

論文審査の結果の要旨

氏名 伴野 元洋

本論文は、時間分解赤外分光法を用いた溶液中の分子内振動ダイナミクスの観測と、その観測結果を基にした溶質溶媒分子間相互作用の研究を主題とし、全8章にて構成されている。

第1章では、導入として溶液中の分子振動エネルギー緩和過程のメカニズムと、この過程を観測するのに有用な手法に関して、過去の研究例を交えて述べられている。

第2章では、本研究において製作・応用された時間分解赤外ポンプ・プローブ分光装置の詳細と、本手法が分子振動に応用された際に観測される信号の解釈に関して述べられている。

第3章では、タングステンヘキサカルボニルの三重縮重 C0 伸縮振動のエネルギー緩和時間を、溶媒アルカンの炭素数を変化させつつ観測した結果が述べられている。C0 伸縮振動エネルギー緩和時間が、溶質溶媒間の微視的相互作用を反映することが新たに見出された。

第4章では、第3章で得られた結果をさらに追求する目的で、二成分混合溶媒中でのタングステンヘキサカルボニル C0 伸縮振動のエネルギー緩和時間を観測した結果が述べられている。溶質と溶媒の分子サイズがほぼ等しい場合、分子間の特異的相互作用が反映されることで、エネルギー緩和時間が短くなるという機構が提案された。

第5章では、タングステンヘキサカルボニルの6つのカルボニル配位子のうち1つを他の配位子に置換した際、C0 伸縮振動エネルギー緩和過程が受ける影響が議論されている。C0 という単純な配位子を複雑な配位子に置換することでエネルギー緩和過程が速く進行するという観測結果から、振動エネルギー緩和過程における分子内・分子間エネルギー移動過程の寄与が分離して議論された。

第6章では、重水中の酢酸、第7章では、メタノール中の酢酸メチルのカルボニル伸縮振動エネルギー緩和過程について議論されている。両者の系で、溶質分子と溶媒分子との異なる水素結合錯体が溶液中で混在していることが見出された。

第8章では、本論文の結論が述べられている。

本論文において提出者は、分子内振動のエネルギー緩和過程というダイナミクスの観測が、他の手法では得ることが困難であるような分子の微視的環境に関する情報を得るための極めて有用な手法であることを示した。また、具体的

にどのようにエネルギー緩和過程が分子環境を反映するかについて解釈を行った。この研究はその発想の独創性ととも、将来さらに多くの溶液系へと応用されていく発展性を持ち合わせているという点において高く評価できる。

本論文のうち、第3章は Chemical Physics Letters 誌 (佐藤伸, 岩田耕一, 濱口宏夫と共著), 第4章は The Journal of Physical Chemistry A 誌 (岩田耕一, 濱口宏夫と共著), 第5章は The Journal of Chemical Physics 誌 (岩田耕一, 濱口宏夫と共著), 第6章は The Journal of Physical Chemistry A 誌 (太田薫, 富永圭介と共著), 第7章は The Journal of Raman Spectroscopy 誌 (太田薫, 富永圭介と共著) において公表済みである。これらの研究は論文提出者が主体となって実験, 解析を行ったものであり, その寄与は十分であるため, 学位論文の一部とすることに問題はないと判断される。

以上の理由から, 論文提出者伴野元洋に博士 (理学) の学位を授与するのが適当であると認める。