

## NEA-GaN 系スピン偏極電子源の実現可能性の追求

### SEARCH FOR FEASIBILITY OF THE NEA-GaN TYPE SPIN POLARIZATION ELECTRON SOURCE

宮内智寛<sup>#,A)</sup>, 山本尚人<sup>B)</sup>, 金秀光<sup>B)</sup>, 真野篤志<sup>C)</sup>, 保坂将人<sup>C)</sup>,  
持箸晃<sup>A,C)</sup>, 高嶋圭史<sup>A,C)</sup>, 加藤政博<sup>D,C,B)</sup>

Tomohiro Miyuchi<sup>#,A)</sup>, Naoto Yamamoto<sup>B)</sup>, Xiuguang Jin<sup>B)</sup>, Atsushi Mano<sup>C)</sup>, Masahito Hosaka<sup>C)</sup>,  
Akira Mochihashi<sup>A,C)</sup>, Yoshifumi Takashima<sup>A,C)</sup>, Masahiro Katoh<sup>D,C,B)</sup>

A) Graduate School of Engineering, Nagoya University

B) High Energy Accelerator Research Organization, KEK

C) Synchrotron Radiation Research Center, Nagoya University

D) UVSOR Facility, Institute for Molecular Science

#### Abstract

We are developing a spin polarization electron source having high spin polarization and high quantum efficiency. From the experiment using the conventional GaAs-based sample and the analysis, we understood that fcc-GaN was promising as a next-generation electronic source material. However, we cannot make superlattice of fcc-GaN of sufficiently large size by the current coating technology. Therefore we measured a spin polarization of the electron beam using a sample of hcp-GaN with the superlattice. As a result, the spin polarization was almost zero when we irradiated a laser of wavelength 405nm and 454nm in a sample of bandgap 2.78 eV. Here we explain the detail of experiment using GaN and the consideration for its results.

## 1. 研究背景

### 1.1 はじめに

我々は、90%以上の高いスピン偏極度と数%程度の量子効率を満たすスピン偏極電子源の開発を目指している。これまでに我々が開発した GaAs 系のスピン偏極電子源は、高いスピン偏極度や良好な量子効率[1]、高輝度と言った特徴を持っており、その応用先として素粒子物理実験の ILC 計画[2]や、電子顕微鏡やスピントロニクスを利用した材料分析機器[3]などが挙げられる。

我々の研究グループではこれまで、GaAs を基本材料に用いた電子源の研究を行ってきた。その結果、今後更に高いスピン偏極度と量子効率を兼ね備えた電子源を開発するには、GaAs 系の半導体では限界があると考え、それに代わる材料として GaN に着目した。本発表では、従来の GaAs 系サンプルの研究結果と共に GaN に着目した経緯を述べ、GaN 系サンプルを用いたスピン偏極度測定実験の詳細、結果について報告する。

### 1.2 GaAs 系電子源の研究結果

現在、我々は歪み補償超格子構造を持った GaAs 系サンプルにて、スピン偏極度 92%、量子効率 1.6%を達成している[1]。このサンプルは Figure1 に示すように GaAs と GaAsP を交互に積層した超格子構造であることに加え、格子定数が超格子層の中間の大きさであるバッファ層 AlGaAsP を用いることで、超格子の積層に伴う歪みの蓄積を緩和している

[4]。この歪み補償超格子構造の採用により、高い結晶性を維持したまま従来よりも活性層の膜厚を増加させることが可能となり、約 90%のスピン偏極度を保ちながら 1%を超える量子効率を同一のサンプルで実現するに至った。

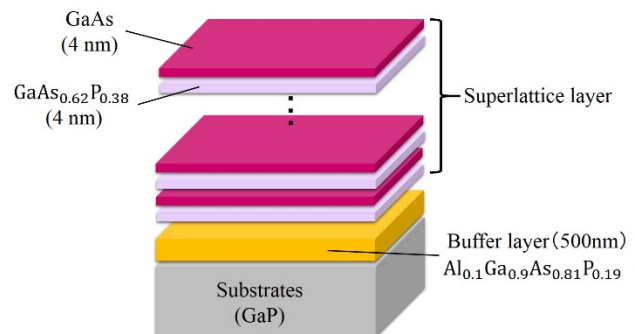


Figure 1: Structure of GaAs/GaAsP strain-compensated super lattice photocathode.

