

平成 22 年 6 月 2 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007 ～ 2009

課題番号：19560027

研究課題名 (和文) スピン偏極単原子電子源の創製

研究課題名 (英文) Development of spin-polarized electron sources with single-atom dimension

研究代表者

六田英治 (ROKUTA EIJI)

名城大学・理工学部・准教授

研究者番号：80298166

研究成果の概要(和文): スピン偏極単原子電子源の構造評価を可能にする超高真空 FIM/FEM 装置を立ち上げた。Remolding 法を前処理として実施し、Blunt W tip 先に数原子の大きさの電子放出源を作ることができた。磁性原子吸着とスピン偏極率測定には至っていない。

研究成果の概要(英文): I have developed a UHV chamber equipped with apparatus for observing both FIM and FEM images, that enables us to characterize novel spin-polarized-electron emitter with single atom dimension. By executing a remolding treatment, i.e. thermal field processing, on blunt W tips, I have fabricated electron beam sources consisting of approximately a dozen of atoms, or, at largest, a few. I have neither deposited magnetic atoms, nor started the spin-polarization measurement yet.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2008 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2009 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：

科研費の分科・細目：

キーワード：単原子電子源，スピン偏極電子源，高輝度電子ビーム，自己修復機能，FEM, FIM

1. 研究開始当初の背景

研究開始時までに、代表者は、Ultrasharp タングステン (W) 針を基材にした理想的な点光源である“単原子電子源”を完成させている。この電子源に新たな物性機能を付与することが期待され、磁性原子を単原子電子源の頂上サイトに収容し、高いスピン偏極率を実現することが着想された。

2. 研究の目的

研究最終目標は、スピン偏極単原子電子

源を創製することである。本研究では、単原子電子源材料の問題を解決し、磁性原子を電子放出サイトに配置した電子源作製を試みた。

3. 研究の方法

装置は、背圧 1×10^{-8} Pa の FEM, FIM 超高真空装置である。今回、単原子電子源となるナノピラミッド形成のための蒸着金属として、Au を選んだ。W の清浄化は 2400°C のフラッシュ加熱によりなされ、結果として

Tip 先端は Blunting した。

4. 研究成果

(1) 単原子スピン偏極電子源の作製

スピン偏極電子源の作製につき、単原子電子源 (SAE) に高い正電界をかけ、先端原子を電界蒸発させて、そのサイト付近に磁性原子を收容させることを基本方針とする。それまでの研究で、Ultrasharp W TipではSAEが自己形成することを明らかにしている。さらに、当該年度の前年は、作成法の自由度をふやすべく、Blunt W tipを開始材料にして Remolding (R) 処理を事前に施し、単原子電子源の作製を試み、結果、電界増倍係数は4倍になることを明らかにした。

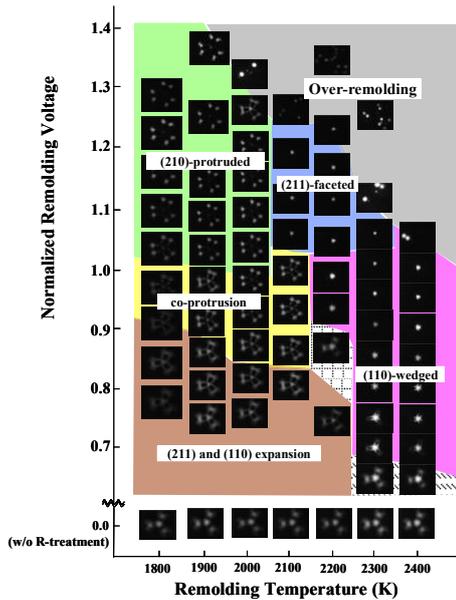


図 1. Remolding 処理により形成される構造一覧 (FEM データ)。

R処理の効果を定量的に評価した。一般に、W Tip先端の極率半径は処理履歴に依存する。したがって、R処理時の電圧はTrivialに電界を反映しておらず、今回、処理前に1 nAの電界放出電流を出すために要する引き出し電圧で規格化したR電圧により電界を揃えた。R処理時の温度と規格化電圧に対する先端構造を調べたところ、上記の変数に対して一意に決まる構造が現れることを明らかにした。また、R処理後に単原子電子源作製を試みたところ、開き角約 $\pm 3^\circ$ の電子ビームが現れ、電流時間変化は階段状推移を示した。このことは、放出領域が原子大程度にあることを意味する。

