

論文内容の要旨

博士論文題目

Development of Total Analysis System For Low-dimensional Materials
低次元物質における，総合計測システムの開発

氏 名 高橋伸明

(論文内容の要旨)

角度分解光電子分光は物質のバンド分散を直接測定する手法である。バンド分散は物性の解明において最も重要であり、特にフェルミ面の測定は電荷密度波や超伝導など特異な現象のメカニズムの解明にとって必要不可欠である。

通常の実験装置はバンドを一度に狭い立体角でしか測定できないが、2次元光電子分析器(DIANA)は一度に広い立体角でバンド分散を測定することが可能である。そのため他の装置に比べ、非常に短時間で測定が可能である。さらに直線偏光やエネルギーが可変のシンクロトロン光を用いることにより、バンドを構成している原子軌道の解析や、3次元のフェルミ面マッピングなどが可能である。本論文では主に旧ビームラインシステムを用いた NbSe₂ の原子軌道解析、及び2次元分析器の改良を行った。以下にその詳細を示す。

本論文では直線偏光と旧ビームラインシステムを用いて NbSe₂ の価電子帯の原子軌道の解析を行った。NbSe₂ は遷移金属ジカルコゲナイドに属する擬2次元の層状物質である。そのバンドは2次元的であり、フェルミ準位に状態を持つ金属である。また 33.5K で電荷密度波(CDW)相転移を起こし、7.2K で超伝導状態になり、CDW と超伝導が混在する興味ある物質である。CDW の解析にはフェルミ面の形状が重要である。しかし、これまでフェルミ面のバンドの原子軌道を実験的に解析した例は無い。つまりどの原子軌道が CDW に寄与するかは直接測定されていなく、CDW と原子軌道の関係の議論もいまだ不十分である。そこで本論文ではフェルミ面を構成するバンドの原子軌道を実験的に解析し原子軌道の観点からフェルミ面上でのネスティングの起こりやすさを議論した。その結果、 Γ 点周りと K 点周りのバンドは異なった原子軌道で構成されていることがわかり、この2つのバンドによる、ネスティングによるエネルギーの利得は少ないことが推論された。

DIANA ではこれらのユニークな測定が可能である一方、エネルギー分解能、励起光の強度の問題により、表面電子状態などの測定は困難であった。表面電

電子状態が DIANA で測定可能になると、表面の膜厚依存性などの実空間での電子状態のマッピングが可能になる。これは薄膜、表面の電子状態の測定を飛躍的に短時間にする。しかし、旧ビームラインシステムではトータルエネルギー分解能が約 2%であった。表面電子状態の測定には 1%($h\nu=10\text{eV}$ の時、 $\Delta E=100\text{meV}$)以下の全エネルギー分解能が必要である。そこで本論文では分析器の改良を行った。同時に分光器の改良も立命館大学難波研究室により行われた。分光器は主にエネルギー範囲の低エネルギー化のために行われた。旧分析器はエネルギー分解能が 1%であった。そこで分析器の外球部分を最適化し、さらに電極を 151 本に増やし、高エネルギー分解能化、電位の安定、低リップル化を図った。その結果、分析器のエネルギー分解能は 1%から 0.09%まで向上し、全エネルギー分解能は約 2%から 1%以下まで向上した。

さらに電子銃を分析器内部に導入した。これにより測定している部分の電子状態のみならず結晶構造、構成元素を決定し、表面の詳細な情報を得ることが可能になった。

最後に新ビームラインシステムとグラファイトを用いた電子状態の実空間マッピングを行なった。分析器と分光器の改良によりエネルギー分解能は 2 倍向上し、光のスポットサイズは約 0.68mm に、測定時間は 5 分の 1 から 10 分の 1 に短縮された。その結果、詳細なバンド実空間マッピングが素早く測定可能になった。バンドの実空間マッピングは非常に重要である。なぜなら通常、試料表面の組成、結晶性は不均一である。よって物性の解明にはそれらの不均一性の中から良い場所を選んで測定する必要がある。さらに意図的に膜厚等が不均一な試料を作成することにより、その電子状態の膜厚依存性を飛躍的に短時間で測定することも可能である。本論文では多結晶グラファイトの電子状態及び元素分析の実空間マッピングの測定を行った。本論文の結果より、電子状態から結晶の配向性が解析できた。この手法は今後、表面電子状態の膜厚依存性の測定に応用することが可能である。

