

Molecular Reaction Dynamics

物質反応論 I

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

相賀則宏・竹内佐年
Aiga, N., 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

相賀則宏・竹内佐年
Aiga, N., 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、探針部位近傍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 Tatsuo Gejo, Tatsuru Nishie, Takahiro Nagayasu, Kenta Tanaka, Yoshihito Tanaka, Akinobu Niozu, Kiyonobu Nagaya (京大), Ryosuke Yamamura, Nozomi Futamata, Taiga Suenaga, Osamu Takahashi (広島大), Tadashi Togashi, Shigeki Owada (広島大), Hikaru Fujise (広島大), Adriano Verna (ローマ大), Makina Yabashi and M Oura (理研): Dissociation and ionization dynamics of CF_3I and CH_3I molecules via pump-and-probe experiments using soft X-ray free-electron laser, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 54, 144004 (2021).
- I-2 N. Boudjemia, K. Jänkälä (オウル大), T. Gejo, Y. Kohmura (理研), M. Huttula (オウル大), M. N. Piancastelli, M. Simon (ソルボンヌ大), M. Oura, and R. Püttner (ベルリン自由大): Experimental and theoretical study of the Kr L-shell Auger decay, *Phys. Rev. A* 104, 012804 (2021).
- II-1 倉持光 (分子研)・竹内佐年・岩村宗高 (富山大)・田原太平 (理研): フェムト秒時間分解インパルス誘導ラマン分光による光誘起結合生成ダイナミクスの実時間構造追跡, *光学* 51 (1号), 1 - 7 (2022).
- II-2 M. M. Sartin, M. Osawa (日本工業大), S. Takeuchi, T. Tahara (理研): Ultrafast dynamics of an azobenzene-containing molecular shuttle based on a rotaxane, *Chemical Communications*, 58, 961 - 964 (2022).
- II-3 T. Fujisawa (理研), S. Masuda (東工大), S. Takeuchi, T. Tahara (理研): Femtosecond time-resolved absorption study of signaling state of a BLUF protein PixD from the cyanobacterium *synechocystis*: hydrogen bond rearrangement completes during forward proton-coupled electron transfer, *Journal of Physical Chemistry B*, 125, 12154 - 12165 (2021).
- II-4 岩村宗高・渡邊ほのか・野崎浩一 (富山大)・高梨司・倉持光 (理研)・竹内佐年・田原太平 (理研): 「選択励起された白金(II)錯体会合体の超高速時間分解分光計測」, 第 32 回配位化合物の光化学討論会, オンライン開催, 2021 年 8 月.
- II-5 P. Kumar, E. Fron (KU Leuven), H. Hosoi (東邦大), H. Kuramochi (理研), S. Takeuchi, H. Mizuno (KU Leuven), T. Tahara (理研): Excited-state proton transfer dynamics in LSSmOrange studied by time-resolved impulsive stimulated Raman spectroscopy, *Journal of Physical Chemistry Letters*, 12, 7466 - 7473 (2021).
- II-6 H. Kuramochi (理研), S. Takeuchi, H. Kamikubo, M. Kataoka (奈良先端大), T. Tahara (理研): Skeletal structure of the chromophore of photoactive yellow protein in the excited state investigated by ultraviolet femtosecond stimulated Raman spectroscopy, *Journal of Physical Chemistry B*, 125, 6154 - 6161 (2021).
- II-7 W. Kim (Yonsei Univ.), S. Tahara, H. Kuramochi (理研), S. Takeuchi, T. Kim (Yonsei Univ.), T. Tahara (理研), D. Kim (Yonsei Univ.): Mode-specific vibrational analysis of exciton delocalization and structural dynamics in conjugated oligomers, *Angewandte Chemie International Edition*, 60, 16999 - 17008 (2021).
- III-1 相賀則宏: 和周波分光で見る結晶氷ナノ薄膜中の水分子配向, *レーザー研究*, 50, 27 - 31 (2022).
- III-2 相賀則宏・竹内佐年: 「走査型トンネル顕微鏡を用いたペンタセン誘導体の電流誘起発光の観測」, 第 15 回分子科学討論会 2021, オンライン開催, 2021 年 9 月.
- III-3 相賀則宏・竹内佐年: 「走査型トンネル顕微鏡を用いた単一分子レベルの電流誘起発光分光の試み～単一分子の構造と振舞いを観測可能な分光測定への挑戦～」, 兵庫県立大学 知の交流シンポジウム 2021, オンライン開催, 2021 年 9 月.
- III-4 相賀則宏・竹内佐年: 「STM 探針増強電場を用いたペンタセン誘導体の単一分子レベルのラマン分光」, 日本物理学会第 77 回年次大会, オンライン開催, 2022 年 3 月.

科学研究費補助金等

- 1 科学研究費補助金 (令和2年度～5年度) 基盤研究 (B) 課題番号 20H02672
研究課題 マイナーアクチノイド回収用抽出剤の放射線分解機構の解明
研究分担者 下條竜夫 (研究代表者: 宮崎康典 (JAEA))
- 2 科学研究費補助金 (令和元年度～4年度) 基盤研究 (A) 課題番号 19H00889
研究課題 探針増強電場を用いた単一分子の非線形および時間分解分光方法論の開拓
研究代表者 竹内佐年
- 3 科学研究費補助金 (令和3年度～6年度) 若手研究 課題番号 21K14697
研究課題 走査型トンネル顕微鏡と極短パルス光による有機半導体単一分子の電子状態の解明
研究代表者 相賀則宏