

## 鈴木 俊法

岡崎国立共同研究機構 分子科学研究所

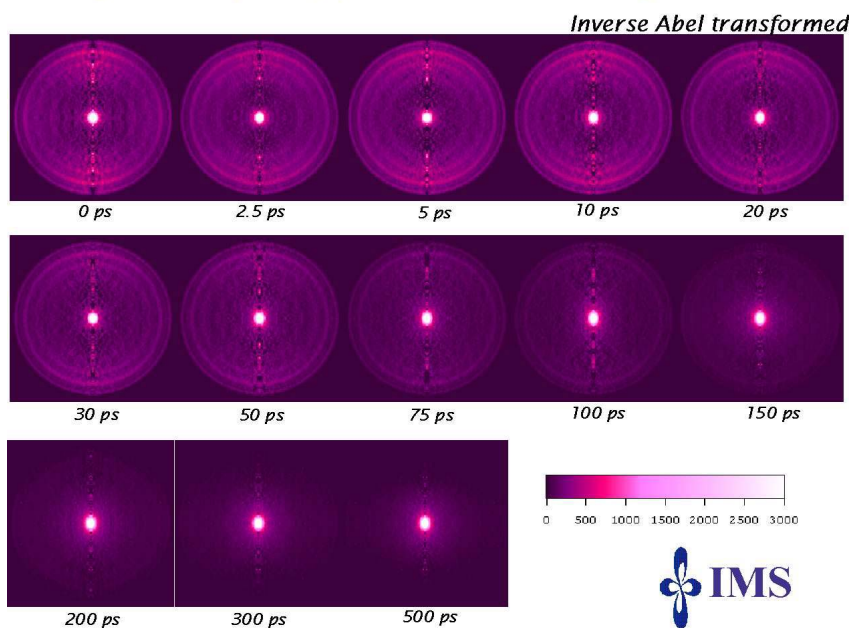
プロフィール：1961年8月15日山形生まれ [勤務先]岡崎国立共同研究機構分子科学研究所助教授、理化学研究所化学反応動力学研究室主任研究員兼務 [経歴]1988年4月東北大学大学院博士課程修了理学博士、同年7月分子科学研究所技官、1989年4月分子科学研究所助手、1990年7月米国コーネル大学博士研究員、1991年9月カリフォルニア大学バークレー校博士研究員、1992年6月より分子科学研究所助教授、1999年10月よりさきがけ研究21「状態と変革」研究者兼務、2002年4月より理化学研究所兼務 [専門]化学反応動力学、レーザー分光 [趣味] 日本酒の利き酒・スキー・音楽鑑賞・油絵鑑賞 [連絡先]444-8585 岡崎市明大寺町字西郷中 38 分子科学研究所、suzuki@ims.ac.jp

## 時間分解光電子画像観測法による化学反応の研究

分子を構成する原子核と電子の質量は、後者が前者の2000分の1以下であるため、電子運動は極めて速くエネルギーが高い。化学反応に伴う分子構造変化は、電子の状態変化が先行し、核が電子運動による力を受けることによって起こる。即ち、電子状態とその変革こそが、化学反応の本質である。化学反応は異なるスピン多重度の状態をも経由して進行するためには、化学反応の追跡には、スピン多重度について制約を受けない極めて一般的な実験手段が必要となる。本研究で開発したフェムト秒時間分解光電子画像観測法は、化学反応途上の分子から電子を放出させ、あらゆる電子状態を観測することができる上に、電子軌道形状の変化をも敏感に捉える強力な実験手段である。

ピラジン分子の研究を例に取る。フェムト秒レーザーパルスで、分子内の最も高エネルギーの電子軌道(n)から電子を励起し、6員環全体に非局在化した電子軌道( $\pi^*$ )に遷移させる。この状態で分子は一重項状態であるが、電子スピンと電子の軌道運動の相互作用により、100ps以内にスピンの反転現象が起こり三重項状態となる。三重項状態は一重項状態よりも0.5eV電子エネルギーが低いため、孤立した分子では、電子エネルギーが低下した余剰エネルギーは分子の振動エネルギーに変換される。フェムト秒レーザーによる光励起によって、まず一重項電子状態を作り出し、その後、電子スピンの反転し分子振動が励起される過程を観測した。下図に示すのは、異なる時間で測定した光電子画像のスナップショットである。これらは、各画像の中心にある分子から外側に向かって走る光電子の波面に対応する。早い時間では、光電子画像は大きな直径の多数の輪から構成されているが、これらは一重項状態からの光電子である。100ps

### Pyrazine [1+1'] photoelectron images



以上時間が経つと、この分布はエネルギーが低く中心部分に集中した散乱分布に変わるが、この成分は三重項状態からのイオン化である。早い時間に複数の輪が見えているのは、光イオン化後の分子の振動状態が量子化されているためである。

講演では、さらに回転状態のコヒーレントな励起によって発生する量子波束を利用して分子固定系での光電子分布を決定する研究、光電子画像観測法を溶液の研究に応用するために開発した液滴負イオンの装置についても紹介する。

## 研究成果

### 原著論文

1. Femtosecond time-resolved photoelectron imaging on ultrafast electronic dephasing in an isolated molecule, Toshinori Suzuki, Li Wang, and Hiroshi Kohguchi, *Journal of Chemical Physics*, **111**, 4859 (1999).
2. Femtosecond time-resolved photoelectron imaging, Li Wang, Hiroshi Kohguchi, and Toshinori Suzuki, *Faraday Discuss. Chem. Soc.*, 113, 37-46 (1999).
3. Vector correlation in molecular photodissociation: Quantum mechanical expression and comparison with the formal expansion formula, Yuxiang Mo and Toshinori Suzuki, *Journal of Chemical Physics*, **112**, 3463 (2000).
4. Photoelectron imaging on time-dependent molecular alignment created by a femtosecond laser pulse, Masaaki Tsubouchi, Benjamin J. Whitaker, Li Wang, Hiroshi Kohguchi, and Toshinori Suzuki *Physical Review Letters*, **86**, 4500 (2001).
5. Fully state-resolved differential cross sections for the inelastic scattering of the open-shell NO molecule by Ar, Hiroshi Kohguchi, Toshinori Suzuki, and Millard Alexander, *Science*, **294**, 832 (2001).
6. Femtosecond photoelectron imaging on pyrazine: Spectroscopy of 3s and 3p Rydberg states, Jae Kyu Song, Masaaki Tsubouchi, and Toshinori Suzuki, *Journal of Chemical Physics*, **115**, 8810 (2001).
7. Non-adiabatic bending dissociation of OCS: the effect of bending excitation on the transition probability, Hideki Katayanagi and Toshinori Suzuki, *Chemical Physics Letters*, **360**, 104 (2002).

### 総説

8. Femtosecond time-resolved photoelectron imaging, Toshinori Suzuki, Li Wang, and Hiroshi Kohguchi, in *Imaging in Chemical Dynamics*, ACS Symposium Series **770** (2001).
9. Non-adiabatic dynamics effects in Chemistry revealed by time-resolved charged particle imaging, Toshinori Suzuki and Benjamin Whitaker, *International Reviews of Physical Chemistry*, **20**, 313, (2001).
10. Non-Adiabatic Bending dissociation of OCS, Toshinori Suzuki and Shinko Nanbu, in press, ACS Symposium Series (2002).
11. Rotational inelastic scattering of free radicals, Hiroshi Kohguchi and Toshinori Suzuki, *Annual Report on the Progress of Chemistry* (2002).
12. Femtosecond photoelectron imaging, Toshinori Suzuki, in *Advanced Series in Physical Chemistry*, World Scientific (2002).