

## 『真空』から生まれるもの

東京大学生産技術研究所 第1部 岡野 達雄 教授

ただいまご紹介に預かりました生産技術研究所第1部に所属しております岡野でございます。今日は『真空』から生まれるものと題しまして、この研究所で専門分野の看板を掲げて仕事をしております真空物理に関連して、真空の現状とか、歴史について初めのところで一寸話しをさせていただいてから現在、自分のところでしております研究について紹介させていただきます。

真空から生まれるなどという、宇宙の初めのことかなと思う方がいらっしゃると思います。宇宙の初めに真空があって、真空からいろんな万物が生成したというストーリーが科学番組で紹介されています。真空という、片方の果てに宇宙がありまして、それから反対側の端に掃除機とか、最近東京では見ないバキュームカーがあります。両極端に「真空」のイメージが偏るきらいがあって、真中あたりの産業として実際に物をつくることとはあまり関係がないのではないかと考える方がいらっしゃるかもしれません。生産技術研究所におりまして、真空をやっているという、ものをなくすことが仕事という訳で、生産から一番遠いところにおるのではないかとよく言われたものですが、真空物理としてやっていることも、ものつくりの基盤として必ずしも無益なことではないんだということを講演で説明をさせていただきたいと思います。

まず、真空というものがどのくらいの世の中のお役に立っているのかということについて少しご紹介をしたいと思います。真空工業会という業界団体が東京にございまして、そこに登録されている企業がどれだけ仕事を去年したかということの統計がございまして、真空絡みの産業というのはどのくらいかといいますと、全部合わせて売上高が2000億円という産業です。全体のどれだけ売ったかというパーセンテージで産業分類をすると真っ先にくるのは半導体産業です。大気中の気体分子を排除した状態で半導体の薄膜をつくったり削ったりという加工をする環境を作るためにお金をかけているわけです。真空工業の半分ぐらいの需要は半導体産業を相手にしています。2番目に来るのが、電子部品産業で、全体の4分の1ぐらいに相当します。電子

部品の中身のかなりの部分が、液晶やプラズマなどのディスプレイの生産設備です。半導体とディスプレイは、現在進行中の情報化革命の主要なハードウェアですが、それらの生産に真空設備の需要の4分の3が集中しております。この2つを除くとそれほど突出した分野はありません。大学で研究している者にとって一番馴染み深い真空機器は、理化学機器に分類される表面分析装置や質量分析装置などですが、それらのものは全体の3%に過ぎません。光学産業というのは、主に蒸着による光学薄膜の作成に関係した分野です。ハワイにできましたすばる望遠鏡の反射鏡のアルミコーティングの記事が以前、新聞で報道されておりましたが、光学薄膜というのはそういう反射膜やズームレンズなんかのように多数のレンズを複合して用いたときのロスをなくすための反射防止膜の作成などに、全需要の4%ぐらいが使われているということになります。その他、医療とか食品などの分野で真空が使われています。

次に、真空というのが現在の様な様相になるまでに、どういう段階があったかということを復習してみたいと思います。これは、平成8年度の「科学技術白書」に掲載されていた真空技術の流れを示した図表です(OHP1)。ここ百年あまりが真空工学の歴史と言えます。19世紀の終わりに、真空を絶対使わなければいけない工業として、電球工業が出現しました。エジソンの白熱電球というのが、実は一般家庭に真空というものが持ち込まれる大きなきっかけになっていたわけです。その後、白熱電球の中を完全に真空に引いてしまうと、電球のフィラメントがどんどん消耗してしまうというので、ほどなく白熱電球はガス入り電球となって、必ずしも真空の世界ではなくなったのですけれども、白熱電球を工業的に製造することにより、飛躍的にポンプの性能が高まったと思います。その次の大きなインパクトは1920年～30年頃にあった真空管であると思います。電球と何が違うかということ、中に熱電子源が入っていることです。熱電子を効果的に出すためには、フィラメントの表面の仕事関数を下げるような表面の処理が必要です。そういった表面処理というのは、活性度の高いバリウ

