

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21740305

研究課題名（和文） 革新的電子ビーム性能を実現する超格子フォトカソードの研究

研究課題名（英文） Superlattice semiconductor photocathode for the electron beam source with a high brightness and a long NEA-surface lifetime.

研究代表者

西谷 智博 (NISHITANI TOMOHIRO)

独立行政法人理化学研究所・延與放射線研究室・客員研究員

研究者番号：40391320

研究成果の概要（和文）：

本研究では、これまでにない高耐久と高輝度性能を兼ね備えた電子源を目指し、半導体フォトカソードの開発を行った。本研究により、小さな電子親和力や大きなバンドギャップを持つ半導体による高耐久化と放出電子のエネルギー幅を量子閉じ込め効果による極小化を実現する半導体フォトカソード条件を見出した。このような半導体として着目したバルク構造 GaN 半導体により既存技術の一桁以上の高耐久化を実現し、InGaN-GaN 超格子半導体により超格子構造が従来技術のバルク構造に比べ、放出電子のエネルギー幅を半分以下に小さくできることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

The aim of this study is the realization of the novel electron source using a semiconductor photocathode with high brightness and long NEA-surface-lifetime. This study found that the quantum confinement effect in a superlattice structure has the advantage of small energy spread of extracted electrons and the semiconductor which has small electron affinity and large band-gap energy had the advantage of long NEA-surface-lifetime. The p-GaN photocathode with a bulk structure for the long NEA-surface-lifetime and the InGaN-GaN superlattice photocathode for the generation of photoelectrons with small energy spread were developed. As a successful result, the p-GaN photocathode achieved ten times longer lifetime than the GaAs photocathode with a bulk structure known as the conventional photocathode and the effective quantum confinement effect was observed by the quantum yield spectrum of the InGaN-GaN superlattice photocathode.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2010年度	200,000	60,000	260,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス

キーワード：フォトカソード 高輝度電子源 ガリウムヒ素半導体 超格子半導体 負電子親和力 表面 長寿命化 高耐久化

1. 研究開始当初の背景

電子ビームの高輝度性能化は、線形型の放射光源計画[1]のみならず、生体分子の観察や3次元構造解析が可能な次世代電子顕微鏡を実現の鍵となる技術要素である。一方、電子が持つスピン偏極の性質は、素粒子実験などの物質の根源への探索や磁性体のスピン偏極状態密度の観測[3][4]に不可欠な電子ビーム源の性能である。表面を負の電子親和力状態 (Negative Electron Affinity, -NEA-) の表面を持つ半導体を用いたフォトカソード

(NEA 表面半導体フォトカソード) は、次世代の高エネルギー線形加速器を用いた素粒子実験 (国際線形加速器計画-ILC 計画-[2]) に用いるスピン偏極電子源やアメリカ

(Cornell 大学[5]) やイギリス (Daresbury 研究所[6]) などの欧米で進む放射光源計画における高輝度電子源として基礎研究・開発が進められている。

NEA 表面半導体の最大の強みは、NEA 表面を用いているため、GaAs 半導体のバンドギャップエネルギー程度の光照射で、電子ビーム生成を可能にしている点である。すなわち、バンドギャップエネルギーの波長の光による電子励起で、極小のエネルギー分散の単色電子ビームを生成でき、円偏光の照射光でスピン偏極電子を生成できる利点を持つ。

