X線多重反射—特に遠まわり 反射現象の幾何学について

X-ray multiple diffraction in crystals: the geometry
of Umweganregung process

松本 崧生 (Takeo Matsumoto)*

Abstract

In view of the importance of multiple diffraction effects in X-ray and neutron diffractions, which may cause misunderstanding for the space group determinations or intensity measurements, the geometry of the phenomena has been reviewed in a summarized form. As examples, the Umweganregung peaks for pyroxene and enargite observed for the ϕ -azimuth were indexed by operative and cooperative reflections.

1. はじめに

多重反射(回折)(multiple diffraction)或は同時反射現象(simultaneous reflection)は電子線回折, 中性子回折のみならず, X線回折でも屢々生じる。これは, 単一波長線に対して単結晶の二組以上の結晶面が同時に Bragg 条件を満たす時に現われる。この現象はX線回折研究上種々の影響を与える。これは, 結晶の格子定数測定の精度をあげる利点などもあるが, 多くの場合, 構造の研究に不都合をもたらす。Zachariasen (1965), Burbank (1965) が強調しているように, 種々のX線回折実験は多重反射の生じる条件下で行なわれることが多い。この現象のため, 単結晶回折強度が変動し, 時には精密構造解析の障害となる。また, ラセン軸や映進面の存在を示す消滅則で消えているべき反射が, この現象のため, みかけ上ある強度をもち, 空間群の決定に誤りをもたらす事もある。

多重反射現象については, 従来あまり注意されてきたとは必ずしもいえないが, 精密構造解析が進展し, 詳細な電子密度分布, 調和非調和熱振動, 席占有等を求めるような場合, これを無視できないことになる。

従来, 実験考察し易いこともあって, 立方晶系, 六方晶系等, 対称の高い結晶の多重反射は研究されてきた。しかし, 各種の輝石や硫砒銅鉱の実例でみられる如く, この現象は普遍的な現象なのであって, 低対称の結晶でもよく生じている。(Matsumoto *et al.*, 1981; Sasaki *et al.* 1977, 1981)

本稿では, 結晶によるX線の多重反射現象, 特に遠まわり反射の幾何学を中心に解説を試みる。また, この現象の研究に有効な ϕ -スキャン法についても述べる。

* 金沢大学理学部地学教室

2. 多重反射現象

多重回折（反射）或は同時反射とは、単結晶がある波長線で特定方位をとることで、同時に2ヶ以上の Bragg 反射が起る回折現象を言う。これを2重反射を例にして説明する (Lipson & Cochran, 1958)。2重反射の回折関係を、第1図の上部（実空間）と下部（逆空間）に示す。実空間において、一組の面（ $\perp \mathbf{r}_1$ ）に対して入射線が Bragg 条件を満足して θ_1 の角度で回折する。この回折線が強い強度をもち、別の組の面（ $\perp \mathbf{r}_2$ ）に対して θ_2 の角度で回折したとする。このときの回折線は、最初の入射線に対して、第3組の面（ $\perp \mathbf{p}$ ）による Bragg 反射（ θ_3 の角度）であるとみなせる。極端な場合、この第3組の面の面が消滅則で回折を起さぬものでも、回折が生じたことになる。

これを逆空間で考えれば、入射線 AO に対し、逆格子 $\mathbf{r}_1$ と $\mathbf{p}$ との先端が同時に Ewald の反射球上にのることになる。たとえ $\mathbf{p}$ は消滅則で回折を起さないとしても、 $\mathbf{r}_1$ と $\mathbf{r}_2$ による回折が強ければ、 $\mathbf{H}$ によって回折が生じたようになる。即ち、 $\mathbf{r}_1$ によ

第1図 2重反射の回折図。上図は実空間、下図は逆空間

り Ah_1 方向に回折し、その回折線が再び入射線 $A'O$ となり、 $A'h_2$ 方向に回折が生じる。 $H(HKL)$, $h_1(h_1 k_1 l_1)$, $h_2(h_2 k_2 l_2)$ の3逆格子点間には、次の指数関係が成立つ。

$$\left. \begin{aligned} H &= h_1 + h_2 \\ K &= k_1 + k_2 \\ L &= l_1 + l_2 \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

