

論文審査の要旨および学識確認結果

報告番号	甲 第 号	氏 名	鹿志村 達彦
論文審査担当者：	主査	慶應義塾大学教授	工学博士 藪下 聡
	副査	慶應義塾大学教授	理学博士 中嶋 敦
		慶應義塾大学教授	博士（理学） 近藤 寛
	慶應義塾大学准教授	博士（理学） 山内 淳	
	上智大学教授	博士（理学） 南部 伸孝	
<p>(論文審査の要旨)</p> <p>学士（理学）、修士（理学）鹿志村達彦君提出の学位請求論文は、「ICN分子の光解離反応に見られる量子干渉効果に関する理論的研究」と題し、全6章からなっている。</p> <p>量子効果が顕著な系の化学反応を定量的に、かつ生成物の微細構造準位分布まで予測することは今日でも困難な問題である。特に、スピン軌道相互作用や非断熱相互作用の寄与によって、量子効果が顕著に現れる場合が多い。鹿志村君は、過去30年にわたる詳細な実験・理論研究にも拘わらず、多くの未解明問題を含むICN分子の光解離反応に焦点を当て、その励起過程と解離過程を理論的に解析することで、2種類の量子干渉効果が含まれることを明らかにした。</p> <p>第一章では、各種角運動量と非断熱遷移理論をまとめ、さらに、光解離反応における光吸収断面積、生成物の異方性パラメータ、orientationの理論表式をまとめている。</p> <p>第二章では、ICN分子の分子軌道や、重要となる励起状態について説明している。さらに、ICN分子の光解離反応に関する過去の実験研究と理論研究をまとめ、本論文の目的を述べている。</p> <p>第三章では、ポテンシャルエネルギー、遷移モーメントなどの電子状態計算と、半古典的動力学計算の方法をまとめている。</p> <p>第四章では、光分解生成物であるCNラジカルとI原子の距離および角度を変化させ、その相互作用ポテンシャルの主要項が、重心間距離が10 Bohr程度までは、CNラジカルとI原子上に局在する二つの電子間の交換相互作用であるが、さらに遠距離では、CNラジカル電気的雙極子モーメントが作る電場勾配とI原子上電子が作る四重極モーメントの間の雙極子-四重極子相互作用に変遷することを明らかにしている。そして生成物間の距離が13 Bohr程度において、CNラジカルスピン角運動量Sと回転角運動量M、およびI原子のスピン角運動量sの3つの角運動量の結合様式に組み換えが起こり、それに伴ってRosen-Zener-Demkov型非断熱相互作用が生じることを見出している。この非断熱遷移過程を定式化することで、CNラジカル2種類の回転微細構造準位(F_1, F_2)の分布差関数$f(M)$の理論表式を半古典論を用いて導出し、電子状態計算と動力学計算により、$f(M)$の実験結果のN依存性および励起波長依存性が、$3A'$と$4A'$のポテンシャル面上に生じた解離波束の量子干渉効果によることを明らかにしている。</p> <p>第五章では、まず電子基底状態から低励起状態への遷移モーメント、および光吸収断面積の理論計算から、遷移モーメントの核座標依存性の重要性を指摘している。特に$5A'$状態への遷移モーメントは、従来、解離軸に対する垂直成分だけを含むと暗黙のうちに仮定されてきた。しかし、電子基底状態のICN分子の変角振動が低波数であることを考慮し、遷移モーメントの核座標依存性を含めて光吸収断面積を評価することで、解離軸に対する平行成分が無視できないこと、さらに過去の実験結果の詳細な分析により、その強度が第1吸収帯全断面積の15~20%程度にもなることを指摘している。これらの結果を踏まえて、CNラジカル回転角運動量Nの空間的異方性を表現するorientationパラメータの理論表式を、半古典論を用いて導出し、その回転量子数依存性が、$4A'$と$5A'$の2状態のポテンシャル面上に生じた解離波束の量子干渉の結果であることを明らかにするとともに、そのN依存性に解釈を与えている。</p> <p>第六章では、本論文の総括を行い、量子干渉効果の重要性を議論している。</p> <p>以上要するに、本論文の著者は、ICN分子の光分解過程を第一原理にしたがって、これまで蓄積された実験結果を詳細に解析し、多くの未解明問題を解決した。特に複数のポテンシャル面上に生成した解離波束の間の量子干渉効果の重要性を明確にした。本論文の研究対象はICNという特定の3原子分子であるが、その研究成果や解析手法は他の分子系にも広く適用可能な概念を含み、今後この分野の研究に重要な指針を与えるものとして、分子科学の発展に寄与するところが少なくない。よって本論文の著者は博士(理学)の学位を受ける資格があるものと認める。</p>			
学識確認結果	学位請求論文を中心にして関連学術について上記審査会委員で試問を行い、当該学術に関し広く深い学識を有することを確認した。 また、語学（英語）についても十分な学力を有することを確認した。		