

光電子イメージングによる銀クラスター負イオンの超原子軌道の探究

(九大院理) ○西里将・南川賢人・橋本治暉・松本一陽・荒川雅・堀尾琢哉・寺寄亨
 Photoelectron imaging of superatomic orbitals in silver cluster anions
 (Department of Chemistry, Kyushu University) ○Tasuku Nishizato, Kento Minamikawa,
 Haruki Hashimoto, Kazuaki Matsumoto, Masashi Arakawa, Takuya Horio, Akira Terasaki

Physical and chemical properties of metal clusters dramatically change by a single difference in the number of constituent atoms due to modification in their electronic structures. The spherical jellium model predicts that valence electrons of metal clusters occupy so-called superatomic orbitals (1S, 1P, 1D, 2S, ...). While the discrete energy levels have indeed been observed for various metal clusters by anion photodetachment spectroscopy, the angular momentum characters, S, P, D, ..., have not been fully explored so far. Herein, we apply our recently-developed novel photoelectron imaging apparatus to investigation of metal-cluster superatomic orbitals from the angular-momentum point of view. In this talk, we present our first results obtained for size-selected silver cluster anions, Ag_n^- .

Keywords : Silver Cluster; Photoelectron Imaging; Superatomic Orbitals; Photoelectron Emission Angular Distribution; Electronic Structure

アルカリ金属や貨幣金属のクラスター中の価電子は、エネルギーと軌道角運動量が量子化された超原子軌道 (1S, 1P, 1D, 2S, ...) を形成することがジェリウムモデルの下で示される[1]。この電子構造は、サイズに依存したクラスターの物性発現の鍵であり、負イオン光電子分光法が量子準位のエネルギーを測定する有効な手段となっている。しかし、軌道角運動量状態にまで及ぶ議論はこれまで十分になされて来なかった。最近我々は、金属クラスター連続発生装置[2]と光源に CW レーザーを用いた新たな光電子画像観測法を提案し、この問題に取り組み始めた。本発表では銀クラスター負イオンについて得られた結果を報告する。

総価電子数が 19 個の Ag_{18}^- について得られた光電子イメージ (3 次元分布の 2 次元射影像) を図 1(a) に示す。光電子脱離には波長 404 nm (3.07 eV) の直線偏光レーザーを使用した。放出された光電子はレーザーの偏光軸方向 ϵ に著しい異方性を示しており、異方性パラメータ (β) は約 1.9 と求まった。原子負イオンでは、直線偏光のレーザーで s 電子を脱離させると p 波が放出し、偏光軸方向に著しい異方性を示すことが知られている[3]。つまり、図 1(a) の結果は、電子がもともと超原子 S 軌道を占有していたことを示唆している。実際、図 1(b) に示すように、密度汎関数理論で予測される Ag_{18}^- の HOMO は超原子 2S 軌道と見なすことができ、理論的にも支持される。また、図 1(a) の結果は、同じく超原子 2S 軌道が HOMO となる Na_{19}^- について得られた結果[4]とも矛盾しない。このような手法を用いて金属クラスターの軌道角運動量の探究が可能となった。

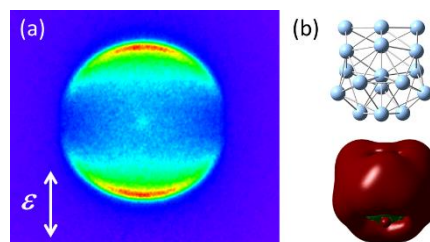


Figure 1
 (a) Photoelectron image observed for Ag_{18}^-
 (b) Optimized structure and HOMO of Ag_{18}^-

- [1] de Heer, *Rev. Mod. Phys.* **65**, 611 (1993). [2] Sarugaku *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **123**, 25890 (2019).
 [3] Cooper and Zare, *J. Chem. Phys.* **48**, 942 (1968). [4] Bartels *et al.*, *Science* **323**, 1323 (2009).