

I 分子・クラスターの光イオン化解離過程の動力学的研究

Dynamics of Photo-induced Ionization Reactions

下條竜夫・本間健二
Gejo, T., Honma, K.

近年の第3世代シンクロトロン放射光(SR)と関連する分光技術の目覚ましい進歩は、簡単な分子の内殻電離しきい値近傍における振動分光を可能にし、従来の一電子近似としてのスペクトル構造のみならず、それ以上の詳細な物理量および微細構造の観測を実現している。我々はコインシデンス分光法、高分解能光電子分光、画像観測法、角度分解飛行時間質量スペクトル法などを用い、様々な内殻励起状態における分子および気相クラスターの光イオン化解離のダイナミクスを研究している。

II しきい電子分光法による多電子励起状態の研究

ZEKE Spectroscopic Technique for Probing Multielectron Processes in Molecules

下條竜夫
Gejo, T.

光のエネルギーが、原子・分子のイオン化エネルギーに正確に一致すると、運動エネルギーが殆どゼロの光電子を放出する。これをしきい電子と呼び、そのような電子を積極的に捕集する分光法をしきい電子分光法と言う。しきい電子分光法では、全立体角に放出された電子を捕集するので、通常の光電子分光に比べて検出感度が桁違いに高く、しかも高分解能化が図りやすい。我々は現在、内殻イオン化しきい値近傍の多電子励起状態の詳細な研究を目標として、このしきい電子と角度分解したイオンフラグメントをコインシデンス測定した「対称性分離しきい電子分光法」、しきい電子を軟X線発光とのコインシデンス測定をした「高分解能しきい電子分光法」の開発をすすめている。

III 気相化学反応素過程の研究

Dynamics of Gas Phase Elementary Reactions

松本剛昭・本間健二
Matsumoto, Y., Honma, K.

化学反応を支配している因子を分子レベルから解明するために、レーザー光解離・分光法・交差分子線法などを駆使して単一衝突条件下で反応分子および生成分子の量子状態を選別した化学反応を観測している。これらの情報を総合化することで、化学反応を制御することも可能になると考えられる。特に

興味を持っている反応系は遷移金属原子の反応である。遷移金属は非常にエネルギーの近い ns 軌道と $(n-1)d$ 軌道に電子を持っているため多くの電子状態が近接しており、電子配置・電子状態と反応性を理解する格好の材料であるといえる。また、遷移金属原子は不均一系の触媒などとして広く用いられていて、本研究で得られる情報はこうした複雑な反応系を理解するためにも重要である。

IV 新しい分光法による溶媒和クラスターの構造的・動力学的研究

Structural and dynamical studies of gas-phase clusters by new spectroscopic techniques

松本剛昭・本間健二
Matsumoto, Y., Honma, K.

溶質分子と小数個の溶媒分子からなる溶媒和クラスターは、溶液内分子の挙動・化学反応を分子レベルから解明する格好の対象である。このマイクロな「溶液」がどのような溶媒和構造を持っているのか、溶質分子の挙動は「溶媒」分子の存在・その数・溶媒和構造によってどう支配されているのか、を解明することを目指して、赤外キャビティリングダウンレーザー吸収分光法(IR-CRLAS)やエレクトロスプレージーレーザー誘起レイザー光法(ES-LIF)など新しい分光法を用いて研究を行う。溶媒和クラスター内のOH、NH伸縮振動はIR-CRLAS法によって発光・イオン化を介さずに観測され、水素結合構造に関する情報が得られると期待される。これまで全く「孤立分子状態」での情報のないタンパク質のような生体高分子、錯イオンなどはESI法によって溶媒和状態を制御して単離されレーザー観測され、その電子状態・構造と溶媒和の関係が解明されると考えられる。

