

反応動力学研究部門

宇理須 恒 雄（教授）

A-1) 専門領域：電子シンクロトロン放射光光化学反応

A-2) 研究課題：

- a) 放射光励起反応によるナノ構造形成
- b) 埋め込み金属層基板赤外反射吸収分光法(BMLIRRAS)の開拓と反応機構の解明
- c) STM 技術の開拓と、放射光光反応のその場観察
- d) Si 表面への生体物質の堆積と生命機能の創生

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 放射光励起反応の高い空間分解能と低損傷性を利用した新しい(任意の形状で、任意の位置に大量につくれる)ナノ構造形成技術を開拓し、この構造をナノ反応場とみなしてこの表面での、自己組織有機単分子膜や脂質などの自己組織化反応を調べる。平成13年度において実際に放射光エッチングにより微細構造を形成し、AFMでエッチング平面の凹凸を調べた結果、平均値で1 nm 以下で、既存のエッチング技術としては最も優れており、単分子膜の自己組織化反応を調べる目的には極めて適したエッチング法であることが判った。
- b) 半導体表面反応のその場観察手法として、埋め込み金属層(BML)基板による赤外反射吸収分光法(BML-IRRAS)の開発を進めている。平成13年度は従来の手法(イオン注入法)で形成したBML基板を用いSi(100)表面の水素の反応を調べ、Si(100)結晶の内部に水素原子が拡散し、赤外スペクトルの幅を広げる効果を発見した。Si結晶への水素原子の拡散はこの分野の最新の話題として2001年の*Phys. Rev. Lett.* に報告されているが、我々の成果は、分光法により見出した点および、完全平坦面においもて拡散することを証明した点で新しい。さらに、新しいBML基板の製法として、Si単結晶層の厚みが可変なウエハーボンディング法による製作の技術開発を進めた。
- c) 放射光励起反応をナノ構造形成に応用するにあたり、放射光励起による表面反応の本質を解明することが重要であると考え、表面反応をSTMにより原子レベルで解明することを目指す。この問題は凝集系の内殻電子励起を原子レベルで解析する問題として、表面光科学の新分野でもあり興味深い。平成13年度は実験装置としての超高真空STM装置を立ち上げ、さらに、光源としてアンジュレータ光を用いるべくビームラインの設計を進めた。これまでの実験技術に加え、STMの探針の真下に放射光ビームを照射出来るよう改造を加えた。
- d) Si基板表面に、配置や配向を制御して、脂質やタンパク質を自己組織化反応を利用して堆積し、これらの物質の分子認識反応など生命機能特性や表面反応特性を調べる研究を平成12年度後半に新たにスタートした。平成13年度はSi基板表面への各種の有機単分子膜の堆積と赤外吸収スペクトルの測定を行い、膜成長機構についてのモデル(島状成長モデル)を提案した。

B-1) 学術論文

H. NODA, T. URISU, Y. KOBAYASHI and T. OGINO, "Initial Statge of hydrogen etching of Si surfaces investigated by infrared reflection absorption spectroscopy," *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, 6985 (2000).

