

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：73905

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246003

研究課題名(和文) 超高輝度・高偏極度電子源の高効率化

研究課題名(英文) Improvement of quantum efficiency of super-high brightness and high spin-polarization photocathodes

研究代表者

竹田 美和 (Takeda, Yoshikazu)

公益財団法人名古屋産業科学研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：20111932

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 28,600,000円、(間接経費) 8,580,000円

研究成果の概要(和文)：精度の高い超音波式流量制御系により「歪み補償超格子構造」を最大90ペアまで成長できた(従来は12ペアが限界)。そのため、当初予定していた「張り合わせ」という困難なプロセスは不必要となり、取り止めた。また、格子整合系で透明な基板としてZnSeが利用可能となり、この基板上への成長に成功しており、ここでも張り合わせは不必要となった。ファイバー付き半導体レーザーによる励起により、励起系が小型化できた。また、状態密度の平坦部(770～780nm)で偏極度が最大となり、量子効率も4倍の増加を得た。

研究成果の概要(英文)：Using the high precision ultrasonic mass flow controller, the strain-compensated superlattice was grown up to 90-pair (using previous controller 12-pair was a limit.) . Then, the originally planned technique, i.e., the adhesion process onto a transparent substrate, was not necessary and the adhesion process was not tried. In addition to it, lattice-matching and transparent substrate, ZnSe, was available and the growth of GaAs on ZnSe was successfully conducted. This also shows that the adhesion process was not necessary. Due to the stability of the appropriate excitation energy, use of semiconductor laser became possible. The excitation wavelength at the peak polarization located at the flat region (770～780nm) of the density-of states and then the quantum efficiency increased by 4 times.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：結晶成長 スピントロニクス 表面・界面物性 量子エレクトロニクス 量子ビーム

1. 研究開始当初の背景

我々の研究グループでは、2000年にスピン偏極電子源を GaAs/GaAsP 歪み超格子構造で作製することにより、従来値の3倍となる世界最高記録の92%のスピン偏極度を実現した。さらに2008年には裏面照射型フォトカソードの作製に成功し、90%の高スピン偏極度と輝度が従来値の4桁となる $1.3 \times 10^7 \text{A} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1}$ を達成した。この電子源は、SPLEEM (Spin-Polarized LEEM) に搭載され、磁性体の磁区観察を実時間で観察することに成功した。しかし、量子効率(励起光子数に対する電子数)が0.1%と低く、また、格子不整合を緩和するために高密度の貫通転位や積層欠陥を含んでいるため、大電流使用時の寿命に問題があると考えられていた。

2. 研究の目的

本研究グループは、上記のように画期的な超高輝度・高偏極度の半導体電子源の開発に成功していた。しかし、これで十分ではなく、結晶成長学的にも電子源的にも、未解決で重要な課題がある。そのひとつは、効率が低いこと、もうひとつは内在する歪みが大き過ぎ、大電流使用時の欠陥増殖の可能性があることである。透過電子顕微鏡や低エネルギー電子顕微鏡などの微小電流用には、現在のフォトカソードで十分であるが、次世代加速器 ERL (Energy Recovery Linac) や国際線形加速器 ILC (International Linear Collider) の電子源には、このフォトカソードが必要不可欠であり、いずれも高量子効率と大電流化が求められている。本研究はこの高効率と低欠陥の両者を達成することを目的とした。

3. 研究の方法

以下の3点の遂行により目的を達成する計画を立てた。

(1) 流量制御：超格子全体で平均歪みが0となる組成と層厚の調整が必要である。現在の原料流量制御装置は組成 0.35 ± 0.02 、層厚 $8 \text{nm} \pm 0.4$ が限界で、一桁精度の高い超音波式流量制御系に交換する。

(2) (不透明な)GaAs 基板に格子整合する超格子の成長は既実績があるので、透明基板への貼り合わせを確立する。

(3) (1)により、励起エネルギーが一定化され、半導体レーザーでの励起が可能となるため、小型化に大きく寄与する。また、急峻な階段状の状態密度を得て量子効率を向上させる。

