

令和 2 年 5 月 15 日現在

機関番号：14101

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14125

研究課題名(和文)単結晶Cr電界放出陰極からの単色性電子ビーム放出の実証研究

研究課題名(英文)Study on monochromatic electron beam emission from single crystalline Cr field emitters

研究代表者

永井 滋一 (Nagai, Shigekazu)

三重大学・工学研究科・助教

研究者番号：40577970

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：電子デバイス等の超微細化に伴う、電子ビームを用いた観察・分析装置に高い空間分解能とエネルギー分解能を実現するため、Crを陰極材料に用いた電界放出型電子源を開発し、放出電子のエネルギー幅を評価した。超高真空下で、タングステン電界放出陰極上形成されたW{113}上の電子放出サイトの形成は、Cr微結晶の形成による局所的な電界増強因子の増大に起因することが明らかになった。放出電子のエネルギー幅は、放出電流の低下に伴って、1 eVから0.5 eVまで低下させることができた。Cr/Wスピン偏極電子源は、電子スピンとエネルギーのコヒーレント性を印加電圧によって切り替え可能な電子源であることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年のデバイスの縮小化は、半導体だけでなくスピントロニクス応用を目指した磁性体材料においても重要課題である。そのため、高輝度、狭いエネルギー幅のスピン偏極電子源は、スピン関連物理現象の解明、ならびにその応用にとって不可欠である。本研究で実証された電子スピンとエネルギーのコヒーレント性をもつCr/W{113}電子源は、印加電圧によって切り替え可能であり、次世代のスピン評価装置の実現に寄与すると考えられる。

研究成果の概要(英文)：A field-emitted electron source using Cr as a cathode material was developed and the energy distribution of emitted electrons was evaluated in order to achieve high spatial and energy resolutions for electron beam-based observation and analysis. The formation of electron emission sites on W{113} formed on tungsten field-emitting cathodes under ultrahigh vacuum was attributed to the enhancement of a local field enhancement factor due to the formation of Cr microcrystals. The Cr/W spin-polarized electron source is found to be an electron source that can switch between the electron spin and energy coherency depending on the applied voltage, and the energy width of the emitted electrons can be reduced from 1 eV to 0.5 eV with decreasing emission current.

研究分野：荷電粒子線工学

キーワード：電界放出電子源 電子分光 Cr

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1 研究開始当初の背景

デバイス構造の微細化はめざましく、電子ビームを用いたナノスケールでの構造観察および分析技術の重要性は、依然として高まり続けている。球面収差補正技術、電子エネルギー分析器、およびエレクトロニクス改良によって、電子顕微鏡 (SEM, TEM) やこれに付随するオージェ電子分光および電子エネルギー損失分光などの分析装置の性能の向上が図られてきた。近年では、電子デバイスのみならず、有機材料および生体試料の観察を目的に、各種分析装置の低加速電圧動作が求められている。しかし、既存の電子源では、個々の放出電子のもつエネルギーのばらつき (エネルギー広がり) が大きく、色収差による空間分解能およびエネルギー分解能の限界を迎えつつある。このような状況に対して、タングステン電界放出型電子源の実用化以後、電子ビームを用いた分析装置の根幹である電子源において、革新的な陰極は提案されていない。特にエネルギー広がりに関しては、タングステン電界放出陰極の先端への微小突起構造の形成が検討されたが、一般的な電界放出陰極のエネルギー広がり (~ 300 meV) を大幅に改善した報告されていない。

2. 研究の目的

本研究の目的は、フェルミ準位に極めて高い状態密度をもつ電荷密度波励起 Cr を陰極材料とした電界放出型電子源を開発することである。この電子状態は、光電子分光法、トンネル分光法によって実証されてきた。さらに、電界放出電子のエネルギー広がり理論研究は、室温におけるエネルギー半値幅が 50meV 以下に到達することを示唆している (C.F. Osborne, J. Phys. F 1, 416 (1971))。しかしながら、電界放出型陰極は、数 V/nm の表面電界強度を要するため、針形状かつ単結晶の Cr の作製が困難であり、放出電子のエネルギー分布は測定されておらず未解決問題となっている。