歪み補償超格子構造では結晶性を維持したまま、最大で 720 nm の厚さを持つ活性層を製膜することに成功している。しかし、サンプルのバンド構造は維持されているにも関わらず、300 nm を超える膜厚ではスピン偏極度が低下する傾向が見られた[5]。そこで我々は、膜厚の増加に伴うスピン偏極度の低下要因を、電子が半導体中を拡散する際に起こるスピン緩和であると仮定し、スピン偏極度と膜厚の関係性を算出した。その結果、現実的な半導体のスピン緩和時間と電子拡散速度を用いることで、実験結果を良く再現する結果が得られた (Figure2)[6]。

<sup>#</sup>miyauchi.tomohiro@j.mbox.nagoya-u.ac.jp

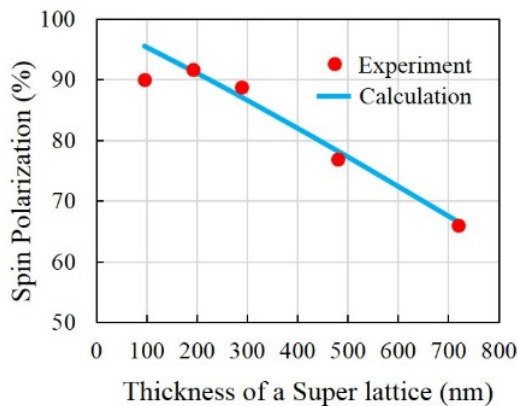


Figure 2: Relationship between spin polarization and the super lattice thickness.

### 1.3 GaN 系サンプルの実験動機

これまでの研究結果から、高スピン偏極度と高量子効率を両立する電子源は、多くの光を吸収し且つ、スピン緩和の影響が小さい必要があると考えられる。しかし、従来の電子源を超える性能を実現するには、GaAs 系の材料では限界がある。

そこで我々は次世代のスピン偏極電子源の基本材料として、光励起が可能な半導体の内 fcc-GaN が有望であると考えた。Table1 に示すように、fcc-GaN はスピン緩和時間と吸光係数共に GaAs よりも大きな値をもっており、電子源の高性能化に期待が持てる。一方、hcp-GaN は GaAs よりもスピン緩和時間が著しく小さいので、スピン偏極電子源には不向きであると予想される。

Table 1: Physical Property of GaN and GaAs

Material	Spin relaxation time [ps]	Absorptivity [ $\text{cm}^{-1}$ ]
fcc-GaN	8000[7]	$1\sim 2 \times 10^5$ [8]
hcp-GaN	0.47[7]	$1\sim 2 \times 10^5$ [8]
bulk-GaAs	300[9]	$1 \times 10^4$ [10]

しかし、現在の成膜技術では実用的な大きさの高純度 fcc-GaN を作成することは困難であり、工業製品や研究で用いられている GaN のほとんどが六方晶である。一方で、フォトカソードとして hcp-GaN を詳細に調査した例は少ない[11]上に、そのフォトカソードから生成された電子ビームのスピン偏極度に関する報告例はない。

こうした現状を踏まえて我々は、hcp-GaN 系サンプルを用いて電子ビームの生成とそのスピン偏極度の測定を行った。

## 2. NEA-GaN フォトカソードについて

### 2.1 実験サンプル

我々が実験に用いたサンプル構造の模式図を Figure3 に示す。サンプルは、有機金属気相成長法 (MOVPE 法) を用いて作成されている。サンプル

の構造は、サファイア基板の上にバッファー層とドーピングされていない GaN が積層されており、それらの上に活性層として Mg が  $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  の濃度でドーピングされた六方晶 GaN と  $\text{GaIn}_{0.2}\text{N}$  が、厚さ 3 nm で交互に 20 組積層されている。また、サンプルの裏面は鏡面仕上げになっているので、背面照射型の電子銃で実験が可能である。

