

(*) B. Ouladdiaf : Thesis of I'Univ. Sci. Med. et I'Ins. Nat. Polythec. de Grenoble 1986.

31. 一次元格子上の脱離・吸着の速度論

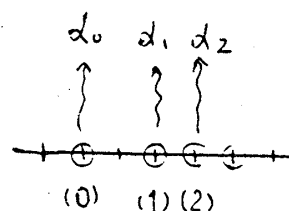
坂 野 齋

§ 1. はじめに

気体の固体表面における素過程である，脱離，吸着，拡散は不均一系化学反応の基礎であるが，吸着種間相互作用のため，化学反応はもとより，素過程自体の速度論も未発達である。そこで，1次元，1成分の系で素過程を記述するモデルを立て，考察を加えた。

§ 2. モデル

① 単分子脱離過程…ある占有 site の脱離は，最近接 (1 nn) の占有数 i ($= 0, 1, 2$) (その site の状態を (i) とする。) にのみ依存する速度定数 α_i に基く 1 次反応的脱離過程であると仮定する。この脱離の際，その site が非占有となる他に，1nn site の状態を変える (脱離の副次的効果)。これらすべての変化を考慮した (i) の population p_i の時間変化は，連立方程式となる。



$$dp_0/dt = -\alpha_0 p_0 + \{(\alpha_1 - \alpha_2) q_1 + \alpha_2\} p_1$$

$$dp_1/dt = -2\{(\alpha_1 - \alpha_2) q_1 + \alpha_2\} p_1 + 2\alpha_2 p_2, \quad q_1 = \frac{p_1}{p_1 + 2p_2}$$

$$dp_2/dt = +\{(\alpha_1 - \alpha_2) q_1 - \alpha_1 + \alpha_2\} p_1 - 3\alpha_2 p_2$$

② 会合脱離過程…占有 bond (1nn 占有 site どうしの pair) に対し，①と同じ考え方を適用でき，bond の population b_i に関する連立式を得る。副次的効果が 2 nn まで及ぶことが異なる点である。なお， b_i は p_i に書き直せる。

③ 吸着過程…単分子吸着，解離吸着を“非占有 site，非占有 bond の脱離”と考えれば，数式的に①，②と同等となる。

④ 拡散過程…占有 site の飛び移りと考えると， p_i に関する連立式を得る。

§ 3. 適用と考察

上のモデルを、脱離過程に適用し、拡散の有無、単分子か会合か、計4とおりの場合について計算した。脱離と拡散の共存は、素過程の重ね合わせとして記述できる。本論から導ける結果として、3点を挙げる。

- (1) 2分子過程の方が、単分子過程より島構造を保ち易い。
- (2) 脱離について拡散のある場合とない場合は、熱脱離の実験からは見分け難いと予想される。
- (3) 引力的相互作用が強く、島の端が不安定な場合、自己触媒的脱離が起こり易い。

最後に本論の展望として、脱離と吸着の共存する場合や、2成分系への拡張を挙げておきたい。

。大阪大学大学院理学研究科物理学専攻

- | | |
|--|---------|
| 1. 隕石中のMg同位体比異常に関する研究 | 鈴木 麻里 |
| 2. 顕微分光法による細胞内ヘマトポルフィン誘導体の分光学的研究 | 関 高 宏 |
| 3. ピコ秒光子相関測定法とその応用 | 野 中 弘 二 |
| 4. ZnTe結晶における励起子発光とラマン散乱 | 藤 川 泰 之 |
| 5. ヘテロダイン型アキュムレーテッド・フォトンエコーの研究 | 宮 本 治 一 |
| 6. γ -放射の異方性を用いた多重スピン密度波の研究 | 藤 田 和 宏 |
| 7. II-VI族化合物半導体ZnSeの磁気光物性 | 榊 原 清 彦 |
| 8. 強磁場下における液体酸素の体積膨張効果 | 上 西 直 太 |
| 9. $\text{Yb}_x\text{Lu}_{1-x}\text{B}_{12}$ の強磁場磁性 | 金 森 謙 |
| 10. 重い電子系の強磁場磁性及びLong Pulse Magnetの開発 | 下 畑 賢 司 |
| 11. ダイヤモンド中不純物窒素のESR | 萩 原 政 幸 |
| 12. $\text{PbTe}/\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ 超格子における強磁場量子輸送現象 | 二 瓶 史 行 |
| 13. サイクロトロン共鳴による $\text{PbTe}/\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ 超格子のサブバンド | 浦 川 幸 宏 |
| 14. アモルファス GeSe_2 のレーザー誘起結晶化 | 川 本 浩 司 |