

配向分子線法による表面薄膜形成

Thin-Film Growth on Surfaces Using the Oriented-Molecular Beam Method

研究代表者 大阪大学大学院理学研究科 助手 岡田 美智雄
Graduate School of Science, Osaka University
Michio OKADA

I am developing a new facility of ultra-high-vacuum (UHV) compatible oriented-molecular beam line. The final goal of the present experiments is to control the surface chemical reaction by controlling the molecular orientation of impinging molecules. In the present research project, I will understand the molecular-orientation effects of the methyl chloride (CH_3Cl) on the dissociation and isotope-exchange process on Ir(100) and Si(111) surfaces. Unfortunately, the apparatus is still under construction. So, I will discuss here the present status of the apparatus and some preliminary results.

1. 研究目的

表面化学反応研究者の夢の一つは、表面上で起こる化学反応を制御し表面特有の物質相を構築したり微細加工を行うことです。現在まで走査型トンネル顕微鏡を用いた研究が盛んに行われています。しかし、走査型トンネル顕微鏡を用いた表面加工ではマクロレベルで表面全体に加工を施すのは不可能です。そこで、我々はイオンビームや分子ビームがもたらす表面化学反応を制御することにより表面を微細加工する方法を開発しています。具体的には六極不均一電場を用いて単一内部状態の分子を選択し表面に衝突する分子の向きを配向させる配向分子ビーム法により表面化学反応を立体制御し微細加工することを目指しています。この方法では表面に衝突する分子の向きを自由に制御できるため化学反応の高効率化ならびに選択性制御が期待されます。また、入射分子の立体制御により表面化学反応開始核を表面上に均一生成できるため、その後の拡散にともなう自己組織化反応も均一制御でき、均一な量子ドット生成をはじめとする表面微細加工制御が可能となります。本研究では、塩素化合物分子の

イリジウム(Ir)やシリコン(Si)表面における解離反応ならびに水素原子同位体置換反応における立体効果を明らかにすることを最終目標として実験装置の開発を行ってきました。現在、実験装置はまだ開発途中にあり本研究における最終目標実験を行っていない状態にありますが、装置完成時には解離吸着反応ならびに水素原子同位体置換反応過程が入射塩素化合物分子の配向にどのように依存するかを明らかにしたいと考えております。配向分子ビームによる化学反応観察では、塩素原子端から表面に入射した場合に表面解離吸着反応ならびにエッチング反応が高効率でしかも均一に起こることを期待しています。このような配向分子ビームを利用した表面微細加工ならびにその制御に関する研究は国内はもとより海外でもその例はなく、全く新しい試みであり新しい表面微細加工法開発のブレークスルーとなることを期待しておりできるだけ早急に最終目標に到達したいと考えています。ここでは、装置の現在までの建設状況ならびに予備的に行った Ir 表面での水素吸着に関する実験結果について報告いたします。

2. 研究経過

塩素化合物分子（具体的には塩化メチル分子）の分子ビームを六極不均一電場中を通過させ、シュタルク効果により単一内部状態の分子のみを選択集束する配向分子ビームラインを完成し現有の超高真空チャンパーに接続することを計画しました。当初はこの予定で研究を進める予定でしたが研究費が不足するため研究室が現有する気相実験用の高真空ビームラインに測定用超高真空チャンパーを接続を試みました。しかし、測定用超高真空チャンパーの真空度が維持できないため固体表面の実験ができないことがわかりました。やはり固体表面研究のためにはビームラインを超高真空化する必要があり、新たに設計とシミュレーションから始めたため当初の予定は大幅に遅れることとなりました。そこで、固体表面研究のための超高真空対応ビームラインの設計を行いました。そのために図1(a)-(c)に示されるように6極電極の長さを変えた場合について565 m/sec 回転温度3 Kの塩化メチル分子ビームの集束曲線のシミュレーションを行い電極の長さを1 mに決定しました。この長さの電極を用いれば本研究に必要な塩化メチル分子の $|111\rangle$ 状態は十分に選別できることがわかります。

