OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Ultrafast carrier dynamics on Si surfaces studied by femtosecond time-resolved two-photon photoelectron spectroscopy
Author(s)	市林, 拓
Citation	大阪大学, 2009, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/49601
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

【80】

氏名	市林（いちばやし）　拓（たく）
博士の専攻分野の名称	博　士（理　学）
学位記番号	第　２３０２９　号
学位授与年月日	平成21年３月24日
学位授与の要件	学位規則第４条第１項該当 基礎工学研究科物質創成専攻
学位論文名	Ultrafast carrier dynamics on Si surfaces studied by femtosecond time-resolved two-photon photoelectron spectroscopy （フェムト秒時間分解２光子光電子分光法によるシリコン表面超高速キャリア動力学）
論文審査委員	（主査） 教　授　谷村　克己 （副査） 教　授　菅　　滋正　　教　授　伊藤　　正　　教　授　夛田　博一

論文内容の要旨

Si結晶内部とその表面におけるキャリア動力学を解明するため、Si(111)-(7x7)およびSi(001)-(2x1)表面を対象として、フェムト秒時間分解2光子光電子分光法を用いた研究を行った。ＳＴＭによって原子レベルで構造を明らかにした試料表面を用い、光励起下の表面の電子状態の特徴を解明した後、詳細な動力学的研究を行った。励起レーザーの波長可変性を活用して、表面に固有の光電子ピーク、結晶内部の伝導帯からの光電子ピークを分離・同定し、伝導電子の超高速緩和過程と表面における電子遷移過程を実時間追跡した。以下に主要な結果を記す。

表面欠陥濃度が0.01％以下のSi(111)-(7x7)における仕事関数・イオン化エネルギーを決定した。さらに、表面の光誘起起電力効果の研究から、flat bandを実現する条件を定め、その下での光電子スペクトル測定によって、表面状態とバルク電子状態との明確なエネルギー的関係を定めた。更に、Si(001)-(2x1)に対して、鏡像表面状態各準位の束縛エネルギーを求め、半導体表面上の鏡像表面状態の特徴を明らかにした。

２光子光電子分光において、初めてバルク伝導帯からの光電子ピークを観測・同定し、その放出機構が、表面光電子効果による inverse LEED 状態への遷移による事を明らかにした。伝導帯ピークスペクトル形状の時間発展を詳細に測定・解析し、光励起後の電子温度、電子密度変化を求めた。伝導帯X valleyへの間接遷移では、励起電子は100fs以内に準平衡状態に達し、その後電子-フォノン散乱によって時定数240fsで格子系との平衡に達する。更に、伝導帯L valleyへの直接遷移を誘起して、SiにおけるL-X intervalley散乱過程を初めて観測し、その散乱確率と温度依存性を解明した。

Si(001)-(2x1)表面において、バルク伝導帯電子と共に、角度分解測定によって表面非占有電子状態の各分散点での電子占有数の変化をフェムト秒領域で測定し、バルク状態から表面状態への遷移過程を解明した。定量的考察に基づき、表面における超高速な再結合過程の存在を発見した。

論文審査の結果の要旨

最近の著しいナノテクノロジーの進展に伴う半導体電子素子・デバイスのナノメートルスケールへの微小化は、そのナノ構造中での電子の量子力学的散乱過程や表面・界面における超高速な動的過程に対する深い理解を強く要求している。さらに、近年の超短光パルスと物質との相互作用に基づく、物質電子励起状態での光誘起構造相転移や非熱的溶融などの劇的な現象の機構解明には、超高速で生起するキャリヤ動力学の微視的解明が必要不可欠である。中でも、多くの半導体物質のモデルであり、現代の電子工学における最も重要な物質の一つであるシリコン結晶中およびその表面・界面での超高速キャリヤ動力学の解明は、学術的にも応用的にも、極めて重要な意義を有する。

本論文は、フェムト秒時間領域の分解能を有する時間分解2光子光電子分光の手法を駆使し、今までの光学的手法による研究成果の限界を大きく打破して、運動量、エネルギーを選別した電子励起状態の動力学を直接的に解明した。まず、Si(111)-(7x7)およびSi(001)-(2x1)表面などの代表的なシリコン再構成表面の原子構造を、走査型トンネル顕微鏡を用いて原子レベルで明確にし、その上で、光励起下でのそれらの表面の電子的特性を特徴づける、仕事関数、イオン化エネルギーなどの重要な物理量を決定し、キャリヤ動力学の解明に本質的に重要な表面でのflat band条件を実現する励起条件を確立した。それらの基礎に立脚して、今までの研究において検出が不可能であった、シリコン伝導帯電子からの光電子スペクトルを明確に検出し、それが、表面光電子効果に起因したTime-reversed Low-Energy-Electron-Diffraction状態への遷移によって誘起されるものであることを解明した。次に、この光電子スペクトルの測定から、電子分布関数を時間分解的に決定し、シリコンの間接光学遷移によって発生した非平衡電子分布が、40ｆｓの時定数で準平衡な電子的平衡状態に緩和すること、その電子的平衡状態を特徴づける電子温度が室温において、240fsの時定数でエネルギー緩和を発生させ、格子系との平衡を達成することを実験的に明らかにした。さらに、この過程で、光子エネルギーによって電子系に与えられる余剰エネルギーの約半分のみが電子系に保存され、他は超高速で格子系に散逸されることを見出した。これらの知見は、本研究で初めて明らかにされた半導体中の励起電子の緩和過程の重要な特徴である。更に、励起波長可変の装置上の特徴を最大限に活用し、シリコン結晶中のL valleyでの直接光学遷移によって発生した高エネルギー励起電子の超高速緩和過程を研究し、L valleyからX valleyへのinter-valley散乱が、変形ポテンシャル相互作用によって、180fsの時定数で発生することを世界に先駆けて明らかにし、その効果が、伝導帯底への電子分布発生および格子系へのエネルギー緩和の発生に大きな時間遅延を生み出すことを見出した。最後に、これらの結晶中での励起電子の超高速緩和過程の知見に立脚し、Si(001)-(2x1)表面でのバルク電子系から表面二次元電子系への電子遷移過程を、角度分解手法を駆使して直接的に研究し、表面電子系における超高速な再結合過程の存在を発見した。

以上のように、本論文は、もっとも代表的な半導体であるシリコン結晶中の光励起によって発生した熱い電子の超高速緩和過程の重要な特徴を明らかにし、その知見に立脚して、代表的再構成表面上でのキャリヤ動力学の解明に大きな成果をあげ、半導体励起物性の理解・発展に基礎学術的にも応用的にも大きく寄与しているので、博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。