

平成 22 年 5 月 17 日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19350017
 研究課題名（和文）
 最適化極短パルスを用いた多原子分子反応の実時間構造追跡と制御
 研究課題名（英文）
 Real-time structural tracking and control of reacting polyatomic molecules by optimized ultrashort pulses
 研究代表者
 竹内 佐年 (Takeuchi Satoshi)
 独立行政法人理化学研究所・田原分子分光研究室・専任研究員
 研究者番号：50280582

研究成果の概要（和文）：

極短パルス光を用いた独自のフェムト秒インパルスラマン分光により、シス-スチルベン分子の超高速光異性化における核の動きを時間領域で観測した。反応性励起状態に特徴的な振動モードが時間とともに低波数シフトすることを見出し、その挙動を高精度量子化学計算による振動解析でも再現した。この結果、反応分子が振れた構造に向かって連続的に構造変化していく全貌を明らかにし、多原子分子の複雑な反応座標の可視化を可能とした。

研究成果の概要（英文）：

Ultrafast coherent Raman spectroscopy was utilized to track global motions of nuclei across the framework of stilbene molecule during its photoinduced cis-trans isomerization. Observing the gradual frequency shift of a skeletal vibration and its theoretical calculation provided a thorough picture of how each atom in the molecule rearranges associatedly and continuously toward the twisted configuration.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,700,000	2,910,000	12,610,000
2008年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
総計	15,600,000	4,680,000	20,280,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学 ・物理化学

キーワード：時間分解分光、フェムト秒パルス、多原子分子、インパルスラマン、分子振動、コヒーレンス、光異性化、スチルベン

1. 研究開始当初の背景

化学反応の途中の分子において、それぞれの核がどのように動くことによって、分子が反応物から生成物へと変化していくのかを明らかにすることは化学反応の究極の理解であり、物理化学者の長年の夢のひとつでも

ある。このような問題意識から、これまで時間分解赤外分光や時間分解ラマン分光を用いた反応性励起状態分子の構造に関する研究が数多く行われてきた。しかし、それらの大部分は反応物や生成物などの（準）安定状態での構造や振動状態に関するものであり、反応物から生成物へ至る連続的な構造変化はほとんど明らかにされてこなかった。

特に、フェムト秒領域で進行する超高速反応では連続的な構造ダイナミクスが本質的であると考えられるが、これまでの時間分解振動分光の時間分解能が数ピコ秒に限られていたため、反応に伴う構造情報は極めて限られていた。このため超高速反応の理解は、1つないし少数の特定の核の動きだけを取り出した過度に簡略化された反応座標に基づいた議論に留まっていた。

これらの状況から分かるように、これまでの振動分光の時間分解能の壁を克服し、超高速反応途中の分子構造および振動構造の変化を時々刻々と追跡する必要があった。これにより、多原子分子の複雑な反応座標の全貌の解明に繋がると考えられる。

2. 研究の目的

二原子分子の反応とは異なり、多原子分子の反応は特定の結合の生成・解裂だけでなく、分子骨格全体の変形を伴うことが多い。このため、これまで行われてきたように特定の自由度のみに沿った簡略化された反応座標による理解では不十分である。多原子分子の複雑な反応座標を理解するためには、反応の進行に沿って時々刻々と変化する分子の振動構造を振動スペクトル変化として捉え、それをもとに構造ダイナミクスを明らかにしていくことが重要である。

光励起直後の分子の構造（電子基底状態の構造）は励起状態ではもはや安定ではなく、それぞれの核が安定構造に向かって大きな力を受ける。特に超高速反応では、この力により分子全体の構造が生成物に向かってすばやく連続的に変化していく。このような構造変化（核の動き）は瞬時的ではなく、およそ分子振動周期程度の時間（10 フェムト秒～1 ピコ秒）を要すると考えられる。したがって、フェムト秒の時間分解能で振動スペクトルを測定することができれば、反応に伴う分子構造の連続的な変化を追跡することが可能になると考えられる。

