冨宅喜代一

学歴

1965 年 3 月	大阪府立八尾高等学校 卒業
1970 年 3 月	静岡大学理学部化学科 卒業
1972 年 3 月	東京大学大学院理学系化学修士課程 修了
1975 年 3 月	東京大学大学院理学系化学博士課程 修了
1975 年 3 月	博士（理学）

職歴

1975 年 6 月	米国ミシガン大学 博士研究員
1976 年 6 月	南カルフォニア大学博士研究員
1977 年 12 月	金沢大学薬学部教務技官
1981 年 4 月	慶応義塾大学理工学部化学科助手、専任講師
1988 年 11 月	分子科学研究所 助教授
1995 年 7 月	神戸大学理学部化学科教授
2003 年 4 月	神戸大学評議員
2010 年 3 月	神戸大学理学研究科定年退職
2012 年 4 月	分子科学研究所特別協力研究員
2017 年 4 月 1 日	**公益財団法人 豊田理化学研究所　フェロー**

学会および社会的活動

専門分野

物理化学、レーザー分光、クラスター化学

所属学会

日本化学会、分子科学会、日本分光学会、米国化学会

受賞等

松永記念科学振興財団奨励賞　1979 年

分子科学会賞　　2010 年 9 月

非常勤講師、併任等:

九州大学理学部（2002)、静岡大学理学部（2005, 2017)、広島大学理学部（2007）

東京大学理学系研究科広域理学流動講座教授併任（2004）

外部委員等:

日本化学会学会賞等選考委員

分子科学研究所　運営協議会副議長（2008 － 2012）

分子科学研究所　共同研究専門委員　（2001 － 2006）

分子科学研究所 電子構造研究系外部評価委員（2002）

国際学会組織委員:

Symposium “Rrontiers in Structural and Functional Studies of Atomic and Molecular Clusters and Nanoparticles” in PacfiChem2005 : 2005.Dec. (Hawaii)

学会活動等：

日本分光学会近畿支部幹事　（1997 - 2006）

ナノ学会評議員　(2004 - 2007)

分子科学研究会委員　(2003 - 2004)

これまでの研究

１．はじめに

筆者は大学院時代から気相、液相と固相の分光学的研究を行った。1980年年代初頭からはこれらの研究を基にして気相と凝集相の中間相に相当するクラスターの研究に着手し、30年余りこの分野の進歩とともに歩んできた。気相クラスターの研究は，1970年後半まで主に質量分析技術を用いた熱力学的諸量の研究に留まっていた。しかし，1980年前後に導入されたパルス超音速分子線法[1]によりクラスター生成装置の小型化が可能になり、また波長可変レーザーの普及や多光子イオン化法を用いた質量選別分光の導入と相俟って分光学的研究が飛躍的に進展してきた。さらにレーザー蒸発法の導入を含めた新しいクラスター生成法が種々開発され[2]，周期表のほとんどの元素を含むクラスターの生成が可能になり，物質の中間相としての物性･反応の究明とナノサイズの新規物質の探索の視点から研究が活発に行われるようになった。筆者はこのようなクラスター研究の興隆期に恵まれその発展に多少なりとも関わってきたが、その概要について述べる。

2. 過渡熱レンズ法の開拓：熱を検出する光化学反応の新しい研究手法の確立

励起状態の緩和過程の研究は主に発光の観測により行われ、反応を含めた無輻射過程の直接観測は応答速度の遅い光音響法に限られていた。著者は高感度吸収分光法として注目され始めていた熱レンズ効果を用いることにより無輻射過程で出る熱を実時間で直接観測できることを発案し、熱発生過程をナノ秒時間分解能で観測する熱レンズ法を開発した。この方法により励起状態で起こる反応を含めた無輻射過程の速度と量子収量を求める方法を定式化するとともに、当時まだ発光検出が困難であった一重項酸素の緩和やラジカル反応へ適用し、励起状態の無輻射失活や光化学反応を高速で観測する新しい研究手法として過渡熱レンズ法を確立した[3]。

3. 水銀ファンデルワールス錯体の分光研究：原子間ポテンシャルの新規決定法の開拓

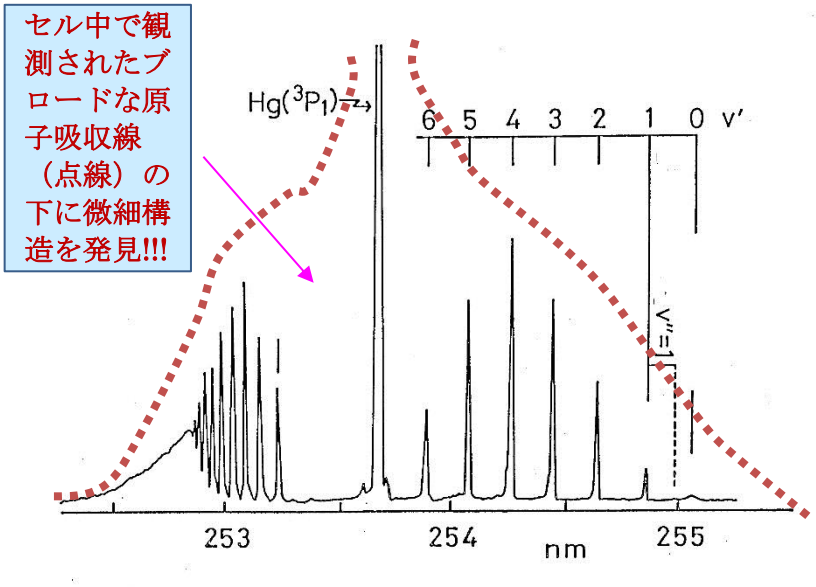

図１　HgAr錯体の蛍光励起スペクトル（斜線はセル中の吸収）

水銀はランプ光源を始め光化学反応の励起種として広く利用されてきたが、金属原子の衝突過程のダイナミクスを含めた相互作用の研究は反応セル内での実験に限られていた。著者らは超音速分子線法を用いることにより容易に光化学反応の衝突中間体に相当するファンデルワールス錯体を極低温状態で生成することを初めて見出した。図１はHgAr錯体の蛍光励起スペクトルを示しており、水銀共鳴線($^3P_1$ - $^1S_0$)の長波長と短波長側にΠとΣタイプの励起状態の振動

準位への遷移が観測された[4]。また基底状態への蛍光スペクトルや励起状態間の遷移の観測から、基底状態と励起状態のHgとArの原子間ポテンシャルを精密に決定した。また他の希ガス錯体やN_2、CH_4等の分子との錯体に拡張し、分光情報と励起状態の緩和ダイナミックスの非常に豊富な情報が得られるようになった。この一連の研究を皮切りにして、従来、セル中での原子線吸収の測定により行われてきた中性金属原子と分子の相互作用の研究が、ファンデルワールス錯体を用いた原子間ポテンシャルの精密測定の研究に刷新された。またファンデルワールス錯体を用いた研究手法は種々の金属原子を含む光化学反応の研究分野で広く用いられるようになった。

4. フェノール分子の水和構造：溶媒効果のミクロな研究手法の新規開拓

化学反応に及ぼす溶媒分子の溶媒効果は、化学の中心課題として古くから溶液中で研究されてきている。溶液中では多くの溶媒分子に取り囲まれているため、非常に複雑な相互作用の平均的な情報しか得られなかった。一方、溶媒効果を溶媒分子数の限られたクラスター中で調べることにより、分子間のポテンシャルや溶媒和構造と反応に及ぼす溶媒分子の微視的な役割の詳細な情報が溶媒分子数を新たなパラメーターとして得ることが可能になる。この視点から、著者らは極性分子の溶媒効果を初めてクラスターを用いてアプローチした。図２はフェノール分子に水分子を3 分子まで配位させたクラスターの第一励起状態への振電スペクトル（二光子イオン化法）を示す。[5] フェノールに水分子が一個付加すると零振動準位へのピークが長波長にシフトし、2個付くと逆に短波長に戻ることが見出だされた。しかし、3番目の水分子の付加でピークはほとんどシフトしない。この結果から一個目の水はまずフェノールの水素原子の受容体として結合し、二番目の水はドナーとして結合して図のようなリング状の水素結合ができることを明らかにした。この研究を契機としてクラスターを用いた溶媒和の研究が非常に盛んに行われるようになり、溶媒和分子の構造や溶媒効果の微視的理解が飛躍的に深化した。

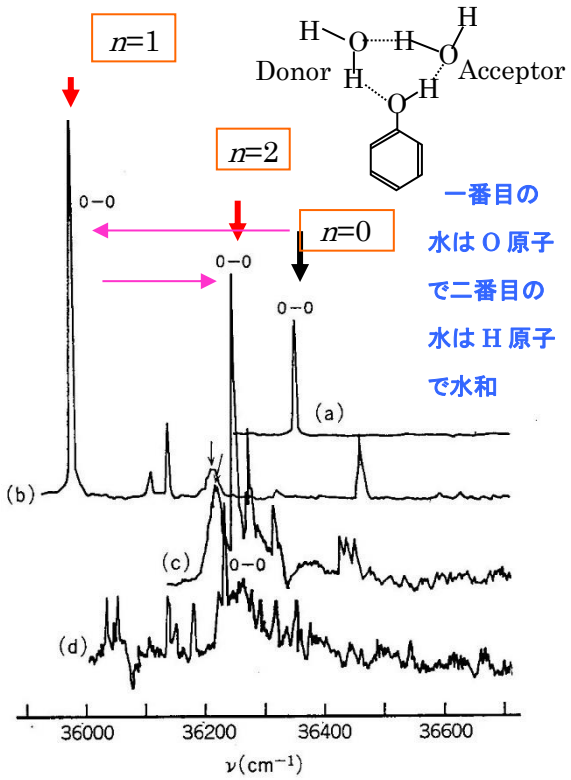

図 2　2 光子イオン化法によるフェノール-$(H_2O)_n$ 錯体の電子スペクトル.
（a）n=0,（b）n=1,（c）n=2,（d）n=3.

