

半導体フォトカソードの高量子効率化、
高耐久化による電子ビーム技術の刷新

佐藤 大樹

目次

第1章	序論	1
1.1	電子ビーム源の歴史と産業技術発展への役割	1
1.2	科学技術の進歩によって生まれる電子ビーム源への新たな要求	3
1.3	次世代電子ビーム源の半導体フォトカソード	7
1.3.1	フォトカソードについて	7
1.3.2	NEA 半導体フォトカソード	9
1.3.3	III-V 族系半導体フォトカソードの特性	11
1.3.4	残留ガスの吸着による NEA 表面の劣化	13
1.3.5	ワイドバンドギャップ半導体による長寿命化	14
1.4	InGaN フォトカソードの特徴	16
1.5	半導体検査装置が要求する電子ビームの安定性	18
1.6	本研究の目的と本論文の構成	20
第2章	半導体フォトカソードにおけるエミッタンスと SEM のプローブ電流	24
2.1	緒言	24
2.2	電子ビームのエミッタンスとエミッション電流から算出されるプローブ電流	25
2.2.1	典型的な SEM における電子光学系とプローブサイズ	25
2.2.2	電子ビームのエミッタンスから算出されるプローブ電流	27
2.3	結論	33
第3章	NEA 半導体フォトカソード評価装置の概要	34
3.1	緒言	34
3.2	フォトカソード電子源装置 2 号機 (NPeSII) の概要	34
3.3	サンプルホルダー	36
3.4	ロードロックチャンバー及び NEA チャンバー	37
3.4.1	ロードロックチャンバー	37
3.4.2	NEA チャンバー	38
3.4.3	Cs ディスペンサー	40
3.5	電子銃チャンバー	41

3.6	励起光源.....	44
3.7	電源及び制御系.....	47
3.8	NPeSII の超高真空作製方法.....	47
3.9	結論.....	48
第4章	InGaN フォトカソードの膜厚最適化による高量子効率化.....	49
4.1	緒言.....	49
4.2	量子効率の InGaN 膜厚依存の算出.....	49
4.2.1	計算モデルの構築.....	49
4.2.2	計算例.....	52
4.3	InGaN サンプルの概要.....	54
4.4	吸収スペクトルの測定.....	55
4.4.1	吸収スペクトルの測定方法.....	55
4.4.2	吸収スペクトルの測定結果.....	56
4.5	サンプルの加熱洗浄と NEA 表面の活性化.....	57
4.5.1	サンプルの加熱洗浄.....	57
4.5.2	NEA 表面の活性化.....	58
4.6	量子効率の励起エネルギー依存性.....	59
4.6.1	量子効率の励起エネルギー依存性測定方法.....	60
4.6.2	量子効率の励起エネルギー依存性測定結果および考察.....	60
4.7	量子効率の励起パワー密度依存性.....	61
4.7.1	量子効率の励起パワー密度依存性の測定方法.....	62
4.7.2	量子効率の励起パワー密度依存性の測定結果.....	62
4.8	量子効率の InGaN 膜厚依存性.....	63
4.8.1	量子効率の InGaN 膜厚依存性測定結果.....	63
4.8.2	量子効率の InGaN 膜厚依存性におけるモデル計算と実験結果の比較.....	64
4.8.3	量子効率の InGaN 膜厚依存性に関する考察.....	65
4.9	結論.....	66
第5章	強励起パワー密度による高輝度化.....	68
5.1	緒言.....	68

5.2	SPV による量子効率の減少	71
5.3	実験方法	74
5.4	実験結果及び計算結果	75
5.5	考察	78
5.6	結論	79
第 6 章	レーザーフィードバックとカソード温度制御による電流安定化	81
6.1	レーザーフィードバックシステムによる光電流の安定化	81
6.1.1	緒言	81
6.1.2	実験方法	82
6.1.3	実験結果	83
6.1.4	励起パワー密度の上昇による SPV の影響	86
6.1.5	考察	88
6.1.6	結論	89
6.2	カソード温度制御による高耐久化	90
6.2.1	緒言	90
6.2.2	実験方法	90
6.2.3	実験結果	91
6.2.4	考察	93
6.2.5	結論	95
第 7 章	総括	97
7.1	本論文の結果概要	97
7.2	今後の課題と展望	101
謝辞	103
研究業績	105

第1章 序論

1.1 電子ビーム源の歴史と産業技術発展への役割

電子ビームは研究開発や産業機器において古くから使われており、その応用先は電子顕微鏡、電子線描画、プラズマ発生、金属 3D プリンタなど多岐に渡る。電子ビーム源開発の歴史とそれらがもたらした技術刷新の事例を図 1-1 に示す。電子ビーム技術が最初に産業技術として利用されたのは 1879 年とされている。この年に Crookes が電子ビーム溶接を開発した¹。しかしながら、当時電子ビームという概念がなかったため、Crookes は原理を把握せずに溶接を行っていたとされている。1883 年に Edison により金属を加熱すると熱電子が発生することが確認され²、1901 年には Richardson が熱電子放出を定量的に示した³。1913 年に Langmuir は熱放出した電子を電場によって加速させ、電子ビームとしてその物理を研究した。その中で、真空中においてタングステンの加熱温度を上昇させても、ある温度で引き出し電流が飽和する空間電荷制限が観測された⁴。

1937 年に Ardenne によって熱陰極を用いた走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope : SEM) が開発され⁵、製鉄所から発生する有害排気ガスの分析に用いられた⁶。その後、SEM の分解能およびプローブ電流向上の要求から、高輝度電子源の開発が進んだ。高輝度電子源として実用化に至ったものの一つは 1951 年に Lafferty が開発した、LaB₆ 熱陰極である⁷。LaB₆ は仕事関数が 2.2 eV ~ 2.6 eV と低く、高融点化合物であり、また仮想光源サイズがタングステンフィラメントより 1/3 程度小さいため、輝度が 10~100 倍程度高い。二つ目はタングステンを材料として用いた電界放出陰極である。1897 年に Thomson によって金属に強電界がかかると電子が放出されることが発見され⁸、1928 年に Fowler と Nordheim によって、それがトンネル効果により説明されることが示された⁹。電界放出陰極は高真空環境を必要とするため、実用化には真空技術の発展が必要不可欠であった。20 世紀後半になると、イオンポンプの開発にともない真空技術が向上し、1968 年に Crew らが直径 100nm 以下のタングステンチップを用いて分解能数 nm の SEM 撮像を達成した¹⁰。1972 年には日立によって電界放出陰極が搭載された SEM (HFS-2) が商用化され、分解能 3 nm が達成された¹¹。1984 年には電界放出陰極を用いた測長 SEM が半導体集積回路の製造ラインに応用され始めた。一方で、

室温動作の電界放出陰極はガス吸着による電流変動が大きく、定期的な加熱による表面清浄化(フラッシング)が必要である。1980 年後半になると、24 時間 365 日の連続稼働が必要とされる半導体集積回路の製造ラインにおいて、フラッシングによる電子ビームの停止時間(ダウンタイム)が大きなコストとなった¹²。1961 年、ロシアの Shrednik はタングステンに Zr を蒸着すると電子放射面が(100)に集中することを実験的に証明した。この面の仮想光源径は数十 nm と小さく、仕事関数は 2.8 eV と低い¹³。そのため、1800 K 程度の加熱で $1 \times 10^7 \text{ mAsr}^{-1} \text{cm}^{-2} \text{kV}$ と高い輝度が得られる¹⁴。その上、加熱によるガス吸着の低減と、Zr と O による表面自己修復の効果により、1 年以上フラッシングを必要としない安定な電子放出が得られる¹⁵。Zr/O-W の産業利用が進み、1991 年に KLA 社が高分解能 SEM を用いた半導体検査装置を公表した¹⁶。これにより数 nm オーダーの欠陥検査が行えるようになった。2016 年には Applied Materials が空間分解能 1 nm を有する検査装置を市場に出している。

透過型顕微鏡(Transmission Electron Microscopy : TEM)は 1932 年に Knoll らにより開発された¹⁷。当時光学顕微鏡像の空間分解能に限界が来ていたなか、磁場により電子線が収束されることが着目され、TEM の開発が実現した。TEM 技術の発展は生命科学の研究に貢献してきた。例えば、医薬開発には蛋白質をはじめとする生体分子の 3 次元構造の精密な解析が必要である。生体分子の中で、紫膜は蛋白質が 2 次元の六方格子状に配列している構造をとるため、その結晶性を利用して回折像が得られやすい。1975 年に Henderson と Unwin らは TEM を用いて紫膜の構造分析に成功した¹⁸。この時の解像度は 7 Å であった。その後、1990 年に凍結試料を観測するクライオ電子顕微鏡を用いて 3 Å の解像度で紫膜の立体構造を観測した¹⁹。これらの業績が称えられ、Dubochet、Frank、Henderson は 2017 年にノーベル化学賞を受賞した。これらの技術はウイルスの構造解析にも用いられ、2020 年には新型のコロナウイルス(Covid-19)のもつスパイク状の構造を原子分解能レベルでとらえることに貢献した²⁰。

電子ビームは観測分野だけでなく、加工分野にも貢献している。ここでは、電子線描画装置について取り上げる。1960 年代に電子線描画装置の開発が進み、1969 年に日本電子社が電子線描画装置を用いた直接描画の実証例を報告している²¹。これより以前では、集積回路を作製するのに紫外光リソグラフィが用いられていた。しかしながら、集積回路の微細化の要求が 50 nm 以下になると、従来の~100 nm の波長を有する紫外光ではそれ以下の寸法を描画することが困難であった。1985 年には LaB₆を搭載した、日本電子社製の JBX5DIIIU を用いて 25 nm の分解能で描画が実現されている²²。

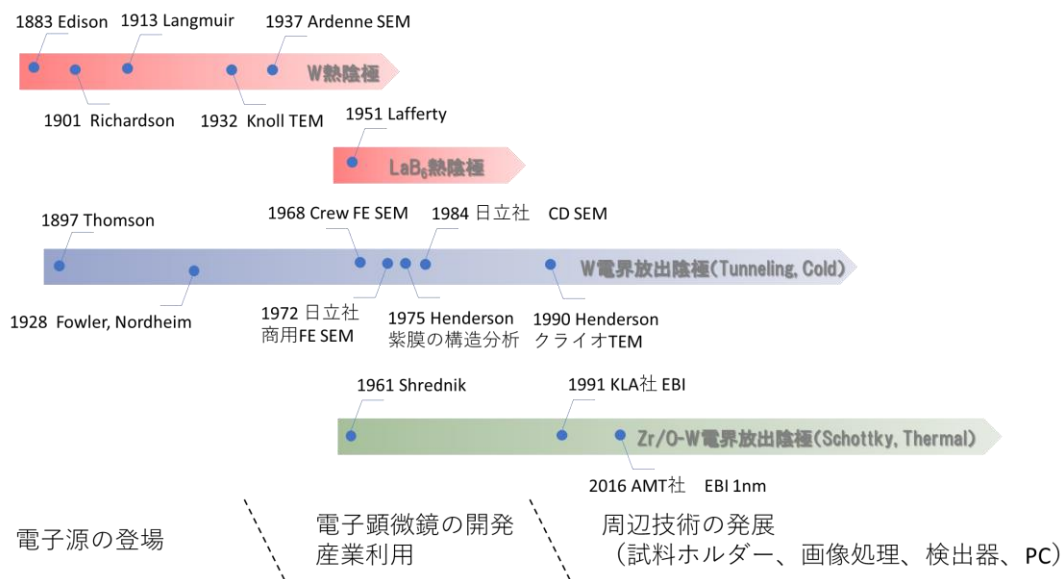


図 1-1 電子源及び電子顕微鏡開発の歴史

1.2 科学技術の進歩によって生まれる電子ビーム源への新たな要求

科学技術の発展に伴いより高性能な次世代電子ビーム源が要求されている。これまで集積回路の微細化が電子デバイスの小型化高性能化を実現してきた。集積回路の微細度を表す指標として、金属酸化膜電界効果トランジスタのゲート幅が使われている。これはプロセスノードと呼ばれている。プロセスノードはムーアの法則に沿って年々減少し、1971年に $10\ \mu\text{m}$ であったものが、2018年には $7\ \text{nm}$ まで縮小されている。これに伴い、半導体製造のスループットが年々低下している。半導体製造過程のうち、最もスループットの低下に直面している工程の一つは回路上のゴミや欠陥を検査する欠陥検査工程である。これまで欠陥検査の方法はレーザーを用いた明視野観察が主流であった。しかしながら、プロセスノードが光の回折限界を下回ってしまい、光学顕微鏡では欠陥検査が出来なくなった。そのため1990年ころから高分解能SEMを用いて半導体の欠陥検査が行われている。図1-2に致命的な欠陥サイズの経年推移を示す²³。致命的な欠陥サイズの減少とともに微細構造のSEM像を得るための十分なシグナルノイズ比(SN)を得るのに時間がかかり、その結果電子ビーム検査のスループットは明視野検査に比べ桁違いに小さくなっている。例えば、半導体チップの量産ラインと研究開発に要求される検査スループットはそれぞれ $1200\ \text{cm}^2/\text{h} \sim 3000\ \text{cm}^2/\text{h}$ と $300\ \text{cm}^2/\text{h} \sim 1200\ \text{cm}^2/\text{h}$ とされて

いる²⁴。一方、近年のプロセスノードの縮小にともなう電子ビーム検査へのシフトにより検査スループットは 10 cm²/h 以下と要求に対して 1/30 ~ 1/300 低い。ここで、シングル電子ビームを用いた場合の電子ビーム検査におけるスループット T [cm²/h]は以下の式で表される²⁴。

$$T = 0.025 \frac{I_p C^2 \delta \varphi}{\kappa^2} p^2 \quad (1-1)$$

I_p は SEM におけるプローブ電流、 C はコントラスト、 δ は観測試料の二次電子生成率、 φ は検出器の量子効率、 p は SEM 像のピクセルサイズを示す。式(1-1)は 1 時間あたりに二次電子の SN が 5 以上を得られる電子ビームのスキャン面積を表している。図 1-3 に 300mm ウェハに換算した、量産ラインと研究開発に必要な 1 時間当たりの検査枚数及び現状における検査時間を示す。スループットを向上させるためには高いプローブ電流が必要となり、それを桁違いに向上させる電子ビーム源が必要とされている。

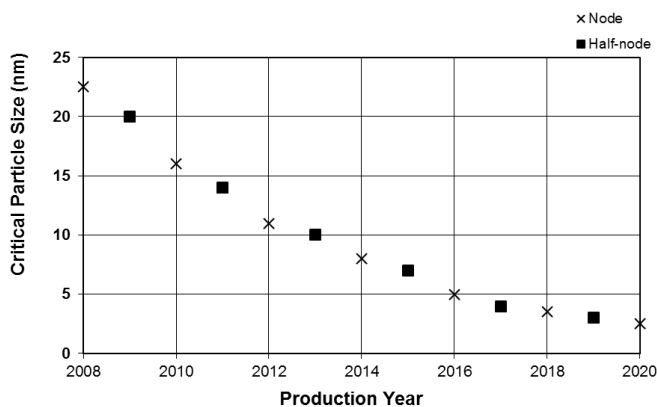


図 1-2 半導体欠陥検査における致命的な欠陥サイズの経年推移²³

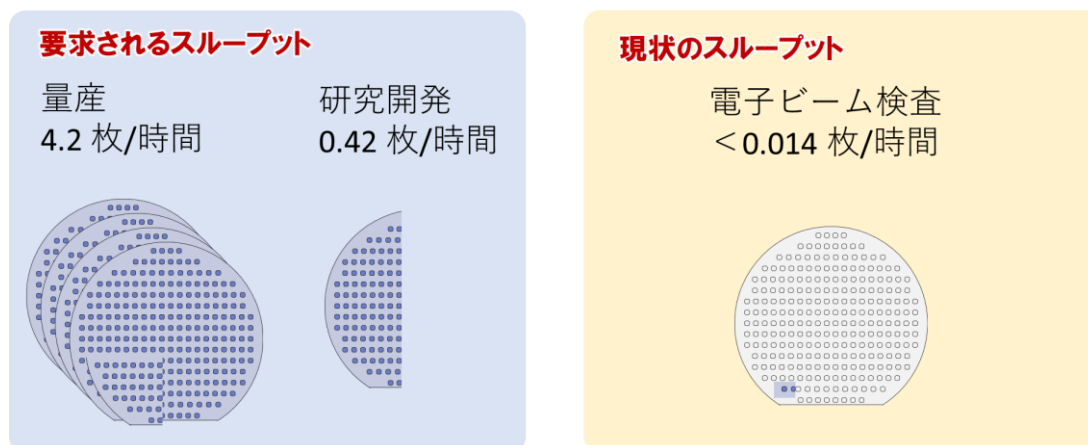


図 1-3 300mm ウェハに換算した量産及び研究開発に要求される 1 時間当たりの検査枚数と現状の検査枚数

半導体製造の技術刷新は市場規模の観点からもニーズが高い。2019 年の国際半導体製造装置材料協会 (SEMI) による発表では、2021 年に予測される半導体製造装置の市場規模は年間 7 兆円になるとされている。このうち半導体検査装置の割合は 10%程度とされているため、その額は 7 千億円となる。市場規模の観点からも、電子ビーム源の刷新による半導体検査装置技術の刷新要求は高いといえる。

TEM においては、電子ビームの時間分解能の向上が求められている。クライオ電子顕微鏡で課題とされているのが、電子ビームを凍結試料へ照射した際に発生する熱的ドリフトや、ブラウン運動である。クライオ顕微鏡を用いて生体分子の構造調査を行う場合、数千枚の TEM 像を撮像し、それらを重ね合わせてモデリングを行う。ここで課題とされているのが、撮像間で熱ドリフトが収まるのを待つ必要があり、モデリングのスループットが低くなってしまふことである。この解決策として、高時間分解能・高輝度を有する電子ビームと高時間分解能カメラを組み合わせることで、ドリフトが発生する前に鮮明な TEM 像を取得することが挙げられる。クライオ技術の他にも、凍結試料の発展技術として、試料の入った液体を電子ビームが透過する薄膜に閉じ込めて TEM 像を観測する手法も開発されている。さらに、ワンショット撮像 TEM を用いて、電子線損傷に敏感な試料に対し、損傷過程よりも速い時間で TEM 像を撮像することで、これまで電子ビームによる観測が困難であった材料の微細観察が期待されている²⁵。このようなワンショット撮像の要求に対し、Ta や W など仕事関数の低い金属を用いたフォトカソードと波長 ~200nm を有する紫外光レーザーを組み合わせたダイナミック TEM (DTEM) が開発され、50

ns のパルス電子ビームを用いてアモルファスのゲルマニウムが結晶化していく様子が観測されている²⁶。しかしながら、高出力の短波長紫外光は光学系も含めてサイズが大きくなり、コストも高い。そのため、コンパクトで低コストのレーザー光源が使用でき、高輝度・高時間分解能を実現する高量子効率を有するフォトカソード電子ビーム源が必要とされている。

電子線描画装置においては、均一で一本一本の輝度が高いマルチ電子ビーム源が必要とされている。集積回路の微細化により、マスク描画のスループットが低下している。例えば 2016 年においては 1 枚のマスクを描画するのに 30 時間程度を要している²⁷。そこで描画工程のスループット向上のため、電子ビームのマルチ化が進んでいる。2016 年には IMS Nanofabrication 社が 512 × 512 のマルチ電子ビームを用いた電子線描画装置の製品化を実現し、10 時間以下のマスク描画を達成している。また、ニューフレアテクノロジー社はマルチ電子ビームを用いることで、プローブの電流密度を減らし、描画精度を向上させた。ここでは、シングルビームをアパーチャーで分岐し、マルチ電子ビームを生成している²⁸。従来技術では電子源を分岐させて使用しているため、電子ビーム数が 260000 倍になっているにも関わらず、それに比例したプローブ電流が得られず、スループットの向上が 3 倍にとどまっている。マルチ電子ビームで電子線描画装置のスループットを向上させるためには均一で一本一本の輝度が高いマルチ電子ビーム源が必須である。

半導体検査技術においても電子ビームのマルチ化が進められている。2018 年に Hermes Microvision 社は 3×3 本の電子ビームを有する検査装置を開発した²⁹。また、Carl Zeiss 社は 2019 年に 331 本の電子ビームを用いた集積回路の SEM 像取得に成功している³⁰。電子ビームの検出技術や画像処理技術がマルチ電子ビームに対応してきている一方、一本一本の輝度が高いマルチ電子ビーム源の開発が停滞している。

以上に述べた既存電子ビーム源における課題と次世代電子ビーム源に要求される性能を図 1-1 にまとめる。半導体製造工程においては、検査スループットと描画スループットが低いという課題に対し、さらなる高輝度化と、一本一本の輝度が高く均一であるマルチ電子ビーム源が新たに要求されている。後の章にて詳細を述べるが、高輝度を得るためには大電流でかつ低エミッタンスの特性を持つ電子ビームを発生させる電子源が必要である。ショットキー陰極を代表とする既存の電子源では、原理的にこれ以上の高輝度化は望めない。高輝度高均一マルチビームに関しても、電子ビームを分岐させる既存の方式には限界がある。

生命科学分野においては、クライオ電顕の観測スループットが低い、DTEM の紫外光源が

煩雑でコストが高い、という課題に対し高輝度でかつ汎用励起光源を用いた高速パルス電子ビームを発生させられる電子ビーム源が要求されている。既存の金属フォトカソードでは、量子効率が低く、仕事関数も可視光エネルギーより高いため、新たな電子源が必要となる。

表 1-1 既存電子ビーム源における課題と次世代電子ビーム源への要求性能

応用分野	既存電子ビーム源における課題	電子ビーム源への新たな要求性能
半導体製造	<ul style="list-style-type: none"> ・検査スループットが低い(SEM) ・描画スループットが低い(描画装置) 	<ul style="list-style-type: none"> ・高輝度(大電流、低エミッタンス) ・マルチ電子ビーム(高輝度、高均一)
生命科学	<ul style="list-style-type: none"> ・クライオ電顕の観測スループットが低い(TEM) ・紫外光源の煩雑、高コスト(DTEM) 	<ul style="list-style-type: none"> ・高輝度(大電流、低エミッタンス) ・高速パルス電子ビーム ・汎用励起光源
材料観測	<ul style="list-style-type: none"> ・電子線損傷敏感(TEM) 	

1.3 次世代電子ビーム源の半導体フォトカソード

大電流、低エミッタンス、マルチ、高速パルス構造の電子ビームを生成できる半導体フォトカソードが新たな要求にこたえる次世代電子ビーム源として期待されている。

1.3.1 フォトカソードについて

フォトカソード(光陰極)とは、光電効果を用いた陰極である。代表的な材料は、電子源材料として使われている W や Ta と言った金属、S-1 と呼ばれる Ag-O-Cs や、Sb-Cs、Sb-Na-K-Cs といったアルカリ金属と他の金属を組み合わせたもの、Cs-GaAs を代表とする半導体フォトカソードなどが挙げられる。

フォトカソードは半世紀以上、光電面を用いた光検出デバイスとして、スーパーカミオカンデなどの基礎科学から産業利用まで幅広く利用されている。一方、励起光の強度や時間構造、照射面積に応じた電子ビームを発生可能なため、熱陰極や電界放出陰極に比べて、超短パルスや大電流などの多彩な電子ビームを発生させることが出来る。そのため先に述べた

DTEM には金属フォトカソードが使用されている。

フォトカソードの中でも負の電子親和力状態 (Negative Electron Affinity: NEA) の表面を持つ半導体を利用した NEA 半導体フォトカソードは、半導体内の電子状態を反映した電子発生が可能のため、電子のエネルギー分散を小さくできる、特定のスピンの状態をもつ電子ビームを生成できる、といった利点を持つ。NEA 半導体フォトカソードは、四半世紀以上、主に高エネルギー加速器用のスピン偏極電子源として素粒子実験に貢献しており³¹、高輝度電子源としても高輝度放射光源にも有効であることが示されている。また、2000 年以降、低加速のスピン偏極電子線による電子顕微鏡 (Spin-Polarized Low Energy Electron Microscope : SPLEEM) などへも応用が進み、Koshikawa らは世界で初めて NEA 半導体フォトカソードを用いたタングステン上のコバルトの磁区構造観測に成功している³²。

先に述べたクライオ電顕の課題に対し、半導体フォトカソードからのパルス電子ビームと高時間分解能カメラを組み合わせることで、試料の熱的ドリフトが発生する前にワンショットでぶれの無い TEM 像を撮像できることが期待されている。我々は、InGaN フォトカソードに青色のパルスレーザーを照射させ、動いている試料に対し、ぶれの無い TEM 像取得に成功している

³³。

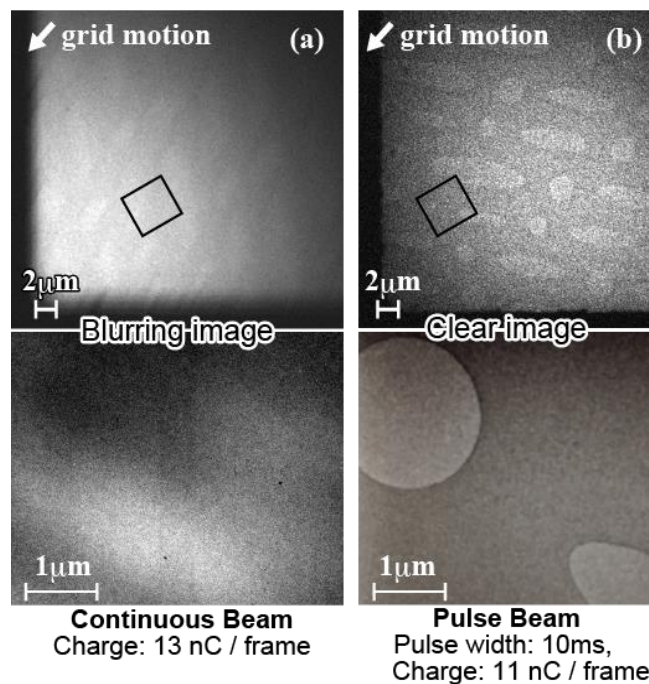


図 1-4 ドリフトのあるカーボン薄膜の直流(左)とパルスビーム(右)による撮像。いずれも InGaN フォトカソードを搭載した半導体フォトカソード電子銃を用いて取得した³³。

1.3.2 NEA 半導体フォトカソード

超高真空中で清浄な結晶表面を有する p 型半導体に Cs などのアルカリ金属と O₂(または NF₆)を交互に供給することで、表面が NEA 状態の半導体フォトカソードを得られる。図 1-5 に InGaN を用いた時の NEA 表面活性過程での量子効率及び真空度の変化の例を示す。Cs と O₂ の供給方法は以下の通りであり、この方法は YO-YO 法と呼ばれる³⁴。

1. Cs の供給を開始し、引き出し電流が増加し極大を向え、その後減少し極小に達したら Cs の供給を止める。
 2. O₂ の供給を開始し、再び電流が増加し極大を向えたら O₂ の供給を止める。
 3. Cs の供給を開始し、電流が減少し極小に達したらセシウムの供給を止める。
- 2 と 3 を繰り返し、2 を終えた時点での電流の増加が飽和した時点で酸素の供給を止めて、NEA 表面の活性を終了とする。

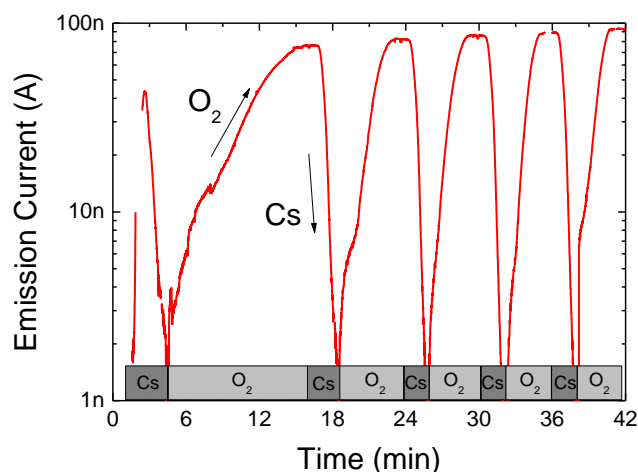


図 1-5 Cs と O₂ の交互供給における p-InGaN フォトカソードの光電流の変化。

この方法は 1970 年代に Spicer らによって実験的に得られた手法である³⁵。この手法で作製された半導体フォトカソードにバンドギャップ相当のエネルギーを持つ励起光を照射すると 1%

以上の高い量子効率が得られることが確認された。これより、上記の半導体フォトカソードは NEA 表面を有するとされていた。1980 年以降になると Cs と O₂ の交互供給によって半導体表面が NEA 状態になることが実験的に明らかにされた^{36, 37}。このように作製された半導体上の NEA 表面は、未だ化学状態や構造など全容解明に至っていないが、結晶表面に付加された Cs と O₂ は、結晶化はせず、数モルレイヤーの層厚からなることが明らかになっており、その構造として Ga-O-Cs と Cs-O-Cs のダブルダイポールを形成するなどのモデルが提唱されている^{38, 39}。

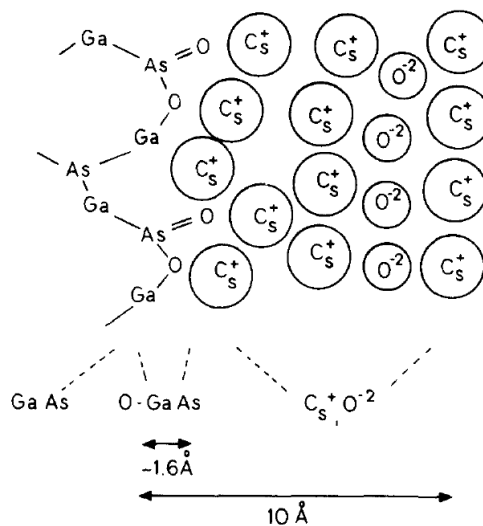


図 1-6 NEA 表面における Ga(As)-O-Cs と Cs-O-Cs のダブルダイポールモデル³⁹。

NEA 半導体フォトカソードに光が照射されてから電子が真空中へ放出されるまでの過程は、図 1-7 に示すような次の 3 つの過程によって説明される⁴⁰。

1. 半導体結晶中の電子の光励起過程
2. 電子の表面方向への拡散過程
3. 電子が表面ポテンシャルを透過し、真空への脱出過程

p 型半導体の表面では、フェルミ準位のピンニングによりバンドが低エネルギー側へ曲がるバンドベンディング現象が発生する。それに伴い、半導体表面の真空準位はバンドベンディングの量(φ_b)だけ押し下げられている状態になる。この半導体に Cs と O₂ を交互に供給すると、それらの効果により表面の真空準位はさらに押し下げられる(押し下げられる量を φ_a とする)。この時、正味の半導体の表面電子親和力 χ_{eff} は式(1-2)で示される。

$$\chi_{eff} = \chi - \varphi_b - \varphi_d \quad (1-2)$$

ここで、 χ_{eff} が負であるとき、負の表面電子親和力状態が成立する。入射する光子数と真空へ放出される電子数の比は量子効率(Quantum Efficiency: QE)と呼ばれ、式(1-3)で示されるように放出電流 I (A)、入射光パワー P (W)、入射光波長 λ (nm)より算出できる。

$$QE = \frac{N_e}{N_{ph}} = \frac{I/e}{P\lambda/hc} = 1240 \times \frac{I}{P\lambda} \quad (1-3)$$

N_e は放出される電子数、 N_{ph} は入射する光子数、 e は電荷素量、 h はプランク定数、 c は光速を表す。実用上では、量子効率が NEA 状態の良し悪しの指標として用いられている。

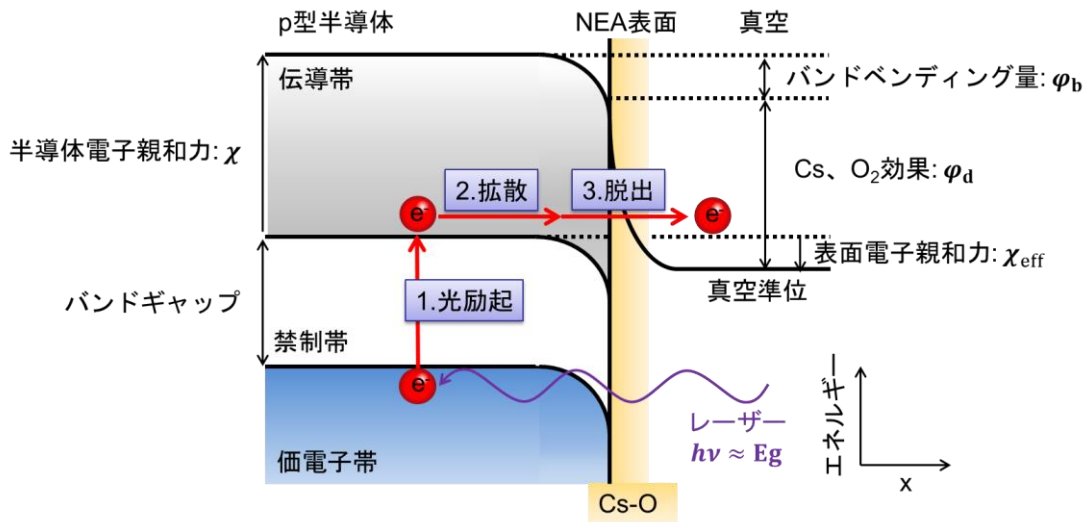


図 1-7 NEA 表面を持つ p 型半導体からの光照射による電子放出モデル。 χ は半導体の電子親和力、 φ_b はバンドベンディング量、 φ_d は Cs と O₂の供給による真空準位の引き下げ量、 χ_{eff} は半導体表面の電子親和力、 $h\nu$ は励起光のエネルギー、 E_g は半導体のバンドギャップを表す。

