

3-4 電子構造研究系

基礎電子化学研究部門

西 信 之 (教授)

A-1) 専門領域：クラスター化学、電子構造論、物理化学

A-2) 研究課題：

- a) 新規強磁性体・遷移金属アセチリドナノ結晶の開発
- b) 強磁性クラスター化合物 MnC_2 , FeC_2 , NiC_2 の構造と磁性
- c) 遷移金属アセチリド化合物から炭素被覆ナノ金属結晶の生成
- d) 分子クラスターイオンにおける分子間相互作用と電荷移動・エネルギー移動ダイナミクス
- e) 液体中でのクラスター形成による局所構造の発生と“Micro Phase”の生成

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a), b) Mn_{12} 化合物で知られているような単一分子磁石となるサブナノメートル領域の大きさをもつ金属錯体型クラスター化合物は、そのスピン反転ブロック温度 (T_B) が液体ヘリウム温度程度かそれ以下である。このようなユニットを繋ぎ合わせることによって、更に高い T_B を示す系が構築できないかとの模索が進められていた。常温でも極めて長時間スピンを保持する為には、強磁性的に相互作用しあっている金属原子が少なくとも、数万から数十万個 ($10^4 \sim 10^5$ 個) 必要であり、 T_B が 1000 K 以上の粒子でなければ、スピン緩和により情報が消失してしまうからである。スーパークラスターを合成するという方針から、遷移金属原子イオンと2つの直交した電子系を持つ最小の分子系 ($C \equiv C^{2-}$) を交互に (NaCl型に) 集積した金属アセチリド・イオン結晶をナノ粒子として光や熱によって合成することに成功した。この合成がこれまで成功しなかったのは、原料となるカーバイド化合物の純度が通常極めて悪いこととその空気中での急激な反応性によるものと思われる。(特願2004-026797) Mn , Fe , Co , および Ni のアセチリド結晶が全て、強磁性物質であることを実証した。また、これらが 10 nm 程度の大きさになると室温磁石として振る舞い、保持力が 250 Oe 程度とそこそこの性能を示すことも明らかとなった。この内、 MnC_2 及び FeC_2 は水や酸素に対して反応性が高いが、 CoC_2 及び NiC_2 は空気中でも安定であり、水による洗浄が可能であった。高分解能電子顕微鏡及び粒子の中央部の電子エネルギー損失分光スペクトルの観測、そして赤外吸収スペクトル、EXAFS の解析から、配列に乱れを伴う数ナノメートル以下の結晶では構造が立方晶形に近く、10 K 以下の転移点を示した。これに対して、これより大きく成長した結晶では、構造が MgC_2 と同様の正方晶形となり、金属原子間の距離が長くなると同時に異方性が大きくなり、転移温度は一気に室温を超えた。これらの化合物、特に CoC_2 及び NiC_2 はイオン結晶性と共有結合性を同時に有しているためその安定性が高くなったと考えられるが、その伝導性にも興味が高まっている。
- c) これらのアセチリド化合物を溶媒中或いは真空中で 250 °C 以上に加熱すると ($C \equiv C^{2-}$) の還元力が高まり金属陽イオンが還元されて中性原子になると同時に C_2 ラジカルを生じる。金属原子は金属原子同士が結合し、軽い C_2 ラジカル ($\cdot C \equiv C \cdot$) はラジカル重合を示し、2重結合性によって縮合環ネットワークを形成する。 FeC_2 結晶の場合は特に、 α - Fe の $Fe-Fe$ 間距離 (2.866 Å) がグラファイトの C_1-C_4 間距離 (2.842 Å) と殆ど一致するので、鉄結晶界面の鉄原子に直接炭素原子が結合して、垂直にグラファイト面が成長し、3.5 nm の厚さでほぼ水平に変わり、膜成長が止まるこ

