

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 池田暁彦

本論文は「Photon stimulated desorption of and nuclear resonant scattering by noble gas atoms at solid surfaces (表面吸着した希ガス原子からの光刺激脱離と核共鳴散乱)」と題し、論文提出者が行った研究の成果をまとめたものである。

論文は5章から成っている。

第1章は序論である。固体表面における希ガス分子の物理吸着と吸着系の電子状態に関する研究背景を概観した後、第一の課題である吸着分子の光刺激脱離に関する先行研究についてまとめている。先行研究では、エキシトン励起に起因した脱離機構が論じられてきたが、近年の分光研究の結果に言及し、電子親和準位を介した光刺激脱離の可能性を指摘している。続いて、第二の課題であるシンクロトロン放射光を用いた核共鳴散乱に関する研究背景をまとめ、従来のメスバウアー分光と比較し、その特徴と表面系への応用可能性を述べている。これらの研究背景を踏まえて、本研究の具体的な課題設定を行っている。

第2章では、光刺激脱離と核共鳴散乱の実験について、その原理と実験方法、さらに自身で開発した実験装置について述べている。光刺激脱離については、四重極質量分析器の高感度化と飛行時間スペクトルの測定・解析について詳述している。核共鳴散乱については、実験に用いた ^{83}Kr 原子核の基本的性質について述べた後、入射X線の全反射角近傍で測定することで表面吸着系での測定が可能となることを述べている。 ^{83}Kr の基底状態(核スピン $9/2$)と励起状態(核スピン $7/2$)は電場勾配下でそれぞれ5重と4重に四極子分裂する。このためスペクトルが複雑になることが予想されるが、表面電場勾配の主軸を放射光の偏光と一致させることで、核共鳴の選択則から共鳴スペクトルの解析が容易になることを指摘している。

第3章は、実験結果である。

はじめに、第一の課題である光刺激脱離について、Au(100)表面でのXeに関する実験結果を述べている。まず、励起光強度が異なるときに測定した飛行時間スペクトルを示し、励起強度が強い場合には励起光の波長に依らず脱離が観測されるのに対して、励起強度が弱い場合には6.4eVでのみ脱離が生じることを示している。得られた飛行時間スペクトルから、脱離分子の並進温度と脱離強度を解析し、励起光強度依存性としてまとめている。1次元の熱拡散に基づく表面温度のシミュレーションから脱離分子の並進温度を計算し、実験結果と比較することで、励起光強度が強い領域では光誘起の熱脱離が生じていると結論している。また計算結果は、脱離分子の並進温度が励起光強度の増大に対して飽和傾向を示すこともよく再現している。続いてXeの被覆率を変化させたときの実験結果を示している。被覆率が増加するにつれて、飛行時間スペクトルのピーク位置がシフトし、スペクトルが修正マックスウェルボルツマン分布でよく表されることを示している。速度分布を特徴づける量として、分布の流速と並進温度を解析し、いずれも被覆率が5原子層で飽和傾向を示す

ことを明らかにしている。

次に第二の課題である核共鳴散乱について、 $^{83}\text{Kr}/\text{TiO}_2$ に対して行った実験結果を述べている。核共鳴散乱は、散乱の時間遅れ成分として観測される。入射光の波長を $\pm 50\text{meV}$ の範囲で掃引し、共鳴プロファイルを得ることに成功している。さらに共鳴成分強度をKr曝露量に対して測定することで、Krの表面への吸着確率を求めている。これらの結果をふまえて、膜厚が5原子層と1原子層の試料に対して、核共鳴時間スペクトルの測定を行っている。スペクトルから見かけの寿命を求め、いずれも自然寿命より短くなるダイナミカル効果が現れることを明らかにしている。

第4章では、実験結果に基づき考察を行っている。光刺激脱離について、励起光波長依存性の実験結果とXeの電子状態に基づき、初期電子励起状態として、基板金属からXeの電子親和準位への励起が生じていると議論している。続いて、吸着分子がイオン化したときの脱離機構として提唱されているAntoniewiczモデルに基づき、励起状態のポテンシャル上での原子ダイナミクスをシミュレーションし、実験結果を矛盾なく再現する励起状態の寿命として、15fsを導いている。孤立Xe原子の電子親和力が負であるにもかかわらず、吸着Xe原子の電子親和準位が安定化し長寿命となった要因として、鏡像力の影響と励起状態間の軌道混成効果を議論している。また、飛行時間スペクトルが被覆率依存性を示した要因として、脱離後の分子間衝突の効果を議論している。実験結果で得られた流速とマッハ数が、文献で報告されている理論計算とよい一致を示すことから、並進温度が飽和した5原子層で表面にはKnudsen層と呼ばれる熱平衡化層が形成されていると結論している。

続いて、核共鳴散乱について、実験で得られた時間スペクトルの解析を行っている。放射光の偏光と表面電場の主軸の関係を考察し、表面電場勾配強度を変化させて、共鳴スペクトルのシミュレーションを行っている。その結果に基づき実験の時間スペクトルと比較することで、有意な量子ビート構造は観測されていないと結論し、Krの吸着構造と表面電場勾配に関する議論を行っている。

第5章は本研究の結論であり、結果の要約とそこから得られた知見、今後の展望が述べられている。

以上を要約すると、本研究は、希ガス物理吸着層を対象とした光刺激脱離と核共鳴散乱の研究を、実験手法の開発をふまえて行ったもので、これらの成果は物理工学として顕著な寄与があったと評価できる。よって、本論文は博士（工学）の学位申請論文として合格と認められる。