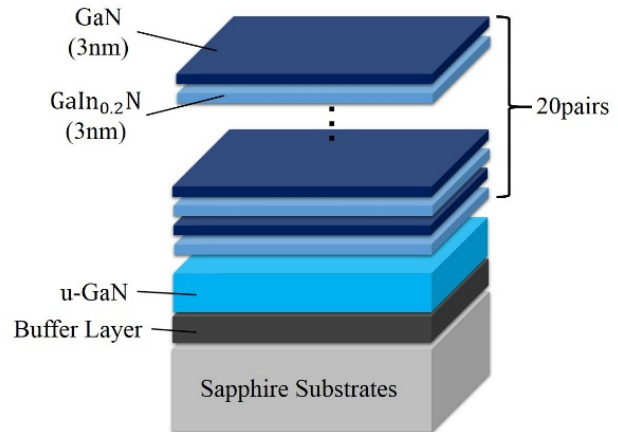


Figure 3: Schematic view of the GaN type sample used for the experiment.

今回の実験に用いたサンプルは、株式会社パウデックで製作されたものである。また、株式会社パウデックにて測定されたサンプルの PL スペクトルを Figure4 に示す。サンプルは 2inch のウエハーに製膜されており、実験にはこれを 10 mm 四方のサイズに切り出して使用した。その部位の PL ピークは 446 nm であり、サンプルのバンドギャップは 2.78 eV と推測された。また、PL ピークの幅は FWHM で 20.7 nm であった。

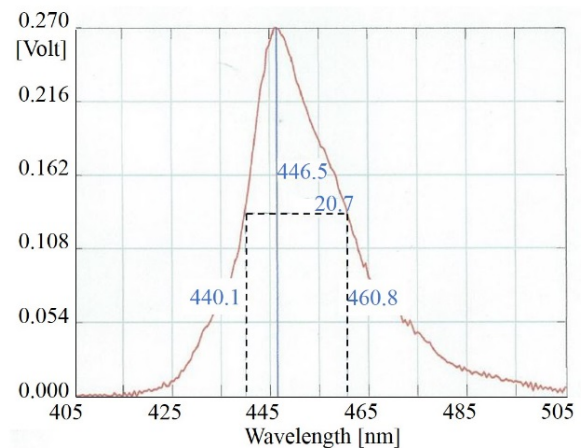


Figure 4: PL spectrum of the GaN/GaNN sample.

### 2.2 バンド構造と電子の放出機構

本研究で用いた NEA-GaN 系フォトカソードでは、NEA-GaAs 系と同様に、電子は下記の三つのプロセスを経て真空へと放出される[10]。スピン偏極した電子ビームが放出される様子を Figure5 に示す。

- I. 円偏光レーザーの入射により、価電子帯に存在する電子が伝導帯へと励起される。(励起過程)

- II. 励起された電子は伝導帯にて半導体中を拡散し、真空との界面まで到達する。(拡散過程)
- III. 半導体表面に作成した、負の電子親和性を持つ NEA 表面 (Negative Electron Affinity) により、電子が真空中へと脱出する。(脱出過程)

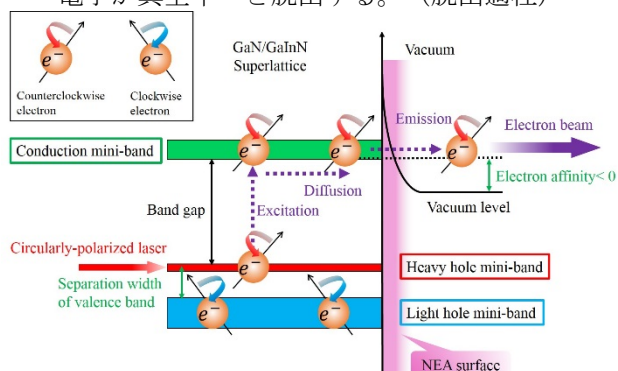


Figure 5: Band structure of the photocathode and schematic of polarized beam generation.

