CsKTe 薄膜による GaAs の NEA 活性化

広島大学大学院

先端物質科学研究科 量子物質科学専攻

M172386 正木 一成 指導教員:栗木 雅夫 教授 副指導教員:檜垣 浩之 准教授

Abstract

スピン偏極電子はスピントロニクスや表面磁気現象研究といった分野において重要 な役割を果たす。現在日本の東北地方に建設が予定されている次世代線形加速器 International Linear Collider (ILC)では、スピン偏極電子ビームを用いた電子・陽電 子衝突実験によってヒッグス粒子の詳細研究や超対称性粒子の発見などを目指してい る。そのため電子源には偏極電子の放出能力が求められる。この要求を唯一満たす電子 源として NEA (Negative Electron Affinity)-GaAs フォトカソードが存在する。 NEA と は真空準位が伝導帯の最下部を下回った表面状態のことで、偏極電子放出のために欠く ことのできない表面である。 通常 NEA は Cs と O または NF3を GaAs 表面に吸着させ ることで作成するが、Cs の熱脱離やガス吸着、イオン逆流によって引き起こされる IBB によって容易に劣化する。そのため極高真空が必要であり、また静電型電子銃での使用 に限られるなど、運用に制限がある。 高耐久 NEA-GaAs の開発が実現すれば、RF 電子 銃での使用が可能となり、またダンピングリングなどの設備が不必要となるなど、技術 的・コスト的に大きなメリットがある。高耐久 NEA 作成のため広島大学ではヘテロ接 合モデルに基づく NEA 活性化手法を提案しており、現在までに Cs-Te 薄膜を用いた NEA 活性化が確認されている。本研究では Cs-Te 薄膜に代わる半導体薄膜として Cs-K-Te を選定し、NEA 活性化試験を行った。結果、NEA 活性化が確認され、さらにガ ス吸着による劣化に対して、従来の Cs-O/GaAs と比較しておよそ 22 倍の長寿命化が 達成された。また偏極電子放出に必要なエネルギー1.43eV に対する時間寿命を概算し たところ、DC 電子銃を想定して 1500 時間を超える寿命が得られ、長時間運転に適用 できる結果が得られた。一方、0.1%を超えない低い量子効率や、RF 電子銃での運用に は依然適さない耐久性であるため、今後は本研究結果を生かした材料選択などによって、 両者の改善をする必要がある。

目次

1
4
4
6
8
. 12
. 12
. 13
. 17
. 18
. 18
. 18
. 20
. 21
. 21
. 23
. 25
. 25
. 28
. 29
. 30
. 31
. 31
. 31
. 32
. 34
. 34
. 36
. 38
. 40
. 43
. 45
. 47
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·

第6章	CsKTe/GaAs カソードの評価	55
第7章	まとめと今後	56
付録A	フォトカソードの量子効率	58
付録 B	NEA-GaAs カソードの劣化に対するモデル式	58
B.1 Cs	s 熱脱離	58
B.2 ガス吸着		59
B.3 Ion Back Bombardment		
付録 C エリプソメータによる膜厚測定原理		
謝辞		62
参考文献	<u>.</u>	63

第1章 序論

現代科学の発展は加速器なしには達成しえないといっても過言ではないほど、加速器 およびその技術発展は、現代科学にとって必要不可欠となっている。そもそも加速器は 1930年前後に開発された静電型加速器のコッククロフトワルトン型、パンデグラフ型、 RF加速によるサイクロトロン加速器から始まった。この時代には加速粒子を標的に当 ててその反応を見ることに用いられてきた。1960年代には衝突型加速器が開発され、 加速させた粒子同士を衝突させることにより重心系エネルギーの向上を可能にした。加 速器の発展に伴い加速粒子のエネルギーは上昇し、また放射光や中性子などの二次粒子 の利用に代表されるように、加速器の利用分野は基礎研究から工業利用、医学利用など へ広がっている。

現在稼働している CERN(欧州原子核物理研究所)の LHC(Large Hadron Collider)で は数 TeV から数十 TeV の陽子同士のコライダー実験が行われている。2012 年には LHC を用いて実験的にヒッグスボソンの発見がなされた。LHC では加速粒子が複合粒子の ハドロン(陽子)であることから、粒子衝突の際その一部のみが反応に寄与するため、 始状態が厳密に決定されず、さらに反応に寄与しなかった残りの粒子はバックグラウン ドとなり測定を困難にしている。物理実験の観点からは電子・陽電子などの「素粒子」 同士の対消滅反応により、ヒッグス粒子などを生成して、その精密測定を行うのが理想 であるが、電子・陽電子円型加速器によるコライダーでは粒子エネルギーの四乗に比例 して発生する放射光によるエネルギー損失が膨大となり、2000 年に稼働を停止した LEP(Large Electron Collider)の重心系エネルギー209GeV を大きく超えるエネルギー 向上は難しい。さらなるエネルギー向上を目指して、シンクロトロン輻射が原理的に生 じない線形加速器をベースとした電子・陽電子コライダーILC(International Linear Collider)が計画されている。

ILC では加速に 10km にわたる超伝導線型加速器を用い、250GeV まで電子と陽電子 を加速し、中央で衝突させる。ILC では電子と陽電子のビームエネルギーやスピンによ り始状態を厳密に決定ができ、さらに陽子衝突に比べて圧倒的にバックグラウンドを少 なくすることで測定の精度を上昇させることができる。このような性能をもつ ILC が 実現した際にはヒッグス粒子による質量生成機構の精密測定、超対称性粒子、ダークマ ターの発見が期待されている。

高エネルギー素粒子物理に加えて、加速器から放出される放射光を用いた物質科学や 応用研究は、各々の分野にとって欠かせないものとなっている。放射光には高輝度、短 パルス性、コヒーレント性などの高い性能が常に要求され、それを実現するためにはビ ーム電流を増大させ、バンチ長を短くし、ビームエミッタンスを小さくすることが求め られる。円型加速器において電子ビームのバンチ長やエミッタンスはビームの光学設計 (電磁石の配列等)によって平衡状態として自動的に決定され、原理的にその値を上回 るような高性能ビームを実現することは不可能である。一方、線型加速器では平衡状態 が存在しないため、ビーム性能は初期ビーム状態を決める電子源に大きく依存する。逆 に、きわめて高い性能のビームを電子源で生成できれば、線形加速器により究極の高性 能ビームを発生させることが可能である。そのため、線型加速器による究極の高性能ビ ームの実現を目指し、高性能電子源の開発が現在盛んに行われている。

電子源のうち、高性能電子源として期待されているのがレーザーフォトカソード、す なわちレーザー光電効果により電子ビームを発生させる方法である。そのなかでも、 NEA(Negative Electron Affinity)-GaAs フォトカソードは、90%を超える高いスピン偏 極が可能であり、また極めて低いエミッタンスのビーム生成可能であることから、ユニ ークな存在である。ILC におけるスピン偏極電子ビームは、この NEA-GaAs フォトカ ソードにより生成される。

NEA-GaAs フォトカソードは Zn を添加した GaAs の表面にセシウムと酸素を蒸着 することで形成される NEA 状態、すなわち伝導帯の底よりも真空準位が低い状態のこ とである。NEA-GaAs フォトカソードは、表面に円偏光状態のバンドギャップ相当の 光を入射することで、高偏極電子を取り出すことが可能で、また超格子構造を利用して 準位の縮退をとくことで 90%の偏極度を実現している。電子が伝導帯で熱化されるこ とで、高量子効率と低エミッタンスを兼ね備えることから、高品質電子源として今後の 利用が期待されている。

高品質電子ビームを提供する NEA-GaAs フォトカソードの問題点は他のフォトカソ ードに比べて耐久性が低いことである。現状では RF 電子銃での利用、あるいは大電流 を必要とする加速器では十分な加速器運転稼働時間が確保できない。NEA-GaAs フォ トカソードの高耐久化が実現すれば、RF 電子銃での使用、さらに大電流での運転が可 能になり、大幅に適用範囲を拡大できる。また、現在研究が進められている ILC にエ ミッタンス交換技術を適用させるための設計研究では RF 電子銃が想定されており [1][2]、高耐久 NEA-GaAs の必要性は高まっている。

広島大学では耐久性の低さが確認されている Cs-O による NEA 活性化に代わり、高 い耐久性を期待してヘテロジャンクションモデルに基づく Cs-Te 薄膜による NEA 活性 化を試みた。結果としては Cs-Te 薄膜を清浄 GaAs 表面に蒸着することで、GaAs のバ ンドギャップ相当の光に対して 0.3%程度の量子効率が得られ、NEA 状態となっている ことが確認されたが、量子効率が低いこと、耐久性の改善が見られないことが課題であ った。本研究では Cs-Te 薄膜に代わる新たな薄膜として CsKTe 薄膜による GaAs の NEA 活性化試験を行った。第2章では NEA-GaAs の性能およびその役割と、劣化に ついて説明する。第3章ではヘテロ接合モデルによる高耐久 NEA 表面の作成の現状と CsKTe 薄膜を用いた NEA 活性化の検討について述べる。第4章では本研究における 実験方法および実験装置について説明を行う。第5章では実験の結果と考察について述 べる。第6章では研究結果を踏まえて CsKTe/GaAs フォトカソードの評価を行う。

第2章 NEA-GaAs カソード

2.1 NEA-GaAs カソードの加速器科学における役割

序章で述べたように、現在、電子・陽電子コライダーによる 250GeV を超える重心系 エネルギーの実現、そして電子蓄積リングによる第三世代放射光源の性能を超える、高 輝度、短パルス、コヒーレント放射光(第四世代と呼ばれる)の実現が、大型加速器に よる加速器科学の大きな課題となっている。

250GeV を超える重心系エネルギーを持つ電子・陽電子コライダー実現のためには、 原理的にシンクロトロン放射が存在しない線型加速器をベースとした電子・陽電子コラ イダー (リニアコライダー) が提案されている。ILC(International Linier Collider)は、 1990 年代に各国で計画された多くのリニアコライダー計画を、ICFA(International Committee for Future Accelerator)のイニシアチブのもとで世界統一プロジェクトと し、推進されている計画である。このプロジェクトは欧州・アジア・アメリカの3つの 地域が協力し、設計開発は2013年の技術設計書の出版をもって終了し、現在はその実 現にむけて文部科学省主導による検討が進められている。

ILC は一期計画において重心系エネルギーに換算して 500 GeV、二期計画において は 1 TeV までエネルギーを増強し、ヒッグス粒子の詳細研究による素粒子物理学の新 しい枠組みの発見、超対称性粒子の発見などを目指している。

第四世代放射光源は、自由電子レーザー(Free Electron Lazer)と呼ばれる加速器で、 線型加速器から供給された、短パルス、低エミッタンスビームからコヒーレント放射光 を発生させる。円型加速器におけるビームの位相空間分布は円形軌道内のビームダイナ ミクスによる平衡状態により自動的に決定されるが、線型加速器ではその制限を超えて、 高品質ビームを生成できる。FEL は線形加速器で実現可能な高品質電子ビームにより 放射光をコヒーレントに発生させ、第三世代放射光源の輝度を数桁上回るコヒーレント 光を発生できる。

円型加速器では供給するビーム電流*I_{inj}は、*加速器を周回するビーム電流*I_{beam}の損失分であるので、次式で与えられる。*

$$I_{inj} = \frac{I_{beam}}{\tau}.$$
(2.1)

ここで、 τ は蓄積ビームの寿命であり、通常の円型加速器であれば数時間程度となる。 すなわち、ビーム寿命の分だけ、供給するビームは少なくて良い。これが円型加速器で 大電流が容易に実現できる理由である。一方、線型加速器では、加速器のビーム電流と 供給するビーム電流は等しいので、一般的に円型加速器並の大電流を実現するのは困難 である。 ILCでは、特定のスピン偏極状態を持った極低エミッタンスの電子・陽電子ビームを 生成し、ルミノシティ(輝度、反応確率に比例)を高めることで、低いビーム電流をカ バーする。線型加速器ではビームの品質は使用する電子源の性能に直結するため、ILC では電子源で高スピン偏極電子ビームを発生させなくてはならない。電子の異なる2種 類のスピン状態は、電弱相互作用のため対称ではない。そのため始状態を厳密に定義し、 精度よく測定を行うためには高い偏極度を持つ電子ビームが必要なのである。

この要求に応え得る唯一の電子源として NEA-GaAs フォトカソードがある。1975 年 に D. T. Pierce によって GaAs から偏極電子を放出する方法が発見され、45%の偏極率 が実現された[3]。さらに、GaAs 基板に歪み超格子を使うことによって縮退した軌道角 運動量のエネルギーを分裂させ、エネルギーを調節した円偏光レーザーで励起すること で高偏極電子ビームを生成することができる。高偏極電子ビーム生成は素粒子反応の初 期状態を厳密に定めるために必要な技術であり ILC にとっては欠かせないものである。 現状では、X. G. Jin らによって 90%の偏極率と 1.6%の高量子効率の両立を実現した、 補償型超格子カソードが開発されている[4]。

このように偏極率と量子効率については発展している一方、NEA-GaAs フォトカソ ードの耐久性は限定的であり、その向上研究はあまり進んでいない。ILC で必要となる 平均ビーム電流は 50µA でありこれまでの NEA-GaAs フォトカソードの寿命測定研 究から、十分な運転時間を確保できるとされているが、先進的な電子源であるフォトカ ソード RF 電子銃での利用は困難である。RF 電子銃で NEA GaAs カソードが利用でき ない理由は、RF 電子銃内部では高い加速勾配による暗電流(空洞壁からの電界放出電 子)が発生し、その暗電流電子がカソードに逆流し、またあるものは壁に再衝突して酸 素などのカソード性能を劣化させるガスを発生させるなどするためである。NEA-GaAs フォトカソードの高耐久化に成功すれば、RF 電子銃での利用が可能になり、複雑な電 子ビーム入射部の構造を簡素化できる。例えば電子ビームの低エミッタンス化のために 必要な周長 3km のダンピングリングが不要となるなど、コスト面においてもメリット があり、適用可能性が拡大する。よって NEA-GaAs フォトカソードの高耐久化による 恩恵は大きい。

