

CRMCC エクスマルセーユ大学
における結晶成長と表面科学の研究

佐藤 清隆

広島大学生物生産学部

〒720 福山市緑町 2-17

(1983 年 5 月 23 日 受理)

Current Research Topics on Crystal Growth
Mechanism and Surface Science at CRMCC
in Aix-Marseille University

Kiyotaka SATO

Laboratory of Chemical Physics, Faculty of
Applied Biological Science, Hiroshima University
720 Fukuyama

(Received May 23, 1983)

Being based on the author's personal experiences during one-year study abroad, this report introduces the current activities of the researches for crystal growth mechanism and surface science at CRMCC (Research Center of Crystal Growth Mechanism—in English—in Aix-Marseille University. Five main research groups are introduced together with those current topics; epitaxy, metal surface, interface, solution growth and protein. A strong impression that people in CRMCC intend to develop the crystal-growth-science toward the surface science has been described. This trend reveals in the topics of the fundamental studies on catalysis, solid-liquid interface structure, self-diffusion on metal surface and so on.

筆者は、1981 年 12 月よりフランス政府給費留学生として、南フランスはマルセーユにある結晶成長機構研究所 (CRMCC-Centre de Recherche sur les Mécanismes de la Croissance Cristalline) に 1 年間滞在しました。この研究所は、フランス自然科学研究院 (CNRS) とエクスマルセーユ大学の両者に附置し、おもに結晶成長学を基幹として、その周辺の分野をカバーしています。所長は長らく Kern 教授がつとめています。この人は、J. Crystal Growth の editor として広く知られていますし、フランスの鉱物学界、結晶学界、さらには最近では表面科学界でも大きな役割を果たしています。そしてこの研究所も、Kern 教授の研究史と歩調をあわせて

発展して来たといっても過言ではない程で、いわば Kern school の学風に満ちています。

その名に「結晶成長機構」を冠しているように中心テーマは crystal growth ですが、最近では表面科学への志向が著しく、個々のグループの current topics にもそれが反映しています。ただし、私が取り組んだテーマは、溶液からの結晶多形の析出機構で、いわゆる表面科学の固有のテーマからは程遠いものでした。そこで、日頃の雑談や見聞で知った範囲内で、本雑誌の読者に関心があると思われる点に関連したこの研究所の最近の動向を簡単に紹介することにします。

研究所は、現在 5 部門から成り立っています。ただ、Kern 所長によれば、最近それを再編成して、さらに研究の activity を高めようとしているとのことで、すでにそれが実施されているかも知れませんが、昨年の時点での研究体制は別表に示しました。その中で表面科学分野と関係のあるテーマは、おもに、Epitaxy と、Metal Surface ならびに Interface のグループで取り組んでいます。具体的には、以下の通りです。(1) 金属・半導体系での薄膜形成初期過程の研究 (Le Lay, Manneville による Au, Ag, Cu/Si 系など)、金属結晶の平衡形・成長形の実験と理論 (Metois & Heiraud による Ge, Pb/graphite; Drechsler らによる transition metal) (2) 金属表面原子の運動 (Drechsler らによる FEM を用いた自己拡散) (3) 固液界面構造 (Bonnissent らによる surface melting, solid-liquid structure の計算機実験) さらに、表では省きましたが、エクス・マルセーユ大学の理学部物理学科で、研究所のいわば“協力講座”の形で日常的に仕事をすすめている Prof. Bienfait のグループは、graphite 上の不活性ガスの吸着の問題に取り組んでいて、それは CRMCC のグループとして Surface に対応します。

以上、かいつまんで表面科学固有の領域に含まれると思われるトピックスをあげましたが、私の取り組んだ溶液成長のテーマでも広い意味で、表面・界面の問題として理解されるべき現象が、研究グループの間では問題となりました。すなわち、溶液成長の素過程としては、成長単位が結晶表面に吸着し表面拡散してステップに組みこまれるプロセス (表面拡散プロセス) と、溶液中の体積拡散で直接ステップに成長単位がとりこまれるプロセス (体積拡散プロセス) とが本質的に異なるものとして知られていますが、実際の固液界面での成長カイネティクスにどちらが適用されるかについての理解が十分確立されていないという問題です。これは、古くて新しい (1951 年の Burton, Cabrera & Frank, 1961 年の Chernov, 1967 年の Bennema, 1971 年の Gilmer, Ghez

Table 1 Research System of CRMCC

group	leader	staff	main theme
Epitaxy	Prof. Kern	Dr. Metois Dr. Manneville Prof. LeLay Dr. Heiraud et al.	半導体薄膜成長 結晶の平衡形・成長形 触媒反応の素過程
Metal-surface	Dr. Drechsler	Dr. Bermond Dr. Audiffren Dr. Bardon et al.	表面自己拡散 表面吸着 平衡形
Interface	Dr. Mutaftschiev	Dr. Jourdan Dr. Bonissent Dr. Chapon et al.	固液界面構造 固相成長 核形成 アモルファスの結晶化
Solution	Dr. Boistelle	Prof. Baronnet Dr. Amouric Dr. Olive et al.	成長カイネティックス ポリタイピズム 鋳物の塑性
Protein Crystallization	Dr. Haser	Dr. Frey Dr. Pepe Dr. Payan et al.	たん白質の結晶成長 （アミラーゼ，チトクロームの構造解析）

& Cabrera, ごく最近の van der Eerden などの理論) 問題ですが, 私の考えでは, 実験的に直接確認する手段に不足しているために, 未だ不明瞭になったままではないかと考えています。私たちが実際に取り組んだのは, 異なる結晶多形の成長速度の温度変化から, 結晶化の活性化エネルギーを実験的に求めたうえで, 上述の成長素過程にもとづく理論式にいくつかのパラメーター値を入れて実験値と対応させてみるというものですが, パラメーターの数が多くまたそれぞれに計算による類推や誤差も含まれ, 余りうまく行きません。結局のところ, 素過程に含まれるパラメーター値を独立に測定する (たとえば, 固液界面における分子の表面拡散, 脱溶媒, ステップとりこみにおける分子再配列などの活性化エネルギー) 方法を探ることが求められていると思われます。その点で, 固液界面上の単分子ステップの運動をその場で観察するシステムが最近東北大学で確立されましたので, この分野における界面科学のトピックスとして期待が持たれます。

冒頭に述べたように, CRMCC には, Kern school の雰囲気満ちていると述べましたが, それは, 教授自らが私に語ってくれた言葉によれば「本質的に新しいことに挑戦せよ」といえるのではないかと思います。それが, 具体的に現在の CRMCC でどう生かされているのかを詳しく知り得なかったのが心残りですが, その1つとして, たとえば触媒反応の素過程を結晶成長学の適用テーマとしてみなして新しく仕事を始めているように, 表面科学がそのターゲットとなっていると思います。この小文では, その点を全く表面的にしか紹介出来なくて恐縮しています。

CRMCC は, その運営において, 外来研究者を積極的に受け入れる方針がつよく, また実際にそのような形で仕事をしていても国際協同研究の経験の豊富な研究者が多数いて充実した日々が送れます。ですから, 多くの方々が, 短期でも, 長期にでも CRMCC の扉を開けられることをお勧めして, 拙文を終えます。