尚、 H の2重反射に対して、それを生ぜしめた h_1 による反射と、 h_2 による反射とをそれぞれ、operative 反射, cooperative 反射という。

ここで、多重反射現象でよく使われる「抜けあがり (Aufhellung)」及び「遠まわり (Umweganregung)」現象について説明する (三宅静雄, 1969)。結晶の劈開面を用いて連続X線のスペクトル写真を撮影すると、連続波長の反射に相当するバックグラウンド中

に、白く抜けたすじが現われることがある。これは「ぬけあがり現象」と呼ばれている。また白いすじのかわりに、黒いすじが現われる現象を「遠まわり現象」という。

Aufhellung 現象は、Cauchois *et al.* (1937) 等により詳細に観察された。ある波長 λ の入射X線が、格子面 p で反射線 I を生じたとき、同時に格子面 m で反射線 II を生じる (第2図)。この場合、反射線 I は、エネルギーの一部を反射線 II の方に奪われ、強度が減ずる。これが「ぬけあがり」のすじとな

第2図 「抜けあがり」の図

って現われるのである。一方、黒いすじの現われる現象は次のように説明される。入射線 s_0 が格子面, p ($h_1 k_1 l_1$) 及び m ($h_2 k_2 l_2$) (これらの逆格子ベクトルを $\mathbf{g}_1, \mathbf{g}_2$ とする) に対し, 同時に Bragg 条件を満足し, 反射線 $\mathbf{s}_I, \mathbf{s}_{II}$ を生じたとすると,

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{s}_I - \mathbf{s}_0 &= \lambda \mathbf{g}_1 \\ \mathbf{s}_{II} - \mathbf{s}_0 &= \lambda \mathbf{g}_2 \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

が成立つ。よって

$$\mathbf{s}_I - \mathbf{s}_{II} = \lambda (\mathbf{g}_1 - \mathbf{g}_2) \quad (3)$$

の関係が得られる。つまり反射線 $\mathbf{s}_{II}$ は, 逆格子ベクトル $(\mathbf{g}_1 - \mathbf{g}_2)$ に対しても Bragg 条件を満たし, $\mathbf{s}_I$ 方向に反射する。このような同時反射が起る条件下では, たとえ $(h_1 k_1 l_1)$ 面の構造因子が 0 に近くても, 他の 2 ケの面の反射能が大きければ, 比較的強い反射として現われる。

Renninger (1935, 1937 a & b) は, 回折ベクトルを回転軸として, ダイヤモンドや岩塩の $h h h$ 反射等の Umweganregung 現象を観察している。この遠まわり反射は, 上記のスペクトル写真上に黒いすじが現われる現象と全く同種の現象である。彼は, 逆格子ベクトルのまわりに結晶を回転させ, 方位角の函数として反射強度を測定した。この方法は四軸回折計の発展と共に, 多重回折現象を調べるのによい方法の一つとなっている。

尚, Renninger 反射は, Bravais 格子タイプで起きる 消滅則の反射では生じない。ラセン軸や映進面の存在のため消滅している反射では, 遠まわり反射は生じる可能性がある。抜けあがりの現象および遠まわり反射はともに一体の現象である。同時反射現象で, 本来の反射強度に比べ, 強度が弱められるのは, 抜けあがり, そして強められるのが遠まわり反射現象とみなすことができる。

3. 多重反射現象の幾何学

多重回折現象の幾何学を, Isherwood & Wallace (1971) の方法に従って, Kossel 式を用いて扱ってみる。尚, 第 3 図～第 5 図は, 彼等の図を基に画いたものである。

Bragg の回折条件は, 「反射と入射波動ベクトルの差が Bragg 面の逆格子ベクトルに等しい」と表わされる (第 3 図)。入射線, KO と反射線, OK' は, Bragg Cone の生成元であり, O と G とを中心とする半径 $1/\lambda$ の分散球の交線である円上に, K と K' は存在する。波長 λ により, KK' は Brillouin Zone 上を動く。逆格子点 G を通り, Brillouin