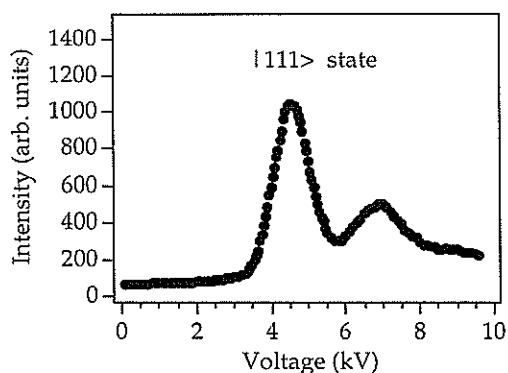


図1(a) 0.5 m 電極の集束曲線

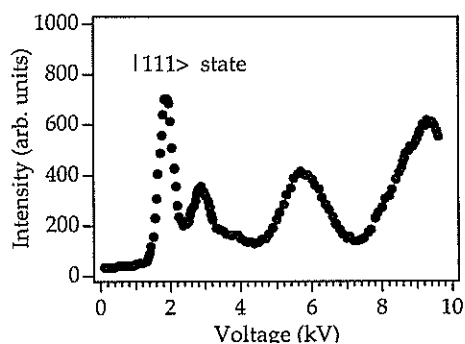


図1(b) 1.0 m 電極の集束曲線

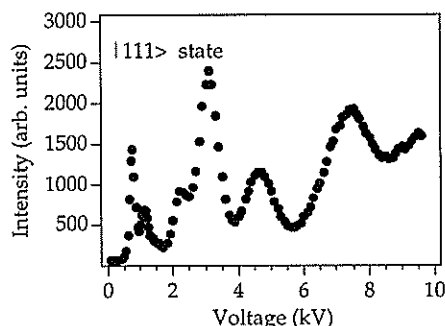


図1(c) 2.0 m 電極の集束曲線

現在のビームラインの建設状況は図2の写真に示す通りで完成までにはもう少し時間がかかります。

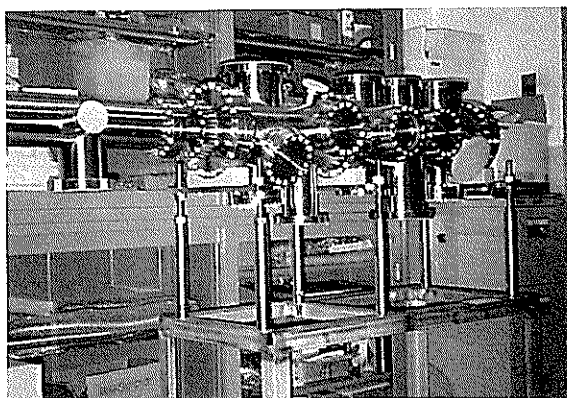


図2 建設中の配向分子ビームライン

次にビームラインを接続する超高真空チャンバーの調整をかねて行った予備実験について報告します。低速電子回折(LEED)装置を組み込んだ超高真空槽内で Ir{100}表面への水素吸着ならびに同位体置換反応の研究を行いました。この研究は、塩化メチル分子の同位体置換反応を調べる際の基礎データとなる重要な予備実験です。この装置では四重極質量分析計による昇温脱離スペクトル(TDS)の測定も可能となっております。以下にその調整した結果を述べます。図3に清浄ならびに水素が飽和吸着した Ir{100}表面の低速電子回折パターンならびに昇温脱離スペクトルを示します。清浄表面では Ir{100}表面は(5×1)の低速電子回折パターンを示すことが知られていますが、水素吸着により表面構造が変化している様子がわかります。また、表面に吸着した原子・分子の分析に欠かせない昇温脱離スペクトルにおいては水素誘起の表面構造変化に対応したピークが観察されることがわかりました。本研究では新しく準安定

状態の構造である(3×1)構造が水素により誘起されることを発見したことが重要な点です。また、重水素と水素の共吸着系における LEED ならびに TDS の測定結果から水素の解離吸着の際に余剰エネルギーが既に吸着している水素原子に移行されその原子がサイトを移動して結合反応を起こす事を見出しました。これが同位体置換反応の反応素過程の一つになっていると考えられます。また、表面における水素-水素結合反応に下地の Ir 表面の構造が大きく影響していることも見出しました。この予備的研究により Ir(001)表面における水素吸着系についてはかなりの部分が解明され、今後この表面上で塩化メチル分子の水素同位体置換反応を配向分子線を用いて調べていく上で必要となる水素吸着系の情報は得られました。今後は、塩化メチル分子を導入して構造変化や同位体置換反応について調べる予備実験を続けて行きたいと考えています。