NEA-GaAs カソードでは、電子は伝導帯の底を這うようにして真空中へと放出され る。この過程で電子は熱化され、カソード温度(室温)で決まるエミッタンスを有する。 この値は 1000℃以上で運転される熱陰極よりも格段に低いのはもちろんのこと、 PEA(Positive Electron Affinity)カソード、すなわち真空準位が伝導帯よりも高い通常 の金属や半導体カソードよりも格段に低い。低エミッタンスビームは FEL をはじめ、 多くの加速器のビームにとって有用な性能であり、この点からも NEA GaAs カソード の高耐久化はメリットが大きい。

 $\mathbf{5}$

2.2 NEA-GaAs フォトカソードによるスピン偏極電子の生成

NEA-GaAs フォトカソードは GaAs 半導体表面に Cs と酸素またはフッ化窒素を蒸 着させ、NEA(Negative Electron Affinity)と呼ばれる電子親和力(真空準位と伝導帯の 低の差)が負の状態を作り出したフォトカソードである。NEA 活性時には p 型半導体 のバンドベンディングとアルカリ金属の蒸着による電気二重層形成の2つが真空準位 を下げる役割を果たしている。GaAs のエネルギー準位図を Figure 2.1 に示す。真正 GaAs は Figure 2.1(a)のようなエネルギー準位を持つ。フェルミ準位はバンドの中間に 位置し、電子親和力は 4.3 eV、バンドギャップは 1.43 eV という値を持つ。Figure 2.1(b) に示す Zn をドープした p-type GaAs の場合は価電子帯の上にアクセプター準位が形 成される。室温では Zn はイオン化し価電子帯中にホールを供給し、電子数とホール数 の平衡を保つためにフェルミ準位は価電子帯近傍にピン止めされる。表面では対称性の 破れによって垂直方向に量子化した表面準位が存在する。熱平衡では半導体内でフェル ミ準位は一定であるから表面準位による局所的なエネルギーの差は表面でのバンド彎 曲を生じる。バンドベンディングによってポテンシャルが低下する分実効的な GaAs の 真空準位も低下する。バンドベンディングの距離 x とバンド彎曲によるポテンシャル変 化の大きさ V_bはドープ量 N_Aによって制御され、次の関係式であらわされる。[5]

$$\mathbf{x} = \sqrt{\frac{2\epsilon V_b}{eN_A}}.$$
 (2.2)

ここで ϵ は誘電率、e は素電荷量である。Zn が 5×10¹⁹cm⁻³ドープされた GaAs の場合 を考えるとバンド彎曲の距離は~10 nm 程度である。これは光の吸収長の典型的な距離 ~1 μ m よりも十分短く、電子の励起はバルクの電子の寄与がほとんどだといえる。 Figure 2.1(c)のように GaAs 表面に Cs と酸素の蒸着を行った場合電気陰性度の低い Cs-O 側から GaAs 基板側へと電子の移動が起こり,表面に電気二重層を形成する。これ により真空準位が下がる。このプロセスにより NEA 状態を作ることができる。



Figure 2.1 GaAs のエネルギー準位模式図 (a)真性 GaAs (b)p-type GaAs (c)NEA-GaAs

NEA 状態では、バンドギャップ付近のエネルギーで励起された電子も表面ポテンシャルで反射されずに真空中に放出される。これにより NEA-GaAs はバンドギャップに相当する波長の光に対しても高い量子効率を得ることができる。これにより、スピン偏極電子の生成が可能となることを以下に説明する。[6]

スピン偏極電子は GaAs 結晶に円偏向したレーザー(波長 700 ~ 800nm)を照射する ことで、光電効果によって発生する。Figure 2.2(a)にバルク GaAs 結晶のバンド構造の 様子を示す。バルク GaAs 結晶では伝導帯は J=1/2 の角運動量の軌道のみでできてお り、価電子帯最上部は J=2/3 の角運動量の軌道でできている。円偏向したレーザーは角 運動量±1を持っていることから、この光のエネルギーを受け取った自由電子は運動量 変化 Δ J = ±1を伴って価電子帯から伝導帯へと励起される。右巻きの光子による励起 を仮定する。入射する光子のエネルギーを 1.43eV 以上、1.77eV 未満に設定することで J=1/2 の軌道からの励起は強く抑制されるため、J=2/3 準位の m= -2/3、m=-1/2 状 態からの遷移のみが可能となる。J=2/3 準位の状態密度は Clebsh-Gordon 係数により m=-2/3 と m=-1/2 が 3:1 となっているため伝導帯で得られる電子のうち 75%は m= -1/2、25%は m=+1/2 となる。



Figure 2.2 GaAs のバンド構造と伝導帯への光子による励起の様子[7]。(a)はバルクの GaAs 結晶、(b)はゆがみ GaAs 結晶についての図。角運動量 3/2 状態の縮退が歪みによって解かれている。

ビーム偏極度は

$$P = \frac{N_+ - N_-}{N_+ + N_-},$$
(2.3)

と定義される。N±は電子のヘリシティ状態の密度である。よって GaAs 結晶に円偏向 したレーザーを照射することで得られる電子の偏極度は 50%となる。

この偏極度は J=2/3 準位の密度によって決定され、これは量子力学によって決まって いるため変更はできない。よって 50%偏極がバルク GaAs 結晶を用いた時の理論上の 限界値である。さらに高い偏極度を得るために m=±1/2 と m=±2/3 の状態の縮退を解 く方法が考えられ、それは歪み GaAs や超格子 GaAs によってなされている。これによ り m=±1/2 からの遷移を抑制することができる。原理的には 100%の偏極度が実現可 能であり、名古屋大学のグループによって歪みカソード[8]、歪み超格子カソードが開発 され、92%の偏極度が実現されている[9]。

このようにして伝導帯に偏極電子が励起されるが、一般に伝導帯の準位は真空準位よ りも低いため電子は真空中に放出されない。放出させるためには仕事関数よりも大きな エネルギーを電子に与えて励起させる必要があるが偏極電子は光子のエネルギーをバ ンドギャップに限りなく近づけることで得られるため GaAs のみでは偏極電子を真空 中に放出することは不可能である。よって先に述べた NEA 表面を GaAs に形成するこ とによって伝導帯に励起された偏極電子を真空中に放出することが可能となる。このよ うに偏極電子を GaAs から得るためには NEA 表面は欠くことのできないものである。

2.3 NEA-GaAs フォトカソードの劣化プロセス

フォトカソードを使用し続けると劣化が起こり、これはカソード材によって異なる。 純金属フォトカソードは大気暴露に対して高耐久であり量子効率はほとんど変化しな い。一方で、NEA GaAsは、様々な原因により量子効率が低下していく。量子効率が低 下すると、レーザーパワーを大きくあげる必要があり、また加速器で必要な運用時間を 確保できないなどの問題が生じる。この劣化のプロセスを解明し、対策を施すことによ りこの問題を解決することができる。NEA-GaAsフォトカソードの劣化のプロセスに は、(a)Csの熱脱離、(b)真空中残留ガスのNEA表面への吸着、(c)Ion Back Bombardment(IBB)の3つがある。

(a)Cs 熱脱離

熱脱離とは、NEA 表面の最表面に形成されている Cs-O 層が、熱的に脱離することで、NEA カソードが劣化する現象であり、カソードの温度に強く依存する。その概図 を Figure 2.3 に示す。



Figure 2.3 Cs の熱脱離による劣化プロセスの概図。Cs が脱離することで NEA が失われる。

これまでの研究においても NEA 表面の詳細な分子の結合条件および分子状態の詳細 は判明していないが、加熱時の Cs 脱離の観測や量子効率の減少率から活性化エネルギ ーが 1.0~2.0eV であると推定されている[10][11][12]。Cs の熱脱離によるカソードの劣 化をモデル式で表すと、(導出は付録 B.1 で述べる。)

$$\eta = \eta_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_{td}}\right), \tag{2.4}$$

となる。ここで η o は初期の量子効率を表し、 τ td は熱脱離による寿命で、

$$\tau_{td} = -\frac{1}{v} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right),\tag{2.5}$$

と表される。ここで ν は頻度因子、k はボルツマン定数、T は温度[T]を表している。こ の式からある一定の温度の下で量子効率は指数関数的に減衰することがわかる。これま での研究により、Cs の活性化エネルギーは 1.0~2.0eV であることがわかっており、室 温から 50℃程度の温度では他の効果に比べて無視できるほど小さい。よって実験を室 温で行うと仮定すれば Cs の熱脱離による劣化は考慮しなくてもよいと考えられる[13]。 一方で、この活性化エネルギーの値は、Cs-O と GaAs 間の結合が、化学結合のような 強固なものではなく、物理吸着に近いものであることを示唆しており、NEA 表面の脆 弱を示す一つの証拠である。

(b)ガス吸着

真空中残留ガスのNEA表面への吸着とは特定の分子が表面に吸着し化学反応を行う ことで、NEA活性が失われる現象である。ガス吸着を表した概図を Figure 2.4 に示す。



Figure 2.4 ガス吸着による劣化プロセスの概図。チェンバー内の残留ガスが表面に吸着する ことで NEA 表面が劣化する。

ガス吸着による量子効率の減衰を表したモデル式は、(導出は付録 B.2 で述べる。)

$$\eta = \eta_0 \exp\left(-\frac{\int P dt}{\tau_a}\right),\tag{2.6}$$

と表される。 η_0 は初期の量子効率、Pは一つのガス種の真空分圧、 τ_a はガス吸着に依る寿命であり圧力×時間の寿命である。

主な残留ガスについて、NEA 活性の影響が調べられており、特に水や酸素でその効 果が大きい。逆に水素、窒素、アルゴン、そしてエチレンなどは影響がほとんどないこ とがわかっている。二酸化炭素に対しては酸素の10分の1程度の効果であるが劣化が 生じることから、二酸化炭素が残留ガスとして1×10⁻¹¹Pa 程度存在しているときの寿 命を計算すると数千時間であることがわかり、このことから特定ガス種の分圧を十分低 く抑えれば加速器を運転する上で十分な時間を確保できることがわかる。[14]

(c)イオン逆流

イオン逆流とは、カソードから発生した電子ビームによりイオン化された残留ガスの 原子分子がカソードに逆流し、NEA 表面に衝突することで NEA 表面を破壊する現象 である。これは光電流引きだし時に支配的になる。イオン逆流を表した概図を Figure 2.5 に示す。



Figure 2.5 IBB による劣化プロセスの概図。逆流した陽イオンが表面に衝突し、NEA 表面が破壊される。

イオン逆流による劣化をモデル式によって表すと、(導出は付録 B.3 で述べる)

$$\eta = \eta_0 \exp\left(-\frac{\int J \times Pdt}{\Theta}\right),\tag{2.7}$$

となる。ここで η o は初期の量子効率、J は電流密度、P は真空圧力、O は真空度と電子 発生領域の面積で規格化されたイオン逆流による量子効率劣化の寿命を表している。イ オン逆流による劣化については、電子励起に用いるレーザーの位置を電子銃の電場の中 心からずらすことで寿命を数十倍改善できる。[14]

以上の3つの劣化プロセスの内、Csの熱脱離に関しては無視してよいためガス吸着 とイオン逆流による劣化について考慮する必要がある。ガス吸着による劣化が支配的な 時間寿命、イオン逆流による劣化が支配的な電荷引き出し寿命の2つについて高耐久な NEA-GaAs カソードが求められる。

広島大学の光陰極試験装置で測定した NEA-GaAs では、GaAs のバンドギャップに

相当する 1.4 eV 付近で 2%近くの高い QE が得られた。Figure 2.6 に同じく広島大学で 得られた QE の減衰の様子を示す。これは NEA-GaAs 作成後に He-Ne レーザー(波長 633 nm)で測った時間寿命を示したものである。NEA 活性化後の数十~100 時間程度 量子効率が回復する領域がある。その後はほぼ指数関数的に QE が減衰していく様子が 見て取れる。



Figure 2.6 NEA-GaAs の QE の時間変化 at pressure~10-9 Pa[15]

第3章 高耐久 NEA 開発とその現状

この章では耐久性が限定的である Cs-O 薄膜による NEA-GaAs カソードの高耐久化 を目指し、ヘテロジャンクションモデルに基づく NEA 開発の現状について述べる。

3.1 ヘテロ接合モデルによる NEA 活性化

表面に NEA 状態を形成する物質は Cs-O 薄膜を用いた GaAs 以外にも存在してい る。例を挙げると水素終端ダイヤモンド[16]や Cs-GaN[17]などがある。GaAs や GaN はアルカリ金属を吸着させ表面に電気二重層を作ることで NEA を作成している。この NEA 表面は、活発な Cs が存在し、また表面状態の活性化エネルギーは 1eV 程度と弱 く結合しているだけなので、前述した他の残留分子による反応や、イオン衝突等によっ て容易に破壊され、耐久度は限定的である。



Figure 3.1 ヘテロ結合による GaAs の NEA 表面のエネルギー準位を模式的に あらわしたもの。縦軸はエネルギー、縦軸より左側は GaAs、右側は表面半導体 薄膜、白抜き部分は真空を表す。

