



Title	超高真空低温原子間力顕微鏡によるアモルファス氷の表面形状と表面電位分布に関する研究 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	都丸, 琢斗
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第15742号
Issue Date	2024-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/92474
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Takuto_Tomaru_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学位論文内容の要旨

博士の専攻分野の名称 博士(理学) 氏名 都丸琢斗

学位論文題名

超高真空低温原子間力顕微鏡によるアモルファス氷の表面形状と表面電位分布
に関する研究

宇宙空間には、星間分子や星間塵(0.1 μm サイズの鉱物微粒子)が高密度に集まることで形成されたガス状天体(分子雲)が存在する。分子雲の内部は光などによる外部からの熱流入が遮断されており、10Kという低温環境にある。そのため、星間塵の表面には様々な星間分子が吸着することによりマントル層が形成されている。天文観測から、このマントル層は水分子を主成分とするアモルファス氷であることがわかっている。このアモルファス氷で覆われた氷星間塵は、分子雲内における化学進化過程や原始惑星系円盤内での微惑星形成における天体進化過程において極めて重要な役割を果たすと考えられており、これまで氷星間塵が関与する様々な理論的・実験的研究が行われてきた。しかしながら、アモルファス氷の表面を舞台とした物理化学過程に関する研究において、アモルファス氷の形状効果を考慮したものはほとんどない。それは、水分子が不規則に凝集することで形成されるアモルファス氷の形状学的な知見が不足しているためである。本研究では、超高真空低温原子間力顕微鏡を用いて、アモルファス氷の表面形状をナノスケールの空間分解能で可視化した。作成条件の異なったアモルファス氷の表面形状データを比較することで、初めて、実空間における氷構造の比較を行った。さらに、アモルファス氷薄膜にみられる、分極現象にも注目して研究を行った。低温基板への H_2O 分子ガス蒸着により作製されるアモルファス氷は、極性を持った水分子の一部の配向が揃うことで、アモルファス氷-真空界面側が基板に対して負電位を示し、その電圧の大きさは膜厚に比例することが知られている。この分極現象には、アモルファス氷のナノスケールの形状が強く影響しているというモデルがこれまで提案されているが、氷の形状と氷の電位構造を直接的に結びつける研究例がこれまでなかったため、その信憑性について評価することは困難だった。本研究では、アモルファス氷の表面形状に依存する表面電位の局所的変化の測定により、氷構造と表面電位構造の関係を示すデータを取得し、未だ未解明であった分極現象の解明に向けた重要な知見を得た。

本論文では、第一章で、宇宙空間におけるアモルファス氷の重要性や、これまでアモルファス氷を対象として行われてきた物性研究(密度、表面積など)や、走査型トンネル顕微鏡や原子間力顕微鏡、または計算機による構造シミュレーションなどのアモルファス氷形状に関する先行研究例を紹介し、本研究の目的および立ち位置について記述した。第二章では、本研究で使用した走査型プローブ顕微鏡(原子間力顕微鏡:AFM, 走査型トンネル顕微鏡)の原理や測定できる物理現象および物理量について解説した。第三章では、取得した画像データに適用する基本的な画像処理に関する説明と、得られた表面形状データの分析に用いた高さ-高さ相関関数分析など、データ解析全般について解説した。第四章では、使用した実験装置の概要と本研究を行うために新たに開発した、基板温度可変型ステージに取

り付け可能な通電加熱用基板ホルダー，および，自作の AFM 探針デバイス (qPlus センサー) について詳細に記述した．本研究では，研究テーマに合わせて，表面形状測定では探針先端の曲率半径 $<2\text{nm}$ が保証された HDC (High density diamond-like carbon) 探針を，表面電位変化の測定では PtSi 製の導電性を持った先端曲率半径 $<25\text{nm}$ の探針をそれぞれ用いた自作の qPlus センサーを使用した．第五章では，アモルファス氷構造の温度依存性について行った研究について記述した．測定対象となるアモルファス氷試料は，ヒーターにより 15K または 100K に維持した Si (111)- 7×7 基板に，入射角 60° で水分子を蒸着させることで作製し表面形状測定をした．15K で作成したアモルファス氷の典型的な凹凸形状の一山の平面における拡がりはおおよそ $5\sim 10\text{nm}$ 程度の大きさで観察された．一方で 100K では， $10\sim 30\text{nm}$ 程度であり，15K より大きな凹凸形状を示した．一方，高さ方向の大きさを示す表面粗さは，100K よりも 15K の方が大きく，100K の方が比較的平坦な形状を示した．また，形状像を水分子の蒸着方向に対して垂直と水平の方向に，高さ-高さ相関関数分析をそれぞれ行ったところ，15K では相関長に蒸着方向に対する分析方向依存性が現れたのに対し，100K では方向依存性がほとんど見られなかった．このことから，15K では蒸着分子の拡散が小さく，蒸着方向の影響が顕著に現れる柱状構造をしているのに対し，100K では水分子の表面拡散の効果が大きくなることにより蒸着方向という情報は失われ，拡散によって決まる構造になっていることが示唆された．第六章では，氷表面に発現する負電位がナノスケールの表面形状変化に依存して局所的に変化する様子を測定することにより，アモルファス氷の分極現象について行った研究について記述した．アモルファス氷の表面構造測定と同様の手順で作成した 15K と 100K のアモルファス氷に対して，導電性の確保された探針を用いて， $200\text{nm}\times 200\text{nm}$ 範囲内の 400 カ所で，探針と氷試料表面間の接触電位差測定を行った．400 個の各点上で得られた接触電位差分布と表面形状を照らし合わせることで，負の表面電位と表面形状の関係を可視化した．その結果，アモルファス氷の表面電位は測定場所に依存して局所的に変化し，複雑な電位構造を持っていることがわかった．先行研究では，アモルファス氷表面電位は膜厚に比例して大きくなることが報告されているが，観測された表面電位の局所変化から，アモルファス氷は膜厚で単純にスケールできる電位構造にはなっておらず，測定点近傍の細孔の密度や大きさといった氷の局所的な形状にも大きく依存していることが示唆された．この結果は，アモルファス氷の分極現象は，細孔表面にある水分子が整列して電場が形成されることで生じるという，これまで提案されてきた分極モデルと整合的であり，本研究によるミクロスコピックな表面電位変化の測定で初めて検証が可能になった．第七章では，全体的な総括を行い，本研究のまとめを記載した．