

谷村 吉隆 (助教授)

A-1) 専門領域：化学物理理論、非平衡統計力学

A-2) 研究課題：

- a) 多次元分光法による溶液分子の振動モード解析の研究
- b) 熱浴の非線形相互作用が光学過程や電子移動反応過程に及ぼす影響の研究
- c) フラストレーションのある溶媒系での電子移動反応と分子分光

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 溶液の分子間振動を対象とした2次元ラマン、溶液内分子の分子内振動を対象とした2次元赤外の2種類2次元分光法が近年確立し、2次元分光のスペクトル解析理論の必要性がますます高まってきた。2次元分光の発展は、MDや分子液体論の理論的研究も喚起し始めている。2次元分光法は系の微細な違いを鋭敏に捕らえる分光技術であるが、理論の構築は困難であり未知な問題も多い。我々はこれまで系の不均一性、非調和性、モード結合等、構造的なものを中心に研究を行ってきたが、本年度は波束の運動等、動力学的性質を2次元分光で観測する事を中心に研究を行った。具体的には化学結合の切断や、光励起により非平衡状態となった波束の緩和の観測や、トンネル化学反応系、回転運動系の研究を行った。
- b) 化学反応や電子移動反応等の解析には、通常、熱浴と系の相互作用が線形に結合したブラウン運動モデルがよく用いられる。しかし熱浴と系の相互作用は一般には非線形であり、この寄与が電子移動反応率や、分光スペクトル等にどう影響するかは、重要な問題であるのに研究例が少ない。本研究では、熱浴の非線形相互作用を、有色なノイズに対して取り扱える新しいタイプの量子フォッカー・プランク方程式を導出し、それを用いて電子移動反応や赤外吸収スペクトルに及ぼす非線形相互作用の影響を調べた。分光学的な分類では、通常の線形結合はエネルギー緩和、非線形結合は位相緩和に対応しており、非線形相互作用モデルはノイズ揺動が遅い場合に不均一広がり描像を持つ。このような場合について、電子移動反応率におけるマークス・パラボラからのずれ等、興味深い多くの現象が見い出された。
- c) 極性溶媒中の分極分子のようなフラストレートのある系のエネルギー・ランドスケープを、モンテカルロ・シミュレーションを行う事により研究した。モデルとしては荷電粒子と、それを取り囲む配向が内側と外側の2つしかとらない溶媒分子(スピン)を考えた。温度により周りの溶媒分子がどのように相転移するかを、エネルギー分布等を通して調べ、オンサガーによって予想された逆スノー・ボールと呼ばれる現象が、溶媒と荷電粒子の相互作用が小さい場合のみ起こる等、いくつかの新しい知見を得た。平衡的なエネルギー・ランドスケープに加え、動的な振る舞いについても考察した。

B-1) 学術論文

K. OKUMURA, D. M. JONAS and Y. TANIMURA, "Structural information from two-dimensional fifth-order Raman spectroscopy," *Chem. Phys. Lett.* **266**, 237 (2001).

T. KATO and Y. TANIMURA, "Multi-dimensional vibrational spectroscopy measured from different phase-matching conditions," *Chem. Phys. Lett.* **341**, 329 (2001).

Y. SUZUKI and Y. TANIMURA, “Biorthogonal approach for explicitly correlated calculations using the transcorrelated Hamiltonian,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **70**, 1167 (2001).

O. HINO, Y. TANIMURA and S. TEN-NO, “Nonequilibrium initial conditions of a Brownian oscillator system observed by two-dimensional spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **115**, 7865 (2001).

Y. SUZUKI and Y. TANIMURA, “Nonequilibrium initial conditions of a Brownian oscillator system observed by two-dimensional spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **115**, 2267 (2001).

B-3) 総説、著書

谷村吉隆, 「多時間相関関数と2次元分光」, *物性研究* **77**, 25-76 (2001).

B-4) 招待講演

Y. TANIMURA, “Two-dimensional spectroscopy for various systems, initial conditions and phase-matching conditions,” International Conference on “Reaction Dynamics of Manybody Chemical Systems,” 京都, 2001年2月.

Y. TANIMURA, “Dynamics of molecules in condensed phases: possible probe by 2D spectroscopy,” Physics seminar, TRVS, 岡崎, 2001年5月.

B-6) 学会および社会的活動

文部科学省、学術振興会等の役員等

通産省工業技術院研究人材マネジメント研究会諮問委員(1999).

学会誌編集委員

Association of Asia Pacific Physical Bulletin, 編集委員(1994-2000).

Journal of Physical Society of Japan, 編集委員(1998-).

B-7) 他大学での講義、客員

ベルリン自由大学, “Dynamics of molecules in condensed phases: possible probe by 2D spectroscopy,” 2001年3月2日.

グロニンゲン大学, “Path integral for good children,” 2001年3月5日.

マサチューセッツ工科大学, “Dynamics of molecules in condensed phases: possible probe by 2D spectroscopy,” 2001年3月9日.

ホロン大学, “Fokker-Planck approach to nonlinear spectroscopy,” 2001年6月6日.

トロント大学, “Dynamics of molecules in condensed phases: possible probe by 2D spectroscopy,” 2001年6月13日.

名古屋大学人間情報学部, 「散逸系の経路積分」, 2001年7月3-6日.

ロチェスター大学, “Dynamics of molecules in condensed phases: possible probe by 2D spectroscopy,” 2001年12月3日.

マサチューセッツ工科大学, “Two-dimensional spectroscopy of two-dimensional rotator in a dissipative environment,” 2001年12月7日.

ホロン大学, 客員教授, 2001年6月.

京都大学大学院理学研究科化学科, 併任助教授, 1998年4月-.

C) 研究活動の課題と展望

分子系の面白さは、その複雑性にあるといえよう。統計力学的のテーマとしてよく研究されるフラストレーション系は、複雑性の示す新奇な現象のよい例である。水やガラスはフラストレーションを持つ代表的な系であるが、これまでの研究は古典的なものが多い。フラストレーションを持つ系が量子的にどのように振舞うかを調べる事は、量子力学の本質に迫る興味深い問題と思われる。予想であるが、フラストレーションの大きな系では、量子位相がこわれ、振る舞いが古典的になるのではなからうか。量子から古典への変化を、単純性から複雑性の指標として捕らえる事は出来ないであろうか？ もしそのような傾向があるとするなら、これを実験的に特徴づける事は出来ないだろうか？ 今年はそのような研究を手がけようと思っている。