とが観測された。これを“Carbon-skinned Fe nanocrystals”と呼んでいる。即ち核の金属結晶部分と皮のグラファイト部分が化学結合によって繋がった、1分子となっているのである。従って、空気中で酸化されず、極めて安定な炭素の皮を持った鉄ナノ結晶が得られたことになる。これは、更に加熱してゆくと核の鉄部分がどんどん大きくなってゆく。しかし、皮の厚さは核の大きさによらず常に3.5 nmである。このようなグラファイト皮膜付鉄微粒子は、塩化鉄と高純度のカルシウムカーバイドから大量に、しかも安価に合成でき、工業的価値も高いと言える。(特願2004-026839)一方、電子ビーム加熱法を利用して、シリコン基板上的アセチリド薄膜にスポット加熱を行うと、サイズの揃った炭素被覆遷移金属ドット列や、ナノワイヤー描画が可能である。このような炭素被覆金属の核部分がランタノイド元素を含む合金系となれば、水素吸蔵や超伝導など興味ある物性が期待できるであろう。

- d) 気相水素結合イオンクラスターの結合様式をイオントラップ赤外光解離分光法及び理論計算法を用いて調べているが、本年は、アニリン陽イオンを主体とし、アニリン同士、アニリン陽イオンの水和クラスター、アニリン陽イオンとフランやフェノールとの π -型及び σ 型の水素結合構造を調べた。
- e) 水溶液中のN,N-ジメチルアセトアミド、或いはヘキサフルオロアセトアミドの会合構造についてX線構造解析、質量分析法、低振動数ラマン分光法、核磁気共鳴吸収法などによって詳細にしらべ、アセトアミド系ではミクロな相分離を示す系と比較的に均一に混合する両方の様式が存在することが解った。

B-1) 学術論文

N. NISHI, K. KOSUGI, K. HINO, T. YOKOYAMA and E. OKUNISHI, “Formation and Magnetic Characteristics of Cobalt-Carbon Nanocluster Magnets Embedded in Amorphous Carbon Matrices,” *Chem. Phys. Lett.* **369**, 198–203 (2003).

N. NISHI, K. KOSUGI, K. HINO and T. YOKOYAMA, “Matrix Embedded Cobalt-Carbon Nano-Cluster Magnets: Behavior as Room Temperature Single Domain Magnets,” *Eur. J. Phys. D* **24**, 97–100 (2003).

T. MICHI, K. OHASHI, Y. INOKUCHI, N. NISHI and H. SEKIYA, “Infrared Spectra and Structures of $(\text{CH}_3\text{NH}_2)_n\text{H}^+(n = 1-4)$,” *Chem. Phys. Lett.* **371**, 111–117 (2003).

Y. INOKUCHI, K. OHASHI, Y. HONKAWA, H. SEKIYA and N. NISHI, “Fermi Resonance Interaction in Hetero-Dimer and Trimer Ions Containing Aniline,” *Chem. Phys. Lett.* **373**, 568–574 (2003).

Y. INOKUCHI, K. OHASHI, Y. HONKAWA, H. SEKIYA and N. NISHI, “Infrared Photodissociation Spectroscopy of $[\text{Aniline}-(\text{Water})_n]^+(n = 1-8)$: Structural Change from Branched and Cyclic to Proton-Transferred Forms,” *J. Phys. Chem.* **107**, 4230–4237 (2003).

T. TAKAMUKU, D. MATSUO, M. TABATA, T. YAMAGUCHI and N. NISHI, “Structure of Aqueous Mixtures of N,N-Dimethylacetamide Studied by Infrared Spectroscopy, X-Ray Diffraction, and Mass Spectrometry,” *J. Phys. Chem. A* **107**, 6070–6078 (2003).

Y. HONKAWA, Y. INOKUCHI, K. OHASHI, N. NISHI and H. SEKIYA, “Infrared Spectra and Structures of Aniline⁺-Furan and Aniline⁺-Phenol. Preference between π -Type and σ -Type Hydrogen-Bonded Structures,” *Chem. Phys. Lett.* **376**, 244–250 (2003).

K. YOSHIDA, T. YAMAGUCHI, T. ADACHI, T. OTOMO, D. MATSUO, T. TAKAMUKU and N. NISHI, “Structure and Dynamics of Hexafluoroisopropanol-Water Mixtures by X-Ray Diffraction, Small-Angle Neutron Scattering, NMR Spectroscopy, and Mass Spectroscopy,” *J. Chem. Phys.* **119**, 6132–6142 (2003).