1.3.3 III-V 族系半導体フォトカソードの特性

III-V 族系半導体フォトカソードは放出される電子のスピンの状態及びエネルギー状態を詳細に制御できる。歪みが導入された GaAs の場合、価電子帯におけるエネルギー準位の縮退が解ける。その状態の GaAs に図 1-8⁴¹⁾に示すように円偏光したレーザー光を照射すると、選択則により特定のスピンの状態をもつ電子が伝導帯へ励起され、表面が NEA 状態の場合、スピン

状態を保持して真空へ放出される。これを利用してスピンの偏極度の高い電子ビームを得ることができる。GaAs-GaAsP や GaAs-AlGaAs からなる歪み超格子半導体を用いた NEA 半導体フォトカソードは、励起光に円偏光を用いることで偏極度 80%を超えるスピン偏極電子ビームの発生に成功している⁴²。

真空中へ放出される電子のエネルギー分散を抑制する方法として、半導体のバンドギャップと励起光のエネルギーを同等にする方法と、超格子構造をとることでミニバンドを形成し、励起された電子のエネルギーをそのミニバンドに閉じ込める方法が挙げられる。エネルギー分散の極小化の実験として、GaAs バルク結晶や GaAs-GaAsP 歪み超格子半導体を用いた NEA 半導体フォトカソードにより、図 1-9 に示されるように、冷陰極型の電界放出陰極のエネルギー分散を下回る 0.3 eV 以下の電子ビームの発生を実現している^{43, 44, 45}。

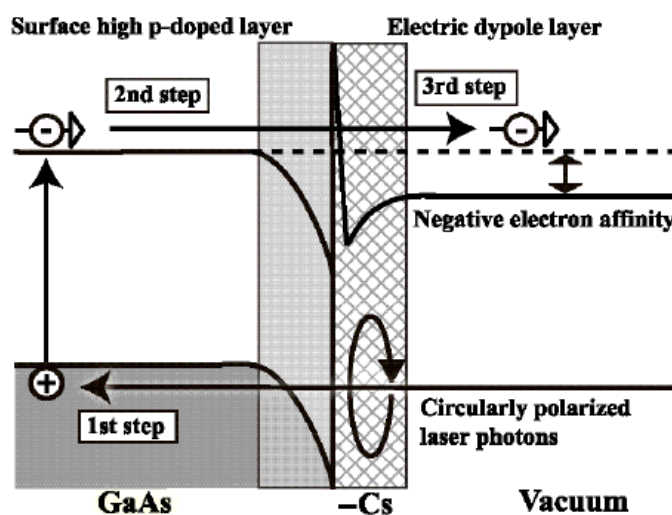


図 1-8 GaAs フォトカソードへの円偏光照射によるスピン偏極電子の発生⁴¹

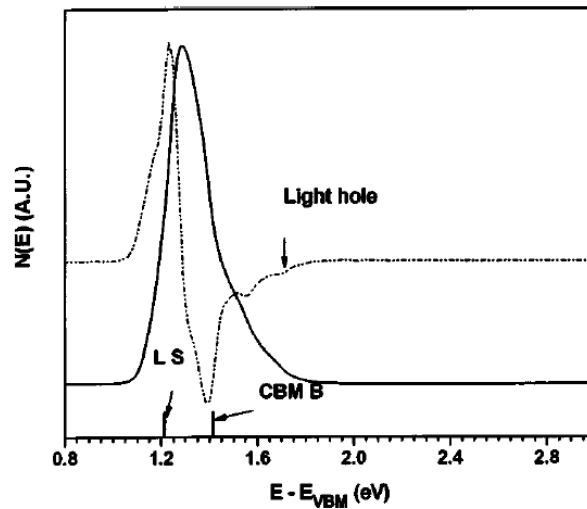


図 1-9 Cs-GaAs から発生する光電子のエネルギー分布。エネルギーの半値幅は 0.2 eV 程度である⁴⁵。

III-V 族系半導体フォトカソードは上記のような電子状態の制御に加え、大電流、パルス構造、空間分布制御といった、電子ビームの制御も可能である。バルク結晶の GaAs を用いた NEA 半導体フォトカソードでは、5 mA の大電流電子ビームを発生することで kW を超える大強度の赤外自由電子レーザー加速器に貢献している⁴⁶。また、電子励起用レーザーの時間や空間的な構造を変えることで発生する電子ビームの時間や空間的な構造を変える事が可能であり、バルク構造の GaAs 半導体を用いた NEA 半導体フォトカソードによりパルス幅数 ps の超短パルス電子ビームを発生に成功している⁴⁷。複数本の励起光を照射することにより、一つの半導体フォトカソードからマルチの電子ビームの生成を達成している^{48, 49}。このように NEA 半導体フォトカソードは、励起光の性質を変化させることで、大電流やスピン偏極電子ビーム、低エネルギー分散電子ビーム、パルス電子ビームなどといった多種多様な電子ビームの発生が可能である。これらを産業利用として、電子顕微鏡、電子線回折や電子線溶接、描画装置、3Dプリンタなどに応用することで、熱陰極や電界放出陰極では実現することのできない新たな観測・加工技術の創出が期待できる。

1.3.4 残留ガスの吸着による NEA 表面の劣化

NEA 半導体フォトカソードを産業分野へ応用するためには、NEA 表面の脆弱性が最大の課題となる。従来の NEA 半導体フォトカソードの応用先である高エネルギー加速器では、 10^{-8}

Pa 以下の高品質な超高真空を実現するために多数の真空部品が不可欠であった。そのため、装置の大きさや金銭的成本が産業利用上のボトルネックとなる。

Cs は大きなゲッター効果をもち、チャンバー内の残留ガスと反応をしやすい。その中でも CO や CO₂、O₂ が photocathode の表面に吸着すると、量子効率が減少することが知られている⁵⁰。上記のような活性ガスが NEA 表面に吸着することで、Cs-O の酸化状態が変わる⁵¹。これにより表面の真空準位とともに仕事関数が上昇する(図 1-10⁵²)。その結果電子の脱出確率とともに量子効率が減少する。それ故、10⁻⁷ Pa 以下の超高真空環境に半導体 photocathode を保持しても量子効率は時間とともに指数関数的に減衰する。この時の時定数が一般的に量子効率の寿命(暗寿命)とされている。Cs-GaAs の場合、4 × 10⁻⁸ Pa の真空中における量子効率の寿命は 4 時間程度である⁵⁷。このため、真空圧力を低くし、ガス吸着を低減させることが量子効率を長寿命化させる直接的な解決方法である。

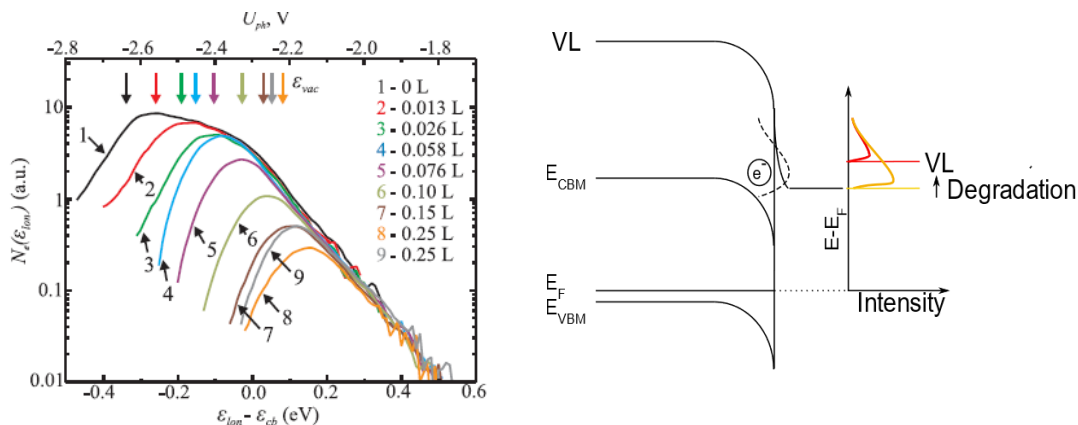


図 1-10 O₂ 暴露による Cs-GaAs の真空準位の変化⁵²。O₂ の暴露量とともに真空準位が上昇し、量子効率が減少する。

1.3.5 ワイドバンドギャップ半導体による長寿命化

我々は、NEA 半導体 photocathode の最大の課題である NEA 表面の脆弱性に対する解決策として、サンプルを保持する環境ではなく、半導体そのものの改良による高耐久化に着目してきた。このような取り組みとして、西谷ら⁵³は、従来 NEA 半導体 photocathode に用いられてきた GaAs 半導体よりも小さな電子親和力を持つ AlAs 半導体に着目した AlGaAs 半導体 photocathode の開発を行った。なぜなら、式(1-2)において、半導体の電子親和力 χ を小さくし、 ϕ_b

を大きくすることで、NEA 表面が得られたときの半導体の表面電子親和力 χ_{eff} が小さくなり、表面の劣化に伴う真空準位の上昇による NEA 状態が損なわれるまでの時間が長くなると考えたからである。Al 混晶比を系統的に変化させたバルク構造の AlGaAs 半導体サンプルを作製し、NEA 表面処理を行い、超高真空中における量子効率の減少を寿命として測定したところ、従来用いられた GaAs 半導体に対して、Al 混晶比に応じて寿命が伸びることが明らかにされた。この実験により Al 組成比 0.28 の AlGaAs フォトカソードで GaAs に比べ 10 倍以上の長寿命化に成功している。

χ_{eff} を大きくするもう一つの方法は式(1-2)における ϕ_b (バンドベンディング量)を大きくすることである。フェルミピンニングは、表面のフェルミ準位を真性半導体の状態に戻す方向にバンドを曲げる。そのため、 ϕ_b はバンドギャップとともに増加する。バンドギャップ 1.4 eV と 3.4 eV を有する GaAs と GaN の ϕ_b はそれぞれ 0.5 eV と 1.5 eV とされ^{54, 55}、それに伴う χ_{eff} の負の大きさはそれぞれ実験から 0.3 eV と 1.2 eV ~ 1.4 eV と報告されている^{54, 45, 56}(図 1-11)。我々は GaN 半導体フォトカソードを作製し、バンドギャップ相当のエネルギーを有する励起光を用いて量子効率の寿命を測定した。この実験の結果、GaAs 半導体フォトカソードに対して、GaN 半導体フォトカソードで 21 倍の長寿命化を実現した^{57, 58}(図 1-12)。

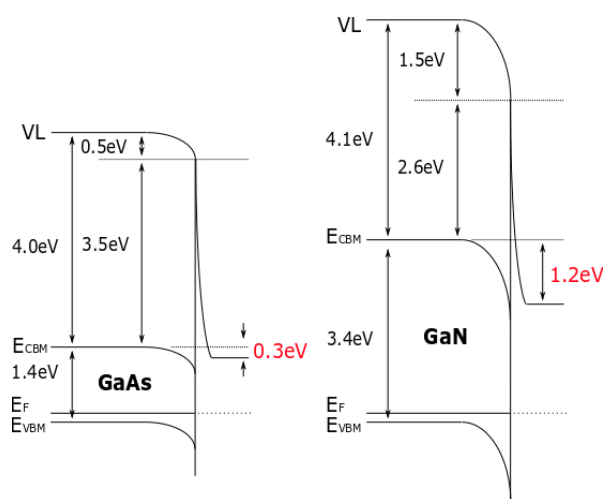


図 1-11 Cs-GaAs と Cs-GaN のポテンシャル構造^{45, 54, 55}

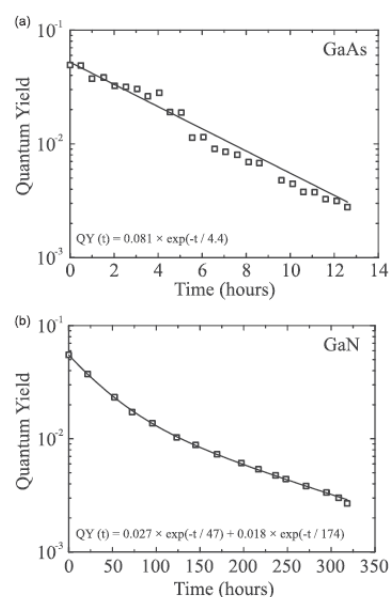


図 1-12 Cs-GaAs と Cs-GaN の量子効率の時間変化⁵⁷

1.4 InGaN フォトカソードの特徴

以上を踏まえ、半導体フォトカソードの実用化にあたり、カソード及びその電子銃に求められる代表的な性能を表 1-2 にまとめる。SEM のプローブサイズを数 nm に抑えるためには電子の横方向の運動エネルギー ($k_B T_e$) と電子のエネルギー分散 (ΔE) が 0.3 eV 以下になること、エミッションサイズが 10 μm 以下になることが求められる。また SEM、TEM 像の撮像時間縮小のためにはエミッション電流 10 μA 以上が求められる。これらの詳細は 2 章にて議論する。さらに、機器の稼働停止時間を縮小するために連続稼働時間が 24 h 以上であることが望ましい。これを実現するためには NEA 表面が高耐久であるフォトカソードが求められる。一方で実用性の向上及びフォトカソード技術の普及のために、半導体フォトカソードを搭載した電子銃が小型で低コストであることが望まれる。

表 1-2 半導体フォトカソード及びその電子銃に求められる代表的な性能
カソード

項目	値	目的
電子の運動エネルギー ($k_B T_e$)		・SEM のプローブサイズ縮小
電子のエネルギー分散 (ΔE)	<0.3 eV	・TEM の回折像取得に必要な可干渉性向上
エミッションサイズ	<10 μm	・SEM のプローブサイズ縮小
エミッション電流	>10 μA	・SEM、TEM 像の撮像時間縮小
連続稼働時間	>24 h	・SEM、TEM の稼働停止時間の縮小

電子銃

項目	目的
小型	・実用性向上
低コスト	・フォトカソード技術の普及

我々は汎用的な可視光レーザーの使用が可能、ワイドギャップ半導体による長寿命化、背面照射の構成が容易といった産業利用に適した特徴を持つ InGaN フォトカソードに着目した。

これらの特徴に着目し、産業利用に主眼を置いた InGaN フォトカソードの研究報告例はこれまでにない。

InGaN は、コンパクトで、汎用的、シングルモードで 300 mW 以上の出力を有し、405 nm の短波長を有する半導体レーザーで励起できるようなバンドギャップの値を設計できる特徴を持つ。InGaN のバンドギャップ $E_{InGaN}(x)$ は InN と GaN の組成比 x で決まり、次のように表される。

$$E_{InGaN}(x) = xE_{InN} + (1-x)E_{GaN} - bx(1-x) \quad (1-4)$$

ここで、 E_{InN} と E_{GaN} は InN と GaN のバンドギャップで、 x は組成比、 b は Bowing パラメーターである。InGaN の格子が歪んでいる場合の b は 1.3 eV~2.8 eV の値をとる⁵⁹。我々は、 $x=0.12$ とすることで、 $E_{InGaN}(x=0.12) = 2.95$ eV を有する InGaN フォトカソードを開発し、光子エネルギー 3.06 eV (波長 405 nm) の励起光を用いて、光子エネルギーとバンドギャップの差を 0.11 eV に抑えながら量子効率 12% を達成した⁶⁰。これによって生まれる利点は次の通りである。まず、光源のコストを抑えられる。次に、従来の GaAs よりもワイドギャップ半導体であるため、長寿命化が期待できる。量子効率寿命の測定例として、Cs-GaAs と Cs-InGaN の量子効率の時間変化を図 1-13 に示す⁵⁷。InGaN においても GaN と同様に NEA 表面の耐久性が高く、GaAs に比べ 7 倍以上の寿命が確認されている。これから、真空部品のコスト削減と産業利用への普及拡大が期待される。さらに励起光のエネルギーとバンドギャップの差を抑えることで $k_B T_e$ を小さくし、エミッタンスを低減させることができる。

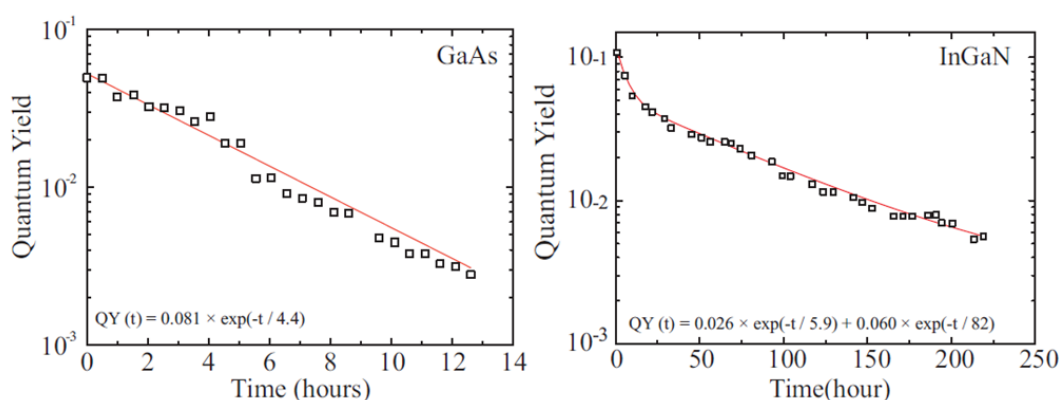


図 1-13 Cs-GaAs と Cs-InGaN の量子効率の時間変化⁵⁷

InGaN は背面照射の構成が容易である特徴を持つ。例えばレーザー径を 1 μ m 程度に縮小させるためには、レンズと InGaN の距離を 4 mm 程度にする必要がある。そのため、電子の放

出面の反対側にレンズを近接させ、励起光を背面から照射しなければならない(図 1-14)。InGaN の成長基板にはよりバンドギャップの大きいサファイアと GaN が一般的に用いられているため、波長 405nm の励起光は基板で吸収されず、InGaN まで到達する。そのため、InGaN は背面照射の構造を容易に作製できる。以上より、InGaN 半導体はフォトカソードを産業利用するうえで最適な材料だと言える。

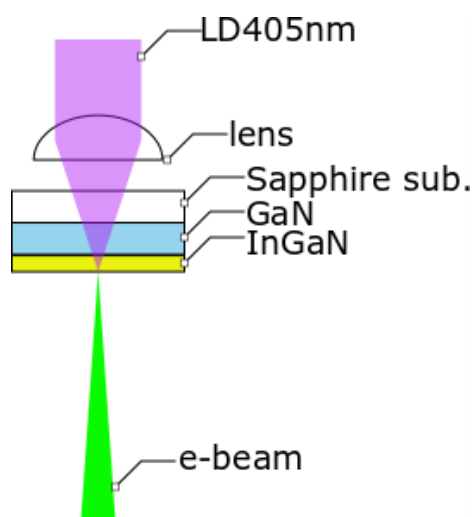


図 1-14 InGaN 背面にレンズを設置し、波長 405nm のレーザーを集光させる模式図

1.5 半導体検査装置が要求する電子ビームの安定性

半導体検査装置に半導体フォトカソードを使用する場合、電子ビームの安定性が極めて重要となる。安定性の代表的な項目とその典型的な値は以下の通りである(図 1-15)。

- 長時間における電流ばらつき (σ_I) < 0.5%
- 稼働停止時間(ダウンタイム) < 5%
- 連続稼働時間 (T_0) > 24 h

ここで、長時間における電流ばらつき σ_I は 24 時間程度一定の電流を発生させたときの平均電流に対する標準偏差であり、値は小さいほうが良い。これは σ_I が大きいと、SEM 像のコントラストにバラつきが生じるためである。半導体フォトカソードの場合、ガス吸着、イオンバックボンバードメント、Cs の脱離などにより、量子効率も時間もともに減少する。そのため電流を安定させるためには、光電流と励起パワーを観測しつつ、量子効率の減少に合わせて励起パワーを上

げて電流を一定にする必要がある。この制御時間が量子効率の減少より十分に早い場合、光電流は安定する。半導体フォトカソードの場合、光量で電流を制御するため、上記の励起光の制御において励起パワーが上限に達したとき、所望の電流を得ることができなくなる。その時間が連続稼働時間となる。一方で量子効率は表面機能劣化により電流が引き出せなくなると表面機能を回復させるため、Cs を半導体表面に再供給し、NEA 表面を再形成させる必要がある。この回復時間がダウンタイムとなる。ダウンタイムは次の式であらわされる。

$$T_d = \frac{T_a}{T_o + T_a} \times 100 [\%] \quad (1-5)$$

ここで、 T_a は NEA 表面活性時間、 T_o は連続稼働時間を表す。 T_o が 24 時間を満たし、 $T_a = 30$ min だとすると、 $T_d = 2\%$ となる。ダウンタイムの削減は半導体製造の損失額低減につながる。集積回路が形成された 300 mm ウェハの価格は1枚 100 万円程度とされており、1 工場での月々の生産数を 2 万枚とすると、月々に製造されるウェハ価格は 200 億円である。半導体検査の工程がそのうちの 10%を占めるとすると、上記のダウンタイムによる損失は 1%当たり 2 千万円/月と見積もることができる。連続稼働時間 T_o は所望の電子ビームを一定時間連続で発生させられる時間で、ダウンタイムを短くするためには長い方が良い。

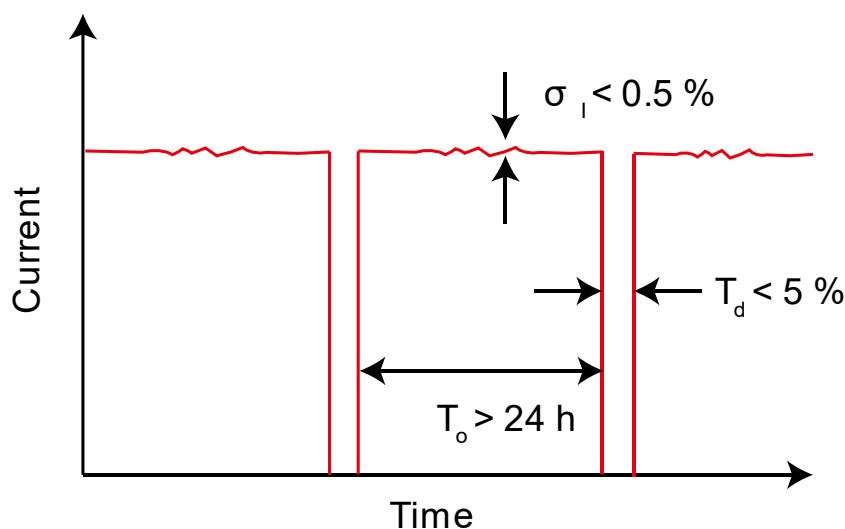


図 1-15 電子ビームに要求される安定性。 σ_i は電流のバラつき、 T_d はダウンタイム、 T_o は連続稼働時間を示す。記載の数値は半導体検査装置で要求される典型的な値。

連続稼働時の量子効率の寿命は報告例がないため、実験的に調査する必要がある。

InGaN において活性化直後の量子効率が 10%で、量子効率が $1/e$ まで減衰するのにかかる時間である寿命が 34 h とすると⁵⁸、最大出力 100 mW、波長 405 nm のレーザーを用いた場合、20 μ A を連続で発生させられる運転時間は 170 h と見積られる。連続稼働時間がこの値の場合、ダウンタイム及びそれによる損失額をそれぞれ 0.3%、600 万円/月に抑えることができる。しかしながら、この寿命はイオンバックボンバードメントの影響⁶¹がない条件で測定されたため、運転中の寿命はこれよりも短くなることが予想される。

1.6 本研究の目的と本論文の構成

半導体フォトカソードを検査装置に応用して検査スループットを向上させるために、InGaN フォトカソードの高量子効率化、高耐久化が必要である。既存技術である GaAs を用いた半導体フォトカソードの場合、量子効率の寿命が短いことから、工場ラインで使えるような電子ビームの電流安定性を実現するのは難しいとされてきた。しかしながら高耐久性を有する GaN 系半導体の研究開発が進み、半導体フォトカソードを産業利用できる可能性が高まってきた。一方で InGaN フォトカソードを SEM に用いた場合に得られるプローブ電流の追及や、電流安定性に関してはこれまで研究されてきていない。本研究では半導体フォトカソードの輝度がショットキー陰極の輝度を上回ることと、電子ビームの電流安定性の向上の二つを大きな目的とし、InGaN フォトカソードの高量子効率化と高耐久化を行った。

本論文の構成は以下の通りである。

2 章では、半導体フォトカソードからの光電子生成原理をもとに、SEM へ応用した場合に期待されるプローブ電流を見積もる。また、プローブ電流が既存技術のショットキー陰極のものを上回る条件を見出す。

3 章では、半導体フォトカソードの開発、評価に用いた装置の概要を説明する。

4 章では、高量子効率を得るための InGaN フォトカソードの量子効率の膜厚依存を調査し、実験結果に対してモデル計算から考察を行う。

5 章では、SEM のプローブ電流向上に必要な高電流密度を実現するために、InGaN フォトカソードの励起パワー密度依存性を調査する。

6 章では、前半において、安定で長時間一定の電流を発生させるために、フィードバックシステムを用いた光電流の安定化に取り組む。また、この時の連続稼働時間と量子効率の寿命

を調査する。後半では、連続稼働時間 24 時間を目的とし、量子効率の寿命と加熱温度の関係を調査することで、加熱による高耐久化を検証する。

参考文献

- ¹ W. Crookes, Phil. Trans, Roy. Soc. London, Part I, 135 (1879).
- ² T. A. Edison, US Patent No. 307031 (15 November 1883).
- ³ O. W. Richardson, Philoz. Cambridge Philos. Soc. **11**, 286 (1901).
- ⁴ I. Langmuir, Phys. Rev. **2**, 450 (1913).
- ⁵ M. Von Ardenne, British Patent No. 511204, convention date (Germany) (18 February 1937).
- ⁶ M. Von Ardenne and D. Beischer, Ztschr. Electrochem. Bd. **46**, 270 (1940).
- ⁷ J. M. Lafferty, J Appl. Phys. **22**, 299 (1951).
- ⁸ J. J. Thomson, Phil. Mag. 5th series. **44**, 293 (1897).
- ⁹ R. H. Fowler and L. Nordheim, Proc. R. Soc. Lond. A **119**, 173 (1928).
- ¹⁰ A. V. Crewe, J. Wall, J. Langmore, Science **12**, 1338 (1970).
- ¹¹ T. Komoda and S. Saito, *Proceedings of the Fifth Annual Symposium on Scanning Electron Microscopy* (IIT Research Institute, Chicago, 1972), p. 129.
- ¹² 中馬宏之、「世界の半導体微細計測を支える測長用 SEM(走査電子顕微鏡) : “日立”を 体現する独自性 と普遍性」:一橋大学 GCOE プログラム「日本企業のイノベーション—実証経営学の教育研究拠点」大河内賞ケース研究プロジェクト、2012
- ¹³ V. N. Shrednik, Sov. Phys. Solid State **3**,1268 (1961).
- ¹⁴ YSP, “YPS Field Emitters: Thermal (TFE) & Cold (CFE)”.
- ¹⁵ L. W. Swanson, and N. A. Martin, J. App. Phys. **46**, 2029 (1975).
- ¹⁶ P. Sandland, W. D. Meisburger, D. J. Clark, R. R. Simmons, D. E. A. Smith, L. H. Veneklasen, B. G. Becker, A. D. Brodie, C. H. Chadwick, Z. W. Chen, L. S. Chuu, D. G. Emge, A. A. Desai, H. J. Dohse, A. Dutta, J. D. Greene, L. A. Honfi, J. Y. Jau, S. G. Lele, M. Y. Ling, J. E. McMurtry, R. E. Paul, C.-S. Pan, M. Robinson, J. K. H. Rough, J. Taylor, P. A. Wiczorek, and S. C. Wong, J. Vac. Sci. Technol. B **9**, 3005 (1991).
- ¹⁷ M. A. Knoll and E. Ruska, Z. Phys **78**, 318 (1932).
- ¹⁸ R. Henderson and P. N. T. Unwin, Nature **257**, 28 (1975).
- ¹⁹ R. Henderson, J. M. Baldwin, T. A. Ceska, F. Zemlin, E. Beckmann, and K. H. Downing, J Mol Biol., **213**, 899, (1990).
- ²⁰ D. Wrapp, N. Wang, K. S. Corbett, J. A. Goldsmith, C. Hsieh, O. Abiona, B. S. Graham, J. S. McLellan, Science **367**, 1260 (2020).
- ²¹ 宮内栄、横内光広 “電子ビーム露光“ 真空 12 卷 7 号,p250-258, 1969.
- ²² R. C. Tiberio, Ph.D. Thesis, Cornell University (1994).
- ²³ B. Thiel, M. Lercel, B. Bunday, and M. Malloy, Proc. SPIE **9236**, 9236-0E (2014).
- ²⁴ M. Mukhtar, Ph.D. thesis, State University of New York Polytechnic Institute, 2018.
- ²⁵ Joint research of Nagoya Univ., Osaka Univ., Ehime Univ., Tokyo Univ. of Sci., Aoyama Gakuin Univ. and PeS inc. 科研費基盤 A (課題番号:19H00666)

-
- ²⁶ G. C. Egan, T. T. Li, J. D. Roehling, J. T. McKeown, G. H. Campbell, *Acta Mater.* **143**, 13 (2018).
- ²⁷ 2016 eBeam Initiative Mask Maker Survey Results, http://www.ebeam.org/docs/ebeam_survey_mask_2016.pdf
- ²⁸ C. Klein, E. Platzgummer, *Proc. SPIE* **9985**, 998505-1 (2016).
- ²⁹ E. Ma, K. Chou, M. Ebert, X. Liu, W. Ren, X. Hu, F. Wang, K. Liu, *Proc. SPIE* **10585**, 1058535-1(2018).
- ³⁰ S. Nickell and D. Zeidler, *Microsc. Microanal.* **25**, 568 (2019).
- ³¹ S. L. D. Collaboration, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 2515 (1993).
- ³² T. Koshikawa, M. Suzuki, T. Yasue, E. Bauer, T. Nakanishi, X. Jin, and Y. Takeda, *J. Vac. Soc. Jpn.* **57**, 382 (2014).
- ³³ JST 先端計測分析技術・機器開発プログラム、<http://www.jst.go.jp/sentan/saitaku/>
- ³⁴ F. C. Tang, M. S. Lubell, K. Rubin, A. Vasilakis, M. Eminyan, and J. Slevin, *Rev. Sci. Instrum.* **57**, 3004 (1986).
- ³⁵ W. E. Spicer, *Appl. Phys.* **12**, 115 (1977).
- ³⁶ M. Miyao, T. Wada, and T. Nitta, *App. Surf. Sci.* **33/34**, 364 (1988).
- ³⁷ N. Takahashi, S. Tanaka, M. Ichikawa, Y. Q. Cai, and M. Kamada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 2798 (1997).
- ³⁸ A. H. Sommer, H. H. Whitaker, and B. F. Williams, *Appl. Phys. Lett.* **17**, 273 (1970).
- ³⁹ C. Y. Su, W. E. Spicer, and I. Lindau, *J. Appl. Phys.* **54**, 1413 (1983).
- ⁴⁰ W. E. Spicer, *Phys. Rev.* **112**, 114 (1958).
- ⁴¹ T. Nishitani, Ph.D. Thesis, Nagoya University, 2004.
- ⁴² T. Nishitani, T. Nakanishi, M. Yamamoto, S. Okumi, F. Furuta, M. Miyamoto, M. Kuwahara, N. Yamamoto, K. Naniwa, O. Watanabe, Y. Takeda, H. Kobayakawa, Y. Takashima, H. Horinaka, T. Matsuyama, K. Togawa, T. Saka, M. Tawada, T. Omori, Y. Kurihara, M. Yoshioka, K. Kato, and T. Baba, *J. Appl. Phys.* **97**, 094907 (2005).
- ⁴³ D. A. Orlov, U. Weigel, D. Schwalm, A. S. Terekhov, and A. Wolf, *Nucl. Instrum. Methods A* **532**, 418 (2004).
- ⁴⁴ M. Kuwahara, S. Kusunoki, X. G. Jin, T. Nakanishi, Y. Takeda, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, and N. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 033102 (2012).
- ⁴⁵ Z. Liu, F. Machuca, P. Pianetta, W. E. Spicer, and R. F. W. Pease, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 1541 (2004).
- ⁴⁶ G. R. Neil, C. L. Bohn, S.V. Benson, G. Biallas, D. Douglas, H. F. Dylla, R. Evans, J. Fugitt, A. Grippo, J. Gubeli, R. Hill, K. Jordan, R. Li, L. Meringa, P. Piot, J. Preble, M. Shinn, T. Siggins, R. Walker, and B. Yunn, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 662 (2000).
- ⁴⁷ K. Aulenbacher, J. Schuler, D. V. Harrach, E. Reichert, J. Rothgen, A. Subashev, V. Tioukine, and Y. Yashin, *J. Appl. Phys.* **92**, 7536 (2002).
- ⁴⁸ J. E. Schneider, P. Sen, D. S. Pickard, G. I. Winograd, M. A. McCord, R. F. W. Pease, W. E. Spicer, A. W. Baum, K. A. Costello, and G. A. Davis, *J. Vac. Sci. Technol. B* **16**, 3192 (1998).
- ⁴⁹ D. Sato, A. Honda, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, H. Amano; "Excitation power density dependence of photocurrent from InGaN photocathode"45th International Conference

-
- on Micro & Nano Engineering(MNE2019), September 23-26, Rhodes (Greece), (2019)
- ⁵⁰ N. Chanlek, J. D. Herbert, R. M. Jones, L. B. Jones, K. J. Middleman, and B. L. Militsyn, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 055110 (2014).
- ⁵¹ F. Machuca, Z. Liu, Y. Sun, P. Pianetta, W. E. Spicer, and R. F. W. Pease, *J. Vac. Sci. Technol. B* **21**, 1863 (2003).
- ⁵² L. B. Jones, H. E. Scheibler, D. V. Gorshkov, A. S. Terekhov, B. L. Militsyn and T. C. Q. Noakes, *J. Appl. Phys.* **121**, 225703 (2017).
- ⁵³ T. Nishitani, M. Tabuchi, Y. Takeda, Y. Suzuki, K. Motoki, and T. Meguro, *Jpn. J. Appl. Phys.* **48**, 06FF02 (2009).
- ⁵⁴ H.-J. Drouhin, C. Hermann, and G. Lampel, *Phys. Rev. B* **31**, 3859 (1985).
- ⁵⁵ F. J. Machuca, Ph.D. thesis, Stanford University, 2004.
- ⁵⁶ F. Ichihashi, Ph.D. thesis, Nagoya University, 2017.
- ⁵⁷ T. Nishitani, M. Tabuchi, H. Amano, T. Maekawa, M. Kuwahara, and T. Meguro, *J. Vac. Sci. Technol. B* **32**, 06F901 (2014).
- ⁵⁸ T. Nishitani, T. Maekawa, M. Tabuchi, T. Meguro, Y. Honda, and H. Amano, *Proc. SPIE* **9363**, 93630T (2015).
- ⁵⁹ G. Orsal, Y. E. Gmili, N. Fressengeas, J. Streque, R. Djerboub, T. Moudakir, S. Sundaram, A. Ougazzaden, and J. P. Salvestrini *Opt. Mater. Express* **4**, 1030 (2014).
- ⁶⁰ D. Sato, T. Nishitani, Y. Honda, and H. Amano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 05FH05 (2016).
- ⁶¹ W. Liu, S. Zhang, M. Stutzman, and M. Poelker, *Phys. Rev. Accel. Beams* **19**, 103402 (2016).

