

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04734

研究課題名(和文) アルカリ-アンチモン機能性保護膜によるGaAsフォトカソードの高耐久化

研究課題名(英文) High durability of GaAs photocathode by alkali-antimony functional layer

研究代表者

飯島 北斗(Iijima, Hokuto)

東京理科大学・理学部第二部物理学科・助教

研究者番号：90361534

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：ヒ化ガリウム(GaAs)に代表されるⅢ-Ⅴ族半導体を利用したフォトカソードの長寿命化を実現させるためにセシウム-アンチモン(Cs-Sb)薄膜をフォトカソードの機能性保護膜とする研究を行った。保護膜の最適化をはかるためにカソード基板の熱処理温度と膜厚を探索した。結果、熱処理は酸化物脱離が観測される温度、また膜厚は1nmという比較的薄いものが機能性保護膜として最適である。このCs-Sb保護膜は薄くとも、化合物をなしており基板に対してはヘテロ接合され、表面ポテンシャルを低下させていることが分かった。

研究成果の概要(英文)：It is investigated that the cesium-antimony (Cs-Sb) thin film is utilized as functional layer of photocathode to realize long lifetime of photocathode by using of III-V semiconductors, such as gallium arsenide (GaAs). In order to optimize the functional film, the thermal treatment and the film thickness of the cathode substrate were searched. As a result, the thermal treatment is performed at a temperature at which oxide desorption is observed, and the film thickness of 1 nm, which is relatively thin, is optimum for the functional film. It was found that the Cs-Sb film, which lowers the surface potential, even if it is thin, is a compound, heterojunction to the substrate.

研究分野：加速器科学

キーワード：光陰極 高輝度電子ビーム

1. 研究開始当初の背景

(1) 光電効果を利用した光陰極は高品質電子ビームの生成に欠かせない陰極である。特に照射するレーザーを時間的に制御することにより、それまでの熱陰極よりもはるかに簡便な方法で電子ビームのパルス化を実現してきた。最初、銅やマグネシウムのような金属材料から始まった光陰極の研究は、より高い電流密度を実現すべく半導体材料へ移行していった。

(2) 族半導体であるヒ化ガリウム (GaAs) の表面にセシウム (Cs) を蒸着させた光陰極は、負の電子親和力 (NEA) を形成し半導体光陰極のなかでも 10% 以上の高い量子効率を持つ。また、円偏光レーザーを照射することで容易に偏極電子を取り出せる。こうした特徴から大型加速器の電子源や電子顕微鏡への応用が期待され、今日まで幅広く研究開発がなされてきた。

(3) しかし Cs による NEA 表面は、真空中であってにもかかわらず残留ガスに非常に敏感で、電子を取り出せる時間、すなわち寿命が他の陰極と比べて非常に短いという欠点を持っている。これを解決することが半導体光陰極の研究において重要な位置を占めている。

2. 研究の目的

(1) 半導体光陰極の唯一ともいえる欠点である短寿命を解決するため、いくつかの手法が試されてきた。一つには陰極周辺の真空を $10^{-8} \sim 10^{-9}$ Pa という極高真空に保つ手法である。実際、実証試験機を用いて、こうした真空度を達成すれば長寿命になることが確認されているが、電子銃として用いる場合必ずしも極高真空を得られるわけではない。また、Cs 以外のアルカリ金属で NEA を形成する方法が試されたが飛躍的な寿命の改善はいまのところ報告されていない。

(2) アンチモン (Sb) と 1 種類以上のアルカリ金属からなる化合物もまた、高感度の光陰極材料である。十分に厚く作成されたこの化合物は、アルカリ金属の組み合わせによって若干変わるもののその仕事関数の大きさは 2eV 程度であり、光陰極としての寿命は NEA 半導体と比較すると非常に長い。

(3) そこで、本課題ではこのアルカリ-アンチモン薄膜を GaAs や GaSb 半導体上に成膜し、従来の NEA 光陰極の性能を保ったまま長寿命を実現することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 実験は評価装置にて行った。アルカリ-アンチモン薄膜は、今回 Cs-Sb を選択している。熱処理を施して表面を清浄化した GaAs や GaSb 表面に Cs-Sb を蒸着する。この光陰極の量子効率スペクトルと寿命を測定して、機能性表面の評価を行った。

