

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) 非線形高次光学過程による溶液の振動モード解析
- b) 凝縮相中分子の化学反応過程と電子移動反応過程の研究
- c) フラストレーションのある極性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) 高次光学過程の物理的観測量である分極率や双極子の高次相関関数は、観測する系の微妙な違いや初期条件等に敏感な物理量である。2次元分光は実験的に大きな進歩を遂げているが、最近ではこの系の微妙な違いに着目して、理論家が多く参入し、新たなシミュレーション手法や解析的手法の開発等、理論的な側面から活発に研究が行われるようになった。我々は、本年度はDarling-Dennison結合による高次のモード・カップリングの影響の効果や、回転系の高次相関関数等を解析的について研究を行った。また、これまでの高次分光の研究は、レーザーの位相一致条件を考慮していないものばかりであったが、これらを考慮可能な理論を展開し、その数値計算的デモンストレーションも行っている。
- b) 水素移動反応等のトンネル過程や、光合成中心等における電子移動反応は量子過程であるが、その過程は、溶媒や蛋白質等の中では、熱励起や摩擦のため、シュレディンガー方程式で記述される孤立系とは、非常に異なったものになる。この研究のため、低温補正項を入れた新しい形のガウス・マルコフ型量子フォッカー・プランク方程式を導出し、それを用いてトンネル過程が寄与するプロトン移動化学反応過程と、非断熱遷移過程が寄与する電子移動反応過程についてシミュレーションを行い解析した。熱励起、摩擦等の効果を取り入れた精密な計算はこれまで皆無であり、限定的な状況について求められている幾つかの解析的と比較を行っている。
- c) 極性溶媒中の分極分子をモンテカルロシミュレーションにより研究を行った。極性溶媒のようなフラストレートした系は、低温ではガラス転移してしまい、そのエネルギー面は極小をたくさん持っているはずである。通常このような問題は自由エネルギー面がマーカスパラボラで記述されるような場合で議論されているが、我々は低温領域でのこれからのずれを調べた。シミュレーションから、荷電分子がある系を冷却していくと、極性分子の凍りつき方が一様でない事を発見し、これを相転移現象記述するモデルの一つであるRandom Energy Modelを用いて解析を行った。

B-1) 学術論文

K. OKUMURA, B. BAGCHI and Y. TANIMURA, "Cage Dynamics in the Third-Order Off-Resonant Response of Liquid Molecules: A Theoretical Realization," *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **73**, 873 (2000).

T. STEFFEN and Y. TANIMURA, "The Fifth and Seventh Order 2D Raman Spectroscopy for Harmonic System with Nonlinear System-Bath Interactions: Gaussian-White Case," *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 3115 (2000).

Y. TANIMURA and T. STEFFEN, "The Fifth and Seventh Order 2D Raman Spectroscopy for Harmonic System with Nonlinear System-Bath Interactions: Gaussian-Markovian Case," *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 4095 (2000).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

Y. SUZUKI and Y. TANIMURA, “Dynamical Stokes Shift Observed by Two-Dimensional Raman Spectroscopy,” *Proc. of Two-Dimensional Correlation Spectroscopy*, Y. Ozaki, Ed., American Institute of Physics, pp. 329–332 (2000).

Y. TANIMURA, “The 5th- and 7th-Order 2D Raman Spectroscopy for Intramolecular Vibrational Modes,” *Proc. of Two-Dimensional Correlation Spectroscopy*, Y. Ozaki, Ed., American Institute of Physics, pp. 144–153 (2000).

K. OKUMURA, Y. TANIMURA and A. TOKMAKOFF, “Information from Two-Dimensional Fifth-Order Raman Spectroscopy: Anharmonicity, Nonlinearity, Mode Coupling, and Molecular Structure,” *Proc. of Two-Dimensional Correlation Spectroscopy*, Y. Ozaki, Ed., American Institute of Physics, pp. 321–324 (2000).

B-3) 総説、著書

谷村吉隆, 「2次元ラマン分光による溶液系の解析」, *電気化学および工業物理化学* **68**, pp. 125-129 (2000).

谷村吉隆, 「溶液内化学反応ダイナミクスと超高速分光」, 季刊化学総説「超高速化学ダイナミクス」 **44**, pp. 103–112 (2000).

B-4) 招待講演

Y. TANIMURA, “Two-dimensional spectroscopy for intramolecular vibrational modes”, 1st Asian Conference on Ultrafast Phenomena, Taejon, February 2000.

Y. TANIMURA, “Two-dimensional spectroscopy for inter- and intra-molecular vibrational modes,” アメリカ物理学会年会, Special Symposium on two-dimensional spectroscopy, Minneapolis, March 2000.

Y. TANIMURA, “The Fifth and Seventh Order 2D Raman spectroscopy for harmonic system with Nonlinear system-bath interactions,” University of Illinois, Biophysical chemistry seminar, March 2000.

Y. TANIMURA, “The Fifth and Seventh Order 2D Raman spectroscopy for harmonic system with Nonlinear system-bath interactions,” University of Wisconsin, March 2000.

Y. TANIMURA, “Random walks and line broadening of impurity molecules in an Ising spin glass environment,” KAIST, October 2000.

B-6) 学会および社会的活動

総合研究大学, 2000年度湘南レクチャー「生物と化学系における非平衡統計力学」, 企画者.
学術雑誌編集委員

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

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

B-7) 他大学での講義、客員

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

多くの実験において鍵を握るのは「測定」であろう。試料やレーザー等の性能がよくても、測定する物理量が悪いと物の本質

には迫れない。理論においては通常、手法が重要視されるが、いくら手法がよくても、計算する物理量が測定にかからないものであれば、やはり役立つ理論とは言えない。複雑怪奇な化学現象を相手にする場合、「何を計算するか」は理論的研究を行う上で、特に重要な事と思われる。もちろん、解析的手法や、的を射たモデル化等も理論研究を行う上で重要であるが、それだけで終わってはいけない。実験家が、興味ある現象を調べるために、「何を測定するか」が重視するのと同様、理論家も、興味ある現象を調べるために、「何を計算するか」を重視する必要がある。しばらくは、現象を際立たせるような「測定」を重視した理論構築を行う。