4. 研究成果

平成23年度は、超格子層への歪みの印加調整のための中間層に AlGaAs を用いることにより、GaAs 中間層による励起光の吸収を抑制し、GaP 基板に反射防止膜を設けることにより、偏極度90%を保ったまま、量子効率を0.1%から0.4%へと4倍の増大に成功した。これらの構造図を図1、図2に、量子効率とスピン偏

極度のグラフを図3、4に示す。

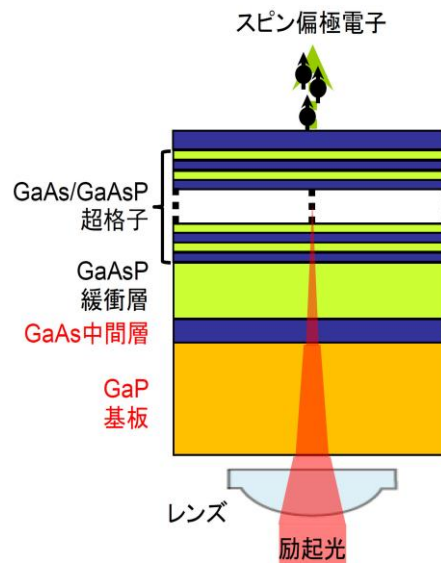


図1 GaAs 中間層を用いた歪み超格子構造.

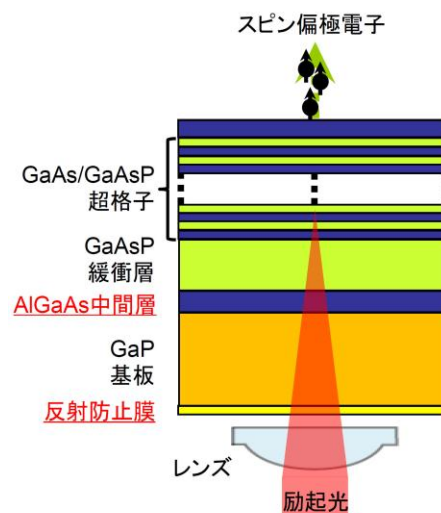


図2 AlGaAs 中間層と反射防止膜を用いた.

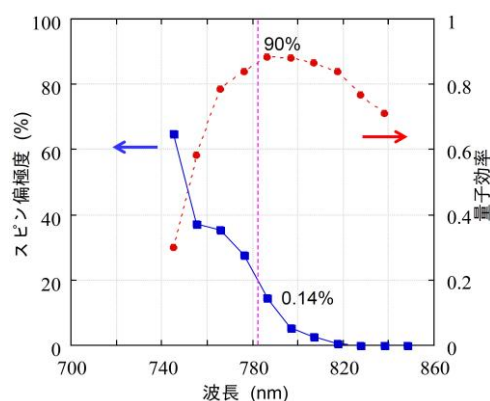


図3 図1の構造の電子源特性.