西 信之,「金属-分子ハイブリッド・ナノクラスター磁石」, *ナノ学会会報* **1**, 73–80 (2003).

B-3) 総説、著書

西 信之,「溶液中での磁性クラスターの合成」,先端化学シリーズIV「理論・計算化学、クラスター、スペースケミストリー」,丸善,第2章6節(2003).

B-4) 招待講演

西 信之,“Magnetic properties and HRTEM observation of air stable carbon-skinned Fe nanocrystals,” International workshop on “Physics on Nanoscale Magnets,” Hotel Kyoto Garden Palace, December 2003.

西 信之,“Air-Stable Iron Nano-particles with graphitic-skin 3.5nm-thick,” Japan-Taiwan Joint Seminar Toward Formation New Network Between Physics and Chemistry on the Frontiers of Material Sciences, Taipei (Taiwan), December 2003.

西 信之,「原子 - 分子ハイブリッドナノクラスター磁石の合成とそのユニークな振る舞い」,九州大学 ナノ物質合成・解析支援 講習研究会,2002年6月.

B-5) 特許

西 信之,「質量分析用インターフェース、質量分析計および質量分析方法」,特許番号:3413491,米国特許,特許番号:Pat. 6,620,624.

B-6) 受賞、表彰

西 信之,井上学位賞(1991).

西 信之,日本化学会学位賞(1997).

B-7) 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

日本学術振興会専門委員.

B-8) 他大学での講義、客員

東京工業大学,特別講義「クラスターでナノ磁石を作る」,平成15年度前期.

東京大学物性研究所物質設計評価施設運営委員.

総合研究大学院大学数物科学研究科副研究科長・評議員.

C) 研究活動の課題と展望

これまで,その存在が不明であった遷移金属アセチリド化合物の合成法を確立したが,これは,様々な点でユニークな振る舞いを示す.特徴的な性質として,高压溶液中や真空中で250℃以上の加熱によって,グラファイトや無定型縮合環炭素の外皮と金属コアに分離することが明らかになったが,溶液中2種の金属,特にランタノイド金属の塩化物を遷移金属塩化物と混合して溶解させた溶液からは,遷移金属の中にランタノイド金属が合金状に分散して入って行くことが明らかになった.これは,高压溶液中でのアセチリドサブナノ結晶同士がまず融合し, C_2^{2-} イオンによる還元によって金属原子が集合化し,この過程で,合金ができてくると考えられる.電気陰性度の小さいランタノイド元素は,その1.5-1.6倍の電気陰性度をもつFe, Co, Niなどの中に原子状に分散し,ランタノイドから遷移金属への電子移動によって異金属間の結合が安定化され,ランタ

ノイド同士の集合が阻止されると考えられる。本手法によるナノ領域での合金化は 250 程度で起こり、粒子界面に炭素皮革が存在していることなどから、バルクで高温で生成する合金とは異なった構造と性質を有する化合物が生成する可能性が高い。このような新しい系の開発と構造決定および物性探索を、分析電子顕微鏡とX線構造解析等を駆使して行って行きたい。又、理論的なアプローチもまず共同研究を通して行って行きたい。ナノの世界に特有な一つの物質系の開発が可能となるであろう。これは興味ある基礎研究であると同時に、また、様々な応用とも深く関わっている。

電子状態動力学研究部門

藤 井 正 明 (教授)