5. モデル塩基対のプロトン移動反応：プロトン移動反応の振動モード依存性の発見

分子間や分子内でプロトンや水素原子が移動するプロトン移動反応は，電子移動反応とともに化学反応の基礎過程として非常に重要な反応である。この反応の典型例としてDNAの異性化反応が知られており、モデル塩基対として7-アザインドール(7-AI)二量体(図3A)の反応が溶液中で研究されてきた。二量体は紫外光で励起すると励起状態で二つの水素原子が隣に移動して反応し、可視光を

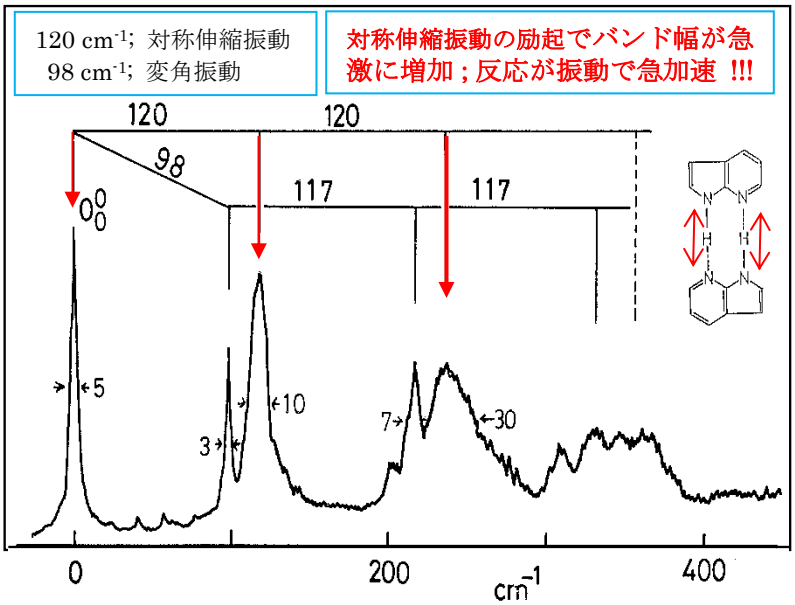

図3 生成物発光をモニターした$(7\text{-AI})_2$の蛍光励起スペクトル

発する互変異性体が生成されると報告されていた。この反応の動力学的な機構を解明するため、この二量体と類似化合物を超音速分子線法で極低温に冷却し、励起状態と基底状態でのプロトン移動反応をレーザー分光法を用いて研究した[6]。

図3Bは生成物の可視発光を観測しながら励起光を掃引して測定した二量体の第一励起状態の振電スペクトルを示しており、反応の効率スペクトルに相当する。スペクトルのピーク強度と幅はそれぞれ反応の効率と反応速度を示している。この結果より零点準位から非常に速い反応が起こり、トンネル効果が反応に大きな役割を果たしていることが直接検証された。また二量体の伸縮振動準位の幅は高い振動準位で二倍、六倍と広がり反応が急激に速くなるが、一方、エネルギーの近い変角振動を励起すると逆に幅が狭くなり反応が抑制される。この結果より、プロトン移動反応が二量体間の振動モードと密接に関係する現象が発見され、反応のポテンシャルと動力学的な機構が初めて明らかになった。この研究が契機となり、プロトン移動反応の実験と理論研究が非常に活発に進められ、反応の動力学的側面の理解が飛躍的に深まった。

6. 半導体クラスターの仕事関数： Si_nの仕事関数の標準値決定（原子からナノサイズ）

Siを始めとした半導体元素は固体素子として広く利用され、特に近年の素子の超細密化と相俟ってナノサイズの構造と物性が重要性を増してきていた。しかし、20個以下のサイズのクラスターは市販のレーザーでは光イオン化できず、幾何構造や電子構造の実験的研究は滞っていた。筆者らは真空紫外レーザー分光装置を開発し、数個から100個のサイズのSiやGeのクラスターの仕事関数の測定に初めて成功した[7]。図4はこの研究で得られたSiクラスターの仕事関数をサイズを横軸にプロットして示している。21個以下では分子状の高い仕事関数をもつが、20 -22個で1.6 eVのIPの大きなギャップがあり、さらにサイズが大きくなるとバルク状の低い仕事関数に移行することが明らかになった。この結果はSiクラスターの仕事関数の標準値として非常に多くの実験や理論研究で引用されてきている。

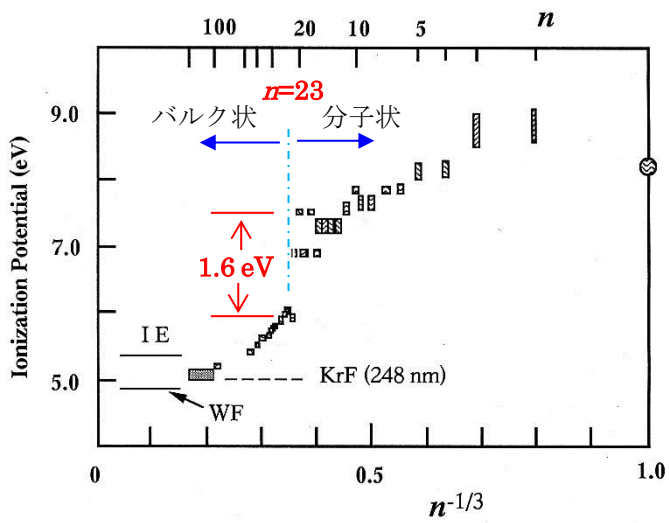

図4 Siクラスターのイオン化ポテンシャル

7. 電子･アルカリ金属原子の微視的溶媒和：溶媒和電子生成の直接観測

溶媒和電子は古くから溶液中の最も基本的な化学種として非常に詳しく研究されてきている。しかし，これらの研究は主に溶液や固体中の非常に複雑な相互作用の環境で行われており，まだ電子の溶媒和構造についてすら統一的な理解が得られていなかった。この溶媒和電子の性質を系の簡単なクラスター中で調べることにより，生成過程やミクロな溶媒和構造とダイナミックスの理解が格段に深まると期待される。筆者らはこの観点から溶媒和アルカリ原子クラスターについて(1)中性クラスターと(2)負イオンクラスターを研究し、クラスター内で金属原子から溶媒電子が生成する過程を分子レベルで解明した。

(1) 中性溶媒和アルカリ原子の光イオン化：水４分子でアルカリ原子がイオン化

図５は,アルカリ原子と水とのクラスターについて光イオン法で決定したイオン化ポテンシャル(IP)の測定結果をそれぞれまとめて示しており，誘電体球モデルに基づいて IP を $n^{-1/3}$ に対してプロットした結果である。アルカリ原子ー水クラスターの IP は n の増加とともに減少するが，n≧４では一定値となる異常なサイズ依存性を示す。また n=∞の外挿値はバルクの水の光電子放出(PET)の実測値(3.2 eV)と良く一致することを見出した[8,9]。

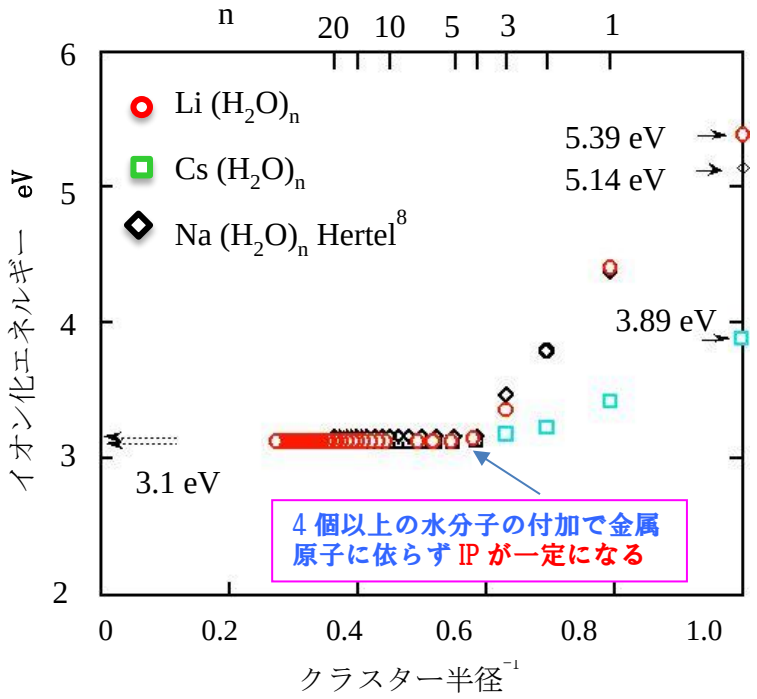

図５ アルカリ原子の水和クラスターの IP

一方，アルカリ原子−アンモニア系の IP は n の小さいところでは変動するが，サイズの増加と共に比較的単調に減少し液体アンモニアの PET 値 [1.45 eV]と非常に近い値(1.47 eV)に収束する。これらの結果より，水とアンモニアの両方の系でクラスターの IP の外挿値は，中心金属の種類に依らず溶媒の種類で決まるという興味ある傾向が見出された。