そこで本研究では、従来の時間分解（自発）ラマン分光ではなく、我々が新たに開発した極短パルスを用いた時間領域ラマン分光（フェムト秒インパルスラマン分光）を駆使して、超高速光化学反応における構造変化を時間分解の形で追跡する。これにより、複雑な反応座標をもつ多原子分子の核の動きを可視化し、反応機構の解明とさらに反応ダイナミクスの制御に向けた基礎的知見を得ることを目標とする。

3. 研究の方法

反応性励起状態分子の振動構造の研究は、フェムト秒インパルスラマン分光という

時間領域振動分光の一種を用いて行った。これは3つのレーザーパルスを用いた我々独自の分光法である。まず第1のパルス（ポンプ光）で試料分子を光励起し、光化学反応を開始させた。このポンプ光からある遅延時間の後、励起状態の吸収に共鳴した10フェムト秒パルスを照射し、この極短パルスで引き起こされるインパルスラマン過程により反応性励起状態にコヒーレントな振動状態（核波束運動）を生成した。そして、この核波束運動を第3のパルスであるプローブ光により、励起状態吸収強度の変化分に現れるビート成分として検出した。

実験には、チタン・サファイアレーザー装置（800nm、80fs、1mJ、1kHz）を光源として用いた。この基本波出力の一部を第3高調波に変換し、発生した紫外光（267nm）を試料の光励起のためのポンプ光として用いた。残りの基本波出力で非同軸光パラメトリック増幅器（NOPA）を励起し、中心波長620nmの極短パルスを発生させた。このNOPA出力を10fsまでパルス圧縮するために、これまで用いてきた60°分散プリズム対ではなく、45°分散プリズム対と回折格子対を併用し、パルスの高次群速度分散項まで補償した。この極短パルスを2つに分け、一方を核波束の生成のための第2パルスとして、他方を核波束運動の検出のための第3パルス（プローブ光）として用いた。精密ステージを用いた可変光学遅延路により3つのパルスの相対的時間差を調整した後、それらを試料溶液中の一点に重ねて集光した。試料溶液は光照射による劣化を防ぐため循環させ、また溶液内でのパルス幅の広がりを抑えるために厚さ50ミクロンの液膜ジェット状にした。試料を透過したプローブ光とリファレンス光（試料前でプローブ光の一部を分け取ったもの）の強度をフォトダイオードで検出し、それらの電気信号強度をAD変換によりパソコンに取り込み、積算した。第2パルスに光チョッパーを用いて、それにより生じた吸光度変化だけを高感度に検出した。

4. 研究成果

開発したフェムト秒インパルスラマン分光装置を駆使して、代表的な超高速反応の1つであるシス-スチルベンの光異性化における構造ダイナミクスの研究を行った。スチルベン分子はシス体とトランス体間で両方向に光異性化を起こし、異性化の収率も同程度である。しかし、反応の方向によってそのダイナミクスは大きく異なる。実際、トランス→シス異性化は最低電子励起（ S_1 ）状態の熱平衡状態からエネルギー障壁を越え、溶液中では約100psの時定数で90°に振れた状態に達し、その後すばやく基底状態に内部転換するときシス体を生じると考えられている。これに対し、シス→トランス異性化はほとんどエネルギー障壁を感じることなく構造緩和が進行して大きく振れた S_1 最安定状態に達し、その後も約1psの時定数で同じ90°状態を経由してトランス体

を生じると考えられている。このため、シス-スチルベンの光異性化は大きな構造変化を伴った超高速反応の典型例として以前から活発に研究されてきた対象であり、本研究での構造追跡にとっても最適な研究対象として取り上げた。

実験ではシス-スチルベンのヘキサデカン（無極性溶媒）溶液を試料とし、それを波長 267 nm のポンプ光で S_1 状態に励起して光異性化を起こした。まず、通常のポンプ・プローブ法で S_1 状態の過渡吸収を測定したところ、それが時定数 1.2 ps で減衰することが観測された。これは異性化の進行により S_1 状態の分子数が時間とともに減少することを表している。

