

## 窒素二量体における分子間振動ダイナミクスの実時間イメージング

<sup>1</sup>東工大理, <sup>2</sup>北里大理, <sup>3</sup>分子研

○石橋 玄規<sup>1</sup>, 水瀬 賢太<sup>1</sup>, 佐藤 光<sup>2</sup>, 石川 春樹<sup>2</sup>, 大島 康裕<sup>1,3</sup>

### Real-time imaging of intermolecular vibration dynamics in nitrogen dimer

○Genki Ishibashi,<sup>1</sup> Kenta Mizuse,<sup>1</sup> Hikaru Satou,<sup>2</sup> Haruki Ishikawa,<sup>2</sup> Yasuhiro Ohshima<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, <sup>2</sup>Kitasato University, <sup>3</sup>IMS

#### 【Abstract】

We have studied intermolecular vibration dynamics of nitrogen dimer by pump-probe imaging method. Intermolecular vibration was excited via impulsive Raman pump process. The subsequent dynamics was tracked with a time-delayed Coulomb explosion probe pulse. We observed the spatial distribution of ejected nitrogen molecular ions from nitrogen dimer. In the observed ion images, picosecond-timescale oscillation due to intermolecular vibrational dynamics can be clearly seen as a change in anisotropy of distribution. We also attempted control of intermolecular vibrational wavepacket by irradiating two pump pulses separated with an appropriate time interval. We succeeded in enhancing and weakening oscillatory dynamics via wavepacket interference. We believe such a control and imaging approach would lead to deeper understanding of intermolecular interaction of the N<sub>2</sub> dimer.

#### 【序論】

分子間相互作用を解明することは、液体や固体などの性質の深い理解につながる。気相孤立環境下の分子クラスターは、分子間相互作用を研究する上で理想的な対象である。分子クラスターの研究はこれまで主に周波数領域の分光によって行われてきたが、最近我々は、フェムト秒レーザーを用いたインパルスラマン励起による分子間振動波束の生成とイオンイメージングを組み合わせる方法論を開発した。本手法により、単純な分子クラスターである窒素二量体の分子間振動に伴う原子核の運動を画像の時間変化として直接観測することに成功した。しかし、分子間振動に由来する変化は微弱なものであった。そこで分子間振動による変化をより明瞭にするために、本研究では、2つのポンプ光を適当な時間間隔で照射することで分子間振動波束の制御を試みた。分子間振動波束を制御することで、高振動励起状態や異性化反応ダイナミクスを含めた、分子間相互作用の研究につながると期待される。

#### 【実験】

実験には、Ti:Sapphire レーザーをベースとしたフェムト秒ポンププローブ光学系を用いた。窒素二量体にポンプ光を照射することでインパルスラマン過程を引き起こし、分子間振動を励起した。その後のダイナミクスを追跡するため、ポンプ光と時間差をつけてプローブ光を照射することでクーロン爆発を引き起こし、解離した窒素分子イオンの空間分布画像を観測した。また、分子間振動波束の制御のため、2つのポンプ光に時間差をつけて照射するダブルポンプ実験を行った。時間間隔を変えるこ

とによって振動波束干渉による振幅の増大や、減少を観測することができる。

### 【結果・考察】

得られた  $N_2^+$  イオンの二次元分布を Figure 1 に示す。 $N_2^+$  イオンの放出角度分布の時間変化を明確に示すため、ポンプ光の偏光方向のなす角を  $\theta$  として  $\cos^2\theta$  の平均をとり時間に対してプロットした。シングルポンプにより得られた  $\cos^2\theta$  の時間発展を Figure 2 に示す。0 ps から 2 ps にかけて分子間振動に由来するとみられる周期的変化が観測された。なお、0 ps から 10 ps における大きな変化は、窒素二量体の回転における変化であることが、我々の先行研究から分かっている [1]。