(2)負イオンクラスターの光電子分光

上記の非常に特異な IP のサイズ依存性とクラスター内での金属原子の溶存状態を明らかにするために， Li^-や Na^-イオンを含む水やアンモニアのクラスターの光電子分光の研究を行った[10]。光電子スペクトルの測定により終状態に相当する中性クラスターの基底状態と電子励起状態の情報が直接得られる。実験の結果、$Li^-(H_2O)_n$ では中性クラスターと同様に Li − O 結合で安定化した類似の構造をもち，また負イオン状態よりも中性基底状態の方がより強いイオン性の結合で水和され安定化されることが見出された。実験結果と理論計算との比較により、n=4 で第一溶媒和殻が満たされると Li 原子の 2s 価電子が Li^+のクーロン場から水分子に移動し、初期の水和電子が生成されることが示され

た。水の特異な IP の結果はクラスター内での水和電子の生成と良く対応しており、非常に小さなクラスター内でアルカリ原子のイオン化と溶媒和電子の生成が起こることが初めて明らかになった。

8. アルカリ土類金属イオンの溶媒和；分子サイズの試験管内での酸化反応の機構

金属イオンの酸化還元反応過程は，溶媒和電子生成と密接に関連し溶液化学の重要課題として古くから研究されてきている。クラスターを用いた研究では，気相金属イオンに溶媒分子を一個，二個，三個と段階的に配位させ，構造と反応性を調べることができる。また，系が簡単なため理論計算により実験結果の検証ができる。このような視点から，レーザー蒸発法を用いたピックアップ法により生成した Mg^+や Ca^+の水和イオン[$Mg^+(H_2O)_n$, $Ca^+(H_2O)_n$]について、光解離分光装置を用いた電子構造、水和構造と酸化反応の分光学的研究を初めて展開し、クラスター研究の新しい流れの創生に貢献した。

(1) 水和和金属イオンの幾何構造と電子構造：金属イオンのミクロな溶解機構の解明

$Mg^+(H_2O)_n$(n≦5)に解離光を照射すると次式のような反応が進み，水分子の蒸発過程(1)と同時に

$$M^+(H_2O)_n \rightarrow M^{+*}(H_2O)_n \rightarrow M^+(H_2O)_m + (n-m)H_2O \quad (1)$$

$$\rightarrow MOH^+(H_2O)_k + H + (n-k-1)H_2O \quad (2)$$

クラスター内反応(2)が起こり，フラグメントイオンとして酸化物に相当する $MgOH^+(H_2O)_{n-1}$ も検出される。これらのフラグメントイオン信号を励起波長に対してプロットすることにより $Mg^+(H_2O)_n$ の光解離スペクトルを測定した。図 6 はその結果を示しており [11]，n=1 では，Mg^+ イオンの共鳴線付近の 28300，30500，と 38500 cm^{-1} にそれぞれ $^2B_2(p\pi_y)$，$^2B_1(p\pi_x)$ と $^2A_1(p\sigma)$ 状態への遷移が観測される。また n=2 では，吸収帯がさらにレッドシフトする。n=3 では，n=2 の高エネルギー側の吸収帯が大きくレッドシフトし，幅広い 1 本の吸収帯として観測される。また，n=4 と 5 では，配位水の増加にも拘わらず n=3 と同様のスペクトルを与える。n=1-5 の実測のスペクトルは，非経験的計算による構造と遷移エネルギーの計算により良く再現され、水分子数が 5 個以下の $Mg^+(H_2O)_n$ では，Mg^+イオンは sp 混成し，第一水和殻は 3 分子で閉殻となるとことを示している。n≥5 で低エネルギー側に新たに出現する吸収帯は 4 配位の水和イオンに相当し、配位数の増加とともに遷移エネルギーが急激に低下して金属イオンの酸化過程が段階的に進む様子を示している。このスペクトル変化は $Ca^+(H_2O)_n$ でさらに顕著に観測され、水和構造と酸化過程の関係が初めて実験的に分子レベルで検証された。

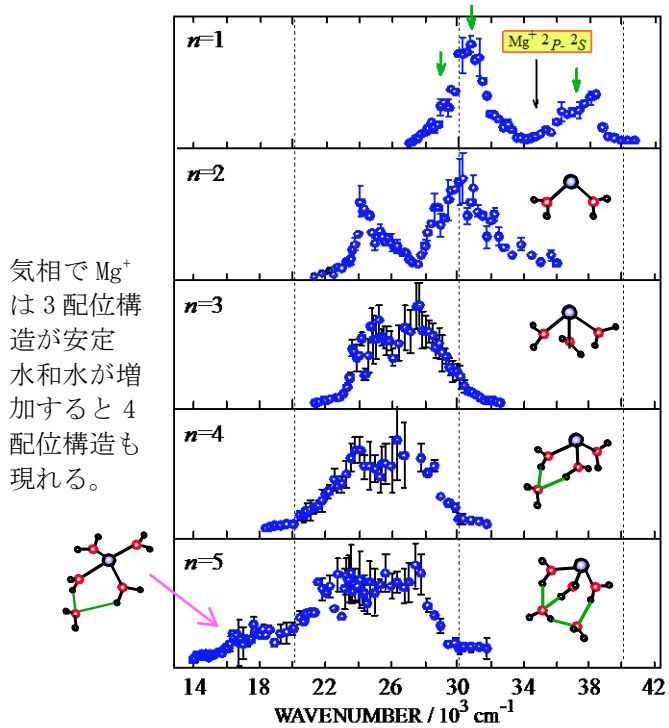

図 6 $Mg^+(H_2O)_n$ の光解離スペクトルと水和構造

(2) 金属イオンの酸化反応のサイズ依存性：酸化状態のスイッチングの発見

上記の分光学的観測で検証された水和構造と酸化反応の関係の理解をさらに深めるために，$Mg^+(H_2O)_n$ と $Ca^+(H_2O)_n$ の光解離反応および簡便な交差分子線法を用いた Mg^+（Ca^+）と $(H_2O)_n$ の衝突反応を検討した。Figure 4a に衝突反応で生成した $Mg^+(H_2O)_n$ クラスターの TOF スペクトルを示す[12]。クラスターは，衝突反応により次のように生成される。

$$Mg^+ + (H_2O)_m \rightarrow Mg^+(H_2O)_n + (m-n)\ H_2O \qquad (1)$$

$$\rightarrow MgOH^+(H_2O)_{n-1} + (m-n-1)\ H_2O \qquad (2)$$

この反応の生成物は Figure 4b で詳しく示すように，n≦5 と n≧15 では主生成物として $Mg^+(H_2O)_n$ が，6≦n≦14 では脱水素反応の生成物[$MgOH^+(H_2O)_{n-1}$]が見出された。この非常に特異的な生成物分布は多くの研究者の注目の的となり，その後の溶媒和金属イオンの分光学的研究の発展の引き金となった[42-44]。これらの結果をもとにして $M^+(H_2O)_n$ と $MOH^+(H_2O)_{n-1}$ の結合エネルギーの理論計算を行った。この結果、$MgOH^+$ の水和エネルギーは Mg^+ に較べ約 1.6 倍大きく，n≧5 では $MgOH^+(H_2O)_{n-1}$ と $Mg^+(H_2O)_n$ の基底状態がエネルギー的に入れ替わり，$Mg^+ + (H_2O)_n$ 反応の生成物が入れ替わる。この結果は一価金属イオンが，水和水数の増加と共により安定な酸化数の高い水酸化物イオンに移行することを示している。この反応のもう一つの特徴は，図 7 のように n=15 付近で二番目の生成物の switching が観測される点であり，サイズの大きなクラスターでは $MgOH^+$ 生成反応が抑制され $Mg^+(H_2O)_n$ のみが観測される。この二番目の生成物交替は，これらのクラスターがサイズの増加に伴い大きなスペクトルシフトを示す点（特に $Ca^+(H_2O)_n$ で顕著）や水溶液中で Mg^{2+} が安定である事実より，水クラスター内で水素脱離反応が次第に抑制され，より酸化数の高い Mg^{2+} と電子が別々に水和した二中心のイオン対状態に移行することに起因すると結論した。この非常に特異的な生成物分布は多くの研究者の注目の的となり，その後の溶媒和金属イオンの分光学的研究の発展の引き金となった[13]。

