

表面からのテイクオフ



若者

中西 寛*

唐突ではありますが、最近興味を持った実験を紹介しましょう。それは、光の定在波によって中性原子がブラッグ散乱されるというものです¹⁾。理論的には随分前から言われていたが、最近になって実現されるようになったようです。通常物質によるブラッグ散乱での結晶面の代わりに、光の定在波の腹を用いたとき、ブラッグ条件は、

$$n \lambda_{ab} = 2d \cdot \sin \theta \quad (n: \text{整数}) \quad (1)$$

となります。ここで、 λ_{ab} は原子のド・ブロイ波長 (h/P_0)、 θ は入射角、 d は光の波長の二分の一 ($\lambda_{light}/2$) です。一次散乱の場合の中性原子の運動量変化 ΔP は、

$$\begin{aligned} \Delta P &= 2P_0 \cdot \sin \theta = P_0 \lambda_{ab} / d \\ &= 2h / \lambda_{light} = 2\hbar k \end{aligned} \quad (2)$$

となり、ちょうど光子の運動量 ($\hbar k$) の2つ分を原子が受け取ったこととなります(図1左)。これは、入射した原子が吸収及び誘導放出によって光子を受渡し、計 $2\hbar k$ 分の運動量変化をすると理解されます(図1右)。ブラッグの条件から光量子が出てくるのは、考えてみれば当然ですが、この現象は物質が波で、光が粒子の役をしているすばらしいデモンストレーションとなっています。

遅れましたが、私は平成3年3月に博士後期課程を修了し4月1日付で助手に採用されました。博士課程での研究題目は「金属表面での原

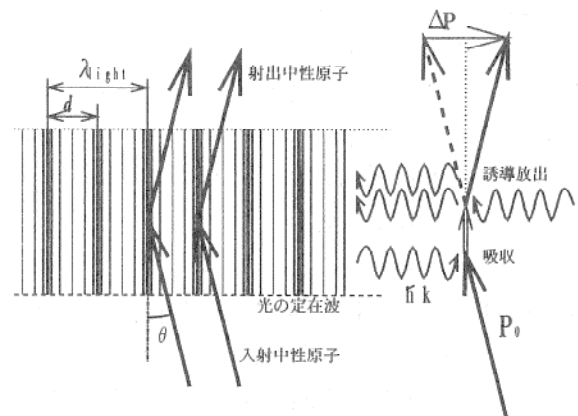


図1 光の定在波による中性原子のブラッグ散乱

子・イオン散乱における電荷交換とエネルギー散逸に関する理論的研究」でした。恩師の興地教授に勧められ、新しい研究テーマ探しを始めたのですが、慣れないせいもあって、仕事の時間配分がうまくいかず、4月以来半年過ぎても(原稿執筆時)まだ悪戦苦闘している毎日です。内容の方は、理論ですので比較的テーマ探しの自由度は大きいのですが、何事も自分の力量に合わせなければなりませんから、そう簡単にはいきません。文献検索も今は電算機により手軽に行えますが、「何を探すか。」までは探してはくれません。先のブラッグ散乱の実験は、そういったテーマ探しの中で目にとまったもの一つです。

博士課程での研究題目からも分かる通り、分野としては表面物性の範疇に入ります。表面物性は、実験においては、超高真空を維持できなければすぐ汚れてしまう再現性の良くない世界で実験研究者の方は大変苦労されています。ここには半導体デバイス発展の初期の時代との類似を見ることが出来ます。御存知のように真性半導体では不純物の混入はデバイスの特性を著しく変化させ、均一な特性を維持するのは困難



*Hiroshi NAKANISHI
1962年6月2日生
昭和61年大阪大学工学部応用物理学科卒業
現在、大阪大学工学部応用物理学科興地研究室、助手、工学博士、物性理論、TEL 06-877-5111

でした。しかし、この不純物の効果を逆にとり、不純物の量を制御することによって、今日様々な特性を有するデバイスを得ています。表面物性の世界でも超高真空技術、分子線エピタキシャル成長技術等の発展により、特定の表面構造をかなり再現性良く作り出し維持できるようになってきています。表面特有の不安定性を完全に制御下におければ半導体デバイスと同様の発展が期待されます。理論面においては、往往にして教科書に出て来るようなエレガントな手法は使えません。例えば、表面は2次元だから1次元減った分楽になりそうなものですが、実際は表面垂直方向の並進対称性が無くなったことにより自由度が増え、余計厄介になります。以上は静的な場合ですが、表面での動的過程を扱う場合には、更にしばしば断熱仮説が適用できず、通常のグリーン関数の便利な性質がほとんど使えない状況に遭遇します。特に私の場合、原子・イオンの動きによる金属表面の伝導電子における非断熱効果を問題にしようとするものでしたからなおさらです。どの分野もそうだと思いますが、最初からそうそうエレガントな方法論があるわけではなく煩雑極まりない方法で切り開かれて行くものだと思います。後から見直され、教科書に載るような賢い方法が見いだされるかどうかは別です。なんといたってもその時には導き出すべき答えを知っているのですから。