A-1) 専門領域：物理化学、分子分光学

A-2) 研究課題：

- 赤外 - 紫外二重共鳴分光法による分子・クラスターの構造とその動的挙動
- イオン化検出赤外分光法による孤立分子・クラスターの高振動状態の研究
- 2波長分光法を用いる超解像レーザー蛍光顕微鏡の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- 溶質・溶媒分子で構成される溶媒和クラスターは凝集相のミクロなモデルであり、その構造と反応性は凝集相での反応・緩和や溶媒効果を分子論的に理解する上で理想的な試料系である。同時に特に水素結合で形成される溶媒和クラスターは溶液と同じく光励起プロトン移動反応をを起こすが、反応活性にはクラスターサイズ依存性が有ることが知られている。しかし、このような反応活性なクラスターの構造は S_0 , S_1 共に確定しておらず、構造と反応性の関係は明瞭ではない。そこで本研究では赤外 - 紫外二重共鳴分光法の一つであるIR Dip分光法を主に水素結合で形成される反応活性な溶媒和クラスターに適用し、基底状態 S_0 、電子励起状態 S_1 、及びイオン化状態での赤外スペクトルの観測を行い、振動スペクトル解析、及びab initio MO計算(東京都立大学・橋本健朗助教授との共同研究)との比較からクラスターの構造を明らかにしてきた。

独自に開発したナノ秒・ピコ秒赤外 - 紫外二重共鳴分光システムによりフェノール反応活性クラスター、*m*-アザインドールクラスターの時間分解赤外分光に成功した。フェノール・ $(\text{NH}_3)_3$ クラスターのOH基ラジカル開裂反応については、 $\pi\sigma^*$ 状態と $\pi\pi^*$ 状態のポテンシャル曲面交差がこの反応のチャンネルになっているという理論モデル、及び反応に於けるクラスターの構造変化との対応、検証を行なった。さらに反応を起こすクラスターの異性体の有無及び吸収スペクトルに対応する情報を得るため、ホール・バーニング分光を行なった。この試料の場合、励起と生成物検出に2つのレーザー光が必要とされるため、ホール・バーン側合わせて4台のレーザーを同時に用いる4色ホールバーン分光法を開発して実行した。この結果、フェノール・アンモニア1:3クラスターには異性体は存在しないが、1:4クラスターには構造の異なる3種類の異性体が共存していることを明らかにした。それぞれの構造を決定するIR Dip分光は現在進行中である。これにより、従来の1:3クラスターは問題ないが、1:4クラスターに関しては異性体の共存を考慮して反応メカニズムの解析を行なわなくてはならないことを明らかにした。

- イオン化検出赤外分光法は独自に開発した高感度赤外分光法であり波長可変赤外レーザーで生じる振動励起分子を紫外レーザーで選択的にイオン化して検出する二重共鳴分光法である。赤外遷移をイオン検出すること及びバックグラウンドフリーであることから極めて高い検出感度を有し、試料濃度が希薄な超音速ジェット中で吸収係数が極めて小さな高次倍音を明瞭に観測できる。アミノフェノールの倍音分光に関して、Henrik Kjaergaard博士(University of Otago, NEW ZEALAND)と理論面に関して共同研究を継続し、異性体毎の分子振動の差違が高次倍音に於て振動数の差が拡大し識別が容易になること、及び理論との対応により異性体の分子種が一義的に帰属できることを明らかにした。これにより、倍音分光が異性体の識別手段として優れた物であることを示すことに成功した。

このイオン化検出赤外分光法に波長可変ピコ秒レーザーを組み合わせ、振動励起準位からの緩和過程を実時間で測定可

能なピコ秒時間分解イオン化検出赤外分光法の開発を昨年度より継続し、7-アザインドール2量体のNH伸縮振動準位から分子間振動を含むdoor way状態へのIVRが、CH伸縮に比べて高速に起きること、IVRが段階的に起きることを実時間測定により明瞭に示すことに成功している。さらに溶液中での振動冷却を検出する過渡蛍光検出赤外分光法を開発し、溶液中の7-アザインドール2量体の時間分解赤外スペクトルの測定に成功、振動冷却時間を実時間で測定することに成功した。両者の比較を含むIVRと振動冷却の総合的解釈を検討中である。

- c) 2台のレーザーを用いる2波長蛍光ディップ分光法は回折限界を凌駕する空間分解能(超解像)に展開できる。即ち、1色のレーザーを集光した際に出来る像は回折限界で制限されているが、2つのレーザー光の重なり部分を消光させれば回折限界以下のサイズに蛍光像は収縮する。この状態で試料を走査すれば回折限界を突破した超解像空間分解能が得られる。このアイデアをミレニアムプロジェクト(革新的技術開発研究)として推進して顕微分光実験装置を製作し、ナノスケールで回折限界の3倍の超解像分解能を達成し、この2波長分光法に基づくファーフィールド超解像顕微鏡法の実証に成功した。

B-1) 学術論文

M. SAKAI, T. UEDA, T. YAMANAKA and M. FUJII, "Construction of a Picosecond Time-Resolved IR Dip Spectrometer for Hydrogen-Bond Clusters," *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **76**, 509–514 (2003).