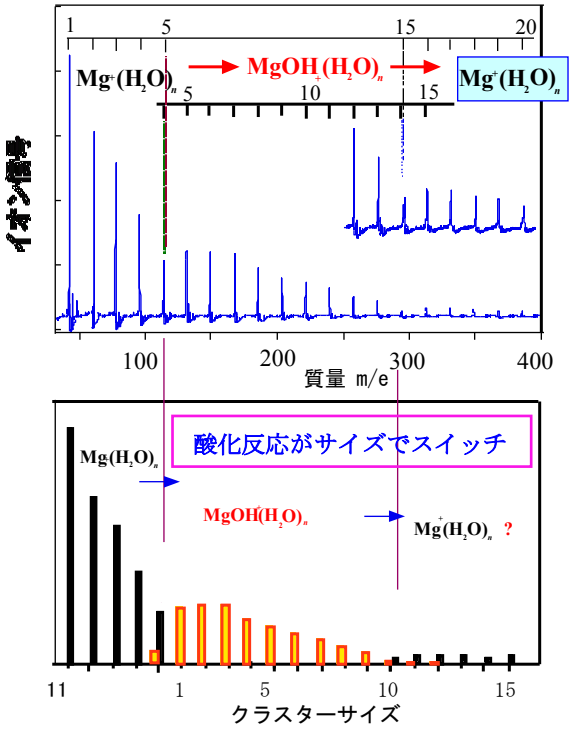

図 7 Mg^+ と $(H_2O)_n$ の衝突反応の生成物

9. 超原子価ラジカルの生成と溶媒和：生体反応中間体 NH_4 の特性解明（Na原子と同族!!）

H_3O や NH_4 ラジカル等の超原子価ラジカルはアルカリ原子と等電子構造をもち，水やアンモニア分子に水素原子が付着することにより生成する。また溶液中や生体分子中に広く存在する RH_2O^+ や RNH_3^+ イオンの電子再結合過程でも容易に生成する化学種で，生体分子イオンの反応等，非常に広範な反応の中間体として介在することが指摘されてきた。ラジカルの溶液中での溶存状態や反応中間体としての役割を理解するため、アンモニアクラスターの光解離反応で生成する $NH_4(NH_3)_n$ のイオン化ポ

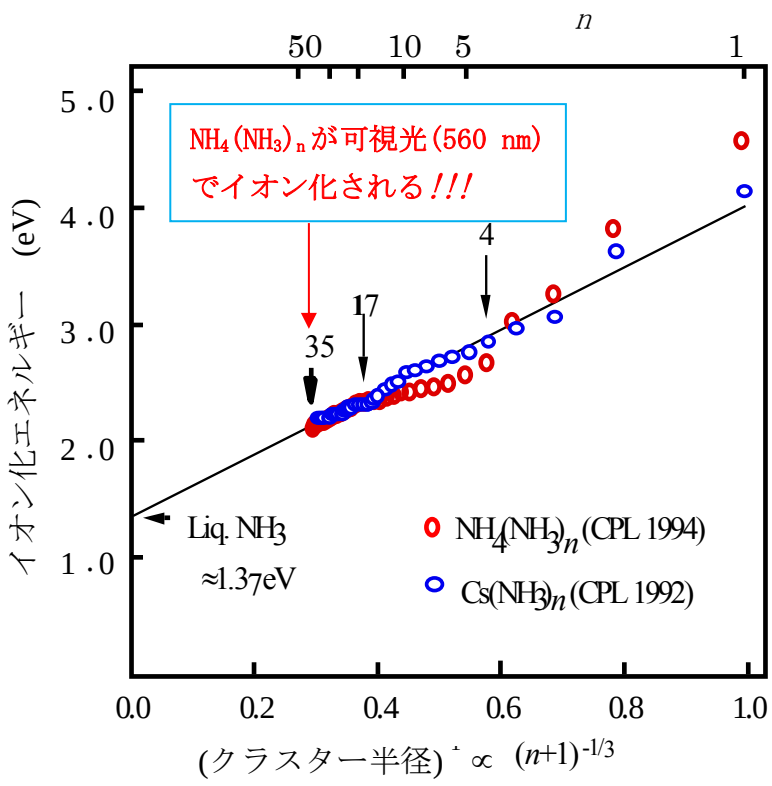

図 8 $NH_4(NH_3)_n$ クラスターのイオン化ポテンシャル

テンシャル（IP）、吸収スペクトルや NH_4 ラジカルの生成ダイナミックスと緩和過程をナノ秒およびフェムト秒レーザーポンプ—プローブ実験により調べ、NH_4 のクラスター内での安定性と電子状態を研究した。NH_4 ラジカルは 13 ps の寿命で NH_3 + H に解離するが，$NH_4(NH_3)_n$ 内では NH_3 分子の溶媒和により大きく安定化され，寿命は 3 μs 以上に長くなる。図 8 に一例として $NH_4(NH_3)_n$ (n=1-35) の IP の実測値を，液滴モデルを仮定して $n^{-1/3}$ に対してプロットした結果を示す [14,15]。サイズの小さいクラスターの IP とイオン状態での NH_4^+ の結合エネルギーの実測値を用いて， NH_4 と NH_3 の段階的な結合エネルギー（$\Delta E_{n,n-1}$）を求めた。この結果，$NH_4(NH_3)_n$ (n≦5) の $\Delta E_{n,n-1}$ はアンモニア二量体の値(0.12 eV)に比べ二倍以上大きく，は基底状態で弱いイオン的な結合をすることが明らかになった。IP は小さなサイズでは溶媒数とともに大きく変化するが，n>15 ではほとんど直線的に減少し，n=∞では溶液の光電子放出のしきい値 1.4 eV に収束する。このサイズの大きい領域での IP の変化は，比較のためにプロットした $Cs(NH_3)_n$ と良い一致が見られ，Cs 原子と同様に NH_4 もサイズの大きなアンモニアクラスター内で自発的にイオン化することが明らかになった。

10. 生体分子の水和のミクロな役割の解明：生体分子の水和の新しいアプローチ

生体分子の機能発現に水は重要な役割を果たしており，その水和過程はクラスターをモデルとした研究の重要なターゲットであ。しかし、生体分子を含むクラスターイオンの生成が困難なため分光学的研究は非常に限られていた。著者らはエレクトロスプレーイオン(ESI)源を組み込んだ生体分子クラスターの光解離分光装置を初めて開発した。この装置を用いてヘモグロビンのヘム核に相当するヘミンの吸収と光解離過程の溶媒効果を調べるとともに [16]、ヘム核の励起で誘起されるチトクローム c のイオン化過程を研究した。また、生体分子の水和過程の基礎的情報を得るため，グリシン，トリプトファン等のアミノ酸，ジペプチドの水和クラスターを生成し，段階的な水和エネルギーの測定を行った。

生体分子の反応の進行に揺らぎが重要な役割を果たしていることが知られているが，この揺らぎの微視的機構の解明にはクラスターからのアプローチが重要となる。この問題の糸口となる温度を制御した溶媒和生体分子イオンの分光法を開発するため、ここでは極低温に冷却可能な多極子イオントラップを導入し，ESI 源を組み合わせた温度可変（20 - 300 K）の光解離分光装置を開発した [17]。この装置を用いてアミノ酸やペプチドの構造と温度効果の分光学的研究を行った。一例として

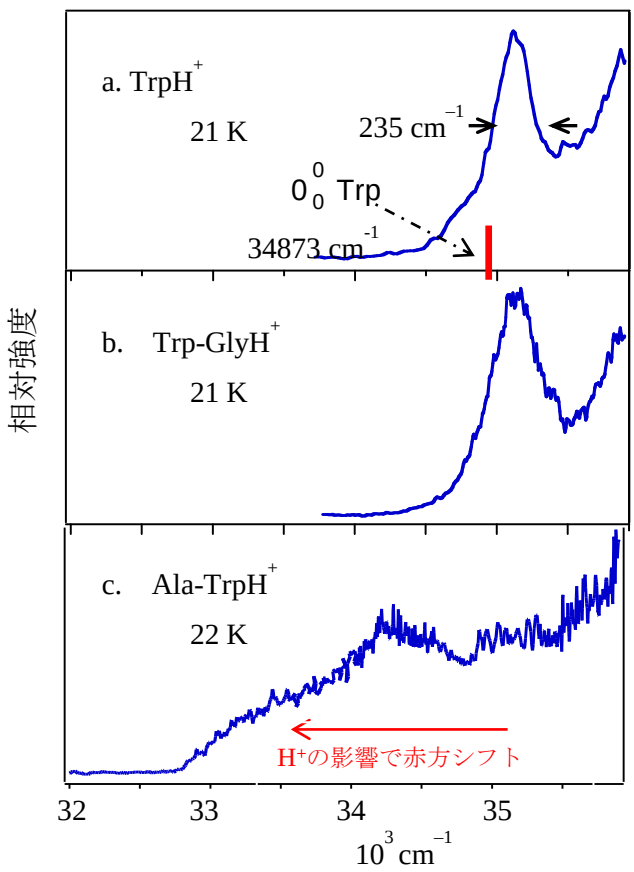

図 9 極低温のジペプチドイオンの吸収スペクトル

図 9 はジペプチドを用いたトリプトファン（Trp）のプロトン効果の実験結果を示している[17]。気相では図 9a のようにプロトン化しても S_1 − S_0 遷移の励起エネルギーは中性分子(赤線)と変わらない。図 9b と 9c は，Trp の C 末端に Gly を付加したトリプトファニールグリシン(Trp-GlyH$^+$)と N 末端に Ala を付加した，アラニールトリプトファン(Ala-TrpH$^+$)のスペクトルを示している。Gly の系ではスペクトル幅が少し広がるが，位置はほとんど変化しない。TrpH$^+$と Trp-GlyH$^+$では C_α − C_β結合の周りの構造的な制限で N 末端の NH_3^+基とインドール環との距離が離れるため，電子状態に与えるプロトンの影響が小さくなる。一方，Ala の系では約 2000 cm^{-1} の大きなレッドシフトが見られ，顕著なプロトン効果がこの実験で初めて観測された。Ala の系では Trp の N 末端に Ala が付加しており，インドール環と Ala の NH_3^+の距離が非常に近づく閉じた構造をとると予測され、赤外光解離スペクトルでこの構造が確認された[17]。

