

氏名(本籍)	加藤拓司(大阪府)
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第1,855号
学位授与年月日	平成10年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	化学研究科
学位論文題目	Theoretical Study of Electron Transfer Reactions (電子移動反応の理論的研究)
主査	筑波大学併任教授 理学博士 立矢正典 (物質工学工業技術研究所)
副査	筑波大学教授 理学博士 菊池修
副査	筑波大学教授 理学博士 池田龍一
副査	筑波大学教授 理学博士 新井達郎

### 論文の内容の要旨

電子移動反応は最も簡単な化学反応であるとともに、光合成、写真、分子素子等の分野において非常に重要な素過程である。電子移動反応の基本的な理論としてマカース理論があるが、これを実際の電子移動反応に適用しようとする、解決しなければならない数多くの問題点が残されている。本論文では、まず、電子移動理論で重要な因子である再配向エネルギーをドナー、アクセプターに対してより現実的な形状を仮定して計算し、電子移動速度に対するドナー、アクセプターの形状の効果を調べた。また、高分子膜中にドナー、アクセプター及びメディエーターを分散した系(金子らの実験)について、移動積分をメディエーターを介した超交換相互作用を考慮して計算し、電子移動速度がメディエーターの濃度とともにどのように変化するかを明らかにした。さらに、溶媒分子クラスター内の電子移動について分子動力学法を用いて調べ、電子移動速度がクラスターのサイズとともにどのように変化するかを明らかにした。

### 審査の結果の要旨

ドナー、アクセプターに対してより現実的な形状を仮定することによって、電子移動速度の自由エネルギー変化依存性の実験結果をより良く再現できることを示し、ドナー、アクセプターの形状も電子移動速度に影響を与えることを明らかにしている。また、ランダムに分布したメディエーターを介した電子移動の理論を初めて定式化し、金子らの実験を説明することに成功している。さらに、溶媒分子クラスター内の電子移動について初めて研究し、電子移動速度がクラスターのサイズにあまり依存しないというおもしろい結果を得るとともに、その理由を明らかにしている。

よって、著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。