申請者の永井は、スピン偏極トンネル顕微鏡の探針材料、および電界放出型スピン偏極電子源の陰極材料として、再現性、および信頼性の向上のために針形状 Cr の作製技術の改善に取り組んできた。その研究過程で、タングステン針上に単結晶 Cr 薄膜の作製技術を確認するとともに、電子放出特性が著しく増強されることを見出した (図 1)。本課題では、既存の電界放出型電子源をはるかに凌駕する高輝度、および狭いエネルギー幅をもつかを検証した。

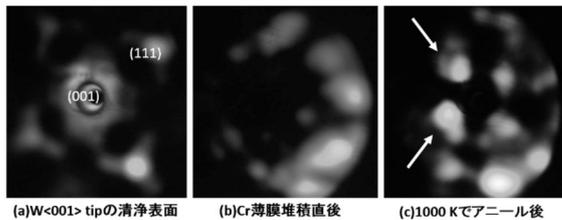


図 1. $\langle 011 \rangle$ 電界放出陰極上に堆積された Cr 薄膜の FEM 像。1000 K でアニールすることで、下地 $\langle 001 \rangle$ 同様に 4 回対称性のパターンが観察され、陰極全体に亘る単高い結晶性を示している。

3. 研究の方法

本研究では、陰極の作製と評価を in-situ で行える図 2 に示す電界放出電子エネルギー分析装置で行い、Cr/W 陰極の本質的な電子放出特性と放出電子のエネルギー分布を解明する。さらに次年度には、実用的観点から陰極作製後の性能劣化の有無、および電子放出特性の復元手法を確立する。具体的な方法は以下の通りである。

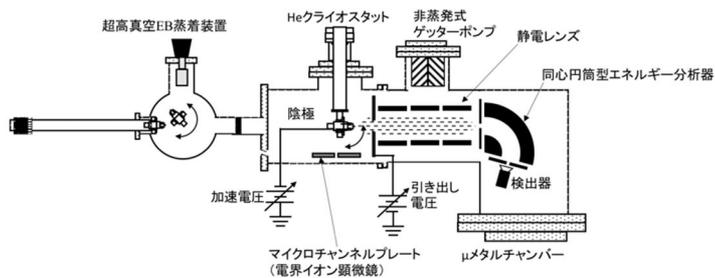


図 2. 電界放出電子エネルギー分析装置の概略図

(1) Cr 単結晶エミッタ作製法の確立と評価

電荷密度波励起状態の Cr/W 陰極を実現するには、作製した Cr 薄膜の結晶構造および組成に関するキャラクタライゼーションが必要不可欠である。まず、蒸着した Cr 薄膜中の不純物濃度を、現有のアトムプローブ装置で分析した。蒸着用の Cr には高純度 (99.99% 以上) なものを用いるが、真空槽内に残留する水素の混入も懸念されるので、高い水素排気速度をもつ非蒸発ゲッターポンプの増設により対策した結果、 1×10^{-8} Pa の超高真空を実現した。

(2) 電子放出特性の評価

実施項目 (a) で述べたように、電子放出サイトと結晶面の対応を明らかにし、Cr/W 陰極の各結晶面からの電子放出特性を評価した。電流 - 電圧特性を始めとして、電子光学的輝度 (dI/dV) を算出した。放出電子のエネルギー分布は、放出電流の増加に伴う空間電荷効果 (ペルシエ効果) によるエネルギー広がりが増大が懸念される。各結晶面に対する輝度、およびエネルギー広がりの結果を、下地となるタングステンの結晶方位、および微視的形狀などの陰極作製条件にフィー

ドバックして最適化を図った。

4. 研究成果

(1) Cr 単結晶エミッタの原子プローブ分析

Cr の融点は 2108K であるが、融点以下のアニール処理によって昇華する性質を有する。そこで、Cr を蒸着した W<011>エミッタを 1000 K で 1000 秒加熱した後、原子プローブ法による組成分析を行った。その後、エミッタを原子プローブ装置に大気搬送して組成分析を行った。図 3 は Cr/W<011>エミッタの質量電荷比スペクトルである。Cr²⁺イオンが最も多く検出され、CrO³⁺や CrO₂²⁺の酸化物は大気搬送による表面酸化膜であると推察される。一方で、W 原子および Cr-W 合金は検出されていないことから、作製したエミッタ表面に、首尾良く Cr 薄膜が形成されていることが判明した。