11. 気相イオンの核磁気共鳴分光法の開発： NMR の世界を気相へ拡張

質量分析技術はクラスター研究の進展と相俟って格段に進歩し、物質科学、生命科学や医療科学の広い分野で化学分析の手段として利用されている。このため気相イオンの構造の情報が益々重要となってきているが、構造解析の一般的方法が無いため、研究進展の大きな障害となっている。このような現状で気相イオンの構造の情報が得られる NMR 分光法の実現は，基礎研究に留まらず応用分野への大きな波及が期待される。NMR 分光法は Rabi らによる中性分子線を用いた Stern - Gerlach 型の気相実験が起源である[18]。筆者はこの方法を気相イオンに拡張するため、磁場中でイオンを捕捉するペニングトラップを利用して Stern - Gerlach 実験を行う新しい NMR 検出原理を提案し，開発を進めている[19,20]。図 10 は開発中の気相イオンの NMR 分光装置の概略図を示す。試作機ではイオン源として，超音速ジェット冷却で速度を揃え

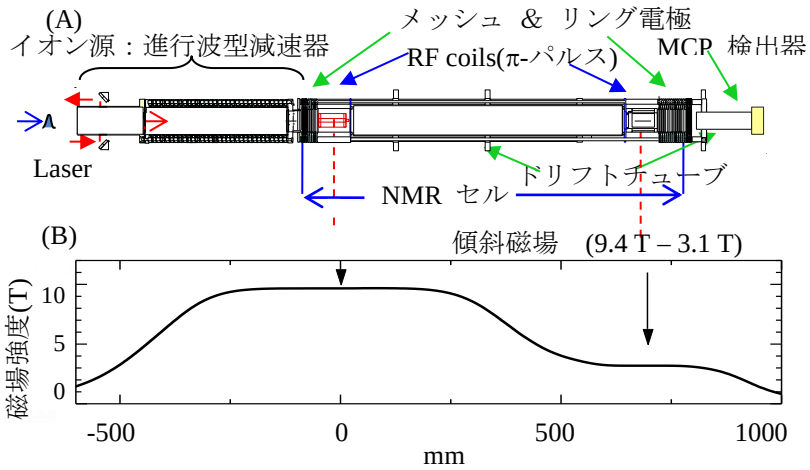

図 10 気相 NMR 装置の概略図

た分子線の光イオン化法を用いている。超伝導磁石中に光イオン源と NMR セルを並置し，特に NMR セルは両端が図で示す高磁場と低磁場の平坦な磁場領域に正確に重なるように設置している。二つの平坦磁場の間は急峻な傾斜磁場となっており，NMR セルに導入されたイオン束はこの傾斜磁場と磁気モーメントの相互作用で磁場軸方向に加減速される。磁気共鳴の検出は分光用のコイルを NMR セル内の上記の二つの均一磁場領域に設置し，往復運動に同期してコイル内を通過するイオン束に RF 磁場を照射して核スピンを反転させて行う。共鳴条件を満たす核をもつイオンは行き帰りの傾斜磁場内で発生する磁気力が加算され，磁場軸方向にスピン状態を反映して空間的に広がる（核スピン分極）。このイオン束の分極を検出器で飛行時間差として観測し磁気共鳴スペクトルを得る。

この測定法ではイオン束の初速度が遅く速度分布幅が狭ければ狭いほど（イオンの並進温度が極低温）核スピン分極の測定が容易になるため、イオンの新しい極低温冷却法の開発が要となる。このため新たに進行波型の多段減速器を組み込んだ光イオン化装置を発案· 製作し、従来に比べ明るいイオン源を完成した。また磁気共鳴実験の要件を満たす試料イオンを発生するために、NMR セルは磁気共鳴の機能に加え、イオンを極低温に冷却する機能も付加する必要がある。この目的で NMR セルにメッシュ電極を用いた速度選別器を組み込むとともに、イオンの速度分布幅を精密に圧縮できる速度分散補償器を発案し、新規に設計· 製作した。この速度分散補償器と上記の多段減速器やメッシュ電極を用いた速度選別を連携させる技術的課題を達成し、核スピン分極の測定が可能となるmK 以下の極低温イオンの発生と精密制御が可能になった。この結果イオンの極低温冷却法の開発に目途がつき、磁気共鳴の実験に入る道筋が開けてきた。今後はこれらのイオン光学系を最適化し、本測定原理の検証と気相イオンの NMR スペクトルの研究を進めていく。

引用文献

(1) Duncan, M. A.; Dietz, T. G.; Smalley, R. E. *Chem. Phys.* **1979**, 44, 415—419.

(2) Dietz, T. G.; Duncan, M. A.; Powers, D.E.; Smalley, R. E. *J. Chem. Phys.* **1981**, 74, 6511—6512.

(3) Fuke, K.; Ueda, M.; Itoh, M. *J. Am. Chem. Soc.* **1983**, 105, 1091—1096.

(4) Fuke, K.; Saito, T.; Kaya, K.; *J. Chem. Phys.* **1984**, 81, 2591 - 2598 .

(5) Fuke, K.; Kaya, K. *Chem. Phys. Lett.* **1983**, 94, 97 - 101.

(6) Fuke, K; Kaya, K. *J. Phys. Chem.* **1989**, 89, 614—621.

(7) Fuke, K.; Tsukamoto, K.; Sanekata, M.; Misaizu, F. *J. Chem. Phys.* **1993**, **99**, 7807 —7811.

(8) Hertel, I. V.; Huglin, C.; Nitsch, C.; Schulz, C. P. *Phys. Rev. Lett.* **1991**, 67, 1767 —1770.

(9) Misaizu, F.; Tsukamoto, K.; Sanekata, M.; Fuke, K. *Chem. Phys. Lett.* **1992**, 188, 241—246.

(10) Takasu,R.; Misaizu, F.; Hashimoto,K.; Fuke, K. *J. Phys. Chem. A* **1997,** *101*, 3078—087.

(11) Misaizu, F.; Sanekata, M; Fuke, K; Iwata, S. *J. Chem. Phys.* **1994**, 100, 1161—1170.

(12) Sanekata, M.; Misaizu, F;. Fuke, K.; Iwata, S.; Hashimoto, K. *J. Am. Chem. Soc.* **1995,** 117, 747—754.

(13) Fuke, K., Hashimoto, K.; Iwata, S. *Adv. Chem. Phys.* **1999**, 110, 431—523.

(14) Fuke, K.; Takasu, R.; Misaizu, F. *Chem. Phys. Lett.*, **1994**, 229, 597—603.

(15) Fuke, K.; Takasu, R. *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **1995**, 68, 3309—3318.

(16) Nonose, S.; Tanaka, H.; Okai, N.; Shibakusa, T.; Fuke, K.; *Eur. Phys. J. D*, **2002**, 20, 619—626.

(17) Fujihara, A.: Matsumoto, H.; Shibata, Y.; Ishikawa, H.; Fuke, K.; *J. Phys. Chem. A*, **2008,** 112, 1457—1463.

(18) Rabi, I. I.; Millman, S.; Kusch, P.; Zacharias, J. R. **1939** *Phys. Rev.* **55** 526—535.

(19) Fuke, K.; Tona, M.; Fujihara, A.; Ishikawa, H. *Rev. Sci. Instrum.* **2012**, 83, 085106-1—8.

(20) Fuke, K. ; Ohshima, Y.; Tona, M.; *Hyperfine Interactions*, **2015**, 236(1), 9-18.

業績リスト

１．原著論文

[1] "Electronic Spectra and Electronic Structures of (2,2)-Paracyclophane and Related Compounds", S. Iwata, K. Fuke, M. Sasaki, S. Nagakura, T. Otsubo, and S. Misumi, J. Molecular Spectroscopy, **46**, 1 - 15 (1973).

[2] "Polarized Absorption Spectra of the Hydroquinone and 1,4-Dimethoxybenzene Crystals in the near and Vacuum Ultraviolet Regions", K. Kaya, K. Fuke, and S. Nagakura, Bull. Chem. Soc. Japan, **47**, 438 - 441 (1974).

[3] "Polarized Reflection and Absorption Spectra of the (2,2)-Paracyclophane", K. Fuke and S. Nagakura, Bull. Chem. Soc. Japan, **48,** 46 - 49 (1975).

[4] "Two-photon Absorption Spectrum of (2,2)-Paracyclophane", K. Fuke, S. Nagakura, and T. Kobayashi, Chem. Phys. Lett. **31**, 205 - 207 (1975).

[5] "The Polarized Reflection and Absorption Spectra of Perylene Crystals in Monomeric and Dimeric Forms", K. Fuke, K. Kaya, T. Kajiwara, and S. Nagakura, J. Molecular Spectroscopy, **63**, 98 - 107 (1976).

[6] "Electronic Structure and Spectra of Acrylic Acid in the Vapor and Condensed Phases", H. Morita, K. Fuke, and S. Nagakura, Bull. Chem. Soc. Japan, **49**, 922 - 928 (1976).

[7] "Rydberg Transitions of Aniline and N,N-Dimethylaniline", K. Fuke and S. Nagakura, J. Molecular Spectroscopy, **64**, 139 - 146 (1977).

[8] "Charge-Transfer Character in the Intramolecular Hydrogen Bond: Electronic Structures and Spectra of Hydrogen Malate Anion and Related Molecules", H. Morita, K. Fuke, and S. Nagakura, Bull. Chem. Soc. Japan, **50**, 645 - 649 (1977).

[9] "Absorption and Magnetic Circular Dichroism Spectrum of Allene", K. Fuke and O. Schnepp, Chem. Phys. **38**, 211 - 217 (1979).