次に、 S_1 状態の過渡吸収に共鳴した波長 620 nm の極短パルスを用いたポンプ光からの遅延時刻 ΔT に照射すると、その時刻以降、過渡吸収信号強度が変化した。この第 2 パルス照射による変化分が時刻 ΔT に対する時間分解インパルスラマン信号である。この信号の全体的な時間挙動は、電子応答による瞬時的な成分、 S_n 状態分子の内部転換の成分、および、 S_1 状態の永久褪色の成分から成るが、これらに加えて、 S_1 状態に誘起された核波束運動に対応したビート成分が明瞭に観測された。これは遅延時刻 ΔT における反応性励起状態分子の核の動きを時間領域で観測していることに相当する。従って、このビート成分のフーリエスペクトルはその遅延時刻における“瞬時的な”ラマンスペクトルとみなすことができる。

フーリエスペクトルには振動数 240 cm^{-1} 付近に強く幅広いラマンバンド（と数本の弱いバンド）が見られた。このバンドは ν_{33} と呼ばれるシス-スチルベンの S_1 状態に特徴的な振動モードに対応するものである。量子化学計算によると、それは C=C-Ph 部位の変角、Ph 環の振れ、C=C 部位の振れなどを含む複雑な振動形をもつことが知られている。

この実験結果の最大の特徴は、 ν_{33} バンドの重心振動数がポンプ光からの遅延時間 ΔT とともに、 239 cm^{-1} ($\Delta T=0.3\text{ ps}$) \rightarrow 224 cm^{-1} ($\Delta T=1.2\text{ ps}$) \rightarrow 215 cm^{-1} ($\Delta T=2\text{ ps}$) のように 24 cm^{-1} も低波数シフトしたことである。つまり、光異性化が進行する数ピコ秒の時間スケールで ν_{33} モードの振動数が低下した。そこで、振動数シフトと異性化との連関を確認するために、さらに溶媒依存性の実験を行った。異性化時間が 1.2 ps のヘキサデカンから 0.48 ps のメタノールへと溶媒をかえて測定を行った結果、異性化速度と同様に、振動数シフトの速度も約 2 倍大きくなることが分かった。これらの実験結果は、異性化に伴う分子のゆっくりとした構造変化と ν_{33} モードとの間の非調和結合により、 ν_{33} モードの力の定数が時間とともに変化すると考えることで説明できる。いわば ν_{33} モードの振動数を通

して分子の構造ダイナミクスを実時間で追跡した、といえる。

観測された振動数シフトを分子の構造変化と直接結びつけて理解するために、TDDFT 法を用いて S_1 状態の量子化学計算を行った。Franck-Condon 構造から出発し、エネルギー最急降下法により反応座標を求めたところ、まず中央の C=C 結合長が伸び、次いで中央の 2 つの水素が反対方向に面外変位し CH 部位と隣接するフェニル基との平面性が実現されていく動きが明らかとなった。この反応座標に沿った各構造で振動解析を行った結果、 ν_{33} モードの振動数は初期の増加の後、 353 cm^{-1} から 318 cm^{-1} までゆっくりと低波数シフトを示しており、この振動数変化は実験結果の特徴をほぼ完全に再現した。

これら一連の研究結果は、反応分子の連続的な構造変化の可視化を可能とした画期的な成果として Science 誌に掲載された。

以上のように、フェムト秒インパルスラマン分光は非定常状態での構造変化とそれに伴う振動構造変化を捉えるという意味で、従来の時間分解振動分光とは一線を画する。この先鋭的な分光法と高精度の量子化学計算との組み合わせを用いて反応経路に沿った構造ダイナミクスの全貌、さらに、振動非調和性などの複雑な多原子分子反応の本質に迫ることができた。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 9 件）

