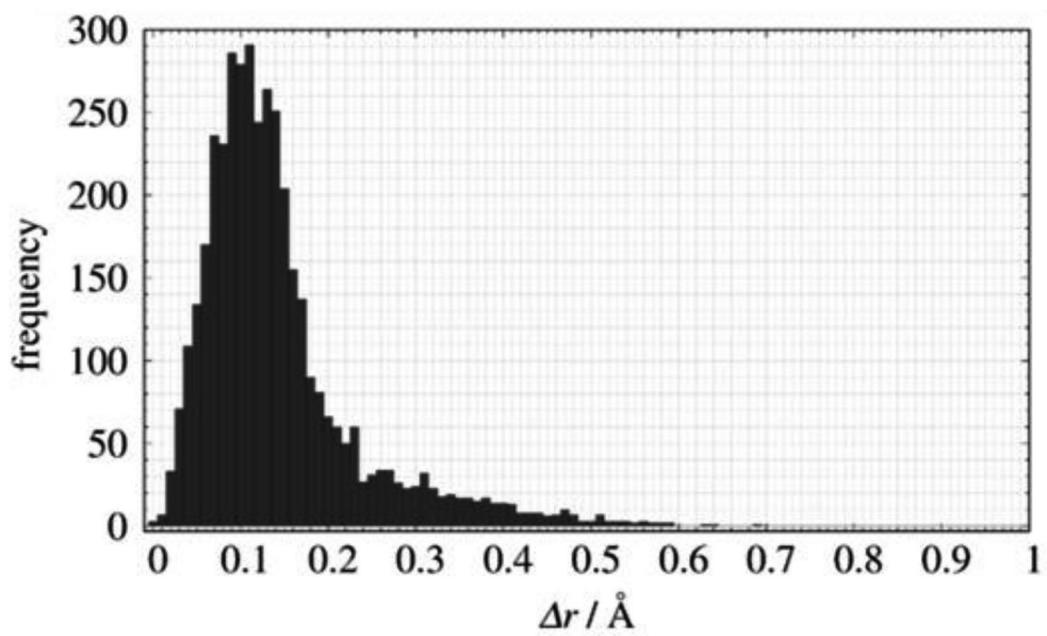


图18