第 3 図 逆空間における Bragg 反射
(Isherwood 等の図を基にしている)

Zone に平行な面は, Kossel 面で, OK と OK' の延長したものとこの面の交点を C , C' とすれば, O よりそれへ向かうベクトルは, 倍波動ベクトル (double wave vector) となる。尚, よく使われる Ewald の反射球は, K を中心に, O, G, C を通る球である。さて, 「二重反射 (double diffraction)」は, 第 4 図に示す如く, 2 ケの Kossel 面に対応する Bragg Cone が交差し, その交線方向の波動ベクトルが, 入射 X 線と平行となったときに生じる」となる。即ち, 第 4 図の G_1, G_2 の逆格子点に対する 2 重反射は, それら

第4図 逆空間における2重反射
(Isherwood 等の図を基にしている)

第5図 近似3重反射(Isherwood 等の図を基に)

の Kossel 面の交線と限界球との交点, C_{12} と C'_{12} とで定義される。両 Kossel 面の交線, C_{12} , C'_{12} が限界球に接する (S で一点となる) 臨界条件は, 二重反射の最大波長で与えられる。交線が限界球の外側にある場合は「解不能」となる。

同様に, 「三重反射 (回折)」は, 3 ケの Kossel 面の交線が交った T が, 限界球上にのったとき, G_1 , G_2 , G_3 で生じる」と表現できる。第5図で, Ewald 球は, OT を直径として, G_1 , G_2 , G_3 を通る。三重反射が起るのは, 特殊な場合をのぞいて, 結晶の格子定数と波長との間に正確な関係が必要である。3 ケの Bragg 面が同一晶帯に属さなければ, ある決まった唯一の波長に対してのみ, 三重反射を起す。しかし格子定数や波長によらず, 結晶の対称性によって, 3 ケの Kossel 面が共通直線で交り, これと限界球との交点と原点とが, 入射線の方位を示すことがある。これを Systematic triple diffraction という。

一般の三重反射の T 点は, 3 ケの二重反射による Kossel 面の交点である。第5図のように, T が正確に限界球上になく, それに非常に近い所にあれば, 互に狭い範囲内で, 二重反射を起す三点が限界球上にのる (C_{31} , C_{12} , C_{23})。これは, 近似三重反射 (near triple diffraction) と言われる。この3ケの二重反射は, 非常に小さい角度で分離しており, この角度 (例えば ϕ_1) を測定することで, 格子常数と波長との間の正確な関係が求められる。

4. X線写真法と多重反射

通常の単結晶回折実験は, 多重反射条件下で行なわれていることが多い。以下に簡単な例を示す。

4.1 ラウエ法

結晶を固定し, 同価な反射でラウエ対称を調べる場合に, これら同価な逆格子点は, ある波長の反射球上に同時にのって, 多重反射現象が生じている。ラウエ法による高い対称の決定は, 多重反射の生ずる下で行なわれていることになる。

4.2 ワイセンベルグ法

高次層の等傾角法の際、もし回転軸が逆格子軸と平行であれば、この撮影では、多重反射が生じる。例えば、 c^* が回転軸に平行であれば、等傾角法で $00l$ は常に反射球上にのる。今 hkl と $00l$ とが反射球上にのれば、 $hk0$ も反射球上にのり、三重反射が生じる (Zachariasen, 1965)。即ち、立方、正方、斜方晶系結晶の結晶軸、単斜晶系の結晶の2回軸、六方、三方晶系の $[001]$ 軸を回転軸とした等傾角法での高次層撮影は、三重反射条件下での測定となる。また、これらの軸での垂直法でも、二重反射が生じている。時には、0層でも三重、四重反射等が生じる場合もある。0層のワイセンベルグ写真で、対応した組の反射が垂直線上にのれば、これらは多重反射の関係にある (Speakman, 1965)。

Jeffery & Whitaker (1965) や, Santoro & Zocchi (1966) は、ワイセンベルグ法での多重反射の条件を導き、精密な強度測定には、垂直法、等傾角法、flat-cone 法などを避けて、適当な μ 値を使った equal cone 法を勧めている。

