

4A14 シリコンクラスターと NO との化学反応とそれに伴う解離

(1.東大院工・2.東大工総試) 井上修平¹,河野正道²,丸山茂夫^{1,2}

【序論】 シリコンクラスターはその物性や成長過程の解明が工学的に需要であり，またその構造に対しては学問的興味を持たれているが未だに良く知られていない．Si クラスターの幾何構造に関する研究は、理論，実験両面からの多くのアプローチが進められているが、比較的サイズが大きな Si クラスターではクラスターの生成自体が容易でないうえ、分光学的手法の適用は困難であり、化学反応性の測定が有用な手法となる．本研究室では FT-ICR 質量分析装置を立ち上げ、昨年度は化学反応実験の検証を行うためエチレンとの化学反応を行った．本年度は新たに一酸化窒素との化学反応を行った．その結果をレーザーによる解離実験と比較したところ興味深い事実が明らかになったのでここで報告する．

【方法】 レーザー蒸発法により生成されたシリコンクラスターを 6T の強磁場中に閉じこめ，アルゴンとの衝突により室温程度まで冷却した後，反応及びレーザー解離実験を行う．反応ガスの濃度は 1×10^{-6} Torr ，また光解離実験を行う場合は 355nm のレーザー光を照射した．

【結果】 Fig. 1 にシリコンクラスターと一酸化窒素との反応実験の結果を示す．この図からも NO との反応は単純な吸着反応ではなく， Si_{21} と 24 量体以上の場合には，式(1)のような Si 原子の引き抜き反応が起きると考えられる．



さらに 20,22,23 量体についても，生成物は常に N を持つことから初めには式(1)の引き抜き反応が起きていると考えられる．レーザーによる解離実験と解離パターンが似ていることから，その後サイズの大きなクラスターは反応による発熱を自分の振動モードでエネルギーを吸収することで構造を保つことができるが，サイズの小さなクラスターでは，反応熱を自分の振動で吸収しきれないため，そのエネルギーを逃がすために解離に至ってしまうと考えられる．

しかしながら Jarrold らがシリコンクラスターの Ion Drift 実験⁽¹⁾において 25 量体前後で構造が変化すると報告しており，本実験による現象の変化も概ねそれとサイズが近いことから，クラスターの内部構造をある程度反映した結果である可能性もあり今後の課題となっている．

(1) Robert R. Hudgins, M. Imai, M. F. Jarrold, Philippe Dugourd, J. Chem. Phys., 111-17, 1999, pp. 7865-7870.

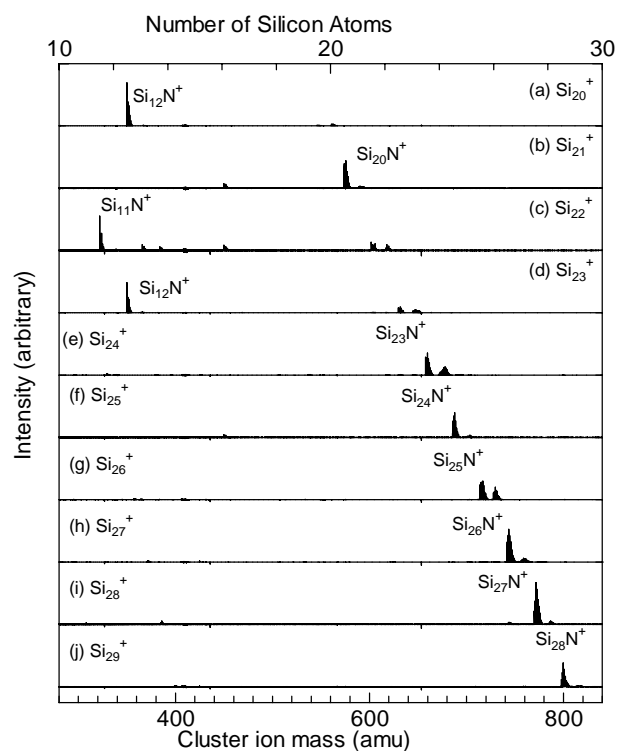


Fig. 1 Chemical reaction of Si cluster with NO.