

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 "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 -2 "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 -3 "The observation of Doppler profile of photoelectrons emitted from Rydberg oxygen atom following O 1s inner-shell excitation of CO₂",
K. Myojin, T. Gejo, T. Tajiri, K. Honma, H. Iwayama(分子研), and E. Shigemasa(分子研),
30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Himeji, 2014)
- I -4 "Application of ultrasonic spray to XAFS and PES measurement",
T. Gejo, T. Tajiri, K. Maekawa, K. Myojin, K. Honma, and Y. Tamenori(JASRI),
30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Himeji, 2014)
- I -5 "CO₂ の O1s 内殻励起時におけるリユードベリ酸素原子より放出される光電子のドップラープロファイルの観測",
明神 克・下條竜夫・田尻貴大・本間健二・岩山洋士(分子研)・繁政英治(分子研),
第 8 回分子科学討論会(東広島, 2014)
- II -1 "Reaction dynamics of Al + O₂ → AlO + O studied by a crossed-beam velocity map imaging technique: Vib-rotational state selected angular-kinetic energy distribution.", Kenji Honma, Kazuki Miyashita, and Yoshiteru Matsumoto, *J. Chem. Phys.* **140**, 214304(8 pages) (2014)
- II -2 "Intracluster reaction dynamics studied by velocity map imaging technique: NO formation from N₂O clusters ", Kenji Honma.
The 8th Symposium on gas phase chemical dynamics and laser spectroscopy, (Seoul, Korea, 2014)
- III -1 "Hydrogen-bonded structures of large acetylene clusters studied by IR cavity ringdown spectroscopy",
Yoshiteru Matsumoto,
The 18th East Asian Workshop on Chemical Dynamics, (Busan, Korea, 2014)
- III -2 "Hydrogen-bonded structures of C₂H₂ large clusters by infrared cavity ringdown spectroscopy",
Ryuto Yoshiura, Yoshiteru Matsumoto, and Kenji Honma,
30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Himeji, 2014)
- III -3 "IR absorption spectroscopy of pyrrole-ethyl methyl ketone binary clusters: Effect of carbon chain length on NH···O=C hydrogen bond",
Yuuta Kameyama, Yoshiteru Matsumoto, and Kenji Honma,
30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (Himeji, 2014)
- III -4 "赤外分光によるアセチレン巨大クラスターの水素結合構造の解明",
吉浦竜斗・松本剛昭・本間健二, 第 8 回分子科学討論会(東広島, 2014)
- III -5 "ピロール-エチルメチルケトン二成分クラスターでの赤外吸収分光: 炭素鎖長が NH···O=C 水素結合に及ぼす影響",
亀山裕太・松本剛昭・本間健二, 第 8 回分子科学討論会(東広島, 2014)

大学院理学研究科

博士前期課程

亀山 裕太：赤外吸収分光法による $\text{NH}\cdot\text{O}=\text{C}$ 水素結合クラスターの構造解明

田中 雄基：交差分子線画像観測法による化学反応ダイナミクスの解明

明神 克：内殻励起状態から放出される光電子のドップラープロファイルの観測

吉浦 竜斗：二次元赤外分光法によるアセチレンクラスターの水素結合構造の研究

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 26 年度～27 年度） 挑戦的萌芽研究 課題番号 26620015
研究課題 気相グリニャール試薬の生成とその構造・反応性の解明
研究代表者 本間健二
- 3 学術研究助成基金助成金（平成 26 年度～28 年度） 基盤研究 C 課題番号 26410022
研究課題 気相分子の可視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法の開発
研究代表者 松本剛昭