

目 次

まえがき i

I. 序 論

1. 超高速現象の世界への誘い 吉原経太郎...3
- | | |
|--------------------|------------|
| 1. フェムト秒の領域の特徴 4 | 4. 非線形分光 7 |
| 2. 超高速反応の解析 5 | 文献 8 |
| 3. 化学反応のコヒーレント制御 6 | |

II. ピコ・フェムト秒光の発生と検出

1. 超短パルスレーザー光の発生と波長変換 渡部俊太郎...11
- | | |
|------------------|------------------------|
| 1. カーレンズモード同期 12 | 5. 超短パルスの増幅 15 |
| 2. 分散とチャープ 13 | 6. 超短パルスコヒーレント軟 X 線 17 |
| 3. パルス圧縮 13 | 7. 展望 18 |
| 4. 超短パルスの評価 14 | 文献 18 |
2. テラヘルツ電磁波の発生と分光への応用 大竹秀幸, 猿倉信彦...20
- | | |
|--|-------------|
| 1. テラヘルツ電磁波の発生法 22 | 2. 将来の展望 28 |
| 1.1. さまざまなテラヘルツ電磁波発生法 22 | 文献 28 |
| 1.2. 半導体表面からのテラヘルツ電磁波 23 | |
| 1.3. 共振器内に置かれた過飽和吸収反射鏡からのテラヘルツ電磁波放射 27 | |
3. フェムト秒分光法の展開と高分子励起状態への応用 小林孝嘉...30
- | | |
|---|------------------------------|
| 1. サブ 5 fs ポンプ-プローブ実時間分解分光法 30 | 1.3. サブ 5 fs パルスを用いた実時間分光 34 |
| 1.1. これまでの波長可変超短パルス光発生法 30 | 2. フェムト秒時間分解ラマン利得分光法 38 |
| 1.2. 可視域波長可変サブ 8 fs パルスおよび 4.7 fs 可視光パルス発生 31 | 2.1. 実験装置 38 |
| | 2.2. 実験結果 39 |
| | 文献 39 |

III. 気相中の超高速ダイナミクス

1. フェムトケミストリー山下晃一...43
 1. 時間依存のシュレーディンガー方程式 43
 - 2.2. FH_2^- の光脱離過程 48
 - 2.3. 光解離反応 50
 2. 遷移状態を直接捉える 45
 - 2.1. 化学反応遷移状態の量子化 46
 - 文献 51
2. 分子およびクラスターの超高速ダイナミクス星名賢之助, 山内 薫...53
 1. 周波数領域からみた超高速過程 54
 - 1.1. 分子内振動ダイナミクス 54
 - 1.2. 前期解離と振動準位依存性 56
 - 1.3. 直接解離と遷移状態ダイナミクス 58
 2. 時間領域からみた超高速過程 58
 - 2.1. 多原子分子系の超高速過程 58
 - 2.2. クラスター系の超高速過程 59
 3. 今後の展開 62
 - 3.1. ポンプ-プローブ法による IVR 追跡 62
 - 3.2. レーザーパルス形状のデザインと応用 64
 - 3.3. 高次高調波, パルス X 線, パルス電子線の発生と応用 65
 - 文献 65
3. 回転コヒーレンス分光法とその応用——クラスターの構造とダイナミクス梶本興亜, 藤原孝成...67
 1. 回転コヒーレンス分光の原理 68
 - 1.1. 古典的描像 68
 - 1.2. 量子的描像——回転量子ビート 69
 2. 回転コヒーレンス分光の実験法 72
 - 2.1. 時間相関単一光子計測法 72
 - 2.2. 時間分解蛍光ディップ法 73
 3. 構造決定の具体例と信号強度を支配する諸因子 74
 - 3.1. 分子の形とシグナル強度——ピアントラセンの内部回転 74
 - 3.2. 励起状態ダイナミクスとコヒーレンス信号の強度——BA 錯体のコヒーレンス信号 76
 4. 回転コヒーレンス法による分子構造の決定 79
 5. 励起状態ダイナミクスの観測 85
 - 文献 86

IV. 液相中の超高速ダイナミクス

1. 溶液内での超高速電子励起状態緩和と化学反応ダイナミクス寺嶋正秀...91
 1. 測定法 92
 - 3.1. 分子内水素移動と水素結合系 97
 2. 電子励起状態緩和 92
 - 3.2. 分子内電荷移動 98
 - 2.1. トリフェニルメタン色素 92
 - 3.3. 溶媒和過程 99
 - 2.2. ニトロベンゼン 93
 - 3.4. 化学反応と熱放出 100
 - 2.3. 熱化過程 95
 3. 化学反応ダイナミクス 97
 - 文献 101