ムやセシウムをコーティングすることによっていますが、真空度が悪いと、劣化が早くなり、真空管の寿命が短くなってしまいます。ですから真空管の登場によって、高真空というものが工業的に必要になってきたわけです。1950年ぐらいになりますと、大型の加速器というのができました。加速器になりますと加速器の巨大なリングの中を荷電粒子が非常に長い距離を回りますから、かなり良い真空が必要となります。超高真空というものがメートルサイズで必要となってきたわけです。1970年ぐらいになりますと今度はマイクロエレクトロニクス素子の開発により、表面工学とも言える分野が勃興し、今日でもその流れは続いております。この辺からは、皆様がよくご存知だと思いますので申しませんけれども、この隆盛により、超高真空というものが工業的にも意味あるものと認知されるようになりました。

このように真空技術は時代の要請を受けて随時発達してきました。到達圧力の変遷を振り返ってみると、19世紀の後半ではほとんど減圧した程度だったのが、真空放電の研究や電球工業の勃興により、 $10^2\text{Pa}$ 程度の圧力に一気になったわけです。これをきっかけに、現在でも使用されている回転ポンプとか拡散ポンプといった真空ポンプが1930年ぐらいまでに出揃ってしまうわけです。また、到達圧力の向上に並行して、色々な用途からの要請により、ポンプの大型化も進みました。圧力の歴史的変化を眺めると、変曲点らしきものが三つあります。真空が工業になった所の一つあります。第2は、1950年代から60年代にかけてでして、このときに二つの理由で圧力の下がり方が急に良くなったわけです。一つは、装置の加熱焼出しということが真剣に行わなければいけないことだというのがようやく人々の認識を得たことです。質量分析計で真空の中身を測ってやろうという研究がこの辺にありまして、測ってみると、酸素とか窒素という大気圧の成分などはほとんどなくて、99%まで水だということが、この時代に判った訳です。水が居るのなら加熱して徹底して表面から追い出してやろうとしたことが、正解だったわけです。それ以前も、ガスバーナーなどで装置の端から順次温めるようなことはやっていたようなのですが、部分的に一部を暖めても、別のところへ水が飛んでいくだけですので、追い掛けっこをしているだけで、本質的には水は装置からなくならなかったのです。装置全体を一度に加熱することは非常に簡単なことですが、後世に残る大きなブレイクスルーだったのです。もう一つのブレイクスルーというのは圧力計測のほうにありまして、これは真空の教科書では大変に有名です。それまで圧力が下がらない下がらないといていたのは、実は真空計の原理的な不備であったことがこの頃突き止められたわけです。真空計の不備が何に起因するのか本質が解明されることによりほとんど数週間の内に改良型が出現した点で、極めて教訓的な発見でした。超高真空の世界と

というのが、これらのブレイクスルーを基礎にして拓かれたわけです。超高真空の世界になりますとゲッタとかイオンポンプとかあって、これまでとは違う原理のポンプが次々と開発されました。壁面に残留気体分子を捕捉することにより排気するタイプのゲッタポンプとかイオンポンプという種族は、高真空とか低真空では存在価値がなく、超高真空になればこそこれが使えようになったという意味も含めて、真の超高真空ポンプと言えます。

残る第3の変曲点というのは現在にあることを期待しております。本当にあったかどうかは、後世にならないとわからないのですけれども、真空科学に関係するものとしては大いにこれを期待しております。これまでの変極点が、ポンプや圧力測定の変極点と真空に対する技術的な要請によるものであったとするならば、今度の変極点は、ナノスケールテクノロジーと称される清浄表面を舞台とする原子単位でのものづくりの進展からくる需要と真空装置の構成材料からのガス放出制御技術の発達の二つから生まれるのではないかと考えております。今日、 $10^9\text{Pa}$ よりも低い圧力領域を指して極高真空と言っておりますけれども、極高真空は、この変極点の入り口ということになります。この極高真空で何ができるかとか、是非これがなければ困るという産業的な需要はまだありませんが、超高真空技術が表面に二次元的に清浄に薄膜を作る際の必須の技術となっていることからの類推をすれば、極高真空になりますと、今度は表面で原子を一個ずつハンドリングする原子操作を行うための環境条件と言えるかもしれません。もう一つ、極高真空がもたらした実質的なものとしては、超高真空技術の信頼性が飛躍的に改良されたことがあげられます。極高真空技術に関しては、我が国の貢献は非常に大きいものがあり、世界的にも日本がやった基礎的な技術開発として高く評価されていると思います。真空計測、ポンプ、構成部品、表面処理等の進歩により超高真空の技術的な成熟度が大きいが高まったことが一つの具体的な成果としてあげられます。