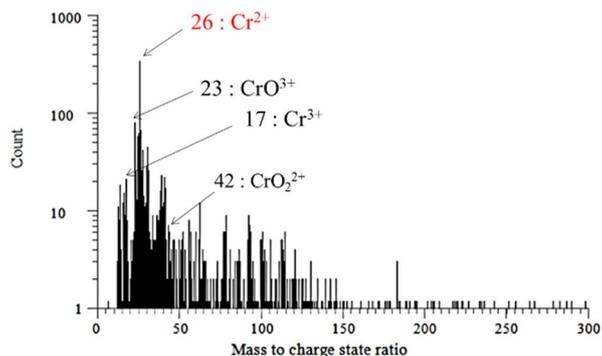


図 3. Cr/W<011>エミッタの質量電荷比スペクトル

(2) 電子放出特性の復元手法の確立

電界放出現象は、陰極の表面状態に非常に敏感であるので、装置内の残留ガス吸着物が放出電流特性を著しく変化させてしまう。たとえ超高真空中 ($\sim 10^{-8}$ Pa) であっても、その影響は避けられない。1000K のアニール処理による電子放出特性の復元可否を検討した結果を図 4 に示す。図 4(a)-(c) の FEM 像は、それぞれ Cr を 10nm 堆積させた W<001>陰極に 1000K の加熱処理後、(b) 超高真空中で 3 日間放置した後、再度 1000K の加熱後の変化である。また、図 4(d) はそれぞれの状況下における電圧-電流特性を示している。超高真空中で 3 日間保管した後の電子放出特性が大幅に変化していることが判る。再度 1000 K で 100 秒間加熱することで、加熱処理直後の電子放出特性を復元可能であることが判明した。1000K で 100 秒間の加熱処理により、FEM 像はガス吸着前と同じ{113}面上に明瞭な電子放出サイトが形成された。このことから、表面への残留ガスの吸着に起因する電子放出特性の劣化を、1000 K の加熱処理によって復元できることが実証された。

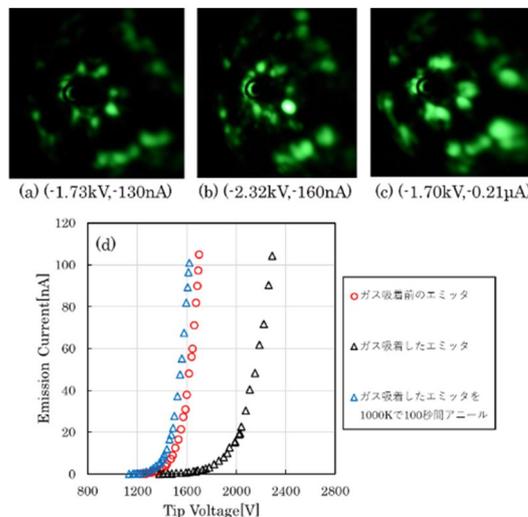


図 4. (a) ガス吸着前、(b) ガス吸着後、(c) 1000K で 100 秒間アニール処理後の FEM 像、および (d) 各 FEM 像観察時の電圧-電流特性

(3) 電界放出電子のエネルギー分布

Cr/W(113)面からの電界放出電子のスピンの偏極度を、平均電界強度 2.3 V/nm において、室温 300K と 45K で測定した結果を図 5 に示す。図中の横軸は、標準試料として測定した W(111) のフェルミ準位を基準として示している。電子源の動作温度にかかわらず、エネルギー半値幅は 0.3 eV 程度であり、低温の方がわずかに狭く、理論的な予測と一致する。さらに室温において、印加電界電圧を 1.6-2.0 kV の範囲で測定したエネルギー分布図 6 に示す。この測定結果も、横軸を W(111) のフェルミ準位 E_F を基準にした電子のエネルギー、縦軸はスペクトルの最大値で規格化した値を示している。印加電圧の高い 2.0kV において、ピーク位置は 0.8 eV 付近に観察され、エネルギー半値幅は 1.1 eV であった。これらは、放出電流の増大に伴う空間電荷効果、あるいは