このような表面電気二重層にかわり NEA 表面を形成するアプローチとして、半導体へ テロ接合がある。ヘテロ接合とは結晶構造と格子定数が近い異なる半導体の接合のこと である。これまでに AlAs-GaAs や InAs-GaSb など非常に多くの半導体の組み合わせ についてヘテロ接合構造が調べられている。このヘテロ接合による NEA 活性化では異 種の半導体を接合したときのエネルギー準位の差を利用して真空準位を制御する。その 概要を Figure 3.1 に示す。縦軸はエネルギー準位、軸の左側がバルク半導体、左側の色 つき部分が表面半導体、白抜き部分が真空をあらわしている。半導体接合では、熱平衡 状態のときフェルミ準位が一致するように相対的な準位が決まる。それぞれの半導体で フェルミ準位に対する伝導帯と価電子帯の位置は変わらないので、バルク半導体の実効 的な仕事関数(フェルミ準位と真空準位との差)は、表面半導体のそれと同じになる。 バルク半導体の伝導帯準位の底 ECBM が真空準位よりも低い位置にくれば、実効的な NEA 表面が実現する。その条件は、フェルミ準位 Erを基準として

$$E_{CBM} - E_F > \phi_{film}. \tag{3.1}$$

ϕ_{film}は薄膜半導体の仕事関数である。

実際に半導体薄膜を形成して、カソードとして機能させるには、エネルギー準位につい ての条件に加え、光電効果に使用する波長の光(700nmから 800nm程度)に対して、薄 膜が高い透過率を持つこと、耐久性が Cs-O による NEA 表面よりも高いこと、格子定 数が GaAs に近く、良質の薄膜結晶を形成できること、などが条件となる。

3.2 Ce2Te フォトカソードによる NEA 活性化

Cs-Te を薄膜として GaAs の表面に成膜すると、真空順位が伝導帯の最上部を下回る ことが光電子分光法を用いて観測され、2011年に報告されている[18]。その報告を元に 広島大学で行われた、"Cs-Te 薄膜による GaAs フォトカソードの NEA 活性化研究" (内 田和秀修士論文 2015 年度) では、Cs-Te 薄膜を用いて、ヘテロジャンクションによる NEA 活性化が試された[19]。Cs-Te 薄膜は、Cs₂Te フォトカソードとして運用されてい る薄膜である。Cs2Te フォトカソードは Mo などの金属基板上に Te と Cs を蒸着して 作られる半導体フォトカソードである。 このカソードのバンドギャップは 3.5 eV (波長 換算で 354 nm)、電子親和力は 0.2 eV であり、光の波長に対して Figure 3.2 のような 応答性を持つ。縦軸は量子効率、横軸はフォトカソードへの入射光エネルギー[eV]を表 している。波長250nm付近では10~20%程度の高い量子効率を持つ上、半導体フォト カソードの中では耐久性が比較的高く、RF-gun で 300 時間、DC-gun800 時間、輸送 キャリア中では 3300 時間の寿命が得られている[20]。この性能により Cs2Te フォトカ ソードは様々な加速器や試験機での運用がなされてきた。常伝導RF電子銃については DESY の FEL FLASH で 1.3 GHz の周波数での運転がなされている。また CERN の the Compact Liner Collider(CLIC)/CLIC Test Facility(CTF2)では 3GHz での運転 がなされている。超伝導 RF 電子銃については Forschungszen-trum Rossendorf(FZR) で1.3GHzの周波数で運転がなされている。



Figure 3.2 入射光エネルギー(eV)に対する Cs_2Te カソードの量子効率。図中には Los Alamos のデータと Powell のデータを表示している。 [21]

Cs-Te 薄膜を用いた GaAs フォトカソードの NEA 活性化は Cs-O 薄膜による NEA 活性化に比べて高耐久なフォトカソードの開発を目的として広島大学によって研究された。加熱洗浄を施した GaAs 基板上に Te を蒸着させ、その後 Cs を蒸着させて量子効率を測定している。様々な Te 膜厚による Cs-Te/GaAs フォトカソードの量子効率を Figure 3.3 に示す。



Photon Energy [eV]

Figure 3.3: CsTe 薄膜による NEA 活性化の試験結果。横軸に光子エネルギー[eV]、縦軸に光電効果の量子効率[%]を示す。異なる記号は Te 異なる Te 膜厚による結果 を示す。

縦軸は量子効率(%)、横軸は入射光のエネルギー[eV]を表し、異なる記号は異なる Te 膜厚による結果である。GaAs 表面に Te を薄く(1・2 Å程度)成膜することで高い量子効 率が得られ、1.4 eV の波長ではおよそ 0.3 %の QE が得られた。全く Te を用いないと きにも 1.4eV での量子効率は得られているが、その値は二桁以上小さく、このことか ら Cs 単独(あるいは Cs と残留ガスとして存在している酸素)による活性化とは異な る、Cs-Te 薄膜が表面に生成され、それによる活性化がされていることがわかる。ま た、4.1eV の高いエネルギーを持つ光子に対して、10%を超える量子効率が得られて いる点も、Cs2Te 薄膜が表面に形成されている事実を示している。

次に様々な Te 膜厚に対するフォトカソードの時間寿命と励起光エネルギーとの関係 を示したグラフを Figure 3.4 に示す。縦軸は 1/e 時間寿命(h)、横軸は入射光のエネル ギー[eV]を表し、データ点の色等により Te 膜厚[A]を区別している。短波長側では、 Te 膜厚が大きくなるにしたがい、1/e 時間寿命が大きくなっている。高いエネルギー の光は、Cs₂Te および GaAs の双方で光電効果が生じるので、発生する電子は両者の



photon energy [eV]

Figure 3.4: 1/e 時間寿命[hour]を励起光エネルギー[eV]の関数として示したもの。異なる Te 膜厚による結果を異なる記号で示してある。

寄与をともに含んでいる。通常の薄膜カソードは数 10nm 程度の厚みで生成するが、 それに比べるとこの厚みは非常に薄い。このようなごく薄い薄膜カソードの場合、脱 離や吸着、反応などにより NEA を形成する物質が失われ、あるいは反応して活性化 を持たない化合物へと変化してしまった場合、その減少割合は物質量、すなわち膜厚 が薄い場合顕著となる。それゆえ、耐久性と厚みに比例関係があるものと思われる。 一方、波長の長い領域では、寿命の膜厚依存性は有意ではない。また、全体的に短 く、せいぜい 100 時間程度となっている。この領域の光では、Cs2Te からの光電効果 はほとんど起きないので、電子放出は GaAs から生じる。Cs-Te 薄膜を用いた GaAs フォトカソードの NEA 活性化には、Te を薄く蒸着させることでのみ可能であり、厚 くした場合は量子効率が低くなり、かつその影響は長波長側で大きい。これは光学反 射、あるいは減衰の効果であると思われる。Cs2Te のバンドギャップは GaAs のバン ドギャップに比べて十分に大きく、理論的には GaAs からの電子放出が支配的な長波 長側の光を透過するが、成膜が均一ではなく、Cs や Te 単体の領域が存在した場合に は、界面における金属反射が生じ、量子効率は極端に低くなる。また、Cs-Te 薄膜に 酸素などの残留ガスとの反応が生じた場合、反応性の高い Cs が酸素と結合し、Te が 単体化すると反射や吸収による光の減衰が生じ、量子効率の低下すなわち劣化が生じ る可能性がある。

この実験結果から、Cs-Te 薄膜によっても NEA 活性化が可能であること、一方で耐 久性の改善は限定的であることが示された。

3.3 CsKTe 薄膜を用いた高耐久 NEA 表面の開発検討

3.2 で述べたように、Cs-Te 薄膜を用いた NEA 活性化は可能ではあるが、耐久性の 改善には至らなかった。しかしヘテロ接合モデルに基づいた NEA 活性化手法の有効 性が示されている。Cs-Te に代わる別の半導体を薄膜として GaAs 表面に成膜するこ とで、半導体薄膜を用いた NEA 表面への理解が深まる、もしくは高耐久 NEA 表面作 成の可能性がある。そこで今回薄膜に用いる新たな半導体として CsKTe を選定した。

Figure 3.5 に Cs₂Te, K-Te, Cs-K-Te の光子エネルギーに対する QE スペクトルを示 す。薄膜半導体に要求される性質は、(3.1)式の条件を満たす仕事関数を持ち、870nm 程度の波長の光を透過し、堅牢であることである。CsKTe の仕事関数およびバンドギ ャップは不明だが、Figure 3.5 から 4.0 ~ 5.0eV の領域で 1.0 ~ 10%程度の高い量子効 率が得られていることや、アルカリ金属と Te からなる化合物であることから CsTe と 非常に似通った性質を持っていることがわかる。これらの理由から CsTe と同様に CsKTe にも NEA 活性化可能性を見出し、活性化試験を行った。



Figure 3.5 光子エネルギー[eV]に対する Cs-K-Te,Cs₂Te,K-Te の QE[%]スペクトル。いず れの半導体も薄膜として Mo 基板上に成膜されている。[22]

第4章 実験方法

この章では、本研究の実験方法と用いる装置について解説する。

4.1 実験の概要

本研究では真空容器内にて CsKTe-GaAs フォトカソードを作成し、波長に対する 量子効率スペクトルを測定した。カソード作成中は光電流値の測定と水晶振動子による 膜厚計を用いて CsKTe 膜厚のモニターを行った。カソード作成後は 5 分間隔で量子効 率スペクトルを取得し、各波長に対する量子効率の時間変化を測定した。この測定を 60 分から 90 分程度行ったのち、数時間ごとに量子効率スペクトルを取得し、カソードの 劣化の様子を測定した。以上から、具体的に 1) 波長に対する量子効率スペクトル、2) 膜厚と量子効率の関係、3)蒸着終了後の量子効率の時間変化、4)寿命測定の4つについ て調べた。

本実験を行うにあたり、真空蒸着装置と光電流測定機構を兼ね備えた真空容器と、 主に Xe ランプと分光器によって構成される光学系を使用した。現在の状況では 250nm~1000nmの波長領域で光電流を測定することが可能である。以降の節では使用 した装置の詳細と、実験方法についての詳細を述べる。

4.2 実験装置

本装置は、6 年前に広島大学で行われた Cs-Te 薄膜による NEA 活性化実験で用い られたものと同じものである。Figure 4.1 にその断面図を示す。この真空容器は SUS304 製で、イオンポンプ(排気速度 160l/s)および NEG ポンプ(排気速度 310l/s)に よる排気により、内部は典型的には 7.0×10⁻⁸ Pa 以下の超高真空に保たれる。寿命測定 実験の際には NEG ポンプを交換(SAES-Getters CapaciTorr D1000 排気速度 1000l/s) し、内部は 3.6×10⁻⁸ Pa 程度に保たれた。本真空容器内部には、NEA 活性化実験のた め、以下の部品が組み込まれている。

- カソードを固定し、温度などの制御機構を持ったカソードロッド。
- Cs, K および Te 蒸着源(Cs, K ディスペンサーおよびタングステンバスケット)
- 内部の真空圧力を測定するためのヌードイオンゲージ。
- 合成石英のビューイングポート
- 蒸着源移動用の真空移動ステージ

蒸着源は、上下の移動機構を有した Z ステージ上を挟んで本体に取り付けられている。蒸着源は上下方向に移動することができ、複数取り付けられている蒸着源を基板の正面にもっていくことができる。また正面からレーザーを照射する際には、光路を

ふさがないように移動する。

膜厚計は、蒸着源に対して、カソードと同距離の位置に設置している。蒸着源はその 断面を Figure 4.1 に示してあるように、カソードと膜圧計にたいして対称に蒸気を発 生するような形状としてある。ビューポートはカソードマウントを見込むように、正 面および斜め前方、合計2つ取り付けらえており、ともに紫外光まで導入できるよう に石英ビューイングポートを取り付けている。カソードロッドはセラミック管を挟ん で本体に取り付けられている。これによりカソードロッドと真空容器本体とは電気的 に絶縁されている。次項で、排気系およびカソードホルダーの構造、成膜に使用した 蒸着源および膜厚計、光学系について述べる。



Figure 4.1 真空容器断面模式図。下部に取り付けたポンプによって 3.5~7.0×10^sPa の真空圧力に保たれている。GaAs が先端に取り付けられており、真空容器とセラミ ックによって絶縁されているカソードロッド、上下移動機構のついた蒸着源と膜厚 測定のための水晶振動子、光をチェンバー内に入射するためのビューポートが取り 付けられている。

4.2.1 排気系および超高真空の確立

半導体フォトカソードの作成と維持には 1.0×10⁻⁸Pa あるいはそれ以下の超高真空状態が必要である。真空容器を超高真空にするためには、一般的にベーキング等により壁からの脱ガスの低減を図った上で、閉鎖排気系による排気を行う。そのため、本装置は

閉鎖排気系としてイオ ンポンプおよび NEG ポ ンプを、租排気系として ターボ分子ポンプとロ ータリーポンプを使用 した。

真空容器は SUS301 製 で、内部は化学研磨処理 をおこなっている。しか しこの真空壁内部を大 気にさらすと水素、酸 のガスが表面に吸着し、 その一部は内部へと吸 蔵される。この状態で内 部を排気しても、壁面か らの脱ガスにより、一般 的に超高真空を得るこ とは困難である。そのた





