

東北大学大学院理学研究科物理学専攻・数学専攻・天文学専攻

21世紀 COE 拠点形成プログラム

「物質階層融合科学の構築」

平成15年度リサーチ・アシスタント (RA) 研究報告書

氏名	鬼柳亮嗣
学籍番号	
専攻	東北大学大学院理学研究科 物理学専攻
学年	博士課程後期3年の課程 2年
指導教官	野田幸男
研究題目	X線と中性子の相補的利用による水素結合系誘電体の同位元素効果の精密構造研究
<p>1. 研究発表 (学術雑誌に15年度中に発表または掲載決定したもの、および15年度中の学会等での本人の発表)</p> <p>・論文</p> <p>< Hydrogen-Bond Nature Studied by X-ray and Neutron Structure Analyses of MeHPLN at room temperature ></p> <p>R. Kiyanagi, A. Kojima, T. Hayashide, H. Kimura, M. Watanabe, Y. Noda, T. Mochida, T. Sugawara and S. Kumazawa ; <i>J. Phys. Soc. Jpn.</i> 72(2003)2816</p> <p>< Investigation of the Structure of Single Crystal Sr₃Ru₂O₇ by Neutron and Convergent Beam Electron Diffraction ></p> <p>R. Kiyanagi, K. Tsuda, N. Aso, H. Kimura, Y. Noda, Y. Yoshida, S. Ikeda and Y. Uwatoko ; <i>J. Phys. Soc. Jpn.</i> 73(2004) No. 3(掲載決定)</p> <p>< Evidence for the first order structural phase transition in α-BETS 2FeCl₄ at 8 K ></p> <p>M. Watanabe, S. Komiyama, R. Kiyanagi , Y. Noda, E. Negishi and N. Toyota ; <i>J. Phys. Soc. Jpn.</i> 72 (2003)452-453.</p> <p>・学会での発表</p> <p>< h-BrHPLN の中性子構造解析 > 鬼柳亮嗣、木村宏之、渡邊真史、野田幸男、持田智行、菅原正 ; 日本中性子科学会年会 (2003.12.10 東海村)</p>	

II. 研究活動結果の概要

<h-MeHPLN>

既に行っていた X 線と中性子を用いた h-MeHPLN の室温相と低温相での構造解析を更に詳しく行った。現在までの研究により、室温相においては水素結合中に無秩序状態の電子双極子が存在する事が明らかになっており、またこの電子分極は低温相において秩序化するものと秩序化しないものに分かれることも明らかになっている。低温相で無秩序状態にある水素原子の原子核はこれまでの解析では水素結合の中心付近に極大をもつ分布をしていたが、分解能を上げた解析により原子核も電子分布同様 2 つの位置に存在している事が明瞭に見る事ができた。これは低温相において水素結合中の水素原子の波動関数が 2 極小ポテンシャルの 2 つの極小位置に広がって存在している事を示しており、水素原子のトンネリング運動を示唆するものである。

また低温相で水素結合中に存在する電子分極間の相互作用エネルギーを計算すると、a 軸方向に隣合う電子双極子は強誘電的に、b 軸方向に隣り合う双極子は反強誘電的に並ぶ時にエネルギーは最低となる事が明らかになり、これは構造解析の結果と一致する。ab 面の中心に位置する電子双極子は 2 つの逆向きの電子双極子に囲まれており、フラストレートした状態にあり無秩序の状態にあることが明らかになった。また a 軸、b 軸方向の電子双極子間の相互作用エネルギーは相転移温度とほぼ等しく、h-MeHPLN の相転移は電子双極子間の相互作用により起きていると考えられる。

<d-MeHPLN>

MeHPLN の水素結合中の水素原子を重水素で置換した d-MeHPLN の構造解析を X 線を用いて室温で行った。解析は最小二乗解析による原子位置、温度因子等の精密化と MEM プログラムによる電子密度分布の計算を行った。結果、原子座標に関しても電子分布に関しても h-MeHPLN のそれと同じ結果が得られ、d-MeHPLN の水素結合中の水素原子も室温においては 2 つの等価な位置に無秩序に存在している事が明らかになった。h-MeHPLN と d-MeHPLN の間に違いが見られなかったということは MeHPLN が同位元素効果を示さないという事実と矛盾しない結果である。

<h-BrHPLN>

h-BrHPLN の室温での X 線構造解析、室温及び低温での中性子構造解析を行った。それぞれの解析の結果、h-BrHPLN の室温での状態は h-MeHPLN の室温での状態と同じであり、水素結合中の水素原子は 2 つの等価な位置に無秩序に存在している事が明らかになった。電子分布と原子核分布比較すると、h-MeHPLN 同様、無秩序状態の水素原子の電子分布の重心と原子核の位置にズレがあるため水素結合中には無秩序な電子分極が存在していることが明らかになった。また、X 線構造解析の結果を h-MeHPLN と比較すると水素結合間距離が h-BrHPLN の方が有意に短いことが明らかになった。これは h-BrHPLN に相転移が存在しない一つの原因と考えられる。中性子による低温での構造解析の結果、h-BrHPLN の水素結合中の水素原子も h-MeHPLN の秩序化しない水素原子と同様、秩序化せずに 2 つの等価な位置に無秩序に存在していることが明らかになった。これは 2 つの位置に跨がって水素原子の波動関数が広がっている事を意味し、水素原子がトンネリングしていることを示唆している。