

ARPES 顕微鏡のノウハウを公開

[1] 要旨

光電子運動量顕微鏡 (photoelectron momentum microscope) は不均一試料の微小部分を拡大する顕微観察(microscope)と試料の物性を決定づける電子のふるまい(運動量 momentum)の可視化を同一装置で実現する。分子科学研究所の研究グループは本装置で初めて可能になる運動量選択光電子顕微法を開発し、グラファイトの褶曲によって出現する数 μm 幅のファセット構造を可視化し、その局所価電子帯分散を測定してみせた。本手法は微小結晶試料表面やナノデバイスの顕微電子状態解析を実現する点で、ナノ材料科学・量子デバイス工学の強力な基盤技術となると期待される。

[2] 本文

角度分解光電子分光 (angle resolved photoelectron spectroscopy, ARPES) は光照射によって試料内部から飛び出す光電子の角度分布 (運動量空間分布) から、試料の原子・電子構造を解明する定石的な研究手法である。近年、物性を司る原子構造や価電子の振る舞いをマイクロ・ナノの視点で明らかにしたい、という物質科学・材料開発の共通の要請を背景に、高分解能分光計測と顕微イメージングの融合がトレンドになっている。集束 X 線と試料位置の走査機構を組み合わせると、微小結晶試料表面やナノデバイスの局所電子状態解析が可能になる。図 1 に示すように、国内外での放射光施設では、Fresnel zone plate や Kirkpatrick-Baez ミラーを高度化した新たな集束光学系が開発され、空間分解能数 100 nm の nano ARPES 測定が実現されている。この方式では、すでに確立している高エネルギー分解能の半球偏向型電子分析器 (hemispherical deflection analyzer, HDA) を用いることができる、という利点があるが、化合物材料や有機分子膜などの多くの試料は、このような強力な集束 X 線照射によって測定中に容易に劣化してしまう、という難点があった。

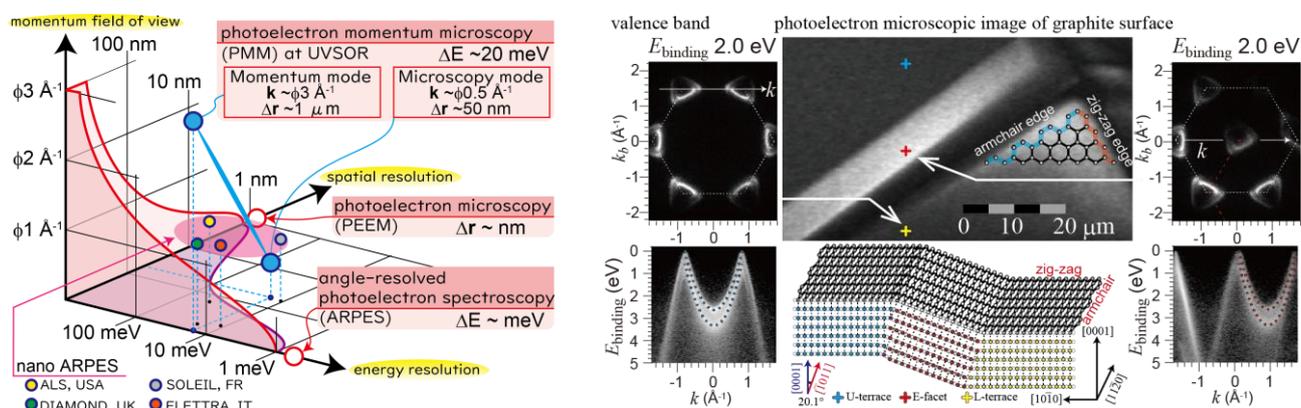
他方、投影型エネルギー分析による顕微光電子測定は走査を必要とせず、短時間で観測できるので、この放射線損傷問題の回避に有効である。光電子顕微鏡 (photoelectron emission microscope, PEEM) は陰極レンズを用いて光電子を取り込み、光照射範囲の実空間像をスクリーン上に拡大投影する装置で、数 nm の空間分解能を有するものも登場している。電子レンズ系の電位を切り替えることで、スクリーンには同じ観察個所の運動量空間分布が投影される。励起源を電子とした低エネルギー電子顕微鏡 (low energy electron microscope, LEEM) では、運動量空間で電子回折スポットを選択し、特定のドメインの空間分布を可視化する暗視野像法 (dark field imaging) という技術が開発された。しかし、PEEM では運動量空間の投影範囲とエネルギー分解能の両立は難しく、ARPES 測定は不向きとされてきた。その中で光電子運動量顕微鏡 (photoelectron momentum microscope, PMM) は、PEEM が苦手としていた運動量空間の投影範囲やエネルギー分解能を大幅に改善し、微小領域の ARPES 測定に資する新たな装置としてドイツで誕生し、注目を集めている。現在、放射光やレーザーなど先端の光源特性を生かした PMM 開発が世界各地で展開されている。

日本では分子科学研究所の極端紫外光研究施設 UVSOR の軟 X 線ビームライン BL6U に PMM が設置され、共鳴光電子分光や分子軌道トモグラフィーなどの独自の研究が展開されている。最近、UVSOR 職員らの手で、LEEM の暗視野像法を PMM に応用し、顕微 ARPES 測定の新展開となる**運動量選択光電子顕微法**が確立された。その具体的なノウハウが、JPSJ の 2022 年 9 月号に掲載された。

図 2 は PMM によるグラファイト劈開表面の局所電子構造の測定例である。価電子帯分散の形状

から局所領域の結晶の方位や層間距離が特定できる。六角形の単結晶グラファイト片を光学顕微鏡で覗くと、端部に垂直な線が無数に観察されるが、顕微 ARPES によりそうした「線」は、アームチェア結合方向に沿った褶曲により生じたファセット構造であることが分かった。グラファイトの価電子帯の π 分散は Brillouin 域で鞍点となる M 対称点で最も強度が強くなる。それぞれの領域の M 方向の光電子強度を選別的に測定することで、領域別にコントラストをつけた光電子顕微像を約百 nm の分解能で投影することに成功した。本報告ではグラファイト特有のファセット構造を用いて、運動量選択光電子顕微法の具体的なノウハウが詳述されており、電子状態と表面構造を統合して可視化する顕微分析手法の利活用の具体的な指針となるものである。

暗視野像法と ARPES を融合させた運動量選択光電子顕微法は、グラファイトの単原子層ステップの可視化や薄膜成長のドメイン観察などに早速、適応されている。物質科学・材料開発における顕微分光研究の要請に応えるものとして、今後の応用展開が期待される。



(左) 図 1. 光電子分光関連技術の最前線。

(右) 図 2. グラファイト劈開表面のテラス領域 (左) とアームチェア方向に延びる帯状のファセット構造 (右) の局所バンド分散測定と光電子顕微像 (中)。運動量選択光電子顕微法でファセット構造を可視化に成功した。

原論文 (2022 年 8 月 22 日公開済)

[Domain-Resolved Photoelectron Microscopy and \$\mu\text{m}\$ -Scale Momentum-Resolved Photoelectron Spectroscopy of Graphite Armchair Edge Facet](#)

F. Matsui, Y. Okano, H. Matsuda, T. Yano, E. Nakamura, S. Kera, and S. Suga, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 094703 (2022).

< 情報提供 ; 松井文彦 (分子科学研究所) >