[10] "The Magnetic Moment of the $^1E_{1u}$ *N-V* State of Benzene and its Methyl Derivatives", K. Fuke, A. Gedanken, and O. Schnepp, Chem. Phys. Lett., **67**, 483 - 486 (1979).

[11] "Direct Observation of Intramolecular Anthracene Excimer in 1,3-Dianthryl-propane", M. Itoh, K. Fuke, and S. Kobayashi, J. Chem. Phys. **72**, 1417 - 1418 (1980).

[12] "Direct Observation of Singlet Oxygen by a Thermal Lensing Technique", K. Fuke, M. Ueda, and M. Itoh, Chem. Phys. Lett. **76**, 372 - 374 (1980).

[13] "Two-photon Absorption Spectrum of Trans-stilbene: Trans-Cis Photoisomerization via Upper ^{1}Ag State", K. Fuke, S. Sakamoto, M. Ueda, and M. Itoh, Chem. Phys. Lett. **74**, 546 - 548 (1980).

[14] "Tryptophan Fluorescence of Human Hemoglobin. I: Significant Change of Fluorescence Intensity and Lifetime in the T-R Transition", M. Itoh, H. Mizukoshi, K. Fuke, S. Matsukawa, K. Mawatari, Y. Yoneyama, M. Sumitani, and K. Yoshihara, Biochem. Biophys. Res. Commun. **100**, 1259 - 1265 (1981).

[15] "A Thermal Lensing Study of a Photolysis of Di-t-Butyl-Peroxide",

K. Fuke, A. Hasegawa, M. Ueda, and M. Itoh, Chem. Phys. Lett. **84**, 176 - 179 (1981).

[16] "Lifetime of Singlet Oxygen and Quenching by NaN_3 in Mixed Solvent",
N. Miyoshi, M. Ueda, K. Fuke, Y. Tanimoto, M. Itoh, and G. Tomita,
Z. Naturforsch. **37b**, 649 - 652 (1982).

[17] Electronic Absorption Spectra of Phenol Dimer and Toluene-Cyanobenzene Complexes as Studied by Mass Selected MPI-Nozzle Method",
K. Fuke and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **91**, 311 - 314 (1982).

[18] "A Thermal Lensing Study of Singlet Oxygen Reaction",
K. Fuke, M. Ueda, and M. Itoh, J. Am. Chem. Soc. **105**, 1091 - 1096 (1983).

[19] "Electronic Absorption Spectra of Phenol-$(H_2O)_n$ and $(Phenol)_n$ as Studied by the MS-MPI Method",
K. Fuke and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **94**, 97 - 101 (1983).

[20] "Electronic Absorption Spectrum of Hg-Ar Complexes in a Supersonic Jet",
K. Fuke, T. Saito, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **79**, 2487 - 2488 (1983).

[21] Electronic Spectra of van der Waals Molecules HgNe, HgAr, and HgKr in a Supersonic Jet",
K. Fuke, T. Saito, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **81**, 2591 - 2598 (1984).

[22] "Multiphoton Ionization Photoelectron Spectroscopy and Two-color Multiphoton Ionization Threshold Spectroscopy on the Hydrogen Bonded Phenol and 7-Azaindole in a Supersonic Jet",
K. Fuke, Y. Yoshiuchi, K. Kaya, Y Achiba, K. Sato, and K. Kimura, Chem. Phys. Lett. **108**, 179 - 184 (1984).

[23] "Electronic Spectra and Tautomerism of Hydrogen-bonded Complexes of 7-Azaindole in a Supersonic Jet",
K. Fuke, Y. Yoshiuchi, and K. Kaya, J. Phys. Chem. **88**, 5840 - 5844 (1984).

[24] "Electronic Spectra and Predissociation of Methoxy and Methoxy-Ar Complex in the *A* State",
K. Fuke, K. Ozawa, and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **126**, 119 - 123 (1986).

[25] "Double-Proton-Transfer Reaction in the Excited State of 1-Azacarbazole Dimer and 1-Azacarbazole-7-Azaindole Heterodimer Studied in a Supersonic Jet",
K. Fuke, T. Yabe, N. Chiba, T. Kohida, and K. Kaya,, J. Phys. Chem. **90**, 2309 - 2311 (1986).

[26] "Interatomic Potentials of HgXe van der Waals Complex Formed in Supersonic Jet as Studied by Laser Induced Fluorescence Spectroscopy",
K. Yamanouchi, J. Fukuyama, H. Horiguchi, S. Tsuchiya, K. Fuke, T. Saito, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **85**, 1806 - 1811 (1986).

[27] "Electronic Spectrum of $Hg(^3P_0)$-Ar Complex in a Supersonic Jet",
K. Fuke, S. Nonose, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **85**, 1696 - 1697 (1986).

[28] "Electronic Spectra and Intramultiplet Relaxation of Jet-Cooled Hg-CH_4, C_2H_6, N_2, and CO complexes",
K. Fuke, T. Saito, S. Nonose, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **86**, 4745 - 4753 (1987).

[29] "Electronic Spectra and Electronic Relaxation in Mercury van der Waals Complexes Studied in a Supersonic Jet"
K. Kaya and K. Fuke, *Physics and Chemistry of Small Clusters*, ed. by P. Jena, B. K.

Rao, and S. N. Khana, Plenum Press, 1987, pp681 - 687.

[30] "Electronic Spectra and Molecular Structure of Biphenyl and Para-Substituted Biphenyls in a Supersonic Jet",
Y. Takei, T. Yamaguchi, Y. Osamura, K. Fuke, and K. Kaya, J. Phys. Chem. **92**, 577 - 581 (1988).

[31 "Electronic Spectra of Jet-Cooled Phenyl Nitrene",
K. Ozawa, T. Ishida, K. Fuke, and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **150**, 249 - 253 (1988).

[32] "Reaction of Aluminum Clusters, Al_n (n = 7-24), with Oxygen and Ammonia",
K. Fuke, Y. Sone, N. Kikuchi, and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **147**, 479 - 483 (1988).

[33] "Photodissociation Dynamics of NH_3: Rovibronic Absorption Analysis of the *A*-*X* Transition and Nuclear Spin Polarization in the NH_2 ($X\,^2B_1$) Product",
K. Fuke, H. Yamada, Y. Yoshida, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **88**, 5238 - 5240 (1988).

[34] "Dynamics of Double-Proton-Transfer Reaction in the Excited-State Model Hydrogen Bonded Base Pairs",
K. Fuke and K. Kaya, J. Phys. Chem. **89,** 614 - 621 (1989).

[35] "Reaction of Vanadium and Cobalt Clusters with Ethylene and Acetylene",
S. Nonose, Y. Sone, N. Kikuchi, K. Fuke, and K. Kaya, Chem. Phys. Lett. **158**, 152-156 (1989).

[36] "Reaction of Aln Clusters with Oxygen and Ammonia",
K. Kaya, K. Fuke, S. Nonose, and N. Kikuchi, Z. Phys. **D12**, 571 - 573 (1989).

[37] "The Intramultiplet Mixing of $Zn(4^3P_J)$ by Collisions with ^4He and ^3He",
H. Umemoto, A. Masaki, T. Ohnuma, T. Takayanagi, S. Sato, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **93**, 4112 - 4116 (1990).

[38] "Photodissociation Dynamics of NH_3, NH_2D, NHD_2, and ND_3: Rovibronic Analysis of the *A*-*X* Transition",
A. Nakajima, K. Fuke, K. Tsukamoto, Y. Yoshida, and K. Kaya, J. Phys. Chem. **95**, 571 - 574 (1991).

[39] "The Intramultiplet Mixing of $Zn(4^3P_J)$ by Collision with Ar",
H. Umemoto, A. Masaki, T. Ohnuma, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Phys. B**24**, 1639 - 1644 (1991).

[40] "The Intramultiplet Relaxation of $Cd(5^3P_2)$ by H_2 and D_2",
H. Umemoto, A. Masaki, T. Ohnuma, K. Kuwahara, Y. Wada, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **94**, 7951 - 7957 (1991).

[41] "Picosecond Measurements of the Vibrationally Resolved Proton-Transfer Rate of the Jet-Cooled 1-Azacarbazole Dimer",
K. Fuke, K. Tsukamoto, F. Misaizu, and K. Kaya, J. Chem. Phys. **95**, 4074 - 4080 (1991).

[42] "The Intramultiplet Relaxation of $Cd(5^3P_2)$ Induced by Collisions with N2 and CO",
A. Masaki, T. Ohnuma, K. Kuwahara, H. Umemoto, Y. Wada, F. Misaizu, and K. Fuke, Chem. Phys. **158**, 155 - 160 (1991).

[43] "Photoionization of Clusters of Cs Atoms Solvated with H_2O, NH_3 and CH_3CN"

F. Misaizu, K. Tsukamoto, M. Sanekata, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. **188**, 241-246 (1992).

[44] "Intersystem Crossing and Intramultiplet Mixing of Excited Zn Atoms by Xe", H. Umemoto, T. Ohnuma, H. Ikeda, S. Tsunashima, K. Kuwahara, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **97**, 3282 -3 288 (1992).

[45] "Photoionization of Solvated Cs Atoms", K. Fuke, F. Misaizu, K. Tsukamoto, and M. Sanekata, *Physics and Chemistry of Finite Systems: From Clusters to Crystals,* ed by P. Jena, S. N. Khanna, and B. K. Rao, NATO ASI Ser., Kluwer Academic Publishers, Netherlands, 1992, p. 925-930.

