

論文審査の結果の要旨

氏名 小河 愛実

本論文では、シンクロトロン放射光とパルスレーザーを同期させて試料に照射することによって、時間分解能を持つ角度分解光電子分光を実現する実験システムを構築し、ピコ秒からミリ秒にいたる広い時間スケールで電子状態の動的変化を観測可能にした。その実施例として、光照射によって半導体結晶表面で生じる表面光起電力現象の緩和過程を調べ、新たな知見を得ることができた。光電子分光法は、従来から物質の電子状態を直接的に調べる実験手法として広く物質科学の分野で用いられてきたが、本論文で開発された実験システムは、さらに時間分解能を付加して電子状態の動的変化の解析を可能とするシステムであり、物質内で起こる物理現象のダイナミクスを解明する有力な手段として物性物理学の進展に大いに寄与できるものである。

本論文は7つの章から構成されている。第1章では本研究の背景として、半導体で起こる光誘起現象を概観し、特に表面光起電力現象の先行研究を比較検討し、その中から生まれた問題意識および本研究の目的が述べられている。第2章では、本研究で取り扱う半導体内でのキャリアダイナミクスに関する理論を詳述している。第3章では、本研究の実験手法である光電子分光および各種電子分光器の原理と特徴について述べている。第4章で、論文提出者が新しく開発したポンププローブ時間分解光電子分光システムを詳述している。シンクロトロン放射光およびパルスレーザーを同期させる制御システムや飛行時間型電子分光器などの特徴を活かす実験方法を十分検討して本システムを構築したことが報告され、他の類似のシステムと性能や特徴を比較している。第5章において、開発した実験システムを用いて行ったシリコン結晶表面で起こる表面光起電力現象の測定結果が報告されている。この研究により、下に述べるいくつかの新しい知見を得た。第6章において本論文で明らかにされた結果とその意義がまとめられており、第7章で今後の研究の展望が述べられている。

本研究の成果は大きく分けて3つある。

(1) 時間分解能を持つ角度分解光電子分光システムの構築：

シンクロトロン放射光施設 SPring-8 の軟 X 線ビームラインにパルスレーザーシステムを結合させたエンドステーションを建設し、レーザーパルスと放射光パルスとの遅延時間を制御しながら、ポンプ・プローブ法による動的な光電子分光測定が可能なシステムを構築した。これにより、ピコ秒からミリ秒に渡る広い時間スケールで起こる電子状態の動的変化を 50 ピコ秒程度の精度で追跡可能となった。

(2) 表面光起電力効果の緩和過程の解明

上記実験システムを用い、シリコン結晶表面にレーザー光を照射したときに誘起される表面光起電力効果の緩和過程を、シリコン 2p 内殻準位のエネルギー変化を測定することによって調べた。その結果、100 ナノ秒程度の時間内で起こる速い緩和過程と 1 マイクロ秒以上かけて起こる遅い緩和過程の 2 種類が存在することを見出した。前者はトンネル過程によって、後者は熱励起過程によって電子とホールが表面で再結合して緩和が進行することを明らかにした。熱励起過程による緩和は先行研究によって報告されていたが、本研究でトンネル過程による高速緩和過程が存在することが示された点が特筆すべき新しい知見である。

(3) 非線形効果による振動的緩和過程の発見

大強度レーザー励起の表面光起電力の緩和過程において、バンド湾曲が振動しながら回復することを見出した。その振動周期は、光励起されたキャリア濃度が高いほど短いこともわかった。電子とホールが再結合する際に励起子的状態を経ることを仮定した非線形速度方程式によって観測された現象を定性的に説明できることがわかった。これによって高濃度に励起された電子・ホールプラズマの再結合過程が非線形な非平衡過程であるという描像を得た。

以上のように、論文提出者は、世界的にもみても最先端の性能を持つ時間分解光電子分光システムを構築し、その有用性を光起電力効果

の測定で示し、新しい知見を得た。今後、この実験システムで明らかにされる電子状態のダイナミクスは、物質科学研究に極めて有用な情報をもたらすことは間違いない。よって、本研究の物性物理学としての価値と独創性は十分と認められた。そのため、博士（理学）の学位論文としてふさわしい内容をもつものと認定し、審査員全員で合格と判定した。なお、本論文は、共同研究者らとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験の遂行や結果の解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断した。