

2P011

フェムト秒時間分解イメージング法を用いた 窒素二量体における分子間振動ダイナミクスの研究

東工大理,

○石橋 玄規, 水瀬 賢太, 大島 康裕

Intermolecular vibrational dynamics in nitrogen dimer studied by using femtosecond time resolved imaging

○Genki Ishibashi, Kenta Mizuse, Yasuhiro Ohshima

Department of Chemistry, Tokyo Institute of Technology

【Abstract】

We have studied intermolecular vibration of nitrogen dimer by using pump-probe imaging method. Firstly, intermolecular vibration was excited via impulsive Raman pump process. Next, by using a Coulomb explosion probe pulse with adjustable delay relative to the pump pulse, spatial distribution of the dissociated N_2^+ ion was observed. The temporal evolution of this ion image was changed by varying the intensity of the pump pulse and the polarization of the probe pulse. With an appropriate pump intensity, signal due to intermolecular vibration is enhanced. We also performed experiments by using a pair of pump pulses with appropriate time intervals, aiming to selectively induce one of the intermolecular vibrations.

【序論】

分子間相互作用の解明は化学反応を考える上でも重要なため、これまで活発に行われてきた。分子間相互作用を議論する上で、それに支配された分子間振動を観測することは、構造やダイナミクスを解明するための直接的な手法となる。近年、分子の運動を直接追跡することができるイメージング手法の発展により、従来の分光法では観測困難であった二量体の構造やダイナミクスの解明についていくつか報告がなされている[1,2]。当研究室グループでは、フェムト秒レーザーを用いたインパルスブ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、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観測することに成功した[3]。これまでに、約 0.8 THz の分子間振動を観測できたことを報告した。本研究では、他の分子間振動モードを観測するために、様々な実験条件の検討を行った。

【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ブ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。

【結果・考察】

得られた N_2^+ イオンの二次元分布を Fig. 1 に示す。 N_2^+ イオンの放出角度分布の時間変化を定量的に評価するために、ポンプ光の偏光方向からの角度を θ として $\cos^2\theta$ の平均をとり時間に対してプロットした (Fig. 2)。ここで、ポンプ光強度が強いときの $\langle \cos^2\theta \rangle$ を左、弱いときが右に対応する。0 ps から 10 ps における幅広いピークは、窒素二量体の回転波束由来であることが、我々の先行研究から分かっている。強度にかかわらずどちらも 0 ps から 1.5 ps の領域で周期的な変化が確認できる。振動数としては約 0.8 THz に対応する (緑枠)。一方、励起パルスが弱いときのみ、約 6 ps 以降にも分子間振動由来と考えられる周期的な変化が続いていることが分かった (青枠)。Fig. 2 の 1.5 ps 以降の領域をフーリエ変換した結果を Fig. 3 に示す。励起光が弱い場合に、約 0.27 THz 付近に分子間振動由来と考えられる新たなピークを確認することができた。これは、励起強度を抑えることで、波束を構成する分子間振動固有状態が、少数の低エネルギー準位に限定された結果、ビート信号がより長時間現れるようになったと考えられる。講演では、ポンプ光の強度依存性に加えて、プローブ光の偏光依存性、特定の分子間モードを選択的に誘起するためのダブルポンプパルス実験についての詳細も発表する。

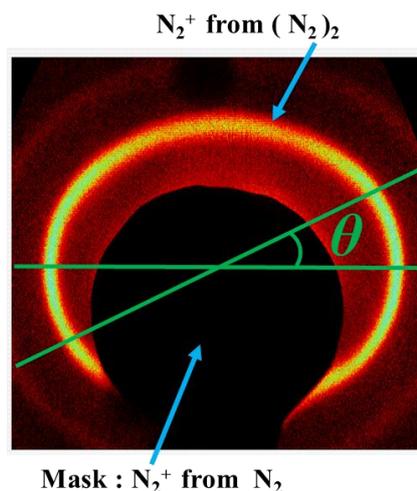


Fig. 1. Observed image of N_2^+ from $(N_2)_2$

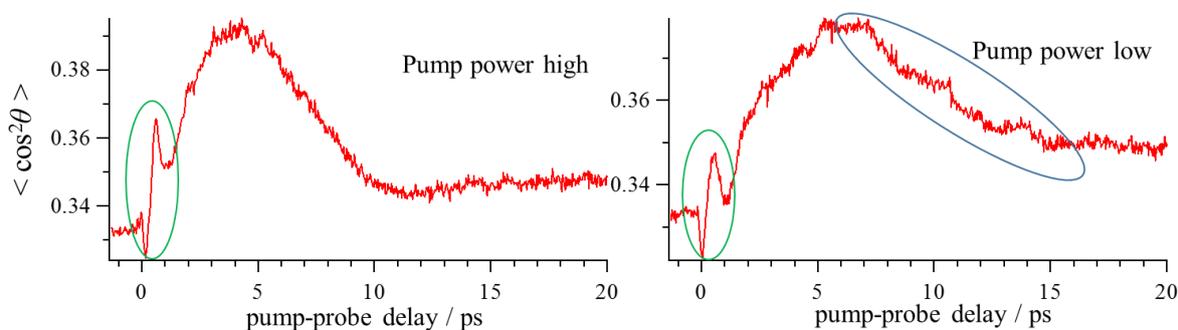


Fig. 2. Time dependent alignment, $\langle \cos^2\theta \rangle$, for relatively high pump power (Left), and low pump power (Right)

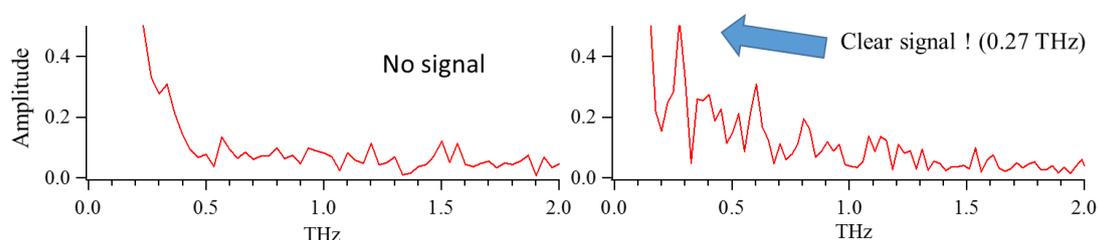


Fig. 3. Fourier transform of Fig. 2, for relatively high pump power (Left), and low pump power (Right).

【参考文献】

- [1] A.von Velthim, B. Borchers, G. Steinmeyer, and H. Rottke, Phys. Rev. **A89**, 023432 (2014).
- [2] James D. Pickering, Henrik Stapelfeldt, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 113202 (2018).
- [3] 石橋ら, 第 11 回分子科学討論会, 3P002, 2017.