[46] "Photodissociation of Size-Selected $Mg^{+}(H_2O)_n$ Ions for n =1 and 2", F. Misaizu, M. Sanekata, K. Tsukamoto, and K. Fuke, and S. Iwata, J. Phys. Chem. **96**, 8259 - 8264 (1992).

[47] "Electronic Structure and Reactivity of $Mg^{+}(H_2O)_n$ Cluster Ions", K. Fuke, F. Misaizu, M. Sanekata, K. Tsukamoto, and S. Iwata, Z. Phys. **D26**, S180 -182 (1993).

[48] "Photoionization and Photodissociation Studies on Aluminum-Water Clusters and Their Ions", F. Misaizu, K. Tsukamoto, M. Sanekata, and K. Fuke, Z. Phys. **D26**, S177 - 179 (1993).

[49] "Photoionization of Small Silicon Clusters: Ionization Potentials for Si_2 to Si_{40}", K. Fuke, K. Tsukamoto, and F. Misaizu, Z.Phys. D. 26, S204 - S206 (1993).

[50] "Nascent Rotational State Distuributions of $ZnH(X^2\Sigma^+)$ Produced in the Reactsion of $Zn(4^1P_1)$ with Simple Alkane Hydrocarbons", H. Umemoto, T. Sato, K. Takano, S. Tsunashima, K. Kuwahara, K. Sato, H. Ikeda, F. Misaizu, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett., **214**, 271-275 (1993).

[51] "Nascent Rotational and Vibrational Distributions in Both Products of the Reaction: $Zn(4^1P_1) + H_2O \longrightarrow ZnH(X^2\Sigma^+) + OH(X^2\Pi)$", K. Kuwahara, H. Ikeda, H. Umemoto, T. Sato, K. Takano, S. Tsunashima, K. Sato, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **99**, 2715 - 2722 (1993).

[52] "Near Threshold Photoionization of Silicon Clusters in the 248-146 nm region: Ionization Potentials of Si_n" K. Fuke, K. Tsukamoto, M. Sanekata, and F. Misaizu, J. Chem. Phys. **99**, 7807 - 7811 (1993).

[53] "Photodissociation Study on $Mg^{+}(H_2O)_n$, n=1-5: Electronic Structure and Photoinduced Intracluster Reaction", F. Misaizu, M. Sanekata, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **100**, 1161 - 1170 (1994).

[54] "Photoionization of Hypervalent Molecular Clusters: Electronic Structure and Stability of $NH_4(NH_3)_n$" K. Fuke, R. Takasu and F. Misaizu, Chem. Phys. Lett., **229**, 597 - 603 (1994).

[55] "Nascent Internal State Distributions of $ZnH(X^2\Sigma^+)$ Produced in the Reaction of $Zn(4^1P_1)$ with Some Alkane Hydrocarbons", H. Umemoto, S. Tsunashima, H. Ikeda, K. Takano, K. Kuwahara, K. Sato, K. Yokoyama, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. **101**, 4803 - 4808 (1994).

[56] "Reaction of Singly Charged Alkaline-earth Metal Ions with Water Clusters: Characteristic Size Distribution of Product Ions",
M. Sanekata, F. Misaizu, K. Fuke, S. Iwata, and K. Hashimoto, J. Am. Chem. Soc. 117, 747 - 754 (1995).

[57] "Photoelectron Spectroscopy of Mass-Selected Copper-Water Cluster Negative Ions",
F. Misaizu, K. Tsukamoto, M. Sanekata, and K. Fuke, Laser Chem. **15**, 195 - 207 (1995).

[58] "Molecular Orbital Studies of the Structures and Reactions of Magnesium-water Cluster Ions $Mg^+(H_2O)_n$",
H. Watanabe, S. Iwata, H. Nakamura, K. Hashimoto, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Am. Chem. Soc. 117, 755 - 763 (1995).

[59] "Ultrafast Photochemistry of Ammonia Clusters: Formation and Decay of Hypervalent Molecular Clusters Containing the NH_4 Radical",
K. Fuke and R. Takasu, Bull. Chem. Soc. Jpn., **68**, 3309 - 3318 (1995).

[60] "Photodissociation Study on $Ca^+(H_2O)_n$, n = 1 - 5: Electronic Structure and Photoinduced Intracluster Reaction",
M. Sanekata, F. Misaizu, and K. Fuke, J. Chem. Phys. 104, 9768 - 9778 (1996).

[61] "Electronic Structure and Stability of $NH_4(NH_3)_n$ and $NH_4(NH_3)_m(H_2O)_n$",
R. Takasu, K. Fuke, and F. Misaizu, Surface Review and Letters, **3**, 353 - 357 (1996).

[62] "Photoelectron Spectroscopy of Mass-Selected Metal-Water Cluster Negative Ions" ,
F. Misaizu, K. Tsukamoto, M. Sanekata, and K. Fuke, Surface Review and Letters, **3**, 405 – 410 (1996).

[63] "Study on Microscopic Solvation Process of Li Atom in Ammonia Clusters: Photoionization and Photoelectron Spectroscopies of $M(NH_3)_n$ (M=Li, Li^-)",
R. Takasu, K. Hashimoto, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett., 258, 94 - 100 (1996).

[64] "Electronic structure and stability of hypervalent molecular clusters". K. Fuke and R. Takasu, *"Structures and Dynamics of Clusters"* T. Kondow, K. Kaya and A. Terasaki, Eds., Universal Academy Press Inc. Tokyo, Japan. pp.219 - 226 (1996).

[65] "Microscopic Solvation Process of Alkali Atoms in Finite Clusters: Photoelectron and Photoionization Studies of $M(NH_3)_n$ and $M(H_2O)_n$ (M=Li, Li^-, Na^-)",
R. Takasu, F. Misaizu, K. Hashimoto, and K. Fuke, J. Phys. Chem.101, 3078- 3087 (1997).

[66] "Ab initio MO Study of Solvated Negative Alkali Atom Clusters: $[M(H_2O)_n]^-$ and $[M(NH_3)_n]^-$ (M = Na and Li, n = 1-3$^-$)",
K. Hashimoto, T. Kamimoto, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett., 266, 7 - 15 (1997).

[67] "Microscopic Solvation Process of Single Li Atom in Small Water",
R. Takasu, T. Taguchi, K. Hashimoto, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett, 290, 481 - 487 (1998).

[68] "Solvation of Sodium Dimer in Ammonia Clusters; Photoelectron Spectroscopy and ab initio Study of Na_2^- $(NH_3)_n$",
R. Takasu, K. Hashimoto, R. Okuda, and K. Fuke, J. Phys. Chem. 103, 349 - 354 (1999).

[69] "Structures, Spectroscopies and Reactions of Atomic Ions with Water Clusters",

K. Fuke, K Hashimoto, and S. Iwata, Adv. Chem. Phys. 110, 431 - 523 (1999).
[70] "Near Threshold Photoionization of Germanium Clusters in the 248-144 nm Region: Ionization Potentials for Ge_n",
K. Fuke and S. Yoshida, Europ. Phys. J. D9. 127 - 131 (1999).
[71] "Electronic Spectra of Solvated NH_4 Radicals, $NH_4(NH_3)_n$ (n = 1 - 6)",
S. Nonose, T. Taguchi, K. Mizuma and K. Fuke, Europ. Phys. J. D9. 309-311 (1999).
[72] "Photoionization Studies of Germanium and Tin Clusters in the Energy Region of 5.0 - 8.8 eV: Ionization Potentials for Ge_n (n = 2 - 57) and Sn_n (n = 2 - 41)",
S. Yoshida and K. Fuke, J. Chem. Phys. 111, 3880 - 3890 (1999).
[73] "Solvation Process of Na_m in Small Ammonia Clusters: Photoelectron Spectroscopy of $Na_m^-(NH_3)_n$ ($m \leq 3$)",
R. Takasu, H. Ito, K. Nishikawa, K. Hashimoto, R. Okuda, and K. Fuke, J. El. Sepctros. Relat. Phenom. 106, p. 127 - 140 (2000).
[74] " Photoionization and photodissociation studies of semiconductor clusters
S. Yoshida and K. Fuke, Trans. Mat. Res. Jpn, 25 995 - 998 (2000).
[75] "Photodissociation Spectroscopy of Li—H_2O and Li—D_2O Complexes",
R. Takasu, K. Nishikawa, N. Miura, K. Hashimoto, C. P. Schulz, I.V. Hertel, and K. Fuke, J. Phys. Chem. A105, 6602 - 6608 (2001).
[76] "Solvation of sodium atom and aggregates in ammonia clusters",
K. Fuke, K. Hashimoto and R. Takasu, M. A. Duncan, ed.
"*Advances in metal and semiconductor clusters, Vol.5 Metal ion solvation and metal-ligand interactions*" Elsevier, 1-37 (2001).
[77] "Photodissociation of $Mg^+(NH_3)$ Ion",
S. Yoshida, N. Okai, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. 347, 93 - 100 (2001).
[78] Y. Oshima, O. Kajimoto, and K. Fuke, "Isolated supermolecules", V. Balzani, ed.
"*Electron Transfer in Chemistry, Vol.4 Catalisis of electron transfer, Heterogeneous and gas-phase systems*" Woley-VCH, 775 - 804 (2001).
[79] "Electronic Spectra and Structures of Solvated NH_4 Radicals, $NH_4(NH_3)_n$ (n = 1 - 8)",
S. Nonose , T. Taguchi, F. Chen, S. Iwata, and K. Fuke, J. Phys. Chem., A, 106, 5242 - 5248 (2002).
[80] "Photo-Induced Reactions of $Hemin^+(DMSO)_n$ Clusters (n = 0 – 3) produced with Electrospray Ionization",
S. Nonose, H. Tanaka, No. Okai, T. Shibakusa, and K. Fuke, Eur. Phys. J. D20, 619 - 626 (2002).
[81] " Photodissociation and Ab Initio Studies of $Mg^+(NH_3)_n$, n = 1 – 4: Electronic Structure and Photoinduced Reaction",
S. Yoshida, K. Daigoku, N. Okai, A. Takahata, A. Sabu,
K. Hashimoto and Kiyokazu Fuke, J. Chem. Phys. 117, 8657 - 8669 (2002).
[82] "Structure and Reactions of Biomolecular Ions Produced with Electrospray Ionization"
S. Nonose, H. Tanaka, N. Okai, T. Shibakusa, and K. Fuke, Eur. Phys. J. D24, 335 - 338