また、中間層なしの場合の超格子厚さの変調発生原因と中間層による変調抑制の機構を、ナノビーム電子顕微鏡による観察結果より明らかにした。

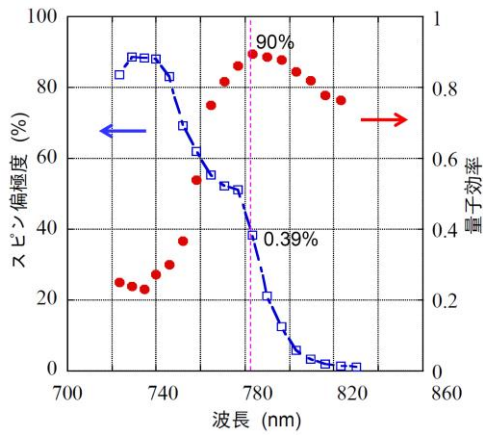


図4 図2の構造の電子源特性. 超格子の層厚と周期の均一化により、状態密度の平坦部(770~780nm)で偏極度が最大となっている。

これらの成果に基づき、平成24年度では新たに $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}_{0.81}\text{P}_{0.19}$ を中間層に採用するに至った。この中間層は、励起光(1.55eV)に対して透明であるとともに、超格子を構成するGaAsと $\text{GaAs}_{0.62}\text{P}_{0.38}$ の中間の格子定数であり、GaP基板の格子を緩和した後は、超格子の歪み補償構造となる。その構造の模式図を図5に示す。

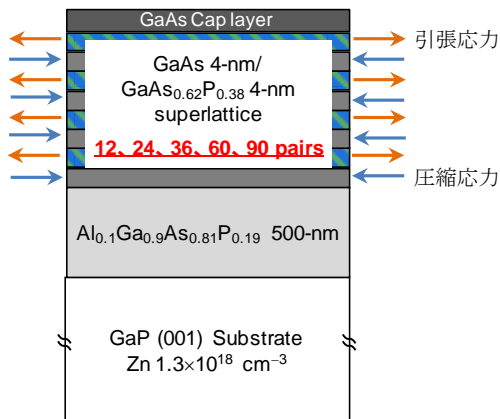


図5 $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}_{0.81}\text{P}_{0.19}$ 中間層を用いた歪み超格子構造(90ペア-まで成長)。

従来のGaAsやAlGaAs中間層では歪の蓄積を免れず、超格子ペア数に制限があった(12ペアにとどまっていた)が歪み補償構造の採用によってそれが解除され、図5に示すように90ペアまでの成長が可能となった。そのTEM像を図6に示す。そのため、「張り合わせ」という困難なプロセスは得策ではなくなり、取り止めた。

歪み補償構造とすることによるペア数の増加は、フォトカソードによる励起光の吸収率が増加することを示し、従って量子効率が増大することに至る。これは実験的に確認され、12ペア、24ペア、36ペアの超格子を持つフォトカソードでは、図7に示すようにいずれも90%の偏極度を保ったまま、

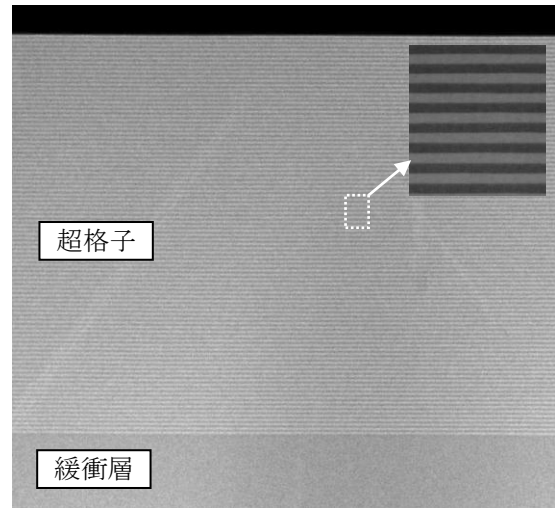


図6 90ペア-の歪み補償超格子のTEM写真。

量子効率がそれぞれ0.1%、0.4%、0.5%へと確実に増加した。これらはいずれもGaP基板側の反射防止膜なしでの値である。しかし、スピン偏極度は36ペアを越えると大きく低下した(図8)。

