

論文審査の結果の要旨

氏名 柳生 数馬

本論文は6章から成る。第1章では本研究で取り上げるCu(001)表面上窒素・酸素吸着系の紹介と本博士論文の研究目的がまとめられている。第2章では前半に本研究の実験手段である走査型トンネル顕微鏡(STM)の原理と共鳴トンネル効果を利用したSTMによる仕事関数の測定法が詳細に解説され、後半には実際の実験装置とサンプル表面作成条件が説明されている。

固体表面上の格子歪みは表面化学反応、表面構造形成そして膜成長において重要な役割を果たしている。代表的な金属表面であるCu(001)にN⁻イオンを打ち込むとCu清浄面領域と窒素パッチ領域が規則正しく配列したc(2x2)超周期構造が形成され、その結果局所的な格子歪みが発生する。窒素吸着前のCu(001)1x1結晶表面に比べて、このCu清浄面領域では表面状態のエネルギー準位や酸素吸着過程が著しく変化し、これらは格子歪みによるものだと考えられている。しかしながら、Cu(001)c(2x2)-N表面における局所的な格子歪みは実験的に正しく確認されたわけではなく、本研究ではSTMによる局所的工作関数の測定からその評価を行った。またCu(001)c(2x2)-N表面へ酸素を導入することで酸素と窒素の共吸着による格子歪みの影響も調べ、さらにその関連研究としてCu(001)清浄表面における酸素解離吸着過程も明らかにした。

第3章では、Cu(001)清浄表面への酸素吸着を取り扱った研究が書かれている。これまでCu表面の酸化過程では様々な研究が行われていたが、本論文のように0.01ML程度の非常に少ない吸着量を取り扱ったものはなかった。5K,80K,室温での酸素吸着とその後の室温加熱に対するSTM観察の結果、酸素分子は直接的に解離して原子状に吸着し、さらに2つの酸素原子は最近接サイトを取らないことが分かった。また、吸着した酸素原子は約1eVのエネルギー障壁で拡散していることも明らかになった。いずれの実験結果も過去の第一原理計算結果と一致し、本論文によりCu(001)表面上に対する酸素吸着の統一的な理解がなされた。この成果は表面科学として大変意義が高い。

第4章ではCu(001)c(2x2)-N表面における局所的な格子歪みを、共鳴トンネル効果を利用したSTMによる仕事関数の測定法から評価した内容が書かれている。本論文では、まずSTMによるdI/dV測定で表面上の様々な位置(Cu清浄面領域と窒素パッチ領域)での鏡像力ポテンシャル状態(Image potential state, IS)のエネルギー準位を調べた。そして共鳴トンネル効果の解析を通じてISのエネルギー準位から仕事関数を求め、さらに過去の理論計算で報告されたCu(001)の格子歪みと仕事関数の定量関係から各場所での格子歪みを決定した。格子歪みに対応した仕事関数の変化はわ

ずかであり、それを調べるために dI/dV 測定による IS のエネルギー測定を行った着眼点は良く、その結果高い表面空間分解能で格子歪みの変化を局所的に捉えることに成功したのは評価に値する。

第5章では Cu(001) 表面に窒素と酸素を共吸着させた系の研究について書かれてある。Cu(001)c(2x2)-N 表面を酸素雰囲気下で 700K に加熱すると、Cu 清浄面領域と窒素パッチ領域に酸素原子が確認されただけでなく、酸素吸着前に比べて窒素パッチ領域の面積は広がり、さらに c(2x2) 周期性も良くなった。これは窒素パッチ領域において窒素原子と酸素原子が置換したことで、窒素パッチ領域の格子歪みが緩和したことを意味している。このように本論文は異原子共吸着による格子歪みの制御に成功し、これは表面構造変化の新しい手法として今後の展開が期待された。

第6章では本研究成果が簡潔にまとめられ、さらにそれらを元にした将来の展望が述べられている。

以上、本論文について各章を紹介しながらその物理学的価値を解説した。本研究では金属表面での軽元素吸着とそれに伴う格子歪みについて新しい測定アプローチも取り入れた結果、表面物理学として重要な成果を幾つも上げることに成功した。このように本研究は独自性も高く、また当該分野に学術的に優れた寄与をしている。そのため、本論文は、学位論文として十分な水準にあることが審査員全員によって認められ、博士論文として合格であると判定された。なお、本論文の内容の 1 部は Surface Science 誌(K. Yagyu, K. Nakatsuji, Y. Yoshimoto, S. Tsuneyuki, F. Komori, Surf. Sci. **601**, 4837(2007).)にてすでに掲載され、今後も本学位論文から数報の論文投稿が見込まれている。いずれの論文も提出者が第一著者として中心に研究した結果であり、その寄与が十分であると判断される。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。