

## 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 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。

## III 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 レーザー誘起ケイ光法(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 J. R. Harries(JAEA), T. Gejo, M. Kuniwake, K. Honma, M. Oura(理研), J. P. Sullivan(Australian National Univ.), Y. Azuma (上智大), "O(1s) photodissociation dynamics of gas-phase H<sub>2</sub>O", 第26回化学反応討論会 (東広島) .
- I-2 A. Yoshida, H. Arai (理研), U. Horikawa (理研), T. Tokushima (理研), M. Oura (理研), T. Gejo, K. Honma, S. Shin (理研), "A study on electronic states of carbonate ions in aqueous solution by soft X-ray emission spectroscopy", 第26回化学反応討論会 (東広島) .
- I-3 池上剛史・下條竜夫・本間健二・James Harries(JAEA)・樋口 格(JASRI)・為則雄祐(JASRI), "アルゴン2p電子イオン化しきい付近における時間分画ケイ光と質量選別イオンとのコインシデンス測定", 第4回分子科学討論会 (大阪) .
- I-4 吉田綾香・新井秀実 (理研)・堀川裕加 (理研)・徳島 高 (理研)・大浦正樹 (理研)・下條竜夫・本間健二・辛 埴 (理研), "軟X線発光分光法による水溶液中の炭酸イオンの電子状態の観測", 第4回分子科学討論会 (大阪) .
- I-5 M. Oura (理研), O. Takahashi (広島大院理), T. Gejo, T. Tokushima (理研), Y. Horikawa (理研), Y. Senba(JASRI), H. Ohashi(JASRI), S. Shin (理研), "Vibrationally resolved resonant x-ray emission spectra of diatomic molecules", *J. Phys.: Conference Series* **235** (2010) 012016.
- I-6 下條竜夫, "新しい軟X線分光法", 分光研究, **59** 巻3号 128-139 (2010).
- I-7 吉田綾香・新井秀実 (理研)・堀川裕加 (理研)・徳島 高 (理研)・高橋 修 (広島大院理)・大浦正樹 (理研)・下條竜夫・本間健二・辛 埴 (理研), "軟X線発光分光法による水溶液中の二酸化炭素の電子状態の観測", 日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム (つくば) .
- I-8 T. Gejo, M. Oura (理研), M. Kuniwake, K. Honma, and J. R. Harries(JAEA), "The photodissociation dynamics of H<sub>2</sub>O after recapture process via Auger decay of O 1s inner-shell excitation", MPS2010 (Sendai).
- II-1 Kenji Honma, "Reaction dynamics of gas-phase transition metal atoms", Pacificchem 2010, Symposium on "Frontiers in State-to-State Dynamics", (Hawaii).
- II-2 T. Kawamata, R. Yamashiro, Y. Matsumoto, K. Honma, "Reaction dynamics of transition metal atoms: Velocity and angular distributions of reaction products", 第26回化学反応討論会 (東広島) .
- II-3 川股貴史・山城 亮・松本剛昭・本間健二, "Velocity map imagingを用いたY+O<sub>2</sub>→YO+Oの反応ダイナミクスの研究", 第4回分子科学討論会 (大阪) .
- II-4 本間健二, "電子状態と反応性 -遷移金属原子の反応ダイナミクス-", 化学反応のポテンシ

- ヤル曲面とダイナミクス —加藤重樹先生の足跡をたどって— (京都) .
- II-5 本間健二、「物質科学の世界」第 12 章「化学反応を分子レベルから眺める」、共立出版、2010 年.
- III-1 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).
- III-2 J. Iwamoto, Y. Matsumoto, K. Honma, "Investigation of solvated structures of Pyrrole-Acetone binary clusters by infrared cavity ringdown spectroscopy", Molecular & Ionic Cluster Conference 2010, Atama Kougen Resort Hotel Bernatio (Niigata).
- III-3 Y. Matsumoto, K. Honma, "IR cavity ringdown spectroscopy of large clusters roughly size-selected by crossed jet scattering", Molecular & Ionic Cluster Conference 2010, Atama Kougen Resort Hotel Bernatio (Niigata).
- III-4 J. Iwamoto, Y. Matsumoto, K. Honma, "Investigation of solvated structures of Pyrrole-Acetone binary clusters by infrared cavity ringdown spectroscopy", 第 26 回化学反応討論会 (東広島) .
- III-5 松本剛昭・岩本純一・本間健二、"赤外吸収分光によるピロール溶媒和クラスターの水素結合構造の研究"、第 4 回分子科学討論会 (大阪) .
- III-6 松本剛昭、"赤外キャビティリングダウン分光法による水素結合型分子クラスターの構造解明"、第 33 回溶液化学シンポジウムプレシンポジウム (京都) .
- III-7 Y. Matsumoto, K. Honma, "Intermolecular structures of pyrrole-solvent binary clusters studied by infrared cavity ringdown spectroscopy and quantum chemical calculations", Pacificchem 2010 (Hawaii).
- III-8 Y. Matsumoto, "Intermolecular structures of small solvated clusters and large crystalline clusters studied by IR absorption spectroscopy", 日本化学会第 91 春季年会アジア国際シンポジウム物理化学ディヴィジョン (横浜) .

## 大学院物質理学研究科

### 博士前期課程

池上剛史：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

岩本純一：赤外吸収分光によるピロール溶媒和クラスターの水素結合構造の研究

吉田綾香：軟 X 線発光分光法による水溶液中の二酸化炭素および炭酸イオンの電子状態の観測

稲葉龍哉：交差分子線法による反応ダイナミクスの解明

小倉 彩：画像観測法によるクラスター内反応の研究

水谷彰吾：ESI-IT-LIF 法による錯イオン励起状態の研究

## 科学研究費補助金等

- 1 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
- 2 兵庫県立大学特別教育研究助成金（平成 22 年度）  
研究課題 画像観測法による遷移金属原子 - オレフィン反応ダイナミクスの解明  
研究代表者 本間健二
- 3 科学研究費補助金（平成 22～23 年度）（特定領域研究）課題番号：22018025  
研究課題 交差ジェット - 赤外分光による水和クラスターの水素結合構造と揺らぎの研究  
研究代表者 松本剛昭