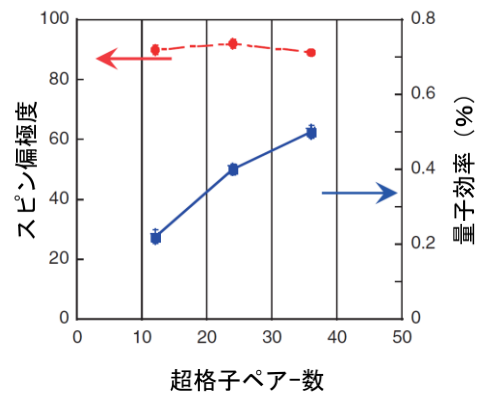


図7 歪み補償超格子のペア数とスピン偏極度および量子効率。

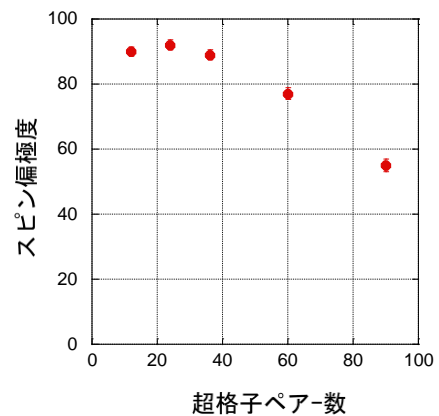


図8 歪み補償超格子のペア数とスピン偏極度および量子効率。

量子効率をさらに上げる(1%以上)のために、①励起波長を短波長化し、負親和力表面近くで電子を生成する、②負電子親和力の大きいGaInP系超格子を新たに用いる、を最終年度の実施計画とした。その結果、①については励起光の短波長化で、1%以上を容易に達成できる(例えば、従来の850nmを785nmとすることで2.1%を達成。ただし、スピン偏極度はやや下がる)。②としてはまずGaInP薄膜フォトカソードでの実験を行った。図9のように、523nmの励起光で14%の量子効率と τ_{90} で6.5psの時間応答を得た。今後GaInP/AlInP系歪み超格子へと展開する。

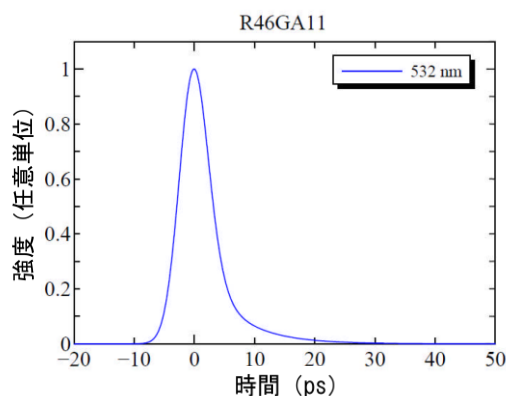


図9 GaInPフォトカソードの時間応答特性。半値幅で6ps、電荷量90%値で6.5ps。

目標と結果のまとめ

(1) 流量制御について：精度の高い超音波式流量制御系により歪み補償超格子構造を最大90ペアまで成長できた(従来は12ペアが限界)。

(2) 透明基板への貼り合わせについて：歪み補償構造の採用によって90ペアまでの成長が可能となった。そのため、「張り合わせ」という困難なプロセスは不必要となり、取り止めた。また、後で述べるが、格子整合系で透明な基板としてZnSeが利用可能となり、この基板上への成長に成功している。ここでも張り合わせは不必要となった。

(3) 半導体レーザーでの励起と小型化および急峻な階段状の状態密度を得て量子効率を向上させる：ファイバー付き半導体レーザーにより励起を行っている。また状態密度の平坦部(770~780nm)で偏極度が最大となり、量子効率も4倍の増加を得た。

これらの成果が得られたことで、今後の計画として、反射防止膜付きGaInP/AlInP系歪み超格子(523nmの励起光にも透明でGaInP系に格子整合するZnSe基板上)の作製および表面がより安定なGaN系フォトカソードの作製を考えている。いずれも結晶成長に成功している。GaN系フォトカソードは歪みの大きいGaInN/GaNとなるため臨界膜厚のそ

の場合測定が可能な結晶成長装置を製作し、すでに実験を積み上げている。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計13件)

