

量子状態選別酸素分子ビームによる表面反応スピン・立体効果の観測**Observation of spin and steric effects in surface oxidation by state-selected O₂ beam**

物材機構 倉橋光紀

NIMS: Mitsunori Kurahashi

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

酸素吸着は、触媒、腐食、絶縁膜生成など産業的に重要な化学反応の第一ステップであり、表面科学の重要なトピックで有り続けている。酸素吸着表面の構造や電子状態は STM、光電子分光法、電子状態計算等により、吸着反応の活性化障壁や動的過程は分子線法により詳しく研究されてきた。一方、酸素分子は直線分子という異方的形状を持ち、基底状態において二個の対電子に由来する電子スピンを持つ。酸素分子の向きやスピン状態が表面反応に与える影響に関しては、これまでこれらの量を良く制御できる実験手法がなかったため、あまり良く理解されていない。一般に、二個の分子が接近・衝突して化学反応を起こす際、反応速度や生成物は分子相互の立体配置に依存する。従って、表面に対する O₂ 分子軸の向きは、酸素吸着確率はもちろん、表面に生じる酸化物の化学状態や構造にも影響すると予想される。次にスピンの着目すると、表面が磁性を持つ場合、O₂-表面相互作用ポテンシャル、表面から O₂ への電子移動確率のスピン依存性のために、O₂ 吸着確率にスピン依存が現れる可能性がある。酸素分子のスピンは非磁性体表面での反応でも重要な役割を果たしているかもしれない。解離吸着の活性化障壁を議論する際、表面に接近する分子の電荷やスピン状態がどのように時々刻々変化するのが重要である。アルミニウム表面酸化では、表面からかなり近い位置に達するまで O₂ 分子がスピンを保持することが最近の理論計算により提案されている[1]。しかし接近する分子のスピンを議論できる実験報告はない。酸素分子の向きやスピンを制御した表面反応実験は、これら諸問題の理解に大変有益と考えられる。

我々は、超音速酸素分子線と六極磁子による磁場選別法を用い、分子回転状態とスピン状態の双方をよく定義できる単一量子状態(J,M)=(2,2)選別酸素分子ビームを初めて生成した[2]。本量子状態においては、磁場に対する分子軸方位分布関数を指定でき、酸素分子軸は定義磁場に対して主に垂直方向を向く。またスピンの磁場方向成分も指定される。本ビームを用い、O₂ 吸着確率が表面に対する分子軸方位に大きく依存することを Si(100) [3]および Al(111)表面[4]に対して明らかにした。さらに最近、吸着確率が O₂ と表面スピンの相対関係に依存することも見いだした。

[1] Behler et al., PRL 94, 036104 (2005), Libisch et al. 109, 198303 (2012).

[2] M. Kurahashi and Y. Yamauchi, RSI, 110,083103 (2009).

[3] M. Kurahashi and Y. Yamauchi: PRB 85, 161302R (2012), JCP Comm.140, 031102(2014).

[4] M. Kurahashi and Y. Yamauchi: PRL, 110, 246102 (2013)