

平成 21 年 5 月 27 日現在

研究種目：若手研究 (B)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19740278
 研究課題名 (和文) 星間水素分子生成のダイナミクス；
 水氷表面で生成脱離する水素分子の速度分布測定
 研究課題名 (英文) Dynamics for formation of Interstellar Hydrogen Molecules；
 Time-of-flight measurement of hydrogen molecules abstracted on an ice surface.

研究代表者
 成田 克 (NARITA YUZURU)
 山形大学・大学院理工学研究科・助教
 研究者番号：30396543

研究成果の概要：宇宙塵表面での水素引抜き反応による星間水素分子生成メカニズムを解明するために、引抜き反応水素分子の運動エネルギー測定を行うための飛行時間分布 (Time-of-flight: TOF) 測定装置を構築した。しかし、実際に水氷表面で生成される水素分子は微量であるため、水氷表面よりも水素分子生成量が多いと予想されるシリコン表面にて水素引抜き反応実験を行い、ダイナミクスに関する有益な結果を得た。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,000,000 円	0 円	2,000,000 円
2008 年度	1,200,000 円	360,000 円	1,560,000 円
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000 円	360,000 円	3,560,000 円

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・固体地球惑星物理学

キーワード：水素原子、Time-of-flight 測定、引抜き反応、脱離、星間水素分子、ダイナミクス、昇温脱離法、シリコン

1. 研究開始当初の背景

水素は宇宙空間で最も豊富に存在している元素で、全体量の 90%以上を占めており、そのほとんどは星間ガスの構成物として存在している。この星間ガスが高密度になったものが分子雲であり、星が誕生する源になると思われる。従って、星の誕生を研究する上では、水素分子の起源、即ち、いかにして 2 個の水素原子が分子に変換されるかを知ることが宇宙科学的に非常に重要な問題である。宇宙空間における水素分子形成には、

生成エネルギーの散逸に関する問題が存在する。水素原子同士が反応し、水素分子を形成することにより、ポテンシャルエネルギーは低下する。そのため、安定な分子形成にはこの分子形成の際に生じるエネルギーを吸収する第 3 体が必要になる。しかし、宇宙空間における原子密度は約 $1 \text{ 個}/\text{cm}^3$ と低く、その為これらの原子が 3 体衝突を起こす確率はきわめて小さく、気相での水素分子形成はほとんど不可能である。そこで、宇宙科学者達は宇宙塵水氷表面での水素分子形成モデル

を提案している。水素原子は水氷表面に吸着することで存在確率を高め、他の水素原子との反応確率を増加させる。更に、水氷の基板表面が反応エネルギーを効率よく吸収することで、水素分子の形成を容易にすると考えられる。

金属表面や半導体表面では、吸着水素の気相水素による引抜き反応に関して、実験や理論が活発に行われている。最も代表的な反応機構は直接引抜き反応(Eley-Rideal 反応)である。他方、金属や半導体表面ではEley-Rideal 反応の他に、吸着誘起脱離反応(AID)の存在が実験的に示されている。このモデルは、吸着水素が他の水素原子の吸着に刺激されて分子脱離を行うという、間接的な引抜き反応である。このように、金属表面や半導体表面では水素分子形成メカニズムについての様々な報告がなされているが、水氷表面での水素分子形成のメカニズムは実験的にはまだ分かっていない。

2. 研究の目的

そこで本申請課題では、アモルファス水氷表面にまず水素原子を吸着させ、そこに水素原子ビームを照射した時に脱離(直接引抜き脱離または吸着誘起脱離)する水素分子の運動エネルギーを測定し、水氷表面での水素分子形成のダイナミクスを調べることが目標に、飛行時間分布(Time-of-flight: TOF)測定装置の開発・構築を行った。

本申請課題を遂行するに当たり、予想される一番の問題点は水氷表面から脱離する水素分子が微量であるため、飛行時間分布(TOF)測定において四重極質量分析計(QMS)での水素分子検出が困難であることである。しかし、エネルギー分解能を高めるためにはTOF測定においてある程度の飛行距離が必要で、このジレンマをいかに克服するかが本研究課題の最たる目的である。