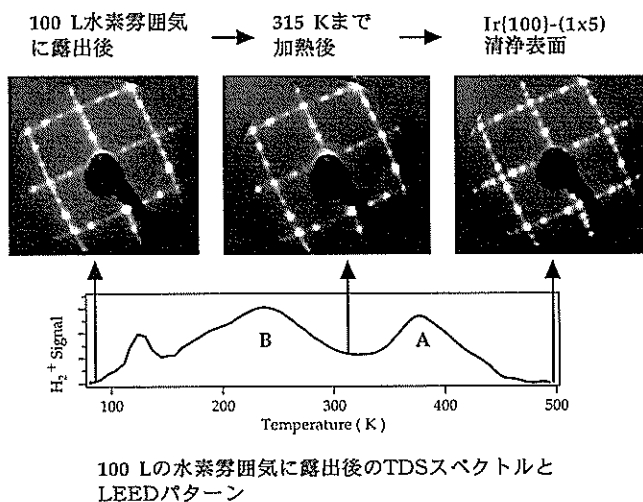


図3. 水素が飽和吸着した Ir{100}表面の TDS スペクトルならびに対応する LEED パターン

超高真空対応ビームラインには、さらに原子レベルでの表面構造変化を観察できるように STM 装置を接続します。図 4 と 5 に現有する STM 装置で測定された HOPG と Si 表面の STM 像を示します。Si 表面の像ではまだ振動ノイズを除去できていないため十分な分解能が得られていません。今後調整して行く予定です。ビームラインとの複合装置が完成すれば配向分子線がもたらす表面化学反応による構造変化を原子レベルで明らかにすることができ配向分子線法が薄膜成長法として有効であるかどうかを検証することができます。

3. 研究成果

H/Ir(100)系において新しい準安定表面構造を発見し、その化学反応性を明らかにしました。超高真空対応配向分子ビームラインは未完成でありこれを利用した研究成果はまだ得られていない状況です。

4. 今後の課題と発展

今後早急に超高真空対応型配向分子ビームラインを完成させ本研究の研究課題を実現する予定です。研究課題が実現すれば新しい薄膜成長法となると考えています。

5. 発表論文リスト

1. Hydrogen Adsorption and Reaction on Ir(001)-(1x5). K. Moritani, M. Okada, T. Kasai, and Y. Murata, Surf. Sci. 投稿中
2. Hydrogen Atom-Atom Reaction on the Ir(001). K. Moritani and M. Okada 投稿準備中

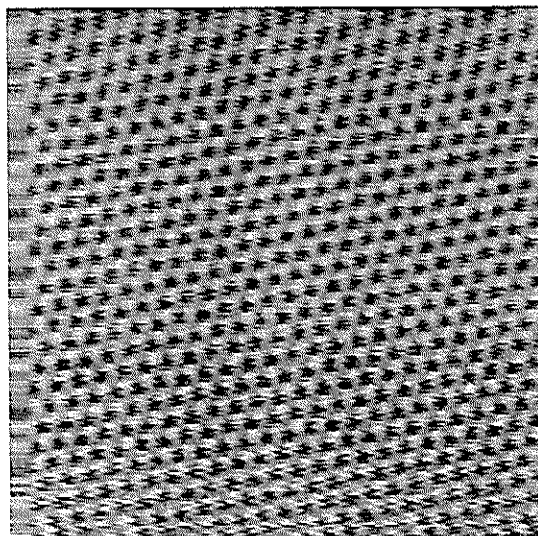


図 4 HOPG の STM 像

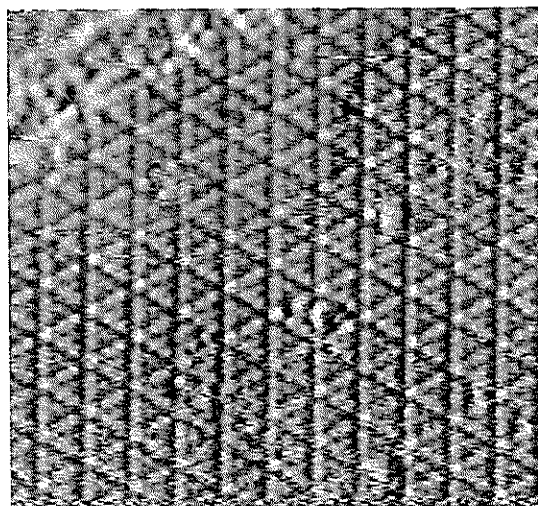


図 5 Si(111) の STM 像