この先端の原子構造の確認を含め、FIM (電界イオン顕微鏡) を実施した。結果の一例は図2に示される。実験では、poly-W tipを用

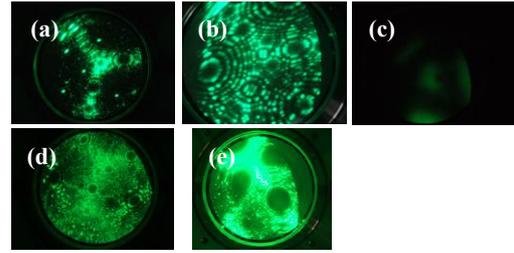


図 2. FIM と FEM の結果. 試料は多結晶 W 針である. (a) 試料導入直後 FIM 像, (b) 電界エッチングにより先鋭化したときの FIM 像. (111) plane 上に 6 個の W 原子がならぶ. (c) (b) の原子構造に対応する FEM 像. 電流は検出限界 10^{-12} A 以下である. (d) (b) の試料からさらに電界蒸発を続けて観察される FIM 像. チップ先端の鈍化に伴い、倍率が下がっていることが分かる. (e) 約 1400 K でアニールした後の FIM 像. ファセットが進み、低指数面が大きく広がる。

い、圧力 1×10^{-3} Pa の He を結像ガスとした。(a) はエッチング直後の FIM 像である。ところどころ、Plane や atom が見え、さらに、中央は3階対称を呈しているようだが、構造はむしろ乱雑である。これを電界蒸発 (Field Evaporation) すると Surface と Sub-surface の原子が順次とび、固体内部の整然とした構造が現れる (b)。いまや、各 Plane ははっきりと見える。各 Plane の指数付けは可能となり、果たして中央はやはり (111) 面であることがはっきりとした。(111) 面内には 6 個の原子が最密構造で並ぶ。そのときの FEM が (c) に示される。典型的な W $\langle 111 \rangle$ tip の FEM 像を呈する。さらに、電界蒸発を繰り返して、Macroscopic な像を観察することができ (d)、比較的、高い温度での Anneal により、Facet した面を確認することができた (e)。今回の装置には、50 kV の電源が備わり、配線耐圧も DC でそれに耐えられるようになっており、昨今の FIM 研究では行わないような高圧での実験も行える。本装置では、2000 K にフラッシュ加熱し完全に blunting した W tip の FIM 像を観察することもできた。さらに、最近になり、R 処理を加え、W-poly tip に $\{211\}$ -faced 構造を作製し、その先端原子構造を FIM で見たところ、(211) plane が広がり、 $\langle 111 \rangle$ 付近には、原子 10 数個程度のナノ構造が形成されていた。今後、磁性原子を蒸着し、その電子放出実験が待たれる。

(2) ネルギー分解型スピン偏極率測定器

スピン偏極電子線は、局所磁性評価装置のプロブとして最近多大な関心が寄せられている。ただし、多くのスピン偏極電子源では、コヒーレンシー (言い換えると、輝度である) の向上に問題を抱えているが、ナノフォームは、CNT 同様に、もともと高コヒーレント電子を出すことが予想される。このようにして、高コヒーレントかつ高いスピン偏極率の電子を放出する材料を創製できる

