

酸素分子の立体配向制御と表面反応計測への応用

Application of an aligned O₂ beam to surface reaction analysis

物材機構 倉橋光紀

NIMS: Mitsunori Kurahashi

E-mail: Kurahashi.mitsunori@nims.go.jp

基礎・応用両面で重要な酸素分子は、球でない形を持つ直線分子である。表面に飛来する O₂ 分子の軸方位は、表面反応の速度や反応生成物に影響を与えている。しかし、O₂ 分子の立体配向制御は容易でなく、分子軸方位の影響を計測することは困難であった。我々は、酸素分子の磁気モーメントが分子内回転の角運動量に依存する点に着目し、六極磁子法による磁場選別法を用いて、スピン状態と回転状態の双方をよく定義できる大強度 O₂ ビームを初めて生成した。そして顕著な軸方位依存性を Si(100)および Al(111)表面への酸素吸着に対して観測し、低い解離吸着確率の裏には立体効果があること、立体効果計測が反応ダイナミクス解明に有効であることを示した。

スピン・回転状態(J,M)=(2,2)における O₂ 分子軸の方位分布は球面調和関数 $|Y_{11}|^2$ で与えられ、分子軸は定義磁場に対して主に垂直方向を向く[図 1(a)]。磁場を表面法線方向に向ければ分子軸は主に表面平行となり(helicopter 配置)、試料平行に向ければ表面平行と垂直の場合が混在する cartwheel 配置となる[図 1(b)]。Si(100)表面では helicopter 配置の方が cartwheel 配置より付着確率が高い(図 2)。分布関数から逆算すると、分子軸が表面平行に近い分子のみが吸着していることがわかる[1]。単一ドメイン試料での実験では、分子軸方位と面内結晶軸の相関も観測され、軸が表面平行かつダイマーに対して垂直の場合に反応性が高いことがわかった。このように特定の軸方位を持つ分子しか反応できないことが、Si 表面に対する低い O₂ 吸着確率と結びつく。

Al(111)表面においても、低並進エネルギー条件では(0.2eV 以下)、分子軸が表面平行の場合に吸着確率が高い[2]。この結果は反応ダイナミクスを議論する上で重要な意味を持つ。熱エネルギー(~20meV)分子との反応で表面に生じた吸着種は single atom であり、軸が表面垂直の O₂ 分子が引き起こす引き抜き機構に由来する、という解釈されてきた。しかし、本結果はこの STM 像解釈と引き抜き機構を明瞭に否定する[2]。

[1]M. Kurahashi and Y. Yamauchi: Phys. Rev. B 85, 161302R (2012).

[2]M. Kurahashi and Y. Yamauchi: Phys. Rev. Lett. (in Press).

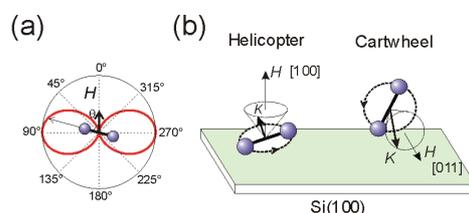


図 1: (a)酸素分子軸の方位分布関数, (b)磁場による分子軸方位の制御

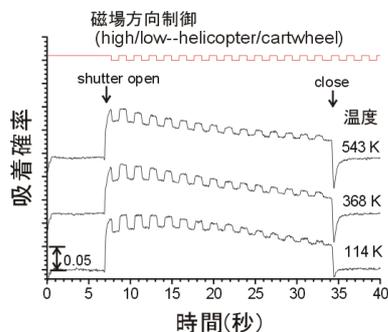


図 2. Si(100)表面への酸素分子吸着確率の立体配置依存性。