波長に対して独立した多重反射は、波長を変えても多重反射は避けられない。例えば $p_{21/3}$ の結晶の $[010]$ の回軸で、 500 と 005 とは消滅則で消えるべき反射であるが、前者は、 120 , $4\bar{2}0$, $1\bar{2}0$, 420 で、後者は、 021 , $0\bar{2}4$, $0\bar{2}1$, 024 の多重反射で現われる可能性がある。

4.3 プリセッション法

プリセッション法では、反射円と写真に写る格子面とは常に一致しており、反射円は格子面を円軌道で動く。0層では、軌道の中心は原点で、その半径は反射円の半径に等しい。

そして、その半径はプリセッション角により、任意のものをえらべる。従って、その格子面内で生ずる多重反射は、対称に関係なく避けることが可能となる (Burbank, 1965)。

逆に、格子面の対称如何によらず、多重反射を起さすようにすることもできる。

今、ベクトル p_1v_1 と p_2v_2 , その狭角 β ($\leq 90^\circ$) で与えられる格子点を考え、 μ -プリセッション角を次のように決める。

$$\mu = \sin^{-1}(\sqrt{(p_1v_1)^2 + (p_2v_2)^2 - 2|p_1v_1||p_2v_2|\cos\beta}) / 2 \sin\beta \quad (4)$$

このとき、6ケの格子点で、二重反射が6ケ所で生ずる。また、 $\beta=90^\circ$ であれば、

$$\mu = \sin^{-1}(\sqrt{(p_1v_1)^2 + (p_2v_2)^2} / 2) \quad (5)$$

で、三重反射が4ケ所で生ずることになる。正方、六方平面格子では、上記のような多重反射の可能性はずっと増え、多重度も11重、15重になる可能性もある (Burbank, 1965)。更に、23重反射も不可能ではない (松本, 未発表)。

さて次に、高次層と0層との逆格子間の多重反射を考察しておく。Spindle 軸に、対称軸が平行か、鏡面が垂直な場合、その逆格子軸 (大きさ、 d^*) は、0層と高次層の逆格子面に垂直である。もし、 $2\cos\mu=d^*$ なるように μ を決めれば、両層の反射円の半径に同じになる。この場合、0層の各点は、三重反射条件の下で反射する。従って、 $2\cos\mu \neq d^*$ にセットすることにより、多重反射を避けることができる。

多重反射を起す μ で写真をとり、次に微小角 Δ で、多重反射を起さない $\mu \pm \Delta$ で写真をとる。 $\mu + \Delta$ と $\mu - \Delta$ での平均強度は多重反射がないとき、 μ で観察される強度となる。多重反射の μ による出沒の例として、オンファス輝石を挙げておく (Matsumoto *et al.* 1975)。

第6図 ψ -スキャン法による2重反射

第7図 第6図における、HO方向への投影図

Ψ -degree	Operative	Cooperative
$-\alpha \pm \beta$	h, k, l	$H-h, K-k, L-l$
$\pi - \alpha \pm \beta$	$H-h, K-k, L-l$	h, k, l

$p \parallel [\Pi]$

第8図 第6図における0hH面

5. 四軸自動回折計による ψ -scanning法

5.1 ψ -scanningの幾何学

第2章で述べた如く、Renningerは、逆格子ベクトルを反射球上にのせ、これを回転軸として、方位角 ψ の関数としてUmweganregung反射を観察した。この方法は、四軸回折計でも使われ、多重反射現象の秀れた測定法である。第6図は、その原理を表わす図である。 H と h とが同時にEwaldの反射球上にある。回転軸は、多重反射が生じる回折点 H の逆格子ベクトル p である。 H と同時に反射球上にある h のベクトル r 、AOが入射線(k_0)である。各ベクトルを p に平行な成分と垂直な成分に分け、各々に添字として(p)及び($\perp$)を書く。AO= k_0 とすれば、 $-k_0=k'_0$ として、 $k'_0\perp$ と $r\perp$ との間の角を β とすれば、二重反射の関係は次式で表わされる。(Cole, Chambers & Dunn, 1962)

$$\left[\left(\frac{1}{\lambda} \right)^2 - \frac{p^2}{4} \right] \cos \beta = \frac{1}{2} (r^2 - r_p^2) / [r^2 - r_p^2]^{1/2} = K_{hkl}^{HKL} \quad (6)$$

