

## 軟 X 線光電子分光法によるクリプトン・キセノン混合クラスターの表面構造の研究

(分子研<sup>1</sup>, 総研大<sup>2</sup>, FU Berlin<sup>3</sup>) ○長坂将成<sup>1,2</sup>, 小杉信博<sup>1,2</sup>, Eckart Rühl<sup>3</sup>

【序】異なる分子により形成する混合クラスターは、分子間の相互作用の違いにより特徴的な構造を示すことが予想される。過去の研究において、アルゴンとキセノンを混合した平均サイズが 1000 個程度の大きなサイズのクラスターの X 線光電子分光 (XPS) の測定がなされており、混合クラスターにおいてアルゴンとキセノンが層分離していることを明らかにした[1]。この層分離はアルゴンとキセノンの凝集力が大きく異なることに起因する。一方、アルゴンとクリプトンの混合クラスターでは、それぞれの凝集力が比較的近いいため、このような層分離は観測されなかった[2]。

以上のように、大きなサイズの混合クラスターにおいて、特徴的な構造が得られているが、クラスターの表面成分、バルク成分、界面成分を大まかに分けることしかできなかった。一方、平均サイズが 20 個程度の小さなサイズのクラスターでは、クラスターの表面サイトごとに成分を分離することができる。実際、最近我々は平均サイズ 30 個程度の小さなサイズのクリプトンクラスターの XPS 測定を行い、最近接原子の数が異なる表面サイトの分離に成功している[3]。本研究では、小さなサイズのクリプトン・キセノン混合クラスターを異なる混合比率で作成する。そして混合クラスターの表面サイトごとにピークシフトを求めることにより、混合クラスターの表面構造が異なる混合比率により、どのように変化するかを明らかにする。

【実験】実験は分子研 UVSOR の軟 X 線アンジュレータービームライン BL3U で行った。クリプトン・キセノン混合クラスターの作成には、マスフローコントロールシステムを備えたガス混合装置(コフロク社製)により、必要な比率の混合ガスを調製して、その 5 気圧の混合ガスを 0.35  $\mu\text{m}$  のサイズのノズルから真空中に放出することにより作成した。混合ガス中のキセノンの比率は 1 - 5 % の範囲で調整したが、クリプトンとキセノンの凝集力に違いがあるため、実際には混合クラスター中のキセノンの割合は多くなる。この条件のクリプトンクラスターの平均サイズ $\langle N \rangle$ は 15 個程度であり、小さなサイズの混合クラスターが形成していると考えられる。

得られた混合クラスターの質量スペクトルの測定

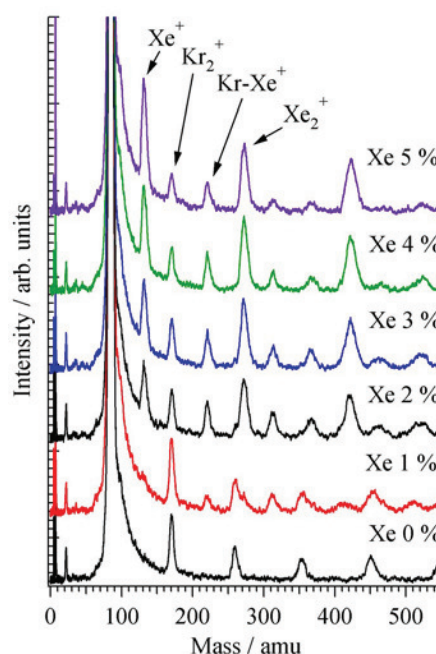


図 1. クリプトン・キセノン混合クラスターの質量スペクトル。キセノンの比率を 1 - 5 % まで変化させて測定を行った。

には、自作した飛行時間型質量分析計を用いて、ヘリウムランプにより励起して分解したイオンフラグメントを観測することにより得た。XPS スペクトルについては、Kr 3d では 135.0 eV の Xe 4d では 110.0 eV の軟 X 線で混合クラスターを励起して、その光電子を半球型電子分光器(Scientia SES200 + MBS A-1 system)を用いて測定した。

