

A.2 波数変換公式の厳密化

A.2.1 波数変換の基本公式

角度 θ と運動エネルギー $E_K = h\nu - W - E_B$ をもつ光電子は以下の式によって波数変換することができる。

$$\left\{ \begin{array}{l} k_{\parallel} = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} \sin \theta \end{array} \right. \quad (\text{A.1})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} k_{\perp} = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E_K \cos^2 \theta + V_0} \end{array} \right. \quad (\text{A.2})$$

また、 $k_{\perp} = k_z$ とし、アナライザスリットと平行に k_x 軸をとった場合、マニピュレータを用いて k_y 軸を回転軸とする Tilt 角 (ϕ) マッピング測定時の波数変換公式は、 k_x 軸を回転軸とする Polar 角 (θ_0) を用いて

$$\left\{ \begin{array}{l} k_x = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} \sin(\theta - \theta_0) \\ k_y = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} \cos(\theta - \theta_0) \sin \phi \\ k_z = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} [E_K \cos^2(\theta - \theta_0) \cos^2 \phi + V_0]} \end{array} \right. \quad (\text{A.3})$$

となる [117]。

ここで、この波数変換公式 (A.3) は一般的に成り立つ公式ではなく、例えば以下の条件で正しい結果を与えない。

1. ϕ 回転軸が θ_0 回転に対して不変
2. ディフレクタマッピングを行う
3. 試料表面に傾斜が存在する

これは、 k_{\parallel} , k_{\perp} などの波数は試料表面によって定義されているのに対し、角度 θ はアナライザによって定義される値であることが原因である。そこで本節では、波数変換のプロセスを実験配置の考慮を含め再度検証し、式 (A.3) の適用できる実験配置の条件及びその他の実験配置に拡張可能な、より一般的な波数変換公式の導出を目的とする。

A.2.2 マニピュレータやディフレクタ付きアナライザを用いた角度分解光電子分光実験結果解析に用いる波数変換公式の厳密化

アナライザでは、角度 α 及び運動エネルギー E_K を検出する。 $(\theta$ はマニピュレータの回転角として利用するため、以降アナライザの検出角に α を用いる。) ここで、試料表面がアナライザに正対している場合に限り、 α と光電子放出角度を同じ変数として扱うことができる。ここでは、波数変換を以下の3つの過程に分けて考える。

過程1 極座標変換

アナライザから出力される入射電子の検出角度情報をデカルト座標で表す。このとき、デカルト座標はアナライザに固定された座標系で表される。

過程 2 座標系の回転

アナライザに固定されたデカルト座標系で表された電子の向きの情報を、試料表面に固定された座標系に変換する。マニピュレータの回転は全てこの過程で考慮する。

過程 3 面内運動量保存則の適用と内部ポテンシャルの導入

試料表面の座標系で表された光電子の向きと、アナライザで検出された運動エネルギーより、面内方向の運動量保存則と終状態の自由電子近似による内部ポテンシャルを導入し、固体内部での波数を求める。

まず、過程 1 の極座標変換について説明する。アナライザに角度 (α, β) を持って進入した光電子が (α, β) として出力されたとする。ディフレッタ付きアナライザも考慮するために、3 次元空間内の光電子の進む向きを 2 つの角度変数によって表している。ここで、 e_z^A がアナライザレンズの中心を向き、 e_x^A がアナライザスリットと平行となるような定義のデカルト座標系 $e^A = (e_x^A, e_y^A, e_z^A)$ を定義する [図 A.9(a)]。過程 1 では、 (α, β) と (e_x^A, e_y^A, e_z^A) を結ぶ変換式を求めたい。3 次元空間における極座標変換は、代表的なものとして図 A.7(a) のように表される “Tilt-angular notation” が挙げられる。この極座標変換では、

$$\begin{cases} e_x^A = \sin \alpha \\ e_y^A = \cos \alpha \sin \beta \\ e_z^A = \cos \alpha \cos \beta \end{cases} \quad (\text{A.4})$$