第2章 半導体フォトカソードにおけるエミッタンスと SEM のプローブ電流

2.1 緒言

Ohshimaらは半導体フォトカソードを用いて SEM 像の取得に成功した¹⁾。しかしながらこの報告において、GaAs では長時間に及んで大きなエミッション電流を発生させることができず、SEM 像取得時の最大エミッション電流は 6 μA 、空間分解能は 500 nm であった。

高分解能で大きなプローブ電流を得るためには高輝度な電子銃が必要である。一般的に輝度 (B_r) の定義は次の通りである。

$$B_r = \frac{dI}{dSd\Omega} \quad (2-1)$$

ここで dI 、 dS 、 $d\Omega$ はそれぞれ電子ビームの微小領域における電流、面積、立体角である。

ところが、輝度の測定には注意が必要である。図 2-1 に既存の陰極の例として、熱陰極型とフォトカソード型電子銃の電極構造と電子ビーム軌道の概略図を示す。熱陰極型電子銃の場合、電子源と陽極の間にウェーネルト電極が設けてある。この電極には負の電圧が与えられ、その値を調整してエミッション電流を制御する。ウェーネルト電極により、電子ビームは一度細く絞られる。この点はクロスオーバーと呼ばれる。陽極を抜けた電子ビームの開き角はこのクロスオーバーにおける電子の発散角が支配的であり、この値を用いて輝度が測定される。一方、フォトカソード型電子銃の場合、電極はカソード電極と陽極の二つである。この時、フォトカソードから発生した電子ビームの発散角が小さくても、陽極のレンズ効果により電子ビームが広がってしまう。そのため、電子の運動量のバラつきによる発散角を正確に測定できない。

そこで我々は電子ビームの素性を表すエミッタンスに着目した。本章の目的は、半導体フォトカソードからの光電子生成原理を本に、エミッタンスが電子ビーム源と試料面の間で不変であることを利用して、半導体フォトカソードを SEM に応用した場合に期待されるプローブ電流を見積もることである。また、その電流がショットキー陰極のものを上回る条件を見出す。

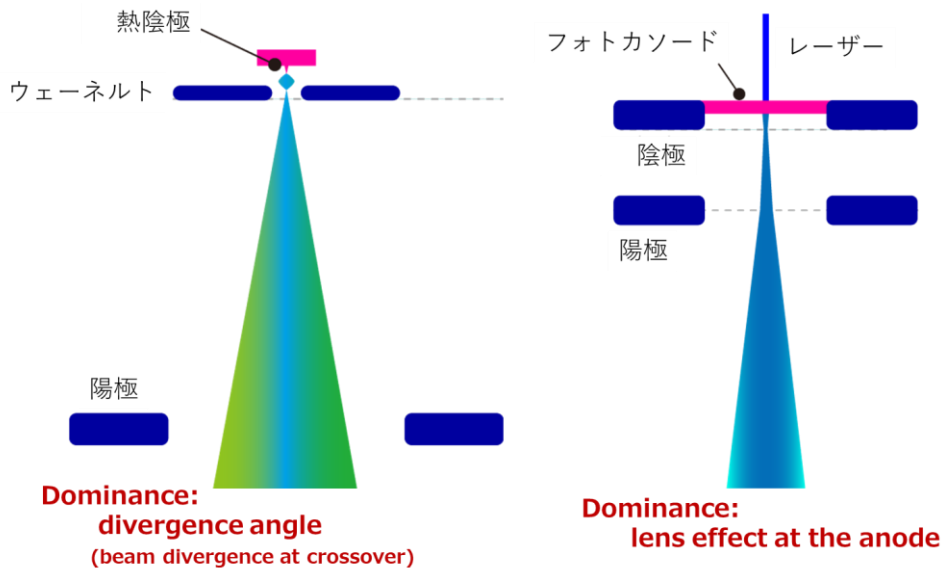


図 2-1 熱陰極型とフォトカソード型電子銃の電極構造と電子ビーム軌道の概略図

2.2 電子ビームのエミッタンスとエミッション電流から算出されるプローブ

電流

2.2.1 典型的な SEM における電子光学系とプローブサイズ

図 2-2 に典型的な SEM の光学系を示す。上から、電子ビーム源、コンデンサーレンズ、対物レンズアパーチャー、対物レンズ、観測試料の順で配置されている。対物レンズアパーチャーを透過する電子ビームの量をコンデンサーレンズで調整し、透過した電子ビームを対物レンズで縮小し、試料へ照射する。

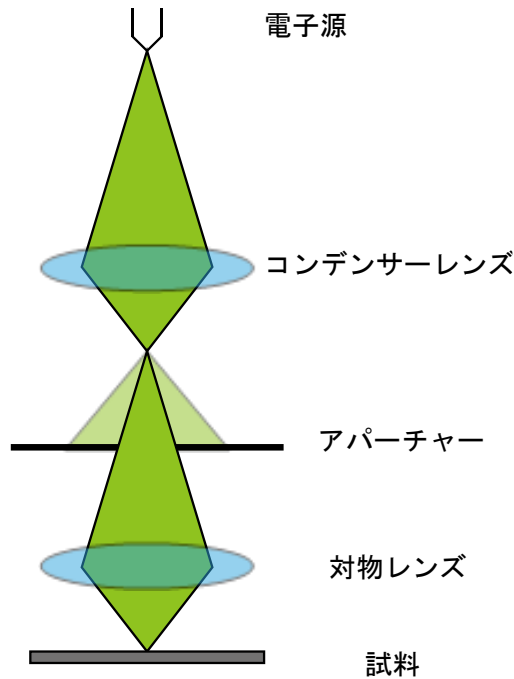


図 2-2 SEM 光学系の概要。アパーチャーを透過する電子ビームの量をコンデンサーレンズで調整し、対物レンズで縮小する。

試料への入射角の最適値は対物レンズの収差で決まる。試料上で収束される電子ビームの大きさは、対物レンズによって縮小された電子ビーム源の大きさに加え、レンズ系の収差に影響される。レンズの収差を考慮した試料上のスポットサイズは、

$$d_p = \sqrt{((d_A^4 + d_s^4)^{1.3/4} + d_l^{1.3})^2 / 1.3 + d_c^2} \quad (2-2)$$

で表される²⁾。ここで、 d_p は試料上の電子ビームのスポットサイズ、 d_A は回折収差、 d_s は球面収差、 d_l は電子ビーム源を縮小した径、 d_c は色収差である。収差はそれぞれ、

$$d_A = 0.61 \frac{\lambda}{\alpha_p} \quad (2-3)$$

$$d_c = 0.6 C_c \frac{\Delta E}{V_p} \alpha_p \quad (2-4)$$

$$d_s = 0.18 C_s \alpha_p^3 \quad (2-5)$$

で表される²⁾。 λ は加速後の電子の波長、 V_p は試料上の加速電圧、 α_p は開き角、 C_c は色収差係数、 ΔE は電子のエネルギー分散、 C_s は球面収差係数である。また、 λ は以下の通りである。

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_e V_p e \left(1 + \frac{eV_p}{2m_e c^2}\right)}} \quad (2-6)$$

ここで m_e は電子の質量、 e は電荷素量、 c は光速である。式(2-2)を用いたプローブサイズの開き角依存性を図 2-3 に示す。ここで、典型的な収差係数として、 $C_C = 12 \text{ mm}$ 、 $C_S = 4.4 \text{ mm}$ を用い、 d_I を 1 nm とし、 $V_p = 30 \text{ kV}$ とした。この光学系の場合、最小となるスポットサイズは 1.5 nm となり、この時の開き角は 6.3 mrad となる。この角度が最適角となる。

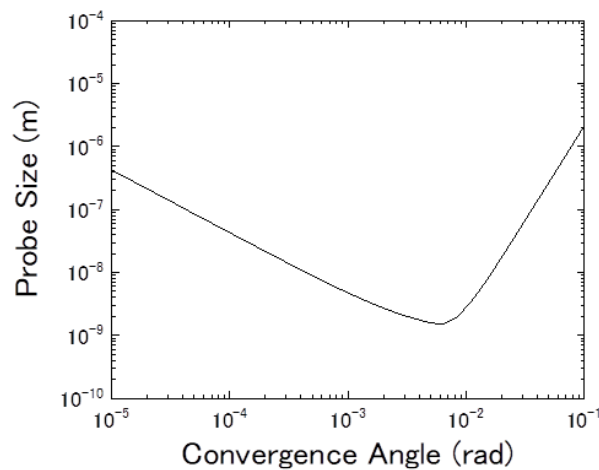


図 2-3 回折収差、色収差、球面収差を合わせた電子ビームスポットサイズと試料入射角の関係

2.2.2 電子ビームのエミッタンスから算出されるプローブ電流

半導体フォトカソードが発展してきた高エネルギー加速器分野では、電子ビーム輸送を考える上で、運動量位相空間上の各電子のばらつきで定義されるエミッタンスを利用する。高エネルギー加速分野におけるフォトカソード電子銃では、エミッション電流を余すところなく実験に利用させる目的で加速初期のクーロン力によるビーム発散を抑制する電極構造を採用している。加速後の電子ビームは初期のエミッタンスを反映し、且つエミッタンス保存則に従うため、この物理量が電子ビーム輸送に用いられてきた。

エミッタンスについて詳細を次の通りに説明する。電子の位置と運動量の分布は、電子の位置を x 、発散角を x' とすると、図 2-4(a)のような楕円を描く位相空間図で表され、楕円の面積に相当するものをエミッタンスと呼ぶ。GaAs フォトカソードを用いて得られた電子ビーム位相図の

例を図 2-4(b)に示す³。実測により電子ビームのエミッタンスを求める場合、電子ビームを粒子の集団と考え、電子の位置と発散角の二乗平均平方根 (rms) を測定してエミッタンスを算出する。電子の位置と発散角の二乗平均平方根を用いた rms エミッタンスは下記の通りに表される。

$$\epsilon_{rms} = \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle x'^2 \rangle - \langle xx' \rangle^2} \quad (2-7)$$

エミッタンスは、電子ビームの加減速およびアパーチャーによる電子ビームの切り出しがない限り不変の値となる。この値は電子ビームのエネルギーに依存するため、相対速度 β とローレンツ因子 γ を用い

$$\epsilon_n = \beta\gamma\epsilon_{rms} \quad (2-8)$$

とすることで規格化を行うことができ、異なるエネルギーをもつ電子ビームのエミッタンスを同一の指標で比べられる。

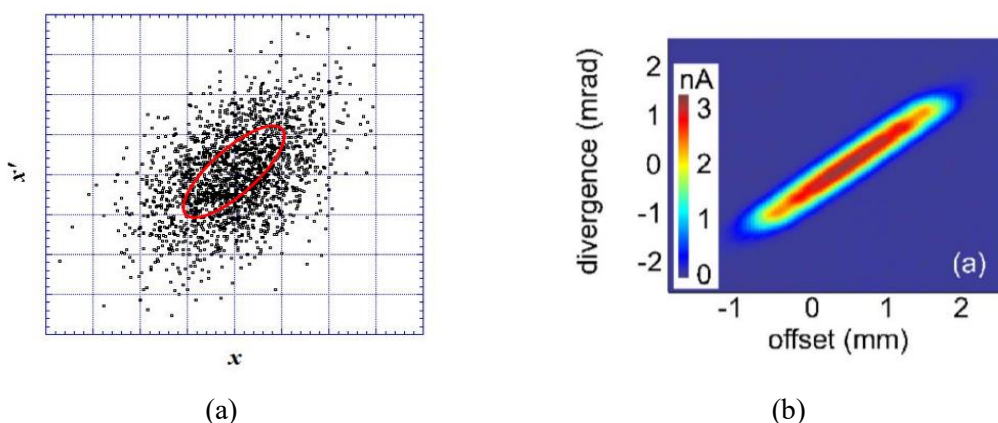


図 2-4 位相空間における電子の位置(x)と発散角(x')の分布の概略図(a)と GaAs フォトカソードを用いて実測された電子ビームの位相空間図(b)³。(b)のカラースケールは電子ビーム電流を表す。

電子ビームの放出面が平面である場合、式(2-7)のうち、 $\langle xx' \rangle$ は 0 となるので、エミッタンスは次のようになる。

$$\epsilon_{rms} = \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle x'^2 \rangle} \quad (2-9)$$

これは試料面のスポットサイズと発散角の積に相当する。試料面におけるスポットサイズと発散角が決まっている場合、必要なエミッタンスが自ずと決まる。先に述べた通り、発散角が 6.3 mrad で目標とするスポットサイズが 1 nm の場合 $\epsilon_{rms} = 9.5 \text{ pm rad}$ となる。また、全面積及び

立体角におけるエミッタンスの総和は $\epsilon_{all} = \pi^2 \epsilon_{rms}^2 = 8.9 \times 10^{-22} \text{ m}^2 \text{ rad}^2$ となる。電子ビーム源のエミッタンスがこれより大きい場合、それを縮小させる必要がある。そのため、エミッタンスを評価することで、半導体フォトカソードの有用性を評価できる。

半導体表面から脱出した直後で、まだ加速されていない電子ビームについて議論するため、次の規格化エミッタンスを用いる。

$$\epsilon_n = \beta\gamma\sqrt{\langle x^2 \rangle \langle x'^2 \rangle} \quad (2-10)$$

ここで、電子の発散角は運動量 p_x を用いて $x' = \frac{1}{\beta\gamma m_e c} p_x$ で表される。電子が理想的なボルツマン分布に従うと仮定すると、 $\langle p_x^2 \rangle = m_e k_B T_e$ と置き換えることができ、 $\sqrt{\langle x^2 \rangle}$ をエミッションサイズとすると、式(2-10)を次のように表すことができる。

$$\epsilon_n = \sigma \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_e c^2}} \quad (2-11)$$

ここで σ はエミッションサイズ、 k_B はボルツマン定数、 T_e は電子温度を示す。

励起光を成型せず余すところなく利用する場合、エミッションサイズの最小値は光の集光限界値となる。レーザーを集光する場合、シングルモードの集光サイズ σ は次の式で表される。

$$\sigma = \frac{4f\lambda_0}{\pi\sigma_0} \quad (2-12)$$

ここで、 f はレンズの焦点、 λ_0 は光の波長、 σ_0 は集光前の光のサイズである(図 2-5)。例として、 $f = 4 \text{ mm}$ 、 $\lambda_0 = 405 \text{ nm}$ 、 $\sigma_0 = 2 \text{ mm}$ とすると $\sigma = 1 \text{ }\mu\text{m}$ を得られる。

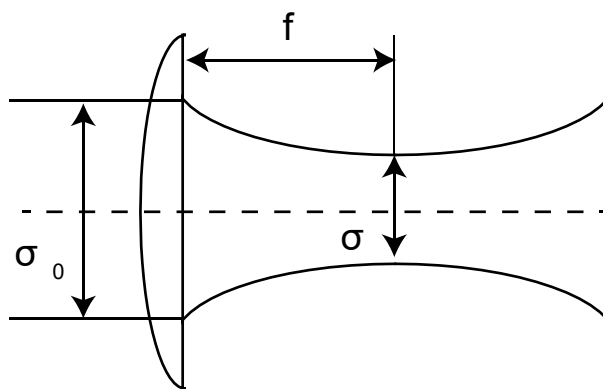


図 2-5 凸レンズによる集光の概略図。 f はレンズの焦点、 λ_0 は光の波長、 σ_0 は集光前の光のサイズを示す。

半導体フォトカソードの場合、 $k_B T_e$ は真空準位を基準とした電子の運動エネルギーの平均

値に相当する。真空中へ放出された電子の密度はエネルギーに対して分布を持つ。電子密度のエネルギー分布を示す模式図を図 2-6 に示す。このエネルギー分布は半導体表面の法線ベクトルに対し、平行、垂直に等方的であり、その分布におけるエネルギー平均値が $k_B T_e$ に相当する。真空中に放出される電子のエネルギー分布は励起された電子の分布が拡散過程におけるエネルギーの緩和を反映した形をとる。そのため励起エネルギーが高いほど励起された電子の平均運動エネルギーは高くなり、 $k_B T_e$ も高くなる。例として GaAs を用いた場合の $k_B T_e$ の励起波長依存性を図 2-7 に示す³。励起波長が 700 nm よりも小さい領域において $k_B T_e$ は励起エネルギーに比例して大きくなる。一方で、励起エネルギーとバンドギャップが近くなると、 $k_B T_e$ は真空準位とバルクの伝導帯下端の差、つまり χ_{eff} の大きさによって決まる。図 2-7 の結果では GaAs のバンド端である 1.42 eV に対して 1.43 eV のエネルギーを持つ励起光を照射することで、 $k_B T_e$ が 30 meV と小さい値に収まっている。InGaN の場合、バンドベンディング量 ϕ_b が GaAs の 3 倍程度大きく、 χ_{eff} も同様に大きくなると仮定される。それ故、本計算では InGaN の $k_B T_e$ を 0.1 eV とする。当然ながら厳密な計算には $k_B T_e$ の実測が必要である。

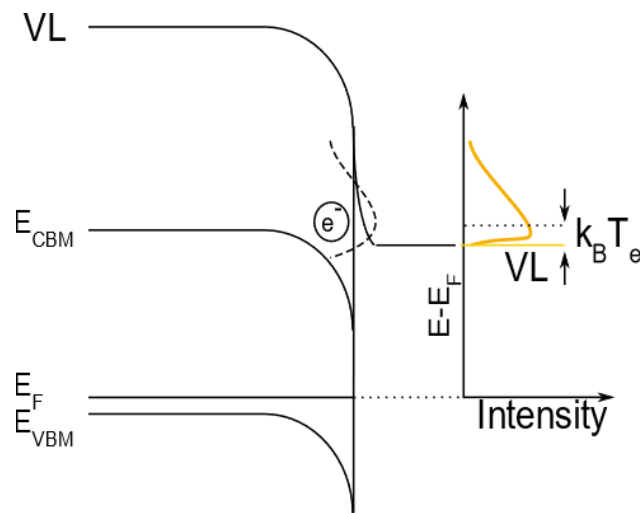


図 2-6 光電子密度のエネルギー分布。VL、 E_{CBM} 、 E_F 、 E_{VBM} 、 $k_B T_e$ はそれぞれ真空準位、バルクにおける伝導帯下端、フェルミ準位、バルクにおける価電子帯の上端、電子の運動エネルギーを表す。

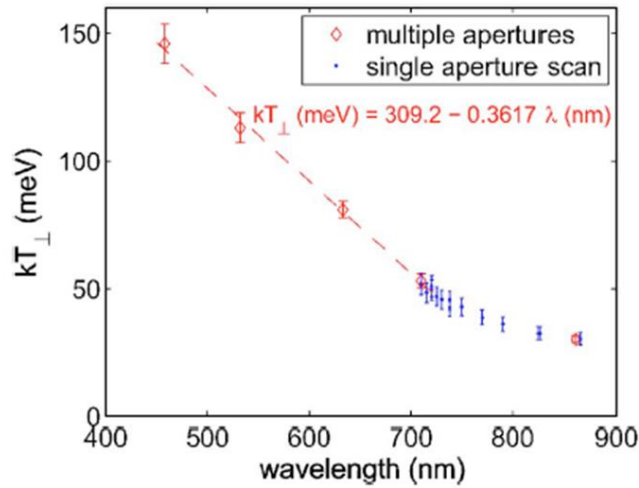


図 2-7 GaAs を用いた電子の運動エネルギー $k_B T_e$ の励起波長依存性³

以上から InGaN フォトカソードから発生する電子ビームの ϵ_{rms} と ϵ_{all} はそれぞれ 1.3 nm rad と $1.6 \times 10^{-17} \text{ m}^2 \text{ rad}^2$ と算出される。 $\sigma = 1 \text{ }\mu\text{m}$ 、 $k_B T_e = 0.1 \text{ eV}$ とし、電子ビームの加速電圧は 30 kV を用いた。これは先に述べた $8.9 \times 10^{-22} \text{ rad}$ に対して 1.9×10^4 倍大きい。この電子ビーム源を発散角が 6.3 mrad 、スポットサイズが 1 nm となる SEM に利用する場合、対物レンズの前段にアパーチャーを設けてエミッタンスを縮小させる必要がある。例えば対物レンズの拡大縮小率が 100 の場合、アパーチャーの前段に拡大縮小率が 10 のレンズを設け、電子ビームのサイズを $1 \text{ }\mu\text{m}$ から 100 nm に縮小した後、所望の発散角になるようにアパーチャーで電子ビームを切り出す。これにより電流も削られるため、半導体フォトカソードを用いた場合のプロブ電流 I_p は次の式で表される。

$$I_p = \frac{(\pi\epsilon_p)^2}{(\pi\epsilon_o)^2} I_o = B_r (\pi\epsilon_p)^2 \quad (2-13)$$

ここで、 ϵ_o と ϵ_p はそれぞれ電子ビーム源及び試料上での rms エミッタンスで、 $\frac{I_o}{(\pi\epsilon_o)^2}$ はいわゆる電子ビーム源の輝度 (B_r) に相当する。以上を踏まえたエミッション電流とプロブ電流の関係を図 2-8 に示す。

上記の計算で用いた収差係数とプロブサイズを同じ条件にした場合に得られるショットキー陰極のプロブ電流は 60 pA 程度である²。そのため、半導体フォトカソードのエミッション電

流が $2 \mu\text{A}$ 以上でショットキー陰極と同等以上になり、 $20\mu\text{A}$ でプローブ電流が 10 倍以上の 1 nA となることが見積もられる(図 2-9)。

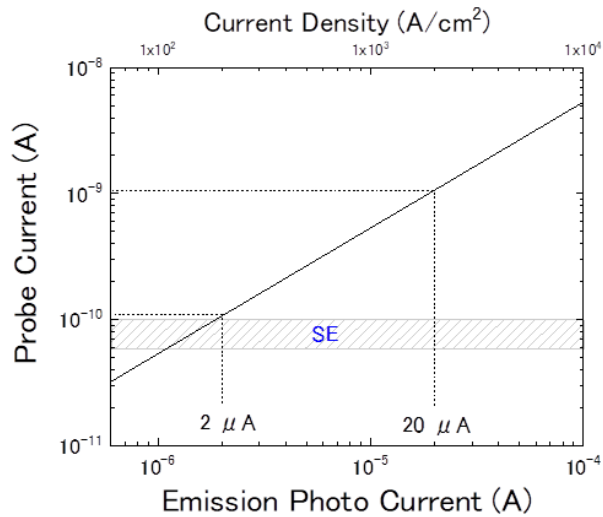


図 2-8 SEM のプローブ電流と半導体フォトカソードのエミッション電流の関係。典型的な SEM のパラメーター²を用いて算出された。ショットキー陰極(SE)を用いた場合のプローブ電流は 60 pA 程度とされている²。

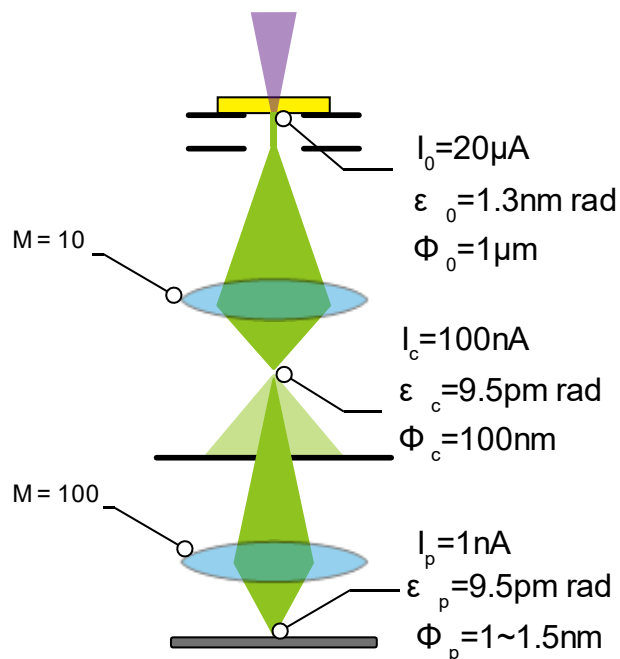


図 2-9 半導体フォトカソードを典型的な SEM に用いた場合のエミッション電流とプローブ電流の見積。 I_0 、 ϵ_0 、 Φ_0 はそれぞれフォトカソードのエミッション電流、エミッタンス、エミッションサ

イズ、 I_c 、 ϵ_c 、 Φ_c はそれぞれレンズによる縮小とアパーチャーの切り出しによって得られるプローブ電流、エミッタンス、プローブサイズを示す。 I_p 、 ϵ_p 、 Φ_p はそれぞれ試料面におけるプローブ電流、エミッタンス、プローブサイズを示す。 M はレンズの拡大縮小率を示す。

2.3 結論

これまで報告された半導体フォトカソードの物性値をもとに、半導体フォトカソードを SEM に応用した場合に得られるプローブ電流を算出したところ、次のことが明らかになった。電子ビームのエミッションサイズを $1\ \mu\text{m}$ 、電子の運動エネルギーを $0.1\ \text{eV}$ 、加速電圧を $-30\ \text{kV}$ 、電子ビーム源縮小サイズを $1\ \text{nm}$ とすると、SEM のプローブ電流はエミッション電流のおおよそ $1/20000$ の値となる。同条件におけるショットキー陰極を用いたときのプローブ電流は $60\ \text{pA}$ 程度とされているため、例えばそれを 10 倍上回るためには、上記の条件でエミッション電流 $20\ \mu\text{A}$ が必要である。

本論文ではここで示される値を実験的に証明することができなかったため、これらの値を InGaN フォトカソードの性能を向上させる上での目安とした。

参考文献

-
- ¹ T. Ohshima and M. Kudo, Jpn. J. Appl. Phys., **43**, 8335 (2004).
 - ² M. S. Bronsgeest, J. E. Barth, L. W. Swanson, and P. Kruit, J. Vac. Sci. Technol. B **26**, 949 (2008).
 - ³ I. V. Bazarov, B. M. Dunham, Y. Li, X. Liu, D. G. Ouzounov, C. K. Sinclair, F. Hannon, and T. Miyajima, J. Appl. Phys. **103**, 054901 (2008).