1980年代以降、走査トンネル顕微鏡の発明により、表面の原子を1個ずつ見る手段が出現いたしました。この走査トンネル顕微鏡のインパクトというのは非常に大きいものがあります。気体分子運動論が最初に唱えられた段階では、原子は一つの作業仮説に近いもので、実際に原子分子の存在が実験的に証明されたのは、かなり後のこととなります。走査トンネル顕微鏡技術により、原子を個々に見て動かすことのできるようになったことは、科学技術の歴史において大きな出来事と言えます。この走査トンネル顕微鏡技術の発明と並行して、マイクロエレクトロニクス技術も、より小さなナノエレクトロニクスへ向かう流れが生じ、1990年代になりますと、原子操作とかナノワールドの開拓とかいう標語で、この二つの流れが一致するところまできました。真空の世界では、これら二つの流れが、今やか

なり渾然一体化しているという気がいたします。私のやっているような真空物理の今日的な研究テーマも、この渾然としたところに存在していると考えております。

見るということは、理解するか、理解した気持ちになることとほとんど同じ意味を持っておりますが、走査トンネル顕微鏡による表面の観察例をご紹介します。(OHP 2)

これは筑波大学の重川秀実先生の研究室で観察された単結晶シリコン表面の原子像です。この表面は半導体デバイスをつくっている結晶面ですが、広い範囲で非常にきれいな表面構造がでております。このシリコン表面については、本所高次協調モデリング客員部門に在任しておられる寺倉清之教授が以前にまとめられた構造相転移のシミュレーションに関する有名な研究がありますが、そこでの先ほどの走査トンネル顕微鏡像に対応する表面構造図が次の OHP になります。(OHP 3) これはシリコンの (001) 表面を横から見たところですが、表面構造が固体内の構造と異なる再構成を経ている様子がよくわかります。表面のシリコン原子は二つずつペアを組んでおりますが、このペアがシーソーみたいに互い違いになっていることが見て取れます。次の OHP は、表面にある分子を見た例です。これは白金の表面に一酸化窒素が吸着している状況を示しています。白金と一酸化窒素の組合せは、自動車排気ガスに関係付けて研究が盛んに行われてきました。一酸化窒素の吸着密度が増加するにつれて、孤立していた分子が徐々に周期構造を作るようになる過程がよくわかります。脇の挿入図はベアリングボールで作った模型ですが、実際の原子や分子においてもこの模型に近い配置にもなっていることが実感をもって理解できるようになったわけです。

研究紹介をさせていただく前に、まず真空と表面のかかりあいについてご説明したいと思っております。まず、真空容器を超高真空に排気するというのは、空間にいる分子を排気するというよりは、容器の壁を排気することだということです。真空容器の排気というのをモデル化すると 3 つの段階に分解されると言われております。真空容器を 1 気圧から排気を始めると、最初に指数関数的に圧力が減少していく段階 ( $p \propto e^{-t}$ ) がございます。この領域は、空間に元来いる気体分子の排気に対応しております。この勢いで圧力がどんどん下がっていけば、10 数分以内に  $10^{-10}$  Pa の極高真空領域まで下がってしまうこととなりますが、この圧力減少は、時間に反比例して圧力が低下する領域 ( $p \propto t^{-1}$ ) にすぐさま移行してしまいます。この領域では、真空容器の内表面に吸着していた分子が脱離してくることが律速段階になっています。この領域では、真空容器の表面を排気しているわけです。この状態で放置しておくと、多分 1 ヶ月かそこらで、 $10^{-8}$  Pa ぐらいまでは圧力は低下するとおもいますが、通常は、真空容器全体を  $200^{\circ}\text{C}$  ぐらいまで加熱することでこの領域を数日で通過し、次の時間の平方根に

