

セシウム・アンチモン・酸素を用いた新しい NEA 活性化レシピの開発

DEVELOPMENT OF A NEW NEGATIVE ELECTRON AFFINITY ACTIVATION METHOD USING CESIUM, ANTIMONY, AND OXYGEN

郭磊^{#A)}, 栗木雅夫^{A)}, ザカリーリプタック^{A)}, 高嶋圭史^{B)}

Rai Kaku^{#A)}, Masao Kuriki^{A)}, Liptak Zachary^{A)}, Yoshifumi Takashima^{B)}

^{A)} Hiroshima University

^{B)} Nagoya University

Abstract

Negative Electron Affinity (NEA) activated GaAs photocathodes are the only one capable of generating spin-polarized electron beam larger than 90%. However, the NEA layer currently made from mainstream cesium (Cs) and oxygen (O) is chemically unstable, the NEA-GaAs photocathode has a rapid quantum efficiency degradation over time or electron beam. As a result, it requires an operating vacuum pressure of below 10^{-9} Pa and has a short lifetime. Recently, a new NEA layer using heterojunctions with semiconductor thin films of alkali metals and antimony (Sb) or tellurium has been proposed. Recent works have shown that the deposition of the NEA layer was realized using cesium, antimony and oxygen. In this work, we attempted to introduce Sb at two different timing. One is introduction from the beginning, and the other one is introduction after Cs and oxygen deposition. We systematically investigate the deposition temperature and antimony thickness to find the optimal conditions for improving quantum efficiency and lifetime. We will report the latest results.

1. はじめに

負の電子親和力(NEA)を有する GaAs フォトカソードは、高度にスピン偏極した電子ビームを生成できる特性により、加速器を用いたシステムやスピン分解電子顕微鏡において不可欠な構成要素となっている。1970 年代後半、SLAC において最初に導入された初期の GaAs フォトカソードは、バルク結晶を用いたものであり、得られるスピン偏極度は最大で約 50%に限られていた。しかしその後、価電子帯の縮退を解消する歪み超格子構造 (strained superlattice) が開発されたことで、この限界を超え、90%以上の偏極度が実現されるようになった。

このような高い偏極性能により、GaAs 超格子フォトカソードは、国際リニアコライダー (ILC) やスピン偏極パルス透過型電子顕微鏡など、次世代の偏極電子源における基盤技術として位置づけられている。

一方で、従来の NEA 表面は、セシウム (Cs) と酸素 (O_2) を順次蒸着することで形成されるが、化学的安定性に乏しく、たとえ極高真空 (EHV) 条件下であっても、残留ガスの吸着やイオンバックボンバードメントにより急速に劣化するという課題がある。例えば、ビーム電流 50 mA の運転条件下では、標準的な Cs-O 活性化 GaAs フォトカソードの $1/e$ 寿命はわずか 1.5 時間程度とされている。

このような課題を克服するために、近年では代替となる NEA 活性化手法が多数提案されており、中でもアルカリ金属をベースとした化合物薄膜を用いたヘテロ構造による活性化手法が注目されている。これには、Cs-Sb-O[1]、Cs-Te-O[2]、Cs-K-Te[3]、Cs-Li-O[4]といった構成が含まれ、これらの手法は化学的耐久性の向上を示し、従来よりも 1 桁以上緩やかな真空要求での運転や、フォトカソード寿命の大幅な延長が期待されている。

しかしながら、こうした化合物系 NEA 表面の最適な活性化条件は、現時点では体系的に明らかにされていない。本研究では、特に Cs-Sb-O 活性化法に着目し、フォトカソード性能に大きく影響する 3 つのパラメータ、すなわち蒸着中の基板温度、Sb 層の膜厚、そして Sb の蒸着タイミング (活性化シーケンス内での順序) について詳細に検討を行った。具体的には、Sb を活性化の最初に導入する「1st-Sb 方式」と、Cs および O の蒸着後に Sb を導入する「AFT-Sb 方式」の 2 つの手法を比較し、それぞれの条件下で得られる量子効率と暗寿命を評価することで、性能と耐久性の両立に資する最適な活性化条件の特定を試みた。なお、学術雑誌への投稿中のため、実験結果については本稿への掲載を控えたものがある。

