

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 小倉 正平

本論文は「Diffusion and growth of Au on metallic surfaces (和文題目: 金属表面における金の拡散と成長)」と題し、論文提出者が行った研究成果をまとめたものである。

論文は7章から成っている。

第1章は序論である。本研究に着手するきっかけとなった「ナノサイズの金の特異な物性を持つ」という最近の研究を紹介した後、固体表面における原子拡散と成長過程の一般的特徴を要約し、これを踏まえて本研究の目的と本論文の構成について述べている。

第2章では、表面における薄膜成長の基礎過程について一般的な事項を解説している。拡散係数と拡散方程式、遷移状態理論、平均場の核形成理論と結晶成長モデルを紹介し、さらに本研究の主題の1つであるフラクタル構造について、その特徴を述べている。また、固体表面における種々の原子拡散過程と実験的測定法についても言及している。

第3章では、本研究で用いた実験方法である、走査トンネル顕微鏡 (STM)、低速電子線回折、オージェ電子分光、熱脱離分光について論述している。それぞれの実験方法の原理を述べた後、本研究で用いた装置の詳細、試料の作製について詳述している。

第4章は、実験結果である。金属基板として Ir(111)と Pt(111)を用いて、主に3つの研究課題について行った実験結果を述べている。1番目の課題は、金を基板に成長させたときに形成される2次元島密度の測定結果である。金を成長させるときの基板温度を変化させ、成長後の表面をSTMで観察することで島のサイズ分布と島密度の温度依存性を求めている。島のサイズ分布から臨界島サイズを解析し、平均場の核形成理論を用いてテラスにおける金の拡散係数の拡散障壁と頻度因子を明らかにした。2番目の課題は、成長した金の島の形状に関する結果である。基板温度と金の被覆率を変化させ、成長後の表面をSTM観察することにより、1層目の金の島は3回対称性を持つ樹枝状の形状を示し、そのフラクタル次元が1.81となることを明らかにした。また、この値が拡散律速凝集 (DLA) モデルの理論値からずれていることを指摘している。一方で、島の形状には下地依存性があり、2層目はコンパクトな3角形、3層目以降は不規則でコンパクトな形状となることを明らかにした。3番目の課題は、成長形式に関するものである。STMの実験結果をもとに島の高さ分布を解析することで、金の1層目は2次元的な層状成長をするのに対して、2層目以降は3次元的な成長をすることを明らかにした。実験条件を考察し、成長様式が島端での原子のステップダウン拡散に支配されていることを踏まえ、臨界島半径の理論を用いて、ステップダウン拡散係数を見積もっている。

第5章は、シミュレーションの結果である。表面における原子拡散として、テラス拡散、島のエッジでの拡散、島のコーナーでの拡散、ステップダウン拡散を考慮したモンテカルロ法によるプログラムを開発し、成長過程をシミュレーションしている。これらの拡散係

数と成長速度をパラメータとしてシミュレーションを行い、実験結果と比較することで、金原子のテラス拡散、エッジ拡散、コーナー拡散、ステップダウン拡散の拡散係数を求めている。さらにこれらの解析結果が、平均場の核形成理論と臨界島半径の理論から得られたテラス拡散とステップダウン拡散の値とよく一致することを明らかにし、これらの理論の正当性を裏付けた。さらにシミュレーションで得られた島のフラクタル次元を解析し、島のフラクタル次元がエッジ拡散障壁に対して 1.67 から 2 へと連続的に変化することを見いだした。

第 6 章では、実験結果とシミュレーションの結果を総合して、考察を行っている。はじめに、実験結果の解析からえられたテラス拡散係数の前指数因子が理論値より小さい点を指摘し、吸着子間相互作用の影響、遷移状態理論の妥当性、Meyer-Neldel's compensation 則を考慮した議論を行っている。吸着子間相互作用の影響を取り入れることで、部分的には結果を解釈ができるが、完全な理解には至らず、今後の課題として残されていることを指摘している。続いて、フラクタル次元とエッジ拡散障壁との関係を議論している。従来の DLA モデルでは記述が不十分であり、DLA モデルを拡張した一般化 DLA モデルを用いて、成長速度を表す指数をエッジ拡散係数と結びつけることにより、連続的なフラクタル次元の変化を説明できることを示している。

第 7 章は、本研究の結論である。結果の要約と今後の展望が述べられている。

以上を要約すると、本論文では、STM とモンテカルロシミュレーションを用いて、金属表面における金の拡散と成長過程を明らかにした。成長形と成長様式を実験的に明らかにするとともに、金原子のテラス拡散、エッジ拡散、コーナー拡散およびステップダウン拡散の拡散障壁を求めた。さらにフラクタル形状形成の起源を明らかにし、一般化 DLA モデルと関係づけることに成功した。本研究の結果は、表面におけるナノ構造形成過程の理解を深めただけでなく、求めた拡散係数をもとに、形成される構造を予測し、さらに望みの構造を作成する指針をも与えることが可能であり、物理工学への貢献が大きいと判断できる。よって、本論文は博士（工学）の学位申請論文として合格と認められる。