

## 自己評価報告書

平成 23 年 4 月 1 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2011

課題番号：20350005

研究課題名 (和文) 表面分光法による配向・配列分子ビーム誘起の表面反応立体ダイナミクスのプローブ

研究課題名 (英文) Spectroscopic Probe of Stereodynamics in Surface Chemical Reactions Induced by Oriented and Aligned Molecular Beams

## 研究代表者

岡田 美智雄 ( OKADA MICHIO )

大阪大学・科学教育機器リノベーションセンター・教授

研究者番号：30281116

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：表面・界面

## 1. 研究計画の概要

研究計画は以下の項目からなる。①配列制御分子線源の作製、②配向分子線法と赤外分光法の融合装置の作製、③配列分子線法と赤外分光法の融合装置の作製、④①～③の装置を用いて、半導体表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる。⑤①～③の装置を用いて、金属表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる。

## ① 高密度配列分子線源の作製

分子の回転アライメント選択用の高分解能速度選別器を製作導入し既存の分子線装置に設置し調整する。高分解能速度選別により分子の回転運動の回転軸が表面に平行な車輪型か垂直なヘリコプター型か制御して分子ビームを発生することができる。また、ビーム調整後にシリコン表面の酸素分子による酸化反応について入射分子のアライメント効果を調べる。

## ② 配向分子線法と赤外分光法の融合装置の作製

現有している超高真空対応型配向分子線装置に赤外吸収分光装置を融合し、配向分子ビーム照射中に表面化学反応により生じる生成物をリアルタイムで観察する。

## ③ 配列分子線法と赤外分光法の融合装置の作製

①で開発した大阪大学に設置する高密度配列分子線源と②の各種赤外吸収分光装置を融合して配列分子ビーム照射中に表面化学反応により生じる生成物をリアルタイムで観察する。

④①～③の装置を用いて、半導体表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる

方向性のあるダングリングボンドをもつシリコン表面に配向・配列分子線を照射し、分子軌道の方向を制御した表面化学反応により生じる生成物をリアルタイムで観察する。

## ⑤①～③の装置を用いて、金属表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる

④と同様の研究を白金 (Pt) やイリジウム (Ir) のような化学反応性に富む表面を用いて行い、金属表面での物質合成の指針を得たい。また、Pt 表面上では、NO と CO が反応して CO<sub>2</sub> を生成する触媒反応がよく知られている。この反応は、NO や CO をより安全なガスに変換するプロセスとして重要である。このような触媒反応についても、飛来分子の配向・配列効果を調べ、それを基にして触媒能を改善する表面物質合成を目指したい。

## 2. 研究の進捗状況

## ① 高密度配列分子線源の作製

パルス分子線ではビームの素性が十分でないことが予備実験で判明したため、連続分子線源を新しく設計・作製して現在調整している。

## ② 配向分子線法と赤外分光法の融合装置の作製

現有している超高真空対応型配向分子線装置に赤外吸収分光装置を融合する装置を作製して現在調整している。Cu 表面のエチレン吸着系を利用して、前年度に比して、微小信号が安定に測定できるように装置を調整した。

## ④ 配列分子線法と赤外分光法の融合装置の作製

①の開発が遅れたため、まだこの課題は行っていない。

#### ④①～③の装置を用いて、半導体表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる

高輝度放射光施設に既設の超高真空対応配向分子表面反応装置を用いて、Si 表面への NO 分子の化学吸着過程の入射分子配向依存性について光電子分光法を用いて調べた。表面反応生成物の観察により、入射分子の並進エネルギーならびに表面温度に依存した分子配向効果を見出した。また、アセトニトリル分子(CH<sub>3</sub>CN)では、King-Wells 法により付着確率をうまく測定できないことがわかった。これは、CH<sub>3</sub>CN と真空槽壁面との相互作用が強いためである。そこで、表面散乱測定法を導入する準備を行い、塩化メチル分子(CH<sub>3</sub>Cl)がシリコン(Si)やグラファイト(HOPG)表面から散乱される様子を調べた

#### ⑤①～③の装置を用いて、金属表面での表面化学反応立体ダイナミクスを調べる

①②の開発が遅れたため、まだこの課題は行っていない。

#### 3. 現在までの達成度

##### ③やや遅れている

装置の開発が、試行錯誤を要したため計画は遅れ気味であるが、中途で行った予備実験において配向効果を見出す等いくつかの大きな成果も得ることができた。

#### 4. 今後の研究の推進方策

装置の問題はほぼ解決し、実験に関わる装置は概ね完成したので、調整を行った後、計画書に沿った研究を推進してする。

#### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 15 件)

- ① M. Okada, “Surface chemical reactions induced by well-controlled molecular beams: Translational energy and molecular orientation control” *Journal of Physics: Condensed Matter*, **22**, 2630003-1~23 (2010) 査読有.
- ② M. Okada and T. Kasai, “Molecular Orientation Effects in Gas-Surface Dynamical Processes”, *The European Physical Journal B*, **75**, 71-79 (2010) 査読有.
- ③ T. Fukuyama, M. Okada, T. Kasai “Steric effects in the scattering of oriented CH<sub>3</sub>Cl molecular beam from a graphite surface: weak interaction of physisorption”, *Journal of Physical Chemistry A*, **113**, 14749-14754 (2009)

査読有.

- ④ M. Okada, S. Goto, T. Kasai, “Steric Effects in Dissociative Adsorption of Low Energy CH<sub>3</sub>Cl on Si(100): Orientation and Steering Effects”, *Journal of Physical Chemistry C*, **112**, 19612-19615 (2008) 査読有.
- ⑤ M. Hashinokuchi, M. Okada, H. Ito, T. Kasai, K. Moritani, Y. Teraoka, “Stereodynamics in dissociative adsorption of NO on Si(111)”, *Physical Review Letters*, **100**, 256104-1~4 (2008) 査読有.

[学会発表] (計 24 件)

- ① 岡田美智雄, “超音速配向分子線による表面化学反応立体ダイナミクスの展開”, 第 51 回真空に関する連合講演会, 2010 年 11 月 4 日, 大阪大学.
- ② 岡田美智雄, “Stereodynamical control of surface chemistry with oriented molecular beam”, IISC-18, 2010 年 10 月 1 日, Tennessee, USA.
- ③ 岡田美智雄, “Molecular-beam induced chemical reactions on semiconductor and metal surfaces”, SURFINT-SREN II, 2009 年 11 月 19 日, Florence, Italy.
- ④ 岡田美智雄, “Dynamical Steric Effects in Surface Chemical Reactions”, ECOS26, 2009 年 9 月 4 日, Palma, Italy.
- ⑤ 岡田美智雄, “Stereodynamics of Surface Chemical Reactions with Oriented Molecular Beam”, 44th Workshop: Dynamical Phenomena in Low-Dimensional Systems, 2008 年 7 月 24 日, Erice, Italy.

[図書] (計 2 件)

- ① M. Okada and Y. Teraoka, “Molecular-beam controlled chemical reactions on Si surfaces”, in *Encyclopedia of Semiconductor Nanotechnology*, Ed. Ahmad Umar, American Scientific Publishers (ASP), in press (2011).
- ② M. Okada, K. Moritani, L. Vattuone, L. Savio, Y. Teraoka, T. Kasai, M. Rocca, “Fabrication of Cu Oxides on Single Crystal Cu Surfaces using Hyperthermal O<sub>2</sub> Molecular Beams”, in *Metal Oxide Nanostructures and Their Applications*, Eds. A. Umar and Y.-B. Hahn, American Scientific Publishers, pp. 205-237 (2010).