第3章 NEA 半導体フォトカソード評価装置の概要

3.1 緒言

本章では本研究で開発、使用した NEA 表面活性装置及び電子銃チャンバーについて詳細を述べる。理想的な NEA 表面の活性化を行うためには、 10^{-7} Pa 以下の超高真空環境と半導体表面の酸化膜を除去する機能、Cs と O_2 を供給する機能、光電子を発生させる励起光源、さらには半導体に-100 V 以上の電圧を印加する機能が必要である。また、半導体フォトカソードから発生する電子ビームを加速させ、その素性を評価するためには、サンプルに高電圧を印加させる機能、電子ビームの軌道を制御する機能、及び NEA 表面を活性化させたサンプルを超高真空中で搬送させる機能が必要である。本装置はこれらの機能を備えている。

3.2 フォトカソード電子源装置 2 号機(NPeSII)の概要

本研究では、半導体試料の NEA 半導体フォトカソードとしての評価のために、名古屋大学と理化学研究所で共同開発したフォトカソード電子源装置 2 号機(NPeSII)を用いた。図 3-1 に NPeS II の全体図と排気系統図を示す。本装置は、①ロードロックチャンバー、②NEA チャンバー、③電子銃チャンバー、④励起光源、⑤電源及び制御機器で構成されており、各チャンバーはゲートバルブで区切られている。それぞれの役割は以下の通りである。

- ① ロードロックチャンバー: サンプルホルダーの挿入用のチャンバーである。真空度は大気圧から $\sim 10^{-6}$ Pa である。
- ② NEA チャンバー: サンプルの加熱洗浄と NEA 表面活性を行うチャンバーである。量子効率の励起エネルギー依存性、NEA 表面の寿命特性などの測定が可能である。ベースの真空度は $\sim 10^{-9}$ Pa である。
- ③ 電子銃チャンバー: カソードに ~ -15 kV の加速電圧を印加し、実用レベルの電子ビームの発生やパルス電子ビームの発生を行うチャンバーである。ベースの真空度は $\sim 10^{-9}$ Pa である。

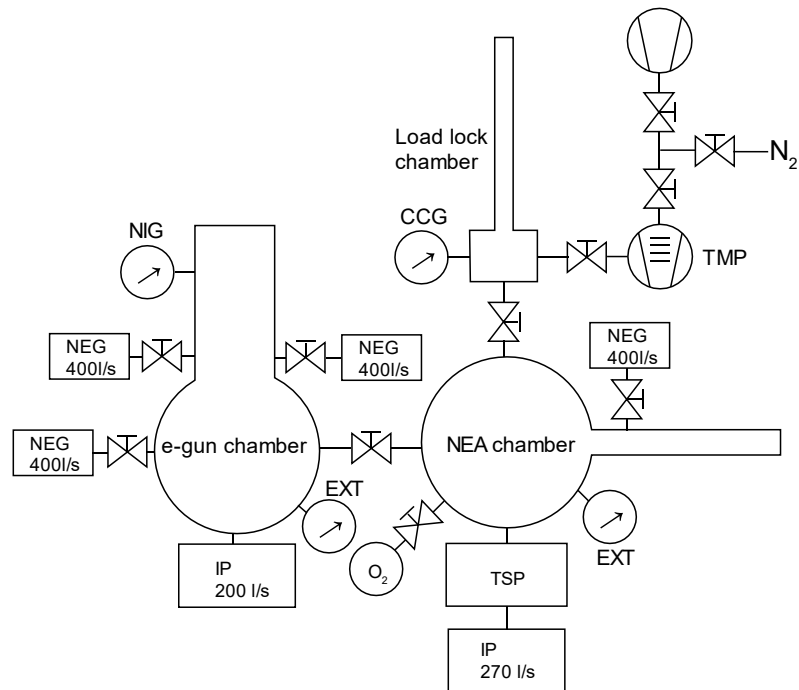
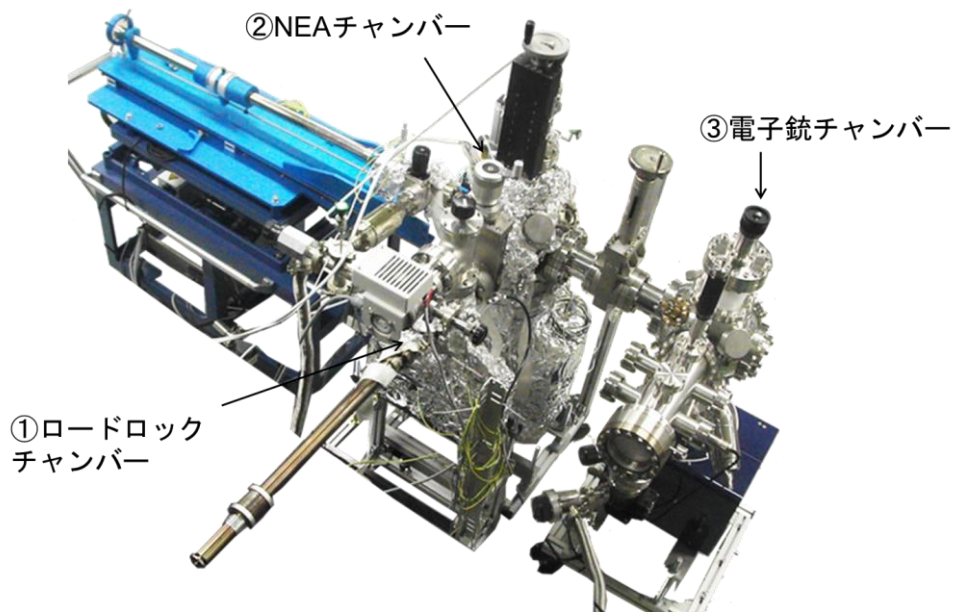
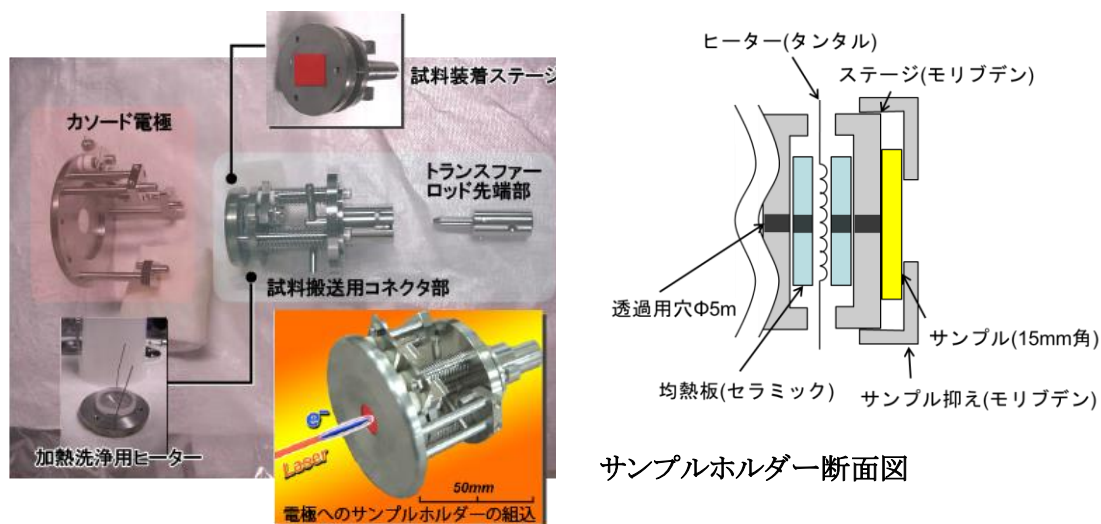


図 3-1 NPeS II の概略図。ロードロックチャンバーとNEA チャンバー及び電子銃チャンバーで構成される。

半導体が固定されたサンプルホルダーをロードロックチャンバーへ挿入し、トランスファーロッドでNEA チャンバーへ搬送する。NEA 表面の活性化後、トランスファーロッドでサンプルをNEA チャンバーから電子銃チャンバーへ搬送し、電子ビーム発生の実験・評価を行った。

3.3 サンプルホルダー

NPeS II におけるサンプルホルダーは、サンプルの加熱洗浄と各チャンバー間の搬送の役割を持つ。図 3-2 に示すように、その構成はサンプルの試料装着ステージ部と加熱洗浄用ヒーター部、トランスファーロッドを用いたチャンバー間の搬送のためのコネクタ部からなる。サンプルステージに高融点材料の Mo を使用し、ヒーターには Ta を用いている。均熱板にはヒーターの輻射熱をステージに伝えるため透明のサファイアを使用し、サンプルの固定には Mo 材のキャップを使用した。また、背面からの光導入を可能にするため、ステージ及び均熱板に $\Phi 5\text{mm}$ の貫通穴を設けている。



サンプルホルダー断面図

サンプルホルダーの外観図

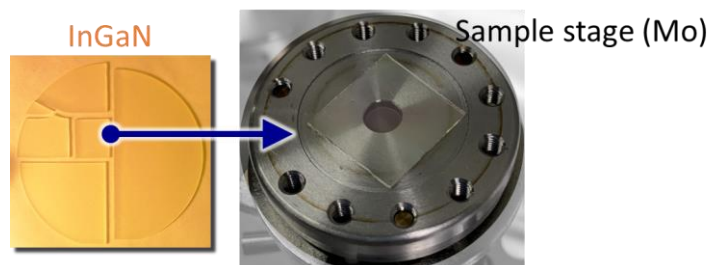


図 3-2 サンプルホルダーの概略: 試料装着ステージと加熱洗浄用ヒーター、試料搬送用コネクタ部から構成。加熱洗浄用ヒーターはサンプルを 800°C まで加熱可能である。ホルダーには背面照射用の透過穴が設けられており、正面と背面からサンプルへの光照射が可能である。

3.4 ロードロックチャンバー及び NEA チャンバー

3.4.1 ロードロックチャンバー

ロードロックチャンバーは、NEA チャンバーを超高真空に保ちながらサンプルを交換する時に使用するチャンバーである。図 3-3 に NEA チャンバー及びロードロックチャンバーの概略図を示す。ロードロックチャンバーの構成要素とそれぞれの用途を表 3-1 に示す。NEA チャンバーとロードロックチャンバーはゲートバルブで仕切られている。そのため、NEA チャンバーの真空を破らずにサンプルの交換が可能である。チャンバーの排気にはターボ分子ポンプとスクロールポンプを用いた。ファイファーバキューム社製の IKR 270 を使用してチャンバーの真空度をモニタリングした。IKR270 の測定可能範囲は 5×10^{-9} Pa~1 Pa で精度は±30%である。サンプル交換を以下の手順で行った。

1. ロードロックチャンバーを $\sim 10^{-6}$ Pa まで粗排気する。
2. NEA チャンバーとのゲートバルブを開けてトランスファーロードでホルダーをロードロックチャンバーまで搬送する。
3. ゲートバルブを閉めてロードロックチャンバー内を窒素パージし、大気にホルダーを取り出す。
4. 新しいサンプルのついたホルダーをロードロックチャンバーに挿入し、ロードロックチャンバーを真空引きする($\sim 10^{-6}$ Pa)。この時リボンヒーターを用いて同チャンバーを 80°C で 8 時間程度ベーキングを行い、水をベークアウトさせる。
5. ゲートバルブを開けてホルダーを NEA チャンバーに搬送し、ゲートバルブを閉じる。

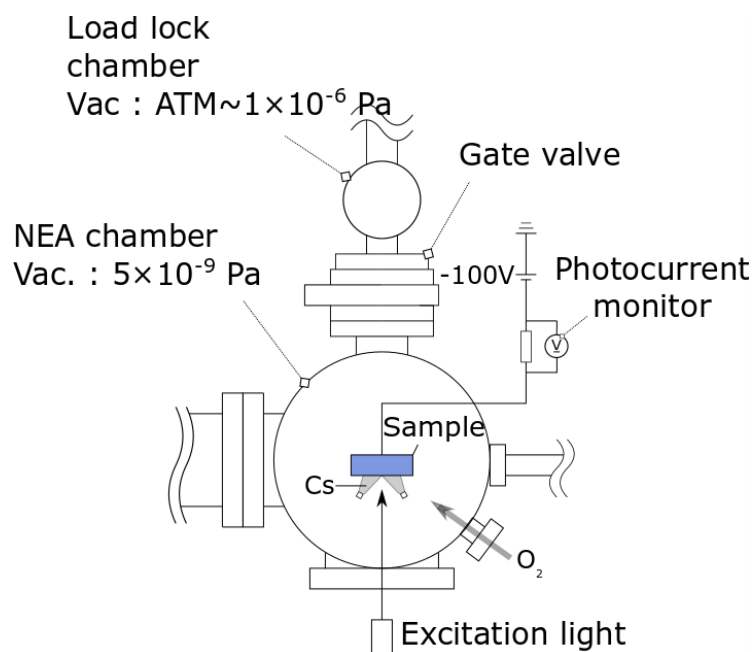


図 3-3 NEA チャンバー及びロードロックチャンバーの概略図

表 3-1 ロードロックチャンバーの構成要素とそれぞれの用途

ロードロックチャンバー構成要素	用途
搬送ロッド	ホルダーを NEA チャンバーへ搬送
ターボ分子ポンプ、スクロールポンプ	チャンバーの排気
真空計	チャンバー内の真空度のモニター

3.4.2 NEA チャンバー

NEA チャンバーは、サンプルの加熱洗浄と NEA 表面活性を行うチャンバーである。高圧側での光電流の測定下限値が 1 nA と小さいため、後に示す励起光源と組み合わせることで、量子効率の励起エネルギー依存性、NEA 表面の暗寿命特性、一定電流発生時における明寿命特性を観測できる。NEA チャンバーの構成要素とそれぞれの用途を表 3-2 に示す。NEA チャンバーには Mo を材料とするカソード電極が設置されており、サンプルホルダーはロードロックチャンバーからトランスファーロッドを用いて搬送され、このカソード電極へ固定される。カソード電極の概略図を図 3-4 に示す。カソード電極は筐体と電氣的に絶縁されており、電極に加速電圧 0 V ~ -1 kV を印加してカソードから電子を発生させる。また、カソード電極と電圧源

の間に抵抗を挟み、抵抗での電圧変化を測定することで、カソードから発生する光電流を観測した。サンプルを保持するサンプルホルダーは、大気暴露の状態準備室へ導入される。サンプルとホルダーの表面には NEA 表面に深刻な水や酸化物等の不純物が吸着されている。NEA チャンバーではサンプル表面のこのような不純物を除去するためにサンプルを 600°C ~ 700°C で 1 時間加熱洗浄する。放射温度計と K 熱電対を用いて加熱温度を測定した。使用した放射温度計はジャパンセンサー社製 TTK9-R100R0-20L61 である。この放射温度計は 100°C ~ 2000°C まで測定が可能であり、精度定格は ±4°C である。放射温度計をサンプル正面のビューポートの手前(サンプルとの距離 19 mm)に設置した。ホルダーの透過穴を避けて、かつサンプルの中心に近い箇所に放射温度計の照準を合わせた。放射率は 0.05 とした。半導体の中心から 47 mm はなれた箇所に熱電対を固定した(図 3-4)。熱電対で測定される温度と半導体の表面温度とに差が生じるが、放射率の違う半導体を用いた場合にも、この温度を用いることで温度の再現性を確認できる。

表 3-2 NEA チャンバーの構成要素とそれぞれの用途

NEA チャンバー構成要素	用途
カソード電極	ホルダーを固定して加速電圧をかけ、光電流を発生
電極ロッド	カソード電極の固定
搬送ロッド	ホルダーを電子銃チャンバーへ搬送
抵抗	引き出し電流の測定
DC 電圧源	加速電圧の印加
Cs ディスペンサー	Cs の供給源
リークバルブ	酸素の供給源
TSP、IP、NEG ポンプ	チャンバーの排気
真空計	チャンバー内の真空度のモニター
放射温度計	サンプル温度のモニター

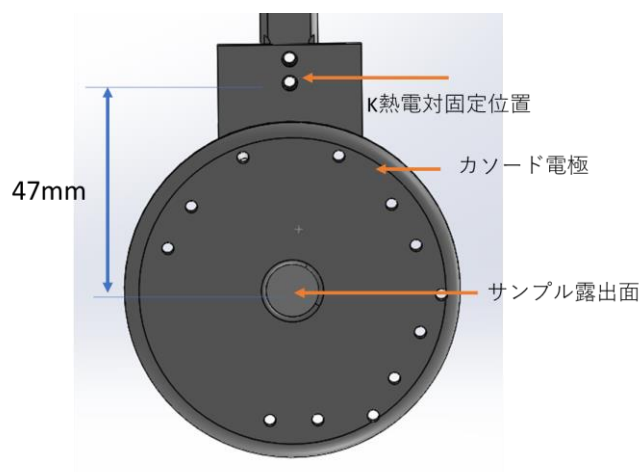


図 3-4 カソード電極の概略図と K 熱電対の固定位置

SAES Getters 社製の Cs ディスペンサーを Cs 源として使用した。図 3-3 に示すようにカソード電極の正面に Cs ディスペンサーを設置した。

酸素の供給に関して、NEA チャンバーに備え付けられたリークバルブ (ZLVM940:VG Scienta 製、使用可能圧力範囲 :100 mbar(MAX) $\sim 1 \times 10^{-11}$ mbar(MIN)) を用いて流量調整しながら、NEA チャンバーへ酸素を導入した。酸素の純度は 99.99995%以上であった。

チャンバーの排気にはチタンサブリメーションポンプ (Titanium Sublimation Pump : TSP) とイオンポンプ (Ion Pump : IP)、非蒸発型 (Non Evaporable Getter : NEG) ポンプを使用した。エリコンライボルト社製の IONIVAC IM 520(with extractor)を用いてチャンバー内の圧力を測定した。IONIVAC IM 520(with extractor)の測定可能範囲は 1×10^{-10} Pa $\sim 1 \times 10^{-2}$ Pa で精度は $\pm 10\%$ であった。

3.4.3 Cs ディスペンサー

本研究で使用した SAES 社製の Cs ディスペンサーの断面図を図 3-5 に示す¹。ニクロムの筒に Cs 原料の CsCrO₄ 及びゲッター材の Al-Zr 合金粉が充填されており、ニクロムに電流が流れると抵抗加熱により Cs に熱が伝わり、温度が 600°C程度になると Cs が乖離する。乖離された Cs は上部のスリッドから真空中へ放出される。残った酸化クロムと加熱により発生したガスの一部はゲッター材に吸着され、ディスペンサーの中にとどまる。本研究では、Cs ディスペンサーの通電を 3.4 A \sim 3.8 A の範囲で変化させることで、Cs の供給量を調節した。

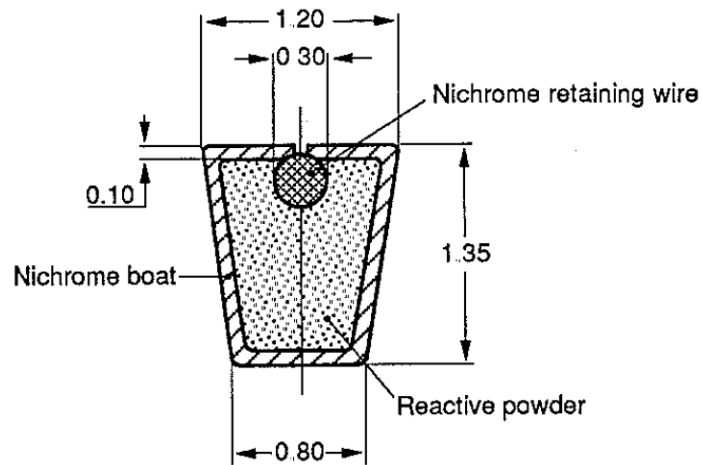


図 3-5 Cs ディスペンサーの断面図¹⁾(寸法単位は mm)

3.5 電子銃チャンバー

電子銃チャンバーはカソードに ~ -15 kV の加速電圧を印加し、実用レベルの電子ビームの発生やパルス電子ビームの発生を行うチャンバーである。電子銃チャンバーの概略図と構成要素をそれぞれ、図 3-6 と表 3-3 に示す。NEA チャンバーから搬送されたサンプルホルダーはカソード電極へ固定される。カソード電極及び電極ロッドは筐体と電氣的に絶縁されており、カソードから電子ビームを発生させる時は DC 電圧源を用いて加速電圧 ~ -15 kV を印加させた。

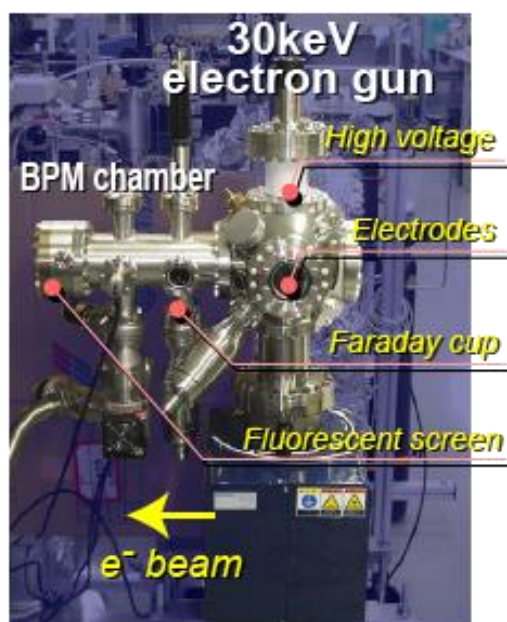
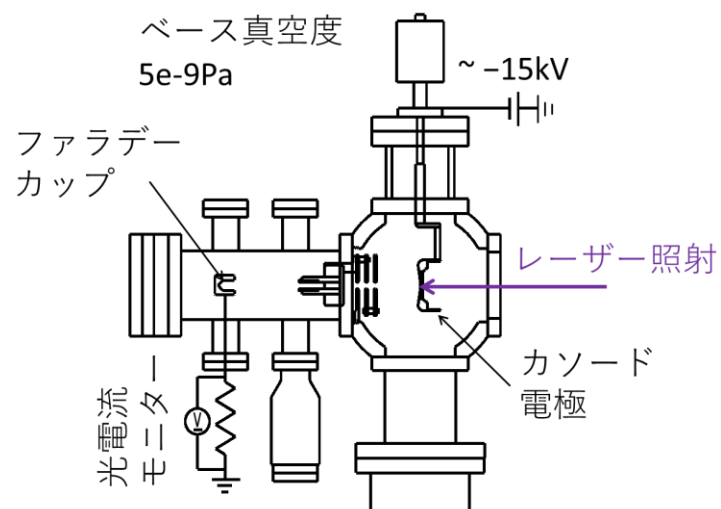


図 3-6 電子銃チャンバーの概略図

表 3-3 電子銃チャンバーの構成要素とそれぞれの用途

電子銃チャンバー構成要素	用途
カソード電極	ホルダーを固定して加速電圧をかけ、電子ビームを発生
電極ロッド	カソード電極の固定
DC 電圧源	加速電圧の印加
静電レンズ	電子ビームの収束
ディフレクター	電子ビームの方向制御
ファラデーカップ	電子ビームの検出
抵抗	発生電流の測定
蛍光板	電子ビームのプロファイル観測
DC 電源	加速電圧の印加
IP、NEG ポンプ	チャンバー内の排気
真空計	真空度のモニター

図 3-6 に示すように、静電レンズは穴の空いた 3 枚の円盤から構成され、両端 2 枚を接地し、真ん中の円盤に電圧を加え電子ビームを収束させる電界を発生させた。ディフレクターは 4 枚の電極板で構成されており、2 枚ずつ向き合わせて設置させた。4 枚の電極板のうち 2 枚に電圧を加え、電子ビームの x 軸、y 軸方向の調整を行った。

発生した電子ビームの電流をファラデーカップにて測定した。ファラデーカップを接地させ、グランドとファラデーカップの間に抵抗をはさみ、抵抗での電圧降下を測定することで電流値を測定した。電子銃チャンバーの終端に蛍光板を設置し、電子ビームが当たった時に発生する光を観測して、電子ビームのプロファイルを評価した。

チャンバーの排気には、IP と NEG ポンプを使用した。カソード近傍の真空度のモニタリングにはエリコンライボルト社製の IONIVAC IM 520(with extractor)を使用した。ファラデーカップ近傍の真空度の測定にはキャノンアネルバ製の MG-2F を使用した。MG-2F の測定可能範囲は $1 \times 10^{-7} \text{ Pa} \sim 13 \text{ Pa}$ である。

3.6 励起光源

本研究では表 3-4 に示すように 3 種類の励起光源を用いた。一つ目は図 3-7 に示す Xe ランプモジュールである。量子効率の励起エネルギー依存を測定する際にこのモジュールを使用した。Xe ランプから生成される白色光をモノクロメーターで分光、光ファイバーで搬送し、アイリスで成型後、焦点距離 100 mm のレンズを用いて試料面へ $\Phi 6$ mm に集光させた。励起光源の Xe ランプと分光器はそれぞれ朝日分光社製の MAX-302 と CMS-100 であった。波長範囲は 200 nm ~ 900 nm である。分光器の出口にはスリットが設置されており、スリット幅は 0.3 mm、0.5 mm、1.0 mm の 3 種類である。各スリットにおける波長分解能はそれぞれ 2.6 nm、4.3 nm、8.6 nm である。

表 3-4 励起光源の種類と用途

励起光源モジュール	用途
Xe ランプモジュール	量子効率の励起エネルギー依存測定
NEA 活性用レーザーモジュール	InGaN の NEA 活性
XYZ ステージ搭載集光モジュール	量子効率の励起パワー依存性測定、 運転時間測定、量子効率の 面内分布測定

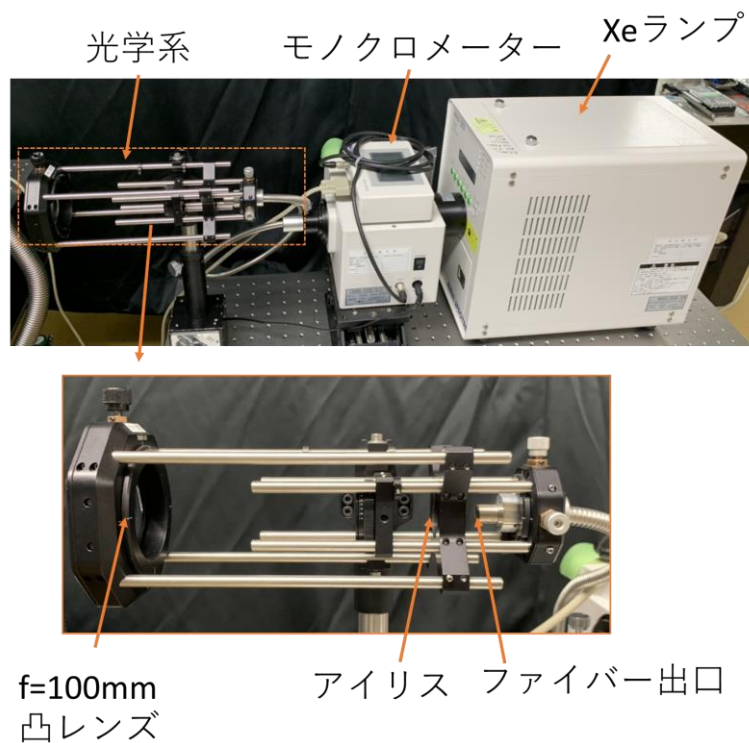


図 3-7 Xe ランプモジュールの外観。白色光をモノクロメーターで分光し、光ファイバーを通したのちにアイリスで成型し、焦点距離 100 mm のレンズを用いて試料面へ集光させる。

二つ目は図 3-8 に示される NEA 活性用簡易レーザーモジュールである。NEA 活性時の量子効率の観測と量子効率の暗寿命を測定する際にこのモジュールを使用した。半導体レーザーから生成される光を ND フィルターで適宜減衰させ、スプリッターを用いてサンプルに入射する光路とパワーメーターへ入射する光路に分岐させた。スプリッター手前にシャッターを設け、照射光 ON 時の測定電流から OFF 時の測定電流を差し引くことで、背景電流を取り除いた。半導体レーザーの波長および最大出力はそれぞれ 405 nm、30 mW でレーザーモードはシングルモード、製品名はオプトロンサイエンス社製の AOS-110(405-10)である。パワーメーターはオフィールジャパン社製の USBI を用いた。

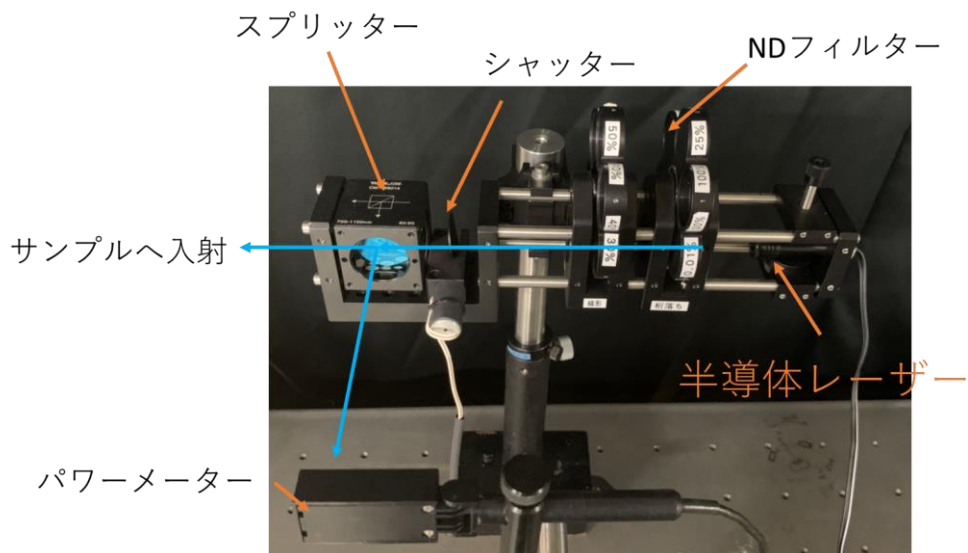


図 3-8 NEA 活性用レーザーモジュール。半導体レーザーから生成される光を ND フィルターで適宜減衰させ、スプリッターにより分岐させる。

三つ目は図 3-9 に示される XYZ ステージ搭載集光モジュールである。このモジュールは量子効率の励起パワー依存性測定、連続運転時間測定、量子効率の面内分布測定に用いられた。半導体レーザーから生成されたレーザー光をアッテネーターにより適宜減衰させ、軸出しように設けられた2枚のミラーを介し、レンズを用いて集光させた。半導体レーザーは TOPTICA PHOTONICS 社製の IBEAM-SMART-405-S-HP であった。レーザー光の波長と最大出力はそれぞれ 405 nm、300 mW でビームモードはシングルモード、発振器の寸法は $40 \times 40 \times 100 \text{ mm}^3$ (H × W × D)と小型である。集光レンズは3枚で構成され、その焦点距離は光源側からそれぞれ① $f = 500 \text{ mm}$ (凹)、② $f = 300 \text{ mm}$ (凸)、③ $f = 250 \text{ mm}$ (凸)であった。ビーム径はレンズ①②により拡大され③により集光され、焦点において $\Phi 30 \mu\text{m}$ となった。アッテネーターは Altechna 社製の WattPilot であった。減衰範囲は 0.5% ~ 95%で、この範囲を 3 秒以内で制御可能である。このモジュールの出口で得られる最大のパワーは 190mW であった。

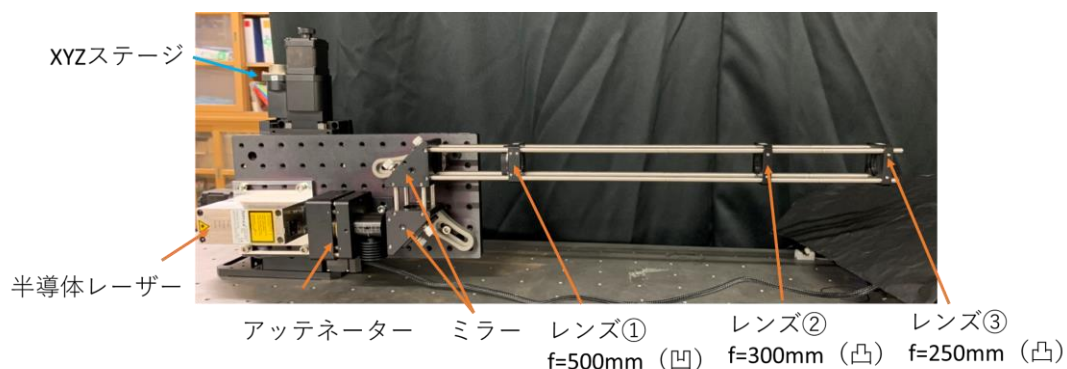


図 3-9 XYZ ステージ搭載集光モジュール。半導体レーザーから生成されたレーザー光をアッテネーターにより適宜減衰させ、2枚のミラーを介してレンズにて集光させる。

3.7 電源及び制御系

NEA チャンバーにおける光電流の測定に使用した電源はノアコーポレーション社製の NOA-5K1NOZ であった。電圧と電流の最大出力はそれぞれ 5 kV と 1 mA で、リップルノイズは 0.003% である。電子銃チャンバーで電子ビームの生成に使用した電源はマクセレック社製の AM α -30K20N であった。電圧と電流の最大出力はそれぞれ 30 kV と 20 mA でリップルノイズは 0.1% 以下である。ホルダー内蔵のヒーター制御に使用した電源は松定プレジジョン社製の PK20-20 であった。電圧と電流の最大出力はそれぞれ 20 V と 20 A である。Cs 温度の制御にも同じ電源を使用した。

光電流測定用のシャント抵抗における電圧効果の値や、実験で得られるアナログ信号の読み取りと記録には横河電機社製の MW100 (入力モジュール: MX110-UNV-M10) を用いた。使用した入力信号の測定レンジ最大は -6 V から 6 V で、分解能は 1 μ V ~ 1 mV である。データのサンプリング時間は 0.5 s とした。

3.8 NPeSII の超高真空作製方法

NEA 表面の活性化には 10^{-7} Pa 以下の超高真空が必要であり、NEA 表面の保持には 10^{-8} Pa 以下の真空度が望ましい。本研究ではスクロールポンプとターボ分子ポンプで粗排気をし

ながら NPeS II 全体をベーキングし(150°Cで1週間~2週間)、その後粗排気を止め IP と NEG ポンプ、TSP を用いて本排気を行った。

3.9 結論

本研究で使用した NPeS II は①ロードロックチャンバー、②NEA チャンバー、③電子銃チャンバーから成るチャンバーと④励起光源および⑤電源・制御機器で構成されている。ロードロックチャンバーでサンプル挿入を行い、NEA チャンバーで NEA 表面活性化及び NEA 表面の特性の測定を行い、電子銃チャンバーでは実用レベルの電子ビームの発生試験を行った。

参考文献

¹ P. D. Porta, C. Emili, and S. J. Hellier, Technical Report TR 18.