そこで、水氷表面に変わってシリコンをテスト表面として、以下の4つの実験を行うことによって、微量な飛行分子でも検出できるTOF装置の開発を行った。

(1) TOF装置の構築とEffusive Heを用いたTOF測定システムの動作確認

(2) 水素吸着シリコン表面から散乱される水素分子のTOF測定

(3) 水素原子ビームの性能評価

(4) D吸着Si表面におけるH原子による引抜き水素分子(HD)の運動エネルギー分布測定

3. 研究の方法

本研究で構築したTOF測定システムを図1に示す。装置は大きく分けて、水素原子生成チャンパー(三段作動排気)、気体-固体表面

反応チャンパー、TOF測定チャンパー(三段作動排気)から構成されている。TOF分布は疑似ランダムチョッパーを用いたクロスコリレーション法にて測定した。前節で述べた各実験方法を以下に記述する。

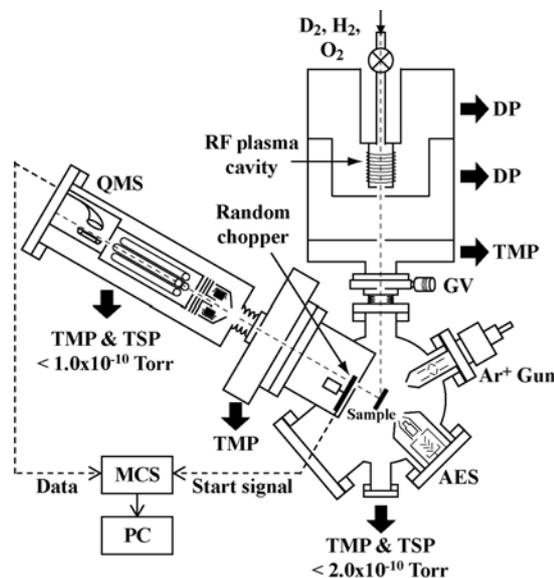


図1 実験装置の概観図

(1) 分解能をあげるため、飛行距離を比較的長めに設計した。その後、TOF装置の動作確認を行うために、気体-固体表面反応チャンパーにHeガスを充満($\sim 1 \times 10^{-6}$ Torr)させ、気体-固体表面反応チャンパーとTOF測定チャンパーの間に設けているアパーチャーから漏れ出したHeガスをQMSで検出して、並進運動エネルギーを測定した。

(2) 水素原子生成チャンパーにてH₂分子をRFプラズマにより解離し、Si(100)清浄表面に吸着させた。その後、同ラインから室温程度のエネルギーを有するD₂分子ビームをその表面へ照射し、散乱されたD₂分子のTOF測定を行った。この時の飛行距離は59.5 cmである。

(3) 水素原子(D)ビームの性能評価を昇温脱離法(TPD)と等温脱離法を用いて行った。TPDでは、以下に示す二つの方法によってSi(100)表面にD原子を吸着させた。一つはSi(100)表面を473Kに固定してD原子を照射させる場合、もう一つは基板温度を水素脱離が生じる648-748Kに設定し、D原子を照射後直ちに473Kに降温させる場合である。また、等温脱離法はD原子ビームをチョッパーやゲートバルブを用いてパルス化して、シリコン表面に照射させた。

(4) 水素吸着シリコン(D/Si(100))表面

に、PF プラズマによって H₂ 分子を解離した H 原子ビームを水素吸着表面に照射し、引抜き反応によって脱離する HD 分子の運動エネルギー分布測定を行った。飛行距離は 38.0 cm である。この時、1 回の測定で脱離する HD 分子の強度が非常に弱いため、同実験を 100 回繰り返し、データを積算した。

4. 研究成果

(1) 飛行距離を 59.5cm とした TOF 装置を構築した。まずは TOF 測定システムの動作確認を行うために、気体-固体表面反応チャンバーに He ガスを充填させ、Effusive He の TOF 測定を行った。システムが正常に動作しているならば、得られる TOF 分布は室温程度 (300K) のマクスウェル-ボルツマン (MB) 分布と一致するはずである。しかしながら、得られた TOF 分布のピーク位置は 300K の MB 分布のものとは一致したが、ピークのテイルが膨らんだものであった。これは He を検出する QMS のイオン化部の形状に問題があり、それを修正することによって、正しい TOF 分布を得ることが出来た。このことから、本研究課題で構築した TOF 測定システムは正常に稼働していると判断できる。

