

審査の結果の要旨

氏名 野田 真史

Si 表面に金属を吸着した系の物性は、超微細デバイスの動作において重要な役割を演じる可能性があると共に、多様な物理現象が出現する点で基礎科学面からも興味深い。このため、物性理解の基礎となる構造についても古くから実験・理論の両面で盛んに研究されてきた。しかしながら、実験・理論手法の急速な進歩にもかかわらず、いまだにその構造が十分に解明されていない金属吸着 Si 表面系がある。複雑な相図で特徴付けられる Au/Si(111)表面はその典型例である。本論文は、この Au/Si(111)表面について、その相安定性および構造を第一原理計算により系統的に解析し、この表面系の統一的な理解を目指すとともに、他の複雑な表面を解析するための指針を得ようとしたものである。本論文は 6 章からなる。

第 1 章は緒言であり、表面科学の歴史を概観しつつその工学的意義を述べ、さらに表面構造相転移とそれに関連した諸現象について概観した後、Au/Si(111)表面の構造と相転移に関するこれまでの実験および理論研究をまとめている。そして、主要ないくつかの相において構造に関するコンセンサスが研究者の間でまだ得られていないこと、既存の理論計算が金吸着量の変化に対する熱力学的安定性を十分には調べていないことを指摘して、本研究の目的を明確にした。

第 2 章では、本研究の計算方法を述べている。金および Si の吸着量変化に対する熱力学的安定性を計算により調べるために、本研究では凸多面体法という方法を導入した。この方法は熱力学ポテンシャルの最も低い状態、すなわち熱力学的に最も安定な相を見通しよく計算するための画期的なアルゴリズムであるが、半導体を基板とした表面の研究にこの方法が用いられるのは本研究が初めてである。この方法論の概要を述べるとともに、全エネルギー計算に用いた密度汎関数法の概略を述べている。

第 3 章では、Au/Si(111)平坦表面の絶対 0 度における相図を凸多面体法により予測した結果を述べている。約 280 個の構造モデルに対する計算により、Au 吸着量の増加と共に 7×7 構造、 $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ 構造、 6×6 構造が出現することを予測した。この結果を実験と比較すると、実験では観測されている 5×2 が出現していない点が大きく異なる。特に、ごく最近有力なモデルとして提案された構造モデルも熱力学的に不安定であることを明らかにした点は重要である。

第 4 章では、 5×2 構造についてさらに詳細な検討を行った結果を述べている。まず、有力な構造モデルを提案した既報の計算結果の再現性を確認した後、本研究の計算条件がそれらと同等以上の精度を有し、熱力学的安定性を議論するのに十分であることを明らかにした。さらに、角度分解光電子分光および走査トンネル顕微鏡法による実験データと計

算結果とを比較検討し、提唱されている有力なモデルが走査トンネル顕微鏡による実験データを十分には解釈できないことを明確にした。

第5章では、 5×2 構造がステップ近傍から成長するという実験事実に鑑み、ステップがAu吸着構造に及ぼす影響を検討している。まず、テラスにAu原子1個が吸着した場合とステップ近傍にAu原子1個が吸着した場合とを比較し、後者の吸着エネルギーの方が高く、したがって核生成はステップで起こりやすいことを示した。次に、これまで提唱された 5×2 構造が微斜面上で安定になる可能性について凸多面体法により考察し、過去に提唱された 5×2 構造がSi(775)微斜面上でも安定でないことを明らかにした。この結果と第3章から第5章までの結果を照らし合わせて考えると、 5×2 構造についてはこれまで提案されていない新しい構造モデルを考える必要があることが強く示唆される。

第6章は総括である。

以上のように、本論文は、Au/Si(111)表面の相安定性および構造を第一原理計算により系統的に解析した。平坦面およびステップを含む微斜面に対し、様々な構造の熱力学的安定性を金およびSi吸着量変化まで考慮して系統的に考察することにより、この表面系の 5×2 構造がまだ解明されていないことを明確にするとともに、この表面系のように複雑な系に対する第一原理計算による系統的解析の方法を確立し、表面ナノスケール構造の電気特性を解析・設計する上で有用な知見を得た。よって本論文の表面物性工学、計算マテリアル工学への寄与は大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。