- (1) 竹内佐年, 田原太平, 「シス-スチルベンの超高速光異性化ダイナミクス: これまでの経緯と新たな展開」、光化学、40、9 - 17 (2009). (査読あり)
- (2) K. Ishii, S. Takeuchi and T. Tahara, "Infrared-induced coherent vibration of a hydrogen-bonded system: Effects of mechanical and electrical anharmonic couplings", Journal of Chemical Physics, 131, 044512 (9 page) (2009). (査読あり)
- (3) K. Nakashima, T. Nakamura, S. Takeuchi, M. Shibata, M. Demura, T. Tahara, H. Kandori, "Property of anion binding site of pharaonis halorhodopsin studied by ultrafast pump-probe spectroscopy and low-Temperature FTIR spectroscopy", Journal of Physical Chemical B, 113, 8429 - 8434 (2009). (査読あり)
- (4) S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu, T. Tahara, "Spectroscopic tracking of structural evolution in ultrafast stilbene photoisomerization", Science, 322, 1073 - 1077 (2008). (査読あり)
- (5) T. Nakamura, S. Takeuchi, N. Suzuki, and T. Tahara, "Revised steady-state fluorescence spectrum and nature of the reactive S_1 state of

cis-stilbene in solution”, *Chemical Physics Letters*, 465, 212 – 215 (2008). (査読あり)

(6) T. Nakamura, S. Takeuchi, M. Shibata, M. Demura, H. Kandori, and T. Tahara, “Ultrafast pump-probe study of the primary photoreaction process in pharaonis halorhodopsin: Halide-ion dependence and isomerization dynamics”, *Journal of Physical Chemistry B*, 112, 12795 – 12800 (2008). (査読あり)

(7) K. Ishii, S. Takeuchi and T. Tahara, “Pronounced non-Condon effect as the origin of quantum beat observed in time-resolved absorption signal from excited-state cis-stilbene”, *Journal of Physical Chemistry A*, 112, 2219 – 2227 (2008). (査読あり)

(8) M. Iwamura, S. Takeuchi and T. Tahara, “Real-time observation of the photoinduced structural change of bis-2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline copper (I) by femtosecond fluorescence spectroscopy: A realistic potential curve of the Jahn-Teller Distortion”, *Journal of American Chemical Society*, 129, 5248 – 5256 (2007). (査読あり)

(9) S. Takeuchi and T. Tahara, “The answer to concerted versus step-wise controversy for the double proton transfer mechanism of 7-azaindole dimer in solution”, *Proceedings of the National Academy of Sciences of U. S. A.*, 104, 5285 – 5290 (2007). (査読あり)

[学会発表] (計 45 件)

【招待講演発表】

(1) S. Takeuchi, “Tracking continuous structural change of reacting molecules by femtosecond time-domain Raman and computational approaches”, *The Mini International Symposium on Molecular Science for Supra Functional System*, Nagatsuda, Yokohama (Japan), January 15, 2010.

(2) S. Takeuchi, T. Tahara “Capturing structural snapshots of reacting molecules by femtosecond time-domain Raman spectroscopy”, *The 40th Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics*, Snowbird, Salt Lake City (USA), January 3-7, 2010.

(3) 竹内佐年、「極短パルスを用いて反応分子の瞬間の姿を捉える」、超高速過程における量子コヒーレント現象の観測と制御に関する研究会 ～普遍性と多様性：量子情報処理から固体・生体分子ダイナミクス～、東北

大学、仙台市、2009年12月3-4日。

(4) S. Takeuchi, “Capturing the instantaneous structure of reacting polyatomic molecules by femtosecond time-domain Raman spectroscopy”, *Chemical Society of Japan Annual Meeting, Physical Chemistry Division, Asian International Conference*, Chiba (Japan), March 27-30, 2009.

