

Title	金属表面電子系の過渡応答に関する理論的研究
Author(s)	坂上, 護
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/42058
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	坂上護
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第15421号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科応用物理学専攻
学位論文名	金属表面電子系の過渡応答に関する理論的研究
論文審査委員	(主査) 教授 笠井 秀明 (副査) 教授 志水 隆一 教授 樹下 行三 教授 川上 則雄 助教授 朝日 剛

論文内容の要旨

本論文は、金属表面電子系の過渡応答を微視的立場から解明することを目的として、金属表面での時間分解二光子光電子分光に関する理論的研究を行い、得られた結果をまとめたもので、以下の6章より構成されている。

第1章では、光電子分光法による実験を中心に金属表面の超高速電子動力学に関するこれまでの研究を概観し、本研究の位置づけを明らかにしている。

第2章では、光パルス吸収に伴う分子吸着表面上の局在状態への共鳴電子遷移と非共鳴電子遷移の絡み合いが、その局在状態に見出される電子数密度の時間発展に与える影響を調べている。その結果、その影響により電子数密度の時間発展が光エネルギーに依存することを示している。

第3章では、光パルス吸収に伴う分子吸着表面上の局在状態への共鳴電子遷移と非共鳴電子遷移の絡み合いが、その局在状態の時間分解二光子光電子スペクトルに与える影響を調べている。その結果、その影響により時間分解二光子光電子スペクトルが光エネルギーに依存することを示し、さらに、そのスペクトルの解析により局在状態に見出される電子数密度が評価できることを示している。また、時間分解二光子光電子スペクトルの光パルス時間幅依存性を示している。

第4章では、バルク状態の時間分解二光子光電子スペクトルに対する電子間クーロン相互作用の効果を調べている。その結果、電子間クーロン相互作用の効果によりコリレーショントレース(光電子強度のポンプ・プローブ遅延時間依存性)がプローブ光で励起された電子の寿命とポンプ光で励起された電子や正孔の寿命に依存することを示し、実験結果のポンプ光エネルギー依存性を定性的に再現している。さらに、光パルス吸収や電子間クーロン相互作用による散乱に伴って励起された二次電子や正孔の緩和によって、コリレーショントレースが光パルス時間幅に依存することを示している。

第5章では、Cu(111)の鏡像力表面状態の時間分解二光子光電子スペクトルに対する電子間クーロン相互作用の効果を調べている。その結果、電子間クーロン相互作用の効果により、コリレーショントレースが鏡像力表面状態の電子の寿命とポンプ光で励起された電子や正孔の寿命に依存することを示し、実験結果にポンプ光エネルギー依存性が現われていることを指摘している。

第6章では、各章で得られた結果を総括し、時間分解二光子光電子分光法を中心に表面の超高速動力学に関する将来の展開を述べている。

論文審査の結果の要旨

金属表面での分子の吸着、脱離、散乱などの動的過程を電子論の立場から理解するためには、金属表面電子系の過渡応答を明らかにすることが肝要である。そのため、現在、時間分解二光子光電子スペクトルの測定が盛んに行われている。本研究では、この時間分解二光子光電子スペクトルを微視的立場から理論的に解析し、光パルスに対する金属表面電子系の過渡応答を明らかにしている。本研究成果を要約すると以下の通りである。

- (1) 分子吸着表面での光パルス吸収に伴う電子励起のモデルを提案し、バルクから吸着分子上の局在状態への電子遷移過程には直接過程とバルク内での励起を介する間接過程があることを示している。さらに、このモデルに基づいて局在状態に見出される電子数密度の過渡応答を解析し、直接過程には主として系のエネルギーが保存される過程が関与するが、間接過程にはバルク内でのバンド間遷移における運動量保存の要請から系のエネルギーが保存されない過程も関与すること、またそのため、フェムト秒の時間領域では、電子数密度の時間発展が光エネルギーに強く依存することを示している。
- (2) ポンプ光吸収に伴い吸着分子上の局在状態へ遷移した電子が、プローブ光吸収に伴い光電子となる場合の時間分解二光子光電子スペクトルにおいては、上述の直接過程と間接過程が異なるエネルギー位置にピーク構造をもたらす、それぞれのピーク位置でのコリレーショントレース（光電子強度のポンプ・プローブ遅延時間依存性）の解析から局在状態に見出される電子数密度が評価できることを示している。さらに、光パルス時間幅が短くなると間接過程の寄与が増大することを示している。
- (3) ポンプ光吸収に伴い励起された電子や正孔のクーロン相互作用による散乱確率は、それらの寿命に依存するため、コリレーショントレースがポンプ光吸収に伴い励起された電子や正孔の寿命に依存することを示している。したがって、ポンプ光吸収に伴い励起された電子や正孔の寿命がそれらのエネルギーに依存する場合には、コリレーショントレースに光エネルギー依存性が現われることを示している。
- (4) ポンプ光吸収や電子間クーロン相互作用による散乱に伴って励起された二次電子や正孔の緩和によって電子系のコヒーレンスが失われるため、コリレーショントレースが二次電子や正孔の寿命に依存し、この依存性は光パルス時間幅が長くなるにつれて顕著になることを示している。
- (5) Cu (111) の鏡像力表面状態からの光電子放出過程においては、ポンプ光吸収に伴い励起された電子や正孔のクーロン相互作用による散乱によって鏡像力表面状態へ遷移した電子が、プローブ光吸収に伴い光電子となる。このため、コリレーショントレースがポンプ光吸収に伴い励起された電子や正孔の寿命に依存することを示し、この依存性がコリレーショントレースの光エネルギー依存性として実験結果に現われていることを指摘している。

以上のように、本論文は、時間分解二光子光電子分光の解析を行うことによって、金属表面電子系の過渡応答を微視的立場から理論的に調べたもので、基礎的な面のみならず、応用の面でも有益な知見を得ており、応用物理学、特に理論物性学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。