

審査結果の要旨

論文提出者の氏名 黒木健郎

本論文は、第1章序論、第2章未処理表面からのプロトンスパッタリング、第3章水素終端 Si 表面からのプロトンスパッタリング、第4章水吸着 Si 表面からのプロトンスパッタリング、第5章実験結果のまとめ、第6章まとめ、の全6章からなっている。

低速多価イオンはそれに伴う強い電場と大きなポテンシャルエネルギーのために特異な振る舞いをする事が知られている興味深いプローブである。特に固体表面との相互作用では、中空原子生成や表面の改質効果などがこれまでも様々に議論されてきた。

本論文は、上記表面改質効果の一側面といえる2次イオン放出現象を、微視的によく定義された (well-defined) 3種類の水素終端 Si(001)面と重水素終端面、さらに水終端面に対して、低速多価イオンを用いて系統的に研究したこれまでにない研究報告である。このような実験は一般に破壊的(destructive)であり、従来の研究ではイオンによって変質した表面を観測していることがほとんどであった。本研究ではこのような表面状態の変化を極力避けるため、2次イオンの収集検出効率がほぼ100%になる検出系を作ることにより、表面状態を特定した観測を可能にしている。

論文申請者は、超高真空実験槽を設計製作し、放出イオンの3次元分布が測定できる TOF-2DPSD (Time Of Flight - 2Dimensional Position Sensitive Detector) 測定装置を開発した。さらに、得られた3次元情報を event 毎に取り込むインターフェースとそのデータを解析するプログラムを独自に開発している。

本研究では、まず、Si(100)-(2×1)H、Si(100)-(1×1)H表面に4価から12価までのXeイオンを入射させ、入射イオン1個あたりのプロトン収量を測定し、いずれの表面の場合も、 $q^2$ という非常に強い価数依存性を持つことを見いだした。これは、入射イオンからの運動量移行によりはじき出される $\text{Si}^+$ イオンの収量が入射価数に依存しないことと好対照で、低速多価イオンによるプロトン放出が $\text{Si}^+$ 放出とは質的に異なる機構により引き起こされていることを明らかにした。この放出過程の違いはさらにプロトン収量を多価イオンの入射角の関数として観測することによっても確認されている。申請者は、以上の観測結果が古典的障壁乗り越えモデル (classical over barrier model) による多電子移行過程とその結果生成されるプロトンが再中性化される過程を考慮することによりほぼ説明できることを示した。

次に申請者は、放出プロトンの2次元分布と飛行時間分布を測定し、放出時におけるプロトンの3次元運動量分布を評価することに成功している。これからプロトン放出は、理

論的に予想されているSi-Hボンドの方向ではなく、ほぼ表面垂直方向に起こること、Si-(2×1)H表面からSi-(3×1)H、Si-(1×1)H表面と表面上の水素原子数が増えるとともに、分布幅が広がることを見いだした。この傾向はやはりプロトンの再中性化過程を考慮することにより定性的には説明されている。Si-(2×1) H<sub>2</sub>O表面では、H<sub>2</sub>Oが解離吸着して形成されるSi-OHボンド上のHがプロトン放出に大きな寄与をすること、Si-(2×1) H<sub>2</sub>O表面に加熱処理を施すことによりプロトンの放出分布がSi-(2×1)H表面の場合に近づき、加熱によりOHボンドの酸素が表面下に潜り込むという現象が従来指摘されたより低い温度で既に起こっていることを示し、ここで開発された検出方法の感度が非常に高いことを示した。

さらに、電子状態がほぼ同じで質量だけが異なる重水素が吸着した表面、(1×1)D表面、に対して同様の実験を行った。この様にして得られた同位体効果と簡単なモデル計算を組み合わせることにより、多価イオン衝撃時の水素原子の電離確率とその後の再中性化確率が評価できることを示し、吸着位置におけるプロトンの再中性化寿命として0.6fsを得ている。一方、放出プロトンのエネルギー分布からは、Si<sup>+</sup>の再中性化寿命が11fsと求められた。これらの数値が具体的に求められたことは興味深いことであり、今後の理論的研究、他の系に対する実験的研究が待たれる。

以上、本申請者は、低速多価イオンとよく定義された表面というユニークな衝突系を、2次イオン放出現象を通して系統的に研究し、プロトン放出過程が多価イオンへの多電子移行と、その後の再中性化過程で半定量的に説明できることを示した。本研究は数名の共同研究者と共に進められたものであるが、実験装置の立ち上げ、実験の遂行、その後のデータ解析等、すべて本申請者が主体的に進めたものである。

したがって、本審査委員会は博士（学術）の学位を授与するにふさわしいものと認定する。

この研究により、放出プロトン収量は（1）入射イオンの運動エネルギーにほとんどよらず、（2）価数の5乗という強い依存性を持ち、（3）再中性化過程が極めて重要であること、などが明らかになった。さらに、放出時におけるプロトンの放出運動量をすべての成分について実験的に決定し、水素の表面吸着状態と電離乖離過程の関係を研究した。重水素原子を用いて乖離電離強度のアイソトープ効果を観測し、これから、放出イオンの再中性化確率の絶対値を出すことにも成功した。