反比例して圧力が低下する領域 ( $p \propto t^{-1/2}$ ) に移っていきます。この領域は、表面近傍の水素が拡散して表面にでてから脱離する過程として理解されております。ここでは、真空ポンプは壁面材料の中を排気することになります。この領域は、真空容器の到達圧力を最終的に決定している部分で、大型加速器などでは数年単位で圧力が減少していくことが実測されております。真空容器内の圧力というのは、容器の内壁からわいてくるガス放出速度と容器を排気するポンプの排気速度の比として与えられます。ポンプの排気速度というものは排気口の面積で決まってしまうので、実験室にあるような真空装置の場合では、数  $\text{m}^3/\text{s}$  程度が限界です。容器の圧力を下げるためには、壁面からのガス放出速度の方を桁違いに下げることが不可欠となります。極高真空といわれる圧力領域では、壁面から出てくる分子の数は、 $10^6$  個/ $\text{cm}^2/\text{s}$  程度に抑えられていなければなりません。この数は随分多いようにもみえますが、 $1 \text{ cm}^2$  の表面に吸着している分子数が  $10^{15}$  個であることと比べると、如何に微量なガス放出であるかがお判りいただけるかと思っております。また、 $10^{-10}$  Pa で、容器内の残留気体分子が壁面に衝突する頻度と壁面から生まれるガス放出分子数の比率は、5000 : 1 程度でありまして、極高真空でのガス放出というものをよりダイナミックな視点で考えてみなければいけないことを示唆しているように思われます。この小さなガス放出速度をさらに下げようという努力が日本で丹念にやられておりまして、酸化膜形成、TiN や BN の膜形成、銅やチタンなどの新材料利用などと多彩な研究開発が積み重ねられております。これらの努力の結果として、極高真空をつくるのに最低限必要なガス放出速度条件が大体クリアできるような状況になっております。

ガスのいない空間をつくるにはどうすればいいかという視点の研究では、表面での水素の挙動を解明することが基本で、真空と表面の研究分野の重要な接点と考えられます。真空物理の立場では、特に、

固体内部 ⇔ 表面の裏側 ⇔ 表面 ⇔ 真空

という水素の輸送過程を表面物理の手法を適用して解明することが重要と思われれます。

表面物理の研究手法で表面の水素のことがどのようにわかるかについて、一つの研究例をご紹介します。これは、本所の福谷克之先生の研究室でやられているイオンビームを用いた共鳴核反応法により表面近傍の水素の定量分析です。この方法では、6.385 MeV に加速された窒素イオンビームと水素の共鳴核反応を検出することで、水素の存在をナノメートル分解能で測定することができます。シリコン基板上の鉛薄膜の測定では、シリコンと鉛薄膜の界面に存在する水素を定量することに成功しております。この方法で、表面近傍の水素のことがどの程度がわかるかというと、大体表面に 10 % 存在する水素を数 nm の深さ分解

能でわかるようになっております。真空材料のみならず表面での成膜プロセス一般における界面水素の問題を研究する非常に優れた手法ですので、これからいろいろな材料について測定をやってみたいと思っております。