T. WATANABE, Y. IKETAKI, T. OMATSU, K. YAMAMOTO, S. ISHIUCHI, M. SAKAI and M. FUJII, "Two-Color Far-Field Super-Resolution Microscope Using a Doughnut Beam," *Chem. Phys. Lett.* **371**, 634–639 (2003).

Y. IKETAKI, T. WATANABE, S. ISHIUCHI, M. SAKAI, T. OMATSU, K. YAMAMOTO, M. FUJII and T. WATANABE, "Investigation of the Fluorescence Depletion Process in Condensed Phase," *Chem. Phys. Lett.* **372**, 773–778 (2003).

M. SHINOZAKI, M. SAKAI, S. YAMAGUCHI, T. FUJIOKA and M. FUJII, " S_1 – S_0 Electronic Spectrum of Jet-Cooled *m*-Aminophenol," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **5**, 5044–5050 (2003).

K. DAIGOKU, S. ISHIUCHI, M. SAKAI, M. FUJII and K. HASHIMOTO, "Photochemistry of Phenol-(NH₃)_n Clusters: Solvent Effect on a Radical Cleavage of an OH Bond in an Electronically Excited State and Intracuster Reactions in the Product NH₄(NH₃)_{n-1} ($n < 5$)," *J. Chem. Phys.* **119**, 5149–5157 (2003).

Y. IKETAKI, T. WATANABE, S. ISHIUCHI, M. SAKAI, T. OMATSU, K. YAMAMOTO and M. FUJII, "Predicted Spatial Resolution of Super-Resolving Fluorescence Microscopy Using Two-Color Fluorescence Dip Spectroscopy," *Appl. Spectrosc.* **57**, 1312–1316 (2003).

B-4) 招待講演

藤井正明, 「2波長ピコ秒時間分解赤外分光法: 緩和ダイナミクスからナノ空間へ」, 日本化学会第83春季年会特別企画「分子系ナノダイナミクスの研究展開: 次世代ナノサイエンス・ナノテクへむけて」, 早稲田大学, 東京, 2003年3月.

藤井正明, 「2波長ピコ秒時間分解赤外分光法: 緩和ダイナミクスからナノ空間へ」, 化学反応討論会サテライト研究会「ナノ空間と励起状態の反応化学」, 東北大学理学部, 仙台, 2003年6月.

藤井正明, 「気相・溶液両面から見た7-アザインドール2量体の振動緩和」, 分子研研究会「単純系から複雑系にわたる凝集系振動緩和ダイナミクス研究の現状と展望」, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2003年6月.

藤井正明, 「光励起 共鳴多光子イオン化法を中心として」, 日本真空協会6月研究例会「気体分子のソフトイオン化」, 機械振興会館, 東京, 2003年7月.

酒井 誠、藤井正明、「溶液・気相の両面から見た7-アザインドールダイマーの振動緩和過程」, 分子研研究会「生体関連分子の水素結合とダイナミクスの新展開」, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2003年7月.

M. FUJII, "Picosecond time-resolved infrared spectra of photochemically reactive clusters," XXIst International Conference on Photochemistry, Nara-ken New Public Hall, Nara (Japan), 2003年7月.

M. FUJII, "Hydrogen Atom Transfer in Molecular System," New Frontiers in Chemical Dynamics and Femtochemistry—An international symposium to mark the opening of the York Centre for Laser Spectroscopy and Photochemistry (YCLS), The University of York, York (U. K.), 2003年10月.

M. FUJII, "Picosecond time-resolved IR spectroscopy of solvated cluster in gas and solution," Japan-Korea Joint Seminar on Frontiers of Advanced Molecular Science: Spectroscopy of Ultra-Resolution in Time, Space and Energy, RIKEN, Wako (Japan), 2003年11月.