第4章 InGaN フォトカソードの膜厚最適化による高量子効率化

4.1 緒言

半導体フォトカソードを透過型で用いる場合、高い量子効率を得るための最適な InGaN 膜厚が存在する。これは、光吸収層の膜厚が厚いと光の吸収量を稼げるが、一方で照射面から電子の脱出面までの拡散過程で、再結合する電子が増えるからである。本章では、モデル計算と実験から量子効率の InGaN 膜厚依存性を調査し、背面照射において 5%以上の高い量子効率を有する InGaN フォトカソードの開発を目的とする。

4.2 量子効率の InGaN 膜厚依存の算出

4.2.1 計算モデルの構築

InGaN 膜厚の違いによる量子効率の変化を連続の方程式を用いて計算した。InGaN フォトカソードのポテンシャル構造を図 4-1 に示す。(1)価電子帯の電子の励起、(2)拡散、(3)再結合、(4)脱出の4つの要因による伝導帯の電子の時間変化を計算し、(1)に対する(4)の割合を量子効率とした。なお、本モデルは L. Krounik ら¹⁾が使用した連続の方程式を一部修正したものである。半導体内の電子の流れを図 4-1 に示すような1次元で考えた場合、 x における電子密度の変化は式(1-1)で表される。

$$\frac{\partial n(x)}{\partial t} = \frac{1}{e} \frac{dJ_n}{dx} + G_n - R_n \quad (4-1)$$

ここで、 x は背面照射の場合 GaN と InGaN の界面からの距離、正面照射の場合 InGaN と真空からの距離、 $n(x)$ は位置 x における伝導帯の電子密度、 t は時間、 e は電気素量、 J_n は電流密度、 G_n は単位長さあたりの電子-正孔対の生成レート、 R_n は単位長さあたりの電子の再結合レートを示す。

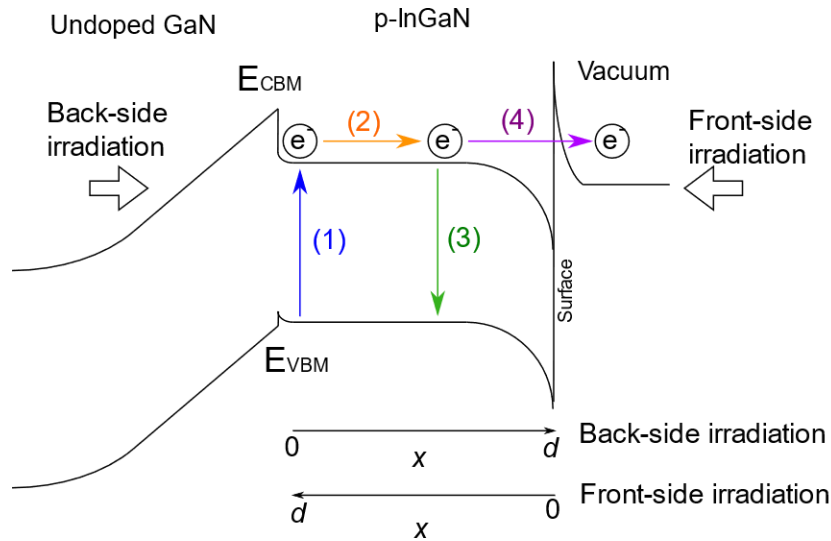


図 4-1 InGaN フォトカソードのポテンシャル図。本モデルでは(1)電子の光励起、(2)拡散、(3)再結合、(4)脱出の 4 つの過程を考慮する。E_{CBM} および E_{VBM} はそれぞれ伝導帯下端及び価電子帯上端。x は背面照射の場合、InGaN/GaN の界面からの距離、正面照射の場合、表面からの距離を示す。d は InGaN の膜厚を示す。

Mg のドーピングを行っていない GaN は、不純物である O がドナーの働きをし、キャリア濃度が 10^{17} cm^{-3} 以下の n 型半導体となる。そのため、GaN と InGaN 界面は図 4-1 に示すように p-n 接合となる。GaN/InGaN 界面におけるエネルギーバンドのオフセットが障壁となり InGaN 層で励起された電子は GaN 層に流れこまないの、ここでは背面への電子の流れは考慮しない。

電流密度 J_n は電子のドリフトと拡散からなるが、今回は拡散が支配的であるため、 J_n は式 (4-2) のように表わされる。

$$J_n = eD \frac{dn(x)}{dx} \quad (4-2)$$

ここで、 D は電子の拡散係数を表し、以下の式から求まる。

$$D = \frac{\mu_e k_B T}{e} \quad (4-3)$$

ここで、 μ_e は電子の移動度、 k_B はボルツマン定数、 T は温度を示す。

本計算では屈折率の差が大きい真空とサファイアおよび真空と InGaN の界面における励起光の反射を考慮する。この時、電子の生成レート G_n は背面照射と正面照射の場合でそれぞれ式(4-4)、(4-5)のように表わされる。

$$G_n = \alpha \Phi_0 (1 - R_b) \exp(-\alpha x) + \alpha \Phi_0 (1 - R_b) R_f \exp(-\alpha(2d - x)), \quad (4-4)$$

$$G_n = \alpha\Phi_0(1 - R_f)\exp(-\alpha x) + \alpha\Phi_0(1 - R_f)R_b\exp(-\alpha(2d - x)), \quad (4-5)$$

ここで、 α は InGaN の吸収係数、 Φ_0 は光子フラックス、 R_b は真空とサファイアの界面における反射係数、 R_f は真空と InGaN の界面における反射係数、 d は InGaN の膜厚を表す。光の入射及び反射の様子を示す模式図を図 4-2 に示す。

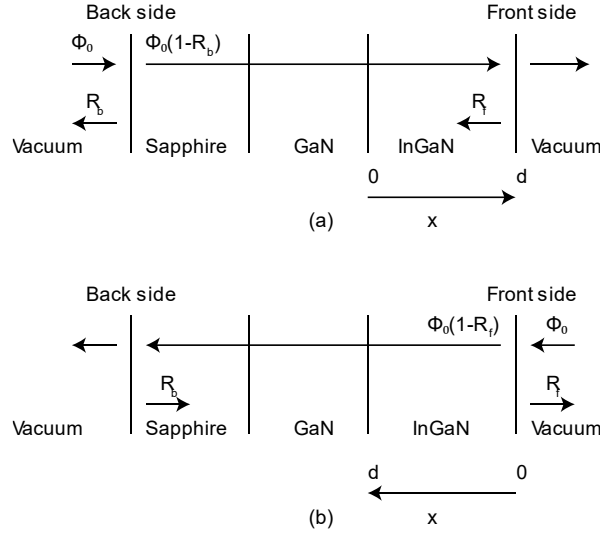


図 4-2 励起光の入射方向と反射を表す概略図。(a)は背面照射、(b)は正面照射である。 Φ_0 、 R_b 、 R_f はそれぞれ光子フラックス、真空とサファイアの界面における反射係数、真空と InGaN の界面における反射係数である。 x および d は図 4-1 と同様である。

電子の再結合レート R_n は式(4-6)で表される。

$$R_n = \frac{n(x)}{\tau} \quad (4-6)$$

ここで、 τ はキャリア寿命を表す。定常状態の場合、式(1-1)の左辺は 0 となり、式(4-2)-(4-6)を用いると、式(1-1)は背面照射と正面照射でそれぞれ式(4-7)、(4-8)のようにあらわされる。

$$\alpha\Phi_0(1 - R_b)\exp(-\alpha x) + \alpha\Phi_0(1 - R_b)R_f\exp(-\alpha(2d - x)) + D \frac{d^2n(x)}{dx^2} - \frac{n(x)}{\tau} = 0 \quad (4-7)$$

$$\alpha\Phi_0(1 - R_f)\exp(-\alpha x) + \alpha\Phi_0(1 - R_f)R_b\exp(-\alpha(2d - x)) + D \frac{d^2n(x)}{dx^2} - \frac{n(x)}{\tau} = 0 \quad (4-8)$$

背面照射の場合、GaN と InGaN の界面すなわち $x = 0$ 、と InGaN と表面の界面すなわち $x =$

d 、における境界条件はそれぞれ以下のように表される。

$$\left. \frac{dn(x)}{dx} \right|_{x=0} = 0 \quad (4-9)$$

$$\left. \frac{dn(x)}{dx} \right|_{x=d} = -Sn(d) \quad (4-10)$$

ここで、 S は電子の真空中への脱出速度を表す。背面照射時の量子効率 QE は以下の式になる。

$$QE = C \frac{Sn(d)}{\Phi_0} \quad (4-11)$$

C はその他の要因で光の吸収又は電子の脱出が抑制されることを考慮した係数で、1 以下の値を取る。正面照射時の境界条件は次のようになる。

$$\left. \frac{dn(x)}{dx} \right|_{x=0} = -Sn(0) \quad (4-12)$$

$$Q \left. \frac{dn(x)}{dx} \right|_{x=d} = 0 \quad (4-13)$$

そして正面照射時の量子効率 QE は以下の式で表される。

$$QE = C \frac{Sn(0)}{\Phi_0} \quad (4-14)$$

4.2.2 計算例

文献にあるパラメーターを参考に量子効率の膜厚依存曲線を算出した。反射率 R_f 及び R_b は、InGaN の屈折率 2.55 およびサファイアの屈折 1.79、真空の屈折率 1.00 を用いてフレネルの式から算出された^{2, 3}。吸収係数 α とキャリア寿命 τ はそれぞれ $1.0 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ と 100 ps を用いた^{2, 4}。移動度 μ_e は n 型 GaN の報告例⁵である $55 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1} \sim 1000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ の範囲とした。本計算で使用したパラメーターを表 4-1 に示す。

表 4-1 量子効率の計算に用いられたパラメーター。①はキャリア寿命が一定、②はキャリア寿命が膜厚に依存する場合の結果。

α [cm^{-1}]	μ_e [$\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$]	T [K]	τ [ps]	S [m/s]	R_f	R_b	C
1.0×10^5	①100 ②800	300	100	1.0×10^4	1.9×10^{-1}	8.0×10^{-2}	0.2

計算パラメーターのうち、 α 、 μ_e 、 τ のそれぞれを変化させて量子効率の InGaN 膜厚依存を計算した結果を図 4-3 に示す。図中の Back と Front はそれぞれ背面照射と正面照射を表す。(a)、(b)、(c) はそれぞれ吸収係数、移動度、キャリア寿命のみを変化させた結果である。

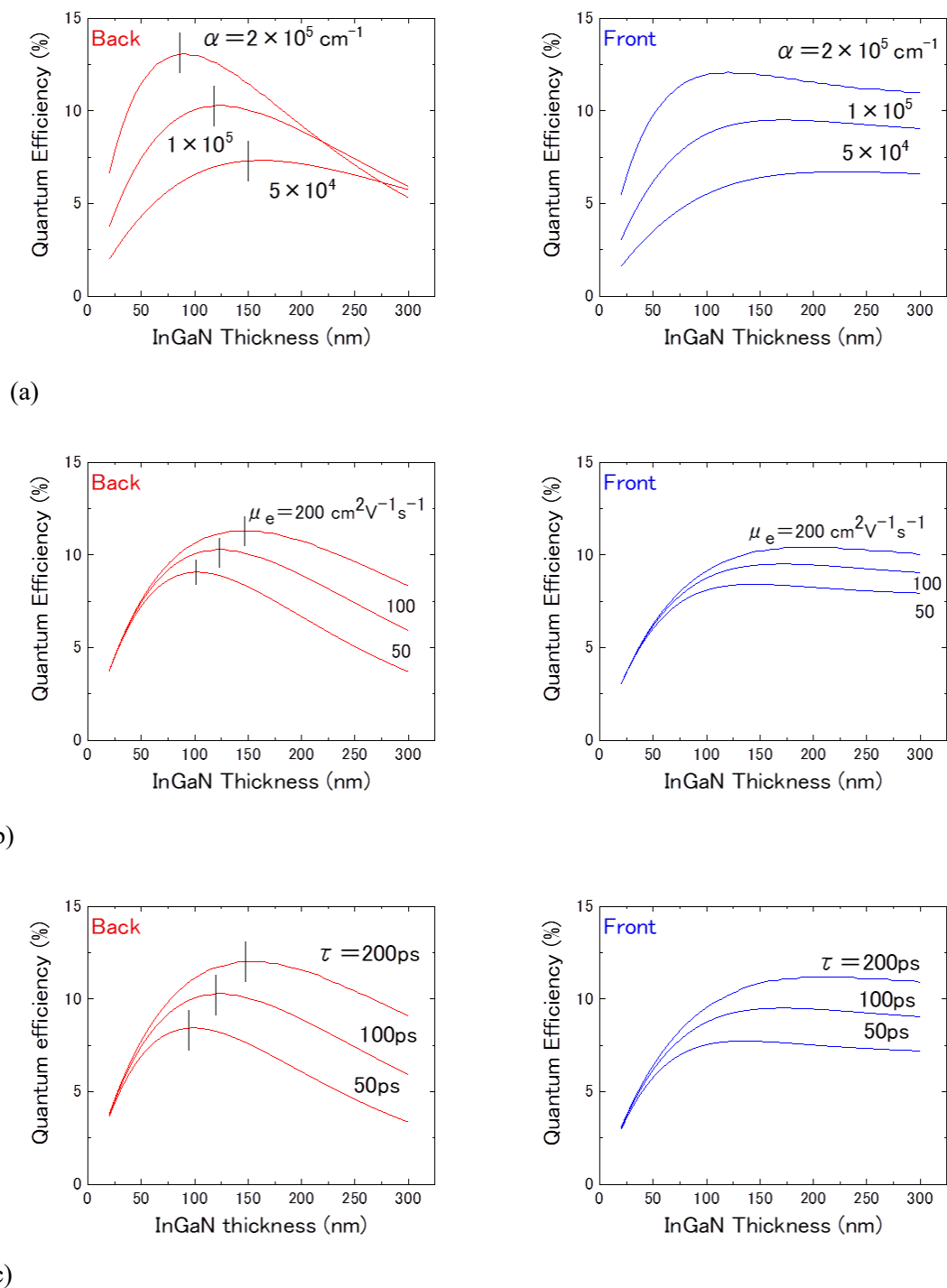


図 4-3 (a)吸収係数、(b)移動度、(c)キャリア寿命を変化させたときの量子効率の InGaN 膜厚依存計算結果。他のパラメーターは表 4-1 のものを用いた。

(a)に関して、背面照射の場合、吸収係数が大きくなると量子効率が最大となる膜厚は減少し、いずれの膜厚においても量子効率は増加した。正面照射の場合、いずれの場合も InGaN 膜厚の増加とともに量子効率は増加し、ある膜厚に達すると飽和した。背面照射同様、吸収係数が大きくなるといずれの膜厚においても量子効率は増加した。

(b)に関して、背面照射の場合、移動度とともに量子効率が最大となる InGaN 膜厚は増加し、いずれの膜厚においても量子効率は増加した。正面照射の場合、移動度とともに飽和膜厚が増加し、いずれの膜厚においても量子効率は増加した。

(c)に関して、背面照射の場合、キャリア寿命とともに量子効率が最大となる膜厚は増加し、いずれの膜厚においても量子効率は増加した。正面照射の場合も同様にキャリア寿命とともに飽和膜厚及び量子効率は増加した。

以上から、本モデルから算出された結果は定性的に考えられる現象と一致し、InGaN 膜厚の最適値はパラメーターに大きく依存するものの、50 nm ~ 200 nm の範囲にあると推定された。

4.3 InGaN サンプルの概要

膜厚 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm を有する4つの InGaN 半導体を使用した。サンプルは Photo electron Soul 社製であった。InGaN サンプルは有機金属気相成長(Metalorganic Vapor Phase Epitaxy: MOVPE)法により作製された。半導体の構造を図 4-4 に示す。励起光を透過させるために両面が研磨されたサファイア基板を用いた。その上にアンドープの GaN を 2.5 μm 成長させ、その上に Mg ドープの InGaN を成長させた。405 nm のレーザーを十分吸収できてかつバンドギャップが最大になるよう InGaN 組成比の目標を 12%とした。

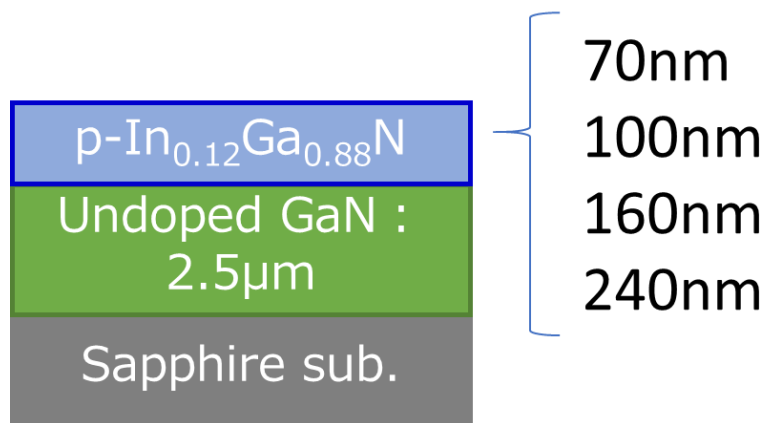


図 4-4 InGaN の構造。サンプルは Photo electron Soul 社製で、膜厚は 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm。

日立製の SU70 を用いて半導体の断面を観測し、用意したサンプルの InGaN 膜厚がそれぞれ 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm であることを確認した。このときの測定誤差は±10 nm であった。

p 型活性のため、窒素雰囲気においてサンプルを 700°C で 5 分間アニールした。サンプルの正孔濃度を評価するために、p 型活性後のサンプルに対し Hall 測定を行った。膜厚 240 nm の正孔濃度は $6.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ であった。他のサンプルは S/N が低く、正確な正孔濃度の測定ができなかった。これは Hall 測定時の電流が InGaN 層だけでなく GaN 層にも流れているためと考えられる。

4.4 吸収スペクトルの測定

4.4.1 吸収スペクトルの測定方法

光子エネルギー 3.06 eV (波長 405 nm) におけるサンプルの吸収係数を求めるために吸収スペクトルを測定した。また、吸収係数の立ち上がり位置からそれぞれの吸収端を求めた。吸収係数は以下の式で与えられる。

$$\alpha = -\frac{1}{x} \ln \frac{I}{I_0} = -\frac{1}{x} \ln \frac{I}{I_{in} - I_{re}} \quad (4-15)$$

ここで、 x はサンプルの膜厚、 I はサンプルを透過した光の強度で I_0 はサンプルへ侵入した光

の強度、 I_{in} はサンプルに照射された光の強度、 I_{re} はサンプルで反射された光の強度である。測定に使用した装置は島津製作所社製の UV2700 であった。測定系の概略図を図 4-5 に示す。UV2700 は光源としてハロゲンランプと重水素ランプを備え、測定波長範囲は 185 nm ~ 900 nm で、波長分解能は 0.1 nm である。本実験では波長 350 nm ~ 500 nm の範囲で透過と反射の波長依存を測定し、式(4-15)を用いて吸収係数を算出した。波長ステップは 1 nm である。測定したサンプルは 70 nm、100 nm、160nm、240 nm で、再現性を確認するために正面及び背面から光を入射したそれぞれの場合で測定を行った。

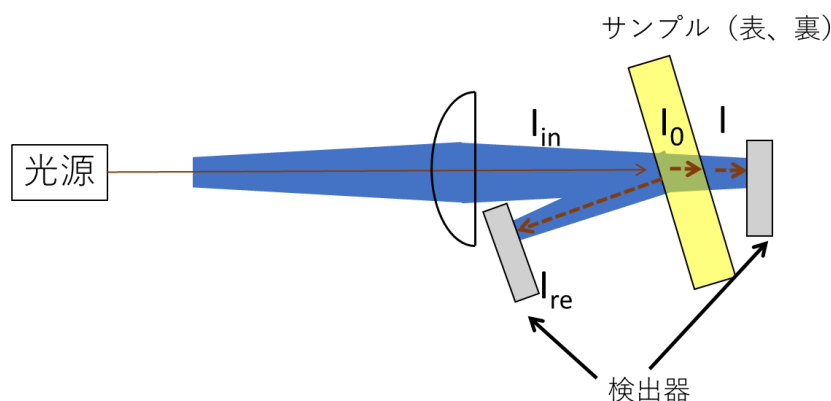


図 4-5 UV2700 を用いた吸収スペクトル測定の概略図。 I はサンプルを透過した光の強度で I_0 はサンプルへ侵入した光の強度、 I_{in} はサンプルに照射された光の強度、 I_{re} はサンプルで反射された光の強度を表す。

4.4.2 吸収スペクトルの測定結果

吸収係数の波長依存性を図 4-6 に示す。光子エネルギーの減少に伴い、2.95 eV 近傍と 3.40 eV 近傍の 2 か所に立ち上がりが見測された。前者は InGaN、後者は GaN による吸収であると考えられる。光子エネルギー 3.06 eV (波長 405 nm) における吸収係数と吸収端を表 4-2 に示す。ここで、各サンプルの吸収係数が 10^4 cm^{-1} となる光子エネルギーを吸収端とした。光子エネルギー 3.06 eV (波長 405 nm) における吸収係数の平均値は $0.88 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ で値のばらつきは 13%であった。この値は文献値²の $1 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ とおおむね一致した。膜厚が 160nm のサンプルのみ他のものより吸収係数が 8 割程度小さかった。吸収端の平均値は 2.87 eV でばらつきは 7%であった。

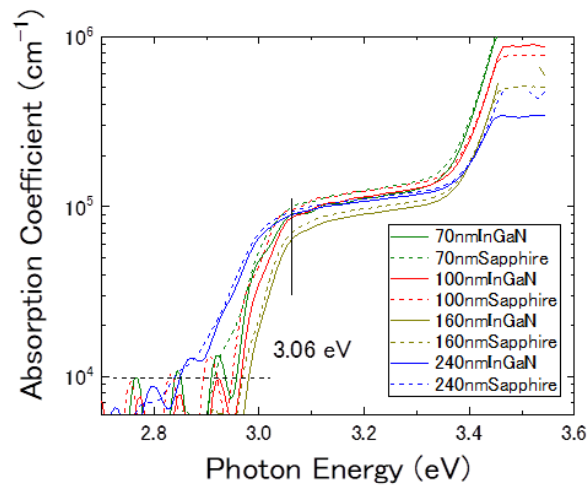


図 4-6 吸収係数の波長依存性。使用したサンプルの InGaN 膜厚は、70 nm、100 nm、160nm、240 nm。実線が InGaN から光を照射した場合、破線がサファイア基板から光を照射した場合を示す。

表 4-2 波長 405nm における吸収係数の測定結果。

InGaN 膜厚[nm]	光照射方向	吸収係数@3.06eV [$\times 10^5 \text{ cm}^{-1}$]	吸収端[eV]
70	InGaN	0.90	2.96
	サファイア	1.0	2.91
100	InGaN	0.87	2.97
	サファイア	0.96	2.95
160	InGaN	0.65	2.98
	サファイア	0.70	2.97
240	InGaN	0.90	2.85
	サファイア	0.93	2.83

4.5 サンプルの加熱洗浄と NEA 表面の活性化

4.5.1 サンプルの加熱洗浄

Cs と O₂ の供給により NEA 表面を形成させるために、超高真空中でサンプルを加熱し、表

面の清浄化を行った。サンプルの加熱機構と温度の測定方法は第 3 章で述べた通りである。サンプルを加熱洗浄した時の加熱パワー、温度、真空度の時間変化を図 4-7 に示す。放射温度計により温度を測定した。1 時間で 650°C まで昇温し、1 時間保持した後、30 分程度かけて降温した。650°C におけるヒーターの電流と電圧、パワーはそれぞれ、5.3 A、7.2 V、38 W であった。放射温度計の測定波長の切り替えにより、600°C 周辺で温度の変化が不連続になった。本加熱洗浄における目標加熱温度 1 時間保持の際に、Cs ディスペンサーの脱ガス目的で Cs ディスペンサーの通電加熱を 2 回行った。本加熱洗浄の際の真空度変化の結果から、いずれのサンプルも 200°C 付近を境に脱ガスが発生し、650°C 以上では真空度の変化がほとんどなくなった。これより、本加熱洗浄でサンプル表面の不純物の除去が十分されたと考えられる。全てのサンプルに対し同様の加熱洗浄を行い、NEA 表面の活性化を行った。

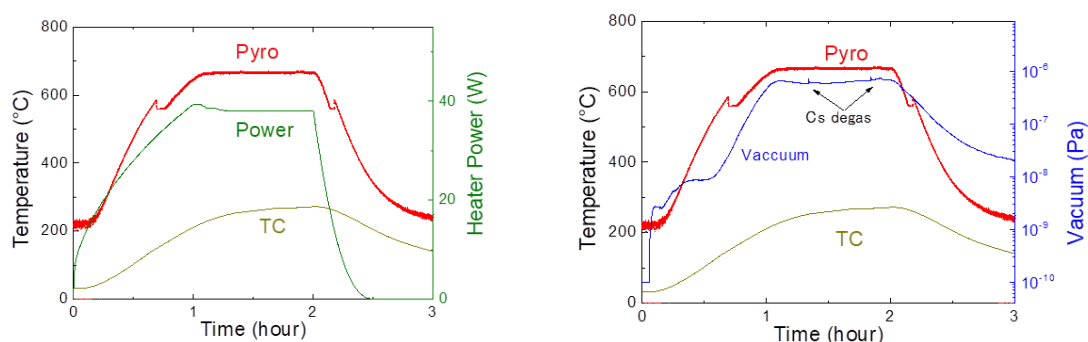


図 4-7 加熱洗浄における加熱パワー、温度、真空度の時間変化。放射温度計 (Pyro) と図 3-4 に示される熱電対 (TC) を用いて温度を測定した。Pyro の不連続な点は測定波長の切り換え点である。

4.5.2 NEA 表面の活性化

加熱洗浄後、室温にて、NEA 表面の活性化を行った。ホルダーに電圧を印加し、励起光をサンプル正面に照射しながら Cs と O₂ を交互に供給し NEA 表面の活性化を行った。1.3.2 節で示した方法で NEA 表面の活性を行った。

膜厚 100nm の InGaN を用いた NEA 活性時の量子効率と真空度を図 4-8 に示す。活性化の始めに Cs ディスペンサーに電流を数秒間流すことでディスペンサーのデガスをを行った。その後 Cs の供給により量子効率は 7.2% まで上昇し、酸素と Cs を交互に供給することで、量子

効率は 9.8%まで上昇した。他のサンプルに関しても、Cs と酸素の供給量、並びにそれに伴う量子効率の変化は図 4-8 と同様であった。

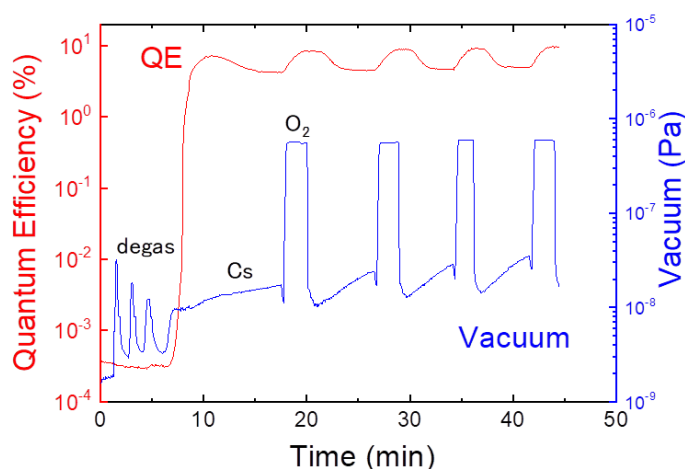


図 4-8 NEA 活性時の量子効率と真空度の時間変化。測定に使用したサンプルは膜厚 100 nm の InGaN である。

4.6 量子効率の励起エネルギー依存性

上記の吸収測定により、いずれのサンプルも励起波長が 405 nm となる光子エネルギー 3.06 eV において $0.9 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ 程度の高い吸収係数を有し、吸収端と励起エネルギー 3.06 eV 差が 0.2 eV 以下と小さい値になることが確認された。

半導体フォトカソードにおいて、正面照射に限り、量子効率 QE は 3 ステップモデルから、吸収係数 α 、電子の拡散長 L 、脱出確率 P を用いて以下の式で表すことができる⁴⁰。

$$\begin{aligned}
 \text{QE} &= \int_0^d \alpha e^{-(\alpha+1/L)x} P dx \\
 &= \frac{PL\alpha}{L\alpha + 1} \left[1 - \alpha e^{-(\alpha+1/L)d} \right]
 \end{aligned}
 \tag{4-16}$$

上記の式から、量子効率は吸収係数に依存することが分かる。そのため量子効率の励起エネルギー依存性を測定し、その結果と吸収係数と照らし合わせることで、実用に近い光電子に

よって励起エネルギー3.06 eV における量子効率や光の吸収端を見積もることができる。

4.6.1 量子効率の励起エネルギー依存性測定方法

第3章で述べた Xe ランプモジュールを用いて、波長範囲を 370 nm ~ 700 nm、波長ステップを 5 nm とし、光電流と入射光のパワーを測定し、量子効率を計算した。光の照射方向は正面で、測定は NEA チャンバーで行われた。この時のサンプルへの印加電圧は-100 V であった。

4.6.2 量子効率の励起エネルギー依存性測定結果および考察

図 4-9 にそれぞれの InGaN 膜厚における量子効率の励起エネルギー依存性の測定結果と式(4-16)を用いてフィッティングを行った量子効率の計算結果を示す。ここで、 α は図 4-6 のうち InGaN 側からの照射の結果を用い、他のパラメーターは表 4-3 のものを用いた。膜厚が 70 nm、100 nm、160 nm のサンプルは励起エネルギーが 2.95 eV から 3.35eV の範囲で測定結果とフィッティング結果が一致した。一方、膜厚が 240 nm のサンプルでは測定結果の立ち上がり位置がフィッティング結果より 0.14 eV 小さかった。本実験のみではこの原因を断定できないが、例えば膜厚が 240 nm と厚くなると、格子の緩和が進み、再表面のみ In の取り込み量が増えることが予想される。そのため、表面の吸収を反映する量子効率の励起エネルギー依存性とバルクの吸収を反映する吸収スペクトルでこのような差が生じたと考えられる。以上より、膜厚が 70 nm、100 nm、160 nm のサンプルにおいては光の吸収端が 2.96 eV であることが量子効率の励起エネルギー依存性から見積もられ、240 nm のサンプルにおいては吸収係数スペクトルと異なり、光の吸収端が 2.76 eV となることを見積もられた。

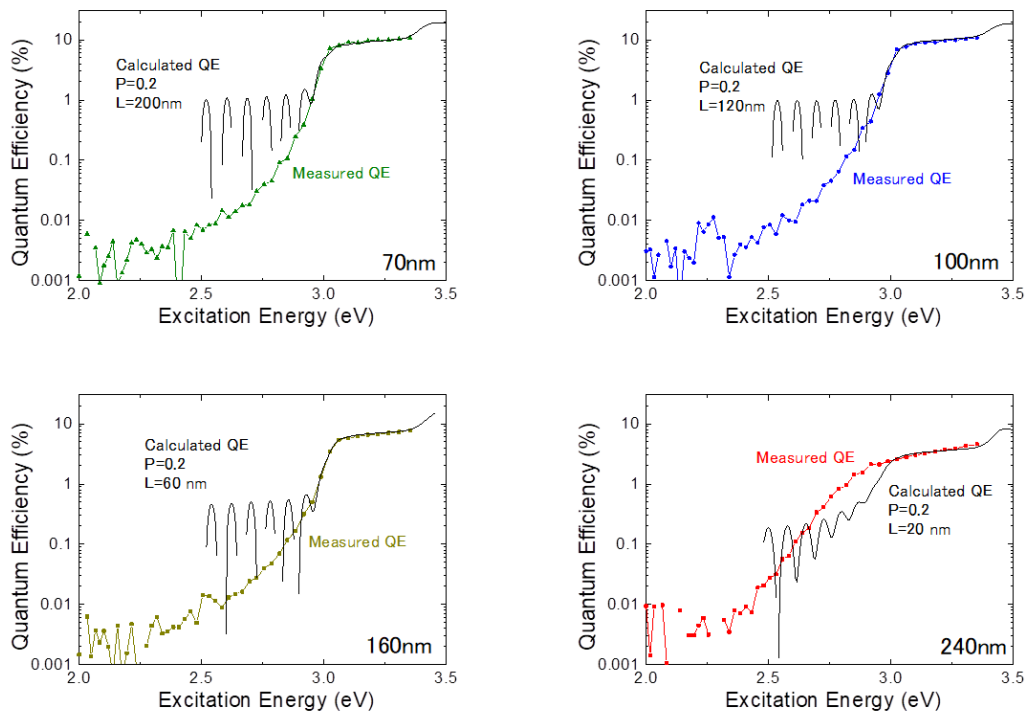


図 4-9 膜厚の異なる InGaN を用いた量子効率の励起エネルギー依存性の測定結果及び式(4-16)を用いて吸収係数から算出された量子効率の励起エネルギー依存性

表 4-3 量子効率の励起エネルギー依存性のフィッティングパラメーター

d [nm]	P	L [nm]
70	0.2	200
100		120
160		60
240		20

4.7 量子効率の励起パワー密度依存性

光励起された伝導電子が半導体表面の準位にトラップされると、表面光起電力 (Surface Photo Voltage : SPV) が生じる。SPV により電子の真空への脱出確率が減少し、量子効率が抑制されてしまう⁶。この現象の詳細は次の章にて述べる。本章での計算モデルにはこの現象を加味していないため、SPV の影響が小さい条件で量子効率を測定する必要がある。

4.7.1 量子効率の励起パワー密度依存性の測定方法

加熱洗浄及び NEA 活性を終えた後、サンプルを電子銃チャンバーへ搬送した。レーザーをサンプルの正面及び背面から照射して、量子効率を測定した。光源に第3章で述べたXYZステージ搭載集光モジュールを用いて、レーザー径 $\Phi 300 \mu\text{m}$ とし、レーザーパワーを 100 nW から 100 μW に変化させて量子効率を測定した。サンプルへの印加電圧は-100 V であった。

4.7.2 量子効率の励起パワー密度依存性の測定結果

量子効率の励起パワー密度依存性を図 4-10 に示す。塗りつぶされたシンボルは背面照射、白抜きのシンボルは正面照射の結果を表す。全てのサンプルで励起パワー密度が 100 倍になることで、量子効率は 1/4 程度に減少した。膜厚が 70 nm の場合、いずれのパワー密度においても背面照射の方が高い量子効率を示した。膜厚が 100 nm の場合、背面照射と正面照射で同様の特性を示した。一方で膜厚が 160 nm 及び 240 nm の場合、いずれのパワー密度においても正面照射の方が高い量子効率を示した。

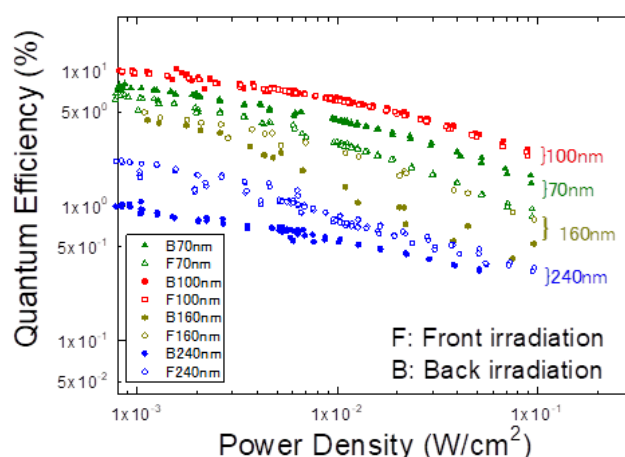


図 4-10 InGaN フォトカソードの量子効率の励起パワー密度依存性。InGaN 膜厚は 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm。波長 405 nm、直径 300 μm の励起光をサンプルの表面及び背面から照射した。