ダブルポンプ実験について、ポンプ光間隔が 2.5 ps, 0.9 ps の場合の  $\cos^2\theta$  の時間発展を Figure 3 に示す。時間間隔が 2.5 ps のとき (左図)、ポンプ 2 照射後の周期的変化を見ると、振幅がポンプ 1 のみの場合と比べて大きくなっており、また、少なくとも 12 ps まで続いている。これは、分子間振動波束がより上の準位に励起したことや、干渉によって増強されたことによると考えている。一方、時間間隔が 0.9 ps のとき (右図)、ポンプ 2 照射後の周期的変化は明らかに減衰していることが分かる。これらの結果から、我々は窒素二量体における分子間振動を制御することに成功したと考えている。講演では実験の詳細を含めて、窒素二量体の構造とダイナミクスを議論する。

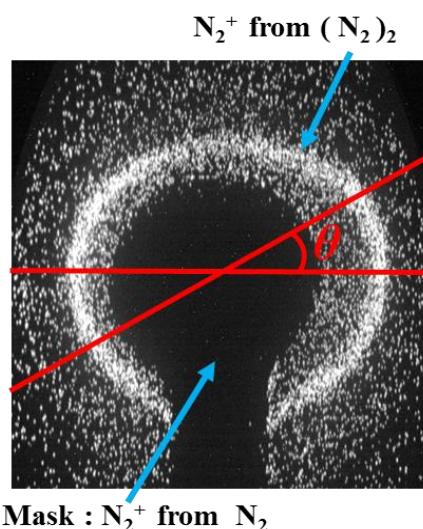


Figure 1. Observed image of  $N_2^+$  from  $(N_2)_2$

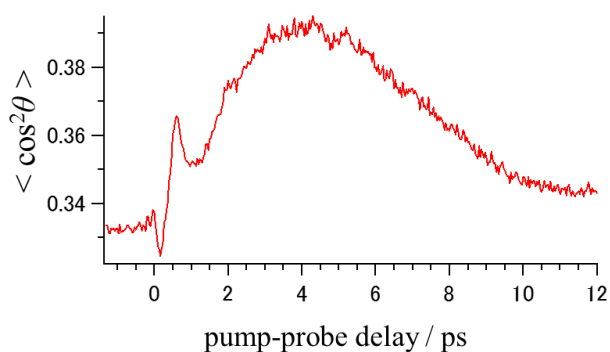


Figure 2. Time development alignment,  $\langle \cos^2\theta \rangle$

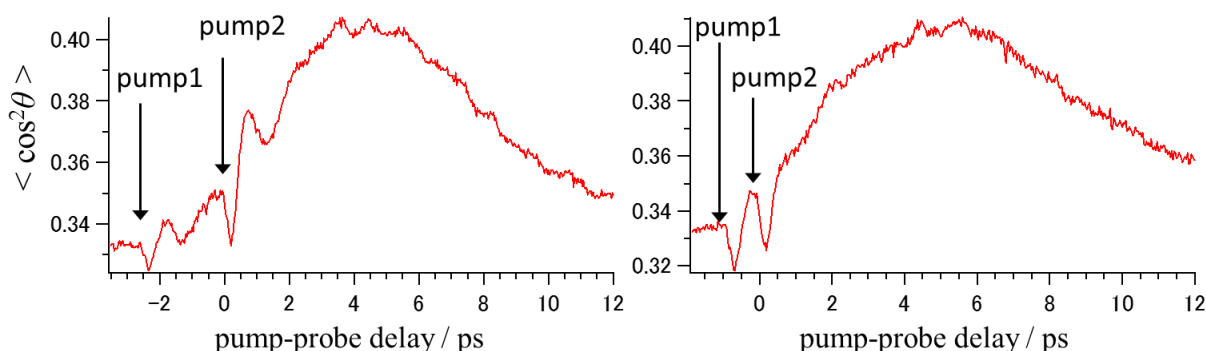


Figure 3. Time development alignment,  $\langle \cos^2\theta \rangle$ , for double-pump pulse experiments.

(Left) pump-pulse interval of 2.5 ps, (Right) pump-pulse interval of 0.9 ps.

[1]佐藤ら, 第 17 回分子分光学会, F03, 2017.