(2) 水素吸着シリコン表面からの散乱水素 (D₂) 分子はすべて trapping-desorption 散乱機構であることがこれまでに報告されている。そこで、ビームラインを含めた全測定システムの動作確認も含めてそれを確かめるために、水素吸着シリコン表面からの散乱 D₂ 分子の TOF 測定を行った。その結果を図 2 の下段に示す。比較のため、He ビームを用いた場合の結果も示す (図上段)。もし、散乱された D₂ 分子のすべてが trapping-desorption 散乱機構であるならば、散乱された D₂ 分子は表面温度 (600K) と同じ MB 分布に従うはずである。しかしながら、図 2 下段を見て分かるように、散乱された D₂ 分子は表面温度よりも十分低い (431K) MB 分布に従った。この結果は、「散乱水素 (D₂) 分子はすべて trapping-desorption 散乱機構である」というこれまでの報告とは矛盾する。本結果から、水素分子の散乱機構は direct-inelastic 散乱が主な散乱過程であることを見出した。このことから、本研究課題で構築した TOF 装置は運動エネルギーを評価するのに十分な性能を有することが分かった。

(3) 水素原子ビームの性能評価を昇温脱離法 (TPD) と等温脱離法によって行った。テストサンプルに研究実績の多い Si(100)-2×1 表面を選択し、重水素 (D₂) を RF プラズマによって D 原子に分解し、Si(100)表面に照射した。図 3 に D 原子照射方法を変えたときのモノヒドライドからの水素脱離である

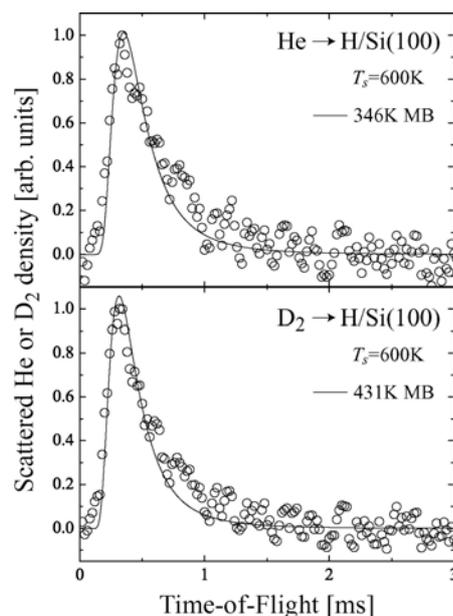


図 2 水素吸着シリコン表面から散乱した He と D₂ の TOF スペクトル

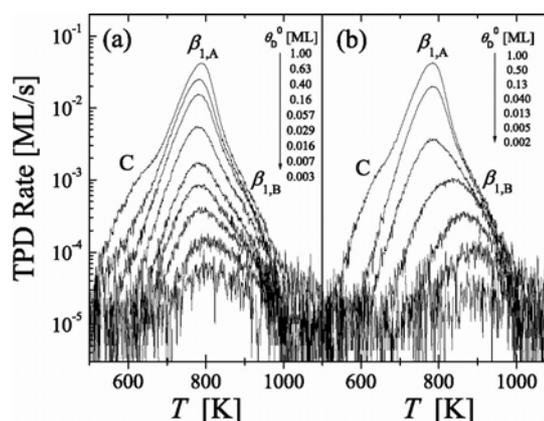


図 3 TPD スペクトル

β_1 -TPD スペクトルを示す (実験方法は「3. 研究の方法」を参照)。その結果、 β_1 ピークには 1st-order 成分の他に実は 2nd-order 成分も含まれていること、また等温脱離実験の結果と合わせて 0.6ML 以下の水素被覆率領域で、水素脱離の活性化エネルギーが 1.6eV であることが見出した。この結果は、これまで信じられてきた結果とは異なった。

