

## 論文審査の結果の要旨

氏名 重藤 真介

本論文は、凝縮相中の局所構造を研究するための新しい非線形ラマン分光法の開発といくつかの液体・溶液系への応用を主題としており、6章から構成されている。

第1章では導入として、凝縮相中の局所構造研究のもつ意義と本研究で開発した手法の基盤となるコヒーレントアンチストークスラマン散乱 (CARS) について述べられている。第2章では、2つの分子集団の間で CARS 過程が連続して起こるカスケード CARS 過程をプローブとした、ベンゼン/*n*-ヘキサン混合溶媒中の局所構造形成の研究について述べられている。カスケード信号強度のベンゼン濃度依存性が詳細に調べられ、均一な溶液を仮定すると説明できない特異な振る舞いを示すことが見出された。この実験結果は、混合溶媒中でベンゼンが何らかの局所構造を形成していることを示唆している。第3章では、局所構造の大きさに関するより定量的な解析に向けて新たに提案した CARS 信号の空間分布測定の基本原則、実験装置、およびデモンストレーションの結果が記されている。ベンゼン混合溶媒およびポリスチレン微粒子懸濁液に対する実験結果から、CARS 信号の空間分布パターンが試料中の局所構造を鋭敏に反映し、その大きさに関する定量的情報を有していることが示された。第4章は、第3章で述べた CARS 信号の空間分布測定をイオン液体へ応用した結果について述べられている。このイオン液体のカチオン部分のアルキル鎖長を変化させて CARS 信号の空間分布測定を行った。イオン液体中に数ナノ～数十ナノメートルの大きさの局所構造が存在することが示唆された。第5章は、エタノール水溶液への応用結果についての記述である。エタノール水溶液の空間分布パターンが混合直後と混合2週間後とで有意に異なるという非常に興味深い結果が得られた。このような空間分布パターンの経時変化はエタノール水溶液の微視的混合状態の時間変化を反映していると考えられる。これは本手法により初めて観測された現象である。第6章では、研究成果のまとめと将来に向けた展望が述べられている。

本研究において提出者は、従来の X 線・中性子散乱や赤外・ラマン分光法では分子特異的かつ定量的に研究することが困難であったメソスコピックスケールの局所構造のプロープ手法を開発した。とくに、CARS 信号の空間分布測定によって、イオン液体やエタノール水溶液中の局所構造形成に関する新たな知見を得た。結果として提出者は、本手法が凝縮相中の局所構造を分子特異的かつ定量的に研究するうえで、極めて有力であることを示した。これらの業績は独創性に富み、また丁寧に実行された実験と独自のシミュレーションとに基づいており、極めて高く評価される。

本論文第 2 章は The Journal of Chemical Physics の full paper として公表済み（加納英明、濱口宏夫との共著）、第 3 章は Chemical Physics Letters の速報として公表済み（濱口宏夫との共著）であるが、論文提出者が主体となつて実験および解析を行なっており、その寄与が十分であるので、学位論文の一部とすることに何ら問題はないと判断する。

以上の理由から、論文提出者重藤真介に博士（理学）の学位を授与することが適当であると認める。