M. FUJII, "Picosecond time-resolved IR spectroscopy on 7-azaindole dimer-Bridge from cluster to solution," International Symposium on Functional Clusters and Cluster-Based Nano-Materials, Okazaki Conference Center, Okazaki, 2003年12月.

B-6) 受賞、表彰

日本化学会進歩賞 (1992).

山下太郎学術奨励賞 (1992).

分子科学奨励森野基金 (1996).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

分子科学研究会・事務局.

B-8) 他大学での講義、客員

産業技術総合研究所, 客員研究員.

科学技術動向センター, 専門調査員.

C) 研究活動の課題と展望

フェノール・アンモニアクラスタークラスタのナノ秒・ピコ秒UV-IR-UV分光により明らかとなった酸性OH基の中性ラジカル開裂は、理論面からも強力な推進があり、他のOH、NH基に対しても一般的に起こりうる可能性が示されている。OH、NH基が生体関連分子始め普遍的に存在する重要な官能基であるため、この新たな光化学反応チャンネルの一般性を検証することが極めて重要である。一方、このピコ秒時間分解赤外分光法の一環として過渡蛍光検出赤外分光法の開発に成功し、溶液内のダイマーと気相ダイマーの直接比較が可能となった。これは溶液での振動緩和を理解する上で新たな方法論と成り得るものであり、異動後も強く推進している。また、2波長蛍光Dip分光法と光学顕微鏡法を融合した2波長超解像顕微鏡も従来の方法の限界を突破する独創性の高い方法であり、一切の機械的プローブ無しに3次元ナノ断層像の画像化が可能な唯一の方法と自負している。この方法の顕微分光への展開も重要であり、大学院生が参加してくることを楽しみにしている。常に独創性を念頭に置き、分光とダイナミクスの独自の領域開拓を目指して邁進する。

大 森 賢 治 (教授)*)

A-1) 専門領域：原子分子光科学、量子光学

A-2) 研究課題：

- a) アト秒精度のコヒーレント制御法の開発
- b) 量子論の検証実験
- c) コヒーレント分子メモリーの開発
- d) 分子ベースの量子情報科学
- e) 強光子場非線形過程の制御
- f) 高精度の化学反応制御

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) コヒーレント制御は、物質の波動関数の量子位相を操作する技術である。その応用は、量子コンピューティングや結合選択的な化学反応制御といった新たなテクノロジーの開発に密接に結び付いている。量子位相を操作するための有望な戦略の一つとして、物質の波動関数に波としての光の位相を転写する方法が考えられる。例えば、二原子分子に核の振動周期よりも短い光パルス照射すると、「波束」と呼ばれる局在波が結合軸上を行ったり来たりするような状態を造り出す事ができる。この波束は複数の振動固有状態の重ね合わせであり、結合の伸び縮みに対応した古典的な運動をする。波束の発生に際して、数フェムト秒からアト秒のサイクルで振動する光電場の位相は波束の量子位相として分子内に保存されるので、光学サイクルを凌駕する精度で光の位相を操作すれば波束の量子位相を操作することができる。我々は最近この考えに基づき、独自に開発したアト秒位相変調器 (APM) を用いて二つのフェムト秒レーザーパルス間の相対位相をサブ10アト秒の精度で操作するとともに、このパルス対によって分子内に発生した二つの波束の相対位相を同様の精度で操作する事に成功した。
- b) APMを用いて、分子内の2個の波束の量子干渉を100%のコントラストで完全制御し、重粒子の純粋な波動性を抽出する事に成功した。また、この高精度量子干渉を量子論的な重ね合わせ状態の検証に応用した。
- c) 光子場の位相情報を分子波束の量子位相として転写する分子メモリーの開発を行なった。ここでは、フェムト秒光パルス対によって分子内に生成した2個の波束間の量子位相差をサブ10アト秒の精度で操作し、これらの干渉の結果生成した第3の波束を構成する各振動固有状態のポピュレーションを観測することによって、それぞれの光パルスの位相情報が高精度で分子内に転写されていることを証明することができた。また、フェムト秒光パルス対の時間間隔をアト秒精度で変化させることによって波束内の固有状態のポピュレーションの比率を任意に操作できることを実証した。
- d) 分子メモリーを量子コンピューターに発展させるにあたって、c)のデコヒーレンス後のポピュレーション測定をコヒーレンスの直接測定に発展させる事が望ましい。そこで最近我々は波束干渉の実時間観測を開始した。APMによってヨウ素分子内に誘起される波束の発生から建設的あるいは破壊的干渉に至る一連の事象を、別のフェムト秒パルスを用いて実時間観測することに成功した。これによって、干渉後にも分子内にコヒーレンスが持続しており、ポピュレーション情報だけでなく、位相情報を操作して保存することが可能であることを実証した。振動固有状態の組を量子ビットとして用いる一分子量子コンピューターの可能性が示された。