め、まずロータリーポンプとターボ分子ポンプにより粗排気を行い、内部を 1.0×10⁴Pa 以下とする。この状態で容器全体にリボンヒーターにより加熱し、ベーキングを施した。 ベーキングは、100℃で1日間維持し、その後さらに 200℃に昇温し、1日保つ。NEG ポンプは Ti-Zr-V の合金で、気体を吸着吸蔵することで排気を行う物質で、排気容量は 限定的であるが、最大排気速度は大きいため、超高真空下での排気ポンプとして使用さ れる。NEG は高真空下で昇温し、吸着しているガスを吐き出すことで排気能力を持つ という特性がある。この操作を活性化という。ベーキングの後半の 200℃に昇温してい る状態で、NEG ポンプの活性化を行った。NEG ポンプの活性化の後、温度を下げてい く。温度が下がるにつれて壁からの脱ガスが減少するため、真空圧力が下落していくが、 ある時点で粗排気側よりも真空容器内の圧力が下回るようになるので、その時点でアン グルバルブを閉じる。粗排気ポート(アングルバルブ)を軽くしめて、圧力上昇がみら れなくなれば、粗排気による実効排気速度が消失している証拠である。その後イオンポ ンプを起動させることにより、超高真空が確立する。アングルバルブを閉めた後に本体 下部に取り付けたヌードイオンゲージを使用し、内部の真空圧力を測定した。Figure 4.2 にベーキング中の真空圧力の変化をしめす。本実験では、ベーキングにより、典型 的に 7.0×10⁻⁸Pa (NEG 交換前)、3.6×10⁻⁸Pa (NEG 交換後)という超高真空が得られ た。この真空圧力は、実験には充分な値である。

4.2.2 カソードロッド

カソードロッドは GaAs の固定、光電流測定と温度測定、基板加熱という役割をもっ ている。ロッド全体は SUS 製の ICF フランジに固定されており、その先端にモリブデ ン製の円筒が取り付けられている。その先端部がカソードマウントとなる。このカソー ドロッドを ICF フランジにて主容器と結合するさい、間にセラミックフランジをはさ むことで、カソードロッドと真空容器とは電気的に絶縁される。カソードから発生する 光電子電流は、カソードロッドに流れる電流として測定する。モリブデン製円筒の内部 には加熱洗浄用のカートリッジヒーターと温度測定用の K 熱電対が取り付けられてい る。カソードロッドの断面模式図を Figure 4.3 に示す。カソードロッド先端には GaAs 基板が取り付けられる。GaAs 基板をタンタル製のカップで押さえつけ、さらに SUS 製 の蓋で固定する。SUS 製の蓋の中央部には穴があいており、その穴に GaAs 面が露出 する。GaAs と Mo ヘッドとの間の熱および電気的導通を確保するため、GaAs 基板と Mo との間に少量のインジウムペーストを挟みこむ。



Figure 4.3 カソードロッド断面模式図。ICF フランジ(図左側)に取り付けられており、 その先端(図右側)がカソードマウントとなる。

4.2.3 蒸着源および膜圧計

成膜に使用した蒸着源および膜厚計について以下説明する。蒸着源を固定するための 装置の設計時の 3D 図を Figure 4.4 に示す。各部品は SUS304 を用いており、Cs ディ スペンサー(SAES-Getters 社)2 本と K ディスペンサー1本、Te 小片(純度 99.9999%) の入った W バスケットが取り付けられている。各蒸着源と銅線は銅製の圧着端子を用 いることで、電気的接触の安定性を確保している。また、SUS 部品とディスペンサーの 固定にはイモネジを使用している。

Cs ディスペンサーはセシウムクロム塩(Cs₂CrO₄)が Ti と Zr(84%)-Al(16%)とともに、 中空の金属ワイヤー内に封入された構造になっている。金属ワイヤーに通電することに よってディスペンサー全体が加熱され、

 $2Cs_2CrO_4 + Ti \rightarrow 4Cs + Ti(CrO_4)_2$,

という反応により Cs 蒸気が発生する。金属ワイヤーの断面の特定方向にいれられたス リットの方向に Cs 蒸気が発生するため、このスリットの方向により Cs 蒸気の方向を 制御する。図で示している棒状のものが Cs ディスペンサーである。

KディスペンサーもCsディスペンサーと同様の構造をしており、電流を流し加熱することによりスリットの方向にK蒸気が発生する。

Te の蒸気は Te の小片(純度 99.9999%)を加熱することによって発生させる。Te 小片 はタングステンのワイヤーによりつくられたバスケットの上に載せられている。タング ステンに通電することにより、このバスケットが Te を加熱して蒸気を発生させる。こ のバスケット全体は SUS の箱の中に入れられ、カソードおよび膜厚計の方向にのみ穴 をあけてあり、それらの方向のみに蒸気が発生するような構造となっている。これを Te ボックスと呼ぶ。

以上の Cs, K ディスペンサーおよび Te ボックスは、図に示されているように、SUS 製プレートに固定されている。このプレート全体が真空 Z ステージにより、上下方向に 移動できるようになっている。この移動により、各々の蒸着源をカソード正面にあわせ ることができる。またランプ光を照射する際には、光路を確保するために、蒸着源全体 を待避させる。

膜厚計は INFICON 社製の Q-pod[™] Quartz Crystal Monitor を使用している。水晶 振動子の振動数の変化から、振動子表面に吸着した物質の質量を測定し、そこより膜厚 を推測する。蒸着源から見て、膜厚計とカソードは 90 度の角度をもって、等距離の位 置にある。蒸着源は各々の方向へ等量の蒸気を発生させるように対称な形状としており、 GaAs 表面への成膜と同時に、膜厚の計測が行えるようになっている。

膜厚計による膜厚測定では、基板と膜厚計で蒸着量が等しいと仮定して、カソード上の膜厚を求める。仮に蒸気が同じように発生したとしても、表面が違えば蒸着率は異なるため、結果として両者の膜厚の等価性は保障されない。したがって膜厚はカソード面上の物質量の絶対値を意味しない。一方で、表面状態が同じであれば、蒸着率は常に等しいと考えることができる。そのため、膜厚計の測定値は相対値としては意味のある数値である。



Figure 4.4 :蒸着装置の概図。下部のボックス内部にはタングステンヒーターが内蔵されて おり、金属を熱することで、丸型の窓から蒸気が発生する。正面と側面の穴の大きさの違い は、Te 小片からボックス正面と側面までの距離が異なることを考慮したため。その上には Cs,Kディスペンサーが取り付けられており、手前および左側に Cs,K蒸気を発生する。

4.2.4 光学系

本研究では、量子効率の波長依存性(スペクトラム)が重要な情報を与えるため、連 続波長、あるいは多波長による計測が必要となる。そのため、光源にはレーザーではな く、Xe ランプからの白色光を用いる。白色光を分光することで特定の波長の光を取り 出し、その量子効率を測定する。Xe ランプとして、浜松ホトニクス社製の L2273 を、 分光器として、HORIBA 製作所の Micro-HR433463 を用いた。L2273 は 150W の Xe ランプで、ランプハウスの背面には凹面鏡、正面には収束用レンズがあり、おおよそ平 行な白色光を発生する。Micro-HR433463 は二つの回折格子を切り替えることで、 200nm から 900nm と、広い波長領域における分光が可能となっている。 光学系のセットアップを Figure 4.5 に示す。ランプから出た光は f=120 の平凸レンズ

で集光し、分光器に入射される。分光器の入射側スリット幅は2.0 mm に設定した。分 光器内には grating groove density 900 gr/mm の回折格子が入っている。回折格子に より分光された光は幅 1.0 mm の出射側スリットで切り出される。このスリット幅と回 折格子の組み合わせで得られる線幅は7 nm である[23]。520 nm より長い波長の光を 使用するときは高調波成分を取り除くため透過限界波長が 520 nm のシャープカット フィルター(シグマ光機 SCF-50S-52Y)を波長 500 nm 以上の波長領域のとき分光器と ビューポートの間にいれる。フィルターの挿入には自動 x ステージ(シグマ光機 OSMS26-100)を使用しており、分光器の動作と連動させて出し入れを行っている。リ モートによる遮光をするため、電磁シャッターを設置している。この配置によりカソー ド位置に4mm×12mmの長方形のスポットが得られた。パワースペクトラムを Figure 4.6に示す。パワーの測定においては、ビューポートにおける反射、減衰も考慮されて いる。これより、250nmから 1000nmの領域の光がえられていることがわかる。また、 シャープカットフィルターを挿入した波長 500nmの光では有意なランプパワーを得ら れていないことから、波長 500 nm における量子効率はグラフ等から省く。もう一枚の 回折格子を用いることで、200nm 程度の光まで得られるが、本研究では必要ないため 使用していない。



Figure 4.5 : 光学系配置の模式図。Xe ランプからの光は、分光器入りロスリットに集 光される。分光器出口からは単色光が得られる。電磁シャッターはリモートで光の制御 を行うために設置。500nm 以上の光を分光する場合、回折格子からの二次光が混じる ため、それを遮断するためのシャープカットフィルターを設置している。



Figure 4.6 : ランプ光を分光して得られた波長に対するパワースペクトル。横軸は波長 (nm)を表し、縦軸は得られたランプパワー(mW/7nm)を表す。500 nm 以上の波長領域 ではシャープカットフィルターを挿入し、高調波を遮断している。

4.3 実験の手順

この節では実験時使用した GaAs ウエハーの表面処理、成膜方法、量子効率の測定 法について説明する。

4.3.1 GaAs ウエハーの表面処理

本研究で使用した GaAs ウエハーは住友電工社製の厚み 0.3 mm の p-GaAs(100)を 使用した。キャリアとして Zn が 5x10¹⁹ cm-³ ドープされている。

GaAs 表面の清浄性は、GaAs 表面をコーティングし NEA 表面を作成する上で重要 な要因となる。GaAs 表面に化学処理を施す事で清浄表面を作り出す研究がなされて おり[24]、本研究でも真空容器に挿入する前に化学処理を施した。まずウエハーを $H_2SO_4: H_2O_2: H_2O = 4:1:1$ からなる混合溶液に浸すことで表面の酸化した As をはが した。その後、純水に浸し、音波洗浄を行うことで先ほどの混合溶液を洗い流した。 次に iso-propanol: HCl = 2:1 からなる混合溶液と、iso-propanol によって表面の Ga と余分な As をはがした。その後、不活性な N₂を用いて乾かした。この処理によって GaAs 表面は As-rich となる。これは複数枚のウエハーで行ったが、直ちに真空容器に 挿入するウエハー以外のものは 0.1 Pa に排気したデシケータ内に保存することで汚染 を最低限に抑えた。

GaAs を真空容器に挿入後、半導体薄膜を成膜する前に加熱洗浄を行った。加熱洗浄 はカソードロッドに内蔵されたヒーターを用いて行い、スライダックによって 60 Vの 電圧をヒーター(抵抗値 6.7Ω)にかけた。この設定でおよそ 50 分後に GaAs の温度が 450℃に到達するため、到達後直ちに電圧値を 0 V にし、降温を行った。NEA-GaAs 研 究において、到達温度とその保持時間は研究所によって異なるが、本研究では GaAs の 結晶構造の破壊を避けるため、450℃の保持時間をおよそ 2~3 分程度に留めている。加 熱洗浄は、バージンのウエハーを挿入後は表面に存在する酸化膜と付着ガスを除去する ために用い、また本研究では同じ GaAs 表面に繰り返し半導体薄膜を成膜するため、新 しい薄膜を成膜する前に古い膜を除去するために用いる。Figure 4.7 と Figure 4.8 に加 熱洗浄時の GaAs の温度と容器内真空圧力の時間変化を表した図を示す。Figure4.7 は ベーキングを行った後、成膜実験前に行った加熱洗浄の様子を表している。GaAs の温 度が室温から 450℃に昇温される間に、真空圧力は 5.0×10[®]Pa から 1.0×10[®]Pa 付近 まで上昇している。最高温度に到達前に真空圧力の大きな上昇が3か所程度あることか ら、GaAs ウエハー表面およびその周辺からの吸着ガスの脱離、そして As-rich な GaAs 表面から酸化 As が脱離したことが推測される。Figure4.8 は古い薄膜を除去するため に加熱洗浄を行った際の GaAs の温度と真空容器内の圧力の時間変化を示す。GaAs の 温度が 300℃を超えた時点から急激に容器内圧力が上昇している様子がわかる。 Figure4.7 とは異なる真空圧力の上昇の振る舞いをしていることから、吸着ガスだけで はなく GaAs 表面に存在する古い膜が蒸散していることが推測される。



Figure 4.7:成膜試験前に行った加熱洗浄の様子を表したもの。横軸は時間[min]を 表し、左縦軸は GaAs の温度[℃]、右縦軸は真空圧力[Pa]をログスケールで表す。



Figure 4.8:薄膜成膜後の加熱洗浄時の GaAs 温度[℃]と真空圧力[Pa]を時間[min]関数として示したもの。左縦軸は温度、右縦軸は真空圧力をログスケールで表す。

4.3.2 成膜方法

半導体薄膜の蒸着原理については 4.2.3 で説明したため、この項では成膜の順番等の実験手順について説明する。

一般に、単一または複数のアルカリ金属を用いたフォトカソードの作成時には、光 電流値を測定しながらアルカリ金属を基板へ蒸着し、光電流値の上昇が飽和した時点 で蒸着を終了する。本研究でも光電流が飽和するまでアルカリ金属の蒸着を行った が、CsとKを蒸着することによって変化する量子効率スペクトルを詳しく調べるた め、CsとKを蒸着した後にスペクトルを取得し、その後再度CsとKの蒸着を行っ た。蒸着終了タイミングに関しては、以下説明するTe膜厚に対する"最適"なアルカリ 金属膜厚を実験によって決定し、その後の実験では決定した最適アルカリ金属膜厚を

