

## I 分子・クラスターの光イオン化解離過程の動力的研究 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

レーザ誘起ケイ光法(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 "Long-lived, highly-excited neutral H production following O 1s photo-excitation of gas-phase water molecules",  
James R. Harries(JAEA), T. Gejo, K. Honma, M. Kuniwake, J. P. Sullivan (オーストラリア国立大学), M. Lebech(KEK), and Y. Azuma (上智大), *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **44**, 095101 (7 pages) (2011).
- I -2 "Dissociation and recapture dynamics in H<sub>2</sub>O following O 1s inner-shell excitation",  
T. Gejo, M. Oura (理研), M. Kuniwake, K. Honma, and J. R. Harries(JAEA), *J. Phys.: Conference Series* **288**, 012023 (7 pages) (2011).
- I -3 "Site- and geometry-specific CH---O interaction in small acetaldehyde clusters studied with core-electron excitation spectroscopy in the carbon K-edge region",  
K. Tabayashi (広島大院理), Y. Tsutsumi (広島大院理), M. Chohda (広島大院理), O. Takahashi (広島大院理), Y. Tamenori(JASRI), I. Higuchi (理研), I. H. Suzuki(), S. Nagaoka (愛媛大院理), T. Gejo, and K. Honma,  
*J. Phys.: Conference Series* **288**, 012022 (11 pages) (2011).
- I -4 "Photodissociation investigation of doubly charged ethanol clusters induced by inner-shell electron ionization",  
Yusuke Tamenori(JASRI), Kazumasa Okada (広島大院理), Kiyohiko Tabayashi (広島大院理), A. Hiraya (広島大院理), T. Gejo, and Kenji Honma, *J. Chem. Phys.* **134**, 204301(9 pages) (2011).
- I -5 "Core-electron excitation and fragmentation processes of hydrogen bonded acetic-acid clusters in the oxygen K-edge region",  
K. Tabayashi (広島大院理), K. Yamamoto (広島大院理), T. Maruyama (広島大院理), H. Yoshida (広島大院理), K. Okada (広島大院理), Y. Tamenori(JASRI), I. H. Suzuki(), T. Gejo, and K. Honma, *J. Electron Spectro. Related Phenom.* **184**, 134-139 (2011).
- I -6 "Soft X-ray emission spectra of carbonate ions in aqueous solution of alkali carbonates",  
(University of Hyogo, Riken/SPring-8, Department of Chemistry Hiroshima University, ISSP University of Tokyo) Yoshida Ayaka, Arai Hidemi (理研), Horikawa Yuka (理研), Tokushima Takashi (理研), Takahashi Osamu (広島大院理), Oura Masaki (理研), Gejo Tatsuo, Honma Kenji, Shin, Siik (理研), 第27回化学反応討論会 (東京、2011)
- I -7 "Rydberg-valence mixing and interchannel coupling in resonant oxygen 1s inelastic x-ray scattering of O<sub>2</sub>", Victor Kimberg (分子研), Tatsuo Gejo, Masaki Oura (理研), Takashi Tokushima (理研), Yuka Horikawa (理研), Hidemi Arai (理研), Shik Shin (理

- 研) , and Nobuhiro Kosugi (分子研) , *Phys. Rev. A* 85, 032503 (2012).
- II-1 "Time-sliced velocity imaging study of reaction  $Y + O_2 \rightarrow YO + O$ ",  
Kenji Honma and Yoshiteru Matsumoto,  
*Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 8236-8244 (2011).
- II-2 "Reaction dynamics of gas-phase transition metal atoms",  
Kenji Honma, 第27回化学反応討論会 (東京、2011)
- II-3 "画像観測法による気相遷移金属原子の反応ダイナミクスの解明",  
本間健二・松本剛昭、分子科学討論会 (札幌、2011)
- II-4 "Time-sliced ion-velocity imaging study of the reactions of gas-phase transition metal atoms",  
Kenji Honma and Yoshiteru Matsumoto, XXIV International Symposium on Molecular Beams, (Bordeaux, 2011)
- II-5 本間健二、「原子分子物理学ハンドブック」第3章 3-7「化学反応」、朝倉書店、2011年.
- III-1 "Hydrogen bonded structures for self-aggregates of 2,5-dimethylpyrrole and its binary clusters with pyrrole studied by IR cavity ringdown spectroscopy",  
Yoshiteru Matsumoto and Kenji Honma,  
*Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 13962-13971 (2011).
- III-2 "Solvated structures of pyrrole-acetonitrile binary clusters studied by infrared cavity ringdown spectroscopy",  
Iwamoto Jun-ichi, Matsumoto Yoshiteru, Honma Kenji, 第27回化学反応討論会 (東京, 2011)
- III-3 "ピロール類分子の自己集合体及び二成分クラスターにおける NH- $\pi$ 型水素結合",  
松本剛昭・本間健二、分子科学討論会 (札幌、2011)
- III-4 "赤外吸収分光によるピロール - アセトニトリルクラスターの溶媒和構造の研究",  
岩本純一・松本剛昭・本間健二、分子科学討論会 (札幌、2011)
- III-5 "Intermolecular structures in self-aggregate and solvated clusters of pyrrole studied by infrared cavity ringdown spectroscopy",  
Yoshiteru Matsumoto, 14th Asian Chemical Congress 2011(Bangkok, 2011).
- III-6 "Contribution of the p electrons to hydrogen bonds: IR cavity ringdown spectroscopy of jet-cooled molecular clusters",  
Yoshiteru Matsumoto, XIX. International Conference on "Horizons in Hydrogen Bond Research" (Goettingen, 2011).
- III-7 "Contribution of electrons to hydrogen bonds: Infrared cavity ringdown spectroscopy of Pyrrole containing clusters",

Yoshiteru Matsumoto, Jun-ichi Iwamoto, and Kenji Honma, The 9th Discussion Meeting on Structure and Dynamics of Molecules and Clusters (Bengaluru, 2012).

III-8 "ピロール類分子の自己集合体及び二成分クラスターにおける NH- $\pi$  型水素結合構造"、松本剛昭・本間健二、第 11 回分子分光研究会 (広島、2011).

## 大学院理学研究科

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

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