

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. Walmsley (オックスフォード大), F. Allum (SLAC), J. Harries (QST), Y. Kumagai (奈良女), S. Lim, J. McManus (オックスフォード大), K. Nagaya (京大), M. Britton (SLAC), M. Brouard (オックスフォード大), P. Bucksbaum (SLAC), M. Fushitani (名大), I. Gabalski (SLAC), T. Gejo (兵庫県立大), P. Hockett (NRC), A. J. Howard (SLAC), H. Iwayama (分子研), E. Kukk (テュルク大), C. Lam (オックスフォード大), R. S. Minns (サウサンプトン大), A. Niozu (京大), S. Nishimuro (兵庫県立大), J. Niskanen (テュルク大), S. Owada (JASRI), W. O. Razmus (サウサンプトン大), D. Rolles (カンザス州立大), J. Somper (オックスフォード大), K. Ueda (東北大), J. Unwin (オックスフォード大), S. Wada (広島大), J. L. Woodhouse (サウサンプトン大), R. Forbes (SLAC), M. Burt and E. M. Warne (オックスフォード大), "Distinguishing the XUV-induced Coulomb explosion dynamics of iodo-benzene using covariance analysis", *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **57** 235101 (2024)
- I-2 下條 竜夫, 西江 樹, 田中 義人 (兵庫県立大), 仁王頭 明伸, 永谷 清信 (京大), 山村 涼介, 高橋 修 (広島大), 富樫 格, 大和田 成起 (JASRI), A. ベルーナ (ローマ大), 矢橋 牧名, 大浦 正樹 (理研), "内殻電子2光子イオン化による分子の解離ダイナミクスの研究", *SPring-8/SACLA利用研究成果集* 2024年12巻5号 p. 351-354
- I-3 J. Unwin (オックスフォード大), W. O. Razmus (サウサンプトン大), F. Allum (SLAC), J. Harries (QST), Y. Kumagai (奈良女), K. Nagaya (京大), M. Britton (SLAC), M. Brouard (オックスフォード大), P. Bucksbaum (SLAC), M. Fushitani (名大), I. Gabalski (SLAC), T. Gejo (兵庫県立大), P. Hockett (NRC), A. J. Howard (SLAC), H. Iwayama (分子研), E. Kukk (テュルク大), C. Lam, J. McManus (オックスフォード大), R. S. Minns (サウサンプトン大), A. Niozu (広島大), S. Nishimuro (兵庫県立大), J. Niskanen (テュルク大), S. Owada (JASRI), J. D. Pickering (レスター大), D. Rolles (カンザス州立大), J. Somper (オックスフォード大), K. Ueda (東北大), S. Wada (広島大), T. Walmsley, J. L. Woodhouse (オックスフォード大), R. Forbes (SLAC), M. Burt, and