- e) 強光子場中の原子分子の高次非線形過程を利用した高性能アト秒光パルス源を開発することを目的に、高強度位相変調パルス発生装置の製作とこれを光源とする希ガスビームの光電子分光測定装置の開発を行なった。
- f) サブ10アト秒の量子位相精度を達成したことによって電子励起状態を介した反応制御が可能になった。このような反応制御の第一段階として、 β 原子分子での高精度波束干渉実験の準備を進めている。多原子分子は複数の振動モードをもっているので、 ρ で開発した位相変調パルス発生装置とAPMを組み合わせたシンプルな波束干渉を用いて解離の分岐比を制御できる可能性がある。

B-1) 学術論文

K. OHMORI, Y. SATO, E. E. NIKITIN and S. A. RICE, "High Precision Molecular Wave-Packet Interferometry with Hg-Ar Dimers," *Phys. Rev. Lett.* **91**, 243003 (2003).

E. I. DASHEVSKAYA, E. E. NIKITIN, K. OHMORI, M. OKUNISHI, I. OREF and Y. SATO, "Energy Dependence of the Intramultiplet Mixing Cross Section in Hg-N₂ Collisions: Conical Intersection Mechanism, Indication at Tunneling and Interference," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **5**, 1198-1204 (2003).

B-4) 招待講演

K. OHMORI, "Sub-10 Attosecond Manipulation of Quantum Phases," XX International Symposium on Molecular Beams, Lisbon (Portugal), June 2003.

K. OHMORI, "Sub-10 Attosecond Manipulation of Quantum Phases," XVIII International Conference on Molecular Energy Transfer, San Lorenzo de El Escorial (Spain), June 2003.

K. OHMORI, "Single Molecule Quantum Register," International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science 2: propagation and interaction, Quebec (Canada), September 2003.

K. OHMORI, "Molecular wave-packet interferometry with sub-10 attoseconds quantum phase manipulation," Japan-Korea Joint Seminar on Frontiers of Advanced Molecular Science: Spectroscopy of Ultra-Resolution in Time, Space and Energy, Wako (Japan), November 2003.

K. OHMORI, "Sub-10 Attosecond Manipulation of Quantum Phases," The 5th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics: CLEO/Pacific Rim 2003, Taipei (Taiwan), December 2003.

大森賢治, 「単一分子量子レジスター」, 特定領域研究「強レーザー光子場における分子制御」研究会『光子場デザインと分子制御』, 柏, 2003年1月.

大森賢治, 「光・電子波束制御エンジニアリング」, 東北大学多元物質科学研究所シンポジウム「特殊条件下の分子分光とダイナミクス 反応制御を目指して」, 仙台, 2003年10月.

大森賢治, 「サブ10アト秒精度の波束干渉計を用いた一分子メモリー」, 物性研短期研究会「短波長光などのコヒーレンスの生成・消滅に関する新しい知見と構想」, 柏, 2003年11月.

B-6) 受賞、表彰

大森賢治, 東北大学教育研究総合奨励金 (1995).