博士課程では、上記の動的問題を具体的に扱うモデルとして、一貫して「時間に依存するニューンズ・アンダーソンモデル」を用いてきました。そこでは、原子・イオン（後では単に粒子と呼ぶことにします。）の運動を、ある与えられた軌道に沿って古典的な運動をすらし（古典軌道近似）、電子系のハミルトニアンはその粒子の運動に伴い時間に依存する項を含むようになっています。このモデルは、その元になっているアンダーソンモデルの多体問題的側面²⁾をそのまま持っているのですが、ここでは粒子運動が誘起する非断熱効果の方に重点を置くことにします。このモデルを用いての結果を二つばかり紹介しましょう。図2は、バナジウム表面からスパッターされた酸素の陰イオン

化確率の仕事関数依存性を示しています³⁾。実験ではリチウムをバナジウム表面に吸着させることにより仕事関数を変化させています。粒子の運動エネルギーの増大に伴い、非断熱効果が

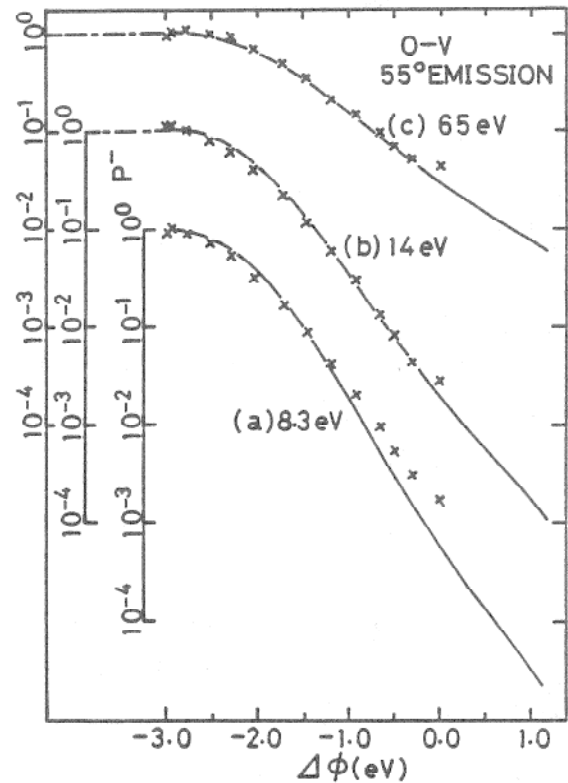


図2 バナジウム表面からスパッターされた酸素の陰イオン化確率の仕事関数依存性。スパッター粒子の運動エネルギーは、(a)8.3eV、(b)14eV、(c)65eVである。実線が計算結果³⁾、×印が実験結果である⁴⁾。

増大され、陰イオン化確率が増強されるわけですが、その傾向がうまく計算結果に再現されています。図3(a)は、中性原子を金属表面に入射させた場合の電子系の励起スペクトルのモデル計算結果です⁵⁾。(b)(c)は、それぞれ散乱後の粒子が中性原子のままか、陽イオンになるかによってスペクトル(a)を分解したものです。粒子の終状態が始状態と同じスペクトル(b)では、変化があるとすれば表面の電子系のみです。弾性散乱ピークAに加え、表面のフェルミ面近傍の電子正孔対励起によるピークBがスペクトルに現れています。中性原子が陽イオン化するスペクトル(c)では、陽イオン化に必要なエネルギー（計算では1.14eVにとってある）ま

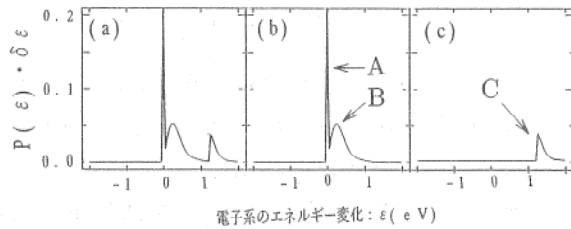


図3 中性原子を金属表面に入射させた場合の電子系の励起スペクトル⁵⁾。

ではスペクトルは現れず、陽イオン化のしきい値を越えたところからスペクトルが現れています(ピークC)。高エネルギー側にスペクトルが尾を引いていますが、これは陽イオン化に伴って表面の電子系が励起されていることを示しています。このように、粒子の終状態によってエネルギースペクトルを分解することにより、粒子と表面間の相互作用の様子をあからさまにすることができます。