このことから、本研究で使用した水素原子ビーム源は非常に高性能であることが分かった。

(4) 本実験を行った当初、H 原子によって D/Si(100) 表面から引抜き反応で生成される HD 分子の QMS でも検出は不可能であった。そこで、水素原子ビームのフラックス強度を高める工夫を行った結果、QMS にて HD 分子を検出することが出来た。しかしその信号強度の S/N が悪いため 100 回測定を行って解析し、

Si 表面での水素引抜き反応のキネティクスとダイナミクスを論じる上で重要な結果を得た。図4に表面温度473Kにおける結果()である。これまでの引抜き反応のキネティクスの結果を踏まえ、このTOF分布を直接的な引抜き反応 (ABS) と熱的な機構に従う吸着誘起引抜き反応 (AID) 成分に分解した(実線)。この結果から、ABS成分とAID成分の収量比はほぼ2:1であり、これは、Hayakawa等により得られたキネティクスでの成分比と等しかった。ABS成分の平均エネルギーは1.1 eVであり、AID成分の平均エネルギーは0.33 eVであった。

以上の結果から、当初目標にしていた水氷表面では無く Si(100)表面での水素引抜き反応のTOF分布を測定することが出来た。今後はさらに水素原子ビームのフラックス強度を高め、水氷表面での水素引抜き反応実験を行う予定である。

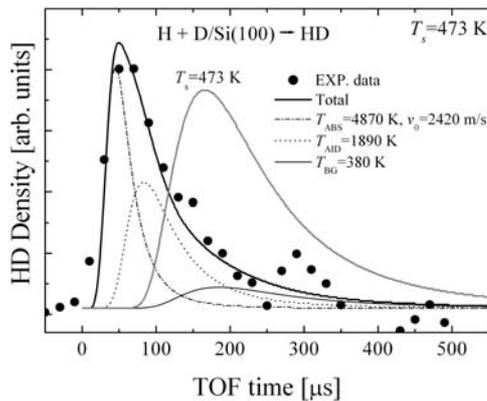


図4 表面温度473KにおけるH原子によってD吸着シリコン表面から引抜かれたHD分子のTOF分布

5. 主な発表論文等

(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2件)

Y. Narita, Y. Kihara, S. Inanaga, and A. Namiki, Substantially low desorption barriers in recombinative desorption of deuterium from the Si(100) surface, *Surface Science*, **603**, 1168-1174, (2009)、査読有
S. Ueno, Y. Narita, A. R. Khan, Y. Kihara, A. Namiki, Scattering of 300 K D₂ effusive beams from the H/Si(100) surface, *Surface Science*, **602**, 1585-1588, (2008)、査読有

〔学会発表〕(計5件)

安富伍郎、佐藤真一郎、吉田佑太郎、A.R. Khan、成田 克、並木 章、D吸着Si表面から引き抜かれたHD分子の飛行時間分布測定、第56回応用物理学学術講演会、2009年4月2日、筑波大学

Y. Narita, Y. Kihara, S. Inanaga, F. Hirose, A. Namiki, D₂ Isothermal Desorption from Monodeuteride Phase on Si(100)-2x1 Surface, The 5th International Symposium on Surface Science and Nanotechnology (ISSS-5)、2008年11月12日、早稲田大学

Y. NARITA, Y. KIHARA, G. YASUTOMI, S. INANAGA, A. NAMIKI, Analysis of β₁-TPD Spectra from Si(100) Surface, The 4th Vacuum and Surface Sciences Conference of Asia and Australia (VASSCAA-4)、2008年10月28日、くにびきメッセ

成田克、木原康裕、安富伍郎、A.R. Khan、佐藤真一郎、並木章、Si(100)表面の monohydride 相からの水素脱離スペクトルの解析、第55回応用物理学関係連合講演会、2008年3月28日、日本大学理工学部

佐藤真一郎、成田克、A.R. Khan、木原康裕、安富伍郎、袁群、並木章、等温熱脱離から求めた水素脱離エネルギーのSi面方位依存性、第55回応用物理学関係連合講演会、2008年3月28日、日本大学理工学部

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

成田 克 (NARITA YUZURU)

山形大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：30396543

(2)研究分担者

なし ()