大森賢治, 光科学技術研究振興財団研究表彰 (1998).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

分子科学研究会委員 (2002-)

学会の組織委員

International Conference on Spectral Line Shapes 国際プログラム委員 (1998-)

21st International Conference on the Physics of Electronic and Atomic Collisions 準備委員, 組織委員 (1999)

The 5th East Asian Workshop on Chemical Reactions 組織委員長 (2001)

分子構造総合討論会実行委員 (1995)

第19回化学反応討論会実行委員 (2003)

C) 研究活動の課題と展望

今後我々の研究グループでは APMを高感度のデコヒーレンス検出器として量子論の基礎的な検証に用いると共に、より自由度の高い量子位相操作技術への発展を試みる。そしてそれらを希薄な分子集団や凝縮相、固体、表面に適用することによって、「アト秒量子エンジニアリング」と呼ばれる新しい領域の開拓を目指している。当面は以下の4テーマの実現に向けて研究を行なっていきたい。

デコヒーレンスの検証と抑制: デコヒーレンスは、物質の波としての性質が失われて行く過程である。量子論における観測問題と密接なつながりをもつ重要なテーマであるとともに、テクノロジーの観点からは、反応制御や量子情報処理のエラーを引き起こす主要な要因である。その本質に迫り、制御法を探索する。

高精度の化学反応制御: サブ10アト秒の量子位相精度は紫外光を用いたコヒーレント制御を可能にする。これによって分子の電子励起状態を利用した高精度の反応制御が可能になるであろう。

アト秒軟X線パルス源の開発と応用: 強光子場中の高次非線形過程をコヒーレント制御し、効率の良いアト秒軟X線パルス源の開発を目指す。これをアト秒時間分解分光に用いる。

分子ベースの量子情報科学の開拓: 高精度の量子位相操作によって分子内の複数の自由度を用いる任意のユニタリ変換とそれに基づく高度な量子情報処理の実現を目指す。

これらの研究の途上で量子論を深く理解するための何らかのヒントが得られるかもしれない。その理解はテクノロジーの改革を促すだろう。我々が考えている「アト秒量子エンジニアリング」とは、量子論の検証とそのテクノロジー応用の両方を含む概念である。

* 2003年9月1日着任

鈴木俊法(助教授)*)

A-1) 専門領域：化学反応動力学

A-2) 研究課題：

- a) 超高速光電子分光による化学反応の実時間追跡
- b) 化学反応の立体動力学
- c) 分子線散乱法による二分子反応の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) フェムト秒光電子画像観測法の開発。光励起ダイナミクスの新しい研究展開。
- b) 偏光光イオン化法による電子軌道配向の検出・非断熱遷移の観測。ベクトル関連の理論解析手法の構築。
- c) 交差分子線画像観測法の開発。状態選別微分散乱断面積の測定。

B-6) 受賞、表彰

鈴木俊法, 分子科学奨励森野基金 (1993年度).

鈴木俊法, 日本化学会進歩賞 (1994年度).

鈴木俊法, 日本分光学会論文賞 (1998年度).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

第15期分子科学研究会副委員長 (1999-2002).

第16期分子科学研究会副委員長 (2002-2004).

学会の組織委員等

第1回日本台湾分子動力学学会議主催者 (1997).

分子構造総合討論会プログラム委員 (1997).

第1回東アジア分子動力学学会議主催者 (1998).

第15回化学反応討論会組織委員 (1999).

分子研研究会「分子及び分子小集団の超高速反応ダイナミクスに関する研究会」主催者 (1999).

国際シンポジウム, The International Symposium on Photo-Dynamics and Reaction Dynamics of Molecules, プログラム委員 (1999).

分子研研究会「立体反応ダイナミクスの新展開」主催者 (2000).

Gordon Conference on Atomic and Molecular Interactions, Discussion Leader (2000).

環太平洋化学会議 シンポジウム, New Frontiers in Chemical Reaction Dynamics, 主催者 (2000).

C) 研究活動の課題と展望

化学反応の本質に関わる基礎研究を、孤立分子の光化学や原子分子衝突から、機能性分子や液体・複雑系に発展させる。イメージング法をはじめとするオリジナルな実験手段による新しい切り口の模索と量子化学計算をはじめとする理論との共同によって新しい化学反応研究を開拓する。

* 2003年4月1日理化学研究所主任研究員