真空や表面の研究をやっていると、表面最外層の影響がマクロな世界で観察できることにどのようなことがあるかと考えることがあります。表面での結晶成長、電子放射の仕事関数、表面の触媒反応などでは、表面最外層の影響をマクロな量として測ることができますが、真空科学の分野では、表面での気体分子の散乱の制御が、表面最外層の影響をマクロな現象に利用する一つの道ではないかと考え、基礎的な研究をスタートさせたいと思っております。真空容器の内面のような実在表面での分子の散乱は、入射方向に相関を全くもたないランダムな方向分布になると考えられております。散乱の方向分布を確率として表すと、表面法線に対して角度  $\theta$  をなす方向に脱離してくる方向分布が、ちょうど  $\cos \theta d\omega$  になります。このような方向分布を「余弦則」に従うと言い習わしております。材料表面での分子散乱が余弦法則に従うことは、実験的にも古くから確認されており、真空容器内の希薄気体の流れを解析する大前提となっております。真空容器内の流れにおいて、気体分子の壁面散乱が余弦法則が成り立つということはどういうことかということ、入口から飛び込んできた分子が壁面に衝突すると、入射方向の記憶を失い、以後は真空配管内を酔歩運動するということです。分子運動のシミュレーションで、パイプの入口に入射してきた分子の飛跡を解析してみると、入口に入射してきた分子の内でも出口から出て行くことができるのはわずかな割合であることが分かります。入り口から入った分子の内でも出口からでていく割合を「通過確率」と呼んでいますが、パイプの半径を  $R$ 、と長さを  $L$  としてやると、 $(L/R)$  が 10 のパイプの場合には通過確率が 0.2 となります。 $(L/R)$  が 20 くらいになりますと通過確率は 0.02 くらいになってしまいます。表面での分子散乱が鏡面反射の場合を考えてみると、表面の接線方向の運動量が保存されることにより、どのような長いパイプでも通過確率は 1 である筈ですので、表面での分子散乱が余弦則であることが、真空排気効率を落とす元凶であると言えるかもしれません。もし、配管の内表面での鏡面反射が実現できれば、気体分子の流量を飛躍的に増大させることが可能となり、真空工学の大きな技術革新につながると言っても過言ではありません。何故、気体分子の鏡面反射が実現されないかということ、実用材料表面が、原子尺度で凸凹であることと、ガスが吸着していることの 2 つの理由が大きいと思います。平坦でガスの吸着していない表面において分子が鏡面反射することは清浄表面での分子線散乱実験などでは普通のこととみなされておりますから、真空装置の内壁で気体分子の鏡面反射を実現しようとしたら、表面を原子尺度で平坦かつ清浄にしなければなりません。低真空領域では、清浄表面を維持するこ

とは困難ですが、成分気体が水素に限られる極高真空領域では、この鏡面反射を実現する条件は全く不可能なものではないように思えます。また、気体の流れを促進する必要が高いのも、大きな排気速度を必要とする極高真空領域ですので、真空工学の課題としては、「極高真空において実用的な鏡面反射表面は作成できないか？」という課題設定になります。吸着分子のいない表面を如何に維持するかという問題を当面棚上げすると、原子尺度で平坦化された表面をどのようにして作成するかということに問題が集約されます。材料表面の超平坦化技術は、鏡面反射表面のみならず、半導体デバイスや磁気メモリにおいても共通する技術的課題ですので、他分野での試みを参考にしつつ、研究を進めていきたいと考えております。超平坦化の実例としては、単結晶金属や半導体表面では  $\mu\text{m}$  スケールの平坦化が実現されています。一酸化窒素の観察を行っていた白金の単結晶表面では、数 10 nm のテラス幅の平坦化が熱処理により達成されておりますので、今後、色々な成膜方法を試みることにより、10 nm 以上の平坦部分から構成される表面の実現とそれを利用した鏡面反射表面の開発を試みていきたいと思っております。

最近の表面物理の深化の御蔭で、真空科学と表面物理の具体的な接点がいくつか生まれてきています。一つは水素と固体表面の相互作用の研究でありまして、これが一番大きく重なり合っているのではないかと思います。2 番目は、吸着分子の励起ダイナミクスの研究に表面科学のフロンティアが取り組みだしたことで、表面物理の研究手段がいろいろ進歩するに従いまして、安定結合状態のみならず、励起状態や中間状態も理解できるようになってきていることです。真空の世界では、分子がくっついたり取れたりする過程を知りたいわけですので、お互いの関心がこの辺で一致するところになります。それから、真空装置の内壁表面はほとんど酸化物で覆われているのですが、表面物理のほうも、金属表面とか半導体表面から発展して、清浄な酸化物表面の作成とその表面物性の研究が開始されるようになったことも表面物理と真空科学のつながりを深める要因となっております。表面と真空の境界領域で基礎的な研究を進めていく上で、「見る」、「測る」、「造る」という三つの要素が重要と感じております。「見る」というのは現象を見るということで、ある種の発見の部分です。それから「測る」というほうは、より定量的に物事を理解するというので、これはある種のモデル化を試みる領域だと思っております。それから、「造る」というのは、実際の応用という面もありますが、造ったものを「見る」、「測る」という過程も重要であり、因果関係はやや混沌としております。本日の講演でご紹介したことは、まだやりだしたばかりという状態で、完成にはほど遠いのですが、今後とも、「見る」、「測る」、「造る」という要素のバランスの上に真空と表面の研究を進めていくつもりでおります。

ご清聴ありがとうございました。