(2) 評価に用いた装置はメインチャンバーと

インストールチャンバーで構成されており、ゲートバルブ (G.V.) で仕切られている (図 1 参照)。基板表面は周囲の環境に非常に敏感であるため、メインチャンバー内は 10^{-8} Pa に保つ必要があるため非蒸発型ゲッターポンプ、イオンポンプ、ターボ分子ポンプ、ロータリーポンプを使用している。装置には、この他に試料の加熱機構、Cs 及び Sb 源、膜厚計、質量分析計 (QMS) などが取り付けられている。量子効率スペクトルの測定には水銀ランプと分光器を組み合わせた波長可変光源を用いた。

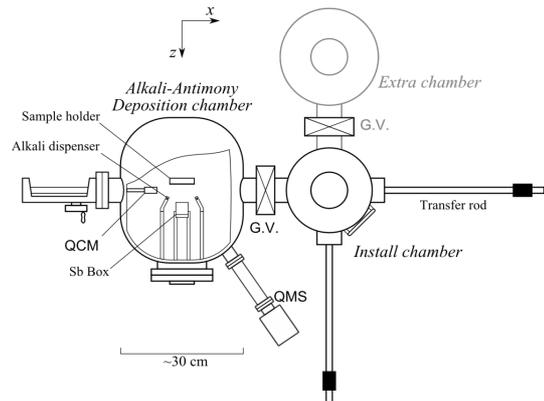


図 1 装置概略図

(3) Cs-Sb 薄膜が機能性表面として働くためには、Cs と Sb が化合物となること、この化合物が基板とヘテロ接合することが必要である。この点に注意して、本課題では試料の量子効率と寿命測定のほか、QMS による昇温脱離法 (TPD) と量子効率スペクトルの測定を行った。

4. 研究成果

(1) 基板表面の清浄化: Cs による表面活性化と Cs-Sb 薄膜の作成のどちらにおいても基板表面は丁寧に清浄化を行う必要がある。特に表面の酸化物は NEA、Cs-Sb 薄膜の作成を妨げる大きな要因となる。こうした清浄化には化学洗浄を施す方法もあるが、ここでは加熱処理による清浄化を行った。酸化物は熱処理温度が高ければ表面から確実に脱離していくが、あまり高温にしてしまうと基板表面を破壊してしまう (例えば GaAs の場合ヒ素抜けが起きる)。こうした熱処理の最適な温度に関する報告はいくつかなされているが、装置ごとの差がおおきい。そこでここでは TPD により酸化ヒ素や酸化アンチモンの脱離を観測しながら熱処理温度を決定した。この温度はいずれの基板に対しても破壊される温度よりわずか 10~20 度低い程度であった。さらにこれより 20 度低ければ、酸化物は完全に除去されないため最適な量子効率よりも 1/10 から 1/100 低い値になってしまう。

(2) Sb の膜厚: Cs-Sb の成膜は、表面を清浄化した基板に Sb を蒸着し、その後光電子を測定しながら量子効率が最大になるまで Cs を蒸着させるのが一般である。また、この蒸着の際、基板温度は 100 度程度に保つのが良いとされている。我々の実験では蒸着時の基板温度が高温であるほど Cs 蒸着に時間がかかったが、それ以外に依存性はほとんど見られなかったため、成膜は室温で行った。膜厚は機能性保護膜の性能に大きく依存すると考えられる。このため膜厚を変えながら成膜を行い最適な厚さを検討した結果膜厚が 1nm のときが最適な条件であり、量子効率 3~5% 程度で寿命は 1000 時間を実現した。同一装置内で NEA-GaAs を作成した場合、その寿命は 10 時間程度であったことと比較すると十分な長寿命化が達成されたと考える。また、一般に Cs-Sb 化合物を光電子放出材料とする場合は数百 nm の厚さにするが、機能性保護膜として考えた場合はこれよりはるかに薄くて済むことが分かった。

(3) 最適化された薄膜の TPD: 最適化された薄膜の状態を評価するためこの試料の TPD 曲線を測定した。図 2 は GaAs 基板に Cs-Sb 薄膜を成膜した試料の TPD 曲線とその時の量子効率の変化を表したグラフである。ここでは昇温速度を 10K/min とした。図中の青と緑の点はそれぞれ Cs¹³³ と Sb¹²¹ の脱離を表し、赤の点はそれぞれの温度での量子効率を示す。グラフからわかるように Cs の脱離ピークは複数観測されている。これは一部基板を固定しているモリブデン (Mo) フォルダーに蒸着してしまった Cs の脱離を含んでいるが、主に Cs が Cs-Sb 化合物とは異なる状態で試料上に存在することを示唆する。480 度付近の Cs の脱離では同時に Sb の脱離も観測されているため、これが主な Cs-Sb 化合物の脱離を示しているものと思われる。一方、量子効率は比較的低温で起こる Cs の脱離とともに低下しているため、この Cs が電子放出に大きく寄与していることが分かった。