- M. TAKIZAWA, S. BANDOW, M. YUDASAKA, Y. ANDO, H. SIMOYAMA and S. IIJIMA**, “Change of tube diameter distribution of single-wall carbon nanotubes induced by changing the bimetallic ratio of Ni and Y catalysts,” *Chem. Phys. Lett.* **326**, 351 (2000).
- Y. NONOGAKI, Y. GAO, H. MEKARU, T. MIYAMAE and T. URISU**, “STM observation of surface nanostructures on Si(111) formed after synchrotron radiation stimulated cleaning,” *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.* **26**, 751 (2001).
- Y. NONOGAKI, Y. GAO, H. MEKARU, T. MIYAMAE and T. URISU**, “Nanostructure formation on Si(111) surface assisted by synchrotron radiation illumination—Characterization by scanning tunneling microscopy—,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **119**, 241 (2001).
- T. URISU, Y. NONOGAKI, T. KATO and Y. ZHANG**, “Device and material processes using synchrotron radiation—from micron to nanometers—,” *J. Jpn. Soc. Synchrotron Radiat. Res.* **14**, 112 (2001).
- N. TAKEZOE, H. YANAGIDA, T. TANAKA, K. KUROSAWA, Y. NONOGAKI, H. NODA, H. MEKARU and T. URISU**, “Design and construction of UVSOR-BL4A2 beam line for nanostructure processing,” *Nuclear Instrum. Methods Phys. Res., sect. A* **467**, 1279 (2001).
- S. BANDOW, M. TAKIZAWA, K. HIRAHARA, M. YUDASAKA and S. IIJIMA**, “Raman scattering study of double-wall carbon nanotubes derived from the chains of fullerenes in single-wall carbon nanotubes,” *Chem. Phys. Lett.* **337**, 48 (2001).
- S. MORE, A.P. SEITSONNEN, W. BERNDT and A.M. BRADSHAW**, “Ordered phases of Na adsorbed on Pt(111): Experiment and theory,” *Phys. Rev. B* **63**, 75406 (2001).
- S. TANAKA, S. MORE, J. MURAKAMI, M. ITOH, Y. FUJII and M. KAMADA**, “Observation of the surface core exciton and its decay on solid Xe,” *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **114-116**, 295 (2001).
- S. TANAKA, S. MORE, J. MURAKAMI, M. ITOH, Y. FUJII and M. KAMADA**, “Surface photovoltage effects on *p*-GaAs (100) from core-level photoelectron spectroscopy using synchrotron radiation and a laser,” *Phys. Rev. B* **64**, 5308 (2001).
- S. FUJIKI, Y. KUBOZONO, S. EMURA, Y. TAKABAYASHI, S. KASHINO, A. FUJIWARA, K. ISHII, H. SUEMATSU, Y. MURAKAMI, Y. IWASA, T. MITANI and H. OGATA**, “Structure and raman scattering of Cs₃C₆₀ under high pressure,” *Phys. Rev. B* **62**, 5366 (2000).
- S. FUJIKI, Y. KUBOZONO, Y. TAKABAYASHI, S. KASHINO and S. EMURA**, “XAFS study on a pressure-induced superconductor Cs₃C₆₀ under high pressure,” *J. Synchrotron Radiat.* **8**, 725 (2001).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

- Z. -H. WANG, H. NODA, Y. NONOGAKI and T. URISU**, “Nearly ideally hydrogen-terminated Si(100) surface and spectrum width broadening due to hydrogen diffusion into the subsurface,” 10th International Conference on Vibrations at Surfaces, Saint Malo (2001).
- Y. NONOGAKI, Y. GAO, H. MEKARU, T. MIYAMAE and T. URISU**, “STM Observations of Si (111) Surfaces with Synchrotron Radiation Stimulated Cleaning,” XXV International Conference on Phenomena in Ionized Gases, Nagoya (2001).

Y. NONOGAKI, Y. GAO, H. MEKARU, T. MIYAMAE and T. URISU, “STM observations of SR assisted SiO₂ desorption on Si (111),” International Conference on Photoinduced Phase Transitions, their Dynamics and Precursor Phenomena, Tsukuba (2001).

S. MORE, C. S. WANG, H. GRAAF, M. BAUNE, Y. NONOGAKI and T. URISU, “Influence of substrate roughness on the formation of aliphatic self-assembled monolayers (SAM) on Si(100),” 2001 International Microprocess and Nanotechnology Conference, Matsue (2001).

Z. -H. WANG, H. NODA, Y. NONOGAKI and T. URISU, “Hydrogen diffusion into the bulk at nearly ideal H-terminated region on Si(100) surfaces,” 2001 International Microprocess and Nanotechnology Conference, Matsue (2001).

B-4) 招待講演

宇理須恒雄,「放射光表面反応のSTMによるその場観察」, 東北大学通研プロジェクト研究「ナノ構造の形成と物性機能に関する研究」, 東北大学, 2001年2月.

宇理須恒雄,「Si表面の吸着水素の構造と反応性」, 日本表面科学会中部支部講演会, 名古屋工業大学, 2001年5月.

宇理須恒雄,「放射光励起表面化学反応を用いた超選択エピタキシーとエッチング」, 平成13年度放射光産学連携研究会, 柏, 2001年5月.

宇理須恒雄,「赤外反射吸収分光による水素吸着Si表面構造の解析」, 名古屋大学超小型放射光シンポジウム, 名古屋大学, 2001年6月.

宇理須恒雄,「放射光による物作り」, 日本金属学会・日本鉄鋼協会2001年周期大会シンポジウム「シンクロトン光と新素材」, 九州産業大学, 2001年9月.

宇理須恒雄,「放射光ビームノ照射によって得られるシリコン表面ナノ構造と応用」, 第62回応用物理学会学術講演会シンポジウム「量子ビームが開く原子レベルの固体表面反応・解析」, 愛知工業大学, 2001年9月.

宇理須恒雄,「シリコン表面での生体物質の集積を目指して——放射光エッチングの応用——」, 東北大学通研プロジェクト研究「表面反応制御による高次ナノ構造の創製」, 東北大学, 2001年12月.

B-6) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

レーザー学会評議員 (1983-1985).