(2003).
[83] " Spectroscopy and Dynamics of NH_4 in Ammonia Clusters",
Kiyokazu Fuke, in Trends in Physical Chemistry, Vol. 10 (2004), pp25 - 48.
[84] "Ultrafast Relaxation Process of Excited-State NH_4 Radical in Ammonia Clusters",
N. Okai, A. Takahata, M. Morita, S. Nonose, and K. Fuke, J. Phys. Chem. A108, 727 - 733 (2004).
[85] "Electronic Structure, Stability, and Formation Dynamics of Hypervalent Molecular Clusters: $CH_3NH_3(CH_3NH_2)_n$ ",
N. Okai, A. Takahata, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. 386, 442 - 447 (2004).
[86] "Multiphoton Ionization and Oxidation Processes of Mg-Ammonia Clusters",
N. Okai, S. Yoshida, K. Aranishi, A. Takahata and K. Fuke, Phys. Chem. Chem. Phys. 7, 921 - 929 (2005).
[87] "Structures and Reactions of Hydrated Biomolecular Cluster Ions", S. Nonose, S. Iwaoka, K. Mori, Y. Shibata, and K. Fuke, Europ. Phys. J. D.,34 315 - 319 (2005).
[88] "Microscopic Dissolution Process of Na_3 in Water Clusters ",
A. Fujihara, C. Miyata, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. 411, 345 - 349 (2005).
[89] "Hydration Process of Alkaline-earth Metal Atoms in Water Clusters",
Nobuhiro Okai, Haruki Ishikawa[§] and Kiyokazu Fuke, Chem. Phys. Lett. 415, 155-160 (2005).
[90] "Hydration Process of Na_2 in Small Water Clusters: Photoelectron Spectroscopy and Theoretical Study of $Na_2^-(H_2O)_n$",
A. Fujihara, C. Miyata, A. Maekawa, and K. Fuke K. Daigoku, N. Murata, and K. Hashimoto, J. Phys. Chem. A 111, 7364 - 7373 (2007).
[91] "Photodissociation and Spectroscopic Study of Cold Protonated Dipeptides",
A. Fujihara, H. Matsumoto, Y. Shibata, H. Ishikawa, and K. Fuke, J. Phys. Chem. A , 112, 1457 - 1463 (2008).
[92] "Solvation Structure and Stability of Hypervalent $NH_4(CH_3OH)_m(NH_3)_n$ Clusters",
Y. Yamada, Y. Nishino, A. Fujihara, H. Ishikawa, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. 459, 65 - 69 (2008).
[93] "Real-time Observation of Formation and Relaxation Dynamics of NH_4 in $(CH_3OH)_m(NH_3)_n$Clusters",
Y. Yamada, A. Fujihara, Y. Nishino, H. Ishikawa, K. Fuke, J. Phys. Chem. A, 113, 2734 - 2744 (2009).
[94] "Microsolvation and Protonation Effects on Geometric and Electronic Structures of Tryptophan and Dipeptides", A. Fujihara, N. Noguchi, Y. Yamada, H. Ishikawa, and K. Fuke, J. Phys. Chem. A 113, 8169 – 8175 (2009).
[95] "Infrared Spectroscopy of Jet-Cooled Tautomeric Dimer of 7-Azaindole: A Model System for the Ground-State Double Proton Transfer Reaction"
H. Ishikawa, H. Yabuguchi, Y. Yamada, A. Fujihara and K. Fuke, J. Phys. Chem. A**114**, 3199-3206 (2010).

[96] "Development of Novel Spectroscopic Magnet Combining Mass Spectroscopy with Nuclear Magnetic Resonance"Kentaro Kominato, Msaaki Takeda, Itsuka Minami, R. Hirose, O. Ozaki, H. Ohta, H. Tou, H. Ishikawa, M. Sakurai, and K. Fuke, IEEE Transactions on Applied Superconductivity,20,736- 739 (2010).

[97] "Solvation Structure and Stability of $[(CH_3)_2NH]_m(NH_3)_n$-H Hypervalent Clusters: Ionization Potentials and Switching of Hydrogen-atom Localized Site", Y. Yamada, H. Ishikawa, and K. Fuke, J. Phys. Chem. A**115**, 8380-8391 (2011).

[98] "Photodissociation spectroscopy of the temperature controlled hydrated calcium ion" H. Ishikawa, T. Nakano, T. Eguchi, T. Shibukawa, and K. Fuke, Chem. Phys. Lett. 514, 234-238 (2011).

[99] "Design and development of a novel nuclear magnetic resonance detection for the gas phase ions by magnetic resonance acceleration technique" , K. Fuke, M. Tona, A. Fujihara, and H. Ishikawa, Rev. Sci. Instrum. 83, 085106-1-8 (2012).

[100] "Deuteration effect on the NH/ND stretch band of the jet-cooled 7-azaindole and its tautomeric dimers: Relation between the vibrational relaxation and the ground-state ", H. Ishikawa, T. Nakano, T. Takashima, H. Yabuguchi, and K. Fuke, Chem. Phys. 419, 101-106 (2013).

[101] "Dynamics of Proton Transfer Reactions of Model Base Pairs in the Ground and Excited States: Revisited", K. Fuke, and H. Ishikawa, Chem. Phys. Lett. 623, 117-129 (2015) (Invited).

[102] "Preparation of cold ions in strong magnetic field and its application to gas-phase NMR spectroscopy ", K. Fuke, Y. Ohshima, and M. Tona, Hyperfine Interactions, 236(1), 9-18 (2015).

2. 総説・解説

1. 冨宅喜代一、"熱レンズ効果の分光学への応用"分光研究、 Vol. 29, 333 (1980).
2. 冨宅喜代一、伊藤道也、"熱レンズ効果の分光学への応用"応用物理、 Vol. 49, 857 (1980).
3. 冨宅喜代一、茅幸二、"分子線でクラスターをつくる"、科学, 52, 648 (1982).
4. Fujihara A., Ishikawa H., Fuke K. : Construction of a Temperature-Variable Photodissociation Spectrometer for Gas-Phase Cluster Ions and Its Application to Peptides、The Bulletin of the Nano Science and Technology, 6, 2007, 29-34.
5. " Spectroscopy and Dynamics of NH_4 in Ammonia Clusters", Kiyokazu Fuke, in *Trends in Physical Chemistry*, Vol. 10 (2004), p25-48.
6. 冨宅喜代一、"クラスターの電子状態"、季刊化学総説 「マイクロクラスターの科学の新展開」、学会出版センター、平成10年 p39-p56.

7. K. Fuke, K. Hashimoto, and R. Takasu, "Solvation of Sodium Atom and Aggregates in ammonia Clusters", in Advances in Metal and Semiconductor Clusters Vol. 5, Ed. by M. M. Duncan, pp1-pp38, Elsevier, 2001.
8. K. Fuke, A. Nakajima, and K. Kaya, "Dynamics of Double Proton-Transfer Reaction in the Excited-State of Hydrogen-Bonded Dimers as Studied in a Supersonic Jet", in "Dynamics and Mechanisms of Photoinduced Electron Transfer and Related Phenomena", North-Holland Delta Series, pp167 - 173 (1992). (Yamada Conference, 1991 Osaka).
9. K. Fuke, A. Nakajima, and K. Kaya, “Dynamics of double proton transfer reaction in the excited state of hydrogen bonded dimers as studied in a supersonic jet.” *Dynamics and Mechanisms of Photoinduced Transfer and Related Phenomena.* (N. Mataga, T. Okada,and H. Masuhara, eds.) (Amsterdam, Elsevier Science Publishers B.V., 1992). Pages 167-173.

3. 著書

1. 第４版実験化学講座　７、分光II ″光源″、　丸善株式会社　平成４年　p9 － p25

2. 第４版実験化学講座　8、分光III　″金属クラスターの反応″、　丸善株式会社　平成４年　p285- p292.

3. 第５版実験化学講座　5、化学実験のための基礎技術、　丸善株式会社　平成15年　p285- p292.

4. 可視・紫外分光法　共著　講談社サイエンティフィク　(2009).

5. Y. Ohshima, O. Kajimoto, and K. Fuke, (2001) Isolated Supermolecules, in Electron Transfer in Chemistry (ed V. Balzani), Wiley-VCH Verlag GmbH, Weinheim, Germany.

（神戸大学紀要）
[1] "Photoionization and Photodissociation Processes of Multiply-Charged Cytochrome c Ions Produced by Electrospray Ionization", S. Nonose, H. Tanaka, and K. Fuke,
Mem. Grad. School Sci. & Technol. Kobe Univ. 22-A, 21-31 (2004).