また、スピン偏極電子ビームの生成には、「超格子構造」と「NEA 表面」の二つの重要な要素がある。バルク GaN において分子軌道の縮退している価電子帯最上端部に存在する電子は、超格子サンプルでは有効質量の違いから縮退が解けて価電子帯最上端に一定の分離幅を隔てて存在する。このバンド構造において適切なエネルギーを持った円偏光レーザーを入射することで、スピンの揃った電子が励起される。一方、NEA 表面は真空中でサンプルの清浄表面にセシウムを蒸着させることで製膜でき、真空準位が伝導帯下端よりもエネルギー的に下位に位置する。この表面状態により、半導体中の励起された電子は真空中へと脱出することが可能となる[12]。

### 3. 実験

#### 3.1 NEA 表面作成

実験ではまず、Figure6 に示す装置にて、NEA 表面の作成を行った。サンプルはヒーターと電極を備えたフォルダにセットされ、サンプルの正面にセシウムディスペンサーが設置されている。実験は全て真空中で行われ、真空度は  $1 \times 10^{-8}$  Pa である。励起に用いるレーザーは、真空容器に設けられたビューポートからサンプルの正面に向けて照射する。

NEA 表面の作成では、初めにサンプルを  $430^\circ\text{C}$  で 1 時間ほど加熱洗浄をした後、室温まで自然冷却した。なお、温度はサンプル自体ではなくサンプルから離れた位置において計測した為、実際のサンプル温度よりも数十度から百度近く低いと予想される。その後、真空度が  $8 \times 10^{-8}$  Pa 付近の状況下で、セシウムディスペンサーを用いてサンプルの表面にセシウムを 1 時間ほど蒸着させた。また、セシウムの蒸着中は、波長 405nm の半導体レーザーをサンプルに照射し、-500 V のバイアス電圧を印加しながら試料電流を測定することで、量子効率をモニタした。

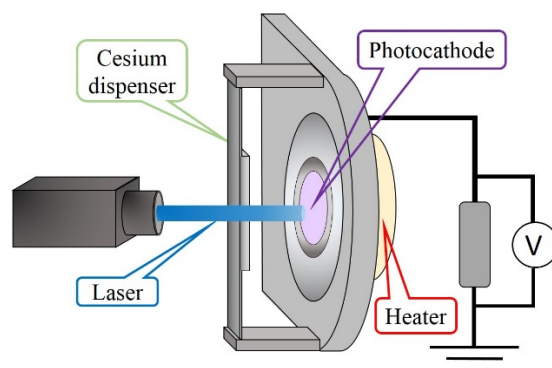


Figure 6: Schematic of producing the NEA surface.

今回の実験における NEA 表面作成時の、セシウムの蒸着時間と量子効率の関係を Figure7 に示す。今回は量子効率が 1% 近くの NEA 表面が得られた。

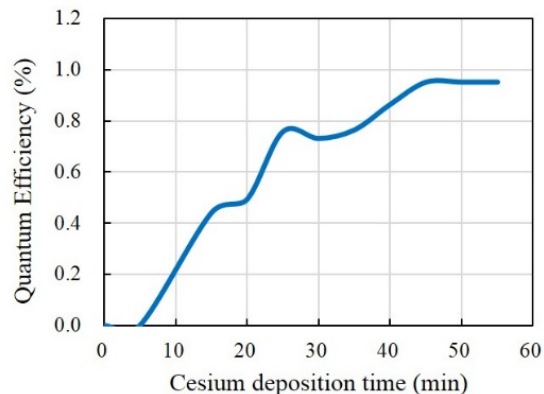


Figure 7: Change of the quantum efficiency for the cesium deposition time.

