

水銀クラスター多価イオンの分裂

¹日大理工
○中村正人¹

Fragmentation of multiply charged ions of mercury clusters

Masato Nakamura
College of Science and Technology, Nihon University, Japan

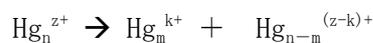
【Abstract】 Fragmentation of doubly and triply charged mercury clusters is theoretically studied to analyze an experiment performed at Osaka University. According to the experiment, nearly symmetrical fragmentation is dominant decay process for the doubly charged clusters while strongly asymmetrical fragmentation is favorable in the fragmentation of triply charged clusters. The appearance size, the minimum size for a multiply charged cluster has been measured. To explain findings in the experiment, fragmentation barrier is calculated using a liquid drop model proposed by Echt et al. Fragment size distribution is well explained in terms of the barrier height calculated with the present model. It is found that the size corresponds where the fission barrier is equal to the monomer evaporation energy. Small mercury clusters behave as van der Waals clusters in the fragmentation process.

【序】 水銀などの2価金属は、単独の原子としては電子的に閉殻構造をとる一方、バルクでは金属的性質を示す。これらの原子の有限集合体は原子数が増加するとともに、ファンデルワールスクラスタから金属クラスターへと結合の性質が「転移」を起こすことが知られている[1]。

ここでは多価に帯電した水銀クラスターの分裂過程の実験の解析を通して、水銀クラスターの結合の性質を探ることにした。

【方法 (実験・理論)】

多価に帯電した水銀クラスターの分裂過程



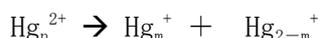
が大阪大学のグループによって観測されている[2]。実験では低速のキセノンイオンを水銀アマルガム表面に照射し、スパッタリングによって生成された水銀クラスター多価イオンの分裂過程を観測した。親イオンのサイズを指定したときの、分裂素片のサイズ分布が測定された。(Fig. 1の上図) その結果、親クラスターが2価イオンのときは対称に近い分裂が生じ、また3価イオンでは著しい非対称分裂が生じることがわかった。またいずれにおいても、クラスター多価イオンが安定に存在できる最小サイズ(出現サイズ)が測定されている。(Table 1参照)

これらの実験結果を理論的に説明することにより、水銀クラスターの結合状態を明らかにすることをめざした。ここでは Echt らによって提案されたファンデルワールスクラスタに対する液滴模型[3]を用いて、クラスター多価イオンが二つのクラスタ

一イオンに分裂する際の分裂障壁を計算した。液滴模型では、全エネルギーを表面エネルギーとクーロンエネルギーの和で書くことができる。クーロンエネルギーはクラスター内に電荷が一様に分布しているという仮定のもとに評価された。

【結果・考察】

図1は水銀クラスター2価イオンの分裂



において実験で得られた分裂片のサイズ(m)分布と(上)、計算で得られた分裂のエネルギー障壁(下)の関係を図示したものである。親イオンのサイズにもかかわらず、対称分裂において障壁が最も低くなり、実験で得られた生成物のサイズ分布を再現することができた。分裂片のサイズ分布は分裂障壁の値とよい対応関係が見られる。

クラスター多価イオンの出現サイズは、従来は分裂障壁が消失する値として得られているが、ここでは分裂障壁が蒸発エネルギーと等しくなる値として求めたところ、実験値(カッコ内)と近い値が得られた(Table I)。このことは実験で生成されたクラスターの温度が高く、分裂と蒸発が同時に生じていることを示している。

本研究の結果から、原子数が40個程度以下の水銀クラスターは金属的ではなく、むしろファンデルワールスクラスターとして、ふるまうことを示している。

より詳細な分析は文献[4]を参照されたい。

Table 1. Appearance sizes of doubly and triply charged mercury clusters obtained by experiment and calculation.

Charge	Calculation [4]	Experiment [3]
2	22	20
3	4	46

【参考文献】

- [1] H. Haberland et al., *J. Chem. Soc. Faraday Transaction* 86, 2473 (1990),
- [2] Sato et al., *J. Mass. Spectrom. Jpn.* 51, 393 (2003)
- [3] O. Echt et al., *Phys. Rev. A* 38, 3236 (1988)
- [4] M. Nakamura and R. Tarento, *J. Chem. Phys.* 148, 084312 (2018)

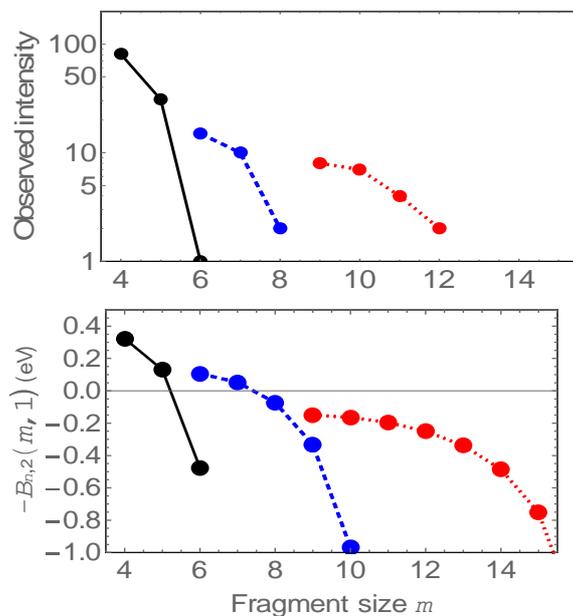


Fig. 1. Fragment size distribution measured in the experiment (above) and calculated fission barrier as functions of fragment cluster size in the fission of doubly charged mercury clusters. Black, blue and red lines indicate for parent size $n=11, 15$ and 19 , respectively