第6図において、 h ののっている面の回転軸投影が第7図である。ここで α はある基準線(OA)と h の回転前の位置との角度であり、 β はこの逆格子点がEwald球を切った時の基準線との角度である。また第8図は、第6図の0hH面を表わしている。 h はOperative反射を示す逆格子点であり、その指数 hkl に対して、 $H-h, K-k, L-l$ なる逆格子点はCooperative反射を示すものである。 π だけ回転すれば、 $H-h, K-k, L-l$ がEwald球上になり、これがOperative反射に相当するものとなる。従って、 ψ -Scanning法では、最高 π の周期性をもつ。しかも、逆格子点は、 $\pm\beta$ と2ヶ所でEwald球を切る故、 ψ の 2π 回転中、一般的には4回2重反射が生ずる(Matsumoto et al. 1981)。

5.2 指数づけプログラム

H に対する ψ -scanning の指数づけは、 ψ 角と、その時の **h** と (**H-h**) とが求まれば出来る。四軸回折計における変換行列式と UB マトリックス (Busing & Levy, 1967) と、(6) の Cole の式を用いて、第 7 図の α と β とが求まれば、 ψ 角は計算できる。強度に関しては Moon (1964), Panke 等 (1967), Post (1969), Prager (1971) 等の多数の研究があるが、遠まわり反射の強度は、二重反射の場合、**h** と (**H-h**) の各々の強度の積と近似しうる。 ψ -scanning 法で、遠まわり反射の相対強度は、二重反射では上記の如く 2 種の反射の積をとり、三重反射では、2 種類の二重反射の強度の和と近似しうる。

5.3 輝石と硫砒銅鉍の ϕ -パタン

遠まわり反射，特に禁制反射や弱反射を， ϕ -スキャン法で調べるのは，有効である。

Hypersthene の 10 0 0 と 0 7 1 並びに enargite の 4 0 1 反射の ϕ -パタンを、第 9, 第10, 第11図に またすそれらの指数づけの表の一部を、第1, 第2, 第3表に示す。10 0 0 は禁制反射でなく、バックグラウンドがその強度 (500 Count-20 秒) に相当する。しかし、多くの三重反射と二重反射とが現われている。尚、表中、Dとは二重反射、Tとは

第9図 ψ -スキャン法のパタン図（遠まわり反射）斜方輝石の10 0 0第1表 Hypersthene, Pbca, 10 0 0, pm (π)

PSI-degree		Rel. Intensity		Operative (Cooperative)	
obs	cal	obs	cal		
0.39	0.47	83	$2 \times 41 = 82$	$\bar{1} \ 3 \ \bar{1} \ (11 \ \bar{3} \ 1)$;	$11 \ 3 \ \bar{1} \ (\bar{1} \ \bar{3} \ 1)$ T
39.96	39.96	90	$2 \times 41 = 82$	$\bar{1} \ \bar{3} \ \bar{1} \ (11 \ 3 \ 1)$;	$11 \ \bar{3} \ \bar{1} \ (\bar{1} \ 3 \ 1)$ T
43.22	43.18	50	$2 \times 21 = 42$	$1 \ \bar{3} \ \bar{1} \ (9 \ 3 \ 1)$;	$9 \ \bar{3} \ \bar{1} \ (1 \ 3 \ 1)$ T
56.48	56.45	50	$2 \times 21 = 42$	$1 \ 3 \ 1 \ (9 \ \bar{3} \ \bar{1})$;	$9 \ 3 \ 1 \ (1 \ \bar{3} \ \bar{1})$ T
59.70	59.68	88	$2 \times 41 = 82$	$\bar{1} \ 3 \ 1 \ (11 \ \bar{3} \ \bar{1})$;	$11 \ 3 \ 1 \ (\bar{1} \ \bar{3} \ \bar{1})$ T
105.65	105.63	42	$2 \times 16 = 32$	$3 \ 0 \ \bar{2} \ (7 \ 0 \ 2)$;	$7 \ 0 \ \bar{2} \ (3 \ 0 \ 2)$ T
106.30	106.28	100	$1 \times 100 = 100$	$5 \ 0 \ \bar{2} \ (5 \ 0 \ 2)$	D
114.17	114.13	100	$1 \times 100 = 100$	$5 \ 0 \ 2 \ (5 \ 0 \ \bar{2})$	D

