

CsK₂Sb と Cs₃Sb フォトカソード性能の pn 型半導体基板依存性 PN-TYPE SUBSTRATE DEPENDENCE OF CsK₂Sb AND Cs₃Sb PHOTOCATHODE PERFORMANCE

郭磊 ^{*A)}、加藤政博 ^{B, C, A)}、保坂将人 ^{A)}、真野篤志 ^{A)} 高嶋圭史 ^{A)}、
R.Kakui ^{*A)}、M. Katoh ^{B, C, A)}、M. Hosaka ^{A)}、A. Mano ^{A)}、Y. Takashima ^{A)}、
^{A)}Nagoya Univ, ^{B)}Hiroshima Univ, ^{C)}UVSOR IMS

Abstract

The CsK₂Sb and Cs₃Sb photo-cathode is capable of generating a high-intensity and low-emittance electron beam with visible laser light. In this study, we examined CsK₂Sb and Cs₃Sb photo-cathode evaporation on n- and p-type Si(100), GaAs(100), and Si(111) substrates, and compared their cathode performance. We observed significant differences in the quantum efficiency between the different types semiconductor substrates. We qualitatively discuss the result with energy-band models for the semiconductor(metal)-semiconductor junction between cathode and the substrate.

1. はじめに

線形加速器では、高性能な電子銃により生成された高品質電子ビームの性能を劣化させることなく加速することで、リング型加速器では実現することが難しいビーム性能へ到達できる可能性がある。このために、大電流、低エミッタンス、スピン偏極等の特性を有する高性能電子源の必要性が高まっている。たとえば、X-FEL [1] や ERL [2] においては、従来の電子銃よりも、二桁から三桁小さいエミッタンスが要求されている。

フォトカソード電子銃はレーザー照射による光電効果によって電子ビームを生成する電子銃であり、低エミッタンス、短パルスなどの特徴を有しており、先進加速器の要求に応えることができると期待されている。フォトカソード電子銃では、大電流発生が必要とされる場合、陰極の劣化による引き出し可能電流の低下が技術的課題となる。フォトカソードの一種である NEA(Negative Electron Affinity)-GaAs カソードは、光電効果の量子効率 (QE) が 10% 程度と高く、赤色光での励起が可能などの優れた特性を持つが、NEA 表面の耐久性が低いのが課題である [3]。一方、Cu [4] や Mg [5] などの金属カソードは耐久性が高いが、QE が 10⁻⁴ 以下と低く、紫外光での電子励起が必要であり、大電流の発生は難しい。

そこで近年、CsK₂Sb と Cs₃Sb フォトカソードが、低エミッタンス、可視光で励起可能、高い量子効率 (QE) など多くの特長を持つことから、先端加速器用高性能電子源として有力な候補と考えられている。10% 近い高い QE を有し、一方、緑色光で電子を引き出すことが可能であるため、Nd:YAG レーザーなどの固体レーザーの 2 倍波を利用することが可能であり、レーザー源へ負担をかけることなく大電流を引き出すことができる。一般的に、CsK₂Sb と Cs₃Sb フォトカソードは蒸着により基板上に生成され、基板・蒸着条件が QE に影響することがよく知られている [6]。近年我々は最適な蒸着条件を見つけ、10% 程度の QE を再現性良く実現する技術を確認した [6]。しかしながら、基板がカソード性能へもたらす影響には未知な部分がまだ多い。

名古屋大学では次世代の光源加速器への応用を目指して、分子科学研究所 UVSOR や広島大学との共同研究のもと、様々な電子源開発に取り組んできた [7, 8]。現在は、CsK₂Sb カソードの研究および生成技術の確立のため、広島大学で開発された専用の実験装置 [6] を用い、特に、カソードの基板のカソード性能への影響に着目し、研究を進めている。今回は、基板が p 型や n 型の半導体である場合のカソード性能への影響に着目し、n 型および p 型基板上に CsK₂Sb と Cs₃Sb カソードを生成し、それらの性能を評価した。

2. CSK₂SB と CS₃SB 生成

実験のセットアップは、参考文献 [6] に記載されている。実験装置は電解研磨された SUS304 で構成されている。装置内は NEG ポンプとイオンポンプを使用することで 10⁻⁸ Pa 台の極高真空を実現している。カソード成膜基板 (15×15 mm) はモリブデン製のパックに固定されている。パックは成膜と電子放出の間はカソードホルダーに取り付けられている。この研究では、p と n 型の Si(100)、GaAs(100)、Si(111) のウェーハが使用され、全タイプとも基板の抵抗率は ≤ 0.007 Ωcm である。