(5) 竹内佐年、「極短パルス光を用いた反応性励起状態分子の実時間構造追跡」、第2回分子科学討論会、福岡、2008年9月24-27日。

(6) 竹内佐年、「反応する分子の核の動きを追う～極短パルス光を用いた時間領域振動分光による研究～」、第6回エクストリームフォトニクス研究会、蒲郡、2007年11月14-15日。

(7) S. Takeuchi and T. Tahara, “Structural snapshots of reacting polyatomic molecules observed by ultrafast time-domain vibrational spectroscopy”, *12th Japan-Korea Joint Symposium on Frontiers of Molecular Science, “Leading-edge and the future of photo-molecular science”*, Jeju (Korea), July 4 – 7, 2007.

(8) S. Takeuchi, “Observing the real-time motion of nuclei in ultrafast photochemical reactions”, *Invited Seminar at the Indian Association for the Cultivation of Science*, Kolkata (India), February 6, 2007.

(9) S. Takeuchi, “Ultrafast spectroscopic study of the real-time nuclear motion in reacting molecules”, *Invited Seminar at Visva-Bharati university, Santiniketan (India)*, February 5, 2007.

(10) S. Takeuchi, K. Ishii, S. Ruhman and T. Tahara, “Real-time structural tracing of reacting polyatomic molecules by ultrafast time-domain vibrational spectroscopy”, *1st Asian Spectroscopy Conference*, Bangalore (India), January 29 – February 3, 2007.

【一般講演発表】

(11) 竹内佐年、Sanford Ruhman、常田貴夫、千葉真人、武次徹也、田原太平、「フェムト秒時間領域ラマン分光を用いた反応分子の実時間構造追跡」、エクストリーム・フォトニクス研究 第一期研究成果報告会、宮城県仙台市、2009年12月15日。

(12) Z. Wei, 中村 巧, 竹内佐年, 田原太平、「超高速Pump-Dump-Probe分光によるシアニン色素励起状態核波束の時間発展の追跡」、第10回エクストリーム・フォトニクス研究会、愛知県蒲郡、2009年11月4-5日。

(13) 竹内佐年、岩村宗高、渡邊秀和、田原太平、「フェムト秒時間領域振動分光を用いた有機金属錯体の超高速構造追跡」、第10回エクストリーム・フォトニクス研究会、愛知県蒲郡、2009年11月4-5日。

(14) Z. Wei, T. Nakamura, S. Takeuchi, T. Tahara, “Study of the Wavepacket Motion in

Photoisomerization of Cyanine Dye by Ultrafast Pump-Dump-Probe Technique」、第3回分子科学討論会、名古屋、2009年9月21-24日。

(15) 竹内佐年、岩村宗高、渡邊秀和、田原太平、「フェムト秒時間領域振動分光を用いた有機金属錯体における超高速構造変形の実時間追跡」、第3回分子科学討論会、名古屋、2009年9月21-24日。

(16) M. Iwamura, K. Ishii, H. Watanabe, S. Takeuchi and T. Tahara, “Ultrafast dynamics and nature of the photoinduced structural change in Cu(I) bis-phenanthroline complexes”, 18th international symposium on photochemistry and photophysics of coordination compounds (18th ISPPCC), Sapporo (Japan), July 4 - 9, 2009.

(17) 竹内佐年、岩村宗高、渡邊秀和、石井邦彦、田原太平、” Real-time tracking of structural distortion in Cu(I) complex by ultrafast time-domain Raman spectroscopy”、特定領域研究「高次系分子科学」第3回公開シンポジウム、東京、2009年6月3-5日。

(18) 竹内佐年、岩村宗高、渡邊秀和、石井邦彦、田原太平、「10 フェムト秒時間領域分光を用いた銅錯体の実時間構造ダイナミクス追跡」、エクストリームフォトニクスシンポジウム「光で繋ぐ理研の基礎科学」、和光、2009年5月20-21日。

(19) S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu and T. Tahara, “Observing continuous structural change of reacting molecules: ISRS and computational study on the reaction coordinate of photoisomerization of cis-stilbene”, 14th International Conference on Time-Resolved Vibrational Spectroscopy, Meredith NH (USA), May 9 - 14, 2009.