可能性を追求する。

電子線のスピン偏極測定には Mott 検出器を用いる。測定法は至った簡単である。電子線を 25-100 keV 程度に加速し、Au などの薄膜に照射し、そこから反射（もしくは透過）した電子数を、光軸に対し互いに対称な位置に置かれた Channeltron で Count し、その信号強度（単位時間当たりの電子数）の非対称性から偏極率が求められる。原理としては、加速電子のスピン方向に依存して、Target 原子付近の通過により感じるスピナー軌道相互作用が引力として働くか、斥力として働くかで、偏向方向に非対称が生じる現象を利用する。この方法のもの足りなさは、電子線のエネルギーが全く分解できないことにある。つまり、電子線は Aperture なりを通り検出器に入射させるので、全放出電子を空間微分した形でスピン偏極測定にかけられる一方、全ての電子は積算され偏極率測定に預かる。ナノ電子源の磁性発現には特定の電子状態が関与する。従って、詳細な機構解明には、エネルギー分解して偏極率を計測することが望まれる。電界放出実験では特定エネルギーの電子線をフィルタリングすることが可能であり、その電子線を Mott 検出器に入れて分析できる。図 3 に、本研究に望まれるスピン偏極コヒーレント電子源の評価装置を示す。スピン偏極評価装置としてエネルギーフィルターと Mott 検出器が直列に並んだ分光装置が備わる必要がある。今回の研究では、エネルギーフィルタを動かすことに特化した電源を試作した。

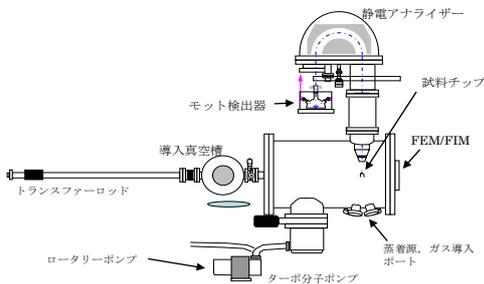


図 3. スピン偏極コヒーレント電子源の物性計測を行う装置全図。エネルギー分解型スピン偏極度測定装置に加え、電界イオン顕微鏡 FIM/電界放出顕微鏡 FEM 構造解析装置が加わる。少なくともこれらの評価装置が、圧力 10^{-8} Pa 以下の真空が必要である。測定の回転を上げるため、ロードロック機構を有することが望ましい。

エネルギー分光器をおさらいしつつ、報告する。ここでは、Mott 検出器との接続までは至らない。低速電子線分光は、それだけで困難を伴い、まずはスペクトル計測できるレベルまで装置のポテンシャルを高める。スペクトルは、放出領域の局所電子状態を映し、今回のナノ炭素材料の物性評価に有益な情報を提供する。

分光器本体を図 4 に示す。分光器は、 127° 静電円筒型のアナライザーを 2 段重ねたタイプのものである。本体はパーマロイに 2 重に覆われ、浮遊磁場の染みこみを防ぐ。また、全ての部品は、Cu, CuBe など非磁性材料からなり、徹底して、磁場の

排除が図られる。分光器の前面には、Aperture をもつスクリーンが置かれ、パターンをみながら任意の方位のビームを分光器に入れることができる。スクリーンを抜け減速レンズで収束された電子のうち、静電偏向板で特定エネルギーのものだけが電子増倍管 (Channeltron®, BURLE 社) に至る。電子増倍管で増幅されたパルス信号は大気に取り出された後、PREAMP, MainAMP (ORTEC 社) の順に、さらに増幅され、Discriminator で Filter された信号のみがパルスカウンターで計数計測される。暗電流によるノイズは、0.1 cps 以下であり、到達

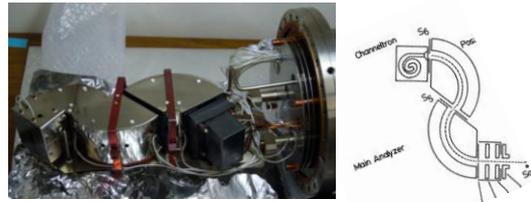


図 4. 高分解能電子エネルギー分光器本体。 127° 静電円筒型分光器を 3 段重ねたタイプ。このうち、後段の 2 つを使い、double-pass 型の構成とした。電界調整のための制御電極数は 17 である。いずれの電極でも、ノイズ・リップルが極めて低い DC 電圧が必要とされる。今回の実験では、せいぜい 1 mV に抑えねばならない。