これまでの研究で、10 nm の Sb 膜厚と 100°C の基板温度で再現性良く最大の QE が得られることがわかっている [6]。K および Cs の蒸着量は、それぞれを蒸着する時に最大 QE を与える量から自動的に決定される。すなわち、QE が飽和するたびに蒸着を停止する。典型的な蒸着手順を以下に示す [6]。

1. 600°C で 1 時間に基板を加熱し、基板表面の不純物を除去する (加熱洗浄)。その後、温度を 100°C まで下げて蒸着中温度を一定に保つ。
2. 定量の Sb (CsK₂Sb の場合 10 nm、Cs₃Sb の場合 5nm) を蒸着する。
3. QE 飽和 (0.2~1.0%) まで K 蒸着。(Cs₃Sb 蒸着の場合はなし)
4. QE 飽和 (2.2~6.9%) まで Cs 蒸着。
5. 基板温度を室温まで下げる。

カソードに -180 V でバイアス電圧をかけ、光電流はバイアス供給電源の出力電流として測定され、光電流の測定限界は 10 nA である。レーザースポットサイズは 0.5

* l.guo@nusr.nagoya-u.ac.jp

Table 1: The maximum QE of the CsK₂Sb photo-cathode on n-type Si(100), n-type Si(111), n-type GaAs(100), p-type Si(100), p-type Si(111), and p-GaAs(100) substrates at 532 nm.

Substrate	QE[%]@532nm
p-type GaAs(100)	10.1 ± 0.4
n-type GaAs(100)	7.0 ± 0.5
p-type Si(100)	9.7 ± 0.7
n-type Si(100)	6.7 ± 0.4
p-type Si(111)	2.8 ± 0.1
n-type Si(111)	1.6 ± 0.1
Mo(100)	10 [9]
p-type Si(100)	7 – 10 [10]

Table 2: The maximum QE values of the Cs₃Sb photo-cathode on n-type Si(100), n-type GaAs(100), p-type Si(100), and p-GaAs(100) substrates at 532 nm.

Substrate	QE[%]@532nm
p-type GaAs(100)	5.3 ± 0.2
n-type GaAs(100)	5.4 ± 0.3
p-type Si(100)	5.3 ± 0.2
n-type Si(100)	5.2 ± 0.2
p-Si(100)	4 – 5 [11]

mm²、レーザーパワーは0.6 mWに調整され、典型的な光電流は、K蒸着する場合に0.5~3 μAであり、Cs蒸着する場合に4~25 μAであった。CsK₂SbとCs₃Sbの蒸着結果をTable 1とTable 2に示している。我々は各基板に8つのサンプルを用いて蒸着を行った。誤差は、8つのサンプルの標準偏差として計算された。比較のため、Mo(100)とp-Si(100)基板の先行研究の結果[9, 10]を一併に示している。

Table 1に示すCsK₂Sbの生成結果を見ると、p型Si(100)とGaAs(100)基板では10%程度の高いQEが得られ、これは先行研究の結果[9, 10]と一致している。一方n型基板では、同じ材質と面方位の基板に対しQEは70%程度とp型基板に比べて有意に低く、p型基板上のCsK₂Sbカソード性能がn型基板より優れていることが明らかとなった。なお、Si(111)と他の基板上のCsK₂Sbカソード性能の違いは、基板面方位依存性によるものである[6]。

一方、Table 2に示すCs₃Sbの生成結果を見ると、全ての基板上的カソードのQEは、532 nmレーザーで約5.0%であった。これらの結果は先行研究の結果と一致している[11]。Cs₃Sbカソード性能の半導体基板のpn型依存性は観察されなかった。

我々はまたCsK₂Sbの蒸着後に、フォトカソードの光電流スペクトル応答を測定した。キセノンランプ(アサヒ、MAX-303)とモノクロメーター(アサヒ、CMS-100)を用い、400~900 nmの範囲で測定した。Figure 1とFig. 2は、Si(100)、Si(111)とGaAs(100)基板上のCsK₂Sbフォトカソードの光電流スペクトル応答を示している。典型的な励起光の帯域幅は1%であった。これ