日本放射光学会評議員 (1993-1994, 1997-1998, 2001-2002).

電気学会, 放射光励起プロセス技術調査専門委員会幹事 (1992-1994).

電気学会, 放射光による材料加工技術調査専門委員会委員長 (1994-1997).

大型放射光施設安全性検討委員会委員 (1993-).

東北大学電気通信研究所研究評価委員 (1995).

日本工業技術振興協会, 放射光の半導体への応用技術研究委員会顧問委員 (1995-2000).

新機能素子研究開発協会, 新世紀素子等製造評価技術の予測委員会/ハードフォトン技術研究部会委員 (1995).

姫路工業大学ニュースパル利用検討委員会委員 (1996-1998).

姫路工業大学ニュースパル新素材開発利用専門委員会委員 (1999-2000).

近畿通産局, 超次世代原子デバイスの自己形成技術に関する調査委員会委員 (1997-1998).

電気学会, 放射光・自由電子レーザープロセス技術調査専門委員会委員(1997-1999).

放射線利用振興協会, 放射線利用技術指導研究員(1997年11月18-20日).

日本原子力研究所, 研究嘱託 (1998年4月-2002年3月).

科学技術庁, 「顕微光電子分光法による材料、デバイスの高度分析評価技術に関する調査」, 調査推進委員会委員(1998).

科学技術庁, 「顕微光電子分光法による材料、デバイスの高度分析評価技術に関する調査」, 研究推進委員会委員(1999-2000).

東北大学電気通信研究所, 外部評価委員(1998).

日本原子力研究所, 博士研究員研究業績評価委員(1998-1999).

佐賀県シンクロトン光応用研究施設整備推進委員会委員(2000-2001).

科学技術振興調整費「顕微光電子分光法による材料・デバイスの高度分析評価技術に関する研究」, 研究推進委員(1999-).

科学技術振興調整費「カーボンナノチューブエレクトロニクス研究」外部運営委員(2001-).

日本学術振興会学術創生研究費書面審査委員(2001).

科学技術交流財団「ナノ反応場とバイオエレクトロニクスインターフェイス制御研究会」座長(2001年4月-2003年3月).

学会の組織委員

マイクロプロセス国際会議論文委員 (1992-).

第1回光励起プロセスと応用国際会議論文委員 (1993).

VUV-11組織委員会, プログラム委員会委員 (1993-1995).

International Workshop on X-ray and Extreme Ultraviolet Lithography, 顧問委員(1995-2000).

SRI97組織委員会プログラム委員会委員 (1995-1997).

SPIE's 23rd Annual International Symposium on Microlithography, 論文委員(1997).

SPIE's 24th Annual International Symposium on Microlithography, 論文委員(1998).

SPIE's 25th Annual International Symposium on Microlithography, 論文委員(1999).

レーザー学会第19回年次大会プログラム委員(1998-1999).

UK-JAPAN International Seminar, 組織委員長(1999, 2000).

Pacificchem 2000, Symposium on Chemical Applications of Synchrotron Radiation, 組織委員(2000).

学会誌編集委員

JJAP特集論文特別編集委員 (1992-1993).

電気学会, 電子情報システム部門誌特集号編集委員 (1995-1996).

JJAP特集論文特別編集委員 (1998).

Appl. Surf. Sci., 編集委員 (2001-).

B-7) 他大学での講義、客員

宇理須恒雄, 東北大学科学計測研究所, 非常勤講師, 2001年12月.

C) 研究活動の課題と展望

放射光励起表面プロセスの研究をスタートしてほぼ17年が経過した。単に白色光を照射してエッチングやCVDが誘起されることを確認するような研究段階はとっくの昔に終了している。この点をふまえ、今後は、高度な基礎研究と、高度な応用研究に的を絞って研究を進めねばならないと考える。前者については、アンジュレータによる波長可変単色光を利用し、表面の内殻電子励起反応をSTMにより原子レベルでその場観察する研究を進める。表面の内殻電子励起現象について調べた例は皆無に近く、STMとアンジュレータ光の組み合わせで初めてそのような研究が可能となる。一方、応用については、最近放射光エッチングにより、極めて平坦な表面を形成できるという結果を得たことから、空間分解能が高いこと、非常に清浄なエッチング技術であることとあわせて、表面への生体機能性物質の集積とその機能の発現をめざした、半導体表面のナノ加工に適していると判断し、この方向でのエッチング反応の利用を考えている。これまで、当グループにおいて開発を進めてきたBML-IRRASの赤外反射吸収分光技術は、シリコン表面に集積した生体物質の構造や自己組織化反応を調べるのに適している。