しかしながら NEA 表面は、数原子層レベル

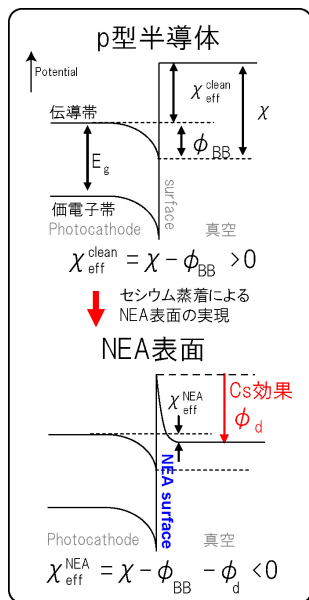
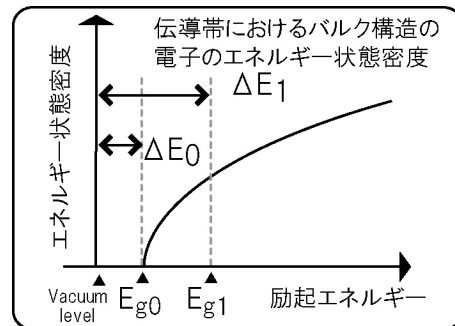
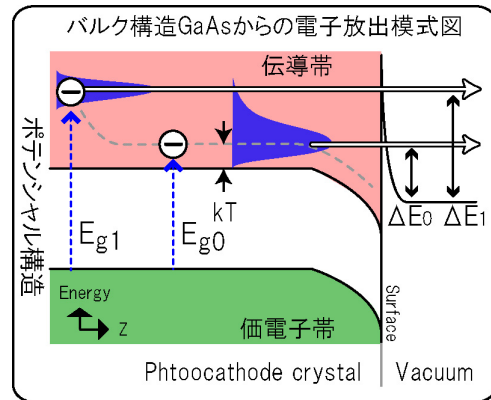


図1. NEA 表面半導体フォトカソードのNEA 形成までの表面ポテンシャルの変化

に示すように、従来技術の NEA 表面半導体

フォトカソードでは、バルク構造の GaAs 半導体が用いられる。この従来技術の NEA 表



励起	QE	エネルギー幅
Eg0	高	小(ΔE_0)
Eg1	低	大(ΔE_1)

従来技術が持つトレードオフ関係

図2. バルク構造を持つ NEA 表面半導体フォトカソードからの励起エネルギーと放出電子のエネルギー幅の模式図とそれに対応する伝導帯における励起光電子の状態密度の相関

面半導体フォトカソードでは、放出電子の極小エネルギー分散化のために、バンドギャップの励起エネルギー (E_{g0}) で電子を取り出す際に、伝導帯の電子の状態密度が極小となり、量子効率を高い状態に取り出すことができず、一方で、高い量子効率を得られる励起エネルギー (E_{g1}) で電子を取り出す場合、今度は電子のエネルギー分散が大きくなってしまふ。

一方、スピン偏極電子源用の NEA 表面半導体フォトカソードにおいても、伝導帯電子が結晶内部から表面に向かう拡散過程におけるスピン偏極度の減偏極効果があるため、電子源の高輝度化の際の隘路と同様に、高い量子効率化と高いスピン偏極度実現の間にトレードオフ関係を持つ。

すなわち、次世代技術に応える高耐久で高輝度・高スピン偏極を兼ね備えたこれまでにない NEA 表面半導体フォトカソード電子源の実現には、NEA 状態を長時間維持する高耐久な NEA 表面を実現し、かつ高い量子効率で放出光電子のエネルギー幅が極小の高輝度性能であり、同時に高スピン偏極電子生成が可能であることが必要不可欠となっている。

- [1] Sol M. Gruner et al., Review of Scientific Instruments, 73 (2002) pp. 1402-1406
- [2] GLC group, GLC Project Report (2003) 139
- [3] J. Kirschner, et al., Phys. Rev. Lett. 53, 698- 701 (1984)
- [4] J. Unguris, A et al., Phys. Rev. Lett. 49, 1047- 1050 (1982).
- [5] M. W. Poole, et al., Nucl. Instr. and Meth. A, Vol. 507 Issues 1-2 (2003) pp. 489-493
- [6] C. Gerth, et al., PAC 2005. Proc., (2005) pp.1643-1645
- [7] T. Nishitani et al. J. Appl. Phys. 97 (2005) 094907

2. 研究の目的

本研究は、NEA 表面半導体フォトカソードの半導体に量子効果を取り入れることで、NEA 表面の高耐久化と高い量子効率で極小の放出光電子のエネルギー幅の高輝度性能を実現し、最終目標として、高いスピン偏極度が可能な電子ビーム生成を実現するフォトカソード電子源の研究である。