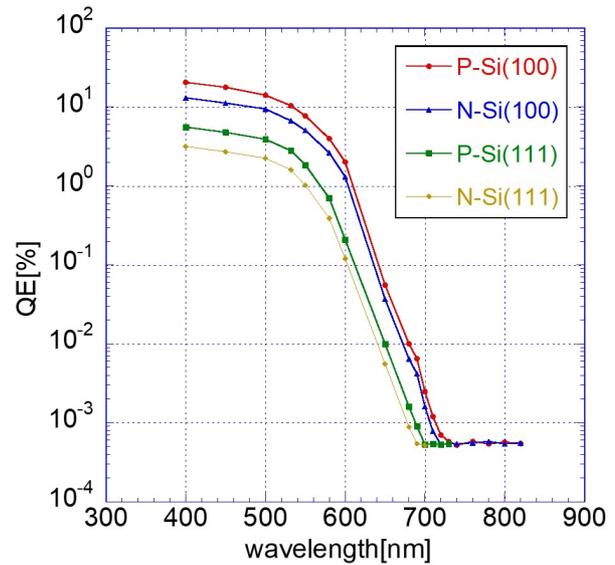


Figure 1: Spectral response for a CsK₂Sb photo-cathode, with red circles, blue triangles, green squares and yellow rhombuses for the p-Si(100), n-Si(100), p-Si(111) and n-Si(111) substrates, respectively. The measurement limit of photo-current is 10 nA [12].

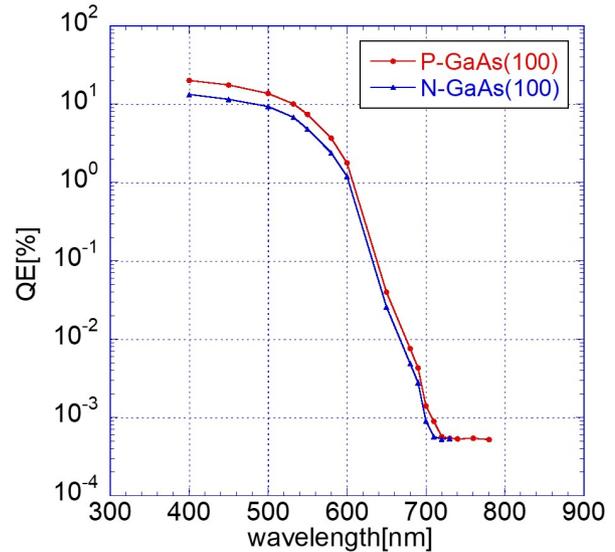


Figure 2: Spectral response for a CsK₂Sb photo-cathode, with red circles and blue triangles for the p-GaAs(100) and n-GaAs(100) substrates, respectively. The measurement limit of photo-current is 10 nA [12].

らの結果は、先行研究によって得られたp型Si(100)基板上の結果と一致している[13]。

3. 考察

実験の結果、CsK₂Sbカソード性能が基板のpn型に依存することが明らかになった。一方、Cs₃Sbの場合

は、依存性は観測されなかった。これは、フォトカソードの性能が基板のpn型に依存することを示す最初の実験的な証拠である。

底は CsK₂Sb のものより高く、n-Si と n-GaAs の伝導帯の底は CsK₂Sb のものより低くなる。

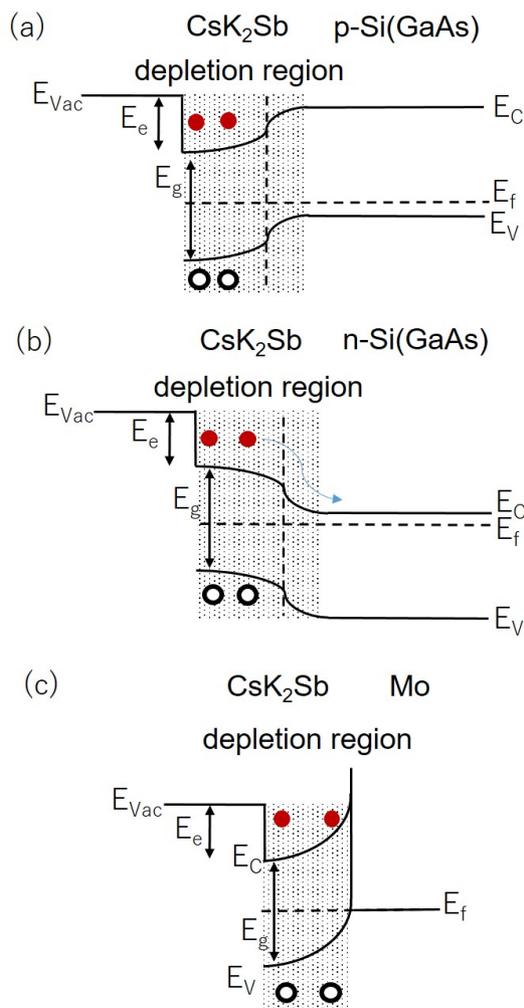


Figure 3: The energy-band models for semiconductor(metal)-semiconductor junction between CsK₂Sb and substrates, (a): p-Si(GaAs), (b): n-Si(GaAs), (c): Mo. E_{Vac} is the vacuum level, E_C is the conduction band, E_V is the valence band, E_e is the electron affinity, E_g is the bandgap and E_f is the fermi level. The vertical dashed line indicates the position of the substrate-cathode interface, and the area of the stripes shows the depletion region [12].

CsK₂Sb は、1.2 eV のバンドギャップと 0.7 eV の電子親和力を持つ直接遷移型半導体であり [14]、ほぼ真性半導体である [15]。CsK₂Sb と基板が半導体 (金属)-半導体接合を形成する。Figure 3 は、CsK₂Sb と p-Si(GaAs)、n-Si(GaAs)、Mo 基板のエネルギーバンド接合モデルを模式的に示している。垂直方向の破線は基板-カソード界面の位置を示し、ストライプのエリアは空乏層を示している。半導体 (金属)-半導体接合により、界面付近にバンドベンディングが生じる。p-Si と p-GaAs の伝導帯の

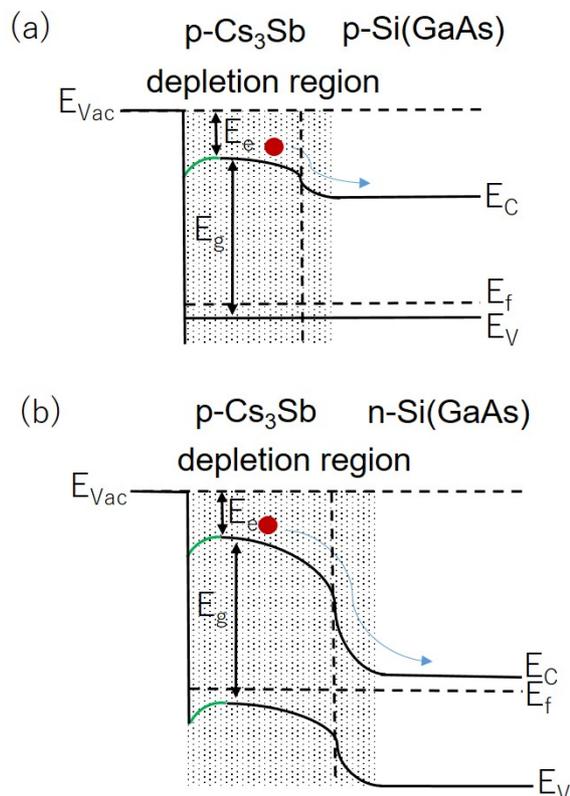


Figure 4: The energy-band models for semiconductor-semiconductor junction between Cs₃Sb and substrates, (a): p-Si(GaAs), (b): n-Si(GaAs). E_{Vac} is the vacuum level, E_C is the conduction band, E_V is the valence band, E_e is the electron affinity, E_g is the bandgap and E_f is the fermi level. The vertical dashed line indicates the position of the substrate-cathode interface, and the area of the stripes shows the depletion region [12].

X線反射率 (X-ray reflectivity) を用いた先行研究 [16] により、CsK₂Sb カソードの厚みは蒸着された Sb の膜厚の 5-6 倍になることが示されている。この結果から、本研究における CsK₂Sb カソードの厚さは数十ナノメートル程度になっていると推測される。これは光子侵入深さ (約 20 nm) よりも厚い。一方、高濃度にドーパされた半導体の空乏層の幅が通常数十ナノメートルであるのに対し低濃度にドーパされた半導体の空乏層の幅はこれよりはるかに広くなることがよく知られている [17]。CsK₂Sb はほぼ真性半導体のため、空乏層はほぼ表面まで延びていると考えられる。バンドベンディングにより、空乏層内の励起電子は p-Si(GaAs) 基板へ拡散せず、n-Si(GaAs) に容易に拡散できる。この現象により、n型基板上の CsK₂Sb カソードの QE が p型基板上のより低いものとなったものと考えられる。

Figure 3 (c) に示している金属-半導体接合は、CsK₂Sb と p型半導体基板との接合と類似している。バンドベンディングにより、CsK₂Sb カソード側のバンドは上に曲

がり、励起電子は Mo 側に拡散することはできないため、高い QE が得られる。

一方、我々は Cs₃Sb カソードの基板 pn 型依存性を観測できなかった。この結果もカソードと基板の接合によって説明できる。Cs₃Sb は 1.6 eV のバンドギャップと 0.45 eV の電子親和力を持つ直接遷移型半導体である [18]。また、Cs₃Sb が p 型半導体であることはよく知られている [19]。Figure 4 は Cs₃Sb と p-Si(GaAs)、n-Si(GaAs) 基板のエネルギーバンド接合モデルを示している。全ての基板の伝導帯の底は Cs₃Sb のそれより低い。空乏層または空乏層に近い励起電子は、すべての基板に対して基板側へ拡散できる。したがって、すべての基板上の Cs₃Sb カソードの QE に差は見られないはずである。このようにして、Cs₃Sb と基板の伝導帯の底のエネルギー差は QE に影響しないことが理解できる。

二つのカソードの蒸着結果は、カソードと基板の間の半導体 (金属)-半導体のエネルギーバンド接合によって説明することができる。高い QE を得るため、基板の伝導帯の底がカソードのより高くなければならないことを示している。

4. まとめと今後

高い再現性と高い QE を与える蒸着プロセスを用い、CsK₂Sb フォトカソード性能の基板依存性を調べた。我々は、p-GaAs(100)、p-Si(100)、および Mo(100) 上のカソードが、n-GaAs(100) および n-Si(100) 上のカソードより有意に高い QE を有することを見出した。また、Cs₃Sb は半導体基板の pn 型に依存しないこともわかった。これらの結果は、カソード性能が基板材料、表面状態、および面方位だけではなく、基板の pn 型にも依存することを明らかに示している。基板の伝導帯の底がカソードのそれより高い場合に高い QE を得ることができた。この知見は、カソードと基板の接合を適切に組み合わせることによって、薄膜カソード性能を改善できる可能性を示している。

今年度から、あいち SR で放射光を利用してカソードの表面物性を評価し、QE を決定づける物理の究明に挑戦する。現在、そのための試料輸送装置を開発中である。

参考文献

- [1] The Technical Design Report (TDR) of the European XFEL (2007).
- [2] Design Study of Compact ERL, KEK-Report 2007-7 (2007).
- [3] Photocathodewiki; <http://photocathodes.chess.cornell.edu/wiki/>
- [4] P. G. O'Shea, Nucl. Instrum. Methods Phys. A **358**, 36 (1995).
- [5] T. Srinivasan-Rao, J. Fischer and T. Tsang, J. Appl. Phys. **69**, 3291 (1991).
- [6] L. Guo *et al.*, PTEP, 2017, 033G01.
- [7] Ryo Inagaki *et al.*, Proceedings of the 10th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, SAP046, (August 3-5, 2013, Nagoya, Japan).
- [8] Tomohiro Miyauchi *et al.*, Proceedings of the 12th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, THP042, (2015).

- [9] M. A. Nichols, Research Experiences for Undergraduates (REU) Report, 2011, Cornell University; https://www.lepp.cornell.edu/~ib38/reu/11/Nichols_report.pdf
- [10] S. Karkare, I. V. Bazarov, L. E. Boulet, M. Brown, L. Cultrera, *et al.*, Proceedings of IPAC 2013, Pasadena, CA, TUOAB1 (2013).
- [11] L. Cultrera, I. Bazarov, A. Bartnik, B. Dunham, S. Karkare, R. Merluzzi, and M. Nichols, Appl. Phys. Lett. **99**, 152110 (2011).
- [12] L. Guo and M. Katoh, "pn-type substrate dependence of CsK₂Sb photocathode performance", Phys. Rev. Accel. Beams **22**, 033401 (2019).
- [13] L. Cultrera, H. Lee and I. Bazarov, Journal of Vacuum Science & Technology B **34**, 011202 (2016).
- [14] C. Ghosh and B. P. Varma, J. Appl. Phys. Vol. **49**, No.8, August (1978).
- [15] D. G. Fisher, A. F. McDonie and A. H. Sommer, J. Appl. Phys. Vol. **45**, No.1, January (1974).
- [16] S. Schubert, H. Padmore, J. Wong, Z. Ding, M. Gaowei, *et al.*, Proceedings of IPAC2015, Richmond, VA, USA, WEPWA032 (2015).
- [17] "Electrostatic analysis of a p-n diode". ecee.colorado.edu. Retrieved 2018-09-26.
- [18] H.-S. Jeong, K. Keller and B. Culkin, J. Vac. Sci. Technol. B **33**, 031214 (2015).
- [19] A. H. Sommer, J. Appl. Phys. **29**, 1568 (1958).