**【結果と考察】** 図 1 にクリプトン・キセノン混合クラスターの質量スペクトルを示す。Xe 1%の時には、キセノン原子由来のピーク(Xe<sup>+</sup>)はほとんど見られないが、混合クラスター由来のピーク(Kr-Xe<sup>+</sup>)が観測された。これは 1%では大部分のキセノンがクラスター形成に関与することを意味する。混合由来のピークは Xe 3%の時に最大となり、それ以上ではキセノンダイマー(Xe<sub>2</sub><sup>+</sup>)が優勢となる。しかし Xe 5%でクリプトンが存在しない条件では、キセノンクラスターが形成しないことを確かめており、キセノンダイマーも混合クラスター由来と考えられる。

図 2, 3 に混合クラスターの Kr 3d, Xe 4d XPS スペクトルを示す。混合クラスターの表面や界面ごとにその状態が異なるため、異なるピークシフト成分が観測されている。キセノンの比率が増すと、クリプトンのクラスター内部の成分が減っていき、キセノンのクラスター内部成分が増えるのが確認された。

クラスターの XPS ピークの赤方シフトは、クラスター内に生成した一価イオンによる分極によって生じる。原子が変わるとその分極率が異なり、表面サイトごとに近接原子数も変化するため、異なるピークシフトを示す。この分極を考慮した理論計算によって、ピークシフトからその原子がクラスターのどの部分由来かが分かり、ここから混合クラスターの表面構造が明らかとなる。これらの詳細については、講演において詳しく報告する。

- [1] M. Tchapyguine *et al.*, Phys. Rev. A **69**, 031201 (R) (2004).
- [2] M. Lundwall *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 043206 (2006).
- [3] T. Hatsui *et al.*, J. Chem. Phys. **123**, 154304 (2005).

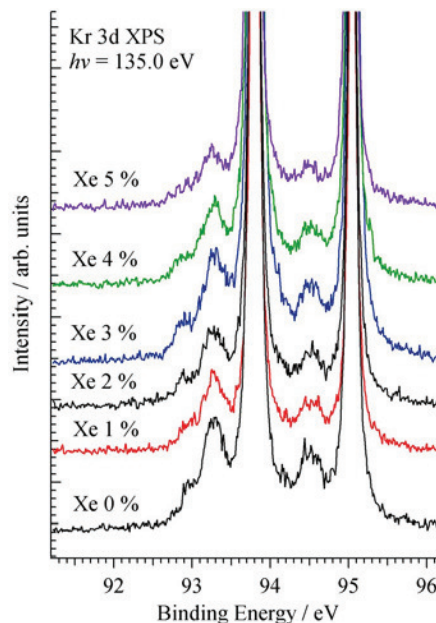


図 2. クリプトン・キセノン混合クラスターの Kr 3d XPS スペクトル。クリプトン単体のクラスター(0%)も示している。

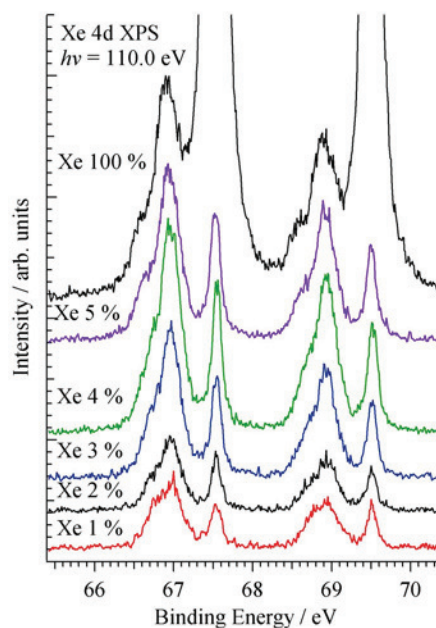


図 3. クリプトン・キセノン混合クラスターの Xe 4d XPS スペクトル。キセノン単体のクラスター(100%)も示している。