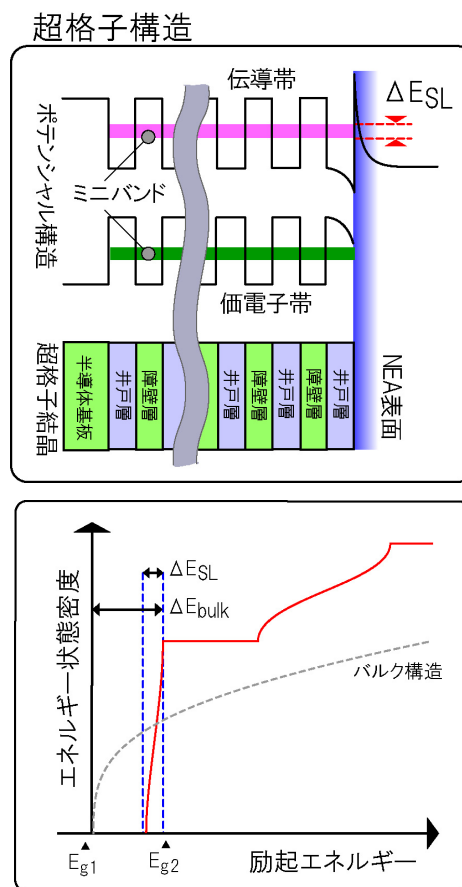
研究代表者は、NEA 表面半導体フォトカソードを用いた偏極電子源と高輝度電子源の開発に直接携わった経験から、これまでに、NEA 表面の高耐久化と NEA 表面が持つ放出光電子の極小のエネルギー分散の利点を生かしたまま、高い量子効率で高輝度化を実現するアイデアを次の通り提案してきた。

第一に、NEA 表面の高耐久化には、半導体を NEA 表面へと活性化した際に、図 1 における $\chi_{\text{eff}}^{\text{NEA}}$ が小さいことが条件となると見出した。すなわち、電子親和力の小さい (図 1 における χ が小さい) 半導体材料及びバンドギャップを大きくし図 1 における ϕ_{BB} を大きくできる半導体材料により高耐久化が可能となること。

第二に、半導体に超格子構造を取り入れることで、図 3 のように半導体のバンドギャップエネルギー励起により高い量子効率で極小のエネルギー幅の光電子が生成可能であること。

本研究の目的として、研究代表者が上述のように独自に見出した NEA 半導体フォトカソードの NEA 表面の高耐久化および高輝度

化のアイデアを実現する半導体の探索を行う。



高い量子効率が可能な励起 E_{g2} で小さいエネルギー幅 ΔE_{SL} が同時に実現可能。

図 3. 超格子構造を持つ NEA 表面半導体からの励起エネルギーと放出電子のエネルギー幅の模式図とそれに対応する伝導帯における励起光電子の状態密度の相関

3. 研究の方法

これまでに研究代表者は、NEA 表面半導体フォトカソードの高耐久化として、バルク構造の AlGaAs 半導体フォトカソードの開発で従来技術を一桁上回る耐久化に成功している [7]。これは、電子親和力の小さい半導体が NEA 表面半導体フォトカソードの高耐久化に適した材料であることの実証となった。

本研究の方法として、AlGaAs 半導体フォトカソードの研究開発に引き続き、NEA 表面の高耐久化、高輝度化と高スピン偏極化に有望と考えられる具体的な半導体材料として、GaAs を基準として AlGaAs と GaN および InGaN について、NEA 表面半導体フォトカソードとして評価を行う。その手法として、NEA 表面の高耐久化に最適な半導体材料の探索と共に NEA 表面半導体フォトカソードの高輝度化に最適な量子効果を実現する超格子構造の探索を次のように行う。

3-(1) NEA 表面半導体フォトカソードの高耐久化の探索:

GaN や InGaN は電子親和力が GaAs 半導体程度であるが、バンドギャップが大きい。そこで、従来技術のバルク構造 GaAs 半導体フォトカソードに対して、バルク構造 GaN 半導体フォトカソードの量子効率の寿命測定を行う。この実験により、半導体を NEA 表面へと活性化した際に、図 1 における $\chi_{\text{eff}}^{\text{NEA}}$ が小さいこと、すなわち、バンドギャップを大きくし図 1 における ϕ_{BB} を大きくできる半導体材料により高耐久化の実現を実証する。