図 4-10 のように、励起パワー密度の上昇に伴って量子効率が減少する理由は、SPV の影響であると考えられる。いずれのサンプルでもパワー密度が 100 倍に増加すると量子効率が

1/4 まで減少したため、SPV の効果は InGaN 膜厚に依存しないと推察される。また、背面照射及び正面照射において、量子効率の減少量に差が見られなかった。そのため、照射方向による SPV 効果の影響は少ないと考えられる。

4.8 量子効率の InGaN 膜厚依存性

4.8.1 量子効率の InGaN 膜厚依存性測定結果

図 4-10 における励起パワー密度が $1 \times 10^{-3} \text{ W/cm}^2$ の時の量子効率の InGaN 膜厚依存性を図 4-11 に示す。背面照射では膜厚が 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm の量子効率はそれぞれ 7.5%、9.8%、4.0%、0.9%であった。正面照射における各膜厚の量子効率はそれぞれ 6.3%、9.5%、4.8%、2.1%であった。また、膜厚が 70 nm 及び 100 nm では背面照射の方が高い量子効率を示し、160 nm 及び 240 nm では正面照射の方が高い量子効率となった。

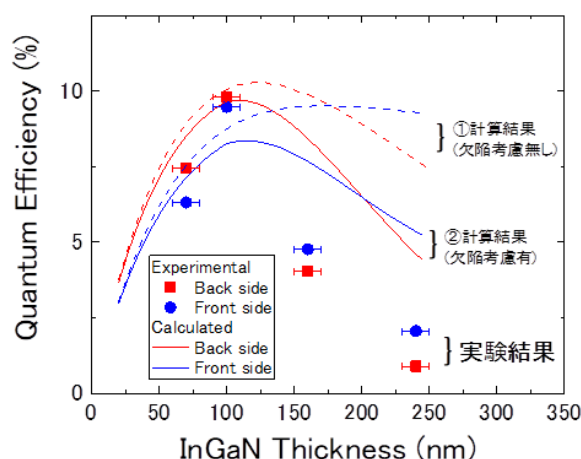


図 4-11 量子効率の InGaN 膜厚依存性。図 4-10 における励起パワー密度が $1 \times 10^{-3} \text{ W/cm}^2$ の時の量子効率。四角と丸はそれぞれ背面照射と正面照射の実験結果を示す。赤色と青色の曲線はそれぞれ背面照射と正面照射の計算結果を示す。①はキャリア寿命が一定、②はキャリア寿命が膜厚に依存する場合の結果。

4.8.2 量子効率の InGaN 膜厚依存性におけるモデル計算と実験結果の比較

式(4-11)、(4-14)を用い計算した量子効率曲線①を図 4-11 に背面照射を赤色、正面照射を青色としてプロットした。本計算で使用したパラメーターは表 4-1 の通りである。まずは計算結果について述べる。背面照射の場合、InGaN 膜厚の増加に伴い量子効率も上昇し、膜厚が 120 nm を超えると量子効率は減少した。正面照射の場合、InGaN 膜厚の増加に伴い量子効率も上昇し、膜厚が 180 nm を超えると量子効率は緩やかに減少した。また、膜厚が 180 nm よりも薄い領域では背面照射の方が量子効率は高く、150 nm よりも厚い領域では正面照射の方が高い量子効率を示した。

背面照射において、これらの傾向は実験結果と一致した。しかしながら、InGaN 膜厚が 100 nm の時の計算値と実験値がおおよそ一致しているのに対し、240 nm の時の計算値は実験値の 8.5 倍と大きい。正面照射に関して、実験結果では InGaN 膜厚の増加に対し量子効率が減少するのに対し、計算モデルではどのようなパラメーターを使用してもそのような結果は得られない。そこで、膜厚増加によって表 4-1 に示されるパラメーターが変化している可能性が示唆される。

InGaN 膜厚が増加すると格子緩和が発生し、GaN / InGaN 界面における格子不整転位が生じる。そのため InGaN 膜厚が臨界膜厚を超えると貫通転位が増え始め、その後膜厚とともに貫通転位が増加することが報告されている⁷。InN 組成比が 12%と本実験に近い文献⁷で報告されている InGaN 膜厚に対する貫通転位密度の変化を図 4-12 にプロットした。臨界膜厚をこえる 100 nm 以上の膜厚において二次関数を用いてフィッティングを施し、転位密度 N_D と InGaN 膜厚 d の関係を表す以下の式で仮定した。

$$N_D = 5.3 \times 10^{11} - 3 \times 10^{18}d + 6.7 \times 10^{25}d^2 \quad (4-17)$$

InGaN 膜厚中に転位が存在すると、キャリアは非発光再結合によりエネルギーが失われる。発光及び非発光を考慮したキャリア寿命は次の式で表される。⁸

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{Rad}} + \frac{1}{\tau_{nonR}} \quad (4-18)$$

ここで τ_{Rad} と τ_{nonR} はそれぞれキャリアの発光再結合、非発光再結合における寿命を表す。また、欠陥準位における再結合の寿命は以下の式で表される。⁹

$$\frac{1}{\tau_{nonR}} = \frac{\pi^3 DN_D}{4} \quad (4-19)$$

ここで、 D は式(4-3)で示した拡散係数である。

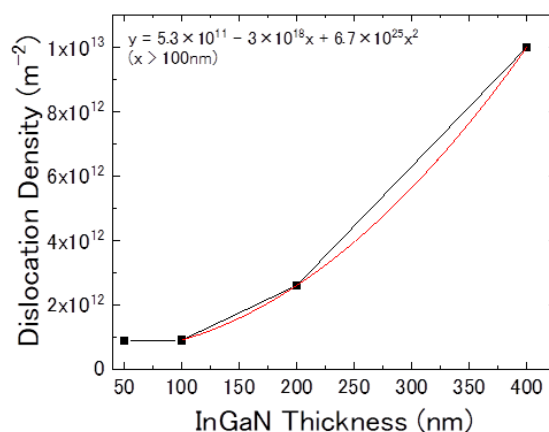


図 4-12 貫通転位の転位密度の InGaN 膜厚依存性。文献値⁷に対し、膜厚 100nm 以上の領域で二次関数によるフィッティングを行った。

式(4-17)-(4-19)を考慮して計算された量子効率の膜厚依存性を図 4-11 の②に示す。このとき、計算結果が実験結果に近づくように $\mu_e = 800 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ とし、 $\tau_{Rad} = 100 \text{ ps}$ とした。膜厚に伴う欠陥の増加をモデルに考慮することで、実験値と計算値が近づいた。②の場合正面照射においても最適な膜厚が存在するようになり、その膜厚は実験と計算結果で一致した。また、膜厚が 240 nm における量子効率の計算値は実験値に対し、8.5 倍から 4.9 倍まで減少した。

4.8.3 量子効率の InGaN 膜厚依存性に関する考察

膜厚 70 nm、100 nm、160 nm、240 nm を有する InGaN フォトカソードのうち、背面照射において最も高い量子効率を示す膜厚は 100 nm であることが実験的に明らかにされた。これにより、背面照射において 9.8%と高い量子効率が達成された。InGaN 膜厚の増加に伴う欠陥の増加を加味した連続の方程式によって実験結果もおおむね説明がつくことが示唆された。一方、本モデルは、サンプルごとのパラメーターのバラつきが考慮されていない。InGaN を成長させる上で、アクセプター濃度や不純物濃度、欠陥には必ずバラつきが生じる。これらが原因で実験結果と計算結果に差が生じたと考えられる。例えば膜厚 160 nm のサンプルの吸収係数は他のサンプルの 3/4 程度であった。この吸収係数を用いると、膜厚 160 nm における量子効率

の計算値は図 4-11②の値の 8/10 程度となり、実験値に近づく。そのためパラメーターを全て評価することができれば、実験値とモデル計算値の差を抑えられることが言える。また、本モデルは GaN/InGaN における電子の再結合を考慮していない。ここでの再結合をモデルに取り入れることで、背面照射における量子効率が減り、計算結果が実験値に近づくことが予想される。

4.9 結論

InGaN フォトカソードにおける量子効率の InGaN 膜厚依存性を調査することで次のことが明らかになった。正面および背面照射のどちらの場合でも、InGaN の最適膜厚は 50 nm ~ 160 nm の範囲にある。正面照射においても InGaN 膜厚が 160 nm より厚くなると量子効率が減少する。InGaN 膜厚が 160 nm 以下では背面照射の方が高い量子効率を示し、それ以上では正面照射の方が高い量子効率を示す。InGaN 膜厚が 160 nm 以下では量子効率の励起エネルギー依存性における吸収端と吸収係数スペクトルの吸収端が一致するが、それ以上になると、量子効率の吸収端が低エネルギー側へシフトする。励起パワー密度が $1 \times 10^{-3} \text{ W/cm}^2 \sim 1 \times 10^{-1} \text{ W/cm}^2$ の範囲では量子効率の励起パワー密度依存性に関して膜厚による違いは見られない。

今後、背面照射型 InGaN フォトカソードを SEM や TEM に応用する際に、本研究で明らかになった最適膜厚 50 nm ~ 160 nm を採用することにより、より低い励起パワーで高輝度な電子ビームの生成が期待される。

参考文献

- ¹ L. Kronik and Y. Shapira, Surf. Sci. Rep. **37**, 1 (1999).
- ² S. A. Kazazis, E. Papadomanolaki, and E. Iliopoulos, IEEE J. Photovolt. **8**, 601 (2013).
- ³ I. H. Malitson, F. V. Murphy, and W. S. Rodney, J. Opt. Soc. Am. **48**, 72 (1958).
- ⁴ M. Smith, G. D. Chen, J. Y. Lin, H. X. Jiang, M. A. Khan, and Q. Chen, Appl. Phys. Lett. **69**, 2837 (1996).
- ⁵ T. T. Mnatsakanov, M. E. Levinshtein, L. I. Pomortseva, S. N. Yurkov, G. S. Simin, and M. A. Khan, Solid State Electron. **47**, 111 (2003).
- ⁶ A. Herrera-Gomez, G. Vergara, and W. E. Spicer, J. Appl. Phys. **79**, 7318 (1996).
- ⁷ N. Faleev, B. Jampana, O. Jani, H. Yu, R. Opila, I. Ferguson, and C. Honsberg, Appl. Phys.

Lett. **95**, 051915 (2009).

⁸ K. Jarasiunas, T. Malinauskas, S. Nargelas, V. Gudelis, J. V. Vaitkus, V. Soukhoveev, and A. Usikov, *Phys. Status Solidi B* **247**, 1703 (2010).

⁹ R. K. Ahrenkiel, M. M. Al-Jassim, B. Keyes, D. Dunlavy, K. M. Jones, S. M. Vernon, and T. M. Dixon, *J. Electrochem. Soc.*, **137**, 996 (1990).

第5章 強励起パワー密度による高輝度化

5.1 緒言

第1章で述べた通り、半導体フォトカソードを SEM に応用した際に、既存の10倍のプローブ電流を得るためには、エミッションサイズが $1\ \mu\text{m}$ で $20\ \mu\text{A}$ のエミッション電流が必要である。

フォトカソードの励起光源に使うレーザーの候補には、半導体レーザー、ファイバーレーザー、YAG(イットリウム・アルミニウム・ガーネット)レーザーなどが挙げられる。この中で、小型で安価、シングルモード、連続発振、取り扱いが容易といった特徴を持つ半導体レーザーが産業応用に向いている。波長 $405\ \text{nm}$ でシングルモードを有する半導体レーザーのうち、製品化されているレーザーの最大出力は $300\ \text{mW}$ 程度である。そのため、 $\sim 300\ \text{mW}$ の範囲でエミッションサイズ $1\ \mu\text{m}$ かつエミッション電流 $20\ \mu\text{A}$ を生成する必要がある。つまり、上記の目標を達成するためにはパワー密度 $3.8 \times 10^7\ \text{W/cm}^2$ で 0.02% 以上の量子効率が必要となる

NEA 半導体フォトカソードでは、大電流密度の電子ビームを発生させる場合、発生する光電流が照射レーザーの強度に比例して増加せず、飽和してしまう現象がある。このような現象には、電子-電子のクーロン相互作用による制限効果(空間電荷制限効果)とフォトカソード表面のポテンシャル構造の変化による制限効果(表面電荷制限効果: Surface Charge Limit: SCL)がある。SCLの原因はSPVによるものであるとされている。第4章で述べた通り、光励起された伝導電子が半導体表面の準位にトラップされると、SPVが生じる。SPVにより電子の真空への脱出確率が減少し、量子効率が抑制されてしまう¹⁾。

これまではGaAsフォトカソードのSPVに関する研究がされており、X線光電子分光を用いてSPVの定量的な評価も行われている。p-GaAsを用いたNEA半導体フォトカソードでは、SPVによるSCLによって以下のような現象が報告されている。

- ① NEA 半導体フォトカソードに照射するレーザーの強度を増加させても、発生する電流量は線形に増加せず飽和してしまう(図 5-1(a)²⁾。
- ② 二つの連続したパルスレーザーを照射すると、発生するパルス電子ビームのうち後段がパルス当たりの電荷量が小さく、かつ時間構造が非対称になる(図 5-2³⁾。
- ③ 矩形のパルスレーザーを照射すると、発生するパルス電子ビームの時間空間構造は

先頭値から減少していく形になる(図 5-1(b)²)。

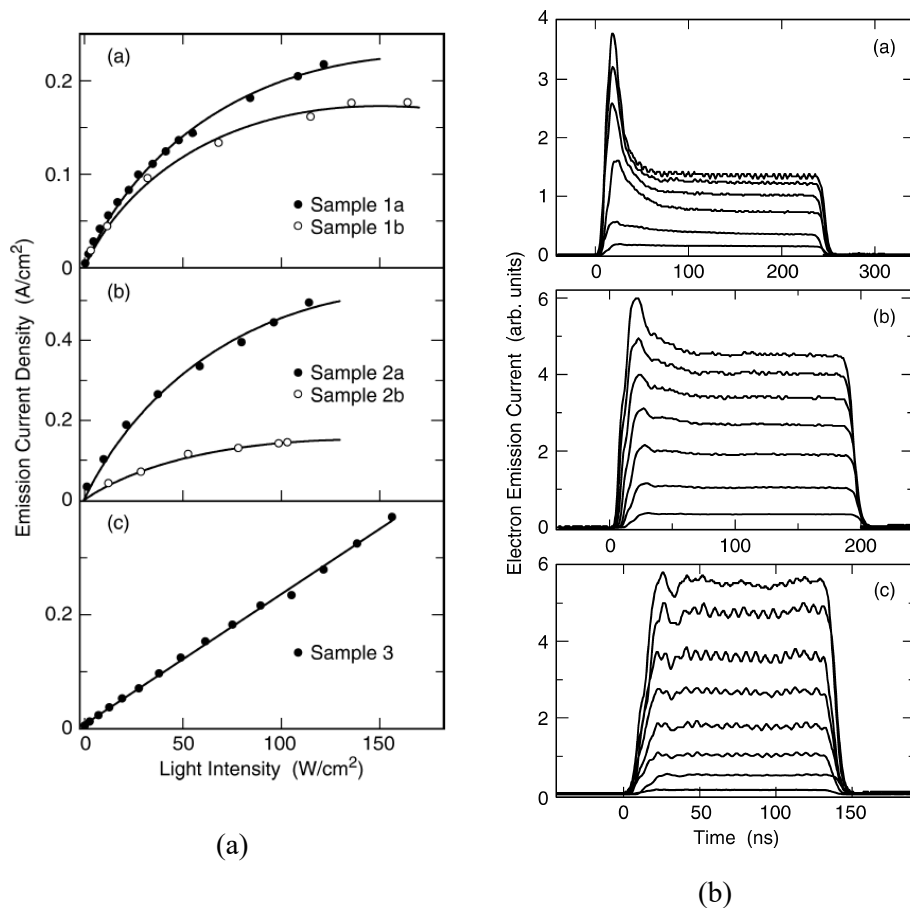


図 5-1 (a)GaAs フォトカソードを用いたエミッション電流の励起パワー依存性と(b)パルス電子ビームの時間プロファイル。ホール濃度を増加させることで SPV 効果の抑制に成功している²。

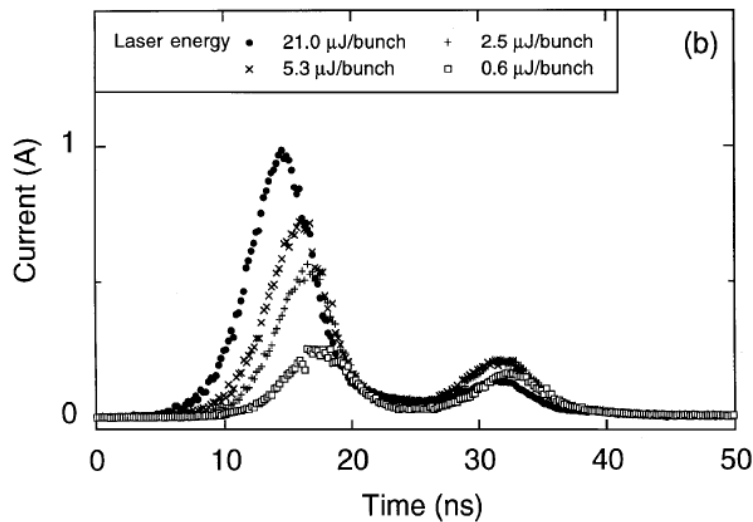


図 5-2 GaAs フォトカソードを用いたダブルバンチ電子ビームの時間プロファイル³

①と②の現象は、高エネルギー加速器が要求するようなアンペアオーダーの高いピーク電流を持つパルス電子ビームが必要な場面で問題になる。これらの問題に対して Togawa ら³は、ホール濃度の高い AlGaAs-GaAs の超格子を用いることで同じ電荷量で同じ時間構造を持つ二つの連続したパルス電子ビームの発生に成功している。③の現象は矩形のパルス電子ビームが必要な場面で問題になる。この問題に対して Mulhollan ら²はホール濃度の高い GaAs を用いることで、矩形のパルス電子ビームの発生に成功している。ここでホール濃度の増加により SPV が抑制された理由は次の通りとされている。ホール濃度とともに表面のバンドベンディング領域が狭くなり、バンドベンディングの障壁をトンネルして表面へ到達するホールが増加する。すると、トラップされた電子と表面に到達するホールの再結合が増え SPV が緩和する。

InGaN に関しては、パルス電子ビームの時間プロファイルを観測することで、SPV が原因と考えられる量子効率の減少が確認されている⁴。さらに、パルス間隔を変化させて電流値を測定することで、SPV の緩和に要する時間は 0.1s であることが明らかになっている。

Reznikov らは、モデルを用いて SPV による量子効率の変化を計算した⁵。図 5-3 に GaAs を用いた場合の量子効率の励起光子フラックス依存を示す。この報告によると、光子フラックスを上昇させていくと、ある閾値から急激に量子効率が減少し、その後減少は緩やかになり、最終的に量子効率は 0 に近づく。また、真空準位が低くなると量子効率が全体的に低くなり、量子効率が急落する閾値も低くなることがモデルから算出されている。

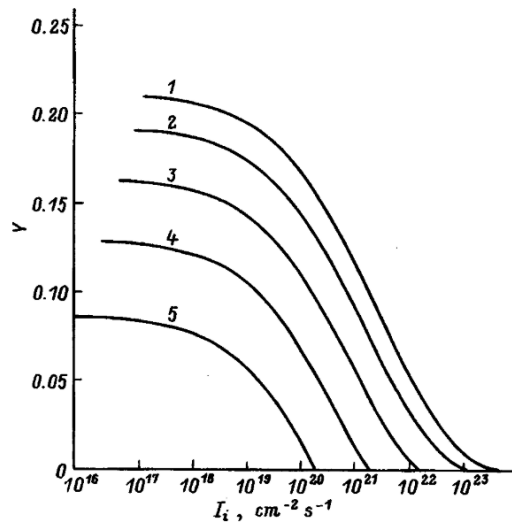


図 5-3 GaAs フォトカソードの物性パラメーターを用いて算出された量子効率(Y)の励起フォトンフラックス(I_i)依存性⁵。図中の数字は真空準位違いによる結果を示している。

InGaN においても量子効率の励起パワー密度依存性は図 5-3 と同様の特性を示すことが予想される。波長が 405 nm の場合、パワー密度 $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ をフォトンフラックスに変換すると $7.7 \times 10^{25} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ となるが、この値は図 5-3 に示す計算結果の範囲外となる。

NPeSII は半導体フォトカソードの背面近傍にレンズを設置できる構造をとっていないため、高励起パワー密度における量子効率を調査するためには、図 5-3 のような量子効率のパワー密度依存性を測定し、そこから外挿して量子効率を見積もる必要がある。第 4 章で量子効率の励起エネルギー依存性が確認されたが、 $\sim 10^7 \text{ W/cm}^2$ の高い励起パワー密度における量子効率を見積もるには、さらに強励起領域の量子効率を観測しなければならない。本研究の目的は、量子効率の励起パワー密度依存を調査することである。励起パワーが $\sim 300 \text{ mW}$ の範囲でショットキー陰極の 10 倍以上プローブ電流を実現する $20 \mu\text{A}$ のエミッション電流を発生させるために、励起パワー密度が $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ の時の量子効率が 0.02% 以上となることを目標とする。

5.2 SPV による量子効率の減少

SPV による量子効率減少のモデルを検討する。本モデルは Mulhollan ら²と Reznikov ら⁵

の報告をもとに構築された。

SPV と量子効率の関係を求める。半導体表面には、結合に寄与していない原子のダングリングボンドや不純物、欠陥などに起因する表面ならでの準位が存在する。p 型半導体の場合、それらの準位はドナーライクな働きをし、正に帯電する。これにより半導体表面では空乏層が生じ、その領域は負に帯電し、バンドが下方へベンディングされる。バンドベンディング量 E_B と表面電荷 eN_s の関係は次の通りである⁶。

$$E_B = \frac{e^2 N_s^2}{2\epsilon N_{dop}} \quad (5-1)$$

ここで、 e は素電荷、 N_s は表面における正に帯電した再結合中心密度、 ϵ は半導体の誘電率、 N_{dop} はドープ濃度を示す。SPV の模式図を図 5-4 に示す。半導体にバンドギャップ相当の波長を有するレーザーが照射されると、表面まで拡散した励起電子のエネルギーがバンドベンディング領域で緩和される。そのうちの一部が表面の準位に捕獲されて、正電荷が打ち消される。正に帯電した再結合中心密度の変化を以下の式で表す。

$$N_s = N_s^0 (1 - f) \quad (5-2)$$

ここで、 N_s^0 は励起光を照射していない状態での正に帯電した再結合中心密度、 f は再結合中心密度の変化量を示す。トラップされる電子数とともに f が増加し、残りの再結合中心密度が減少する。再結合中心密度の変動によるバンドベンディングの変化、すなわち SPV は以下のようにあらわされる。

$$SPV = \frac{e(N_s^{02} - N_s^2)}{2\epsilon N_{dop}} = E_B^0 f(2 - f) \quad (5-3)$$

E_B^0 は光の照射がない状態のバンドベンディング量である。SPV による量子効率の変化は以下の式で表される。

$$QE = QE_0 \left(1 - a \frac{SPV}{\chi_{eff}} \right) \quad (5-4)$$

ここで、 QE_0 は SPV がいない状態の量子効率、 a は SPV に対する量子効率の変化率、 χ_{eff} はバルクの伝導帯下端と表面真空準位の差である。また、ガス吸着やイオンバックボンバードメントなどによる表面劣化を考慮した量子効率の式は以下の通りとなる。

$$QE = QE_0 \left(\frac{\chi_{eff}}{\chi_{eff}^0} \right)^2 \left(1 - a \frac{SPV}{\chi_{eff}} \right) \quad (5-5)$$

χ_{eff}^0 は劣化前の理想的な表面状態におけるバルクの伝導帯下端と表面真空準位の差である。ここでは、電子の真空への透過率が、表面劣化により発生した真空準位の押上量の 2 乗に反

比例すると近似されている。

再結合中心密度の変動率 f とフォトンフラックスの関係を求める。表面準位にトラップされる電子の時間変化、つまりフラックスは次の式で表される。

$$q_s = \alpha_n n_s (1 - f) \quad (5-6)$$

ここで、 α_n は再結合中心における電子の捕獲係数である。 n_s は表面に到達する電子のうち、表面準位へのトラップに寄与する電子の密度で、次の式で表される。

$$n_s = \frac{QE_s \Phi_0}{v_n} \quad (5-7)$$

Φ_0 は入射光のフォトンフラックス、 QE_s は入射フォトンフラックスに対する表面への電子の到達効率、 v_n は表面への電子の到達速度を表す。表面準位にトラップされた電子は、バンドベンディング領域の障壁をトンネルして表面に到達するホールと再結合し、消滅する。トラップされた電子とホールとの再結合フラックスは以下の通りである。

$$q_p = \alpha_p n_p f \quad (5-8)$$

ここで、 α_p は再結合中心におけるホールの捕獲係数、 n_p は表面へ到達するホールの密度を表し、次の式のようにになる。

$$n_p = \frac{QE_p \Phi_0 + n_{p0}}{v_p} \quad (5-9)$$

ここで、 QE_p は入射フォトンフラックスに対する表面へのホールの到達効率、 v_p は表面へのホールの到達速度、 n_{p0} は光励起が無い状態で再結合に寄与するホールのフラックスである。電子ビームが生成され続ける定常状態では $q_s = q_p$ となり、 f が Φ_0 によって決まるようになる。また、フォトンフラックスと励起パワー密度 P_d の関係は以下の通りである。

$$\Phi_0 = \frac{P_d \lambda}{hc} \quad (5-10)$$

λ は光の波長、 h はプランク定数、 c は光速である。

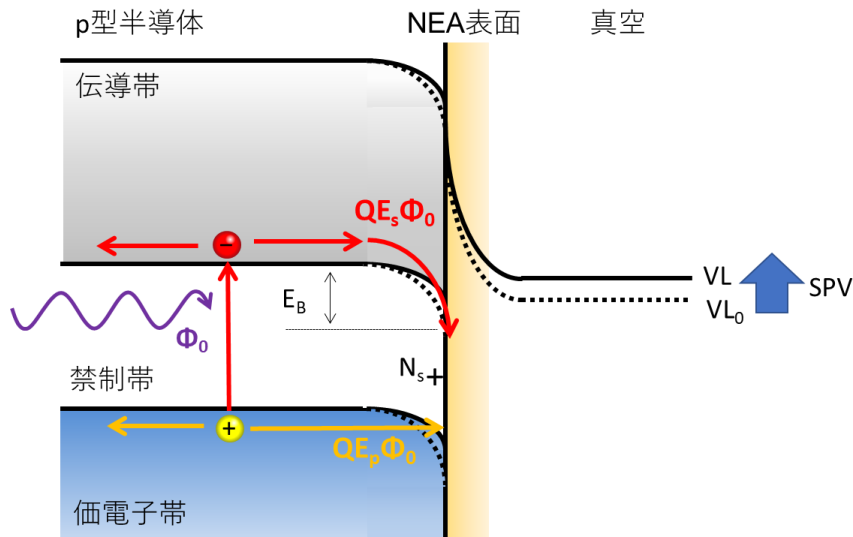


図 5-4 SPV による真空準位の上昇。 Φ_0 は入射光の光子フラックス、 QE_s は入射光子フラックスに対する表面への電子の到達効率、 QE_p は入射光子フラックスに対する表面へのホールの到達効率、VL は表面の真空準位、SPV は表面起電力、 E_B はバンドベンディング量を表す。

5.3 実験方法

サンプルの概要は次の通りである。Photo electron Soul 社製の p 型 InGaN を使用した。 $\sim 10^7$ W/cm² の高い励起パワー密度において 0.02% 以上の高い量子効率を得るためには SPV の効果を抑制する必要がある。ドーパ濃度を高くすることで SPV の抑制が報告されていることから、第 4 章の p-InGaN に比べ、Mg 原料の流量を 2 倍程度増加させ、Mg ドープ量を多くした。InGaN 層の膜厚は 100 nm である。そのほかの条件は第 4 章で示したものと同一である。

加熱洗浄及び NEA 表面の活性化方法は、第 4 章で述べた方法と同様とした。NEA 活性化したサンプルを電子銃チャンバーへ搬送し、サンプル背面から励起光を照射した。

励起光源として、2 章で述べた「XYZ ステージ搭載集光モジュール」を用いた。焦点位置をずらすことでスポットサイズを 30 μ m、300 μ m、2 mm と変化させ、それぞれのスポットサイズで励起パワーを変化させて量子効率を測定した(図 5-5)。gentec-eo 社製の beamage を用いてレーザープロファイルを測定した。加速電圧は-500 V と-10 kV であった。

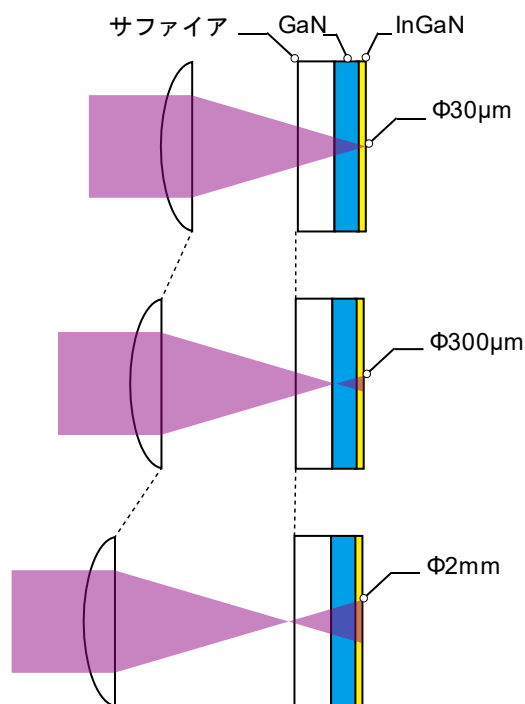


図 5-5 量子効率の励起パワー密度測定におけるレーザースポットサイズの変化。サンプルとレンズの距離を調整し、レーザースポットサイズを 30 μm 、300 μm 、2 mm と変化させた。それぞれのスポットサイズで励起パワーを変化させた。

上記の測定を終え、量子効率が劣化した状態で再度測定を行った。これにより、量子効率の励起パワー密度依存に関して表面状態の違いによる変化を観測した。

5.4 実験結果及び計算結果

NEA 活性直後 (Fresh) における量子効率の励起パワー密度依存性を図 5-6 に示す。励起パワー密度の増加に伴い量子効率の減少を確認した。この時の加速電圧は -500 V とした。励起パワー密度が 1 W/cm^2 になるまでの範囲では、量子効率はおおよそ 18% の値で一定となり、それよりも強励起になると、励起パワー密度の上昇とともに量子効率は減少した。励起パワー密度が最も高い $2 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$ における量子効率は 1.1% であった。

表面が劣化した状態での量子効率の励起パワー密度依存 (Degraded) を図 5-6 に示す。Fresh に対し、量子効率が全体的に半分の値を示した。パワー密度の増加に対する量子効率の変化は同様であった。2 本のフィッティング直線の交点を量子効率減少の閾値とすると、表

面が劣化して量子効率が減少することで、閾値が $1.5 \times 10^{-1} \text{ W/cm}^2$ から $4.0 \times 10^{-2} \text{ W/cm}^2$ へシフトした。この時の量子効率はそれぞれ 16%と 7.3%であった。

