

# 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", 38th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, (June 7 - 9, 2023, Hakata, Japan).
- II -1 H. Kuramochi, T. Tsutsumi, K. Saita, Z. Wei, M. Osawa, P. Kumar, L. Liu (理研), S. Takeuchi, T. Taketsugu (北海道大), T. Tahara (理研), "Ultrafast Raman Observation of the Phantom State of Photoisomerization", Nature Chemistry 16, 22 - 27 (2024).
- II -2 H. Kuramochi, T. Tsutsumi, K. Saita, Z. Wei, M. Osawa, P. Kumar, L. Liu (理研), S. Takeuchi, T. Taketsugu (北海道大), T. Tahara (理研), "Catching the phantom state of photoisomerization", 8th Asian Spectroscopy Conference, Atama Kogen, Niigata (Japan), September 3 - 6, 2023.
- II -3 M. Iwamura, K. Nozaki (富山大), H. Kuramochi (分子研), S. Takeuchi, T. Tahara (理研), "Nuclear-wavepacket-motions of the metallophilic oligomers in solutions", 8th Asian Spectroscopy Conference, Atama Kogen, Niigata (Japan), September 3 - 6, 2023.
- III -1 長澤武範・相賀則宏・竹内佐年:「走査型トンネル顕微鏡を用いた分子吸着構造と探針増強ラマン散乱分光法を利用した分子構造の研究」、技術・人材マッチング交流会2023、兵庫・上郡、2023年12月。
- III -2 Norihiro Aiga, Takenori Nagasawa, Satoshi Takeuchi:「Tip-enhanced Raman study of pentacene derivative on Ag surface: adsorption structure and dynamics」、NanospecFY2023、愛知・岡崎、2024年3月。
- III -3 相賀則宏・長澤武範・竹内佐年:「TIPS-ペンタセン分子膜の吸着構造と探針増強ラマン分光への展開」、日本物理学会2024春季大会、オンライン、2024年3月。

## 物質科学専攻

博士前期課程

長澤武範： 走査型トンネル顕微鏡を用いた分子吸着構造の研究と探針増強  
ラマン分光系の構築

## 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