3-(2) 高輝度化を実現する超格子構造半導体の探索:

バンド理論計算を用い、電子親和力、バンドギャップ、伝導帯オフセット、価電子帯内のスピン状態のエネルギー分離に着目し、超格子構造の設計を行い、作成し、このフォトカソードからの電子ビーム生成、評価試験を行い、その結果を半導体結晶構造の設計の最適化へ利用することで、高品質電子ビーム生成の実現までを目指す。①バンド理論計算を用いた超格子構造の設計、②系統的に結晶構造を追求するサンプル結晶の作成、③サンプルの量子効率と耐久性能の評価測定までを以下の手順で行う。

① クローニヒ・ペニーモデルによるバンド理論計算を用いて次の条件を満たす超格子構造の設計を行う:室温エネルギー程度の伝導帯ミニバンド幅、超格子に用いる半導体の単一のバルク構造より高い結合状態密度、価電子帯の重い正孔と軽い正孔準位の縮退の大きな分離

② AlGaAs-GaAs 超格子結晶および GaN-InGaN 超格子結晶について(1)の設計を満たす範囲で混晶物質の比率、超格子層の厚さについて系統的にサンプル結晶を作成する。

③ 作成サンプルに NEA 表面活性化を行った後、電子ビームを取り出し励起エネルギーに依存した量子効率スペクトラムおよび耐久性能の測定を行う。

一連のサンプルのうち、AlGaAs-GaAs 超格子半導体は、名古屋大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー所有の分子線エピタキシー装置を用いて作成し、GaN および InGaN-GaN 超格子半導体結晶は研究代表者の設計結晶を購入した。また、すべての量子効率スペクトラム、耐久性能の測定には、研究代表者が開発した理化学研究所のフォトカソード電子銃装置を用いた。

[7] Tomohiro Nishitani, et al., Japanese Journal of Applied Physics 48 (2009) 06FF02

4. 研究成果

本研究の研究成果として、次の通り NEA 半導体フォトカソードの高耐久化に適した半導体材料と高輝度化に適した超格子材料及び構造の最適条件を得た。

I: バルク GaN 半導体フォトカソードにより、従来技術であるバルク構造 GaAs 半導体フォトカソードの一桁以上長い量子効率寿命を実現し、大きなバンドギャップの半導体材料が NEA 状態をより長く維持することを実証した。

II: 超格子構造により、室温レベルの放出電子のエネルギー分散が実現可能であり、バルク構造に比べてより放出電子のエネルギー分散を抑制することを実証した。

これら I、II の成果は、作成した GaN 半導体および InGaN-GaN 半導体について、次の評価実験、フォトカソードの量子効率寿命測定および励起エネルギー依存の量子効率スペクトラム測定により得た実験結果に得たものである。

4-(1) 量子効率寿命測定

本測定は、従来技術のバルク構造 GaAs 半導体およびバルク構造 GaN 半導体を理化学研究所のフォトカソード電子銃装置へそれぞれ設置し、同一真空条件 (6×10^{-9} Pa) で NEA 表面作成を行い、光電子引出によるイオン逆流等による表面劣化を同条件とする

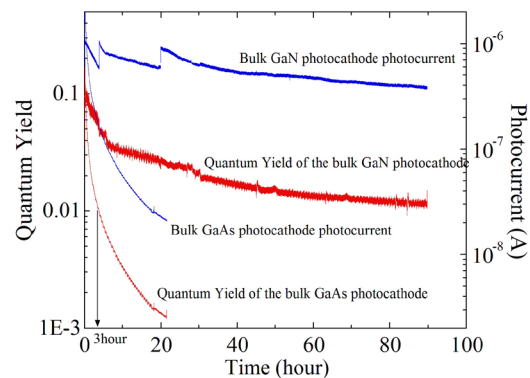


図 4. バルク構造 GaAs 半導体フォトカソードとバルク構造 GaN 半導体フォトカソードの量子効率寿命測定

ために、同じ電子引出電圧 (-500V) で初期光電流を $\sim 1 \mu\text{A}$ として行った。

実験結果を図 4 に示す。従来技術のバルク構造 GaAs 半導体フォトカソードは、量子効

率は、3時間程度で1桁落ち、20時間以降は測定限界の2桁以上量子効率が落ちてしまった。一方、バルク構造 GaN 半導体フォトカソードは、寿命測定の途中で入射光パワーを上げより引出電流による影響を大きくしても量子効率が1桁落ちるまでに80時間を要した。本実験結果から、バルク構造 GaN 半導体は、従来技術のバルク構造 GaAs 半導体よりも1桁以上耐久性に優れた特性を持つことが分かった。