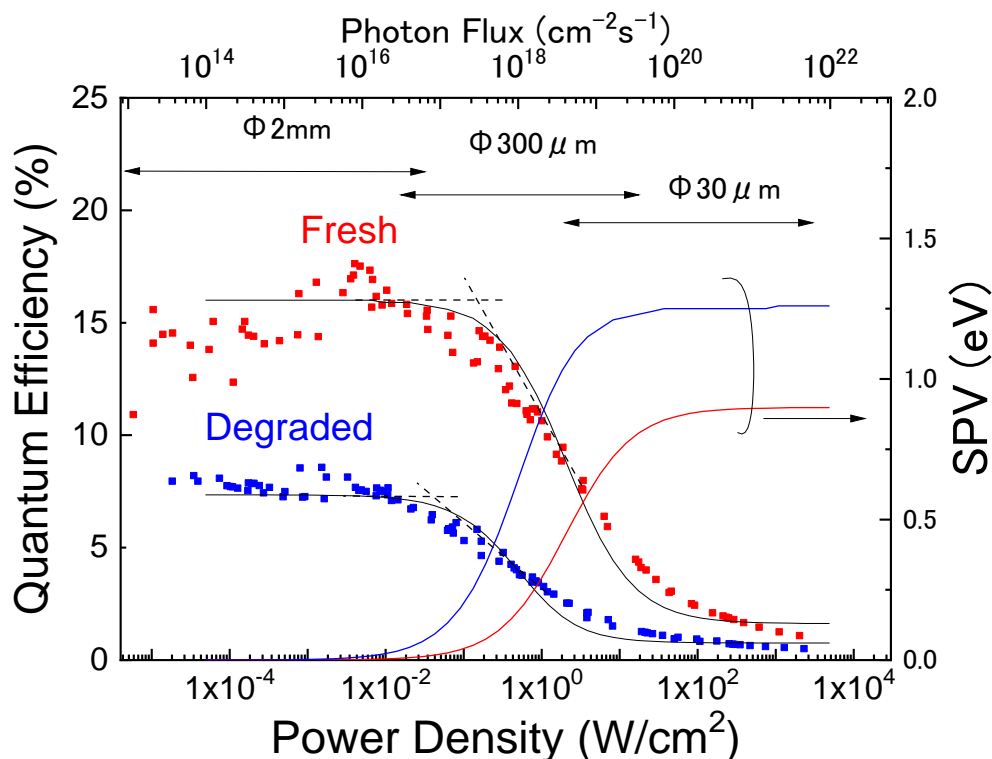


図 5-6 量子効率のパワー密度依存における実験結果とモデルから算出された計算結果。NEA 活性直後(Fresh)と量子効率が劣化した(Degraded)の測定結果を示す。黒色の実線は量子効率の計算結果、赤色と青色の実線はそれぞれ Fresh と Degraded における、励起パワー密度の変化に伴う SPV の計算結果を示す。

式(5-5)を用いて算出された量子効率の励起パワー密度依存性及びその時の SPV の変化を図 5-6 に示す。この時計算に使用したパラメーターは表 5-1 の通りである。得られた曲線は Fresh 及び Degraded の両方で実験結果とおおよそ一致した。しかしながら、パワー密度が 500 W/cm^2 より大きくなると、実験結果の量子効率は減少し続けるのに対し、算出された量子効率は一定の値となった。パワー密度がそれぞれの肩を超えると SPV は急激に増加し、その後飽和した。飽和したときの SPV のフィッティング結果は Fresh と Degraded でそれぞれ 0.90 eV と 1.26 eV となった。

表 5-1 量子効率の励起パワー密度依存の計算に用いられたパラメーター

表面状態	QE_o	E_B^0 [eV]	χ_{eff} [eV]	χ_{eff}^0 [eV]	a	α_n, α_p [cm ³ /s]	$\frac{QE_s}{v_n}$ [cm ⁻¹ s]	$\frac{QE_p}{v_p}$ [cm ⁻¹ s]	$\frac{n_{p0}}{v_p}$ [cm ⁻³]
Fresh			0.8		0.8		0.08		
Degraded	0.16	1.3	0.7	0.8	0.5	1×10^{-7}	0.48	0.1	1×10^{18}

加速電圧-10 kV 及び-500 V における量子効率の励起パワー密度依存を図 5-7 に示す。加速電圧とともに量子効率が増加した。励起パワー密度が 100 W/cm² 以下の場合、両者で同様の特性を示した。励起パワー密度が 100 W/cm² 以上になると、加速電圧-10 kV の方が量子効率の減少の傾きが小さくなり、 2×10^3 W/cm² における量子効率は 1.4%であった。加速電圧が-10 kV の場合、得られた電流密度と電流の最大値はそれぞれ 11 A/cm²と 76 μ A であった。加速電圧-10 kV の結果に対し外挿線を引いたところ、励起パワー密度が 3.8×10^7 W/cm² における量子効率は 0.4%と見積られた。

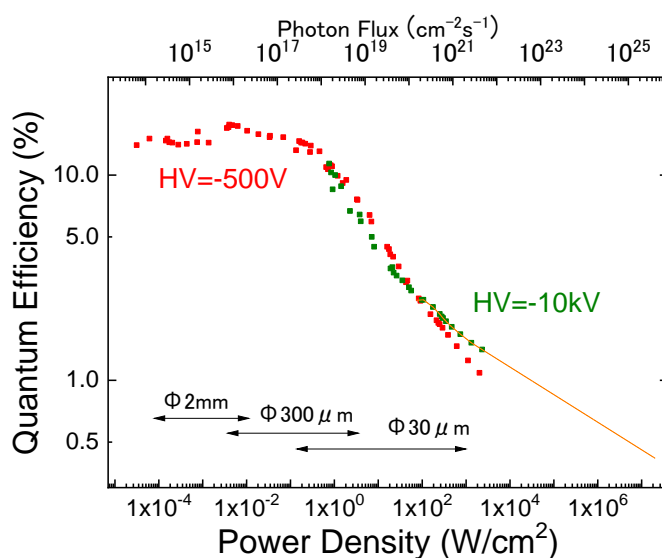


図 5-7 InGaN における量子効率の励起パワー密度依存性。加速電圧は-10 kV (緑)と-500 V (赤)。実線は実験結果を外挿した値を示す。

5.5 考察

InGaN フォトカソードにおいて励起パワー密度の増加による量子効率の減少が確認された。Fresh および Degraded の両方で実験結果と SPV モデルによる計算結果がおおむね一致した。また、実験結果は図 5-3 に似た特性を示した。これより、励起パワー密度の上昇によって量子効率が減少した原因は SPV である可能性が示唆される。実験データの外挿から、励起パワー密度が $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ における量子効率は 0.4% と見積られた。300 mW のレーザーを照射した場合に期待される電流は 400 μA となる。これより、InGaN フォトカソードを 1 章で述べた SEM に用いることで、20 nA のプローブ電流が期待される。これはショットキー陰極の 300 倍以上の値になる。

表面状態の劣化によって量子効率減少の閾値が低パワー側へシフトした理由は、電子の脱出確率が減少した分、表面のトラップが増え、SPV が増加したためと考えられる。計算モデルにおいて、表面の劣化に伴って QE_s/v_n を増加させることで、量子効率の閾値が低パワー密度側へシフトした。 QE_s/v_n はバンドベンディング領域に達した電子のうち、表面のトラップに寄与する電子の割合を示す。実験結果と計算結果の照らし合わせから、表面状態の劣化による真空準位の押上が 0.1 eV と見積られ、それによりトラップに寄与する電子が 5 倍程度増加したという解釈が得られる。

電子ビームが発生すると、生成された電子の空間電荷によって逆電場が発生する。加速電圧による電場と空間電場による逆電場がつりあうと、それ以上の電流が引き出されなくなる。この現象を空間電荷制限^{7, 8, 9}と呼び、その状態の電流密度を制限電流密度と言う。なお、制限電流密度は加速電圧の 3/2 乗に比例する。本実験において加速電圧が -500 V の場合、電流密度が 0.68 A/cm² より大きい領域では、空間電荷制限により引き出し電流が制限されていると考えられる。

励起パワー密度が 500 W/cm² 以上の領域では、計算結果による量子効率の減少は飽和して、量子効率が一定になるのに対し、実験結果ではその後も量子効率が減少し続けた。そのため、SPV 以外の効果によって量子効率が抑制されていると考えられる。本研究では、半導体を固定する金属に Mo を使用している。InGaN のバンドギャップは 3.0 eV と大きいため、仕事関数 4.5 eV 程度を有する Mo と InGaN の接触はショットキーコンタクトになることが予想される。そのため、半導体—金属の接触抵抗が高くなり、電子ビームの電流密度が高くなると、半

導体への電子の供給が追い付かなくなる可能性がある。また、InGaN のホール移動度は数 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ と小さい。そのため、励起パワー密度が高い場合、生成されたホールがその場に滞在し、チャージアップを引き起こす可能性がある。

本研究で観測された励起パワー密度増加に伴う量子効率の減少が SPV によるものだとすると、SPV を抑制することで、 10^7 W/cm^2 における量子効率が最大 10%以上になることが期待される。例えば GaAs で報告があるように、ホール濃度をより高くすることで SPV を抑制することが考えられる。

5.6 結論

量子効率の励起パワー密度依存性を調査することで、次のことが明らかになった。励起パワー密度が 1 W/cm^2 以下では励起パワー密度の増加に対し量子効率は 18%からほとんど減少しないが、それ以上になると量子効率は減少し、励起パワー密度が $2 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$ になると量子効率は 1.4%まで減少する。NEA 表面の劣化により量子効率が減少すると、上記の減少閾値が低パワー密度側へシフトする。NPeSII の電極構造において、加速電圧が -500V の場合、電流密度が 1 A/cm^2 を上回ると加速電圧 -10 kV に比べて量子効率が低くなる。実験結果を外挿すると、励起パワー密度が $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ における量子効率は 0.4%と見積られる。

高耐久で可視光レーザーを励起光源に使用できることから産業利用へ有望視されている InGaN フォトカソードにおいて、本研究により初めて、励起パワー密度を変化させたときの量子効率の特性が観測された。実験結果より、 $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ の高い励起パワー密度においても 0.4%の高い量子効率が見込めるため、InGaN 半導体フォトカソードを SEM に応用することで、ショットキー陰極に比べ、最大で 300 倍のプローブ電流向上が期待される。

参考文献

- ¹ A. Herrera-Gomez, G. Vergara, and W. E. Spicer, *J. Appl. Phys.* **79**, 7318 (1996).
- ² G. A. Mulhollan, A. V. Subashiev, J. E. Clendenin, E. L. Garwin, R. E. Kirby, T. Maruyama, and R. Prepost, *Physics Letters A* **282**, 309 (2001).
- ³ K. Togawa, T. Nakanishi, T. Baba, F. Furuta, H. Horinaka, T. Ida, Y. Kurihara, H. Matsumoto, T. Matsuyama, M. Mizuta, S. Okumi, T. Omori, C. Suzuki, Y. Takeuchi, K. Wada, and M. Yoshioka, *Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res. A* **414**, 431 (1998).
- ⁴ D. Sato, T. Nishitani, Y. Honda and H. Amano, *Jpn. J. Appl. Phys.* **55**, 05FH05 (2016).

-
- ⁵ B. I. Reznikov and A. V. Subashiev, *Semiconductors* **32**, 1006 (1998).
- ⁶ A. Herrera-Gomez, G. Vergara, and W. E. Spicer, *J. Appl. Phys.* **79**, 7318 (1996).
- ⁷ C. D. Child, *Phys. Rev.* **32**, 492 (1911).
- ⁸ I. Langmuir, *Phys. Rev.* **2**, 450 (1923).
- ⁹ J. W. Luginsland, Y. Y. Lau, and R. M. Gilgenbach, *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 4668 (1996).

第6章 レーザーフィードバックとカソード温度制御による電流安定化

6.1 レーザーフィードバックシステムによる光電流の安定化

6.1.1 緒言

半導体フォトカソードの量子効率 QE は稼働時間とともに減衰していく。電子ビーム生成時の量子効率の時間変化を式(6-1)に示す。

$$QE = QE_0 \exp(-t/\tau) \quad (6-1)$$

ここで、 t は経過時間、 QE_0 は $t = 0$ における量子効率、 τ は寿命である。

電子ビーム発生時における量子効率劣化の要因は残留ガスのカソード表面への吸着とイオンバックボンバードメントである。ガス吸着に関しては、第1章で述べた通り、 CO_2 や O_2 の吸着による仕事関数の上昇が量子効率劣化を引き起こす。イオンバックボンバードメントによる量子効率劣化のメカニズムは次の通りである^{1, 2}。電子ビームの発生により、チャンバー内の残留ガスがイオン化される。そのイオンが負にバイアスされているカソードに衝突する。するとカソード表面のCs酸化物や半導体にダメージが生じ、量子効率が劣化する。これらから、式(6-1)の寿命はガス吸着による寿命 τ_{gas} とイオンバックボンバードメントによる寿命 τ_{ion} を用いて

$$\tau = \left(\frac{1}{\tau_{gas}} + \frac{1}{\tau_{ion}} \right)^{-1} \quad (6-2)$$

と表される。

上記のように半導体フォトカソードから一定電流を生成させ続けると、時間とともに量子効率が減少する。そのため、光電流をフィードバック信号とし、量子効率の減少に合わせて励起光のパワーを増加させ、光電流を一定に保つ必要がある。

エミッション電流が一定の場合、連続稼働時間は以下の式で表される。

$$t_{max} = \tau \ln \left(\frac{QE_0}{QE} \right) = \tau \ln \left(\frac{QE_0 P_{max} \lambda}{1240I} \right) \quad (6-3)$$

ここで、 P_{max} は使用する励起光源におけるパワーの最大値、 λ は波長、 I はエミッション電流を表す。半導体フォトカソードの連続稼働時間は量子効率の寿命と初期の量子効率及び励起

光源の最大パワーで決まる。これより、ある決められた電流を生成する場合、量子効率の寿命が長いことの他に初期の量子効率、励起光源のもつ最大パワーが大きいことが連続稼働時間を長くする。

真空度が 5×10^{-8} Pa の雰囲気でのガス吸着のみによる InGaN フォトカソードの量子効率の寿命は 34 時間程度とされている³。 $QE_o = 10\%$ 、 $P_{max} = 100$ mW、 $\lambda = 405$ nm とし、エミッション電流をショットキー陰極の 10 倍の輝度が期待される $20 \mu\text{A}$ とすると、連続稼働時間は 170 h と見積られる。しかしながら、イオンバックボンバードメントによって、例えば寿命が半減する場合、連続稼働時間は 85 h となる。イオンバックボンバードメントを加味した寿命をシミュレーションすることは難しく、実験による調査が必要となる。

そこで本節ではフィードバックシステムを用いた光電流の安定化と、一定電流発生時の連続稼働時間と量子効率の寿命の調査を目的とする。

6.1.2 実験方法

使用したサンプルと加熱洗浄、NEA 活性化方法は第 5 章と同じであった。

フィードバックシステムを用いて一定電流生成時における連続稼働時間を測定した。NEA 活性化直後にこの測定を行った。励起光源は 2 章で述べた「XYZ ステージ搭載集光モジュール」であった。照射方向は正面照射で、レーザースポットサイズを $220 \mu\text{m}$ とした。レーザーパワーを制御するために Photo electron Soul 社製のフィードバックシステム⁴を使用した。システム概略を図 6-1 に示す。目標電流と実際の光電流の差を偏差とし、偏差がなくなるようにレーザーとアッテネーターを制御して、パワーを増加させた。レーザーパワーが最大になり、所望の電流を発生させられなくなるまでの時間を連続稼働時間とした。連続稼働時間における電流の標準偏差を平均電流で割った値を電流変動率とした。加速電圧は -500 V であった。フィードバックに使用した電流測定のサンプリング時間は 0.5 s であった。測定開始直後と終了直後のレーザーパワーを測定し、その値を用いてパワーを校正し、量子効率を算出した。この量子効率に対して、2 次の指数的減衰関数を用いてフィッティングを行い、得られる時定数 τ_1 と τ_2 を量子効率の寿命とした。

$20 \mu\text{A}$ 、 $50 \mu\text{A}$ 、 $100 \mu\text{A}$ の 3 つのエミッション電流の場合における連続稼働時間と量子効率の寿命をそれぞれ測定した。

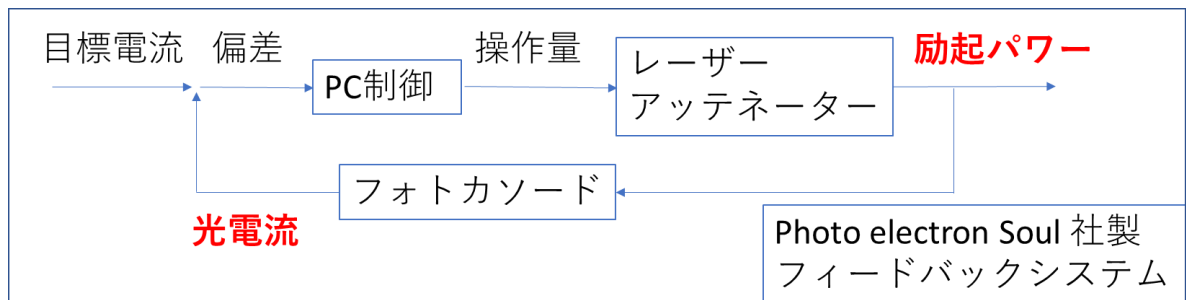


図 6-1 Photo electron Soul 社製フィードバックシステムの概略図⁴

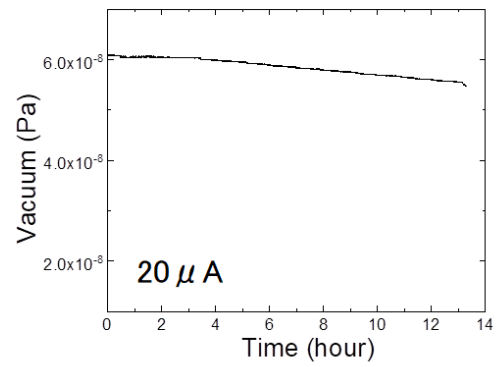
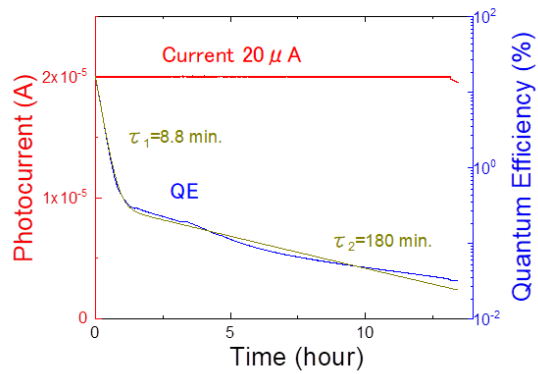
6.1.3 実験結果

図 6-2(a)と(b)に $20 \mu\text{A}$ のエミッション電流と量子効率、真空度の時間変化を示す。エミッション電流が $20 \mu\text{A}$ における連続稼働時間と電流変動率はそれぞれ 13 h と 0.08%であった。フィッティングから得られる τ_1 と τ_2 はそれぞれ 8.8 min と 180 min であった。測定開始直後と測定終了時の真空度はそれぞれ $6.1 \times 10^{-8} \text{ Pa}$ と $5.6 \times 10^{-8} \text{ Pa}$ であった。

エミッション電流と励起パワー密度の時間変化を図 6-3(a)に示す。 $20 \mu\text{A}$ の電流発生時に量子効率の減少によって励起パワー密度が増加した。測定開始直後と終了時のパワー密度はそれぞれ 1 W/cm^2 と $5 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$ であった。

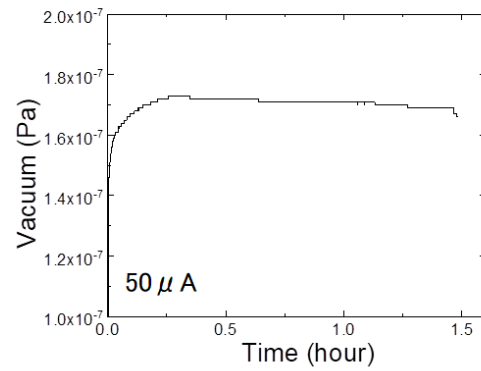
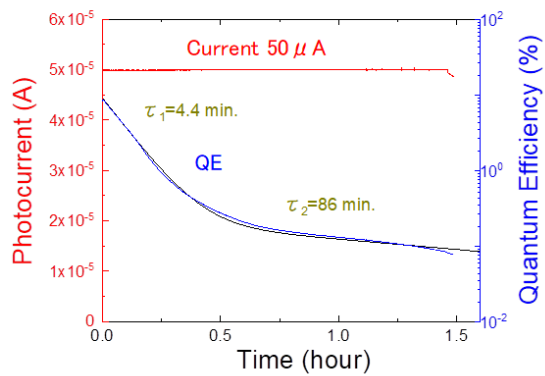
図 6-2(c)と(d)に $50 \mu\text{A}$ のエミッション電流と量子効率、真空度の時間変化を示す。エミッション電流が $50 \mu\text{A}$ における連続稼働時間と電流変動率はそれぞれ 1.5 h と 0.09%であった。 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 4.4 min と 86 min であった。測定時の真空度は $1.7 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ であった。励起パワー密度の時間変化を図 6-3(b)に示す。測定開始直後と終了時のパワー密度はそれぞれ 5 W/cm^2 と $5 \times 10^2 \text{ W/cm}^2$ であった。

図 6-2(e)と(f)に $100 \mu\text{A}$ のエミッション電流と量子効率、真空度の時間変化を示す。エミッション電流が $100 \mu\text{A}$ における連続稼働時間と電流変動率はそれぞれ 0.4 h と 0.06%であった。この時の量子効率は 1 次の指数的減衰関数に沿い、フィッティングから得られる τ は 7.4 min であった。測定時の真空度は $2.8 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ であった。励起パワー密度の時間変化を図 6-3(c)に示す。測定開始直後と終了時のパワー密度はそれぞれ 100 W/cm^2 と 500 W/cm^2 であった。



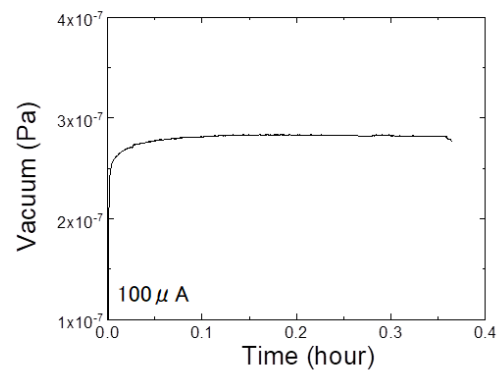
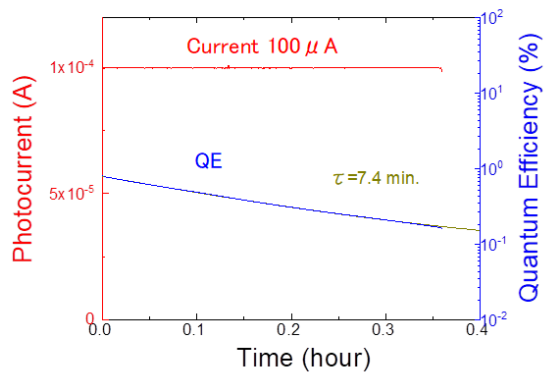
(a)

(b)



(c)

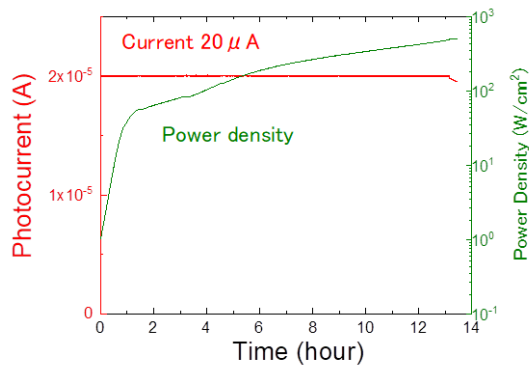
(d)



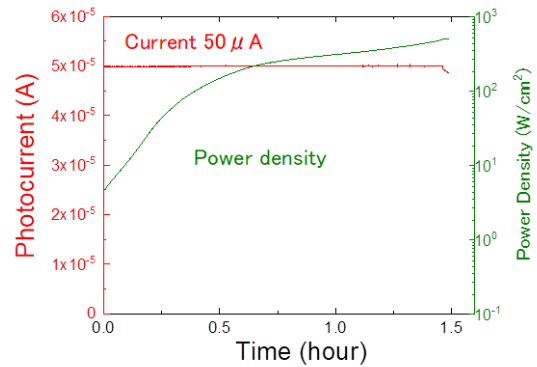
(e)

(f)

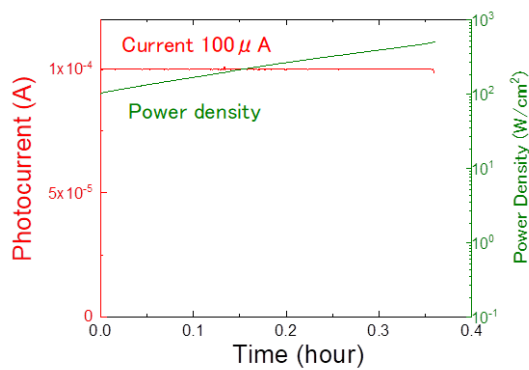
図 6-2 一定電流生成時のエミッション電流、量子効率、真空度の時間変化。(a)(b)はエミッション電流 $20 \mu\text{A}$ 、(c)(d)は $50 \mu\text{A}$ 、(e)(f)は $100 \mu\text{A}$ の結果を示す。



(a)



(b)



(c)

図 6-3 一定電流発生時のエミッション電流と励起パワー密度の時間変化。(a)、(b)、(c)はそれぞれエミッション電流 20 μA 、50 μA 、100 μA の結果を示す。

エミッション電流の増加に伴い、量子効率の寿命が短くなり、引出電荷も小さくなった。一定電流発生中における引出電荷の総量はエミッション電流 20 μA 、50 μA 、100 μA に対してそれぞれ 0.94 C、0.27 C、0.14 C であった。また測定開始直後の量子効率はそれぞれ 15%、8%、0.7% であった。量子効率寿命のエミッション電流依存性を図 6-4 にまとめる。時定数が二つあるものは、長い方を使用した。実験結果のまとめを表 6-1 に示す。

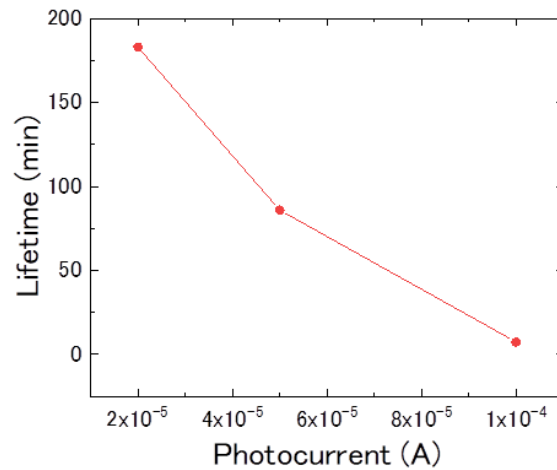


図 6-4 量子効率の寿命のエミッション電流依存性

表 6-1 各エミッション電流における連続稼働時間、電流変動率、量子効率の寿命、真空度。

エミッション電流 [μ A]	20	50	100
連続稼働時間 [h]	13	1.5	0.4
引出電荷 [C]	0.94	0.27	0.14
電流変動率 [%]	0.08	0.09	0.06
量子効率の寿命 τ_1 [min]	8.8	4.4	7.4
量子効率の寿命 τ_2 [min]	180	86	
真空度 [Pa]	$\sim 6.0 \times 10^{-8}$	$\sim 1.7 \times 10^{-7}$	$\sim 2.8 \times 10^{-7}$
初期量子効率 [%]	15	8	0.7

6.1.4 励起パワー密度の上昇による SPV の影響

SPV を考慮した一定電流発生時における量子効率の時間変化モデル

フィードバックシステムを用いて一定電流を発生させる場合、SPV による量子効率の抑制が量子効率の寿命を見かけ上短くする。SPV による量子効率の減少を加味した量子効率の時間変化を以下に示す。

$$QE(t) = QE(SPVP(P_d)) \left(A \exp(-t/\tau_1) + B \exp(-t/\tau_2) \right) \quad (6-4)$$

ここで、 $QE(SPVP_d)$ は NEA 表面が劣化していない状態で、ある励起パワー密度 P_d のときに SPV の影響により抑制されている量子効率を表す。 τ_1 と τ_2 はイオンバックボンバードメント及びガス吸着による寿命、 A と B は指数的減衰関数の係数である。励起パワー密度 P_d はフィードバックにより量子効率の減衰分増加するため、その時間変化は以下のように表される。

$$P_d(t) = \frac{P_d(0)}{A \exp(-t/\tau_1) + B \exp(-t/\tau_2)} \quad (6-5)$$

式(4-5)と(6-5)を用いることで、 $QE(SPVP_d)$ が算出される。なお、本モデルでは表面劣化に対して、パワー密度の変化以外による SPV の変化を考慮していない。

モデルを用いたフィッティング結果

エミッション電流 20 μA における実験結果に対して、式(6-4)を用いてフィッティングを行い算出された量子効率の時間変化を図 6-5 に緑の実線として示す。この時のフィッティングパラメーターを表 6-2 に示す。SPV を考慮した関数のフィッティングにより得られた寿命は、見かけの寿命より長い値を示した。なお、励起パワー密度は実際の値を使用した。実験結果に 2 次の指数的減衰関数をフィッティングした寿命に比べ、 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 2 倍と 2.5 倍の値になった。

測定開始時点の励起パワー密度を変化させたときの量子効率の時間変化の計算結果を図 6-5 に示す。図に示される数字が計算に使用された励起パワー密度である。測定開始時点の励起パワー密度の減少に伴い、見かけの量子効率の寿命が増加することが算出された。励起パワー密度が減少すると見かけの寿命が増加し、励起パワー密度が $1 \times 10^{-2} \text{ W/cm}^2$ 以下になると、その増加が飽和した。励起パワー密度が $1 \times 10^{-3} \text{ W/cm}^2$ のとき見かけの寿命 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 13 min と 310 min となった。

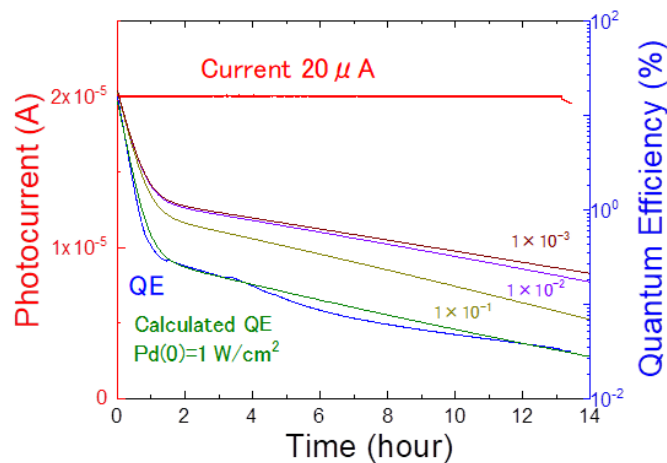


図 6-5 エミッション電流 20 μA における量子効率の時間変化(青)と式(6-4)を用いてフィッティングにより算出された量子効率の時間変化(緑)。黄、紫、茶の実線は測定開始時点における励起パワー密度を変化させて計算した値。

表 6-2 SPV を考慮した量子効率の時間変化算出に用いたフィッティングパラメーター。

$P_a(0)$ [W/cm^2]	τ_1 [min]	τ_2 [min]	A	B
1, 1×10^{-1} , 1×10^{-2} , 1×10^{-3}	18	450	0.6	0.05

6.1.5 考察

フィードバックシステムを用いることで、いずれのエミッション電流においても電流変動率が1%以内に収まった。これは、制御系の応答速度とフォトカソードの光に対する電流変化の応答速度が量子効率の減衰時間に比べ十分早いためと考えられる。

エミッション電流 20 μA において、一定電流発生時の量子効率の寿命は暗寿命の 3/100 以下の値となり、連続稼働時間は 13 h となった。20 μA 発生時のチャンバー圧力は $\sim 6 \times 10^{-8}$ Pa となり、電子ビームが発生していないベースの圧力 5×10^{-9} Pa に対して一桁高くなった。これは、電子ビームがチャンバーの内壁に衝突し、ガスが放出されたためと考えられる。真空度が 5×10^{-8} Pa における InGaN フォトカソードの暗寿命、つまりガス吸着のみによる寿命 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 6 h と 80 h 程度とされており³、これに比べ本実験結果における寿命 τ_1 と τ_2 はともに 3/100 の値になった。その結果、最大出力 190mW の光源モジュールを用いた場合の連続稼

働時間は、エミッション電流 20 μA において 13 h となった。

本結果における量子効率の寿命はイオンバックボンバードメントと SPV が支配的であると考えられる。表 6-2 に示される寿命は、SPV による量子効率の抑制効果を除いたイオンバックボンバードメントとガス吸着による寿命であると言える。これらの寿命はガス吸着のみの寿命に比べ 1/10 程度短い。そのため、イオンバックボンバードメントがこの中で9割程度を占めていることが示唆される。本モデルでは、表面状態による SPV のパラメーターの変化を考慮していないため、それらが考慮された場合、イオンバックボンバードメントとガス吸着による寿命は計算結果より大きくなることが予想される。

エミッション電流とともに量子効率の寿命が減少したのは、イオンバックボンバードメントの影響が大きくなったからであると推定される。また、電流が 20 μA 及び 50 μA の時、量子効率の減衰は 2 次の指数的減衰関数に従うことが分かった。このことから、寿命の異なる2種類の反応が存在すると考えられる。例えば、2種類の酸化セシウムが InGaN 上に存在し、不安定なものが短い寿命で脱離していくといった現象が考えられる。電流が 100 μA の時は、早い反応の方の寿命が短く、二つの寿命が観測されなかったと考えられる。電流とともにデガスも増加したため、イオンバックボンバードメントとガス吸着の影響を定量的に分析することは難しい。

エミッション電流とともに連続稼働時間が減少したのは、上記に加え測定開始時点の量子効率の低下が原因である。初期量子効率減少の原因は、励起パワー密度の増加による SPV 効果であると考えられる。

