

論文内容の要旨

博士論文題目 角運動量X線光電子回折による電子軌道角運動量の研究
及びその装置開発

氏 名 後藤 謙太郎

(論文内容の要旨)

物質の電子状態の解析は、これまで主に角度分解光電子分光でエネルギーバンド構造を測定することで行われてきた。その場合、エネルギーバンドの分散はわかるが、そのバンドを構成している電子の種類(原子軌道)を知ることはできなかった。本論文は、エネルギーバンドを構成している電子の原子軌道の新しい解析手法として、角運動量軟 X 線を用いて二次元光電子角度分布を測定し、原子軌道の磁気量子数を測定する手法の開発について研究したものである。論文は(1)円偏光二次元光電子回折法を用いた価電子帯の軌道角運動量解析、(2)新規光電子分析装置の開発、(3)軌道角運動量光の実証実験、の3部構成になっている。

(1) 円偏光二次元光電子回折法を用いた価電子帯の軌道角運動量解析

物質の価電子帯を構成している電子の原子軌道を解析する新しい手法を確立することを目的とし、SPring-8 BL25SUに設置してある二次元表示型球面鏡分析器(DIANA)を用いて円偏光軟X線励起二次元光電子放出角度分布(2D-PIAD)を測定した。2D-PIADには、励起原子と散乱原子を結ぶ方向に前方収束ピーク(FFP)が現れる。円偏光を励起光に用いた場合、角運動量保存則により FFP が回転シフトする。原子間距離が既知である場合、回転シフトを見積もることで軌道モーメントの有効磁気量子数 m^* を算出することができる。内殻と価電子帯の FFP シフトの比をとることで 2D-PIAD 中に含まれる多重散乱の影響を取り除き、原子軌道の角運動量を正確に求めることに成功した。この手法を用いて、Fe 単結晶の価電子帯(3d) と、1T-TaS₂ のそれぞれの元素、サイトの電子の原子軌道角運動量解析について研究した。

(2) 新規光電子分析装置の開発

円偏光軟 X 線励起二次元光電子放出角度分布の測定をこれまでよりも効率的に、顕微鏡機能を持って微小領域で測定でき、さらにエネルギー分解能の高い測定ができるようにすることを目的として、Display-type ellipsoidal mesh analyzer (DELMA)の開発を行った。 $\pm 45^\circ$ 以上の取り込み角で光電子を一度に取り込むことができるメッシュレンズ、拡大像を作るレンズシステム、および市販の高分解能のエネルギー分析器 VG SCIENTA R4000 が取り付けられており、微小領域の複雑な価電子帯でも解析できることが期待される。 $\#100$ メッシュの拡大像や高エネルギー分解能のスペクトル、角度分布の測定に成功し、所期性能が達成されたことが確認できた。

(3) 軌道角運動量光の実証実験

軌道角運動量光は、スピン角運動量を持つ円偏光と異なり、波面がらせん状になって軌道角運動量を持つ新しい光である。可視光領域ではレーザーを用いた実験が多く行われているが、軟 X 線領域の実験はほとんど行われていない。円偏光アンジュレータから発生される高調波の光は軌道角運動量(OAM) ($n=1,2, \dots$)を持つという理論的な予測があるため、2D-PIAD を用いて第二次高調波がどのような角運動量成分を持つのかを調べた。

SPring-8 BL25SU に設置されている円偏光アンジュレータの一次の円偏光と二次の高調波を用いて、Fe 3p 2D-PIAD の測定を行った。2D-PIAD 中に現れる FFP の回転シフト量より、円偏光では出てこないピークの観測に成功し、二次高調波に軌道角運動量光が含まれていることを示唆することに成功した。

上記のように、円偏光や軌道角運動量軟 X 線を用いた物質の電子状態の新しい解析手法の確立や、新しい二次元光電子分光装置の開発に成功したことは、今後の表面や物質の電子状態の研究に新境地を拓き、半導体デバイスなどの電子レベルでの性能向上に寄与すると期待される。

(論文審査結果の要旨)

本論文は、角運動量軟 X 線を用いた物質の電子状態の解析手法や新しい二次元光電子分光装置の開発について研究したものである。論文は (1) 円偏光二次元光電子回折法を用いた価電子帯の軌道角運動量解析、(2) 新規光電子分析装置の開発、(3) 軌道角運動量光の実証実験、の 3 部構成になっている。

(1) 円偏光二次元光電子回折法を用いた価電子帯の軌道角運動量解析

物質の価電子帯を構成している電子の原子軌道を解析する新しい手法を確立することを目的とし、SPring-8 BL25SU に設置してある二次元表示型球面鏡分析器(DIANA)を用いて円偏光軟 X 線励起二次元光電子放出角度分布(2D-PIAD)を測定した。2D-PIAD には、励起原子と散乱原子を結ぶ方向に前方収束ピーク(FFP)が現れる。円偏光を励起光に用いた場合、角運動量保存則により FFP が回転シフトする。原子間距離が既知である場合、回転シフトを見積もることで軌道モーメントの有効磁気量子数 m^* を算出することができる。内殻と価電子帯の FFP シフトの比をとることで 2D-PIAD 中に含まれる多重散乱の影響を取り除き、原子軌道の角運動量を正確に求めることに成功した。この手法を用いて、Fe 単結晶の価電子帯(3d) と、1T-TaS₂ のそれぞれの元素、サイトの電子の原子軌道角運動量解析について研究した。

(2) 新規光電子分析装置の開発

円偏光軟 X 線励起二次元光電子放出角度分布の測定をこれまでよりも効率的に、顕微鏡機能を持って微小領域で測定でき、さらにエネルギー分解能の高い測定ができるようにすることを目的として、Display-type ellipsoidal mesh analyzer (DELMA)の開発を行った。 $\pm 45^\circ$ 以上の取り込み角で光電子を一度に取り込むことができるメッシュレンズ、拡大像を作るレンズシステム、および市販の高分解能のエネルギー分析器 VG SCIENTA R4000 が取り付けられており、微小領域の複雑な価電子帯でも解析できることが期待される。#100 メッシュの拡大像や高エネルギー分解能のスペクトル、角度分布の測定に成功し、所期性能が達

成されたことが確認できた。

(3) 軌道角運動量光の実証実験

軌道角運動量光は、スピン角運動量を持つ円偏光と異なり、波面がらせん状になって軌道角運動量を持つ新しい光である。可視光領域ではレーザーを用いた実験が多く行われているが、軟 X 線領域の実験はほとんど行われていない。円偏光アンジュレータから発生される高調波の光は軌道角運動量(OAM) ($n = 1, 2, \dots$)を持つという理論的な予測があるため、2D-PIAD を用いて第二次高調波がどのような角運動量成分を持つのかを調べた。

SPring-8 BL25SU に設置されている円偏光アンジュレータの一次の円偏光と二次の高調波を用いて、Fe 3p 2D-PIAD の測定を行った。2D-PIAD 中に現れる FFP の回転シフト量より、円偏光では出てこないピークの観測に成功し、二次高調波に軌道角運動量光が含まれていることを示唆することに成功した。

上記のように、円偏光や軌道角運動量軟 X 線を用いた物質の電子状態の新しい解析手法の確立や、新しい二次元光電子分光装置の開発に成功したことは、今後の表面や物質の電子状態の研究に新境地を拓き、半導体デバイスなどの電子レベルでの性能向上に道を拓いた。

以上のように本論文では、物質の電子状態の詳細な解析に新しい可能性を示しており、学術的価値は高い。よって審査委員一同は、本論文は博士（理学）論文として価値あるものと認めた。