

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 動力学的研究

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)やX線自由電子レーザーと関連する分光技術の目覚ましい進歩により、分子の詳細な物理量および微細構造の測定、およびその時間変化の観測が可能となっている。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。また、近年はX線自由電子レーザーと紫外光レーザーを併用して、ポンプ・プローブ分光法による分子の解離過程の動力学研究も行っている。

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 T. Gejo, Y. Tanaka, T. Sakano, S. Takeuchi, O. Takahashi (広島大), H. Osawa, K. Sugimoto, K. Tamasaku, M. Oura (理研), "Investigation of multi-ionization processes of Kr and Xe using short-pulse X-rays and time-of-flight apparatus", *Journal of Physics B: At. Mol. Opt. Phys.* 56, 065002 (7 pp) (2023).
- II -1 P. Kumar, H. Kuramochi, S. Takeuchi, T. Tahara (理研), "Photoexcited plasmon-driven ultrafast dynamics of the adsorbate probed by femtosecond time-resolved surface-enhanced time-domain Raman spectroscopy", *Journal of Physical Chemistry Letters*, 14, 2845 - 2853 (2023).
- II -2 M. Iwamura, R. Urayama, A. Fukui, K. Nozaki (理研), L. Liu, H. Kuramochi, S. Takeuchi, T. Tahara (理研), "Spectroscopic mapping of the gold complex oligomers (dimer, trimer, tetramer, and pentamer) by excited-state coherent nuclear wavepacket motion in aqueous solutions", *Physical Chemistry Chemical Physics*, 25, 966 - 974 (2023).
- II -3 K. Hanaoka (慶応大), S. Iwaki, K. Yagi (理研), T. Myochin, T. Ikeno, H. Ohno, E. Sasaki, T. Komatsu, T. Ueno, M. Uchigashima, T. Mikuni, K. Tainaka, S. Tahara, S. Takeuchi, T. Tahara (理研), M. Uchiyama, T. Nagano, Y. Urano (東大), "A general design strategy to precisely control the emission of fluorophores via a twisted intramolecular charge transfer (TICT) process", *Journal of the American Chemical Society*, 144, 19778 - 19790 (2022).
- II -4 岩村宗高・野崎浩一 (富山大)・Li Liu・倉持光・竹内佐年・田原太平 (理研):「様々な濃度の溶液中におけるジシアノ金(I)錯体の2量体から5量体の核波束運動」、第16回分子科学討論会2022横浜、神奈川・横浜、2022年9月。
- II -5 岩村宗高・浦山里奈・福井愛理・野崎浩一 (富山大)・Li Liu・倉持光・竹内佐年・田原太平 (理研):「水溶液中におけるジシアノ金(I)錯体の励起2量体から5量体の吸収・発光および振動スペクトル」、第33回配位化合物

の光化学討論会、オンライン、2022年8月.

- III-1 N. Aiga, S. Takeuchi: “A straightforward optical alignment protocol for STM-based single molecule spectroscopy”, *Applied Physics Letters*, 121, 091601 (2022).
- III-2 N. Aiga, S. Takeuchi: “Single-molecule Raman spectroscopy of a pentacene derivative adsorbed on the nonflat surface of a metallic tip”, *Journal of Physical Chemistry C*, 126, 16227-16235 (2022).
- III-3 相賀則宏・竹内佐年:「走査型トンネル顕微鏡を用いたナノイメージングと単分子レベルのラマン分光研究」、兵庫県立大学教育研究全学教員集会、兵庫県立大学姫路工学キャンパス、2022年9月.
- III-4 相賀則宏・竹内佐年:「探針増強電場を用いたペンタセン誘導体の単分子ラマン分光と吸着ダイナミクスの観測」、第16回分子科学討論会2022 横浜、神奈川・横浜、2022年9月.
- III-5 長澤武範・相賀則宏・竹内佐年:「走査型トンネル顕微鏡へのレーザー光の導入技術と単一分子ラマン分光研究」、兵庫県立大学・知の交流シンポジウム2022、兵庫・姫路、2022年9月.
- III-6 長澤武範・相賀則宏・竹内佐年:「走査型トンネル顕微鏡へのレーザー光の導入技術と単一分子ラマン分光研究」、技術・人材マッチング交流会2022、兵庫・上郡、2022年12月.
- III-7 相賀則宏:「走査型トンネル顕微鏡によるナノイメージングと探針増強電場を用いた単分子レベル分光研究」、理学研究科セミナー、兵庫県立大学播磨理学キャンパス、2022年12月.
- III-8 竹内佐年:「針でなぞり、光でさぐる単一分子の構造と振舞い」、九州大学理学部化学教室公開講演会、福岡・九州大学、2022年12月(招待講演).

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