電子をひとつひとつ数えることが出来る。高分解能を狙いバスエネルギー 0.3 eV まで下げ分光することを想定している。そのとき、電子線強度の減衰約 1/100 と分解能約 3 meV が、適当に実現できる性能レベルと考える。高分解能実現には、できるだけ収差の小さな分光器の設計が重要であるが、それと同様に、もしくはそれ以上に、低リップル低ノイズの安定化動作電源の使用が重要になる。本研究では、この高分解能分光器の性能に見劣りしない動作電源の作製を試み、申し分のない電源を完成させた。以下に詳細を記す。

分光器は 17 の電極を含む。3 meV の分解能を達成するには、全ての電極に、1 mV 以下の低リップル低ノイズの電位を供給する必要がある。市販の安定化電源のリップルは、凡そ、この値の数倍程度あり、分光器の動作にあわせてより安定な電源が必要である。図 10 (a) は、本分光器の制御の流れを示す。電位発生の際は、D/A ボードから Analog 信号をバッファアンプで安定増幅することにある。図 10 (b) に、バッファアンプの基本的な動作原理を示す。17 の電極では、それぞれ、適当な電位はあらかじめほぼ決まっているので、その電位を基準電圧として固定し、その上に可変電圧を加えて、出力すればよい。この手法のメリットは、可変電圧幅が小さくなる一方、増幅の結果生じるリップル・ノイズを低く抑えることができることにある。図 10 (c) にある通り、電源はアンプを適当につなげて構成されるが、各箇所ローパスフィルター (LPF) を挿入しノイズ除去が図られる。

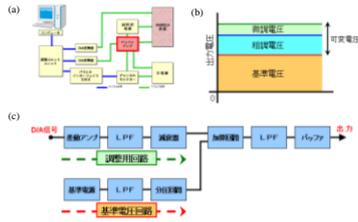


図 5 (a) 電子エネルギー分光装置の制御フロー。D/A ボードから出る電圧をバッファアンプで増幅安定化し分光器本体の電極に供給する。(b)と(c)は出力電圧の調整方法を示す。各電極に必要な電位は凡そ決まっており、その固定電圧をアンプ内で基準電圧とし発生させ、調整に要する可変電圧を D/A ボードからの信号で作成し加算回路で上乗せし、各バッファアンプの出力とする。全てのオペアンプ出力でフォロワーを使い適切に電圧を伝え、最適な LPF (ローパスフィルター) をかまして、低リップル低ノイズ化を図る。

実際の設計回路図を、図 5(a)に示す。さらに、試作では、初めにユニバーサル基板で動作試験を行った後に、プリント基板を設計試作し、容易に量産できる態勢を調べた。ユニバーサル基板での動作チェック段階に判明し、また、当然のことではあるが、ノイズ発生が、GND 線の取り回しに大きく依存することを再確認し、プリント基板では特に GND 線の取り回しに注意を払った。

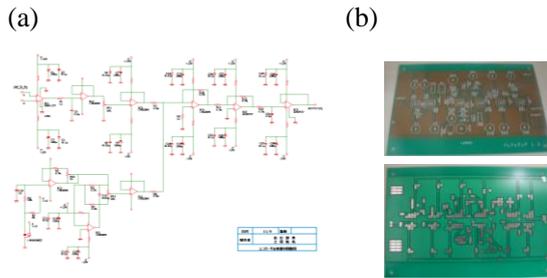


図 5. (a)バッファアンプ回路図。(b) 試作したプリント基板。

電源の動作試験の結果を図 6 に示す。D/A ボードから出た電圧は peak-to-peak で 30 mV 程度のノイズを生んでいたが、素子を最適化することで、出力電圧では、1/30 以下に減少した。詳細は省くが、ポイントとしては、周波数帯域の狭い OP アンプを用いることで、高周波ノイズを増幅しないことにある。これも分光器動作の特徴を活かした、ノイズ低下の方策ある。今回の結果をうけ、今後電源ボードを量産し、分光器につなげ、まずは、スペクトル計測を試みる。

