

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

|                   |  |
|-------------------|--|
| 題目(和文)            |  |
| Title(English)    | Theoretical and Experimental Study of the Radiative Ortho-Para Transition in Disulfur Dichloride   |
| 著者(和文)            | デ`ガ`ニクワテイセ`イナブ`  |
| Author(English)   | Zeinab Dehghanitafti   |
| 出典(和文)            | 学位:博士(理学),<br>学位授与機関:東京工業大学,<br>報告番号:甲第10928号,<br>授与年月日:2018年7月31日,<br>学位の種別:課程博士,<br>審査員:金森 英人,上妻 幹旺,松下 道雄,西田 祐介,相川 清隆,旭 耕一郎,<br>遠藤 泰樹  |
| Citation(English) | Degree:Doctor (Science),<br>Conferring organization: Tokyo Institute of Technology,<br>Report number:甲第10928号,<br>Conferred date:2018/7/31,<br>Degree Type:Course doctor,<br>Examiner:,,,,,, |
| 学位種別(和文)          | 博士論文   |
| Category(English) | Doctoral Thesis  |
| 種別(和文)            | 審査の要旨  |
| Type(English)     | Exam Summary   |

## 論文審査の要旨及び審査員

(2000字程度)

| 報告番号  | 乙 第 号 | 学位申請者 | Zeinab Dehghani Tafti |      |
|-------|-------|-------|-----------------------|------|
| 論文審査員 | 氏 名   | 職 名   | 氏 名                   | 職 名  |
|       | 金森 英人 | 准教授   | 相川 清隆                 | 准教授  |
|       | 上妻 幹旺 | 教授    | 旭 耕一郎                 | 名誉教授 |
|       | 松下 道雄 | 准教授   | 遠藤 泰樹                 | 名誉教授 |
|       | 西田 祐介 | 准教授   |                       |      |

本論文は Theoretical and experimental study of the radiative *ortho-para* transition in disulfur dichloride ( $S_2Cl_2$  分子のオルト-パラ光学遷移の理論および実験的研究) と題し、本文6章と4つの付録から構成される。

第1章「Introduction」では等価粒子の交換対称性に基づく分子の基本的性質として、*ortho-para*対称性とその状態間の遷移について、理論および実験的な研究の歴史的背景を述べている。従来の*ortho-para*状態間の遷移の研究は分子衝突を介したものや、物質表面上の分子に限られており、電磁波との相互作用で分子の*ortho-para*遷移を観測した例が無いことについて言及した上で、本論文で目標とする孤立した分子の*ortho-para*状態間の電気双極子遷移の直接観測について述べている。さらに本論文で測定対象とした $S_2Cl_2$ 分子の物理化学的特性と分光学的研究についてレビューをおこなっている。

第2章「Theory」では $S_2Cl_2$ 分子の超微細相互作用を含む回転ハミルトニアン $H$ の定式化をおこなっている。非対称コマ回転ハミルトニアンとしては6次までの遠心力歪項を考慮し、超微細相互作用としては2個のCl核 ( $I=3/2$ ) による核四重子極相互作用および核スピン-回転相互作用を考慮している。対称コマ分子の波動関数を基底関数として定義し、全ての行列要素を提示している。このハミルトニアン行列を対角化して得られた固有値を使って遷移周波数を計算し、さらに固有ベクトルを使って電気双極子遷移の強度を計算する手順を示している。

第3章「Experimental methods」では本実験で用いた超音速分子ジェットのマイクロ波吸収分光測定法について述べている。特に検出感度を上げるために光源の周波数変調分光法とパルス分子ジェットを組み合わせた時間分解吸収分光法について説明している。

第4章「Microwave spectroscopy of  $S_2Cl_2$ 」では、マイクロ波領域に出現が期待される*ortho-para*禁制遷移の周波数をできるだけ正確に予想するために、許容遷移のマイクロ波分光をミリ波帯 (75-110GHz) でおこなった結果について述べている。回転量子数  $J$  の大きな状態は室温のガスセルで測定し、 $J$  の小さい状態は超音速分子ジェットを用いて行っている。その結果、 $J$  が7から55、 $K$  が0から12までの広い範囲にわたる計200本の回転スペクトルを観測し、以前に観測されていたセンチ波帯の測定結果と合わせて、2章で構築した分子ハミルトニアンを用いた最小二乗解析によって、回転定数や超微細相互作用定数を測定誤差限界で決定した。

次に、*ortho-para*遷移の探査測定に最適な遷移を選ぶために、これらの定数を使って遷移周波数を計算し、固有ベクトルを用いて遷移強度を予測した。調べた数百本の遷移の中から最も有望として選んだ遷移について、3章で述べた時間分解分光法を用いて検出を試みた実験について述べている。結果として、禁制遷移を検出することはできなかったが、その理由について実験サイドからの問題点を挙げて考察している。

第5章「Theoretical investigation of the *ortho-para* interaction in  $S_2Cl_2$ 」では4章の実験結果を踏まえて、*ortho-para*準位間の遷移について、あらためてその本質を理解するための理論的考察をおこなっている。まず、*ortho-para*間の遷移強度が大きくなる条件を3章で決定した波動関数の固有ベクトル解析から考察し、*ortho-para*状態のミキシングの大きさは、中間状態を介する2次摂動として定式化できることを見いだしている。その結果、状態のミキシングが大きくなる要因は、超微細相互作用で分裂したエネルギー準位が偶然近接する際の特異点効果であり、 $F$ 、 $J$ 等の量子数を用いた選択律は重要でないことを指摘している。したがって、*ortho-para*遷移強度の大きな準位を見つける上で最も重要なことは、超微細構造準位を含めた回転準位のエネルギーを正確に計算することであると結論付けている。

第6章「Conclusion and suggestions」では論文の全体を概観し、今後の展望について述べている。また、それに続く4つの付録においては解析に用いたc言語のソースコード、最小二乗解析の結果、*ortho-para*遷移の予想スペクトルを提示している。

以上をまとめると、本論文では分子の*ortho-para*禁制遷移の発現機構を、自ら測定したスペクトルの解析から解明し、今後の観測実験のための重要な予測手法を提供している。このことは今後の理学の発展に大いに貢献するものと評価される。よって本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値があると認められる。