T : Triple, D : Double diffractions

第10図 ϕ -スキャン法のパターン図, 斜方輝石の 071 (禁制反射)第2表 Hypersthene, Pbca, 071, pm(π)

PSI-degree		Relative Int.		Operative	Cooperative	
obs	cal	obs	cal			
69.36	69.49	20	26	$\bar{2} \ 6 \ \bar{2}$	2 1 3	D
76.97	76.84	100	100	$\bar{2} \ 5 \ 0$	2 2 1	D
84.35	84.22	35	43	$\bar{3} \ 2 \ \bar{1}$	3 5 2	D
88.16	88.07	35	43	3 5 2	$\bar{3} \ 2 \ \bar{1}$	D
105.54	105.47	100	100	2 2 1	$\bar{2} \ 5 \ 0$	D
178.13	178.09	100	100	$\bar{2} \ 2 \ 1$	2 5 0	D

第11図 ϕ -スキャン法のパターン図, 硫砒銅鉱の 401 (禁制反射)

三重反射を現わす。相対強度は、多重度を考慮して調和的な説明がつく。071は禁制反射で、二重反射のみが現れる。硫砒銅鉱の401反射では、各種の多重反射のみならず、近似多重反射も現われている。ここでNTとNQとは、近似三重反射と近似四重反射を表わす。他にも多くの実例があるが省略する。詳しくは、Sasaki *et al.* (1981, 1977) や Matsumoto *et al.* (1981) 等を参照されたい。

ϕ -スキャンのパターン対称は、その周期と一次元空間群で表現できる。対称は、 $p1$ と pm

第3表 Enargite (Cu_3AsS_4 , $\text{Pmn } 2_1$), 401, $\text{pm}(\pi)$

PSI-degree		Relative Int.		Operative (Cooperative)	
obs	cal	obs	cal		
68.8	68.92	100	100	4 2 3 (0 $\bar{2}$ $\bar{2}$)	n.Q
	69.13			4 $\bar{2}$ 0 (0 2 1)	
	69.45			2 1 1 (2 $\bar{1}$ 0)	
76.2	76.48	7	6	6 1 3 ($\bar{2}$ $\bar{1}$ $\bar{2}$)	n.T
80.6	80.73	85	90	2 $\bar{1}$ 0 (2 1 1)	
	81.05			0 2 1 (4 $\bar{2}$ 0)	
94.8	94.7	40	36	4 $\bar{2}$ 1 (0 2 0); 0 $\bar{2}$ 0 (4 2 1)	T

T : Triple, Q : Quadruple, n : near

で、周期は π , $\pi/2$, $\pi/3$ なので、これらの組合せで、6種存在する。尚、ここで挙げた3種のボタンは、全て $\text{pm}[\pi]$ となる。尚、 m の位置は、図中、逆三角で示してある。

5. おわりに

多重反射現象は、我々が想像している以上に、よく生じている現象で、かなり普遍的なものである。電子線回折、中性子回折のみならず、今まで述べてきた如く、X線回折でも屢々生じている。空間群決定のみならず、回折強度へも影響を与えるので、今後、我々は注意する必要がある。強度関係のことは、紙数の関係上、省略せざるを得なかった。