2. 実験と結果

本研究で使用した実験装置の詳細については、別文献にて報告されている[5]。真空系は、排気速度 100 L/s のイオンポンプおよび 400 L/s の非蒸発型ゲッターポンプ (NEG) から構成され、通常 1.0×10^{-8} Pa の超高真空を維持している。GaAs 基板 (puck 状) は、蒸着および光電子放出測定のため両方においてカソードホルダーに固定された。

フォトカソード基板には、高濃度に Zn ドープされた p 型 GaAs (100) ウェハ ($5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) を使用した。蒸着源は真空チャンバー内のリニアマニピュレーターに設置され、高純度 (99.9999%) Sb ペレットはタングステンバスケットを用いて抵抗加熱により蒸着された。Cs は SAES Getters 社製のディスペンサーを用いて供給した。蒸着速度は、水晶振動子式マイクロバランス (QCM) によりリアルタイムでモニタリングされ、カソードに対して対称位置に設置することで蒸着の均一性を確保した。蒸着源と基板の距離は約 15 mm に保たれ、蒸着速度は 0.01 \AA/s の分解能で測定された。

[#]leiguo@hiroshima-u.ac.jp

酸素(純度 99.9%)はリークバルブを用いて導入され、その際の圧力上昇をもって導入量の指標とした。酸素導入時の圧力は通常 7×10^{-7} Pa に達する。活性化前には、GaAs 基板を 550~600°C に加熱し、約 60 分間の熱洗浄処理を施した。

NEA 活性化中の光電子放出は、780 nm のダイオードレーザーを用いて *in situ* でモニタリングされた。カソードには -100 V のバイアス電圧が印加され、光電流は 1 M Ω の直列抵抗における電圧降下から求められ、0.01 nA の分解能で測定された。

NEA 層の形成にあたっては、Cs、Sb、O₂ を室温(約 20°C)で用い、以下の 2 つの活性化シーケンスを検討した。

- パターン①: Sb → Cs → Cs + O₂ 同時蒸着 → ...
- パターン②: Cs → Cs + O₂ 同時蒸着 → Sb → ...

Figure 1(a) に示すパターン①では、最初に Sb を約 0.5 Å 蒸着した。続いて Cs を蒸着しながら QE を観測したが、QE の上昇は見られなかった。その後、Cs と O₂ を同時に蒸着したところ、QE が上昇し、最終的に 1.7% の QE が得られた。しかし、同じプロセスを繰り返して再活性化を試みたところ、QE は 0.003% にとどまり、再現性に課題があることが示唆された。

次に、Fig. 1(b) に示すパターン②では、GaAs 表面に対して Cs を先に蒸着した。この段階では、一時的に QE のピーク(いわゆる「Cs ピーク」)が見られたが、すぐに減衰した。その後、Cs と O₂ の同時蒸着により QE が再度上昇し、最終的に約 1.7% で飽和した。さらに Sb を追加蒸着したところ、QE は検出限界以下まで低下した。これに対して再び Cs を蒸着したところ、QE は 0.1% まで回復し、さらに Cs と O₂ の同時蒸着を行うことで 1.6% まで回復した。しかし、その後再度 Sb および Cs を蒸着しても、QE は 0.03% にとどまり、増加は見られなかった。得られた QE は、Cs-O による Yo-Yo 法に比べて低く、この原因としては、NEA 層が単原子層から数 nm 厚の層へと厚くなったことにより、電子の拡散距離が増加した可能性が考えられる。

いずれの方法においても、QE は 780 nm 励起で最大約 1.7% となり、これは文献に報告されている Cs-O 活性化 GaAs フォトカソードの QE に匹敵する値であった[6]。この新しい NEA 活性化法の利点として、Sb 蒸着時に QE と Sb 膜厚の同時測定が不要であること、ならびに Cs・O₂ との同時蒸着を行う必要がないことが挙げられる。そのため、活性化実験は簡易な装置構成で実施可能となり、装置コストの低減が期待される。また、各パラメータが独立して制御可能であるため、最適化が容易であるという利点もある。

NEA GaAs フォトカソードの動作寿命を延ばすためには、Cs-O あるいは Cs-Sb-O などから構成される NEA 活性化層の原子スケールにおける分子構造や界面化学結合の特性を明らかにすることが不可欠である。これらの表面・界面現象に関する包括的理解は、酸素の拡散、活性化元素の脱離、表面汚染などの劣化メカニズムの特定につながる。最終的には、これらの知見が、高電流環境や超高真空中におけるフォトカソードの量子効率、耐久性、長寿命化の向上に寄与すると考えられる。

