

論文審査の結果の要旨

氏名 真木 祥千子

本論文は、数多くの構造を系統的に整理することで物質群全体の原子配列の成り立ちを説明できる新たな概念を構築し、放射光粉末構造解析の位置づけをインフォマティクスの基盤としようとする革新的な試みを行ったものである。研究対象として構造解析が困難で、長時間を要する金属内包フラーレンを選択し、ケージ炭素数と格子体積の間にある線形関係を見出すことに成功し、それを構造予測原理として、格子体積の情報から一義的に 10 種類以上の物質の分子構造を決定してみせたことは、本研究の応用技術としての可能性を明示している。論文は 7 章からなる。

1 章は序章であり、対象試料である金属内包フラーレン、熱電変換材料および D-A 共役接合錯体のこれまでの知見を概観し、本論文の目的と論文の構成について述べられている。

2 章から 4 章までは、本研究で必要となる測定・解析・試料結晶化法等が本研究に必要なものに限って簡潔にまとめられている。手法の中で新手法である遺伝的アルゴリズムによる粉末試料からの未知構造決定法と 5 章の手法開発で必要となる電子密度解析法および粉末回折データ解析法については、必要な詳細を含んでいる。

5 章では、金属内包フラーレンについて、第 1 節：特定の元素の電子密度を選択的に可視化する構造解析法の開発、第 2 節：内包フラーレン結晶の含有溶媒モル比の違いによる結晶構造変化、第 3 節：金属内包フラーレンの迅速分子構造診断法の 3 つのテーマについて述べられている。各節それぞれの研究が Full Paper の原著論文としてまとめられていることからわかるように、個別でも十分な内容を持つ。この 3 つの研究が、本論文全体に関わる単一の構造解析から構造を議論するにとどまらず、同種の物質、構造の類似性・差異から全体を俯瞰する新概念の構築へと向かう方向性を示している。

第 1 節の研究は、金属内包フラーレンだけでなく幅広い物質に適応可能なデータ測定、解析法である多波長の異常分散粉末回折法を $Y@C_{82}$ とトルエンの 1:1 共結晶を題材として報告している。原著論文は国際結晶学連合の専門誌に掲載され Highlighted articles にも選ばれており、専門分野での注目度は高い。この研究は、論文提出者の専門分野における技能の高さを示している。

第 2 節の研究は、内包フラーレン結晶の含有トルエン溶媒モル比の違いによる構造変化となっているが、自身の発見である 2 次元層状構造をもつ 1:2 共結晶の構造と無溶媒結晶の構造研究に、過去に報告された 1:1 共結晶の構造を合わせて議論を展開し、層状構造において分子構造が結晶構造に与える影響を見出している。合計で 9 種類の結晶構造を用いて最終の結論を導き出しており、本論文が目的とするマテリアルインフォマティクス研究への導入の役割も果たしている。

第 3 節の研究は、トルエンとの 1:1 共結晶について、11 種類の結晶構造および格子構造を系統的に整理することで、金属内包フラーレン 1 分子とトルエン 1 分子の単位分子当たりの格子体積とケージ炭素数に線形の関係があることを発見している。この関係の起源を考察し、6 角錐の増加に伴う体積増加が主な原因であることを見出している。この関係を利用し、14 種類の金属内包フラーレンの 1:1 共結晶の格子定数から炭素の内包有無を判別することに成功した。内包フラーレンの分野で現在の最大の関心事の一つである炭素の内包の有無を簡便かつ迅速に判別可能にした本研究は当該分野の注目度が高く、同様の手法のマテリアルインフォマティクスへの応用を期待させるものである。

6 章の第 1 節は室温に近い温度で一定の熱電変換性能を持つテトラヘドライト、第 2 節は分子性固体での大型細孔構造の構成する金属錯体の研究である。どちらの物質も、金属内包フラーレンとの構造類似性を有するが、マテリアルインフォマティクスに構築にまでは到達できなかった。しかし、多数の温度点のデータから、熱電変換材料のデバイ温度、アインシュタイン温度の決定、金属錯体の相転移と構造変化について、インフォマティクス構築の可能性を示した形にまとめられている。どちらも、構造解析の論文として原著論文を公表済みであり、金属錯体の成果は当該論文誌の表紙に採用されている。

なお、本論文 4、5 章は、名古屋大学大学院理学研究科 篠原久典教授のグループ、第 4、6 章は北陸先端科学技術大学院大学 小矢野准教授、末國助教、産業技術総合研究所 太田道弘主任研究員のグループ、東京大学大学院理学研究 西原寛教授のグループ、また第 4、5、6 章は、理化学研究所 放射光総合科学研究センター 西堀英治連携センター一長らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（ 科学 ）の学位を授与できると認める。