最後に、総研で御世話いただいた、竹内慶夫教授に深謝する。また、この仕事の協同研究者の佐々木聡博士、沢田千賀子氏、ならびに図をかい下さった中村健二氏に感謝する。

文 献

- Burbank, R. D. (1965): Intrinsic and Systematic Multiple Diffraction. *Acta Cryst.*, **19**, 957—962.
- Busing, W. R. and Levy, H. A. (1967): Angle Calculations for 3- and 4- circle X-ray and Neutron Diffractometers. *Acta Cryst.*, **22**, 457—464.
- Cauchois, Y., Hulubei, H. et Weigle, J. (1937): Réflexions simultanées des rayons X dans le Quartz. *Helv. Phys. Acta*, **10**, 213—224.
- Cole, H., Chambers, F. W. and Dunn, H. M. (1962): Simultaneous Diffraction: Indexing Umweganregung Peaks in Simple Cases. *Acta Cryst.*, **15**, 136—144.
- Coppens, P. (1968): The Elimination of Multiple Reflection on the Four-Circle Diffractometer. *Acta Cryst.*, **A 24**, 253—257.
- Isherwood, B. J. and Wallace, C. A. (1971): The Geometry of X-ray Multiple Diffraction in Crystals. *Acta Cryst.*, **A 27**, 119—130.
- Lipson, H. and Cochran, W. (1966): *The Determination of Crystal Structures*. London, G. Bell & Sons Ltd.
- 三宅静雄 (1969), X線の回折, 朝倉書房
- Matsumoto, T., Tokonami, M. and Morimoto, M. (1975): The Crystal structure of omphacite. *Am. Mineral.* **60**, 634—641.
- Matsumoto, T., Sasaki, S. and Sawada, C. (1981): Umweganregung process of multiple diffraction in orthopyroxenes and enargite. *Acta Cryst.* **A 37 S**, 08. X-01, 155 (XII th IUCr)

- Moon, R. M. and Shull, C. G. (1964): The Effects of Simultaneous Reflections on Single-Crystal Neutron Diffraction Intensities. *Acta Cryst.*, **17**, 805—812.
- Panke, D. and Wölfel, E. (1968): The Effect of Multiple Diffraction on the Determination of Electron Density Distributions. *J. Appl. Cryst.*, **1**, 255—257.
- Post, B. (1969): The Intensity of Multiple Diffraction Effects. *Acta Cryst.*, **A 25**, 94—95.
- Prager, P. R. (1971): Estimate of the Contribution of Multiple Diffraction to Observed Intensities in Single-Crystal X-ray and Neutron Diffraction. *Acta Cryst.*, **A 27**, 563—569.
- Renninger, M. (1935): Röntgenmessungen an Diamanten. *Physik. Zeitschr.*, **36**, 834—837, or *Zeitschrift für technische Physik*, **16**, 440—443.
- Renninger, M. (1937, a): “Umweganregung”, eine bisher unbeachtete Wechselwirkungerscheinung bei Raumgitterinterferenzen. *Zeitschriften für Physik*, **106**, 141—176.
- Renninger, M. (1937, b): Röntgenometrische Beiträge zur Kenntnis der Ladungsverteilung im Diamantgitter. *Zeit. Krist.*, **97**, 107—121.
- Santoro, A. and Zocchi, M. (1966): Multiple Diffraction in the Weissenberg Methods. *Acta Cryst.*, **21**, 293—297.
- Sasaki, S. and Matsumoto, T. (1977): Multiple diffraction in orthopyroxenes Reexamination of the space group. *Proc. Japan Acad.* **53**, 3, 84—89.
- Sasaki, S., Matsumoto, T. and Sawada, C. (1981): The influence of multiple diffraction on the space group determination of orthopyroxene, spodumene, low omphacite and pigeonite. *Phys. Chem. Minerals* **7**, 260—267.
- Speakman, J. C. (1965): The Renninger effect— an example and its implication. *Acta Cryst.*, **18**, 570—571.
- Yankel, H. L. (1962): Systematic multiple diffraction in equi-inclination Weissenberg geometry. *Acta Cryst.*, **15**, 1188.
- Zacharisen, W. H. (1965): Multiple Diffraction in Imperfect Crystals. *Acta Cryst.*, **18**, 705—710.
- Zocchi, M. and Santoro, A. (1967): Simultaneous Diffraction with the Three-Circle Diffractometer. *Acta Cryst.*, **22**, 331—334.

(昭和58年1月20日 受理)