SPV 効果を抑制できれば、量子効率の見かけの寿命と連続稼働時間が増加することが期待される。図 6-5 で示された通り、初期の励起パワー密度を減少させることで、見かけの寿命が増加することがシミュレーションより見積もられた。これは SPV の効果が小さく、その分子量子効率の減少が発生しないためである。

6.1.6 結論

InGaN フォトカソードにおいて、レーザーフィードバックシステムを用いた一定電流生成条件のもとで、連続稼働時間と電流変動率、量子効率寿命を調査した結果、次のことが明らかになった。波長が 405 nm で最大出力が 190mW のレーザーを用いると、電流変動率を 0.1%と安定したエミッション電流 20 μA を 13 h 連続で発生させられる。エミッション電流が 20 μA の時の量子効率の寿命は暗寿命より 3/100 倍短くなる。エミッション電流が増加すると連続稼働時間

と量子効率の寿命が減少するが電流変動率は 0.1%に収まる。

本研究結果から、量子効率の長寿命化の策として、真空ポンプの増強、ガス放出の低減、加速電圧の増加、SPV の抑制、ガス吸着の低減が挙げられる。加速電圧の増加で長寿命化が期待される理由はイオン化断面積が減少し、イオンバックボンバードメントの抑制が予想されるからである。さらにイオンバックボンバードメントとガス吸着に加え SPV を抑制することで、見かけの量子効率の寿命とともに連続稼働時間が増加することが計算により見積もられた。

6.2 カソード温度制御による高耐久化

6.2.1 緒言

半導体フォトカソードにおいて加熱をしながら電子ビームを発生させることで、連続稼働時間が増えることが知られている⁵。そのため、InGaN フォトカソードへその手法を適応することで、室温で得られた 13 時間を超える連続稼働時間が期待される。一方、それらに関する学術的論文による報告はない。カソード温度制御の最適な温度や、長寿命化のメカニズムを追求する必要がある。

本節では、エミッション電流 20 μA における連続稼働時間が 24 時間を超えることを目標とする。これを達成するために、加熱による量子効率の長寿命化の検証及び、寿命と加熱温度の関係調査を目的とする。

6.2.2 実験方法

実験に使用したサンプルは第 5 章と同じであった。サンプルの加熱洗浄も同様とした。

加熱による高耐久化を調査するために、Photo electro Soul 社製のカソード温度制御システム⁵を用いた。その詳細は次の通りである。NEA 活性化前にサンプルホルダーのヒーターに電流を流し、加熱状態で NEA 活性化を行った後、連続稼働時間測定に移行した。ヒーターへの通電電流で加熱温度を制御した。ヒーターへの電流及び電力は(1.8 A、1.6 W)と(2.8 A、5.0 W)であった。いずれの加熱温度も放射温度計の測定限界以下であるため、加熱電力からそれぞれの温度を 150°C ($\pm 50^\circ\text{C}$)、250°C ($\pm 50^\circ\text{C}$)と見積った。この温度はサンプルの近傍に熱電対

があり同様の加熱機構を有する別の評価装置で測定される値とおおむね一致した。

光電流を一定に保つための光源モジュールとフィードバックシステムは 6.1 節と同じものを使用した。レーザースポットサイズは 220 μm 、照射方向は正面とした。ショットキー陰極の 10 倍のプローブ電流が期待される 20 μA を設定電流とした。加速電圧は -500 V であった。フィードバックに使用した電流測定のサンプリング時間は 0.5 s であった。

6.2.3 実験結果

図 6-6 に加熱状態における NEA 活性の様子を示す。(a)、(b)、(c)はそれぞれカソード温度が 25°C、150°C、250°Cの時のものを示す。加熱温度により、Cs、O の供給に伴う量子効率の変化が異なった。温度によって違いが顕著となったのは、最初の Cs 供給における最高到達点量子効率(QE_{max})と、その後の余剰 Cs 供給による最低到達量子効率(QE_{min})の違いであった。 QE_{max} と QE_{min} のカソード温度変化を図 6-6 (d)に示す。カソード温度が 25°Cの時、最初の Cs 供給で量子効率は 13.4%まで到達し、その後 4.4%まで減少した。カソード温度が 150°Cになると、最初の Cs 供給で量子効率は 12.6%まで増加し、その後 8.1%まで減少した。250°Cでは、最初の Cs 供給による到達量子効率は 12.2%で、その後 Cs 供給による量子効率の減少は見られなかった。

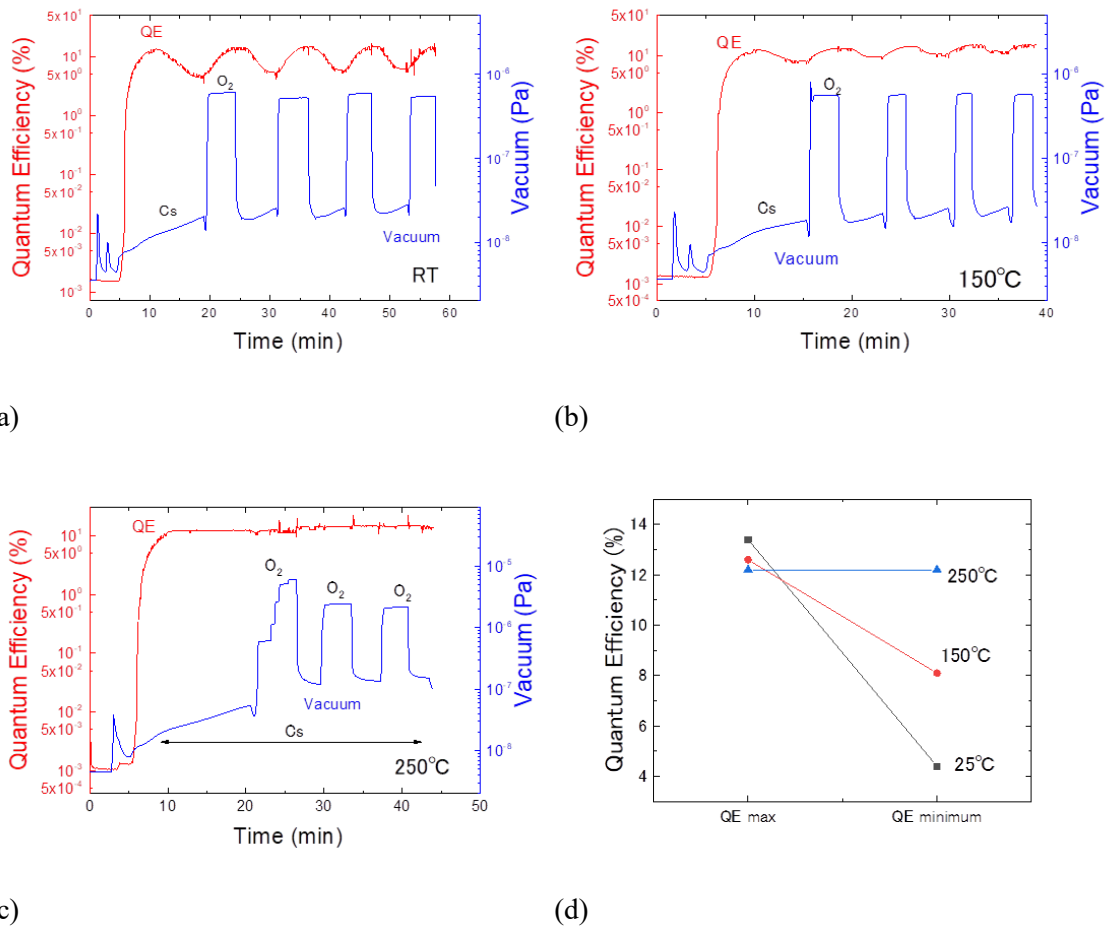


図 6-6 加熱状態での NEA 活性における量子効率と真空度の変化。(a), (b), (c)はそれぞれカソード温度が 25°C、150°C、250°Cの結果を示す。(d)は各カソード温度における最初の Cs 供給による最高到達量子効率(QE_{max})と最低到達量子効率(QE_{min})である。

各カソード温度における実験結果のまとめを表 6-3 に示す。25°C、150°C、250°Cにおける連続稼働時間はそれぞれ 13 h、27 h、3.6 h であった。一定電流発生中における引出電荷の総量はそれぞれ 0.94 C、1.9 C、0.26 C となった。2 次の指数的減衰関数を用いたフィッティングから得られる 25°Cの量子効率の寿命 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 8.8 min と 180 min であった。3 次の指数的減衰関数を用いたフィッティングから得られる 150°Cにおける量子効率の寿命 τ_1 、 τ_2 、 τ_3 はそれぞれ 4.2 min、16 min、220 min であった。25°Cに関しては 2 次の指数的減衰関数から、量子効率の寿命 τ_1 と τ_2 はそれぞれ 5 min と 57 min となった。測定開始時の量子効率はそれぞれ 15%、10%、0.4%であった。連続稼働時間測定中の真空度はいずれの温度においても 5×10^{-8} Pa ~ 6×10^{-8} Pa であった。

カソード温度とともに電流変動率が増加した。カソード温度が 25°C、150°C、250°Cにおける電流変動率はそれぞれ 0.08%、0.13%、0.31%であった。

表 6-3 各カソード温度における連続稼働時間、電流変動率、量子効率の寿命、真空度

カソード温度 [°C]	25	150(±50)	250(±50)
電流 [μA]		20	
連続稼働時間 [h]	13	27	3.6
引出電荷 [C]	0.94	1.9	0.26
電流変動率[%]	0.08	0.13	0.31
量子効率の寿命 τ_1 [min]	8.8	4.2	5
量子効率の寿命 τ_2, τ_3 [min]	180	16, 220	57
真空度 [Pa]	$\sim 6 \times 10^{-8}$	$\sim 5 \times 10^{-8}$	$\sim 6 \times 10^{-8}$
初期量子効率 [%]	15	10	0.4

6.2.4 考察

一定電流を生成する際にカソード温度を 150°Cにすることで、量子効率の長寿命化が確認された。本実験では加熱による効果は確認されたが、長寿命化の要因の断定には至らなかった。一方で、これまで得られた知見から長寿命化の要因は、ガス吸着の低減、SPVの抑制、Csの表面拡散などが考えられる。一つ目に関しては、残留ガスが吸着した GaAs フォトカソードを加熱すると、84°Cと 175°Cで CO および CO₂ が脱離することが知られている⁶。これらの気体は量子効率を劣化させるため⁷、吸着の低減が長寿命化に寄与した可能性がある。二つ目に関して、トラップされた電子の放出割合は以下の式で表される。

$$e_n = N_c v_{th} \sigma_n \exp\left(-\frac{E_C - E_T}{k_B T}\right) \quad (6-6)$$

ここで、 N_c は伝導帯の状態密度、 v_{th} はキャリアの熱運動速度、 σ_n は捕獲断面積、 $E_C - E_T$ は伝導帯からの表面再結合中心のエネルギー準位、 k_B はボルツマン定数、 T は温度を示す。カソードの温度を高くすることで電子の放出確率が増加する。そのため、加熱によりトラップ電子が放出され、SPVが抑制されたことが示唆される。三つ目に関して、イオンバックボンバードメントにより、イオンが衝突する面の Cs が脱離してしまう。カソードの加熱により、回りの Cs がダ

メージ箇所へ熱拡散し、量子効率の寿命が延びた可能性がある。

カソード温度が 250°C で寿命が短くなった原因は Cs の脱離であると考えられる。カソード温度が 250°C の場合、量子効率の寿命は室温に比べ短くなり、連続稼働時間も短くなった。NEA 表面を形成する Cs の融点と沸点はそれぞれ 28°C、670°C と低い。図 6-7 に Cs-InGaN を加熱した際の量子効率と Cs 脱ガス量の変化を示す⁸。加熱温度が 400°C 以上の領域でも Cs の脱離が確認されているが、量子効率は 200°C と 300°C の二つピークを超えると減少し、500°C 以上ではほとんどゼロとなる。そのため、カソード温度が 250°C になると、上記の長寿命効果よりも Cs 脱離による量子効率劣化の方が上回ることが示唆される。

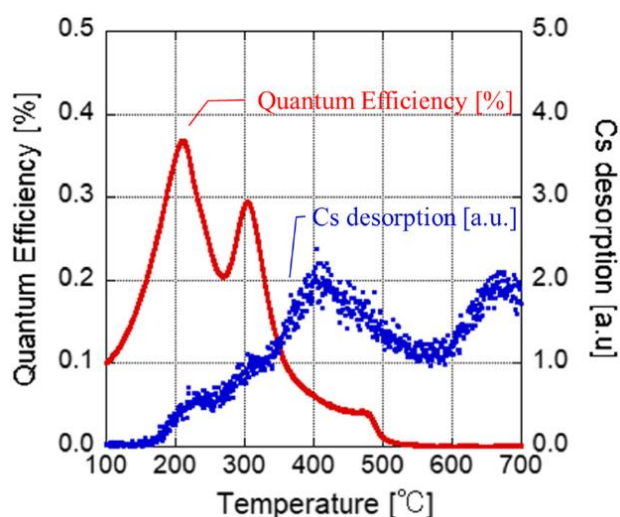


図 6-7 Cs-InGaN の加熱による量子効率と Cs 脱離量の変化

NEA 活性時について、温度の上昇とともに最初の Cs の供給による量子効率の減少が観測されなくなった。この現象を Cs 酸化物の相図(図 6-8⁹)とともに考察する。本実験の加熱温度である 150°C と 250°C の範囲に着目すると、164°C に Cs₃O の融点が存在する。このことから、250°C における NEA 活性では余剰の Cs を供給しても Cs₃O が表面に形成されないと考えられる。逆を言うと、YO-YO 法において Cs の余剰によって形成される Cs₃O が量子効率をピークから減少させる要因であると考えられる。

カソード温度にともない電流変動率が増加したのは、ホルダー内蔵ヒーターによるノイズが増加し、光電流の信号に影響を与えたためと考えられる。例えばランプヒーターを用いることで、この問題は解決されることが予想できる。

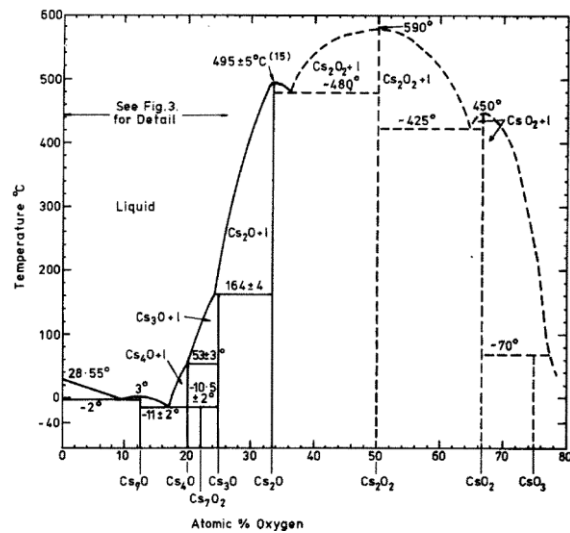


図 6-8 Cs 酸化物の相図⁹

6.2.5 結論

量子効率寿命のカソード温度依存性を調査した結果、次のことが明らかになった。カソード温度を 150°C にすることで連続稼働時間が室温の 2 倍の 27 h となる。カソード温度が 250°C の場合、連続稼働時間は室温の 2/7 となる。カソード温度とともに電流変動率も増加する。

以上より、ショットキー陰極の 10 倍の輝度が期待されるエミッション電流の条件で、InGaN フォトカソードが連続稼働時間 24 h の産業利用の要求を満たすことが確認された。また、Cs の再供給によるカソード再活性時間が 30 分だとすると、ダウンタイムは 1.8% と見積もられる。そのためダウンタイムに関しても産業利用の要求を満たすことが期待される。

参考文献

- ¹ J. Grames, R. Suleiman, P. A. Adderley, J. Clark, J. Hansknecht, D. Machie, M. Poelker, and M. L. Stutzman, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **14**, 043501 (2011).
- ² W. Liu, S. Zhang, M. Stutzman, and M. Poelker, *Phys. Rev. Accel. Beams* **19**, 103402 (2016).
- ³ T. Nishitani, T. Maekawa, M. Tabuchi, T. Meguro, Y. Honda, and H. Amano, *Proc. SPIE* **9363**, 93630T (2015).
- ⁴ A. Koizumi, 特許第 6578529 号.
- ⁵ T. Nishitani, D. Sato, 特願 2020-073311.

-
- ⁶ H. Iijima and M. Kuriki, in *Proceedings of the 8th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, August 1–3, Tsukuba* (Particle Accelerator Society of Japan, Tokyo, 2011), p. 3158.
- ⁷ N. Chanlek, J. D. Herbert, R. M. Jones, L. B. Jones, K. J. Middleman, and B. L. Militsyn, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47**, 055110 (2014).
- ⁸ M. Kashima, D. Sato, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, H. Amano, H. Iijima, and Takashi Meguro, *J. Vac. Sci. Technol. B* **36**, 06JK02 (2018).
- ⁹ C. F. Knights and B. A. Phillips, *J. Nucl. Mater.* **84**, 196 (1979).

第7章 総括

7.1 本論文の結果概要

本研究では半導体フォトカソードを産業利用するうえでキーとなる量子効率と電流安定性の向上を行った。その結果、InGaN フォトカソードを用いて、ショットキー陰極の 10 倍以上の輝度実現が期待される $20 \mu\text{A}$ で 27 h の連続電子ビーム生成を達成した。

第 1 章では、電子源実用化の歴史を紹介し、新しい電子源の開発によって誕生した産業技術の例を振り返ることで、電子源の重要性を述べた。また、産業技術の進歩によって生まれた新たな電子源の要求に触れ、ニーズにこたえる次世代電子源として NEA 半導体フォトカソードを提唱した。高輝度高安定性を必要とする産業機器の例に半導体検査装置を取り上げた。

第 2 章では、電子ビームの物理量であるエミッタンスを用いて、半導体フォトカソードを SEM に使用した場合に得られるプローブ電流を見積もることで以下のことが明らかになった。

- (1) 典型的な SEM における光学系のパラメーターを用いると、半導体フォトカソードを用いて得られるプローブ電流はエミッション電流の $1/20000$ の値と見積もられる。このときの条件はエミッションサイズ: $1 \mu\text{m}$ 、電子の運動エネルギー: 0.1 eV 、加速電圧: -30 kV 、電子源縮小サイズ: 1 nm である。
- (2) 上記の条件におけるショットキー陰極を用いた場合に得られるプローブ電流は $\sim 60 \text{ pA}$ 程度であるため、それと同等のプローブ電流を得るためには半導体フォトカソードのエミッション電流が $2 \mu\text{A}$ 程度必要となる。すなわち、半導体フォトカソードのエミッション電流が $20 \mu\text{A}$ であれば、ショットキー陰極の 10 倍、 $200 \mu\text{A}$ であれば、100 倍のプローブ電流が見込める。

これらは半導体フォトカソードからの電子ビーム生成原理とこれまでの研究報告を参考にした条件であるため、当然ながら実験による検証が必要である。本研究では半導体フォトカソードを用いた SEM 像撮像まで至らなかったため、上記の値を、半導体フォトカソードを開発、評価する上での指針とした。

第 3 章では、本研究で主に使用したフォトカソード電子源装置 (NPeSII) の詳細を述べた。①ロードロックチャンバー、②NEA チャンバー、③電子銃チャンバー、④励起光源、⑤電源及び制御機器に関する項目が記載されている。本装置を用いてこれまでにない沢山の InGaN フォトカソードに関する知見が得られた。

第 4 章では、InGaN フォトカソードを用いた量子効率の InGaN 膜厚依存性を調査することで以下のことが明らかになった。

- (1) 正面照射及び背面照射のどちらの場合でも InGaN 膜厚の最適値は 50 nm から 160 nm の範囲にある。
- (2) InGaN 膜厚が 50 nm から 160 nm の範囲では背面照射の方が正面照射よりも量子効率が高く、160 nm 以上ではその逆となる。
- (3) InGaN 膜厚を 100 nm に設定することで、背面照射においても 9.8% の高い量子効率を得られる。
- (4) InGaN 膜厚が 50 nm から 160 nm の範囲では光電流の実測により得られる量子効率の励起エネルギー依存性と、吸収係数スペクトルから算出される量子効率の励起エネルギー依存性が一致する。一方、膜厚が 240 nm の場合、光電流の閾値は吸収係数の閾値より 0.1 eV 低エネルギー側へシフトする。
- (5) 励起パワー密度が $1 \times 10^{-3} \text{ W/cm}^2 \sim 1 \times 10^{-1} \text{ W/cm}^2$ の範囲では正面照射と背面照射の両方で量子効率の励起パワー密度依存性に関して InGaN 膜厚による違いはない。一方で、本研究では結論が見出せず、今後更なる検証が必要な点は以下の通りである。

- (1) 電子の励起、拡散、再結合、脱出のモデルだけでは本実験結果の説明ができなかった。膜厚以外のパラメーターが同じとなるサンプル、もしくは各パラメーターを実測により把握したサンプルで量子効率の膜厚依存性を測定することで、このモデルが妥当か否かを検証できる。
- (2) InGaN 膜厚が 240 nm のサンプルで吸収係数の閾値と量子効率の励起エネルギー依存性の閾値が一致しなかったのは、表面の In の偏析が原因と推察された。In の膜厚方向の分布を測定することで、この原因を突き止めることができる。

本研究で明らかになった InGaN の最適膜厚 50 nm ~ 160 nm を今後の InGaN フォトカソ

ドの設計に採用することで、背面照射において高い量子効率を実現でき、それを SEM や TEM に応用することで、高いプローブ電流の生成が期待される。

第 5 章では、InGaN フォトカソードにおける量子効率の励起パワー密度依存を調査することで次のことが明らかになった。

- (1) 励起パワー密度が 1 W/cm^2 以下では励起パワー密度の増加に対し量子効率は 18% からほとんど減少しないが、それ以上になると量子効率は減少し、励起パワー密度が $2 \times 10^3 \text{ W/cm}^2$ になると量子効率は 1.4% まで減少する。
- (2) NEA 表面の劣化により量子効率が減少すると、上記の減少閾値が低パワー密度側へシフトする。
- (3) NPeSII の電極構造において、加速電圧が -500V の場合、電流密度が 1 A/cm^2 を上回ると加速電圧 -10 kV に比べて量子効率が低くなる。
- (4) 実験結果を外挿すると、励起パワー密度が $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ における量子効率は 0.4% と高い値を示す。

一方で、本研究では結論が見出せず、今後更なる検証が必要な点は以下の通りである。

- (1) SPV モデルの計算結果と実験結果が近い特性を示したが、SPV の値やそれによる量子効率の減少率など不明瞭なパラメーターが多いため、量子効率が抑制される原因を追及するには、それぞれを切り分けて測定できるような実験を行う必要がある。
- (2) エミッションサイズが $1 \mu\text{m}$ で励起パワーを 300 mW 程度とした条件で半導体フォトカソードを運用する場合、励起パワー密度が 10^7 W/cm^2 より大きくなるため、その領域での量子効率の評価が必要である。
- (3) 励起パワー密度が 500 W/cm^2 以上になると実験結果とモデルによる算出結果が一致しないため、その原因の追及が必要である。

実験結果から、 $3.8 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ における量子効率が 0.4% と見積られた。これより、300 mW 程度のパワーを有するレーザーと InGaN フォトカソードを用いることでショットキー陰極の 300 倍の SEM プローブ電流が期待される。

第 6 章前半では、InGaN フォトカソードにおいて、レーザーフィードバックシステムによる一定電流発生条件下で、連続稼働時間と電流変動率、量子効率寿命を調査した結果、次のこと

が明らかになった。

- (1) 波長が 405 nm で最大出力が 190mW のレーザーを用いると、電流変動率が 0.1%以下でエミッション電流 20 μA を 13 h 連続で発生させられる。
- (2) エミッション電流が 20 μA の時の量子効率の寿命は暗寿命より 3/100 短くなる。
- (3) エミッション電流が増加すると連続稼働時間と量子効率の寿命が減少するが電流変動率は 0.1%に収まる。

一方で、本研究では結論が見出せず、今後更なる検証が必要な点は以下の通りである。

- (1) モデルから SPV が連続稼働時間に与える影響が見積もられたが、イオンバックポンパードメントとガス吸着が決める寿命を調査するためには、SPV の影響が小さくなるように、レーザースポットサイズを数 mm 以上に広げる必要がある。
- (2) 連続稼働時間とエミッション電流の関係が実験的に明らかになったが、それぞれの実験において真空度が異なってしまうので、真空度をそろえて評価を行う必要がある。また、エミッション電流が 50 μA 以上になると空間電荷制限の影響が大きくなることが予想されるため、加速電圧を-10 kV 以上にする必要がある。

第 6 章後半では、量子効率寿命のカソード温度依存性を調査した結果、次のことが明らかになった。

- (1) カソード温度を 150°Cにすることで連続稼働時間が室温の 2 倍の 27 h となる。
- (2) カソード温度が 250°Cの場合、連続稼働時間は室温の 2/7 となる。
- (3) カソード温度とともに電流変動率も増加する。

一方で、本研究では結論が見出せず、今後更なる検証が必要な点は以下の通りである。

- (1) カソード温度が量子効率寿命に及ぼす影響として、ガス吸着の低減、SPV の抑制、Cs の表面拡散があげられるが、いずれも確信的な根拠が得られていない。上記の影響を確認できる手立てを検証する必要がある。
- (2) 本研究では、NEA 活性の時点で加熱を行っており、Cs と O₂ の供給に対する量子効率の変化もカソード温度によって異なる。それ故、NEA 活性時にすでに特性の異なる表面が形成されている可能性があるため、同 NEA 活性条件下で加熱による耐久性の調査をする必要がある。

以上から、フィードバックシステムとカソード温度制御により、InGaN フォトカソードは産業応用に要求される電子ビームの安定性を十分満たすことが明らかになった。

7.2 今後の課題と展望

半導体検査装置の技術刷新を行うために半導体フォトカソードに求められる性能と、本研究で得られた結果、ならびに実験結果から見込まれる値を表 7-1 に示す。装置の制約上、すべての性能を同時に満たすことを確認することができなかったが、個々に得られたデータから、おおむねすべて満たすことが予想される。しかしながら、本研究では電子の横方向の運動エネルギーに関する追及がほとんどできなかった。励起光の照射方向による違いや、表面状態による違い、励起パワー密度による違いなど、未だに調査されていないことが多い。今後は NPeSII を改造することで、電子の運動エネルギーを測定することが望まれる。運動エネルギーの測定方法としてはソレノイドスキャン法などが挙げられる¹⁾。

本研究結果から、高量子効率、高耐久化が実現された InGaN フォトカソードを用いることで、あらゆる分野で飛躍的な技術革新が期待される。まず、高輝度、高安定化により、半導体検査装置の検査スループット 10 倍以上が期待される。TEM 応用に関しては、クライオ顕微鏡を用いた生体分子の構造決定スループットの向上、液中ホルダーと高輝度パルス電子ビームを組み合わせた新たな微細動的観測の実現が近づいた。加工方面では、マルチ電子ビームを用いた電子線描画スループットの向上などが期待される。

半導体フォトカソード型電子銃を開発、製造する Photo electron Soul 社では、本論文で高輝度高安定性が実証された InGaN フォトカソードを用いた小型電子銃の開発に成功し、SEM 像取得の実証試験が行われている。半導体フォトカソードの実用化による産業技術の刷新が今後大いに期待される。

表 7-1 本研究で達成した性能と達成結果から推定される見込み

要求性能		達成性能		見込み
		4, 5 章	6 章	
高輝度	エミッション電流 $\geq 20 \mu\text{A}$	75 μA	20 μA	$\geq 20 \mu\text{A}$
	電子ビームサイズ $\leq 1 \mu\text{m}$	30 μm	220 μm	1 μm
	運動エネルギー $\leq 0.1\text{eV}$	—	—	—
安定性	連続稼働時間 ≥ 24 時間	—	27 時間	≥ 24 時間
	電流変動 $\leq 0.5\%$	—	0.13%	$\leq 0.2\%$
	ダウンタイム $\leq 5\%$	—	—	$\leq 2\%$
実用性	背面照射	○	—	○
	小型励起光モジュール	○	○	○
	小型電子銃	—	—	—

参考文献

¹I. V. Bazarov, B. M. Dunham, Y. Li, X. Liu, D. G. Ouzounov, C. K. Sinclair, F. Hannon, and T. Miyajima, J. Appl. Phys. **103**, 054901 (2008).

謝辞

本研究の遂行ならびに本論文の作成にあたり、終始に渡り丁寧なご指導と助言を賜りました名古屋大学未来材料・システム研究所教授 工学博士 天野浩先生に謹んで感謝の意を表します。

本研究の遂行および本論文の作成にあたり、終始貴重なご意見、ご指導をいただき、大変お世話になりましたことにつきまして名古屋大学未来材料・システム研究所客員准教授 博士(理学) 西谷智博先生に謹んで感謝の意を表します。修士課程のころから熱心でかつ寛大なお心でこれまでご指導下さりました。このようなご指導がなければフォトカソード研究者としての現在の私はありえませんでした。人生の師と仰いで今後もご指導ご鞭撻のほど、よろしく願います。

本研究の遂行および本論文の作成、実験の指導にあたり、終始貴重なご意見、ご指導、御討論、叱咤激励をいただき、大変お世話になりましたことを名古屋大学未来材料・システム研究所准教授 博士(工学) 本田善央先生に心から感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、数々のご教示と有益なご意見を賜りました、名古屋大学未来材料・システム研究所教授 博士(理学) 五十嵐信行先生、大阪大学 工学研究科教授 工学博士 保田英洋先生に深く感謝の意を表します。

本研究の遂行にあたり、半導体の作製、測定プログラムの開発、3章の計算モデルの構築、ならびに多方面においてご指導をしていただきました、株式会社 Photo electron Soul 博士(工学) 小泉淳氏に心から感謝の意を表します。

本研究の遂行にあたり、活発な議論や共に実験データを取得いただきました、株式会社 Photo electron Soul 博士(工学) 本田杏奈氏に心から感謝の意を表します。

本研究の遂行にあたり、光学系の指導や開発にご協力いただきました、株式会社 Photo electron Soul 博士(理学) 鹿野悠氏に心から感謝の意を表します。

博士後期課程進学をお許しくださり、また叱咤激励を下されました、株式会社 Photo electron Soul 代表取締役 博士(農学) 鈴木孝征氏、取締役 田村逸郎氏、取締役 土谷滋氏に感謝いたします。

株式会社 Photo electron Soul の皆様には、多方面でご協力を頂きました。ここに感謝いたします。

日ごろから数々のご協力、ご助言を頂きました名古屋大学工学研究科電子情報システム専攻天野研究室の皆様ならびに卒業生の皆様に深く感謝いたします。

最後に、研究遂行と本論文執筆は家族の支えなしでは実現しませんでした。ここに感謝いたします。

研究業績

I. 学術論文

- (1) D. Sato, T. Nishitani Y. Honda, and H. Amano;
“Observation of relaxation time of surface charge limit for InGaN photocathodes with negative electron affinity”
Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 05FH05 (2016).
- (2) M. Kashima, D. Sato, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, H. Amano, H. Iijima, and T. Meguro;
“Analysis of negative electron affinity InGaN photocathode by temperature-programed desorption method”
J. Vac. Sci. Technol. B **36**, 06JK02 (2018).
- (3) D. Sato, T. Nishitani, Y. Honda, and H. Amano;
“Recovery of quantum efficiency on Cs/O-activated GaN and GaAs photocathodes by thermal annealing in vacuum”
J. Vac. Sci. Technol. B, **38**, 012603 (2020).
- (4) D. Sato, A. Honda, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, H. Amano;
“Optimization of InGaN thickness for high-quantum-efficiency Cs/O-activated InGaN photocathode”
Microelectron. Eng., **223**, 111229 (2020).

II. 国際学会

- (1) D. Sato, T. Nishitani Y. Honda, and H. Amano;
“The annealing effect for the air-exposed surface on the GaN photocathode”,
The 63rd International Conference on Electron, Ion, and Photon Beam Technology and Nanofabrication(EIPBN2019), May 28-31, Minnesota (USA), P3-07 (2019)
- (2) D. Sato, A. Honda, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, H. Amano;

“Excitation power density dependence of photocurrent from InGaN photocathode”
45th International Conference on Micro & Nano Engineering(MNE2019), September 23-
26, Rhodes (Greece), A7-4 (2019)

III. 国内学会

- (1) D. Sato, T. Nishitani Y. Honda, and H. Amano;
“大気暴露した GaN 半導体フォトカソードの加熱処理に伴う表面状態の光電子分光
観測”
第 79 回応用物理学会秋季学術講演会、18p-431B-11 (2018)
- (2) D. Sato, T. Nishitani Y. Honda, and H. Amano;
“窒素暴露した半導体フォトカソードの加熱処理に伴う表面機能変化”
第 66 回応用物理学会春季学術講演会、12a-W834-5 (2019)
- (3) D. Sato, A. Honda, A. Koizumi, T. Nishitani, Y. Honda, and H. Amano;
“InGaN 半導体フォトカソードにおける量子効率の InGaN 膜厚依存性”
第 67 回応用物理学会春季学術講演会、15a-D215-11 (2020)