表面での粒子の散乱過程では、粒子と表面間の電荷交換に伴って電子系のエネルギー変化がおこることを垣間見てきたわけですが、そのエネルギーの変化分は、電子系に摂動を与えた粒子の運動エネルギーからもたらされると考えられます。粒子の運動エネルギーがその変化に比べ十分大きい場合は、図2で見たように実験結果と半定量的に比較検討出来るほどに、古典軌道近似は十分良い近似になります。では、表面へ入射される粒子の運動エネルギーが極めて小さい場合はどうなるでしょう。粒子の古典軌道を、散乱軌道(始状態で表面から孤立していた粒子が表面に入射し、その後終状態で粒子が表面から再び離れ孤立する軌道)に取れば、運動エネルギーが小さい場合、非断熱効果は弱まり陽イオン化ピークは急激に減衰しますが、定性的には図3と同様のスペクトル形をとることになります。粒子の入射エネルギー以上の電子励起を引き起こした部分の粒子は表面から脱離できず吸着することになります。では、入射運動エネルギー以上の励起スペクトルの部分は、吸着確率を与えるのでしょうか。そう簡単にはいきません。吸着するとして、粒子の古典軌道を吸着軌道(始状態で表面から孤立していた粒子が表面に入射し、そのまま吸着する軌道)にと

れば、アンダーソンの直交定理によりスペクトルは、いわゆる赤外発散を示します⁶⁾。粒子の軌道を散乱軌道にとるか、吸着軌道にとるかによりエネルギースペクトルは定性的に異なるものになります。散乱軌道と吸着軌道に、なんらかの折合をつけなければ吸着確率は計算できません。折合をつける方法はいろいろ考えられますが⁷⁾、基本的には電子系の時間発展とともに粒子の時間発展も同様に扱うべきです。今のところ、金属のフェルミ面効果を取り入れたその類の計算は見あたりません。電子系の自由度が小さい場合の計算は、かなり多く見られます。例えば文献(8)では、粒子がイオン化した状態と中性化した場合の二つの電子状態のみを取扱っています。粒子の波動関数に試行関数としてガウス関数を使い、その中に含まれる変分パラメータの時間発展を求めるという方法を用いています。粒子の運動がいくつかの経路に分かれる場合には、この種の取扱いが必要となります。吸着確率を求める場合は、その一つの典型でしょう。この様な視点から見ますと粒子の軌道を量子力学で扱うべきであるというのは、ごく自然なものに思えますが、実験で実際に観測されている多くの吸着確率は、純粋な古典論の枠組み内にある可能性の方が強いと思われれます。すなわち、粒子の入射軌道及び表面原子の振動等に古典論的な意味でのばらつきがあるために、吸着・散乱過程に確率現象が生じていると思われれます。それでは、全く粒子の波動性は、表面吸着問題では有意では無いのでしょうか。紙の上では電子系と結合している粒子の運動は、いくつかの経路をとることになります。別々の経路をとる波は互いに必ずや干渉するはずですが。またフェルミ面を持つ電子系と結合するとどうなるのでしょうか。フェルミ面は微小励起を可能とするため経路は無数に生じることになるでしょう。その結果から実際に粒子の運動エネルギーの散逸を導き出せるのでしょうか。

粒子の波動性等の微妙な効果を見るには、表面の状態は、今のところ余りにも複雑すぎる感があります。もっとはっきりした条件のもとで、原子やイオン等の粒子の波動性を検討できる土台はないかと、捜していたところ冒頭で述べた

ような実験が電算機の検索に引っかかってきたのです。このブラッグ散乱の実験では、フェルミ面はなく、また一般に光による原子等の電子系の励起は粒子の運動に比べほぼ瞬間的に起こると考えられており、非断熱効果とからめた粒子の波動性は検討できないかもしれません。しかし常識は盲点を生んでる可能性があります。

「抽象的レベルの思考実験ばかりせず、実際の対象をきめて手を動かさない（計算する意）」という興地教授の助言に従って、はじめての次第です。模索中ですので半月後には全く別のことを考えているかも知れませんが、しばらくは慣れ親しんだ表面をはなれて、この線で検討してみようと考えています。願わくは、その順調な飛行と、その後の（表面物理への）ソフトランディングを期待して。

取り留めのない文をここまでお読みくださった方にお礼申し上げます。最後に本稿の執筆を勧めていただいた大阪大学工学部応用物理学科一岡芳樹教授に感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) P. J. Martin, B. G. Oldaker, A. H. Miklich and D. E. Pritchard, Phys. Rev. Lett. 60 (1988) 515.
- 2) 解説として、興地斐男, 固体物理 18 (1983) 59.
- 3) H. Kasai, H. Nakanishi, and A. Okiji, J. Phys. Soc. Jpn. 55 (1986) 3210.
- 4) M. L. Yu, Phys. Rev. Lett. 47 (1981) 1325.
- 5) H. Nakanishi, H. Kasai and A. Okiji, Surface Sci. 216 (1989) 249.
- 6) 解説として、例えば吉森昭夫「磁性理論の進歩」金森, 守谷編 (裳華房, 1984) P.188. 表面ではないが、関連して近藤淳 上記 P.213.
- 7) 異なるポテンシャルに対して折合をつけたものとして、例えば, J. Delos, W. Thorson and S. Knudson, Phys. Rev. A6 (1972) 709.
- 8) S. Sawada and H. Metiu, J. Chem. Phys. 84 (1986) 227.