本研究における「最適膜厚」とは、波長 250 nm の量子効率が最大となるアルカリ 金属の膜厚を指す。このときの薄膜が結晶化され最も安定であると仮定した。具体的 な成膜方法の模式図を Figure 4.9 に示す。まず Te を、加熱洗浄を施して室温に降温 した GaAs 表面に蒸着した。Te 小片をタングステンバスケットヒーターに乗せ、それ を加熱するという蒸散方法をとっているため、蒸着速度の精密な制御は困難である が、膜の均一性を考慮し 0.1 Å/s 以下の速度を保った。Te の膜厚は予め決めており、 本実験では 0, 5, 10, 25, 45 Åの 5 種類の膜厚でそれぞれ実験を行った。Te の蒸着後、 K→Csの順番で蒸着を行った。K, Cs ディスペンサーに電流を流して加熱すると、容 器内真空度が悪化する。真空圧力の上昇はカソード表面の汚染を招くことから、NEG ポンプ交換前は、典型的に 1.4x107 Pa ~ 2.4x107 Pa の圧力下で、NEG ポンプ交換後 の寿命測定の際には 4.0x10[®] Pa~5.0x10[®] Paの圧力下で蒸着を行うようにディスペ ンサーに流す電流値を設定した。この設定により、蒸着速度は水晶振動子による測定 値で K.Cs とも 0.01~0.02 Å/s となる。蒸着する K と Cs の膜厚は先に蒸着した Te と 同膜厚とした。Teの厚みが0Åのときには、KとCsを5Åずつ蒸着した。蒸着後、 250 nm ~ 1000 nm の波長領域を 10 nm 刻みで波長に対する光電流値を測定した。そ の後再度KとCsの蒸着を行い、光電流値を測定した。この操作を波長250 nmの光 電流値が飽和するまで図で模式的に示しているように繰り返した。



Figure 4.9:最適膜厚決定実験で用いた成膜方法を表した模式図。GaAs 上に成膜した Te の上に、波長 250nm に対する光電流値が飽和するまで K と Cs を繰り返し蒸着し ていく。

最適膜厚を測定した後には、Te 膜厚に対するアルカリ金属の最適な膜厚が判明しているため、K と Cs を交互に繰り返し蒸着するのではなく、目標の膜厚まで K を蒸着し、その後 Cs の蒸着を K と同様に行った。

4.3.3 量子効率の測定方法

本研究では-100Vのバイアス電圧をかけた GaAs に、集光した Xe ランプ光を入射す ることで光電子を引き出し、それを測定している。その際、入射する光の波長を分光器 によって切り替えながら電流値を測定している。測定の方法を以下に説明する。まず光 学系に設置したシャッターを閉め、Xe ランプ光を遮断し、バックグラウンドを測定す る。その後シャッターを開け、光を GaAs へ照射し、短波長から長波長まで等間隔の波 長刻みで変化させ、光電流を測定する。この操作を任意の回数繰り返す。薄膜の成膜後 は 250 nm~1000 nm の波長領域を 10 nm 刻みで測定している。成膜中は 50 nm 刻み かつ 450 nm<2 <600 nm の波長での光電流値の測定は行っていない。これは成膜後と 同じ設定で成膜中の測定を行ったとき、データを 1 セット取得するために 3 分程度時 間が必要であり、その間に光電流値が大きく変化するためである。以上の設定で1 セッ トの測定時間を 1 分程度に短縮し、光電流の変化に対応することができる。

また光電流の測定誤差を算出するため、それぞれの波長による光電流の測定を1秒間 に 60 回測定している。光の入射前に取得するバックグラウンド測定も同様である。取 得した 60 個の数値の分布が正規分布に従うとして標準誤差を求め、それを量子効率に 換算して測定誤差としている。光電流値の量子効率への換算方法は付録 A にて説明す る。

4.3.4 Te 膜厚の較正

4.2.3 で述べたように、水晶振動子による膜厚計で測定された膜厚と GaAs 上に実際 に存在する薄膜の膜厚との間には等価性がない。しかし今回膜厚によってカソード作 成を操作することから、GaAs 上の実際の Te 膜厚を測定し、水晶振動子による測定 Te 膜厚の較正を行った。

GaAs上のTe 膜厚の測定には、メイワフォーシス(株)にエリプソメータを用いた膜 厚測定を依頼して行った。エリプソメータを用いた膜厚の測定原理については付録 C で説明する。測定方法としては、1.5x10⁻³ Pa の真空圧力下にてTe を GaAs上に蒸着 し、それをメイワフォーシス(株)へ輸送して測定・解析を行った。Te の膜厚は、5,10, 50,100,200Åの5つである。測定結果を Figure 4.10 に示す。測定を行った全てのサ ンプルで、水晶振動子による測定値に対してエリプソメータの測定値が大きい結果と なった。これは膜厚計に対する GaAs ウエハーのアライメントや、水晶振動子と GaAs の間にTe の物理吸着率の違いがあるためと推測される。以降 Te 膜厚について 議論する際には、この結果から得られた較正値を用いる。



Figure 4.10: Te 膜厚の測定結果。横軸は水晶振動子による測定 Te 膜厚[Å]、縦軸は エリプソメータによる測定 Te 膜厚[Å]を表す。直線は較正直線。

第5章 実験結果および考察

この章では本研究の実験結果および考察について説明する。具体的には CsKTe 成膜結果、膜厚と量子効率の関係、蒸着終了後の量子効率変化に関する解析、寿命測定について説明する。また以後 Cs と K 膜厚の合計膜厚について議論する際には、2 つの膜厚の和をとったものをt_{CsK}と定義して用いる。

5.1 NEA 活性化試験

この節では Cs, K, Te を GaAs 上に蒸着した結果について述べる。

5.1.1 CsKTe の蒸着結果

Te 膜厚 13.6 Åに対してアルカリ金属を繰り返し蒸着した結果を Figure 5.1 に示 す。 t_{CsK} 増加に従い、5.0 eV から 1.43 eV のエネルギー領域で量子効率スペクトル全 体の上昇が観測された。 t_{CsK} が 40Åを越えた厚みでは、大きな量子効率の変化は生じ ていない。最適膜厚となった t_{CsK} が 50Åの結果では、4.96 eV に対する量子効率は 0.1 以上を観測し、GaAs のバンドギャップエネルギーに相当する 1.43 eV に対する量子 効率として 1.5x10⁵が観測された。1.43 eV より小さいエネルギー領域では急激に量 子効率が減少していることから、この値に相当するバンドギャップを持つ GaAs から の光電子放出が生じていることが示唆される。



Figure 5.1: GaAs に対し、Te(厚み 13.6Å)とアルカリ金属を蒸着した結果。横軸は入射 光エネルギー、縦軸は量子効率、各記号は各*t*_{CsK}を表す。

この測定をほかの Te の厚みに対しても行った。結果を Figure 5.2 に示す。Te の厚み が 0Åの場合を除き、最適 t_{CsK} と較正 Te 膜厚の比がおよそ 4:1 の比例関係にある。波 長 250 nm に対する量子効率が最大となる Te とアルカリ金属の割合が一定であること から、GaAs 上に Cs と K と Te が化合物を形成していることがわかる。また、Figure 5.4 においても、Cs と K を蒸着した GaAs と、CsKTe を形成した GaAs の作成終了後の量 子効率の振る舞いが異なることから、Cs や K とは別の物質が GaAs 表面に形成された ことがわかる。



Figure 5.2: 較正 Te 膜厚(横軸)に対する最適アルカリ金属(縦軸)を表した結果。直線は fitting 直線。Te とアルカリ金属の割合が一定となっている。

これらの実験によって、CsKTe が GaAs 上に形成され、またその状態で 1.43eV のエ ネルギーを持つ光に対して有意な量子効率を観測した。以上から、CsKTe を薄く GaAs の表面に成膜することで、NEA 表面の作成が可能であることが強く示唆される結果を 得た。

5.1.2 膜厚と量子効率の関係

Te 膜厚と量子効率の関係を Figure 5.3 に示す。ここでの量子効率は、GaAs 上に成膜 された各 Te 膜厚に対して、最適膜厚となるまで Cs と K を成膜したカソードによるも のである。Te の厚みが 0Åのときは、Cs と K のみを蒸着している。

4.96 eV に対する量子効率をみると、Te の膜厚が大きくなるに従って量子効率が上昇 し、その後飽和している。膜厚の増加に対して一定の割合で量子効率が増加し、その後 飽和していることから 4.96eV のエネルギーを持つ光に対しては CsKTe からの電子放 出が支配的であることがわかる。次に 1.43 eV に対する量子効率の変化をみると、Te の 膜厚が 15~20Åのとき最大となり、その後膜厚の増加に従って減少している。この結果 から、膜厚が大きくなることによって電子の薄膜ポテンシャルへの捕獲といった GaAs からの光電子放出を妨げる効果が増大していると考えられる。



Figure 5.3: Te 薄膜の膜厚に対する QE (4.96eV (紫), 1.43eV (青))の変化。左縦軸は 4.96eV に対する QE、右縦軸は 1.43eV に対する QE を表している。

5.2 蒸着終了後の量子効率のふるまい

この節では、CsKTe/GaAs 作成後における量子効率の時間変化の測定結果と解析結果について述べる。

5.2.1 成膜後の量子効率の変化

CsKTe/GaAs カソードと、Te を用いた蒸着試験を一度も行っていない GaAs 上に Cs と K のみを蒸着したカソード(CsK/GaAs)の作成後の量子効率(4.96eV, 1.43eV)の時間 変化を示した図を Figure 5.4 に示す。全ての測定は蒸着終了 1~2 分後に開始している。 CsK/GaAs カソードでは、どちらのエネルギーに対する量子効率においても減少のみが 観測された。一方 CsKTe/GaAs カソードは、どちらのエネルギーに対しても量子効率 の増加が観測された。4.96 eV における量子効率は測定された 80 分の間に増加を続け ており、1.43eV における量子効率は、20 分後に最大となり、その後減少している。 CsK/GaAs と CsKTe/GaAs の違いは、Te の有無である。量子効率が増加する原因とし ては、Te が Cs, K と結合し、CsKTe となる化学反応が進むことが考えられるが、一般 に化学反応は 80 分間もの長い時間を必要としない。本実験では Te→K→Cs の順に蒸着を行なっているため、Te がアルカリ金属と反応するためには、先に蒸着された Te 層 ヘアルカリ金属が拡散する必要がある。拡散現象は、化学反応に比べて長時間を要する ため、観測された量子効率の増加は拡散現象によるものだと予想し、解析を行なった。



Figure 5.4:カソード作成後の量子効率((a):4.96eV, (b):1.43eV)の時間変化。横軸は時間[min]、右縦軸は CsK/GaAs の QE、左縦軸は CsKTe/GaAs の QE を表す。

5.2.2 拡散方程式

拡散現象は以下の拡散方程式で表される。

$$D\frac{d^2C}{dx^2} = \frac{dC}{dt} \tag{5.1}$$

ここで *C* は濃度、*D*[m²/s]は拡散係数である。本研究では簡単のため一次元空間のみを 考える。この方程式を本実験に対して適切な条件下で解く必要があるが、ここでは系を 簡略化し、近似的に条件をおいた。Figure 5.5 に系の模式図を示す。ここで *L*[m]は蒸 着した Te の膜厚を表す。拡散方程式は Te の存在する領域について解く。t=0 で Te 層 に存在するアルカリ金属の濃度 *C*=0 とする。また、 $t \ge 0$ かつ x=0 でアルカリ金属 の濃度を常に *C* = *C*₀ とする。実際は $x \le 0$ に存在するアルカリ金属は有限量だが、 Te 層の厚みに比べてアルカリ金属の厚みが十分に大きいとして近似している。また、 GaAs ウエハー側への原子の拡散は生じないとする。



Figure 5.5: 拡散方程式を解くための条件を模式的に表した図。図中の x は GaAs 基板に対して垂直方向を表す。Te は GaAs 上に蒸着され、アルカリ金属は Te の上に存在している。 アルカリ金属の厚みは Te の厚み L に比べて十分大きい。

以上の条件下で拡散方程式を解くと、(5.2)式を得る。

$$C(x,t) = C_o \left[1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{2n-1} sin\left(\frac{2n-1}{2L}x\right) exp\left(-\frac{(2n-1)^2 \pi^2}{4L^2} Dt\right) \right].$$
 (5.2)

2.3 で述べたように、カソードは時間的に劣化する。実際、Figure 5.4 で示した 1.43eV における量子効率は増加したのち減少している。そのため量子効率の時間変化を表すためには、劣化効果を考慮する必要があるため、時間による劣化を表す式

$$\eta'(t) = \eta_0 exp\left(-\frac{t}{\tau}\right),\tag{5.3}$$

を導入する。ここでη'(t)は量子効率の時間変化を表し、τは劣化の時定数を表す。以上 述べた、量子効率の増加を引き起こす拡散効果と、減少を引き起こす劣化効果が同時に 生じているモデルを考え、以下の(5.4)式によって量子効率の時間変化を表した。

$$\eta(t) = a \left[1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{2n-1} sin\left(\frac{2n-1}{2L}l\right) exp\left(-\frac{(2n-1)^2 \pi^2}{4L^2} D(t+c)\right) \right] \\ * exp\left(-\frac{(t+c)}{\tau}\right).$$
(5.4)

ここで、aは量子効率を表す係数である。また、(5.4)式は測定された全ての波長における量子効率の時間変化に対して満足する必要があるが、波長によって量子効率の増加の 速度は異なる可能性がある。また、拡散係数は各波長で共通である。そこで(5.4)式では 波長依存性を量子効率の有効膜厚lを導入して表している。また、光電流の測定開始時 間を式(5.4)における *t*=0 とするために補正時間*c*を導入した。