の関係式が成り立ち、これは従来の Tilt 角マッピングの波数変換で用いられる極座標表記である [式 (A.3)]。一方で、ディフレッタ付きアナライザでは、“Polar-angular notation” と呼ばれる図 A.7(c) で表されるような極座標が取られている [118]。このとき、角度 Ω, Ξ を用いて

$$\begin{cases} e_x^A = \sin \Omega \cos \Xi \\ e_y^A = \sin \Omega \sin \Xi \\ e_z^A = \cos \Omega \end{cases} \quad (\text{A.5})$$

と表される。ここで、図 A.7(d) のように α, β をとると、

$$\begin{cases} \Omega = \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \\ \cos \Xi = \frac{\alpha}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \\ \sin \Xi = \frac{\beta}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \end{cases} \quad (\text{A.6})$$

となるため、式 (A.5) は

$$\begin{cases} e_x^A = \frac{\alpha}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \sin \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \\ e_y^A = \frac{\beta}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \sin \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \\ e_z^A = \cos \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

となる。ここで、式 (A.4) と式 (A.7) は $\beta = 0^\circ$ のとき同じ形になり、式 (A.7) が妥当であることが確かめられる。

次に、過程 2 について説明する。過程 1 で、アナライザで検出された光電子の運動方向成分を抽出したが、これはアナライザによって定義された基底をとっている。過程 3 で運動量保存則を考えるためには、これを試

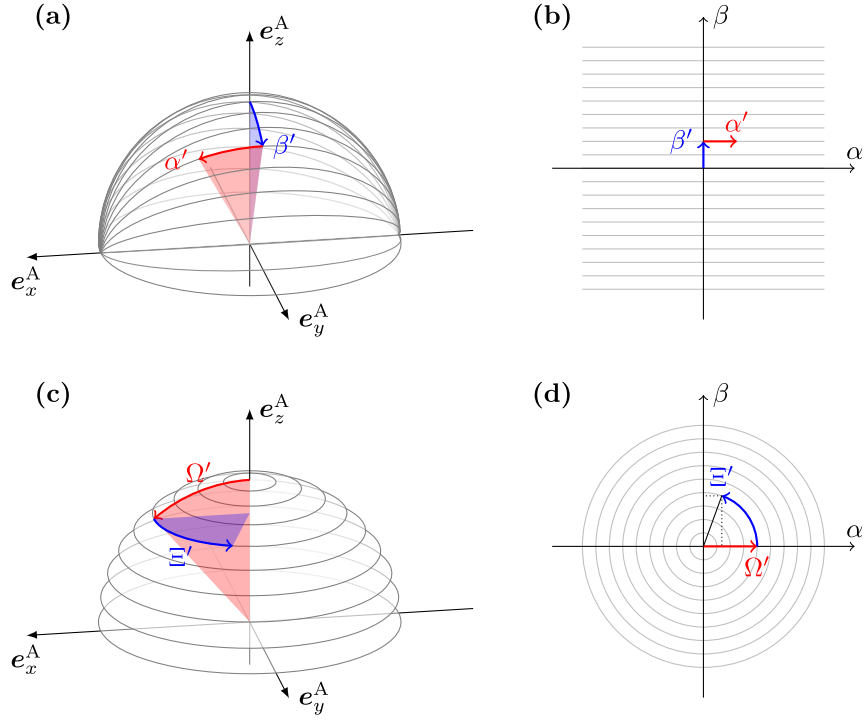


図 A.7: (a, b) Tilt-angular notation による極座標表記 (c, d) Polar-angular notation による極座標表記 (文献 [118] の Fig. 5 を改変)

料表面によって定義された基底、つまり x, y 方向が試料面内方向で z 方向が試料面直方向となるように表さなければならない。劈開やサンプルホルダの形状によっては、試料表面がマニピュレータのサンプルレセプターと平行にならない場合がある。従来、このズレはアナライザのスリット中央に面直放出の強い光電子強度が来ることで解消していた。これは Polar 回転や Tilt 回転にオフセットをつけて試料の回転方向のズレを補正していることを意味しているが、これが厳密に正しい結果を与えるかどうか、正しい結果を与えない場合どの程度の誤差が生じるのかは不明である。そこで、よく用いられる 6 軸マニピュレータ [74] で可動する回転軸 (Polar 回転、Tilt 回転、Azimuth 回転) だけでなく、マニピュレータに対する試料表面の傾き、アナライザとマニピュレータの位置関係を考慮できる回転行列を考える。以下では、Polar 回転、Tilt 回転、Azimuth 回転をそれぞれ θ, ϕ, ξ の文字で表す。また、これらとは独立にマニピュレータと試料表面の角度のズレを考慮する変数 θ_0, ϕ_0, ξ_0 を用意した。 $\theta = \theta_0, \phi = \phi_0, \xi = \xi_0$ になるとき、試料表面がアナライザに正対するように定義する。また、文献 [117, 118] で指摘されているように、マニピュレータ自体の回転軸がアナライザのスリットと平行か直交するかで、マッピング測定の際に通る k -path は異なる。これも、マニピュレータの軸方向とアナライザのスリット方向の位置関係を角度で表す新たな変数 (Θ) を用いることで考慮する。

e_x^A, e_y^A, e_z^A を軸として χ 回転する回転行列をそれぞれ、 $R_x(\chi), R_y(\chi), R_z(\chi)$ と表す。回転方向は全て右ねじで定義する。回転の無いときの Polar 回転軸を $-e_y^A$ 、Tilt 回転軸を e_x^A 、Azimuth 回転軸を $-e_z^A$ とすると、マニピュレータの回転のみ考えた場合の回転行列 M'' は

$$M'' = R_y(-\theta)R_x(\phi)R_z(-\xi) \quad (\text{A.8})$$

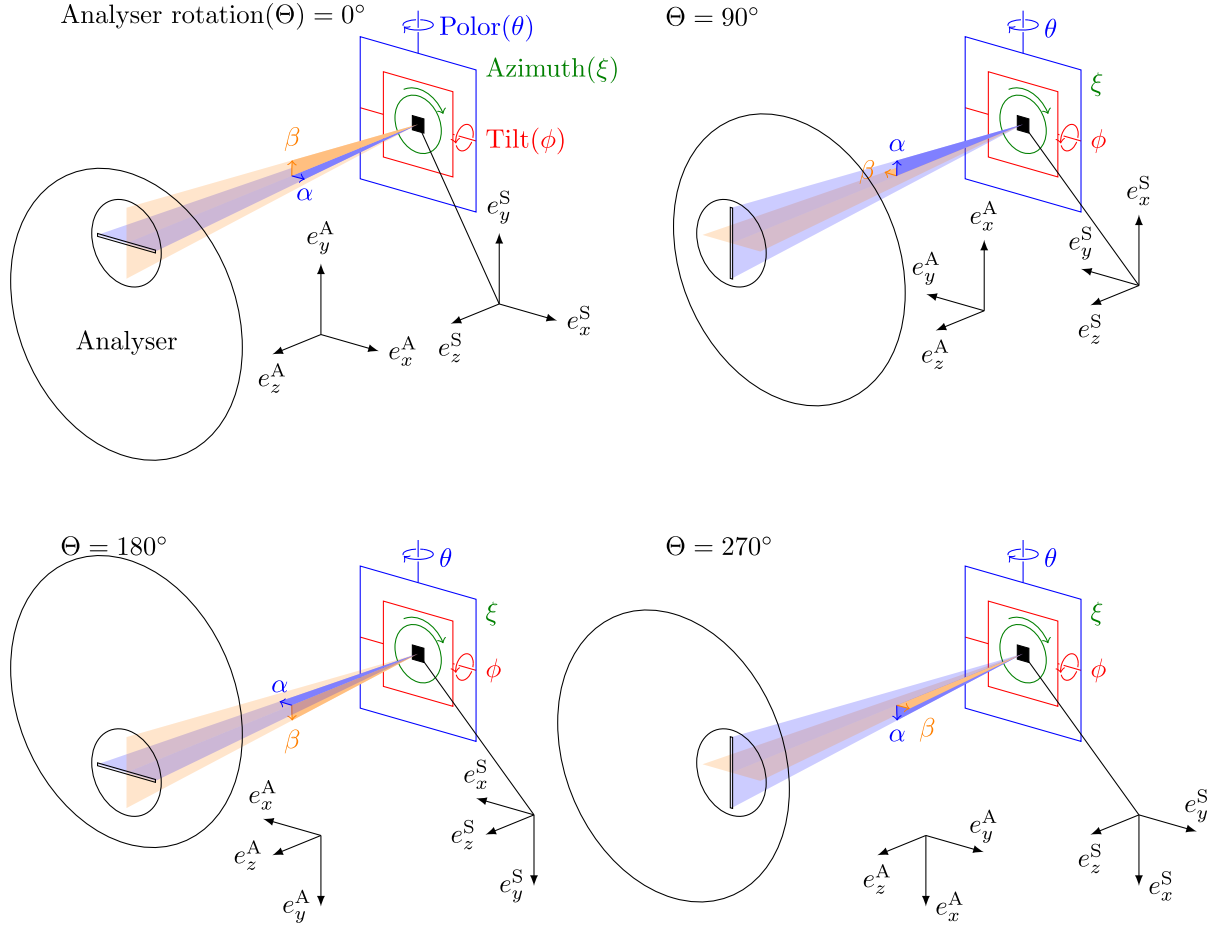


図 A.8: 種々の Θ に対応する実験配置と座標系の定義

となる。次に、試料表面の傾きを考慮すると、回転行列 M' は以下ようになる。

$$M' = R_y(-\theta)R_x(\phi)R_z[-(\xi - \xi_0)]R_x(-\phi_0)R_y(\theta_0) \quad (\text{A.9})$$

最後に、アナライザとマニピュレータの回転 Θ を考慮すれば、最終的な回転行列 M は

$$M = R_z(-\Theta)R_y(-\theta)R_x(\phi)R_z[-(\xi - \xi_0)]R_x(-\phi_0)R_y(\theta_0)R_z(\Theta) \quad (\text{A.10})$$

となる。ここで、回転行列は $e^A = Me^S$ となるように定義している。逆向きに定義すると、回転があるときの Tilt 回転軸、Azimuth 回転軸などを考慮する事になり、計算が非常に煩雑になる。今回、 Θ の値に関係なく $\theta = \theta_0$, $\phi = \phi_0$, $\xi = \xi_0$ のときに e_x^S がスリットと平行になるように定義しているため、補正行列 $R_z(\Theta)$ が必要となる。

最後の、過程 3 はこれまでよく議論されてきた面内方向の運動量保存則と内部ポテンシャルの導入である。

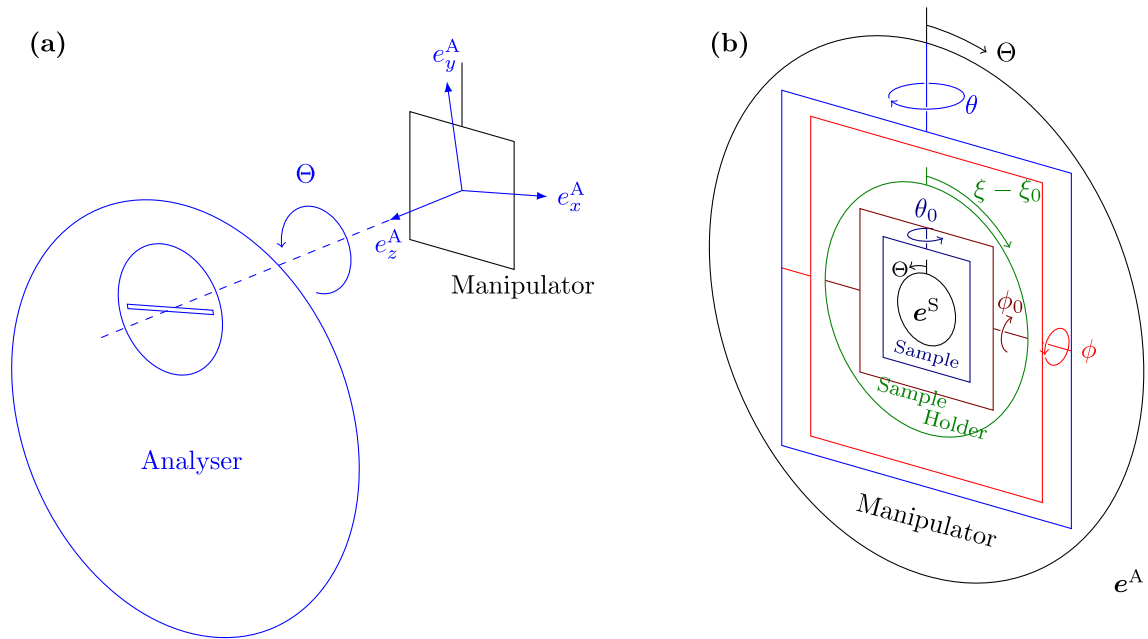


図 A.9: (a) 座標系 (e_x^A, e_y^A, e_z^A) の定義 (b) 式 (A.10) の回転行列を表した模式図

これは、試料表面に固定された座標系 (e_x^S, e_y^S, e_z^S) を用いて

$$\begin{cases} k_x = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} e_x^S \\ k_y = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} e_y^S \\ k_z = \sqrt{\frac{2m}{\hbar} [E_K(e_z^S)^2 + V_0]} \end{cases} \quad (\text{A.11})$$

となるが、 e_x^S, e_y^S, e_z^S にそれぞれ式 (A.4) の e_x^A, e_y^A, e_z^A を代入すれば、いつもの変換公式 (A.3) が姿を表すことが分かる。

以上をまとめると、波数変換公式は式 (A.12) のように表される。

厳密化された波数変換公式

$$\begin{cases} k_x = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} e_x \\ k_y = \frac{\sqrt{2mE_K}}{\hbar} e_y \\ k_z = \sqrt{\frac{2m}{\hbar}} (E_K e_z^2 + V_0) \end{cases} \quad (\text{A.12})$$

ここで、

$$\left\{ \begin{pmatrix} e_x \\ e_y \\ e_z \end{pmatrix} = M^{-1} \begin{pmatrix} \frac{\alpha}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \sin \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \\ \frac{\beta}{\sqrt{\alpha^2 + \beta^2}} \sin \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \\ \cos \sqrt{\alpha^2 + \beta^2} \end{pmatrix} \right. \quad (\text{A.13})$$

$$\begin{aligned} M &= \begin{pmatrix} \cos \Theta & \sin \Theta & 0 \\ -\sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta & 0 & -\sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi & -\sin \phi \\ 0 & \sin \phi & \cos \phi \end{pmatrix} \\ &\cdot \begin{pmatrix} \cos(\xi - \xi_0) & \sin(\xi - \xi_0) & 0 \\ -\sin(\xi - \xi_0) & \cos(\xi - \xi_0) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi_0 & \sin \phi_0 \\ 0 & -\sin \phi_0 & \cos \phi_0 \end{pmatrix} \\ &\cdot \begin{pmatrix} \cos \theta_0 & 0 & \sin \theta_0 \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \theta_0 & 0 & \cos \theta_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \Theta & -\sin \Theta & 0 \\ \sin \Theta & \cos \Theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

となる。

A.2.3 厳密化された波数変換公式の考察

本節では、ここまで求められた波数変換公式の妥当性及び性質を検証するために、igor を用いたシミュレーションを行う。シミュレーションに用いた igor マクロは GitHub 上にアップしている [119]。

まず、ディフレクター無しアナライザにおいて、等エネルギーマッピング測定を行った場合の k -path のシミュレーション結果について議論する。HiSOR の ARPES ビームラインで採用されている $\Theta = 0^\circ, 180^\circ$ の場合（文献 [118] での “Type II”）と、 $\Theta = 90^\circ, 270^\circ$ の場合（文献 [118] での “Type I”）、それぞれ ϕ, θ を走査することで等エネルギーマッピング測定が可能である。ここで、 $\Theta = 0^\circ$ と $\Theta = 180^\circ$ の違いは、単に出力の k_x や k_y の符号にのみ影響し、 k -path の形状には影響しない。今回は、Type I 配置を代表して $\Theta = 90^\circ$ 、Type II 配置を代表して $\Theta = 0^\circ$ としてシミュレーションを行った。 E_K は波数の絶対値に寄与するが、今回

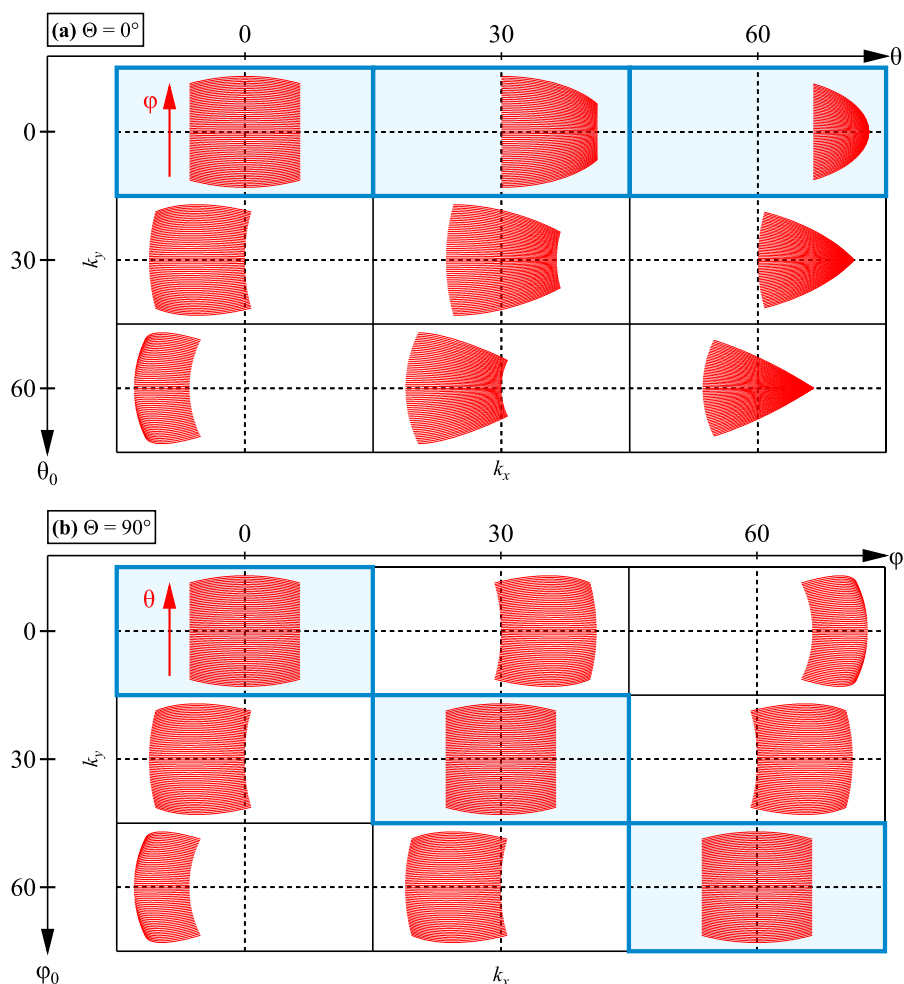


図 A.10: (a) マニピュレータ回転による等エネルギーマッピング測定を行った際の k -path の軌跡のスリット方向のマニピュレータ角 θ 及び試料傾斜角 θ_0 依存性。 $k_x = 0 \text{ \AA}^{-1}$ 及び $k_y = 0 \text{ \AA}^{-1}$ を破線で示している。 $(\Theta = 0^\circ)$ (b) $\Theta = 90^\circ$ の条件での図。ただし、スリット方向角度は ϕ, ϕ_0 となる。従来の波数変換公式が適用可能な条件を青枠で示している。

のシミュレーションでは k -path の軌跡の形状のみに注目するため、値に意味はない。また、今回は k_z に関して表示していないため、 V_0 は寄与しない。全てのシミュレーションは $\xi = \xi_0 = 0^\circ$ としている。

図 A.10(a) に HiSOR でよく用いられている Type II 配置でのシミュレーション結果を示す。図は 9 つのパネルから構成されており、それぞれ横軸が k_x 、縦軸が k_y となっている。赤線は一度の測定で検出される k -path を示しており、 ϕ を変化させることに伴う k -path の変化の軌跡が表示されている。アナライザスリットの角度検出範囲は $-30^\circ \leq \alpha \leq 30^\circ$ とし、測定中に動かす軸 (ϕ) は -30° から $+30^\circ$ まで 1° ステップで走査すると仮定した。9 つのパネルは横軸が実際のマニピュレータ角 θ 、縦軸が試料傾斜角 θ_0 となるように並んでいる。今回のシミュレーションでは、様々な実験条件での k -path 形状の違いを明確に表すため、アナライザスリットの検出範囲は大きめに設定し、試料傾斜角も実際に起こりうる値よりも大きな値を仮定している。まず、 θ, θ_0 を変化させると k -path の軌跡が連続的に変化していることが分かる。また、 $\theta_0 = 0^\circ$ の条件でのシミュレーション結果は、 θ の値に関わらず従来の波数変換公式を用いてシミュレーションしたものと同一結果が得られている。一方で、 $\theta_0 > 0^\circ$ の領域では k -path の軌跡の形状が変化し、従来の波数変換公式では再現できない。以上より、 $\Theta = 0^\circ, 180^\circ$ (Type II) の実験配置において、試料傾斜が無いとき ($\theta_0 = 0^\circ$ のとき) に限り従来の波数変換公式が適用可能であり、その条件であれば θ を変化させた広範囲マッピング測定結果の解析も可能であることが分かる。

次に、Type I 配置でのシミュレーション結果を図 A.10(b) に示す。この配置では θ, θ_0 と ϕ, ϕ_0 が入れ変わり、 θ を走査することによるマッピング測定となる。まず、Type II 配置でのシミュレーション結果とは k -path 軌跡の形状が大きく異なっている。特に、 $\phi = \phi_0$ の条件が成り立てば形状は変化せず、試料傾斜があっても試料表面をアナライザに正対させれば従来の波数変換公式が厳密に適用可能であることが分かる。一方で、 $\phi_0 = 0^\circ$ の条件で ϕ を変化させたときの形状は従来の波数変換公式で再現できない形となっている。以上より、 $\Theta = 90^\circ, 270^\circ$ (Type I) の実験配置において、試料表面がアナライザに正対すれば試料傾斜があっても従来の波数変換公式が適用可能だが、 $\phi \neq \phi_0$ となる広範囲マッピング測定結果の解析は従来の変換公式 (A.3) では解析できないことが分かる。

次に、ディフレッタを用いて等エネルギーマッピング測定を行った場合の、 k -path のシミュレーション結果について議論する。ディフレッタマッピングの際はマニピュレータは回転しないため、試料表面のアナライザに対する角度のみが結果に寄与すると考えられる。そこで、 $\theta_0 = \phi_0 = 0^\circ$ としてシミュレーションを行った。また、ディフレッタ角 β とマニピュレータの軸は独立であるため、マニピュレータの 2 つの回転

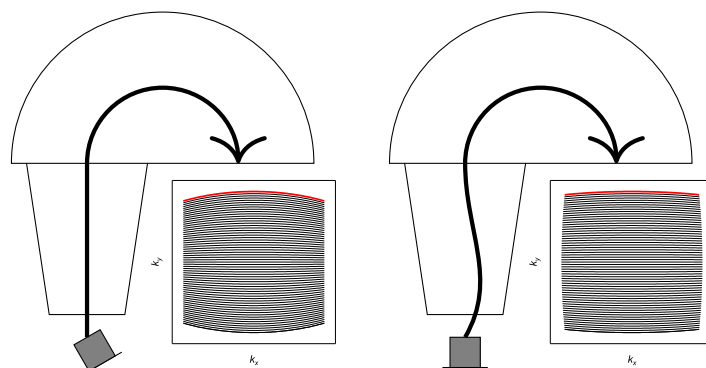


図 A.11: マニピュレータ (左) 及びディフレッタ (右) を用いた場合の等エネルギーマッピング測定を行った場合の k -path

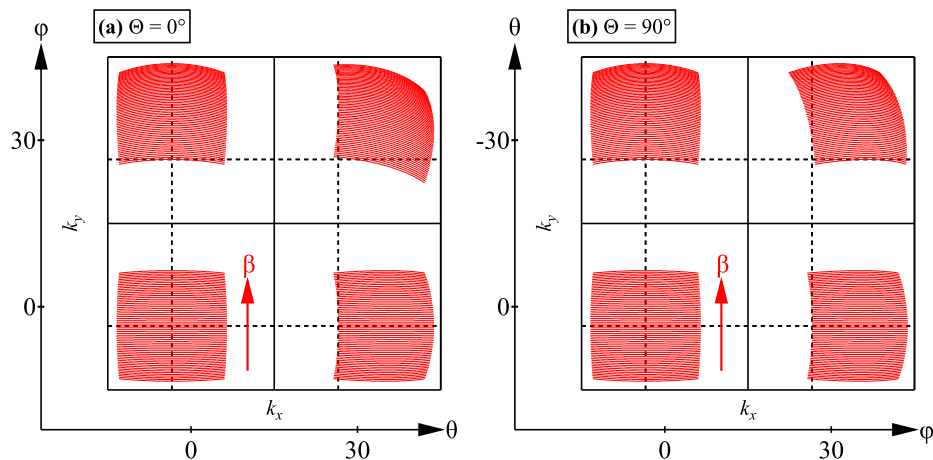


図 A.12: (a) ディフレクターによる等エネルギーマッピング測定を行った際の k -path の軌跡のマニピュレーター角 θ , ϕ 依存性。 $k_x = 0 \text{ \AA}^{-1}$ 及び $k_y = 0 \text{ \AA}^{-1}$ を破線で示している。 ($\Theta = 0^\circ$) (b) $\Theta = 90^\circ$ の条件での図。

軸 θ, ϕ に対する k -path の軌跡の変化を調べることにする。図 A.12 にシミュレーション結果を示す。まず、 $\Theta = 0^\circ$ と $\Theta = 90^\circ$ のどちらも $\theta = \phi = 0^\circ$ の条件では同じ結果が得られているが、これらはマニピュレータを用いたマッピング測定 (図 A.10) の $\theta = \theta_0 = 0^\circ$ のシミュレーション結果とは異なる (図 A.11)。これは、図 A.10 では $\beta = 0^\circ$ とし、回転行列 M が変化した結果、全体として Tilt-angular notation で表される従来の波数変換公式 (A.3) に従っているのに対し、ディフレクターを用いると回転行列 M は変化せず β の変化による Polar-angular notation に従っていることが要因である。ディフレクターを用いた際に従来の変換公式 (A.3) が適用できないことは、文献 [118] でも述べられている。

A.2.4 まとめ

実験装置の構造、配置を直接考慮し、試料表面の傾きも考慮した波数変換公式をまとめた。従来の波数変換公式、文献 [118] の波数変換公式、今回の波数変換公式の特徴を表 A.3 にまとめる。

表 A.3: 種々の波数変換公式の比較

	実験配置の考慮	広範囲マッピング測定解析	DA 測定解析	試料傾斜の考慮
従来の変換公式 (A.3)	無し	Type II のみ可能	不可能	不可能
文献 [118]	有り	可能	可能	不可能
本研究	有り	可能	可能	可能