2. 溶液内化学反応ダイナミクスと超高速分光谷村吉隆...103
1. ガウス過程と調和振動子熱浴 103
 2. 非共鳴ラマン光学過程 (一次元ラマン分光) 107
 3. 二次元ラマン分光 109
 4. 高次の共鳴分光および非断熱遷移 111
文献 111
3. 液体中における振動状態に対するコヒーレント過渡分光富永圭介...113
1. 実験の概説 113
 2. 理論的背景 114
 3. 実験例 116
 - 3.1. ラマン遷移を用いた実験 117
 - 3.2. 赤外双極子遷移を用いた実験 118
 - 3.3. 表面での実験 119
 - 文献 122
4. ナノ, ピコ, フェムト秒時間分解分光で観た溶液中のレチナール分子の光異性化過程山口祥一, 濱口宏夫...123
1. ナノ秒時間分解ラマン分光——励起三重項状態を経由するシス→トランス光異性化機構 123
 2. ナノ秒時間分解赤外分光——励起一重項状態を経由するトランス→シス異性化経路 125
 3. フェムト秒時間分解紫外・可視吸収分光——励起一重項状態を経由する異性化反応経路 127
 4. フェムト秒時間分解可視吸収分光—— S_2 状態での水素結合形成と異性化反応 131
文献 133
5. 超高速溶液過程の MD 計算——振動エネルギー緩和を中心として岡崎 進...135
1. 古典論的取り扱い 136
 - 1.1. ニュートンの運動方程式 136
 - 1.2. 一般化ランジュバン方程式と記憶関数 137
 2. 量子論的取り扱い 139
 - 2.1. フェルミの黄金則 139
 - 2.2. 経路積分影響汎関数理論 140
 - 2.3. 経路積分セントロイド分子動力学法 143
 3. 水中のシアン化物イオン 143
文献 144

V. 生体分子の超高速化学

1. 光合成初期過程の超高速分光法による解明——特に光化学系 1 反応中心について熊崎茂一, 吉原経太郎...149
1. 光化学系 1 反応中心の立体構造 150
 2. 速度論モデルと観測される時間分解スペクトルの関係 152
 3. 励起波長に依存した励起エネルギー移動と電荷分離のダイナミクス 155
 4. 高還元力を生成する高量子効率の多段階電子移動 157
文献 161

2. ヘム蛋白質の超高速ダイナミクス……………北川禎三, 水谷泰久…162
1. 解離したCOを見る——フェムト秒赤外分光による研究 163
 2. 解離後のヘムを見る——ピコ秒共鳴ラマン分光による研究 165
 3. 解離後のヘムを見る——フェムト秒コヒーレント吸収分光による研究 168
 4. 解離後の蛋白質構造を見る——ピコ秒赤外吸収分光による研究 169
 5. 余剰エネルギーの散逸構造を見る——ピコ秒アンチストークス共鳴ラマン分光による研究 170
 6. 蛋白質の揺らぎを見る——赤外フォトンエコーによる研究 172
- 文献 174
3. ロドプシンの超高速ダイナミクス……………神取秀樹, 七田芳則…176
1. フェムト秒前夜——視覚の初期過程は異性化か? 176
 2. バクテリアのロドプシンのフェムト秒分光——励起状態を捉えた! 179
 3. 視物質ロドプシンのフェムト秒分光——コヒーレントな異性化? 180
 4. 異性化の機構に関して——何が反応速度を決める? 183
 5. ポテンシャルの向こうに 184
- 文献 185

VI. 固相および固体表面の超高速ダイナミクス

1. 芳香族高分子中の光誘起電子移動過程——過渡吸収二色性による直接測定
……………宮坂 博…189
1. 過渡吸収二色性の測定 189
 2. PVCz フィルムの電子移動初期過程の測定への応用 191
 3. 溶液中における PVCz のホール移動過程 194
 4. 今後の展開 196
- 文献 197
2. 微結晶の超高速分光と光化学初期過程
……………増原 宏, 朝日 剛, 古部昭広, 鈴木基嗣…198
1. フェムト秒時間分解拡散反射分光 199
 - 1.1. 解析原理 199
 - 1.2. 過渡吸収のシミュレーション 201
 - 1.3. シミュレーションに基づく考察 203
 2. 酸化チタン粉末における電荷生成緩和ダイナミクス 204
 3. フェムト秒レーザー励起固有の結晶フォトクロミズム 205
- 文献 207
3. 固体表面吸着分子の超高速ダイナミクス……………和田昭英, 広瀬千秋…209
1. 2光子光電子分光を用いた表面電子励起状態のダイナミクス 209
 2. 吸着分子の光脱離 211
 3. Ni 表面の短寿命分子種の観測 213
- 文献 217

VII. 超短パルスレーザー場と化学過程

1. 超短パルスレーザーを用いる化学反応の量子制御……………藤村勇一, 大槻幸義…221	
1. 最適制御理論 222	3. 制御理論の応用 226
1.1. 大域的制御法 222	3.1. NaIの光解離 226
1.2. 局所制御法 223	3.2. エナンチオマー選択反応 228
2. 量子制御の実験 224	4. 今後の展望 229
2.1. パルスシェービング技法 224	文献 230
2.2. パルス整形装置のGAアルゴリズムによる最適制御 225	
2. 強光子場中の分子ダイナミクス……………菱川明栄, 山内 薫…232	
1. 多光子イオン化からトンネルイオン化へ 232	4. 強光子場における超高速分子構造変形 238
2. 強光子場における分子解離過程 234	5. 分子配向過程 240
3. クーロン爆発ダイナミクスと電場イオン化モデル 235	文献 241
3. 強光子場中の分子の電子・核動力学理論……………河野裕彦, 河田 功…244	
1. 強光子場中の原子のトンネルイオン化 244	3. 分子の電子・核ダイナミクス 247
2. 双変換波束計算法(dual transformation; DT)– H_2^+ への適用 245	3.1. H_2^+ —奇数電子系のプロトタイプ 247
	3.2. H_2^- —偶数電子系のプロトタイプ 250
	文献 252
索引……………259	
著者紹介……………255	