



Universiteit
Leiden
The Netherlands

Knocking on surfaces : interactions of hyperthermal particles with metal surfaces

Ueta, H.

Citation

Ueta, H. (2010, November 16). *Knocking on surfaces : interactions of hyperthermal particles with metal surfaces*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/16153>

Version: Corrected Publisher's Version

License: [Licence agreement concerning inclusion of doctoral thesis in the Institutional Repository of the University of Leiden](#)

Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/16153>

Note: To cite this publication please use the final published version (if applicable).

要旨

この要旨は、英語での要旨を直接翻訳したものではなく、前半は筆者なりに広く一般の読者に伝わるように、また後半は各章の概要を述べたものです。

気体と固体表面の間で起こる過程は科学・工業技術において本質的なものである。本博士論文はこの気体－固体表面の相互作用について研究したものである。気体－固体表面の相互作用は半導体産業や化学工業に限ったものでなく、身の回りでも起こっている。金属の腐食がその一例である。

単純な原子や二原子分子の吸着、散乱、化学反応といった基礎的な気体－表面の相互作用は複雑なその原型であり、それらを理解することはより複雑な系を理解する第一歩である。また、近年急速に発達している理論計算研究で用いられるコンピュータモデルが正当であるかを判断する上でもそれらの実験的研究は大変重要なものである。

基礎的な単純原子・分子と表面の相互作用を理解するには、いかによく定義された条件で研究できるかが重要になる。本博士論文は、対象とする気体と表面への周囲の気体の影響が無視できる環境下 ($<10^{-7}$ Pa の超高真空) で、気体の入射条件 (入射角度やエネルギー)、温度、表面構造が定義された条件下で実験を行った研究成果を述べるものである。

気体と表面の相互作用は気体の入射エネルギーに強く依存する。本研究では気体の入射エネルギー (E_i) が熱エネルギー ($E_i=10-100$ meV) よりも高く、かつ一般的に用いられるイオンビームエネルギー ($E_i \geq 50$ eV) より低い “超熱エネルギー ($E_i=1-10$ eV)” をもつ気体とルテニウム (Ru) の(0001)面及び銀 (Ag) の(111)面の相互作用に焦点を合わせたものである。この超熱エネルギーは、表面に化学吸着している原子や分子の吸着エネルギーと同等または幾分高いが、金属表面に損傷を与えたり、固体内部へ侵入できるほど高くはなく、非常に近距離において表面と相互作用する。また、このエネルギー領域は高温高圧下で触媒反応を起こす化学工業プロセスや核融合反応の反応炉内における気体－表面相互作用において特に重要な役割を担う。

本博士論文は基礎的な気体－表面相互作用の一つである気体の散乱過程を理解することに重点が置かれる。超熱エネルギー気体を用意することは、従来の超音速分子線技術やイオンビーム源では限界がある。本研究ではアークプラズマ源を導入することで、超熱エネルギー気体を用意することが可能となり、このエネルギー領域における気体－表面の相互作用を研究した。上述のように超熱エネルギー気体は表面と近距離で相互作用するため、入射気体は表面物性と深く関わった上で散乱する。つまり、入射気体の散乱強度角度

分布や表面におけるエネルギー散逸を詳細に研究することで、気体－表面の相互作用を理解することができる。

化学吸着を除くと、一般的に気体と表面の相互作用は引力ポテンシャル井戸（物理吸着）と斥力ポテンシャルから構成される。第二章と第三章はこの斥力ポテンシャル相互作用に着目したものである。

第二章は、清浄および重水素原子吸着 Ru(0001)表面からの超熱エネルギー Ar 原子の散乱について述べられる。また、それらの結果は清浄 Ag(111)表面からの Ar 散乱と比較される。本研究で用いた Ar は、引力ポテンシャル井戸の影響は無視できるほど高いエネルギーをもっているために、主に表面の斥力ポテンシャルと相互作用する。Ru(0001)面と Ag(111)面は原子配列が同一であり、かつ Ru と Ag 原子の質量に大きな差はない (Ru:101、Ag:108 amu)。しかし、Ru と Ag 表面から散乱してきた Ar の散乱強度ならびにエネルギー分布に大きな違いが現れた。また、それら実験結果は Ag(111)表面からの Ar の散乱の分子動力学シミュレーション結果と比較された。興味深いことに表面温度 600 K で行った Ar-Ag(111)実験結果はシミュレーション結果と定性的に一致し、一方で Ar-Ru(0001)の実験結果は 0 K におけるシミュレーション結果と定性的に一致する。これら二つの金属表面における実験結果の違いには表面原子の配列や質量だけでなく、表面の“堅さ”が Ar 原子との相互作用に大きく寄与していることが明らかになった。また、Ru 表面の堅さは水素原子が吸着することで、一層高まることが明らかになった。