NEA 表面は真空中の残留ガスや、電子ビームを放出することによるイオン逆流などの影響で劣化することが知られている。今回、スピン偏極度を測定する際、引き出し電流を 60 nA 程度で 6 時間程度、電荷量にして約 1.3 mC を連続して放出することが可能であった。また、NEA 表面の寿命や量子効率は、加熱洗浄の温度や時間に大きく影響されることが分かっている。GaN 系サンプルは  $500^\circ\text{C}$  程度まで耐えられるので、厳密なサンプル温度を測定しながら加熱洗浄の条件を最適化することによって、更に長寿命で高い量子効率の NEA 表面が実現可能であると考えている。

#### 3.2 電子銃

NEA 表面を作成した後、スピン偏極度を測定する為に電子銃へとサンプルを移送する(Figure8)。この時、NEA 表面を作成するチャンパーと電子銃はバルブを隔てて連結しており、備え付けられたロッドを用いて真空を破らずに移送できる。電子銃は真空度が  $8 \times 10^{-10}$  Pa 程度であり、最大で 30 kV の電圧をサンプルに印加できる。

励起光として用いるレーザーは、電子銃大気側にマウントされた  $\lambda/4$  板により直線偏光から円偏光に変換された上で真空チャンパーに導入される。さら

にレーザーはサンプルの背面にマウントされた集光レンズを通して照射される。円偏光度の測定は、Figure8 において $\lambda/4$ 板の下流にグランレーザープリズムを設置し、回転検光子法の要領で行った。今回の実験で使用する 2 種類の波長のレーザーにおける偏光度は、405 nm で 99.8%、454 nm で 98.3%であった。

スピン偏極度を測定する Mott 検出器は、電子銃と真空経路で接続されており、途中のステアリングコイルと静電球形コンデンサーにより電子ビームが移送される。

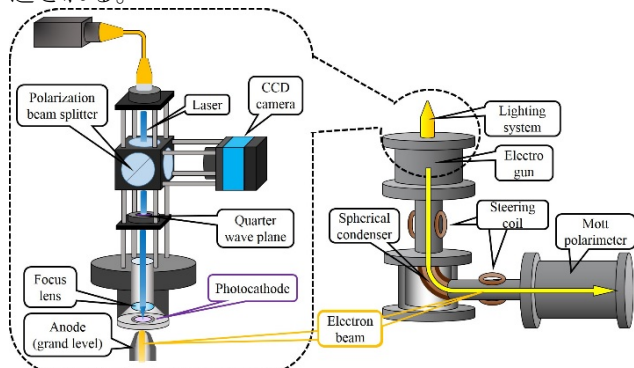


Figure 8: Schematic view of pump laser injection system and beam transport line to Mott polarimeter.

### 3.3 Mott 検出器によるスピン偏極度測定

本実験ではスピン偏極度の測定に、Mott 散乱を用いた[13]。スピン偏極度測定は 100 keV のエネルギーで行った。Mott 散乱は電子が原子核と衝突し散乱する際、電子の散乱後の軌道にスピンの違いによる非対称性が生じる。これにより、ターゲットに衝突・散乱した後の電子の軌道中に検出器を設置することで、スピン別に電子のカウント数を測定することが出来る。

今回、スピン偏極度測定に用いた Mott 検出器の模式図を Figure9 に示す。検出器はターゲットと回路部分で構成されており、回路部の途中まで +85 kV に昇圧されている。ビームは電子銃部分で 15 keV に加速されており、合計 100 keV のエネルギーでターゲットの金箔と散乱する。散乱電子はビーム軸に対して  $\pm 120^\circ$  の位置に設置された SSD により検出され、メインアンプにより増幅された後、光信号に変換されてグランドレベルの回路に取り出される。フォトダイオードにより取り出された信号は、I/V コンバータを介してリニアアンプ・MCA(Multi Channel Analyzer)にて波高情報をもとにエネルギー分解される[12]。

