

I 分子・クラスターの光イオン化解離過程の動力的研究

Dynamics of photo-induced ionization reactions

下條竜夫
Gejo, T.

近年の第3世代シンクロトロン放射光(SR)と関連する分光技術の目覚ましい進歩は、簡単な分子の内殻電離しきい値近傍における振動分光を可能にし、従来の一電子近似としてのスペクトル構造のみならず、それ以上の詳細な物理量および微細構造の観測を実現している。我々はコインシデンス分光法、高分解能光電子分光、画像観測法、角度分解飛行時間質量スペクトル法などを用い、様々な内殻励起状態における分子および気相クラスターの光イオン化解離のダイナミクスを研究している。

II 凝縮相における超高速分子ダイナミクスの観測と解明

Observation and elucidation of ultrafast molecular dynamics in condensed phase

竹内佐年
Takeuchi, S.

原理限界に近い極短パルス光の発生・評価と非線形光学過程にもとづく独自の分光法の開発により、凝縮相分子の励起状態ダイナミクスや反応ダイナミクスを観測し、その分子機構を解明する。特に、電子コヒーレンスや振動コヒーレンスの重要性を念頭に置きつつ、電子状態と振動状態の両面から分子ダイナミクスを観測する。これにより、反応分子の電子状態変化と構造変化をリアルタイムで追跡し、両者の連動性・協奏性を解明し、反応座標の全体像の理解をめざす。

III 単分子に対する線形・非線形分光方法論の開拓

Development of linear/nonlinear spectroscopic methods for single molecules

竹内佐年
Takeuchi, S.

単一分子レベルの特性や振舞いを明らかにするために、超高真空極低温走査型トンネル顕微鏡と極短パルス光源を融合させた新たな分光方法論の開拓をめざしている。トンネル接合部位に外部から極短パルス光を導入することで、探針内のプラズモン共鳴によりその直下に生じた局所増強電場を利用して線形および非線形分光を行う。これにより高い時空間分解能を備えた分子観測を実現し、トンネル顕微鏡による幾何学的構造情報に加えて、様々な分光による物理的・化学的特性の評価とダイナミクスの観測をめざす。超高真空槽への極短パルス光の伝送などの基盤技術の開発から取り組んでいる。

