

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

Gejo, T.

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

本間健二

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

本間健二

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 下條竜夫・坂野卓也 (兵庫県立大)・小杉 聡・飯澤正登実 (上智大)・玉作賢治・大浦正樹 (理研) : ヨウ素を含んだ分子の 1s 電子内殻励起吸収スペクトルおよびオーグեսペクトル測定、RIKEN Annual Report 2017
- I -2 T. Gejo, M. Oura, T. Tokushima, Y. Horikawa, H. Arai, V. Kimberg, and N. Kosugi, "Resonant inelastic x-ray scattering and photoemission measurement of O₂: Direct evidence for dependence of Rydberg-valence mixing on vibrational states in O 1s → Rydberg states", *J. Chem. Phys.* 147, 044310 (2017)
- I -3 M. N. Piancastelli, K. Jankala, L. Journal, T. Gejo, Y. Kohmura, M. Huttula, M. Simon, and M. Oura, "X-ray versus Auger emission following Xe 1s photoionization", *Phys. Rev. A* 95, 061402(R) (2017)
- I -4 T. Gejo, A. Morita, K. Honma, and Y. Tamenori, "The measurement of photoabsorption spectra of carbonic acid by photoelectron-photoion-photoion coincidence technique", *SPring-8 Section A: Scientific Research Report*, Volume 5 No.2 (2017) DOI : 10.18957/rr.5.2.149
- I -5 下條竜夫・大浦 正樹・永谷 清信・玉作 賢治 : SPring-8における気相分子の硬X線電子分光実験、原子衝突学会、上智大 (四谷)、2017年8月
- I -6 下條竜夫・大浦 正樹・永谷 清信・玉作 賢治 : SPring-8における気相分子の硬X線電子分光実験、分子科学討論会、東北大 (仙台)、2017年9月
- II -1 K. Honma and D. Hirata, "Reaction dynamics of Al + CO₂ → AlO + CO studied by a crossed-beam velocity map imaging technique", *J. Chem. Phys.* 146, 013903(6 pages) (2017)
- II -2 本間健二 : 交差分子線画像観測法による反応ダイナミクスの解明、第 11 回分子科学討論会 (仙台)、2017
- III -1 Y. Matsumoto, R. Yoshiura, and K. Honma, "Identification of crystalline structures in jet-cooled acetylene large clusters studied by two-dimensional correlation infrared spectroscopy", *J. Chem. Phys.* 147, 044302(8 pages) (2017)
- III -2 K. Honma, A. Nagaoka, M. Tsuruoka, and W. Maki, "Optical spectroscopy of isolated gas-phase ions", 33th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (Nagoya), 2017
- III -3 本間健二 : 真空中に単離したイオンの LIF/DF 観測、第 11 回分子科学討論会 (仙台)、2017

III-4 K. Honma, "Optical spectroscopy of isolated gas-phase ions", International Symposium on "Diversity of Chemical Reaction Dynamics" (Himeji), 2017

科学研究費補助金等

1. 兵庫県立大学特別研究助成金(平成 29 年度)
研究課題 教養教育のための新規教育プログラム開発
研究代表者 下條竜夫
2. 学術研究助成基金助成金 (平成 28~30 年度) 基盤研究 C 課題番号 16K05520
研究課題 液体エアロゾルパルス生成法の開発とその電子スペクトル測定
研究代表者 下條竜夫
3. 学術研究助成基金助成金 (平成 29~31 年度) 基盤研究 C 課題番号 17K05759
研究課題 孤立分子イオンのレーザー誘起蛍光観測と溶媒効果
研究代表者 本間健二