発表論文 List of Publications

- I-1 Y. Tamenori (JASRI), O. Takahashi (広島大), Y. Yamaguchi, K. Okada(広島大), K. Tabayashi (広島大), T. Gejo, and K. Honma, "Hydrogen bonding in acetone clusters probed by NEXAFS spectroscopy in the carbon and oxygen K-edge regions", *J. Chem. Phys.* **131**, 174311 (9 pages) (2009).
- I-2 池上剛史・下條竜夫・本間健二・大浦正樹(理研)・為則雄祐(JASRI)・繁政英治(分子研)・彦坂泰正(分子研): 水分子の1s電子イオン化しきい値近傍の光解離ダイナミクス、日本放射光学会(姫路)、2010.
- I-3 T. Gejo, M. Kuniwake, K. Honma, J. R. Harries, M. Oura, J. Sullivan, Y. Azuma, "Photodissociation dynamics of water in K-edge energy region", 第25回化学反応討論会(さいたま)、2009.
- I-4 下條竜夫・大浦正樹(理研)・國分美希・本間健二・徳島高(理研)・堀川裕加(理研)・新井秀美(理研)・辛埴(理研)・小杉信博(分子研): 軟X線発光分光法による酸素分子1s- σ^* 励起状態中のバンド構造の解明、第3回分子科学討論会(名古屋)、2009.

- III-1 R. Yamashiro, Y. Matsumoto, and Kenji Honma, "Excited state reaction dynamics of $\text{Ti}(a^5F_J) + \text{O}_2 \rightarrow \text{TiO}(A,B) + \text{O}$ studied by a crossed-beam technique", *J. Chem. Phys.* **131**, 044316(6 pages) (2009).
- III-2 Kenji Honma, "Reaction dynamics of transition metal atoms studied by crossed beam technique", XXIII International Symposium on Molecular Beams, Dalian, 2009.
- III-3 Kenji Honma, "Reaction dynamics of transition metal atoms studied by a crossed-beam technique", The 69th Okazaki Conference, Okazaki, 2010.
- III-4 R. Yamashiro, Y. Matsumoto, K. Honma, "Crossed-beam study on the dynamics of $\text{Ge}(^3P_J) + \text{O}_2$ reaction with laser-induced fluorescence detection", 第25回化学反応討論会 (さいたま), 2009.
- III-5 本間健二・山城 亮・松本剛昭: 遷移金属原子励起状態の反応ダイナミクスの解明: $\text{Ti}(a^5F_J) + \text{O}_2$, 第3回分子科学討論会 (名古屋), 2009.
- IV-1 Yoshiteru Matsumoto and Kenji Honma, "Hydrogen-bonded structures of the pyrrole-solvent clusters: Infrared cavity ringdown spectroscopy and quantum chemical calculations", *J. Chem. Phys.* **130**, 054311(11 pages) (2009).
- IV-2 Yoshiteru Matsumoto and Kenji Honma, "Crystalline structures in large ammonia clusters studied by IR cavity ringdown spectroscopy and a density functional theory calculation", *Chem. Phys. Lett.* **490**, 9-13 (2010).
- IV-3 Yoshiteru Matsumoto and Kenji Honma, "Hydrogen-bonded structures of Pyrrole-solvent binary clusters studied by IR cavity ringdown spectroscopy", XVII International Conference on "Horizons in Hydrogen Bond Research", Paris, 2009.
- IV-4 Y. Matsumoto and K. Honma, "Hydrogen-bonded structures of Pyrrole- NH_3 binary clusters studied by infrared cavity ringdown spectroscopy", 第25回化学反応討論会 (さいたま), 2009.
- IV-5 松本剛昭・本間健二: 交差ジェットー赤外分光法による水素結合クラスターの構造揺らぎの研究, 第3回分子科学討論会 (名古屋), 2009.

大学院物質理学研究科

博士後期課程

山城 亮: 交差分子線 - レーザー誘起ケイ光法による化学反応ダイナミクスの解明

博士前期課程

川股貴史: 画像観測法による金属原子の化学反応ダイナミクスの解明

科学研究費補助金等

- 1 科学研究費補助金（平成 17～21 年度）（特定領域研究） 課題番号:18066014
研究課題 遷移金属原子の反応ダイナミクスの解明
研究代表者 本間健二
- 2 科学研究費補助金（平成 21～22 年度）（挑戦的萌芽研究） 課題番号:21654057
研究課題 プロトン運動量分光法による分子の内殻励起状態の研究
研究代表者 本間健二
- 3 科学研究費補助金（平成 20～21 年度）（若手研究(B)） 課題番号:20750016
研究課題 赤外吸収分光によるナノサイズ巨大水とクラスタの水素結合ネットワークの研究
研究代表者 松本剛昭
- 4 科学研究費補助金（平成 20～21 年度）（特定領域研究） 課題番号:20050028
研究課題 交差ジェット - 赤外分光による巨大サイズ水クラスタの水素結合構造と揺らぎの研究
研究代表者 松本剛昭