(20) T. Nakamura, S. Takeuchi and T. Tahara, “Observing the barrierless photoisomerization process of a cyanine molecule with pump-dump-probe spectroscopy”, 8th Extreme Photonics Conference, “Ultrafast meets ultracold”, Aichi (Japan), November 11 - 12, 2008.

(21) S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu and T. Tahara, “Real-Time Tracking of Structural Evolution in Cis-Stilbene Photoisomerization by Ultrafast Time-Domain Raman Spectroscopy”, 8th Extreme Photonics Conference, “Ultrafast meets ultracold”, Aichi (Japan), November 11 - 12, 2008.

(22) 中村 巧、竹内佐年、田原太平、「超高速pump-dump-probe分光を用いたシアニン系

色素励起状態における核波束運動の追跡」、第2回分子科学討論会、福岡、2008年9月24-27日。

(23) 中村 巧、竹内佐年、田原太平、「フェムト秒時間分解蛍光によるシスチルベンの光異性化前駆体の研究」、2008年光化学討論会、大阪、2008年9月11-13日。

(24) M. Iwamura, H. Watanabe, K. Ishii, S. Takeuchi and T. Tahara, “Excited-state nuclear wavepacket motion of an ultrafast inorganic molecular switch”, 16th International Conference on Ultrafast Phenomena, Stresa (Italy), June 9 - 13, 2008.

(25) K. Ishii, S. Takeuchi and T. Tahara, “Mid-IR-Induced Nuclear Wavepacket Motion of a Hydrogen Bonding System: Effects of Mechanical and Electrical Anharmonic Couplings”, 16th International Conference on Ultrafast Phenomena, Stresa (Italy), June 9 - 13, 2008.

(26) S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu and T. Tahara, “Real-Time Monitoring of Structural Evolution in Cis-Stilbene Photoisomerization by Ultrafast Time-Domain Raman Spectroscopy”, 16th International Conference on Ultrafast Phenomena, Stresa (Italy), June 9 - 13, 2008.

(27) 竹内佐年、常田貴夫、千葉真人、武次徹也、田原太平、「シスチルベン超高速光異性化反応における構造ダイナミクス：フェムト秒インパルスラマン分光と高精度量子化学計算による全貌解明」、第24回化学反応討論会、札幌、2008年6月2-4日。

(28) 中村 巧、竹内佐年、田原太平、「フェムト秒時間分解蛍光測定によるシスチルベン S_1 蛍光状態の振動子強度の決定」、第7回エクストリーム・フォトニクス研究会、和光、2008年5月15-16日。

(29) 岩村宗高、渡邊秀和、石井邦彦、竹内佐年、田原太平、「15fs極短レーザーパルスで観測された銅錯体の核波束運動発現のメカニズム」、第7回エクストリーム・フォトニクス研究会、和光、2008年5月15-16日。

(30) 岩村宗高、石井邦彦、渡邊秀和、竹内佐年、田原太平、「波長分散過渡吸収法で観測した銅(I)フェナントロリン錯体の光誘起ヤーン・テラー構造変化に伴う核波束運動」、日本化学会第88年会、東京、2008年3月。

(31) 中村 巧、竹内佐年、田原太平、「シスチルベン $S_1 \leftarrow S_0$ 遷移は許容か禁制か? : フェムト秒時間分解蛍光測定による振動子強度の決定」、日本化学会第88年会、東京、2008年3月。

(32) 中村 巧、竹内佐年、柴田幹大、出村 誠、神取秀樹、田原太平、「ハロロドプシンの光異性化初期過程の超高速ポンププローブ分光：ハロゲンイオン依存性と異性化ダイナミクス」、日本生物物理学会、神奈川、2007年12月。