- ① X.G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, N. Tanaka, and Y. Takeda, Nano-scale characterization of GaAsP/GaAs strained superlattice structure by nanobeam electron diffraction, *Applied Physics Letters*, 査読有り, Vol. 104, 2014, 113106-1~4
DOI: 10.1063/1.4869030
- ② G.X. Ju, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *In situ* X-ray measurements of MOVPE growth of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ single quantum well, *Journal of Crystal Growth*, 査読有り, Vol. 370, 2013, 36~41
- ③ X.G. Jin, A. Mano, F. Ichihashi, N. Yamamoto, and Y. Takeda, High-performance spin-polarized photocathodes using a GaAs/GaAsP strain-compensated superlattice, *Applied Physics Express*, 査読有り, Vol. 6, 2013, 015801-1~3
DOI: 10.7567/APEX.6.015801
- ④ G.X. Ju, S. Fuchi, M. Tabuchi, and Y. Takeda, *In situ* X-ray measurements of MOVPE growth of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ single quantum well, *Journal of Crystal Growth*, 査読有り, Vol. 370, 2013, 36~41
- ⑤ X.G. Jin, S. Fuchi, and Y. Takeda, Effect of compressive strain relaxation on surface morphology in GaAsP growth on GaP substrate, *Journal of Crystal Growth*, 査読有り, Vol. 370, 2013, 204~207
DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.09.008
- ⑥ Y. Honda, S. Matsubara, X.G. Jin, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, M. Kuwahara, and Y. Takeda, Temporal response measurements of GaAs-based photocathodes, *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有り, Vol. 52, 2013, 086401-1~7
DOI: 10.7567/JJAP.52.086401
- ⑦ X.G. Jin, S. Matsuba, Y. Honda, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, and Y. Takeda, Picosecond electron bunches from GaAs/GaAsP strained superlattice photocathode, *Ultramicroscopy*, 査読有り, Vol. 130, 2013, 44~48
- ⑧ X.G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, T. Saka, T. Ujihara, N. Tanaka, and Y. Takeda, Analysis of thickness modulation in GaAs/GaAsP strained superlattice by TEM observation, *Journal of Crystal Growth*, 査読有り, Vol. 353, 2012, 84~87
DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.05.017
- ⑨ S. Matsuba, Y. Honda, X.G. Jin, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, M. Kuwahara,

and Y. Takeda, Mean transverse energy measurement of negative electron affinity GaAs-based photocathode, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有り, Vol. 51, 2012, 046402-1~7
DOI: 10.1143/JJAP.51.046402

- ⑩ X.G. Jin, F. Ichihashi, A. Mano, N. Yamamoto, and Y. Takeda, Fourfold increase of quantum efficiency in highly spin-polarized transmission-type photocathode, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有り, Vol. 51, 2012, 108004-1~2
DOI: 10.1143/JJAP.51.108004

[学会発表] (計 29 件)

- ① Y. Takeda
Pulse operation of spin-polarized photocathodes, Workshop on Novel Surface Microscopy and Spectroscopy 2014 in OECU, Eki-Mae Campus, Osaka Electro-Communication University, March 24~25, 2014 (招待講演)
- ② Y. Takeda
in-situ and *ex-situ* X-ray measurements on buried heterostructures for semiconductor devices, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha University, Kyotanabe Campus, Japan, 16a-M7-2, September, 16~20, 2013 (招待講演)
- ③ X.G. Jin, H. Nakahara, K. Saitoh, N. Tanaka, Y. Takeda, Nano-scale characterization of GaAsP/GaAs strained superlattice structures by nano-beam electron diffraction, 17th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy, August 11~16, 2013, Warsaw, Poland
- ④ 金 秀光, 真野 篤志, 市橋 史朗, 山本 尚人, 竹田 美和, GaAs/GaAsP 歪み補償超格子構造による高機能スピン偏極電子源の高量子効率化, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 17p-DP3-4, 2012 年 3 月 15 日~18 日, 早稲田大学
- ⑤ 金 秀光, 中原 弘貴, 齋藤 晃, 坂 貴, 田中 信夫, 竹田 美和, GaAs/GaAsP 歪み超格子の成長における GaAs(001)面と微傾斜面が層厚変調へ及ぼす影響, 第 59 回応用物理学関係連合講演会, 17p-DP3-5, 2012 年 3 月 15 日~18 日, 早稲田大学
- ⑥ T. Koshikawa, T. Yasue, M. Suzuki, K. Tsuno, S. Goto, X.G. Jin, and Y. Takeda, Novel development of very high brightness and highly spin-polarized electron gun with compact 3D spin manipulator for SPLEEM, IVC-19/ICSS-15 AND ICN+T, Paris, France September 9~13, 2013 (招待講演)
- ⑦ 金 秀光, 真野 篤志, 市橋 史朗, 山本 尚人, 竹田 美和, GaAs/GaAsP 歪み補償超格子構造による高機能スピン偏極電子源の高量子効率化, 第 59 回応用物理