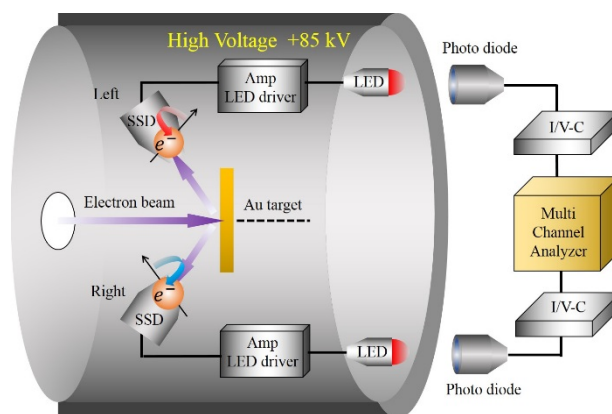


Figure 9: Schematic view of the data acquisition with the Mott measuring instrument.

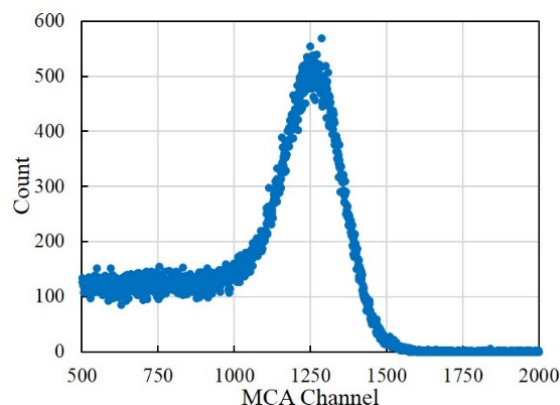


Figure 10: The electron energy spectrum measured on MCA.

MCA で測定した電子のエネルギースペクトルを Figure10 に示す。このスペクトルには、弾性散乱した電子による信号成分と、非弾性散乱や X 線などによるバックグラウンド成分が混在している。従って、MCA より得た信号からバックグラウンド成分を差し引いた成分が、スピン偏極情報を共有した電子のカウント数として用いられ、左右の検出器から得られる電子数の非対称性から最終的にスピン偏極度が算出される。今回の実験では、波長 405 nm と 454 nm の励起レーザーを用いてそれぞれの時のスピン偏極度を測定した。

## 4. 実験結果・考察

### 4.1 測定結果

2 種類の波長のレーザーを用いて得られたスピン偏極度の測定結果を Table2 に示す。励起レーザーの波長が 405nm の時、スピン偏極度は 2.1%、454 nm の時 0.13%であった。一回 Mott 散乱を利用したスピン偏極度の系統誤差は 6%程度存在するため、今回用いた GaN/GaInN 超格子サンプルから得られる電子ビームは、ほぼ無偏極の状態であったと言える。

Table 2: Spin Polarization Every Wavelength

Incident laser wavelength	Spin polarization
405 nm	2.1%
454 nm	0.13%

## 4.2 考察

スピン偏極度測定結果の妥当性を検討する為、GaAs 系電子源におけるスピン偏極度と膜厚の関係性を再現した計算モデルを用いて、GaN 系電子源のスピン偏極度を見積もった。計算モデルでは励起直後の電子はスピン偏極度 100%とし、半導体中の拡散距離に対して指数関数的にスピン偏極度が緩和していくモデルである。尚、このモデルには不純物準位からの電子の励起やバンド構造の乱れなどの影響は考慮していない。使用した物性値はバルクの hcp-GaN のスピン緩和時間 0.47 ps[7]と、一般的な半導体の電子の飽和拡散速度  $1 \times 10^5$  m/s である。計算の結果、今回用いたサンプルのスピン偏極度は 28.3%と算出された。