本研究室ではこれまでエネルギー方向へ走査した 3 次元のバンドマッピング、波数方向へ走査した 3 次元フェルミ面マッピングを行ってきた。今回の研究で新たに実空間方向を走査したバンドマッピングが可能になった。さらに電子銃の導入により結晶構造、元素分析も可能になった。トータルエネルギー分解能は 2%程度から 1%以下まで改善された。分光器側では励起光の低エネルギー化が行われた。よってここに、低次元物質における総合計測システムが完成した。

(論文審査結果の要旨)

角度分解光電子分光は物質の電子状態を直接測定する手法である。2次元光電子分析器(DIANA)は通常の装置と異なり、バンドを広い立体角で測定することが可能である。これにより、3次元のバンドマッピングやフェルミ面マッピングが可能である。さらに直線偏光とDIANAを用いて、バンドを構成する原子軌道を実験的に解析することも可能である。そこで本論文では、旧ビームラインシステムを用いて NbSe₂ のフェルミ面の原子軌道解析を行った。さらに、表面電子状態の膜厚依存性などの測定のため、分析器を新たに改良し、バンドの実空間マッピングを行った。以下にその主要な成果を示す。

1. 本論文では直線偏光と旧ビームラインシステムを用いて NbSe₂ のフェルミ面の原子軌道の解析を行った。NbSe₂ は遷移金属ジカルコゲナイドに属する擬2次元の層状物質である。そのバンドは2次的であり、フェルミ準位に状態を持つ金属である。また 33.5K で電荷密度波(CDW)相転移を起こし、7.2K で超伝導状態になり、CDW と超伝導が混在する興味ある物質である。本論文ではフェルミ面を構成するバンドの原子軌道を実験的に解析し原子軌道からフェルミ面上でのネスティングの起こりやすさを議論した。その結果、 Γ 点周りとK点周りのバンドは異なった原子軌道で構成されていることがわかり、この2つのバンドによる、ネスティングによるエネルギーの利得は少ないことが推定された。

2. DIANA ではこれらのユニークな測定が可能である一方、エネルギー分解能、励起光の強度の問題により、表面電子状態などの測定は困難であった。そこで本論文では高エネルギー分解能化に向け分析器の改良を行った。旧分析器はエネルギー分解能が1%であった。そこで分析器の外球部分を最適化し、高エネルギー分解能化、電位の安定、低リップル化を図った。その結果、分析器のエネルギー分解能は1%から0.09%まで向上し、全エネルギー分解能は約2%から1%以下まで向上した。

さらに電子銃を分析器内部に導入した。これにより結晶構造、構成元素を決定し、表面の詳細な情報を得ることが可能になった。

3. 分析器と分光器の改良によりエネルギー分解能は2倍向上し、光のスポットサイズは約0.68mmに、測定時間は5分の1から10分の1に短縮された。その結果、詳細なバンド実空間マッピングが素早く測定可能になった。本論文では多結晶グラフィットの電子状態及び元素分析の実空間マッピングの測定を行った。本論文の結果より、電子状態から結晶の配向性が解析できた。この手法は今後、表面電子状態の膜厚依存性の測定に応用することが可能である。

以上のように本論文ではDIANAを用いたNbSe₂原子軌道解析、及び分光器の改良を行った。これにより、結晶構造、電子状態、原子構造の実空間マッピングがその場で可能になった。さらに分析器、分光器の改良により、エネルギー分解能は約2%から1%以下まで向上した。これにより、今後、表面電子状態の膜厚依存性などの測定に応用することが期待される。これは表面科学における電子状態の詳細な測定のみならず、工学的に関心の高い次世代の新規機能性物質の設計に寄与することが期待され、基礎から応用までの幅広い分野で非常に価値の高いものである。よって審査員一同は、本論文が博士(理学)の学位論文として価値のあるものと認め、審査結果を合格とした。