

研究 成 果 報 告 書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		新規振動回転イメージング分光法を用いた窒素分子の関わる分子間相互作用の解明			
研究テーマ (欧文) AZ		Imaging-based spectroscopic study on nitrogen-related intermolecular interactions			
研究氏 代 表 名 者	カナ字 CC	姓) ミズセ	名) ケンタ	研究期間 B	2017 ~ 2018 年
	漢字 CB	水瀬	賢太	報告年度 YR	2018年
	ローマ字 CZ	Mizuse	Kenta	研究機関名	東京工業大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		東京工業大学・助教			
概要 EA (600 字～800 字程度にまとめてください。) 窒素分子に働く分子間相互作用をミクロスコピックに解明するため、気相中の窒素分子 2 量体(N₂)₂を対象とし、回転および分子間振動波束の画像観測をおこなった。ここで、(N₂)₂は、地球大気中の相互作用誘起赤外吸収を理解するうえでも重要な系であるが、許容な双極子遷移がほとんどないために、これまで分光研究が極めて困難とされてきた。本研究では、波束生成にラマン散乱過程を、観測には分子種によらない検出が可能なクーロン爆発を用いることで波束ダイナミクスの実時間観測を行った。観測した画像(パラメータ)の時間発展には、数 100ps の周期信号がはっきりあらわれており、その時間トレースのフーリエ変換により、(N₂)₂の振動回転スペクトルの取得にはじめて成功した。観測された画像パラメータの変化はせいぜい数%の範囲内であり、高精度な画像測定だからこそ、周期性の観測が可能となっている。波束生成について言えば、励起パルスに時間幅 30 fs 程度のものを用いることで、周波数帯域 10THz (~300cm⁻¹)以上をカバーできるため、今回、回転のみならず分子間振動(~30 cm⁻¹)に由来する周期をも観測することができた。本手法のような時間領域分光における周波数分解能は、測定時間の逆数であるため、原理的に上限がなく、例えば本研究において、5 ns のダイナミクス測定で、(N₂)₂の回転分光に十分な 200 MHz の周波数分解能を達成している。さらに、前述のような波動関数形の情報をもとにピークの帰属を行うことで、回転定数と構造(分子間距離)を決定することができ、新手法の有効性が示されたものと考えている。					
キーワード FA	分子間相互作用	フェムト秒化学	分子ダイナミクス	分子クラスター	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 _{GB}	Visualizing rotational wave functions of electronically excited nitric oxide molecules by using an ion imaging technique							
	著者名 _{GA}	Mizuse K. et al.	雑誌名 _{GC}	Phys. Chem. Chem. Phys.					
	ページ _{GF}	3303~3309	発行年 _{GE}	2	0	1	8	巻号 _{GD}	20
雑誌	論文標題 _{GB}								
	著者名 _{GA}		雑誌名 _{GC}						
	ページ _{GF}	~	発行年 _{GE}					巻号 _{GD}	
雑誌	論文標題 _{GB}								
	著者名 _{GA}		雑誌名 _{GC}						
	ページ _{GF}	~	発行年 _{GE}					巻号 _{GD}	
図書	著者名 _{HA}								
	書名 _{HC}								
	出版者 _{HB}		発行年 _{HD}					総ページ _{HE}	
図書	著者名 _{HA}								
	書名 _{HC}								
	出版者 _{HB}		発行年 _{HD}					総ページ _{HE}	

欧文概要 EZ

Nitrogen is a homonuclear diatomic molecule and then, rotational and vibrational transitions in the microwave to infrared region are generally forbidden. However, when the nitrogen interacts with the surrounding molecule, transitions due to the induced-dipole arise. Because nitrogen is the major component of the Earth's atmosphere, such a weak effect plays a significant role in the energy balance of the Earth (greenhouse effect). In this regard, intermolecular interaction between two nitrogen molecules is of great importance in atmospheric chemistry.

To understand the nature of the interaction, spectroscopic study on molecular clusters in the gas phase is one of the powerful approaches. For the nitrogen case, however, due to their spectroscopic inactivity, spectroscopic investigations have been rare. Therefore, no direct information on the structure and intermolecular potential has been obtained.

In this study, we developed a new method to probe the structure and dynamics of the nitrogen dimer by using a time-domain approach. We carried out a femtosecond impulsive rotational/vibrational Raman excitation pump- Coulomb explosion imaging probe experiment. Because dipole transitions of the nitrogen dimer would be weak, we focused on the Raman process. Imaging probe gives us instantaneous structural/ spatial information. We also constructed a long optical delay and achieved 200 MHz resolution in the present time-domain spectroscopy.

In the observed time-dependence of the image parameters, revival structures with a ~230 ps period can be seen. This period corresponds to 2B, where B is the rotational constant. From this spectroscopic data, the intermolecular distance of the nitrogen dimer was estimated to be 405.4 pm. This is the first direct structural information of nitrogen molecular aggregates.