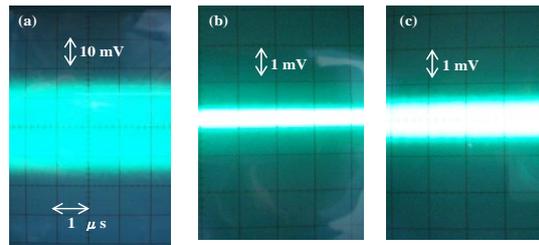


図 6. (a) D/A ボード出力。(b) 基板、素子、アースの取り方を最適化したときのバッファアンプ出力。このときの条件を今後ボード量産する上でのレシピとする。peak-to-peak ノイズレベルは、0.8 mV である。市販で低ノイズ低リップルを謳う電源の半分程度のノイズを実現した。安定化への寄与の特徴としては、帯域を絞った OP アンプ LM358 (Semiconductor 社) を使用したことがあげられる。周波数特性がより優れた NJM4580 (JRC 社) を使用した結果を(c)に示すが、高周波ノイズも無用に増幅し、今回の DC 電源には適さない。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① E. Rokuta, H. Murata, R. Sakurai, S. Shimizu, S. Fuita, H. Shimoyama, and C. Oshima, Technical Digest of 2009 22nd International Vacuum Nanoelectronics Conference (Japan, ISBN:978-1-4244-3586-9) pp. 125-126
- ② 大島忠平, 六田英治, 表面科学 第 29 巻 (2008) 659-664
- ③ 石川剛, 趙福來, 六田英治, 大島忠平, ケミカルエンジニアリング 第 53 巻 (2008)387-392
- ④ E. Rokuta, H.-S. Kuo, T. Itagaki, K. Nomura, T. Ishikawa, B.-L. Cho, I.-S. Hwang, T.T. Tsong, and C. Oshima, Surface Science **602** (2008) 2508-2512.
- ⑤ Tsuyoshi Ishikawa, Boklae Cho, Eiji Rokuta, and Chuhei Oshima, Applied Physics Express **1** (2008) 077001.
- ⑥ K. Nomura, E. Rokuta, T. Itagaki, C. Oshima, Hong-shi Kuo and T. T. Tsong, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **6** (2008) 31-34.
- ⑦ T. Ishikawa, K. Tagawa, T. Urata, C. Oshima, B. Cho, E. Rokuta, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology **6** (2008) 11-14.
- ⑧ T.Koizumi, M. Ikeda, D. Takagi, S. Chiashi, E. Rokuta, C. Oshima and Y. Homma, Japanese Journal of Applied Physics Vol. **46**, No. 9A (2007) 6087-6090.
- ⑨ B. Cho, T. Itagaki, T. Ishikawa, E. Rokuta and C. Oshima, J. Vac. Sci. Technol. **B25** (2007)1420-1423.
- ⑩ T. Ishikawa, T. Urata, B. Cho, E. Rokuta, C. Oshima, Y. Terui, H. Saito, A. Yonezawa, T.

T. Tsong, Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 143120-1-143100-3.

- ① T. Itagaki, E. Rokuta, H.S. Kuo, K. Nomura, T. Ishikawa, B.-L. Cho, I.S. Hwang, T.T. Tsong, and C. Oshima, Surface and Interface Analysis **39** (2007) 299-303.

[学会発表] (計 3 件)

- ① 六田英治, “単原子電子源の電子放出”, 表面科学会中部支部研究会(2009/11/28, 浜松)
- ② E. Rokuta, H. Murata, R. Sakurai, S. Shimizu, S. Fuita, H. Shimoyama, and C. Oshima, “FEM study of Au-deposited nanopyrramids grown on blunt W tips via assistive remolding treatment”, 2009 22nd International Vacuum Nanoelectronics Conference (2009/07/22, 浜松)
- ③ 六田英治, “Remolding 前処理を利用したナノ電子源の形成とシームレス・ナノ電磁界シミュレーションによるナノ電子源自己焦点効果の解析”, 日本学術振興会真空ナノエレクトロニクス第 158 委員会 第 77 回研究会 (2009/04/20, 浜松)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等
なし

6. 研究組織
(1) 研究代表者

六田英治 (ROKUTA EIJI)
名城大学・理工学部・准教授
研究者番号：80298166

(2) 研究分担者
()

研究者番号：

(3) 連携研究者
()

研究者番号：