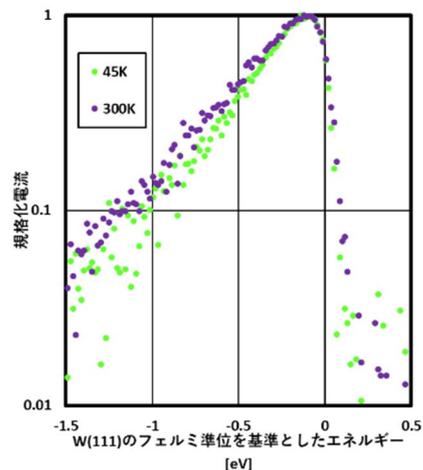


図 5. 45 K および 300 K における Cr/W(113)からの電界放出電子のエネルギースペクトル。

Cr 表面の電子状態を反映していると推察される。放出電子のエネルギー分布のリーディングエッジから仕事関数を見積もった結果、仕事関数は 4.47 eV であり、バルクの Cr と同程度であった。したがって、同一印加電圧における放出電流の増強は、W{113}上に形成された Cr 薄膜の局所的な電界増強因子の増大に伴うものであると推察される。印加電圧の低下に伴って、ピークが高エネルギー側にシフトし、2.0 kV で見られた 0.8 eV 付近のピーク強度が減衰した。さらに印加電圧を低下させることで、W(111)のフェルミ準位付近のピークが顕著になり、エネルギー半値幅も 0.5 eV まで狭小化した。印加電界強度から見積もられるトンネル確率から、Cr 表面の電子状態密度を推察した結果、フェルミ準位より 0.8 eV 低い順位に高い状態密度が形成されていることが判り、エネルギー幅の増大を引き起こしていると推察される。一方で、このバンドのスピンの偏極度が高いことから、Cr{113}からの放出電子のスピンの偏極度は、放出電流が増大しても高い偏極度を維持できる要因となっていると推察される。

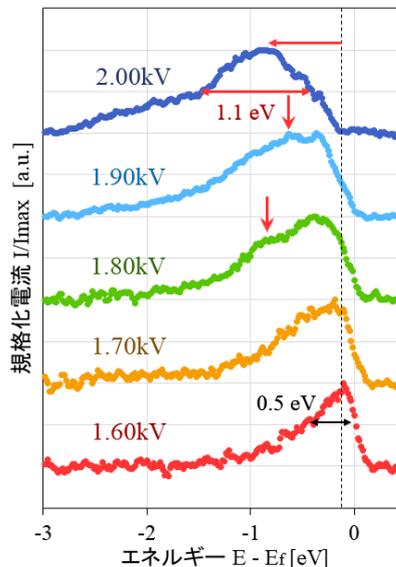


図 6. 印加電圧に対する Cr/W(113)からの電界放出電子エネルギースペクトルの変化。

(4) 今後の展望と課題

本研究では、スピン偏極電子放出が確認されている Cr/W(113)からの放出電子のエネルギースペクトルを測定し、エネルギー幅について解析した。印加電界（放出電流）を低下させることで、エネルギー幅の狭小化が可能であることが示され、スピン偏極と狭い狭いエネルギー幅を両立可能であることが実証された。この結果は、スピン分解電子顕微鏡、ならびに分析装置において高い空間分解能を実現できる基礎となる。今後、エネルギー分析装置の分析効率の制限である全放出電流 100 nA 程度以下の測定を行うことで、更なるエネルギー幅の狭小化が可能であるかを検証する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shigekazu Nagai, Naoya Sakai, Kento Miyazaki, Tatsuo Iwata, Koichi Hata	4. 巻 475
2. 論文標題 Spin-polarized field emission from Cr thin film deposited on W 001 tips	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 273-277
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.apsusc.2018.12.192	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shigekazu Nagai, Kento Miyazaki, Kazuya Kunoh, Tatsuo Iwata, Koichi Hata	4. 巻 1
2. 論文標題 Field-emission of spin-polarized electrons from Cr thin film grown on W{113} surfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Technical Digest of International Vacuum Nanoelectronics Conference 2018	6. 最初と最後の頁 246-247
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/IVNC.2018.8520268	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Shigekazu Nagai, Kento Miyazaki, Kazuya Kunoh, Tatsuo Iwata, Koichi Hata
2. 発表標題 Field-emission of spin-polarized electrons from Cr thin film grown on W{113} surfaces
3. 学会等名 31st International Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木勝成, 永井滋一, 岩田達夫, 畑浩一
2. 発表標題 Cr/W{311}電界放出型スピンの偏極電子源からの放出電子のエネルギー分析
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Nagai K. Miyazaki K. Suzuki E. Oyaizu T. Iwata K. Hata
2. 発表標題 Energy distribution and spin polarization of field-emitted electrons from Cr on W(311) surface
3. 学会等名 The 12th International Conference on Atomic Level Characterization '19 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考