

放射光wide-band平行ビームの生成とそれによる結晶構造研究法の開発

小金澤 智之

本論文は放射光の高輝度、連続スペクトルという特徴に着目し、一定のエネルギー幅をもつ平行X線ビーム、すなわちwide-band平行X線ビームの生成に関する技術開発とこれを用いて物質の構造に関する情報を得るための新しい研究法の開発についてまとめたものである。

物質の性質を解明するにはその構造に関する情報を知ることが不可欠であり、そのための研究手法は数多くある。その中で結晶性物質の三次元的原子配列を決定するX線回折法は広い分野で利用されている。従来のX線回折法は単色X線ビームを試料結晶に入射し、Bragg反射の位置と積分強度を基にして構造を導くものであるが、本論文ではBragg反射の強度プロファイルから物質の構造に関する情報が得られることを示している。すなわち物質に含まれる原子の吸収端近傍のエネルギーのX線を用いて回折実験を行うと異常散乱が生じ、その結果、強度プロファイルに独特の構造が現れるが、その中に結晶構造因子の位相や光学異性体の絶対配置に関する情報が含まれていることを明らかにしている。そしてBragg反射の強度プロファイルを効率的に測定する方法として、入射X線ビームに単色ビームではなくwide-band平行ビームを用いることが最適であることを提唱している。

さらに放射光源においてwide-band平行X線ビームを生成する方法として、二結晶分光器を連続的に往復運動させる方法と、非等間隔多層膜を分光器として用いる方法の二つを提案し、立命館大学SRセンターのX線回折・散乱ビームラインにおいてそれを実現させている。

このようにして得られた約400~600eVの幅を持つwide-band平行X線ビームにより、まずフェロセン誘導体MPAF-4 ($C_{36}H_{32}O_7Fe$) 単結晶の約100種類のBragg反射の結晶構造因子の位相を正確に決定することに成功し、位相を知ることにより構造解析が容易に進行できることを示している。次に光学異性体構造をもつ別種のフェロセン誘導体HPF ($C_{18}H_{18}FeO$) の17種類のFriedel対のBragg反射の強度プロファイルを記録し、それより光学異性体分子の絶対配置の決定に成功し、従来の積分強度に基づく方法に比べてはるかに単純な手続きで正確な結果に導く方法であることを示している。

このように本論文はwide-band平行X線ビームを用いてBragg反射の強度プロファイルから結晶構造の情報を導き出す方法が、新しい結晶構造研究法として有力で、応用範囲の広い、将来性のある方法であることを示し、結晶学・物質科学の分野に重要な寄与をなしている。