

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 "Fluorescence decay processes following resonant 2p photoexcitation of Ar atoms and clusters studied using a time-resolved fluorescence and photoion coincidence technique",
T. Gejo, T. Ikegami, K. Honma, J.R. Harries(JAEA) and Y. Tamenori(JASRI),
J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 46 075102 (2013).
- I -2 "The electronic structure of carbonate and bicarbonate ions in aqueous solution studied by soft X-ray emission spectroscopy",
Y. Horikawa, A. Yoshida, H. Arai(理研), T. Tokushima(理研), O. Takahashi(広島大), T. Gejo,
and S. Shin(理研),
J. Mol. Liq. **189**, 9 (2014).
- I -3 "Dynamics of oxygen Rydberg atom generation following O 1s inner-shell excitation of H₂O",
T. Gejo, T. Ikegami, K. Honma, O. Takahashi(広島大), E. Shigemasa(分子研), Y. Hikosaka(新潟大),
and Y. Tamenori(JASRI),
J. Chem. Phys. 140, 214310 (2014).
- I -4 "Development of a novel pulsed nozzle for probing large molecules in vacuum chamber",
Takahiro Tajiri, Kana Sakamoto, Tatsuo Gejo, Kenji Honma,
29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Sendai, 2013).
- I -5 "三原子分子での内殻励起リユードベリー電子のダイナミクス",
下條竜夫・池上剛士・本間健二・繁政英治(分子研)・彦坂泰正(新潟大)・為則雄祐(JASRI),
分子科学会(京都, 2013).
- I -6 "超音波霧化装置を用いた新規パルスノズルの開発",
田尻貴大・坂本佳奈・下條竜夫・本間健二,
分子科学会(京都, 2013).
- I -7 "三原子分子での内殻励起リユードベリー電子のダイナミクス",
下條竜夫・池上剛士・本間健二・繁政英治(分子研)・彦坂泰正(新潟大)・為則雄祐(JASRI),
原子衝突学会(和光, 2013).
- I -8 "PEPIPICO 法による炭酸分子の軟X線吸収スペクトル測定",
下條竜夫・森田朝陽・本間健二・為則雄祐(JASRI),
放射光学会年会(広島, 2014).
- I -9 "超音波霧化装置の放射光への応用",
下條竜夫
軟X線光化学研究会(兵庫, 2014).
- II -1 "Laser initiated reactions in N₂O clusters studied by time-sliced ion velocity imaging technique",
Kenji Honma,

J. Chem. Phys. **139**, 044307 (9 pages) (2013).

- II -2 "Reaction dynamics of $\text{Al} + \text{O}_2 \rightarrow \text{AlO} + \text{O}$ studied by the time-sliced ion-velocity mapping technique",
Kazuki Miyashita and Kenji Honma,
29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Sendai, 2013).
- II -3 "Intracluster reaction dynamics studied by velocity map imaging technique; NO formation from N_2O clusters",
Kenji Honma,
29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Sendai, 2013).
- II -4 "クラスター内反応ダイナミクスの解明: N_2O クラスターから生成する NO の画像観測",
本間健二
第7回分子科学討論会(京都, 2013年).
- III -1 "Solvated structures of pyrrole-acetonitrile binary clusters studied by infrared cavity ringdown spectroscopy",
Jun-ichi Iwamoto, Yoshiteru Matsumoto, and Kenji Honma,
Chem. Phys. **419**, 184-192 (2013).
- III -2 "Cyclic structure of pyrrole - acetone binary clusters: Comparative study of the N-H...O=C hydrogen bond",
Yoshiteru Matsumoto, Jun-ichi Iwamoto, and Kenji Honma,
Chem. Phys. Lett. **578**, 43-48 (2013).
- III -3 "ピロール-ジエチルケトン二成分クラスターの N-H...O=C 水素結合における異性化効果",
松本剛昭・石川達也・本間健二
第7回分子科学討論会(京都, 2013).
- III -4 "赤外分光によるジメチルピロールケトン類分子二成分クラスターの N-H...O=C 水素結合構造の研究",
亀山裕太・村上直・松本剛昭・本間健二
第7回分子科学討論会(京都, 2013).
- III -5 "三次元受容体による π 水素結合構造の解明: ピロール二成分クラスターの赤外分光",
村上直・松本剛昭・本間健二
第7回分子科学討論会(京都, 2013).
- III -6 "Extraordinary H-bonded structure formed by 3-dimensional acceptor in jet-cooled molecular clusters",
Yoshiteru Matsumoto, Sunao Mukarami, and Kenji Honma,
XX International Conference on "Horizons in Hydrogen Bond Research", (Antwerp, Belgium, 2013).
- III -7 "IR spectroscopy of the hydrogen-bonded clusters by 3-dimensional acceptor in neutral and cationic states",
Yoshiteru Matsumoto,

Core-to-core International Symposium on Ionization Induced Switching (Manchester, UK, 2013).

III-8 "IR spectroscopy of pyrrole binary clusters: π hydrogen-bonded by 3-dimensional acceptor",

Sunao Murakami, Yoshiteru Matsumoto, Kenji Honma,
29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (Sendai, 2013).

III-9 "Isomerization effect on NH-OC hydrogen-bonded structures of pyrrole-pentanone binary clusters",

Y. Matsumoto, T. Ishikawa, Y. Kameyama, and K. Honma,
29th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (Sendai, 2013).

大学院理学研究科

博士前期課程

田尻 貴大	超音波霧化装置を用いた新規ノズルの開発
村上 直	赤外分光によるピロール二成分クラスターの三次元受容体水素結合構造の研究
宮下 一紀	交差分子線-画像観測法による反応ダイナミクスの解明
亀山 裕太	赤外吸収分光法による NH-O=C 水素結合クラスターの構造解明

科学研究費補助金等

- 1 科学研究費補助金 (平成 24 年度~26 年度) 基盤研究 B 課題番号 24350011
研究課題 エレクトロスプレーレーザー誘起蛍光法による孤立状態イオンのダイナミクス観測
研究代表者 本間健二
- 2 学術研究助成基金助成金 (平成 24 年度~25 年度) 挑戦的萌芽研究 課題番号 24655019
研究課題 気相分子の円二色性観測を目指した蝶タイ型キャビティリングダウン分光装置の開発
研究代表者 松本剛昭
- 3 住友財団基礎科学研究助成 (平成 25 年度) 助成番号 140702
研究課題 希薄気相分子の円偏光二色性観測のための蝶タイ型キャビティ増強吸収分光装置の開発
研究代表者 松本剛昭