

波束イメージングに基づく窒素 2 量体の広帯域・高分解能分光

¹東工大理, ²北里大院理, ³北里大理

○水瀬 賢太¹, 村井 友海¹, 佐藤 光², 石橋 玄規¹, 石川 春樹³, 大島 康裕¹

Wave packet imaging-based broadband, high-resolution spectroscopy of nitrogen dimer

○Kenta Mizuse¹, Tomomi Murai¹, Hikaru Sato², Genki Ishibashi¹, Haruki Ishikawa³, Yasuhiro Ohshima¹

¹ Department of Chemistry, School of Science, Tokyo Institute of Technology, Japan

² Division of Molecular Sciences, Graduate School of Science, Kitasato University, Japan

³ Department of Chemistry, School of Science, Kitasato University, Japan

【Abstract】 Nitrogen dimer (N_2)₂ is a good model system to study N_2 - N_2 interaction, which plays important roles in atmospheric chemistry. It is, however, difficult to apply typical frequency-domain spectroscopy to (N_2)₂, mainly due to its weak dipole moment. Here, we report a new method to probe the structure and dynamics of nitrogen dimer by using a time-domain approach. In the present method, intermolecular vibrational/rotational wave packet is created upon broadband pulse irradiation via impulsive Raman process. The subsequent dynamics is tracked with time-resolved Coulomb explosion imaging. Rotational and intermolecular vibrational spectra can be obtained as Fourier transforms of the time trace of image parameters. By using a long (~5 ns) optical delay setup, ~200 MHz frequency resolution was achieved. The observed rotational spectra were analyzed on the basis of quasi-diatomic treatment, Coriolis couplings, and nuclear spin statistics. We have succeeded in identifying three nuclear spin isomers of N_2 - N_2 . Further details will be presented.

【序】 窒素分子間にはたらく相互作用は、分子間相互作用の基本モデルであるとともに、地球大気における窒素の赤外吸収の起源としての重要性をもつ。そのため、相互作用の分子論的理解が求められてきた。気相分子クラスターに対する分光実験を行うことで分子間相互作用の詳細な情報が得られるが、既存の分光法の多くは電気双極子遷移を用いているため、窒素分子系のように、永久双極子が極めて小さく、かつ適切な発色団ももたない系への適用は困難である。

近年、我々は窒素 2 量体(N_2)₂ のような、適当な遷移が限られる分子種に対しても適用可能な、超短パルス非共鳴光を用いた時間領域の分光法「波束イメージング分光法」を開発した[1,2]。具体的には、インパルス誘導ラマン散乱による振動・回転波束の生成と、クーロン爆発イメージングという瞬時的空間情報を引き出す手法を組み合わせた pump-probe 実験であり、波束の時間発展に対するフーリエ変換から、周波数領域分光に対応する情報を得るものである。これまでの研究で、(N_2)₂ の回転周期の観測に成功し、実効的回転定数を求めることに成功している[2]。しかし、スペクトル分解能としては 2 GHz ほどであり、異性体の共存や分子定数の高精度決定には至っていない。本研究では、波束イメージング分光法を最適化（特に高分解能化）し、(N_2)₂ の構造とダイナミクスの詳細に迫ることを目的とした。

【方法 (実験)】

図 1 に実験スキームを示す。超音速ジェット中に生成させた(N_2)₂ に対して pump 光(直線偏光, 820 nm, <1 ps, 0.1 mJ/pulse)を照射し、Raman 活性な振動・回転をコヒーレントに励起した。その後、遅延時間をおいて probe (円偏光, 407 nm, ~80 fs, 0.3 mJ/pulse)

