

グローバルCOE講演会報告書

大学院理学研究科 鈴木 俊法

研究集会名： グローバルCOE講演会

講演者： Prof. Vlasta Bonačić-Koutecký (Department of Chemistry Humboldt-Universität zu Berlin)

演題： “Simulation and control of photochemistry in gas and condensed phase”

場所： 京都大学大学院理学研究科 6号館(北館 6階) 672号室

日時： 2012年1月30日 10:30 - 12:30

参加者： 化学専攻・教員、博士研究員、大学院生、学部生

参加者総数： 約15名

講演内容： Bonačić-Koutecký 教授は、分子内における電子の運動を量子力学的に扱いながら、原子核の運動は古典力学的に近似する QM/MM (Quantum Mechanics / Molecular Mechanics)法の第一人者である。現在、当研究室(理学研究科化学専攻物理化学研究室)と超高速光電子分光による化学反応のリアルタイム観測に関する共同研究を行っている。

数原子程度の単純な系に対しては、電子運動と核の運動の両方を量子力学的に計算することが可能であるが、大きな分子に対しては計算時間の観点から現実的には不可能である。同教授は時間依存の密度汎関数法(TD-DFT)を用いて、各瞬間の核座標における電子状態を計算し、原子核に働く力や非断熱遷移確率を算出して、気相孤立下のみならず、水溶液中における多原子分子の光化学反応のシミュレーションを行っている。さらに、フェムト秒光パルスの波形整形技術を利用して光化学反応を自在に制御するための方法論を理論的に研究している。

講演の始めでは、QM/MM 法に関する基本的事項を説明し、同手法を用いて得られたフラン(C_4H_4O)分子の励起状態ダイナミクスの計算結果を紹介し、当研究室で得られた実測結果を非常に良く再現していることが示された(得られた成果は、既に *J. Chem. Phys.* **133**, 234303 (2010)にて報告済み)。続いて、インドール(C_8H_7N)分子の光化学反応ダイナミクスを、孤立分子および水溶液中にてシミュレーションを行い、両者を比較した。その結果、水溶液中では励起状態にあるインドール分子から周囲の水分子への電子移動が起り、水和電子が生成する新たな反応経路が存在することが明らかになった。さらに核酸塩基の一つであるアデニン($C_5H_5N_9$)分子の光化学反応を波形制御されたフェムト秒パルスでコントロールする方法が理論的に示された。通常、アデニン分子には円錐交差を經由した高速内部転換が存在し、数十フェムト秒のオーダーで励起状態から基底状態に失活する。それに対し、波形制御されたフェムト秒パルスを用いることで、1 ピコ秒程度まで励起状態に滞留できることがシミュレーションにより示された。講演最後の質疑応答では、多数の質問が寄せられ、非常に好評であった。