4-(2) 励起エネルギー依存の量子効率スペクトラム測定

理化学研究所所有のフォトカソード電子銃装置を用いて NEA 表面活性化し、励起エネルギー依存の量子効率スペクトラム測定を行い、電子ビーム単色化に必要な量子閉じ込め効果を確認した。作成した InGaN-GaN 超格子半導体フォトカソードの励起エネルギー依存の量子効率スペクトラムを図5に示す。ここで、比較のためにバルク構造 GaN 半導体フォトカソードの結果も合わせて示す。

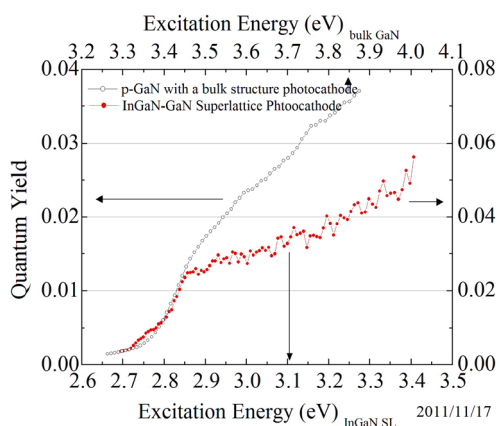


図5. バルク構造 GaN 半導体フォトカソードと InGaN-GaN 超格子半導体フォトカソードの励起エネルギー依存の量子効率スペクトラム測定結果

この結果から、バルク構造の GaN 半導体フォトカソードがバンドギャップ 3.5 eV 付近から立ち上がりその後単調に量子効率が增加するのに対して、InGaN-GaN 超格子半導体フォトカソードでは、階段状に増加している (2.85 eV 付近にステップがある) ことがわかる。これは、超格子構造内の光励起された電子が伝導帯内で量子閉じ込め効果を受け、エネルギー幅の限られた状態 (ミニバンド) に閉じ込められていることを示している。

更に、バンドギャップ付近の放出光電子のエネルギー分散を評価するために、それぞれの量子効率の励起エネルギーによる微分スペクトラムを導出した (図6)。バルク構造

GaN 半導体と InGaN-GaN 超格子半導体のエネルギー微分スペクトラムにおいて、それぞれバンドギャップ付近にピークを持ち、そのピークの半値幅におけるエネルギー幅は、それぞれバルク構造 GaN 半導体フォトカソードで 0.11eV、超格子半導体フォトカソードで 0.044eV であった。これは、超格子半導体フォトカソードを用いることにより、放出電子のエネルギー分散をバルク構造よりも半分以下に小さくできることを示唆している。

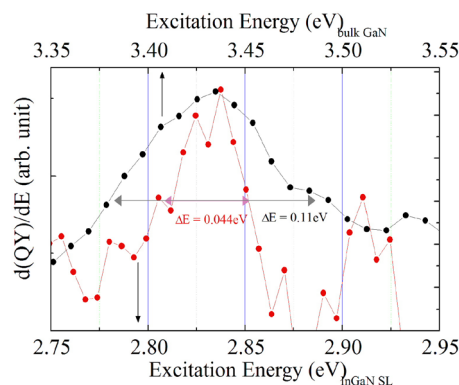


図6. バルク構造 GaN 半導体フォトカソードと InGaN-GaN 超格子半導体フォトカソードの励起エネルギー依存の量子効率スペクトラム測定結果から得た微分スペクトラム

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6件)

