

論文審査の結果の要旨

氏名 小泉 真一

本論文は 6 章からなり、固体表面との衝突によって誘起されるクラスター衝突化学反応の本質の一端を解明することを目的として行なった主として実験研究の成果をまとめたものである。

第 1 章は序文であり、新しい種類の反応系としてのクラスター反応について、その研究背景および研究の意義を述べている。

第 2 章では $\text{Br}_2^-(\text{CO}_2)_n$ ($n=0-15$) の固体表面衝突により誘起される Br_2^- 解離過程—溶媒和構造依存性について研究している。電子衝撃により生成したクラスター 負イオン $\text{Br}_2^-(\text{CO}_2)_n$ ($n=0-15$) をサイズ選別し、薄い酸化膜で覆われた Si(100) 表面に衝突させ反応を起こさせたところ、 Br_2^- の解離反応が、 CO_2 分子が Br_2^- 間に割り込むことにより Br-Br 結合を切断する「くさび効果」、および解離した Br-Br 対が溶媒和殻により包み込まれ再結合する「かご効果」によって説明できることを示している。

第 3 章では $\text{ICl}^-(\text{CO}_2)_n$ ($n=1-20$) の固体表面衝突により誘起される ICl^- 解離過程、特に衝突配向依存性について研究している。サイズ選別したクラスター負イオン $\text{ICl}^-(\text{CO}_2)_n$ ($n=1-20$) を、薄い酸化膜で覆われた Si(100) 表面に衝突させ、その ICl^- の解離過程を調べている。分子動力学法による計算を併用することによって、衝突時の配向によって反応過程が影響を受けることが示されている。

第 4 章では 固体表面衝突による $\text{X}^-(\text{H}_2\text{O})_n$ ($\text{X}=\text{Cl}, \text{I}, n=13-31$) の解離およびエネルギー分配過程の衝突エネルギー依存性について研究している。特に入射クラスターの持つ衝突エネルギーが、系全体の並進エネルギー、解離に費やされるエネルギー、生成分子の並進・回転・振動エネルギー、および表面に与えられるエネルギーにいかに関与されるかをモデルに基づいて明らかにすることを試みている。例えば、 $\text{Cl}^-(\text{H}_2\text{O})_n$ の 5 eV 衝突においては、衝突系のすべての自由度に統計的にエネルギーが分配されることが示されている。

第5章では 固体表面衝突により誘起される $(\text{CS}_2)_n^-$ および $(\text{OCS})_n^-$ のクラスター内反応について研究している。 $(\text{CS}_2)_n^-$ の場合 S_2^- がクラスター内 S 原子引き抜き反応 $\text{S}^- + \text{CS}_2 \rightarrow \text{S}_2^- + \text{CS}$ によって生成すること、また、 S_3^- も S_2^- 同様に、クラスター内反応 $\text{S}_2^- + \text{CS}_2 \rightarrow \text{S}_3^- + \text{CS}$ 、により生成することが推定されている。

以上のように本論文はクラスター負イオンが固体表面に衝突した場合、そのクラスターがどのように反応するかについて、実験と計算の両面から研究しており、その解離反応において、くさび効果により解離が誘起されること、また、クラスターの溶媒和構造、および、衝突時の中心イオンの表面に対する配向が重要であることなど、クラスター反応に関する新しく重要な知見を得る事に成功している。

よって、本論文が博士（理学）を授与するにふさわしい研究であることを審査員は全員一致で認めた。