なお、試料輸送時の劣化を防ぐため、本研究では内

部圧力 10⁻⁸ Pa を維持可能な専用の真空スーツケースを設計・製作した。このスーツケースを用いて、蒸着チャンバーからシンクロtron放射光施設まで試料を搬送し、高輝度 X 線による表面構造解析を実施した。

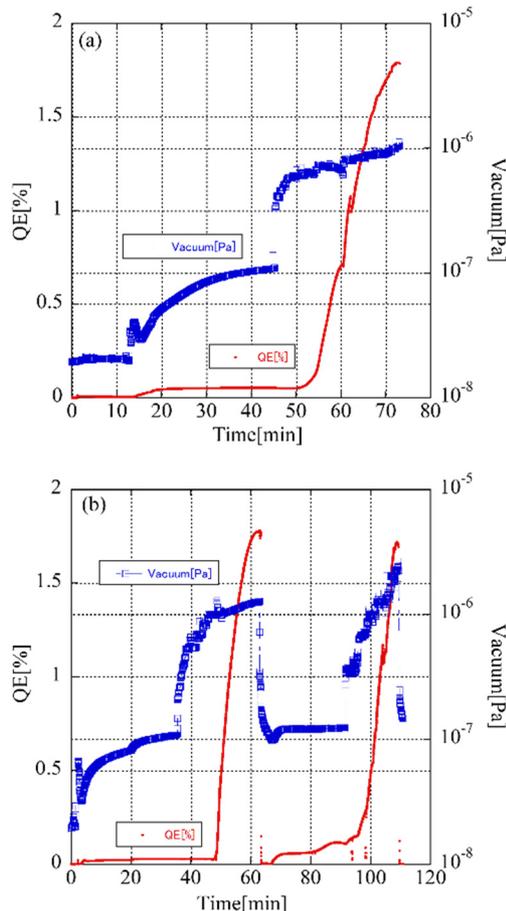


Figure 1: QE evolution over time during NEA activation using two different antimony deposition sequences: (a) is the pattern 1 and (b) is the pattern 2. Red points indicate measured QE, and blue points show the vacuum.

本研究における第 1 世代の試料輸送システムは、排気速度 50 L/s の非蒸発型ゲッターポンプ (NEG) と、10 L/s のスパッタイオンポンプを組み合わせた構成となっており、基底圧は約 2.0×10^{-8} Pa を達成している。輸送時には外部電源を使用せず、NEG ポンプのみが動作し、イオンポンプは停止する。このような無電源状態でも、本システムは 10⁻⁷ Pa 台の真空を維持可能である。また、イオンポンプは圧力計としての機能も兼ねており、電流の読み出しによって輸送中の圧力推定を行うことができる。

初期の輸送容器には NEG ポンプとスパッタイオンポンプの両方が搭載されていたが、その後、設計を改良し、NEG ポンプ (200 L/s) のみに簡素化した。容器自体の真空保持性能が十分であったことから、イオンポンプを省略することで大幅な軽量化が実現した。この設計変更により、輸送システムは完全に無電源で動作するようになり、総重量も約 10.7 kg となって、1 人でも持ち運び可能な高い携帯性を実現した。

取り外したイオンポンプは、転送チャンバーに移設さ

れ、蒸着系および輸送系の主排気ポンプと真空負荷を分担する構成に改めた。このチャンバーは、試料輸送時における圧力モニタリング用の真空計としても機能し、輸送容器および周辺システム全体の利便性と機能性を向上させた (Fig. 2)。