- ① Quantum yield degradation from extraction of photocurrent and residual gas in a p-GaN photocathode with an NEA surface
Kazuya Hayase, Tomohiro Nishitani, Takashi Meguro, The Electronic Journal Edition of IEEJ Transactions, to be published, 査読有
- ② Superlattice Photocathode for High Brightness and Long NEA-surface lifetime
T. Nishitani, M. Tabuchi, K. Motoki, T. Takashima, A. Era, Y. Takeda, Journal of Physics: Conference Series, 298, 012010, pp.1-5, (2011), doi: 10.1088/1742-6596/298/1/012010, 査読有
- ③ A study on XAFS analysis of Cs/GaAs NEA surface
Atsushi Era, Masao Tabuchi, Tomohiro Nishitani, and Yoshikazu Takeda, Journal of Physics: Conference Series, 298, 012012, pp.1-5, (2011), doi:

10.1088 /1742-6596/298/1/012012, 査読有

- ④ A study of an electron affinity of cesium telluride thin film
H Sugiyama, K Ogawa, J Azuma, K Takahashi, M Kamada, T Nishitani, M Tabuchi, T Motoki, K Takashima, A Era and Y Takeda, Journal of Physics: Conference Series, 298, 012014, pp.1-6, (2011), doi: 10.1088 /1742-6596 /298 /1 /012014, 査読有
- ⑤ High Brightness Spin-Polarized Electron Source using Semiconductor Photocathodes
Tomohiro Nishitani, Masao Tabuchi, Yoshikazu Takeda, Yuji Suzuki, Kazuya Motoki, Takashi Meguro, Japanese Journal of Applied Physics 48 (2009) 06FF02, DOI: 10.1143 /JJAP.48.06FF02
- ⑥ Superlattice Photocathode With High Brightness And Long NEA-surface Lifetime
Tomohiro Nishitani, Masao Tabuchi, Yoshikazu Takeda, Yuji Suzuki, Kazuya Motoki, Takashi Meguro, The American Institute of Physics: Conference Proceedings, Volume 1149, pp. 1047-1051, (2009), DOI: 10.1063/1.3215590, 査読有

[学会発表] (計6件)

- ① 高耐久・高輝度 AlGaAs-GaAs 超格子フォトカソードの開発
西谷智博, 第4回フォトカソード研究会 2010年11月12日, 広島県 東広島市
- ② 超格子半導体フォトカソードを用いたパルス電子ビーム源の開発 (指定講演)
西谷智博, 第66回日本顕微鏡学会学術講演会、2010年5月23日, 愛知県名古屋市
- ③ 負電子親和力表面を持つ半導体フォトカソードの半導体材料と電子源装置の開発
西谷智博, 第3回フォトカソード研究会, 2009年10月1日-2日, 愛知県 名古屋大学
- ④ High brightness electron source for pulse electron gun using semiconductor photocathodes with NEA surface
Tomohiro Nishitani, Masao Tabuchi, Yoshikazu Takeda, Kazuya Motoki, Kento Takashima, The Twelfth Frontiers of Electron Microscopy in Materials Science (FEMMS2009), pp.78, September, 27-October 2, 2009, Sasebo, Japan
- ⑤ 負電子親和力表面の半導体を用いた

30keV フォトカソード電子銃の開発
西谷智博, 田淵雅夫, 竹田美和, 鈴木祐史, 元木和也, 日本顕微鏡学会第64回学術講演会, 2009年5月26日~26日, 宮城県 仙台国際センター

- ⑥ Development of Pulse Electron Gun with High Brightness Electron Source Using Superlattice Photocathode
Tomohiro Nishitani, Masao Tabuchi, Yoshikazu Takeda, Yuji Suzuki, Kazuya Motoki and Takashi Meguro, OIST Workshop, "Fundamentals of Quantum Mechanics and Its Applications", May 13-15, 2009, Okinawa, Japan

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計1件)

名称: PHOTOCATHODE SIMICONDUCTOR DEVICE
発明者: 西谷 智博
権利者: 独立行政法人理化学研究所
種類: US Patent Application
番号: 2010/ 0108983 A1
取得年月日: 2010/5/6
国内外の別: 国外

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西谷 智博 (NISHITANI TOMOHIRO)

独立行政法人理化学研究所・延與放射線研究室・客員研究員

研究者番号: 40391320