式のあてはめの際、波長依存性が予想されるパラメータは*a*, *l*, τの 3 つ。*D*と *c*は全 波長共通である。*L*の値は蒸着した Te 膜厚を用いる。以上をまとめると、データに当 てはめるとき、

$$\Delta^{2} = \sum_{i=1}^{N} (f_{i}(t) - \eta_{i}(t; a_{i}, \tau_{i,}, l_{i}, c, D))^{2}, \qquad (5.5)$$

を最小にするように各パラメータを決定する。ここで、*i* は波長の区別、*f_i(t)*は測定された時間に対する量子効率、 $\eta_i(t; a_i, \tau_i, l_i, c, d)$ はフィッティングモデル式である。フィットさせるデータの波長は、短波長側では250,260,270,280nm、長波長側では840,850,860,870nmを用い、計8つの波長に対して(5.5)式の最小二乗法を行った。その他の波長に対してモデルを当てはめる際には、(5.5)式の最小二乗法によって得られた*cとDを*定数とし、その他のパラメータに対して最小二乗法を行った。また、(5.4)式中の無限和項の中は N→∞のとき 0 となり無視できるため、フィットの際は N = 100 とした。短波長側の量子効率の時間変化において顕著にみられるが、量子効率の減少が観測できない測定データのとき劣化の時定数 τ →∞とし、劣化項を1 として解析を行っている。

5.2.3 解析

測定によって得られたデータに対して(5.4)式をフィットさせた結果(入射光エネルギ ー4.96, 4.13, 3.1, 2.06, 1.77, 1.43eV)を Figure 5.6 に示す。横軸は時間 [min]、縦軸は 量子効率を表しており、それぞれ最大値を1としている。曲線はフィットさせたモデル 式(5.4)である。入射光エネルギーの大小にかかわらず、解析を行った全てのデータに対 してよくフィットしている。



Figure 5.6: CsKTe/GaAs カソード(2018/10/16 作成)の作成後 55 分間の量子効率の時 間変化。横軸は時間[min]、縦軸は最大値を 1 とした量子効率を表す。曲線は(5.4)式を 当てはめた結果。各記号は各入射光エネルギー[eV]に対する結果を表している。

フィッティングによって得られた拡散係数を Table 5.1 に示す。カソード作成日に関わ らず拡散係数は 10⁻²¹のオーダーで一致している。固体金属の拡散係数と比較するため、 Table 5.2 に金属の拡散係数を示す。原子によって拡散係数は大きな違いがあり、10⁻⁴⁶~10⁻¹² m²/s の範囲に分布している。今回算出した拡散係数の値は、この範囲内に当て はまっており、固体金属の拡散係数としてあり得ない数値ではないことがわかる。以上 より、観測した量子効率の時間変化を Te 層に対するアルカリ金属の拡散現象によって 説明することは妥当である。

カソード作成日	拡散係数[m²/s]			
2018/10/12	$5.83 imes 10^{-21}$			
2018/10/16	$2.64\! imes\!10^{\cdot21}$			
2018/10/19	$9.96 imes 10^{-22}$			
2018/10/23	$1.11 imes 10^{-21}$			
2018/10/25	$4.87 imes 10^{-21}$			
2018/11/14	$1.30\! imes\!10^{-21}$			

Table 5.1: 算出された拡散係数

Table 5.2: 金属の拡散係数[25]

拡散原子	固体	拡散係数[m²/s]
Na	Na	$5.14 imes 10^{-12}$
Cu	Cu	$1.49 imes 10^{-41}$
Ag	Ag	$8.45 imes 10^{-38}$
Ni	Cu	$5.80 imes 10^{-46}$
Zn	Cu	$6.44 imes 10^{-39}$

5.2.4 見かけの拡散時定数と累積 Te 膜厚の関係

次に作成したカソードの拡散速度について考察するため、拡散時定数を求めた。式(5.4) 式中大括弧内の、拡散効果を表す項を見ても明らかのように、式(5.4)から拡散時定数を 決定することはできない。そこで量子効率の測定時間内における見かけの拡散時定数を 求めた。見かけの拡散時定数を算出するため、(5.2)式について、全領域 *L* で平均をと る。

$$\bar{C}(t) = \frac{1}{L} \int_0^L C(x,t) dx = C_o \left[1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=1}^\infty \frac{1}{(2n-1)^2} \exp\left(-\frac{(2n-1)^2 \pi^2}{4L^2} Dt\right) \right].$$
(5.6)

(5.6)式に、データフィッティングによって得られた拡散係数 *D*および蒸着した Te 膜 厚 *L*を代入する。その結果から、2つの時定数によって近似的に拡散時定数を求められ ると考え、各測定時間内において以下の(5.7)式によってフィッティングし、見かけの拡 散時定数τ₁, τ₂を求めた。

$$c(t) = \frac{1}{2} \left\{ 2 - a_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) - a_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right\}.$$
 (5.7)

式(5.7)によって得られた拡散時定数が、同じ GaAs ウエハー上に薄膜成膜を繰り返す ことで変化している様子が観測された。これは蒸着した Te の累積量が関係していると 考え、算出された拡散時定数と、GaAs に蒸着した累積 Te 膜厚との関係を調べた。結 果を Figure 5.7 に示す。ここで累積 Te 膜厚とは、GaAs 上への CsKTe の成膜と洗浄 を繰り返した際に蒸着した Te の膜厚の積分値である。見かけの拡散時定数は、値が大 きいものを τ_1 、小さいものを τ_2 としている。累積 Te 膜厚が増加すると、見かけの拡散 時定数 τ_1 、 τ_2 がともに増加している様子が見て取れる。累積 Te 膜厚が 2.03nm のとき、 τ_1 は 5.0min 程度であるのに対し累積 Te 膜厚が 31.7nm のとき、 τ_1 は 22min 程度であ り、およそ 4.4 倍となっている。拡散時定数に寄与する物理量は、拡散係数 D および拡 散領域 L である。原子種や温度が同じであれば、理論的に拡散係数は一定であるため、 拡散領域 L が増加したことで見かけの拡散時定数が増加したと考えられる。L は各実 験時に蒸着した Te の膜厚を表すが、同一のL に対して見かけの拡散時定数は一定では なく、履歴効果が生じていることから、加熱洗浄後の GaAs 上に Te が残留しているこ とが示唆される。



Figure 5.7 : 累積 Te 膜厚 [nm] に対する見かけの拡散時定数 τ_1 (上図)、 τ_2 (下図) [min]。求まった2つの時定数の内、大きいものを τ_1 、小さいものを τ_2 とした。

Figure 5.8 に累積 Te 膜厚が 4.06nm の際に、GaAs に対して Cs と K のみを蒸着した ときの、蒸着後の量子効率の時間変化を示す。一度も Te を蒸着していない場合(Figure 5.4 参照)には観測できなかった量子効率の上昇が入射光エネルギー4.96eV、1.43eV と もに確認できた。蒸着後の量子効率の増加は Te 層に対するアルカリ金属の拡散現象に よって説明できるが、Figure 5.8 を得た成膜試験時には Te の蒸着を行っていない。さ らに、初めて GaAs 上に CsKTe を成膜して得られた結果から計算された拡散係数を基 準に、Figure 5.8 を得たときの GaAs 上に存在する Te 膜厚を求めたところ、1.5nm に 相当する厚みが得られた。この結果からも、GaAs 上に Te が残留していることが推測 される。



Figure 5.8: GaAs 上に Cs と K を蒸着後の量子効率(左縦軸:4.96eV, 右縦軸:1.43eV) の時間変化。累積 Te 膜厚が 4.06nm の結果。

5.2.5 量子効率と累積 Te 膜厚の関係

Figure 5.9 に入射光エネルギー[eV]に対する量子効率スペクトラムを示す。各々の結 果は、各累積 Te 膜厚に対する測定結果である。高エネルギー側では量子効率に大きな 違いはなく、値はばらついている。一方、低エネルギー側では Te の累積量の増加に伴 って量子効率が減少している。入射光エネルギー4.96eV と 1.43eV の量子効率を累積 Te 膜厚の関数として Figure 5.10 に示す。量子効率は最大値を1として規格化してある。 4.96eV に対する量子効率は累積 Te 膜厚に関わらずばらついており、1.43eV に対する 量子効率は累積 Te 膜厚が 2.03nm から 31.7nm に増加すると1桁以上低下している。 1.43eV に対しては GaAs からの光電子放出に限られ、また表面膜厚の増大によって量 子効率が低下することは 5.1.2 の Figure 5.3 によって示されている。また、Te 膜厚の履 歴効果が生じていることから、累積 Te 膜厚が増加することで成膜開始時の GaAs 上に 存在する Te 量が増加していることが示唆されている。よってこの量子効率の低下は、 成膜試験を繰り返すことで GaAs 上に残留する Te の量が増え、実効的な膜厚が増大し たために生じたと考えられる。また成膜試験前に施す加熱洗浄の影響も排除できないが、 本研究では加熱洗浄の際、GaAsの結晶構造が熱によって破壊されることを避けるため、 温度が 450℃を超えないように調節し、最高温度の保持時間も 1~3 分程度に抑えてい る。これは GaAs(100) 面から As が脱離する温度 663℃[26] に比べて小さく、温度保持 時間も短いことから、加熱による影響は小さいと考えられる。



Figure 5.9:入射光エネルギー[eV]に対する量子効率スペクトル。各々の結果は累積 Te 膜厚[nm]に対する結果である。



Figure 5.10: 累積 Te 膜厚に対する量子効率(4.96eV, 1.43eV)の変化。量子効率は最 大値を1として規格化してある。4.96eV の量子効率はバラついているが、1.43eV の量 子効率は累積 Te 膜厚増加に従い低下している。

5.2.6 アルカリ金属の再蒸着

既に述べたが、アルカリ金属が Te 層に拡散するときの見かけの拡散時定数は 5~22 分ほどである。一方、本研究では 4.96eV に対する量子効率が最大となったときにアル カリ金属の蒸着を停止しているが、このときの光電流測定は蒸着終了後 1 分経過した後 に行っている。よって蒸着したアルカリ金属が Te 層へ十分に拡散し、CsKTe の形成が 完了する前に量子効率の測定を行っていることが推測される。この予想が正しければ、 アルカリ金属が十分に Te に供給される前に蒸着を終了しており、表面薄膜が CsK 欠乏 状態となっている可能性がある。そこで累積 Te 膜厚が 4.06nm のとき CsKTe/GaAs カ ソードを作成し、その 4.5 時間後に再度アルカリ金属の蒸着を行った。アルカリ金属を 再蒸着後の量子効率(左縦軸: 4.96eV, 右縦軸: 1.43eV)の時間変化を Figure5.11 に示 す。どちらのエネルギーに関しても、量子効率の時間的な上昇が確認できる。Figure5.8 の場合と同様に考えれば、この結果は再蒸着したアルカリ金属が(Te+CsKTe)層に拡散 し、Te と反応することで CsKTe が形成されたことを示している。アルカリ金属と反応 する Te がカソード作成後に存在していたことから、再蒸着前の CsKTe/GaAs カソード の薄膜は、CsK 欠乏状態となっていることが示唆される。



Figure 5.11:作成した CsKTe/GaAs に対し、4.5h 後にアルカリ金属を再度蒸着した後の時間[min]に対する量子効率(左縦軸:4.96eV,右縦軸:1.43eV)の変化。

次に入射光エネルギー[eV]に対する QE 上昇率[%]を Figure 5.12 に示す。ここでの QE 上昇率とは、加熱洗浄後の GaAs 上に CsKTe を形成したときの QEoriginal に対する、 アルカリ金属再蒸着後の QErerevaporated の上昇率である。全エネルギーに対して上昇率が 正の値をもっていることから、アルカリ金属の再蒸着によって全体的に QE が上昇して いることがわかる。この結果から、再供給したアルカリ金属が余剰 Te と反応して CsKTe を形成した結果、量子効率が上昇したことが示唆される。また、より QE 上昇が顕著な エネルギー領域は 2.00eV 以下であり、その中でも 1.43eV 付近のエネルギーに対する QE の上昇率が最も高く、45%程度の値が得られた。この結果からも明らかのように、 アルカリ金属の再蒸着による影響を最も受けるのは GaAs からの光電子放出である。薄 膜中のアルカリ金属と未反応の Te の割合が大きければ金属反射などの効果が増大し、 量子効率の低下を引き起こす。これを踏まえれば、アルカリ金属の再供給によって CsKTe が形成され、余剰 Te の割合が減少した結果、金属反射の効果が減少し、GaAs からの光電子放出に対して有利な薄膜が形成されたことが推測される。



Figure 5.12:入射光エネルギー[eV]に対する量子効率の上昇率。ここでの上昇率は、加 熱洗浄後の GaAs 上に CsKTe を形成したときの QE_{original} に対する、アルカリ金属再蒸 着後の QE_{re-evaporated} の上昇率である。

5.3 寿命測定

CsKTe/GaAs の時間寿命を測定したため、その結果を報告する。本実験を行うにあた り NEG ポンプの交換を行ったが、それと同時に GaAs ウエハーと蒸着源の交換も行っ た。寿命は容器内真空圧力 3.5x10⁻⁸ Pa 下の時間寿命を測定している。カソード作成後 およそ 100 分間は 5 分毎に光電流を測定し、それ以降は数時間ごとに光電流を測定し た。GaAs 上に形成した CsKTe 薄膜に関して、Te の量を膜厚にして 13.6, 20.3, 36.5Å とした 3 種類のカソードについて測定を行った。

Teの膜厚を13.6Å, 20.6Å, 36.5Åとしたカソードについて寿命測定を行った結果 を、Figure 5.13 に示す。縦軸は 2.06eV に対する量子効率、横軸は時間[hour]を表 し、各記号は各 Te 膜厚による結果を表す。まず測定直後の量子効率の変化みると Te 膜厚 13.6Åに対する結果のみ、他の 2 つの厚みによる結果では観測されている量子効 率の増加が確認できない。カソード作成後の量子効率の上昇は拡散効果によるもので あり、拡散時間は拡散領域、つまり Te の膜厚に依存することは 5.2 にて述べた。よっ て Te 膜厚 13.6Åに対する結果で量子効率の上昇が観測できなかった理由としては、 他の 2 つのカソードより Te の厚みが小さいため拡散時間が短く、測定開始までにカソ ードの劣化効果が拡散効果を上回ったためと考えられる。次に 10hour 以降の結果に ついて述べる。25 hour までは Te の膜厚が小さいカソードの量子効率が高いが、同時 に減衰が著しく、45 hour 以降では Te 膜厚が 36.5Åのカソードの量子効率を他の 2 つ が下回っている。この結果から Te の膜厚が 20.6Åのカソードよりも、Te の膜厚が 36.5Åのカソードの耐久性が高いことがわかる。



Figure 5.13: CsKTe/GaAs カソードの寿命測定結果。縦軸は量子効率(2.06eV)、横軸は時間[hour]を表す。異なる記号は異なる Te の膜厚による結果を表す。

Te13.6Åと Te20.6Åに対する結果に対して、1/e 寿命の計算を試みたが、時定数が時間的に変化しており、ただ1つの時定数を決定することができなかった。そこで Te 膜厚 13.6Å, 20.6Å, 36.5Åの寿命測定結果に対して以下の解析を行った。

測定した量子効率は、狭い時間領域において

$$\eta(t) = \eta_0 \exp\left(\frac{t}{\tau}\right),\tag{5.8}$$

に従って変化するとみなす。今回は測定点のうち、隣接 2 点間において時定数 τ が一定 とし、その変化を調べた。計算した時定数 τ の逆数[hour¹]を時間[hour]の関数として表 したものを Figure 5.14 に示す。測定開始直後は拡散効果によって量子効率が上昇して いるため、Figure 5.13 から劣化効果が支配的と考えられる 10hour 以降を Figure 5.14 に示している。各記号は各 Te 膜厚による結果を表す。Te 膜厚が 36.5Åに対する結果で は、概ね1/ τ = -0.02 hour¹程度で一定である。Te 膜厚が 13.6Åと 20.6Åの結果では、 誤差を考慮しても時間に依存して 1/ τ が減少している。これは、時間の経過に従って寿 命が長くなることを示している。



Figure 5.14: 測定 2 点間の時定数の逆数1/τ[hour⁻¹]を時間[hour]の関数として示した もの。各記号は各 Te 膜厚による結果を表す。時間領域は、劣化効果が支配的であると 推測される 10hour 以降を表示している。

20hour 以降の時定数の加重平均をとり、3 つの厚みの寿命を比較する。Figure 5.15 に平均した寿命[hour]を Te の厚み[Å]として示す。13.6Åと 20.6Åの間には大きな差 はなく 25~30hour だが、36.5Åのとき 50hour 以上となっている。

以上より、Teの膜厚が36.5Å以上で寿命が長く薄膜が安定であり、Teの膜厚が20.6Å以下の膜厚では寿命が短く薄膜が不安定であることが推測される。



Figure 5.15: Te の厚み[Å]に対する寿命[hour]。寿命は Figure 5.14 の 20hour 以降 の τ を加重平均して絶対値をとったもの。36.6 Å以外の 2 点は 30hour 程度の短寿命。

表面薄膜が安定と推測される Te 膜厚 36.5 Åのときの寿命測定結果を Figure 5.16 に 示す。横軸は時間(hour)、縦軸は量子効率であり、片対数グラフで表示してある。ここ では 3 つの入射光エネルギーについての結果を示しており、上からそれぞれ 4.96eV, 2.06eV, 1.43eV に対する結果である。拡散効果によって量子効率が上昇し、最大となっ たあと、減少している様子が 3 つすべてのエネルギーに対する結果で見て取れる。 15hour 以降では、2.06eV に対する結果と同様に 4.96eV, 1.43eV に対する量子効率が 指数関数的に減少している様子がわかる。



Figure5.16: 量子効率(Te 膜厚 36.5Å)の寿命測定結果。横軸は時間[hour]、縦軸はロ グスケールとして量子効率を表す。3 つのグラフはそれぞれ(a)4.96eV, (b)2.06eV, (c)1.43eV のエネルギーの光に対する結果である。

測定データの内、量子効率の指数関数的な減衰を観測した15hour以降のデータについて1/e 寿命を求めた。本実験は室温下で行っており、2.3 で述べたカソードの劣化プロセスの内、Csの熱脱離の効果は無視できるほど小さい。また、ビーム寿命の測定結果が過去にないため、引き出し電荷量によってIBBによる劣化効果の大きさを見積もることはできないが、光電子の引き出し時間が15hour以降の全測定時間のおよそ3%程度であることから本実験では無視できるとした。よってガス吸着が主たる劣化原因であると考えられる。そこでガス吸着に対する寿命を、式(B.2.2)を用いて計算した。

Figure5.17 に暴露量 L [10⁻⁶Torr・s]に対する量子効率(2.06eV)の変化を示す。ここで の暴露量(Langmuir unit)とは真空容器内の全圧[10⁻⁶Torr]と時間[sec]の積を表す。図中 の線は指数関数によるフィッティングラインである。光電子の引き出し時には真空度の 悪化が観測されたが、既に述べたように引き出し時間は15hour以降の全測定時間の3% 程度であり、さらに全暴露量に対する光電子引き出し時間中の暴露量の割合も3%程度 である。よって寿命測定中は、光電子引き出しによる真空度の悪化は十分小さく無視で きるとし、常にベースの真空圧力 3.6×10⁻⁸Pa として暴露量を計算した。データフィッ ティングによって暴露量にして 48.77±0.07L の寿命を得た。



Figure 5.17: 暴露量[L]に対する 2.06eV における量子効率の変化。図中のラインは 式(B.2.2)によるフィッティングライン。

この結果を、過去に広島大学で行われた Cs と O による NEA-GaAs の時間寿命測定 結果と比較する。Table 5.3 に一覧を掲載する。今回 CsKTe/GaAs によって得られた寿 命は Cs-O/GaAs の寿命と比較しておよそ 16~22 倍長寿命という結果となった。この結 果は、膜厚にして 36.5 Åの Te を含む CsKTe 薄膜を用いて NEA-GaAs を作成するとい う方法が耐久性の改善に対して有効であることを示している。

カソード	寿命[L]
CsKTe/GaAs(本実験)	48.77 ± 0.07
Cs-O/GaAs	2.2 ± 0.2 [14]
Cs-O/GaAs	2.97 ± 0.15 [27]

Table 5.3: NEA-GaAs の波長 600nm における寿命[L]

次に他の入射光エネルギーに対する寿命測定に対しても 2.06eV と同様の解析を行い、 入射光エネルギー[eV]と寿命[L]の関係を調べた。結果を Figure5.18 に示す。高エネル ギー側は低エネルギー側と比較して長寿命であることがわかる。この結果から以下のこ とが推測される。高エネルギー側では CsKTe からの光電子放出が支配的であるため、 高エネルギー側が長寿命であることは、CsKTe のガス吸着による表面汚染に対して堅 牢であることを示している。一方、低エネルギー側では GaAs からの光電子放出に限ら れる。よって低エネルギー側の寿命が高エネルギー側の寿命と比較して短いことは、 GaAs からの光電子放出能力がガス吸着による表面汚染の影響を強く受けることを示し ている。

またこの結果を用いて、Figure3.4 にて示された CsTe/GaAs カソードの耐久性と比較 する。実験中の真空圧力を 2×10^{-s}Pa と仮定して、ガス吸着による劣化に対する寿命を 見積もると、54L (2.4eV)となった。CsKTe/GaAs カソードの寿命(エネルギー2.5eV)は 100L 程度であることから、入射光エネルギーに多少差があるがおよそ 2 倍の耐久性の 向上ができたことがわかる。



Figure 5.18:入射光エネルギー[eV]に対する寿命[L]の変化。入射光エネルギー増加に 従って寿命が長くなっている。

第6章 CsKTe/GaAs カソードの評価

第5章で述べたように、GaAs上にCsKTeを形成したCsKTe/GaAsカソードは GaAsのバンドギャップエネルギー1.43 eVで有意な光電子放出が可能であり、さらに CsとOによるNEA-GaAsと比較して、ガス吸着による劣化に対しておよそ22 倍長 寿命である。そこで、実際の加速器に用いる場合の運転可能時間を見積もった。

CsKTe/GaAs カソードはガス吸着に対して、 $20.73 \pm 0.37L$ (at 1.43eV)の寿命をも つ。これと実機の真空圧力を用いて計算した時間寿命を Table 6.1 に示す。DC 電子銃 を使用する場合の真空圧力は 5.0×10^{-10} Pa、RF 電子銃の場合は 1.0×10^{-7} Pa を想定し た。DC 電子銃での使用では 1500 hour を超える寿命が得られており、長時間の運用 が可能な耐久性であるといえる。一方、RF 電子銃での使用を想定すると 7 hour 程度 の寿命である。CsKTe/GaAs の IBB に対する耐性がどの程度かは不明だが Cs-O/GaAs カソードを RF 電子銃で使用したときの寿命は数秒[28]であることを踏まえれ ば、ガス吸着のみを考えた場合 10^3 倍もの長い寿命を持つことがわかる。しかし実際 に RF 電子銃で使用することは依然困難である。よってさらなる高耐久化を目指す必 要がある。

電子銃	想定真空圧力[Pa]	寿命[h]
DC-gun	$5.0 imes10^{-10}$	1535.6
RF-gun	$1.0 imes 10^{-7}$	7.7

Table 6.1 CsKTe/GaAs カソード使用時の想定時間寿命

以上より、DC電子銃でしか使用できないという制限は存在するが、Cs-O/GaAsを 使用する場合より長時間運用が可能という結果となった。IBBに対する耐性評価は行 っておらず、また量子効率が0.1%を超えない低い値であるという欠点は存在するが、 大電流を必要としない、スピン偏極電子ビームを用いた実験を想定した加速器での長 時間運用に適するカソードを作成できたといえる。

第7章 まとめと今後

次世代線型加速器 ILC (International Linear Collider)計画ではヒッグス粒子の精密 測定や新物理の発見などを目指しており、そのために高スピン偏極電子ビームが用いら れる。NEA-GaAs フォトカソードは高スピン偏極電子の放出が可能な現在唯一の電子 源であるため ILC での使用が計画されている。しかし偏極電子放出に欠くことのでき ない NEA 表面の耐久性は限定的であり、静電型電子銃での使用には耐えられるものの、 真空圧力を 1.0×10⁻¹⁰ Pa に保つ必要がある等の運用制限が存在する。NEA-GaAs の耐 久性の改善が成されれば、制限の解消や RF 電子銃での使用など、運用可能性が拡大す るというメリットがある。本研究では高耐久 NEA-GaAs の開発のため、Cs-O 活性に代 わる、ヘテロ接合モデルに基づく方法を提案し、CsKTe を用いた GaAs の NEA 活性化 試験を行った。

真空蒸着と光電流測定を行うことが可能な装置を用いて GaAs 上に Cs, K, Te を蒸着 したところ、GaAs のバンドギャップエネルギーである 1.43eV の光において 1.5×10⁵ の有意な量子効率を観測し、それ以下のエネルギー領域での急激な量子効率の減少を観 測した。さらに蒸着した Te に対する Cs と K の割合が一定であることから、Cs 活性で はなく、CsKTe 薄膜による NEA 活性化が強く示唆される結果を得た。これは CsTe 薄 膜による NEA 活性化に引き続き、ヘテロ接合モデルに基づく活性化手法が有効である ことを示している。

量子効率の膜厚による変化を調べたところ、膜が厚くなると GaAs からの光電子放出 を妨げる効果が増大することがわかった。そのため量子効率の向上には膜をできる限り 薄く GaAs 上に形成することが必要であることが推測される。しかし、現在用いている 蒸散機構では、Te小片の融解によってWヒーターとTe小片の接触面積が容易に変化 するため、細かい蒸気量の制御を行うことができず、極薄膜の形成が困難である。その ため蒸散機構の改良を行い、蒸着量の制御能力を向上させることが必要である。

耐久性の検証に関しては、時間寿命を測定し、Teの膜厚が 36.5 Åのとき暴露量にし て 48.77±0.07L の寿命を得た。これは Cs·O/GaAs カソードの 16~22 倍の値であり、 長寿命化が達成できたといえる結果である。ビーム寿命の測定を行っておらず、また低 量子効率という課題もあるが、スピン偏極電子ビームを必要とするが大電流は必要ない 加速器での長時間運用に適用できる可能性がある。一方で Te の膜厚が小さい薄膜は不 安定であることがわかり、量子効率の向上に必要な要素と相反する結果となった。しか し NEA-GaAs は極低エミッタンスのスピン偏極電子ビームを提供可能という点に関し てユニークなフォトカソードであるため、必ずしも高量子効率が求められているわけで はない。よって今後はさらなる耐久性の向上可能性に興味があり、Te の厚みが 36.5 Å 以上の薄膜による CsKTe/GaAs の寿命測定を行い、膜厚に対する耐久性の変化を調べ る必要がある。もし膜厚増加に伴って耐久性が向上すれば、さらなる長寿命化が実現で きる。また、膜厚増加に依存せず耐久性が一定であったとしても、安定薄膜の作成が可能な範囲で薄く薄膜を GaAs 上に形成することで、耐久性を保ちつつ、本研究で得られた量子効率よりも高い効率を実現することが可能となる。

CsKTe/GaAs の量子効率が低い理由として、光学的な透過性が低いことが考えられる。本研究によって、安定薄膜をGaAs 表面に成膜することで耐久性を向上することが可能であることが判明したため、CsKTe に代わる新たな薄膜として、透過性に優れ、かつ安定な材料を選択することで、高量子効率と高耐久性を両立したカソードの作成が可能であることが考えられる。

また、本研究では薄膜の形成後に量子効率が時間的に上昇する現象を観測し、拡散現 象によってそれを説明した。その結果、Te 層にアルカリ金属が拡散する際の拡散時定 数は 5~22 分程度であることがわかり、また加熱洗浄後の GaAs 上に Te が残留してい ることが示唆された。これらは CsKTe 薄膜の形成過程の理解に役立ち、また同一 GaAs ウエハー上に繰り返し薄膜を成膜する実験を行う際に助けとなると考えられる。具体的 には、先に蒸着した Te 上にアルカリ金属を蒸着する際、数分に数 A 程度の蒸着に留め ることで、過不足なくアルカリ金属を供給することができると考えられる。

以上より、本研究では高耐久 NEA-GaAs カソードを作成することができた。その耐 久性はガス吸着による劣化に対して従来の 22 倍高く、依然 RF 電子銃での運用は困難 ではあるが、DC 電子銃での運用では 1500 時間の運転時間が確保できると考えられる。

付録 A フォトカソードの量子効率

フォトカソードの性能を図る指標として量子効率(Quantum Efficiency:QE)が用いら れる。量子効率は光電面に入射した光を、光電子にかえる変換効率を表しており、入射 した光子数に対する真空中へと放出された電子数で定義されている。実用的な数値を用 いて次の式であらわされる。

$$QE = \frac{N_{electron}}{N_{photon}} \times 100 \cong 124 \frac{I}{\lambda P}.$$
 (A.1)

この式でQE(%)は量子効率、 $N_{electron}$ は光電子数、 N_{photon} は入射光子数、Iは光電流[mA]、 λ は入射光波長[nm]、Pは入射光のパワー[W]を表している。本研究の結果では QE が 小さい値であるため、百分率の代わりに絶対値を用いて QE を表している。

付録 B NEA-GaAs カソードの劣化に対するモデル式

B.1 Cs 熱脱離

Cs が1つの活性化エネルギーE で結合していると仮定した場合、一次の反応が支配的であるとすると熱脱離はアレニウスの式から、

$$\frac{dn}{dt} = -nv \exp\left(-\frac{E}{kT}\right),\tag{B.1.1}$$

と表される。ここで、n はカソード上における単位面積当たりの結合分子数[1/m²]、 ν は頻度因子、k はボルツマン定数、T は温度[K]を示す。ここで量子効率 η が結合分子数nに比例すると仮定すると、

$$\frac{1}{n}\frac{dn}{dt} = \frac{1}{\eta}\frac{d\eta}{dt},\tag{B.1.2}$$

という関係が得られる。(B.1.1)および(B.1.2)から、量子効率の時間変化を求めることが できる。

$$\tau_{td} = -\frac{1}{v} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right),\tag{B.1.3}$$

と置くと、量子効率の時間変化は

$$\eta = -\eta_0 \exp(-\frac{t}{\tau_{td}}), \qquad (B.1.4)$$

と表される。ここで η_0 は初期の量子効率を表し、 τ_{td} は熱脱離による寿命である。(B.1.4) 式からある一定の温度の下で量子効率は指数関数的に減衰することがわかる。そして、 寿命は $T \ge E$ から式(B.1.3)により決定される。逆に寿命をある Tで測定すれば、E を 求めることができる。

B.2 ガス吸着

ある特定のガス種の分子が表面に吸着することにより、量子効率ηが

$$\frac{d\eta}{dt} = -\sum \alpha_i p_i \eta, \qquad (B.2.1)$$

のように変化するとする。すなわち、時間変化は、その分子の分圧 *pi*と、劣化具合を表 す定数 *ai*に比例するとする。添え字iはガス種を示す。ガス種が1種類のみと仮定する と、(B.2.1)の解は、

$$\eta = \eta_0 \exp(-\frac{\int P dt}{\tau_a}), \tag{B.2.2}$$

と表される。 η_0 は初期の量子効率、 $\tau_a = 1/\alpha_i p_i$ はガス吸着による寿命であり、圧力×時間の次元を持つ。この式によりガス吸着による量子効率の減衰は指数関数的に表され、 その寿命はカソード表面に吸着するガス種とその分圧に依存することがわかる。

B.3 Ion Back Bombardment

Ion Back Bombardment とは、発生した電子ビームと残留ガスとの衝突により発生 した正イオンが、カソードに逆流衝突することにより発生する劣化現象である。その効 果は、衝突するイオン密度と、一つのイオン当たりの劣化反応の断面積*σp*を用いて次式 のようになる。

$$\frac{d\eta}{dt} = -\sigma_D \frac{N_{ion}}{S} \eta. \tag{B.3.1}$$

ここでSはカソード上での電子発生領域[m²]、N_{ion}は単位時間あたりに電子発生領域に 衝突するイオン数[1/s]である。電子ビームの進行方向をzとして、運動エネルギーEを 持つ電子によって[z, z+dz]の微小区間で発生したイオン数を n_{ion} 、そのイオンがカソー ド上の電子発生領域に衝突する確率をR(z)とすると、衝突イオン数 dN_{ion} を次式のよう に表すことができる。

$$dN_{ion} = R(z)dn_{ion}.$$
(B.3.2)

ここで衝突確率 R(z)は電場の形状にのみ依存することから、 z のみの関数であると仮定した。また、微小区間で発生するイオン数 dn_{ion} は電子の持つエネルギーE、真空容器内の残留ガス密度 n_R 、単位時間あたりに微小区間を通過する電子数 N_e 、イオン化断面積 σ (E)を用いて、

$$dn_{ion} = N_e n_R \sigma(E) dz, \tag{B.3.3}$$

と表すことができる。このとき、電子の持つエネルギーE はカソード部の電場ポテンシャルに依存することから z のみの関数と関数であると仮定する。式(A.3.2)及び式(B.3.3)を z について積分することで、衝突イオン数 Nionを

$$N_{ion} = N_e n_R \int R(z)\sigma(E)dz, \qquad (B.3.4)$$

と表すことができる。ここで、残留ガス密度 n_R を理想気体と仮定すると、真空圧力 P、 ボルツマン定数 k_B 、温度 T から $n_R = Plk_BT$ と表される。また、電子数 N_e は光電流 I と素電荷 e から N_e = I/e となることから、式(A.3.4) は

$$\frac{d\eta}{dt} = -\frac{\sigma_D P I}{e k_B T S} \int R(z) \sigma(E) dz \eta, \qquad (B.3.5)$$

となる。温度 T が時間によらず一定で、真空圧力 P と光電流 I が時間に依存すると仮 定して式(B.3.5)を解くと、

$$\eta = \eta_0 \exp(-\frac{\int J \times P dt}{\Theta}), \tag{B.3.6}$$

$$\Theta = \frac{ek_B T}{\sigma_{NEA}} \int \rho(z)\sigma(E)dz, \qquad (B.3.7)$$

となる。ここで、電流密度 J = I/S を導入し、P は真空圧力、 Θ は真空度と電子発生領域の面積で規格化された量子効率劣化の寿命を表している。

付録 C エリプソメータによる膜厚測定原理

エリプソメータ(ellipsometer)とは、試料に光を入射し、反射したs 偏光とp 偏光間 の位相と反射率を測定することで、膜厚の非破壊測定が可能な装置である。ここでs 偏光とは入射面に対して電場が垂直に振動する偏光。(s とは senkrecht の頭文字であ り、ドイツ語で垂直という意味である。) またp 偏光とは入射面に対して電場が平行 に振動する偏光のことである。

エリプソメータでは、知の偏光を試料に対して斜めに入射し、試料からの反射光の 偏光状態を測定する。試料からの反射による偏光状態の変化は、式(C.1)で定義されて いる。

$$\rho = \frac{R_p}{R_s} = \tan(\Psi) e^{i\Delta}.$$
 (C.1)

ここで R は試料からの偏光反射率を表し、添え字によって p 偏光と s 偏光を区別して いる。 $tan(\Psi)$ は p 偏光と s 偏光の反射率の割合の大きさを定義しており、 Δ は反射し た p 偏光と s 偏光の位相差を定義している。

Figure C.1 にエリプソメー タによって試料に入射された 光が反射される様子を表した 概図示す。この図で表される 試料の屈折率 n_1 、入射角 θ 1、反射率 r と、反射光の入射 光に対する偏光状態の変化と 合わせることで、式(C.2)と式 (C.3)で表されるように膜厚 d の算出が可能である。



Figure C.1: 試料に入射した光の光跡を示した概図。

$$\rho = \frac{\frac{r_{p01} + r_{p12}e^{-i2\beta}}{1 + r_{p01}r_{p12}e^{-i2\beta}}}{\frac{r_{s01} + r_{s12}e^{-i2\beta}}{1 + r_{s01}r_{s12}e^{-i2\beta}}},$$
(C.2)

$$\beta = 2\pi \frac{d}{\lambda} n_1 cos \theta_1. \tag{C.3}$$

この分析方法で膜厚を測定することができるが、薄膜の厚みが 10nm 以下の場合、 単一波長の光での測定では厚みの「周期性」問題が引き起こされる。その問題を排除 するために、今回は 4 つの波長(465nm, 525nm, 580nm, 635nm)によって測定を行っ ている。[29]

謝辞

本研究を行うにあたり、栗木雅夫教授には研究計画の立案から学会発表、論文作成に 至るまで、様々な面でご指導いただきました。多くの学ぶ機会を与えてくださった栗木 教授のご指導に感謝いたします。

元加速器物理研究室メンバーの郭磊様(現 分子科学研究所)には、装置の立ち上げなど 様々な場面でご助力いただきました。

ビーム物理学研究室の岡本宏己教授、檜垣浩之准教授、伊藤清一助教授にはミーティング でご助言をいただきました。特に伊藤助教授には装置の改良時に図面の書き方や材料等に ついてご指導いただきました。またビーム物理学研究室のメンバーには実験、生活面で助け ていただきました。

その他にも多くの方々のご協力のおかげで論文を作成することができました。お世話に なった皆様にこの場を借りて感謝の意を表させていただきます。

参考文献

[1] 西村武 "位相空間回転によるリニアコライダーのための高ルミノシティビーム 生成 x-z エミッタンス交換の特性評価" H30 年度卒業論文

[2] 田村遼平 "位相空間回転によるリニアコライダーのための高ルミノシティビー ム生成 x-v エミッタンス交換の特性評価" H30 年度卒業論文

[3] D.T. Pierce, et al., Appl. Phys. Lett. 26, 670 (1975)

[4] N. Yamamoto, et al., Proc. PASJ2015 WEP042

[5] N. Chanlek, "Quantum Efficiency lifetime studies using the photocathode preparation experimental facility developed for the ALICE Accelerator", (2011) Ph.DThesis

[6] M. Kuriki, "Foundation of Electron Accelerator"

[7] M. Woods, "Polarization at SLAC" SLAC-PUB-6694 1995

[8] T. Nakanishi, et al., Phys. Lett. A 158 (1991) 345-349

[9] T. Nishitani, et al., J. Appl. Phys. 97, 094907 (2005)

[10] B. Goldman, D. Szostak, Appl. Phys. Lett. 26 (1975) 111-113

[11] T. Wada et al., Surf. Sci. 285 (1993) 188-196

[12] H. Fischer, P. Drescherm, E. Reichert, SLAC-R-432 (1993)

[13] H. Iijima, et al., Proc. of International Particle Accelerator Conf. (IPAC2010), TUPE086

[14] 三好健太郎 "NEA-GaAs 光陰極におけるイオン衝突の影響の研究" (2013 年度修 士論文)

[15] 正中智慧 "高輝度放射光源のための GaAs 光陰極寿命の温度依存性についての研究" (2009 年度修士論文)

[16] L. Diederich, et al., Surf. Sci. 349 (1996) 176-184

[17] C.I. Wu, A. Kahn, Appl. Surf. Sci. 162-163 (2000) 250-255

[18] H. Sugiyama, et al., J. Phys. Conf. Ser. 298 (2011) 012014

[19] 内田和秀 "GaAs フォトカソードの Cs-Te 薄膜による NEA 活性化の研究"(2015 年度修士論文)

[20] T. Rao, et al., Nucl. Instr. and Meth. A 557, 124 (2006)

[21] R.A. Loch, "Cesium-Telluride and magnesium for high quality photocathodes-

preparation 52 and diagnostics", Master thesis (2005)

[22] D. Bisero, *et al.*, Appl. Phys. Lett. 70. 1491 (1997)

[23] HORIBA Jobin Yvon Inc., "Micro-HR Automated Imaging Spectrometer User Manual" Part Number 81083 Revision 2 pp37-38 [24] Q.E. Tereshchenko, et al., Appl. Surf. Sci. 142 (1992) 75-80

[25] H19年 理科年表 p376

[26] B. Goldstein, et al., Surf. Sci. 57 (1976) 733-740

[27] 郭磊"NEA-GaAs カソードのビーム引き出し特性についての研究"(2012 年度修 士論文)

[28] A.V. Aleksandrov, et, al., "High power test of GaAs photocathode in RF gun" AccelConf. TUP02J 1998

[29] メイワフォーシス(株)web ページ

URL:

 $http://www.meiwafosis.com/products/ellipsometer/ellipsometer_tokucho.html$