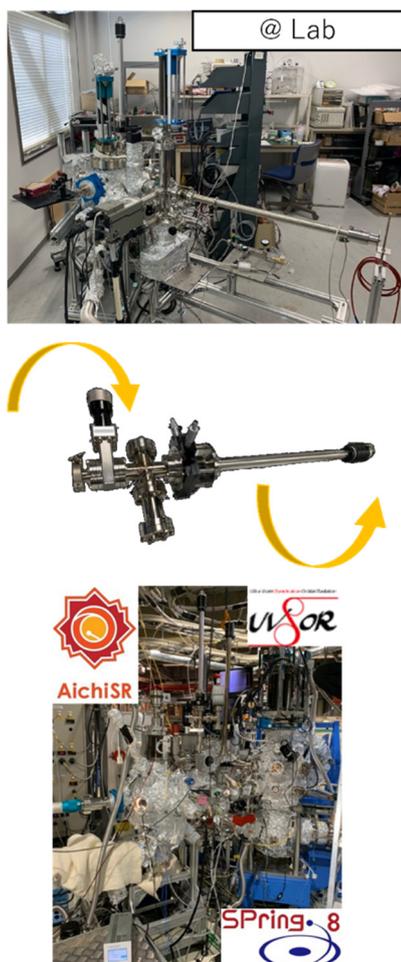


Figure 2: Photograph of the vacuum suitcase system used for air-free sample transport.



Figure 3: Substrate secured to the sample holder.

本システムは、1 週間のベーキング処理を経て、蒸着チャンバーに接続し、カリウム・セシウム・アンチモン (K_2CsSb) 試料を格納した。輸送中もスーツケース内の圧力は常時モニターされており、 10^{-8} Pa 台のベース真空圧力を維持したまま、名古屋大学から約 15 km 離れた

あいちシンクロtron光センターまでの輸送に成功した[5]。到着後、試料は直ちに放射光 X 線光電子分光 (SR-XPS) 測定用チャンバーへと移送され、組成評価が行われた。試料設置の様子は Fig. 3 に示す。

3. まとめ

本研究では、従来の Cs と酸素による NEA 活性化層に代えて、Sb を導入して半導体ヘテロ接合層を形成する新しい NEA 活性化手法を検討した。具体的には、Sb 蒸着のタイミングを変えた 2 つの異なる活性化シーケンスを比較した。(i) 活性化工程の最初に Sb を蒸着する方法 (1st-Sb 法)、および(ii) Cs と O を共蒸着した後に Sb を導入する方法 (AFT-Sb 法) である。また、基板温度および Sb 膜厚の影響についても系統的に調査を行った。両方の活性化法において得られた量子効率 (QE) は、波長 780 nm 励起で約 1.7% となり、これは従来の Cs-O 活性化 GaAs フォトカソードと同程度の値であった。

今後の課題として、まずこの新しいレシピの再現性の確認が必要である。Cs-Sb-O 構造を安定して再現可能とするための蒸着条件を見出すことを目的に、基板温度依存性の詳細な検討を進める予定である。さらに、構造の特性評価の一環として、放射光施設において紫外光電子分光 (UPS) を用いた仕事関数の測定も行う計画である。

謝辞

The work was financially supported by the High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Japan for the Japanese team and the U.S. Department of Energy (DOE) Office of Science for the U.S. team under the U.S.-Japan Science and Technology Cooperation Program in High Energy Physics.

参考文献

- [1] J. K. Bae *et al.*, “Operation of Cs–Sb–O activated GaAs in a high voltage DC electron gun at high average current”, *AIP Adv.*, vol. 12, no. 9, p. 095017, Sep. 2022.
- [2] J. Biswas *et al.*, “High quantum efficiency GaAs photocathodes activated with Cs, O₂, and Te”, *AIP Adv.*, vol. 11, no. 2, p. 025321, Feb. 2021.
- [3] M. Kuriki and K. Masaki, “Negative Electron affinity GaAs Cathode Activation with CsKTe Thin Film”, *J. Phys.: Conf. Ser.*, vol. 1350, no. 1, p. 012047, Jan. 2019.
- [4] M. Herbert *et al.*, “Cs-O₂-Li as enhanced NEA surface layer with increased lifetime for GaAs photocathodes”, *Phys. Rev. Accel. Beams*, vol. 28, no. 1, p. 013401, Jan. 2025.
- [5] L. Guo *et al.*, “Improved robustness of sequentially deposited potassium cesium antimonide photocathodes achieved by increasing the potassium content towards theoretical stoichiometry”, *Sci Rep*, vol. 15, no. 2500, p. 2900, Jan. 2025.
- [6] L. Cultrera *et al.*, “Long lifetime polarized electron beam production from negative electron affinity GaAs activated with Sb-Cs-O: Trade-offs between efficiency, spin polarization, and lifetime”, *Phys Rev Accel Beams*, vol. 23, no. 2, p. 023401, Feb. 2020.