(33) 石井邦彦、竹内佐年、田原太平、「中赤外極短パルスを用いた分子内非調和振動結合の研究」、

第6回エクストリームフォトンクス研究会、蒲郡、2007年11月14-15日。

(34) 岩村宗高、竹内佐年、田原太平、「フェムト秒発光分光による銅(I)フェナントロリン錯体の光誘起擬ヤーン・テラー構造変化の実時間観測：置換基による構造制御とその超高速ダイナミクスへの影響」、第1回分子科学討論会、仙台、2007年9月。

(35) 竹内佐年、田原太平、「フェムト秒時間領域振動分光を用いた分子内電荷移動における超高速構造ダイナミクスの追跡」、第1回分子科学討論会、仙台、2007年9月。

(36) 岩村宗高、竹内佐年、田原太平、「フェムト秒発光分光と過渡吸収分光で観測したビス(1,10-フェナントロリン)銅(I)錯体の構造変化ダイナミクス」、第20回配位化合物の光化学討論会、神戸、2007年8月。

(37) M. Iwamura, K. Ishii, S. Takeuchi and T. Tahara, "The hollow on the excited-state potential for photoinduced 'Jahn-Teller' distortion of copper complexes revealed by ultrafast spectroscopy", The 7th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-optics, Seoul (Korea), August 26 - 31, 2007.

(38) S. Takeuchi, K. Ishii, S. Ruhman and T. Tahara, "Real-time probing of structural dynamics in cis-stilbene photoisomerization by ultrafast time-domain Raman spectroscopy", 23rd International Conference on Photochemistry, Cologne (Germany), July 29 - August 3, 2007.

(39) M. Iwamura, S. Takeuchi and T. Tahara, "Observation of photoinduced structural change of [Cu(2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline)₂]⁺ by ultrafast spectroscopy", 17th International Symposium on Photochemistry and Photophysics of Coordination Compounds (17th ISPPCC), Dublin (Ireland), June 24 - 28, 2007.

(40) 竹内佐年、田原太平、「シスチルベン超高速光異性化反応における核波束ダイナミクスとポテンシャル形状：フェムト秒時間領域振動分光実験による研究」、第10回理論化学討論会、名古屋、2007年5月。

(41) 岩村宗高、石井邦彦、竹内佐年、田原太平、「フェムト秒実時間分光で見出された超高速で構造変化する銅錯体の振動構造」、第5回エクストリーム・フォトンクス研究会、和光、2007年4月。

(42) 中村 巧、竹内佐年、柴田幹大、出村誠、神取秀樹、田原太平、「レチナール蛋白質・ハロロドプシンの光異性化初期過程の超高速ポンプ・プローブ分光：ハロゲンイオン依存性と異性化ダイナミクス」、分子アンサンブル研究会分子系の構造と電子状態一生

物物質科学を目指して一、和光、2007年4月。

(43) 中村 巧、竹内佐年、柴田幹大、出村 誠、神取秀樹、田原太平、「極短パルスを用いたハロロドプシン光異性化初期過程のポンプ・プローブ分光：ハロゲンイオン依存性と局所構造変化」、日本化学会第87年会、大阪、2007年3月。

(44) 竹内佐年、Sanford Ruhman、田原太平、「シスチルベン超高速光異性化反応のリアルタイム構造追跡：時間領域振動分光により観測される瞬時振動周波数変化の溶媒依存性」、日本化学会第87年会、大阪、2007年3月。

(45) T. Nakamura, S. Takeuchi, M. Shibata, H. Kandori and T. Tahara, "Ultrafast pump-probe study of halide dependence in primary reaction dynamics of halorhodopsin", American Physical Society March meeting, Denver (USA), March 5 - 9, 2007.

〔図書〕(計1件)

(1) 竹内佐年、「極短パルス光の発生と反応性分子の振動コヒーレンス観測」、光科学研究の最前線2、170、強光子場科学研究懇談会、(2009)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹内 佐年 (Takeuchi Satoshi)

独立行政法人理化学研究所・田原分子分光研究室・専任研究員

研究者番号：50280582

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし