

氏 名	佐々木 友彰	
学 位 の 種 類	博 士 (理 学)	
学 位 記 番 号	博 甲 第 8938 号	
学 位 授 与 年 月 日	平成 31年 3月 25日	
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当	
審 査 研 究 科	数理物質科学研究科	
学 位 論 文 題 目	Accurate structure of aluminum and molybdenum using synchrotron powder X-ray diffraction (放射光粉末回折によるアルミニウムとモリブデンの精密構造)	
主 査	筑波大学教授	博士(理学) 守友 浩
副 査	筑波大学教授	博士(工学) 西堀 英治
副 査	筑波大学教授	博士(理学) 神田 晶申
副 査	筑波大学教授	博士(理学) 岡田 晋

論 文 の 要 旨

本博士論文は、金属の機械的特性の量子力学的理解のための金属結合電子雲の精密計測を目的とした実験的研究をアルミニウムとモリブデンについて行っている。金属の電気伝導などの電子物性は量子力学に基礎を置く金属電子論で良く理解される。一方、ヤング率などの機械的特性を量子力学的手法から解明することは未解決の課題である。この解明には、金属中の価電子の自由電子ガスモデルからの僅かな電子状態のずれを観測する必要がある、実験的な観測は極めて困難であるとされてきた。

本論文では、電子分布の観測法として放射光粉末 X 線回折法を選択し、精密計測を阻害する複数の要因を検討しその低減と除去を実験的に行っている。X 線結晶構造因子観測の精度を低下させる Bragg 散乱への熱散漫散乱強度の混入については、温度変化測定データのシミュレーションを用いた混入量の評価により、統計精度の範囲内で混入がないと見なせる温度を決定し、実験データから取り除くことに成功している。また、X 線を照射された試料自体が X 線源となる金属の X 線回折の蛍光 X 線の問題についても、吸収端波長の僅かに異なる2種類の金属箔を利用する方法を独自開発し、試料からの X 線と遮蔽のための1枚目の金属箔に照射された試料の Bragg 散乱が作り出す2次的な蛍光 X 線の両者を効果的に取り除き、データのバックグラウンドへの蛍光 X 線の混入を 1/10 以下にすることに成功している。

測定したアルミニウムの X 線結晶構造因子について、これまで唯一の自由電子ガスモデルからずれの実験的観測結果である収束電子回折法との比較、フルポテンシャルの補強された平面波近似(FLAPW)による電子状態計算結果との比較および多極子展開法による電子密度解析により目的とする自由電子ガスモデルからの僅かなずれの観測が放射光粉末 X 線回折から達成可能なことを立証している。加えて、

過去の実験的、理論的研究と自身の研究の比較からアルミニウムなどの単体金属の自由電子ガスモデルからの僅かなずれを観測するために必要な精度は低次の構造因子で誤差 0.3%であることを見積もっている。

次に、実験観測例のないモリブデンについて、アルミニウムと同等の精度である低次の構造因子で誤差 0.3%を有する X 線結晶構造因子を観測し、電子密度解析により 4d 軌道の混成の観測に成功している。以前に報告された計算結果との比較から、X 線結晶構造因子と解析結果の電子密度分布が自由電子ガスモデルからの僅かな電子状態のずれを検出できていることを立証している。

以上のように、これまでアルミニウムを対象とした収束電子回折法の1例のみでしか実現されていなかった誤差 0.3%の結晶構造因子測定を2種類の金属について収束電子回折法以上の精度で達成している。この精度の構造因子によって自由電子ガスモデルからの僅かなずれを検証できることもアルミニウムとモリブデンの2種類の金属で示しており、近年、理論研究で進められる電子密度分布と機械的特性の相関の研究に実験的からの知見を与えられることを示している。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本研究は、アルミニウムとモリブデンの単体金属について、大型放射光施設 SPring-8 を利用した放射光粉末法により、自由電子ガスモデルからのズレを示す電子の集積や化学結合を明らかにしたものである。その過程において、先行研究との比較や、理論計算との比較から低次の反射で誤差 0.3%以下が必要なことを見出し、実際のデータ測定でその精度を実現したことは高く評価できる。

アルミニウムの研究では、回折データを熱散漫散乱、非調和熱振動、歪の評価の方法について詳細が報告され、電子密度研究に至る過程が述べられている。測定した構造因子の評価についても、唯一の成功例となる収束電子回折の結果との比較だけでなく、他の 10 例におよぶ X 線回折等の研究とも比較し、電子密度の集積を観測するために必要となる低次の構造因子精度が 0.3%となることを示した点は高く評価される。また、観測値と FLAPW による計算構造因子との比較からアルミニウムに原子軌道的な電子が残っていることを示している。精密な実験に基づき、低次の構造因子精度 0.3%で、反射数としてこれまでの研究の 10 倍以上の 200 本以上の構造因子を計測し、電子密度解析を実現させた点は高く評価される。事実、この研究成果は Sci. Rep. 誌に掲載されている。

モリブデンの研究では、X 線源としても利用されるモリブデンの強い蛍光 X 線の回折データへの混入を独自の近傍に吸収端を有する Cu、Ni の2種類の金属箔の組み合わせにより 10%以下に除去し、低次の構造因子精度 0.3%以下の精密な構造因子の測定に成功したことは評価される。この構造因子を電子密度解析することでこれまでに理論的な予測しか存在しなかったモリブデンの 4d電子の混成軌道による電子密度の自由電子ガスからの変調を始めて実験的に解明したことは評価される。事実、これらの成果を平成 30 年度日本結晶学会年会にて報告し、学生ポスター賞を受賞している。

〔最終試験結果〕

平成31年2月19日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、

著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。