

論文審査の結果の要旨

氏名 岡島 元

本論文は、相転移現象を動的に理解するための高速低振動数ラマン分光装置の開発と、その応用について記述されており、全5章から構成される。

第1章では導入として、本研究の目的が結晶化や融解などの相転移現象を分子レベルで理解することであり、この目的のために分子間相互作用の動的観測が重要であることが述べられている。また、既存の手法において分子間相互作用の高速測定が困難であることを踏まえ、新規の手法としてマルチチャンネル検出を用いた高速低振動数ラマン分光が提案されている。

第2章では、開発された高速低振動数ラマン分光装置の詳細及びその性能について述べられている。ヨウ素蒸気フィルターをレイリー散乱除去に利用することにより、一般のマルチチャンネルラマン分光計の利点を全て残したまま、低振動数領域を測定することが可能となった。その結果、 $\pm 5 \text{ cm}^{-1}$ までの低振動数ラマンスペクトルを0.1秒単位で高速に取得できることが示された。

第3章では、高速低振動数ラマン分光の応用例として、アントラセンの融解過程を長時間観測した結果とその考察が述べられている。融解における低振動数ラマンスペクトルの変化から格子振動が消失してゆく過程が動的に観測され、さらに得られた各ラマンスペクトルから結晶の温度が精度良く見積もられることが確かめられた。また融解における温度変化から、融点以上の温度を持った結晶状態(“過熱状態”)が数秒間存在することが確認された。この過渡的な状態として、結晶の長距離秩序が失われ局所的な構造が残ったモデルが考えられ、このようなモデルが格子振動の振動数などの実験事実と良く対応することが述べられている。

第4章では、高速低振動数ラマン分光の別の応用例として、イミダゾリウム系イオン液体のプロトタイプである塩化ブチルメチルイミダゾリウムの融解過程について調べられている。格子振動と内部振動とをマルチチャンネル検出で同時に観測することによって、アルキル鎖の回転異性化が結晶構造の消失より数秒遅れて起こることが示された。このことからアルキル鎖間の強い相互作用が推察され、これとイオン液体の液体構造との関連性について論じられている。第5章は以上の研究成果のまとめである。

本研究により、低振動数ラマンスペクトルを高速に取得する新規手法が開発され、分子間相互作用を動的に観測することが初めて可能となった。マルチチャンネル分光計とヨウ素蒸気フィルターとを組み合わせた本手法は独創性が高く、凝縮相の研究において超高速分光などの発展的な研究への応用が期待される手法である。さらに本研究で行ったように、格子振動の消失や生成の過程を動的に観測することは、融解などの相転移現象を理解する上での新しいアプローチになると考えられる。このような新規の観測手法とその有用性を呈示した本論文の業績は高く評価できる。

本論文第2章の主要部分は Applied Spectroscopy 誌に公表済み(濱口宏夫との共著)、第2章と第3章の一部は日本分光学会誌「分光研究」に公表済み(濱口宏夫との共著)であるが、論文提出者が主体となって実験および解析を行っており、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、論文提出者岡島元に博士(理学)の学位を授与することが適当であると認める。