

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 森 哲也

炭酸分子 (H_2CO_3) は、二酸化炭素が水に溶解した際に一定の割合で生成するとされている。さらに、それがイオン解離することにより二酸化炭素の溶解した水は弱酸性を呈する。従って、炭酸分子は自然界の広い範囲に存在し、基本的な重要性を持つ分子である。例えば生体中では、炭酸分子が体液の急激な pH 変化を押さえる緩衝溶液としての役割を果たしている。また、大気中の二酸化炭素は海水中に溶解し、炭酸分子を生成することで大気中での濃度が制御されている。更に炭酸分子は、水と二酸化炭素が存在する条件下であれば一定の割合で存在する可能性があり、星間空間や地球を含む惑星大気中にも存在が期待されている。

このような重要性を持つ分子であるにもかかわらず、孤立した炭酸分子の直接的な検出はこれまで報告されておらず、その構造も確定していなかった。森哲也氏は、二酸化炭素と水とをアルゴン中に希釈した混合気体を放電し、高真空中に超音速ジェットとして噴出することで孤立した炭酸分子を生成することに成功し、これをフーリエ変換マイクロ波分光法を用いて検出することで炭酸分子の詳細について研究した。この炭酸分子の研究は、大気中の二酸化炭素の振る舞いに対する興味から始められたものであるが、大気化学に関連した系として $\text{O}_2\text{-HCl}$ という分子錯体の存在が考えられている。森哲也氏はこの分子錯体のスペクトルの観測にも成功し、その解析も行った。

論文は全体で 4 章からなり、第 1 章は一般的な導入に当てられている。ここでは大気化学や星間化学ふくむ化学の様々な局面での、炭酸分子と $\text{O}_2\text{-HCl}$ 錯体の重要性が指摘され、それらの分光学的研究の意義が述べられている。また、炭酸分子については、他の酸、硫酸や硝酸との関連でもその重要性が議論されている。第 2 章は実験装置の説明に当てられており、純回転スペクトルの観測に用いたフーリエ変換マイクロ波分光法と、その分光法と組み合わせて使用する二重共鳴分光法の詳細が説明されている。また、炭酸分子の生成・検出の鍵

となった、パルス放電ノズルと、それを用いた不安定分子種の生成法の説明がなされている。第3章は炭酸分子の、第4章は O_2-HCl 錯体の実験、解析と、そこから得られた結果に基づく議論に当てられている。以下、個別の結果について説明する。

第3章は、炭酸分子の研究結果がまとめられている。最初に炭酸分子のこれまでの研究を概観した後、本研究で実験に先立って行った分子軌道計算の詳細と、その結果が記述されている。理論計算によると炭酸分子には3種の異性体が存在するが、実験結果の記述では、そのうちの *cis-cis* 異性体と *cis-trans* 異性体の検出が述べられている。それぞれの異性体について、重水素置換体のスペクトルも観測し、この分子の分子構造を精密に決定している。また、二つの異性体の相互の移り変わりと、炭酸分子の二酸化炭素と水とへの解離のメカニズムに関しても理論計算の結果を参照しながら議論している。また、三つ目の異性体である *trans-trans* 異性体は検出できなかったが、その理由についても考察している。また、関連研究として炭酸分子と水との錯体の検出の可能性、 HCO_3 ラジカルの検出の可能性も論じている。

第4章は、本研究のもう一つの研究対象である O_2-HCl のスペクトルの検出にあてられている。この錯体の研究の意義を論じた後、高精度の分子軌道計算により錯体の安定構造の予測を行っている。この系は、弱い分子間力で結びついた錯体であり、分子間の大振幅運動が考えられるが、その取り扱いについて論じた後、スペクトルの観測、および大振幅運動を考慮した実験データの解釈について論じ、構造を推定している。

このように、本研究は、大気化学や星間化学で重要と考えられている一連の分子種を取り上げ、その詳細を明らかにしたもので、その学術的な価値は極めて高いと評価できる。なお、これらの研究結果のうち、炭酸分子の研究結果は、1報の論文としてすでに印刷公表されているが、引き続き続報を1報の論文として投稿準備中である。これらの結果は、遠藤泰樹、住吉吉英、須磨航介との共同研究であるが、ほとんどすべての内容は論文提出者が主体となり実験、解析、考察を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断した。

よって本審査委員会は、博士（学術）の学位を授与するにふさわしいものと認定する。