第三章は超熱エネルギー Ar 原子と CO 飽和吸着 Ru(0001)表面との相互作用について述べられる。Ar 衝突によって CO の脱離が引き起こることが明らかになった。しかし、CO 同士が密に吸着しているために、Ar は下地へ侵入することが難しく、周囲の CO の影響によって Ar 衝突による脱離はなかなか起こらない。また Ar と CO の相対質量差が小さいために、Ar 原子から CO 吸着表面へのエネルギー移動は非常に大きい。Ar 原子と CO 吸着表面の相互作用は、Ar 衝突によって引き起こされる CO 脱離の観点と、それを推進する Ar の散乱の観点の両方から調べられた。

第四章ではそれまで述べた斥力ポテンシャル相互作用だけでなく、化学吸着反応にも着目する。Ru を含む多くの金属最密表面上での水素の吸着は活性化障壁を乗り越えて起こる解離吸着である（厳密には Ru(0001)表面においては、活性化障壁なしの解離吸着も示唆される）。解離した水素は化学吸着する。第四章では、この水素の解離吸着過程における CO の影響について調べられた。CO 吸着は水素の解離吸着反応を抑制することが明らかになった。また、その CO 吸着による反応阻害は非常に局所的なものであることが明らかになった。

第五章では Ag(111)表面からの超熱エネルギーをもった N 原子と Ar 原子の散乱結果を比較した。Ar は化学的に不活性な気体なので、Ag 表面との相互作用は物理吸着ポテンシャルであるが、N 原子は化学的に非常に活性であり、化学吸着ポテンシャルと直接相互作用する。つまり、物理吸着ならびに化学吸着相互作用を二種類の化学的に活性度の異なる原子の観点から調査した。Ar と N 原子の散乱強度ならびにエネルギー角度分布で大きな違いが見られた。N の散乱角度分布は Ar のそれと比べて非常に幅広い。また、入射原子と表面

原子との相対質量を考慮に入れると、NはArよりも表面におけるエネルギー移動が大きいことが明らかになった。これらの結果は二種類の原子の“見る”表面が異なることに起因する。

第六章は超熱エネルギーをもったN、N₂とN吸着Ag(111)表面の相互作用を述べられる。N原子は第五章で述べられたように化学的に非常に活性である。一方で、N₂は非常に不活性な分子であり相互作用は主に斥力ポテンシャルである。N吸着Ag表面からのN原子とN₂分子の散乱強度およびエネルギー角度分布は、清浄表面からのそれらと比較された。先ず、N原子の散乱結果について述べる。清浄およびN吸着表面からのN原子の散乱結果は同様なものであり、N散乱強度角度分布は分布幅が非常に広く、エネルギー移動は散乱角度 $\theta_f \geq 75^\circ$ を除いて、単純な二体衝突モデルの予測と同程度か若干それ以上であることが分かった。次にN₂分子の散乱結果について述べる。清浄表面からのN₂散乱角度分布は $40^\circ < \theta_f < 80^\circ$ で形成される鏡面反射角度付近に最大値をもつ鋭いものであり、また表面でのエネルギー損失は非常に小さいものであることが明らかになった。N吸着表面からのN₂散乱強度角度分布は清浄表面からのそれよりも最大値が高く鋭いにも関わらず、角度分布は計測された $0^\circ < \theta_f < 80^\circ$ にわたって形成されることが分かった。この $0^\circ < \theta_f < 40^\circ$ で計測されたN₂成分は入射N₂の後方散乱による可能性と、入射N₂とともに入射されるN原子と表面吸着N原子と間で起きる引き抜き反応という観点から議論された。