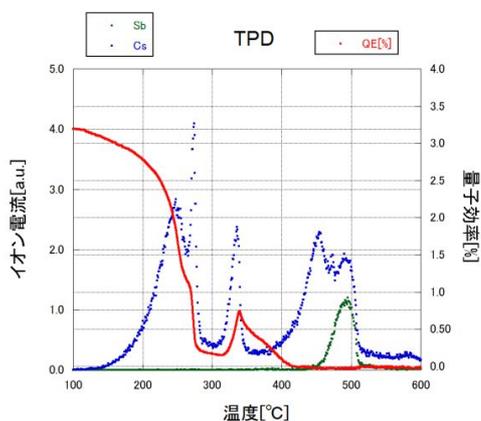


図 2 GaAs に Cs-Sb を製膜したものの TPD 曲線と量子効率の変化。

(4) 機能性保護膜の量子効率スペクトル:

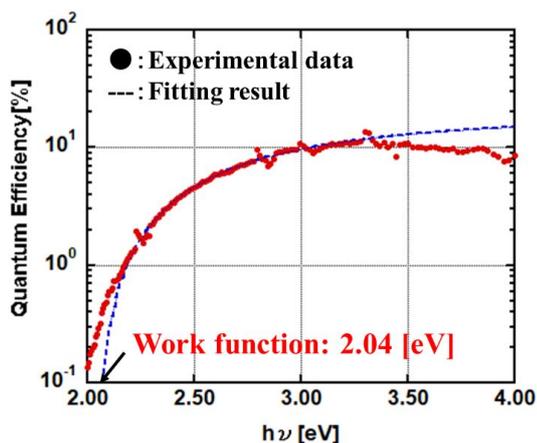


図 3 Mo 上に Cs-Sb を成膜したものの量子効率スペクトル。

図 3 は半導体基板への成膜と同条件でモリブデン基板に成膜を行ったものの量子効率スペクトルである。赤点が実測を表し青の破線は理論曲線をデータにフィットさせた結果を表している。フィッティングの結果から試料の仕事関数は 2.04eV と求められた。Mo の仕事関数は 4eV 程度なので、明らかに Cs-Sb 薄膜が仕事関数を下げている。またこの数値は十分に厚く作られた Cs-Sb 化合物の値と等しい。これより Sb の厚さ、すなわち Cs-Sb 化合物の厚さが 1nm と薄くとも基板に対してヘテロ接合されることが分かった。

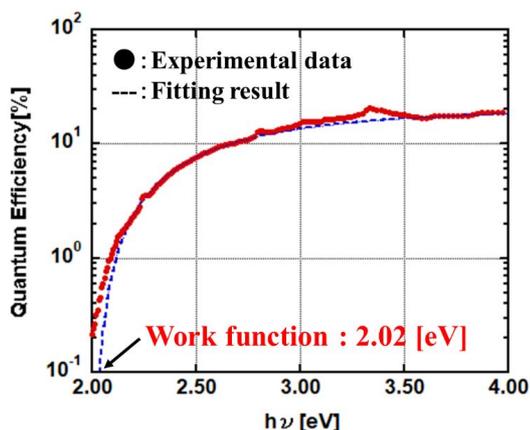


図 4 GaSb 上に Cs-Sb を成膜したものの量子効率スペクトル。

図 4 は同様に GaSb 基板上に Cs-Sb を成膜したものの量子効率スペクトルである。この時の仕事関数は 2.02eV と求められた。GaSb の電子親和力は 4.06eV でバンドギャップは 0.7eV である。また本課題で参考のために p 型の GaSb に Cs のみを蒸着したものの仕事関

数は2.14eVであった。したがって、Cs-Sb 薄膜はこれらよりも大きく真空準位を下げていることが分かる。

<引用文献>

W. E. Spicer, "Photoemissive, Photoconductive, and Optical Absorption Studies of Alkali-Antimony Compounds", Phys. Rev. 112(1958)114

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 0 件)

〔学会発表〕(計 2 件)

- (1) 日本物理学会 第72回年次大会 (2017)、昇温脱離法によるセシウム - アンチモン薄膜の解析、飯島北斗, 前田茉莉, 鹿島将央, 目黒多加志
- (2) 日本物理学会 第71回年次大会 (2016)、GaAs 基板上的アルカリ-アンチモンカソードの性能評価、飯島北斗, 清水雄大, 目黒多加志

6 . 研究組織

(1)研究代表者

飯島 北斗 (IJIMA, Hokuto)
東京理科大学・理学部第二部物理学科・助教
研究者番号：90361534