学関係連合講演会, 17p-DP3-4, 早稲田大学, 2012 年 3 月 15 日~18 日

- ⑧ S. Matsuba, Y. Honda, T. Miyajima, T. Uchiyama, M. Yamamoto, X.G. Jin, Y. Takeda, Initial emittance and temporal response measurement for GaAs based photocathodes, International Particle Accelerator Conference 2012, MOPPP035, Ernest N. Morial Convention Center, New Orleans Louisiana, USA, May 20~25, 2012
- ⑨ 市橋 史朗, 金 秀光, 山本 尚人, 真野 篤志, 栗原 真人, 淵 真悟, 宇治原 徹, 竹田 美和, AlGaAs 中間層及び Si₃N₄ 反射防止膜の導入による透過型 GaAs/GaAsP 歪み超格子スピン偏極フォトカソードの量子効率向上, 第 72 回応用物理学学会学術講演会, 31a-ZA-13, 山形大学, 2011 年 8 月 29 日~9 月 2 日
- ⑩ X.G. Jin, A. Mano, N. Yamamoto, M. Suzuki, T. Yasue, T. Koshikawa, N. Tanaka, and Y. Takeda, Super-high brightness and high spin-polarization photocathode for spin-polarized LEEM and pulse spin-TEM, The 19th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems and the 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures, Th-1-5, July 25-29, 2011, Tallahassee, Florida, USA

[図書] (計 1 件)

- ① 竹田 美和, マイクロビームアナリシス 第 141 委員会, 日本学術振興会, 強力永久磁石の開発と軸観察先端技術, 第 6 章, 高輝度・高スピン偏極度フォトカソードの開発, 2014 年 3 月 (CD 版), 総ページ数 416 頁, 183~216

[産業財産権]

- 出願状況 (計 2 件)
名称: 半導体フォトカソード
発明者: 金 秀光, 竹田 美和, 山本 将博, 宮島 司, 本田 洋介
権利者: 同上
種類: 特許権
番号: 特願 2012-221001(JP)
出願年月日: 2012 年 10 月
国内外の別: 国内
- 名称: スピン偏極電子発生素子及びその作製方法
発明者: 金 秀光, 淵 真悟, 竹田 美和
権利者: 同上
種類: 特許権
番号: 特願 2012-108186(JP)
出願年月日: 2012 年 5 月
国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹田 美和 (TAKEDA Yoshikazu)
公益財団法人名古屋産業科学研究所・その他
他部局等・研究員
研究者番号：20111932

(2) 研究分担者

金 秀光 (JIN, Xiugaung)
名古屋大学・学内共同利用施設等・特任助
教
研究者番号：20594055

田淵 雅夫 (TABUCHI, Masao)
名古屋大学・学内共同利用施設等・特任教
授
研究者番号：90222124

淵 真悟 (FUCHI, Shingo)
青山学院大学・理工学部・准教授
研究者番号：60432241