発表論文 List of Publications

- I-1 下條竜夫・坂野卓也・田中結花 (兵庫県立大)・玉作賢治・大浦正樹 (理研)・大沢仁志 (JASRI) : X線チョッパーによる原子分子の多価イオン化過程の測定、*RIKEN Annual Report* (2018)
- I-2 M. Oura, T. Gejo, K. Nagaya, Y. Kohmura, K. Tamasaku, L. Journel, M. N. Piancastelli, M. Simon: Hard x-ray photoelectron spectroscopy on heavy atoms and heavy element containing molecules using synchrotron radiation up to 35 keV at SPring-8 undulator beamlines, *New Journal of Physics*, 21, 043015 (2019)
- I-3 N. Boudjemia, K. Jankala, T. Gejo, K. Nagaya, K. Tamasaku, M. Huttula, M. N. Piancastelli, M. Simon, M. Oura: Deep core photoionization of iodine in CH₃I and CF₃I molecules: how deep down does the chemical shift reach?, *Physical Chemistry Chemical Physics* 21, 10 (2019)
- I-4 坂野卓也・下條竜夫: X線チョッパーを利用した飛行時間型質量分析測定、技術・人材マッチング交流会、兵庫県立大学、2019年2月
- I-5 坂野卓也・下條竜夫・大沢仁志・大浦正樹: X線チョッパーを利用した飛行時間型質量分析測定、第32回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、福岡、2019年1月
- I-6 下條竜夫: X線自由電子レーザーとフェムト秒レーザーによる分子軌道変化の直接観察、原子衝突学会、京都大 (宇治)、2018年10月
- I-7 長安堯裕・竹内佐年: X線自由電子レーザーを用いたポンププローブ分光法と光電子分光法による価電子帯分子軌道の動的観察、兵庫県立大学 知の交流シンポジウム、姫路、2018年9月
- I-8 坂野卓也・下條竜夫: 硬X線領域での光イオン化質量スペクトルおよび光電子スペクトルの測定、兵庫県立大学 知の交流シンポジウム、姫路、2018年9月
- I-9 T. Gejo, T. Nishie, K. Tanaka, T. Tanaka, A. Niozu, K. Nagaya, R. Yamamura, O. Takahashi, T. Togashi, M. Oura, A. Verna: Direct observation of dynamics of molecule orbitals by pump and probe technique with X-ray FEL, 化学反応討論会、関西光科学研究所 (奈良)、2018年6月
- II-1 M. Iwamura, K. Kimoto, K. Nozaki, H. Kuramochi, S. Takeuchi, T. Tahara: Metal-metal bond formations in [Au(CN)₂]_n (n = 3, 4, 5) oligomers in water identified by coherent nuclear wavepacket motions, *Journal of Physical Chemistry Letters*, 9, 7085 - 7089 (2018)
- II-2 K. Inoue, S. Tahara, Y. Kato, S. Takeuchi, T. Tahara, H. Kandori: Spectroscopic study of proton transfer mechanism of inward proton pump rhodopsin, *Parvularcula oceani* xenorhodopsin, *Journal of Physical Chemistry B*, 122, 6453 - 6461 (2018)
- II-3 S. Tahara, S. Takeuchi, R. Abe-Yoshizumi, K. Inoue, H. Ohtani, H. Kandori, T. Tahara: Origin of the reactive and non-reactive excited States in the primary reaction of rhodopsins: pH dependence of femtosecond absorption of light-driven sodium ion pump rhodopsin KR2", *Journal of Physical Chemistry B*, 122, 4784 - 4792 (2018)
- II-4 H. Kuramochi, S. Takeuchi, T. Tahara: Ultrafast photodissociation dynamics of diphenylcyclopropanone studied by time-resolved impulsive stimulated Raman spectroscopy, *Chemical Physics*, 512, 88 - 92 (2018)
- II-5 竹内佐年: 分子の構造ダイナミクス追跡とその極限化、日本分光学会中国四国支部講演会、広島大学 (広島)、2019年3月
- II-6 竹内佐年: 反応分子の超高速構造ダイナミクス追跡、強光子場科学研究懇談会、理化学研究所放射光センター (兵庫)、2019年1月
- II-7 S. Takeuchi: Ultrafast time-domain Raman study of bond strengthening in oligomers of Au(I) complex, India-Japan Mini-Workshop: Frontiers in Molecular Spectroscopy, Kobe University (Japan), 2018
- II-8 S. Takeuchi: Ultrafast time-domain Raman approach to probe initial events in photoreception, 5th Ultrafast Dynamic Imaging of Matter (UFDIM), Crete (Greece), 2018
- II-9 竹内佐年: 極短パルス光で探る分子の形と動きと反応、多重極限物質科学研究センターセミナー、

兵庫県立大学、2018年6月

II-10 竹内佐年：超高速時間領域ラマン分光法を用いた光受容初期過程の解明、兵庫県立大学細胞制御Ⅱ講座セミナー、兵庫県立大学、2018年6月

II-11 竹内佐年：超高速時間領域ラマン分光法を用いた反応分子の構造追跡、平成30年度日本分光学会年次講演会シンポジウム、慶応大学（横浜）、2018年5月

科学研究費補助金等

- 1 兵庫県立大学特別研究助成金(平成30年度)
研究課題 教養教育のための新規教育プログラム開発
研究代表者 下條竜夫
- 2 学術研究助成基金助成金（平成28年度～30年度） 基盤研究C 課題番号16K05520
研究課題 液体エアロゾルパルス生成法の開発とその電子スペクトル測定
研究代表者 下條竜夫
- 3 兵庫県立大学特別研究助成金(平成30年度) 先導研究A（個人）
研究課題 単一分子の超高速分光方法論の開拓による発光ダイナミクス研究
研究代表者 竹内佐年
- 4 科学研究費補助金（平成28年度～30年度） 基盤研究(B) 課題番号16H04102
研究課題 電子と水素結合の連動ダイナミクスを可視化するアト秒化学研究をめざした実験的試み
研究代表者 竹内佐年