- E. M. Warne (オックスフォード大), “Time-Resolved Probing of the Iodobenzene C-Band Using XUV-Induced Electron Transfer Dynamics, *ACS Physical Chemistry*”, *ACS Phys. Chem. Au* 2024, 4, 6, 620-631
- I -4 W. O. Razmus (サウサンプトン大), F. Allum (SLAC), J. Harries (QST), Y. Kumagai(奈良女), K. Nagaya(京大), S. Bhattacharyya, M. Britton (SLAC), M. Brouard (オックスフォード大), P. H. Bucksbaum (SLAC), K. Cheung (オックスフォード大), S. W. Crane (ヘリオット大), M. Fushitani(名大), I. Gabalski (SLAC), T. Gejo (兵庫県立大), A. Ghrist (SLAC), D. Heathcote (オックスフォード大), Y. Hikosaka (富山大), A. Hishikawa (名大), P. Hockett (NRC), E. Jones, E. Kukk (チュルク大), H. Iwayama (分子研), H. V. S. Lam (カンザス州立大), J. W. McManus, D. Milesevic (オックスフォード大), J. Mikosch (カッセル大), S. Minemoto (東大), A. Niozu (広島大), A. J. Orr-Ewing (ブリストル大), S. Owada (JASRI), D. Rolles, A. Rudenko (カンザス州立大), D. Townsend (ヘリオット大), K. Ueda (東北大), J. Unwin, C. Vallance (オックスフォード大), A. Venkatachalam (カンザス州立大), S. Wada (広島大), T. Walmsley, E. M. Warne, J. L. Woodhouse, M. Burt (オックスフォード大), M. N. R. Ashfold (ブリストル大), R. S. Minns (サウサンプトン大) and R. Forbes (SLAC), “Exploring the ultrafast and isomer-dependent photodissociation of iodothiophenes via site-selective ionization,”, *Physical Chemistry Chemical Physics* 26(16) 12725-12737 (2024)
- I -5 下條竜夫、田中結花、坂野卓也、竹内佐年 (兵庫県立大)、高橋修 (広島大)、大沢仁志 (JASRI)、杉本邦久 (近畿大)、玉作賢治、大浦正樹 (理研)、「短パルスX線と飛行時間型検出器を用いた希ガスの多価イオン化過程の研究」、原子衝突学会第49回年会 (2024年8月7日～9日、奈良)
- II -1 Yoshihiko Mizukami, Kakeru Arai, Ryoma Nishiguchi, Norihiro Aiga, Satoshi Takeuchi, Osamu Iwanaga, Yoshihiro Miyake, “Photochemical properties and reactivities of 2,7-diazapyrene boron complexes”, *Chemistry Letters*, 54, upaf010 (2025)
- II -2 Satoshi Takeuchi, “Our quest for ultimate temporal & spatial resolutions in Raman spectroscopy”, International workshop “Frontiers in experimental/theoretical chemistry for functional materials”, Yonsei University, Korea, February 14, 2025
- II -3 竹内佐年:「ラマン分光における時間・空間分解能の追究」、四大学合同研究発表会 光物性・物質科学シンポジウム、兵庫・上郡、2025年3月5日
- II -4 Satoshi Takeuchi, “Our quest for ultimate temporal & spatial resolutions in Raman spectroscopy”, The 5th UOH-FZU-OMU Joint International Symposium, Himeji, Hyogo, November 26, 2024
- II -5 竹内佐年:「ラマン分光における時間・空間分解能の追究」、日本分光学会関西支部 令和6年度第3回講演会、兵庫・三田、2025年2月19日
- III -1 相賀則宏、竹内佐年:「探針増強ラマン散乱による TIPS-ペンタセン分子吸着配向の評価」、日本物理学会 2025 春季大会、オンライン、2025 年 3 月
- III -2 木村亮雅、相賀則宏、竹内佐年:「単一分子分光に向けた探針増強活性の評価」、技術人材マッチング交流会、兵庫・上郡、2024 年 12 月
- III -3 Norihiro Aiga (兵庫県立大学), Toshiki Sugimoto (分子研), “Tuning the thermodynamic ordering of strongly correlated

protons in ice by angstrom-scale interface modification”,
Communications Materials, 5, 204 (2024)

- Ⅲ-4 相賀則宏、長澤武範、竹内佐年：「ペンタセン誘導体のAg表面上の吸着構造と探針増強ラマン分光への展開」、第18回分子科学討論会2024京都、京都大学、2024年9月

科学研究費補助金等

- 1 科学研究費助成金（令和6年度～9年度） 基盤研究（C）
課題番号 24K06928
研究課題 SX-FELによる二光子内殻光電子分光法の開発および励起分子ダイナミクスへの応用
研究代表者 下條竜夫
- 2 科学研究費助成金（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
- 3 科学研究費助成金（令和6年度～9年度） 基盤研究（B）
課題番号 24K01441
研究課題 探針増強電場を用いたナノスケール非線形分光の確立と単一分子光科学への展開
研究代表者 竹内佐年
- 4 科学研究費助成金（令和6年度～10年度） 挑戦的研究（開拓）
課題番号 24K21240
研究課題 超高速光STM技術の開拓による単一分子発光ダイナミクス観測方法論の確立
研究代表者 竹内佐年