実際のサンプルの物性値は、計算に用いた値よりも小さくなると予想される。なぜなら、超格子構造は結晶構造の界面が多いため、バルク状態よりも電子が散乱されやすい状態であるので、電子の拡散速度は飽和速度よりもかなり小さい値になる。また、電子の拡散速度を  $1 \times 10^4$  m/s として計算するとスピン偏極度は 2%と算出され、ほぼ無偏極となる。さらに、hcp-GaN のスピン緩和時間は GaAs よりも 3 桁程小さいことから、GaAs 系電子源よりもスピン偏極度はかなり小さくなるとも予想される。従って、今回の実験結果は妥当な値が得られたと考えられる。

これまでの実験結果と計算結果の比較から、電子源に用いる半導体のスピン緩和時間はビームのスピン偏極度に大きな影響を与えることが言える。大きなスピン緩和時間が期待できる fcc-GaN では現時点で電子源サンプルを作ることが困難であるが、将来的に製膜技術が進歩し、電子源として利用できるようになれば、高い量子効率とスピン偏極度を両立させたスピン偏極電子源の実現が期待できる。

## 5. まとめ

本研究では、六方晶系 GaN 超格子サンプルの電子ビームのスピン偏極度を測定した。Mott 散乱を用いた測定方法により、今回用いたサンプルと励起光の波長では、その電子ビームはほぼ無偏極であることが確認された。従来用いてきた GaAs よりもスピン緩和時間が短い hcp-GaN であった為、このような結果は妥当であると言える。

次世代のスピン偏極電子源の有力候補である fcc-GaN は、その製膜技術が実用レベルに至っておらず、その実現が待たれる。

## 謝辞

本研究の一部は、高エネルギー加速器研究機構大学等連携支援事業による支援を受けて行った。

## 参考文献

[1] X.G. Jin *et al.*, “Effect of crystal quality on performance of

- spin-polarized photocathode”, Applied Physics Letters 105, 203509 (2014).
- [2] <http://www.linearcollider.org/>
- [3] T. Nakanishi *et al.*, “Spin polarized electron source technology transferred from HE accelerators to LE electron microscopes”, Proceedings of Particle Accelerator Society Meeting 2009, JAEA, Tokai, Naka-gun, Ibaraki, Japan.
- [4] X.G. Jin *et al.*, “High-Performance Spin-Polarized Photocathodes Using a GaAs/GaAsP Strain-Compensated Superlattice”, Applied Physics Express 6 (2013) 015801.
- [5] N. Yamamoto *et al.*, “歪み補償超格子構造を用いたスピン偏極電子源開発”, Proceedings of Particle Accelerator Society Meeting 2015, WEP042.
- [6] 宮内智寛, 名古屋大工学部物理工学科 2015 年学士論文 “NEA-GaAs 型超格子を用いたスピン偏極電子源における電子生成過程の解析” .
- [7] A. Tackeuchi *et al.*, “Nanosecond excitonic spin relaxation in cubic GaN”, Applied Physics Letters 88, 162114 (2006); doi: 10.1063/1.2195779.
- [8] <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaN/>
- [9] M. Kimura *et al.*, “時間分解フォトルミネッセンスによるスピン緩和時間の測定”, 日本応用磁気学会誌 20,253-256 (1996).
- [10] S. Karkare *et al.*, “Monte Carlo charge transport and photoemission from negative electron affinity GaAs photocathode”, Applied Physics Letters 113,104904 (2013).
- [11] T. Nishitani *et al.*, “Photoemission lifetime of a negative electron affinity gallium nitride photocathode”, Journal of Vacuum Science & Technology B 32, 06F901 (2014); doi: 10.1116/1.4901566.
- [12] 山本尚人, 名古屋大学大学院理学研究科 2007 年博士論文 “NEA-GaAs 型超格子薄膜結晶を用いた高輝度・高スピン偏極度・大電流密度ビームを生成する電子源の開発” .
- [13] T. Nakanishi *et al.*, JJAP 25, 5 (1986) pp.766-767.