

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25706031

研究課題名(和文)非線形光学効果を用いたスピン量子ビーム源の開発

研究課題名(英文)Novel spin-polarized electron source using a non-linear optical absorption

研究代表者

桑原 真人(Kawahara, Makoto)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

研究者番号：50377933

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,200,000円

研究成果の概要(和文)：ワイドバンドギャップ半導体をNEAフォトカソードとして利用し、且つ二光子励起過程によるスピン偏極電子生成により、励起波長、光の回折限界、寿命問題を同時に克服する新しい光陰極型電子源の研究を実施した。二光子励起用の背面照射型InGaN-GaN超格子フォトカソードの作成に成功した。また、二光子励起用光学系およびパルス電子線計測系を構築し、二光子吸収による伝導帯への電子励起の確認に成功した。また、二次の吸収過程に起因する放出スポットの縮小が初期エミッタンス低減に寄与することを見出した。これにより、新方式による高品質かつ高効率なスピン偏極電子源の可能性を示すことができた。

研究成果の概要(英文)：We have researched a possibility of a novel spin-polarized electron source using a two-photon absorption. A nitride semiconductor was used for the substrate of NEA-photocathode to realize high quantum efficiency, long lifetime and tiny emission spot which contributed to a beam quality such brightness and emittance. We have succeeded in development of a newly designed photocathode that consists of InGaN-GaN superlattice optimized for the two-photon absorption. Detection system for pulsed electron-beam and optical system were constructed and used for the excitation of spin-polarized electron. Experimental results indicated that two-photon absorption occurred in the fabricated photocathode. The nonlinear absorption let the emission spot smaller than that of one-photon absorption, which generates a low initial emittance. We have demonstrated that the novel photocathode with the nonlinear photo-excitation will provide a high quality electron beam and a high stability of electron emission.

研究分野：電子顕微鏡

キーワード：スピン 量子ビーム 量子光デバイス 非線形光学効果

1. 研究開始当初の背景

電子の自由度であるスピンは、スピントロニクス分野や量子情報、ナノ磁性デバイスに至る物性分野、更には素粒子物理において、その根幹をなす物理量である。この量を量子ビームに付与したスピン偏極電子ビームは、これら分野において絶大な威力を発揮するツールとなる。

現在、スピン偏極電子ビームは唯一 NEA (Negative Electron Affinity (負の電子親和性)) 表面を有するフォトカソード型 (NEA フォトカソード) 電子銃により生成可能である。この電子ビームは、電子顕微鏡に代表される計測・分析アプリケーションにおいて、スピン偏極電子源を含む NEA フォトカソード電子源が、高輝度・大電流かつ狭いエネルギー分散を実現できる高性能電子源として注目を浴びている。これに伴い、スピン偏極 LEEM やスピン偏極透過電子顕微鏡 (SP-TEM) の開発が精力的に進められており、スピン偏極電子線を用いて 1nm の空間分解能や 0.2eV のエネルギー分解能が既に実現されている。さらに NEA フォトカソード電子源は優れたパルス応答を有する電子源であるため、空間マッピングをピコ秒～フェムト秒の時間分解測定を可能とするものとしても、大きく注目をされている。これは、ナノメートル以下の局所スピン情報の時間応答について原子・分子レベルでの物理的解明に大きく貢献する大きな意義を有している。

国内外の顕微鏡分野において、時間分解電子顕微鏡開発が活発に行われている状況の中、パルス電子線発生可能なフォトカソード電子銃の高性能化が重要な開発要素となってきている。またヨーロッパにおける PHIN 計画に代表されるフォトカソード電子銃開発の大型プロジェクトが計画されるなど、その重要性から開発研究の機運が国内外で高まっている状況である。特に、電子顕微鏡分野において、シングルショット撮像が可能な DTEM は米国 PPNL、LLNL にて実施されている。これは高い電荷量を持った数十 ns のパルス電子線により、非可逆過程の TEM 像観察が可能となる強力な電子顕微鏡である。一方、ストロボスコーピック観察可能な UEM は、UEM は様々な機関で精力的に進められており、米国・Caltech、スイス・EPFL、ドイツ・Göttingen 大学、フランス・Strasbourg 大学で既に実現されている。これらの電子源では、LaB₆ や銀ターゲットに紫外レーザー照射することで電子放出をさせるタイプが用いられている。また現在進行中のプロジェクトとしては、フランス FemTOTEM プロジェクト、米国 Illinois 大 DETEM などがある。特に、FemTOTEM ではコヒーレント時間分解測定を目指しており、カソードは冷陰極電界放出電子源とレーザーを組み合わせたものとなっている。これらに共通する問題点は、量子効率が低いため非常に強力な紫外レーザーを用いる必要があり、カソードの急速な劣化やそれに伴い装置の安定性が十分とはならない。さらに、無偏極、低い輝度そしてバックグラウンド成分が残る。

一方、我々の推し進めている NEA フォトカソ

ド電子源は、完全にレーザー制御された電子線発生を実現しているため、このような問題を克服できる方式として有望視されている。さらに、NEA 半導体フォトカソード開発においては先駆的立場をとってきており、NEA フォトカソード電子源を採用したスピン偏極パルス透過電子顕微鏡 (SPTEM) を開発するに至っている。これにより、高い量子効率と高いスピン偏極度の両立が可能となり、その偏極度および量子効率はそれぞれ約 90%、0.5% が実現されている。さらに表面電荷制限現象の克服により高繰返し周波数でサブピコ秒パルスビーム生成が可能になっている。また半導体フォトカソードが高輝度かつ低エネルギー分散の電子波を生成できることも明らかになってきている。

2. 研究の目的

我々は GaAsP/GaAs 歪み超格子フォトカソードにより、スピン偏極度 90% を越える性能、サブナノ秒パルスビーム生成を達成し、世界最高峰の性能を実現してきた。さらに、バルク GaN や InGaN/GaN 超格子フォトカソードの開発により、量子効率は最大で 0.5% であったものを 4% まで向上させ、寿命を 10 倍近くに延ばすことに成功しており、窒化物半導体フォトカソードは、高耐久性かつ高い量子効率をもつ量子ビーム源として期待される。しかし、価電子帯の電子状態は常温の揺らぎよりも小さな分離幅しか持たず、そのままでは高いスピン偏極度を実現できない。本研究ではこの問題を、二光子吸収過程における角運動量保存則に着目し、一方のスピン状態を選択励起することで打破する。さらに、非線形光学応答による電子生成により、光の回折限界を超えて高輝度性能を引き出すことを目的とする。これにより、量子効率を向上させ、高品位ビームを高効率で生成できる新しいスピン偏極電子源の実現を目指す。本研究により期待される物理現象を、量子テクノロジーへの応用に活用し、半導体・電子線・光科学領域の横断的な新学術分野の開拓・発展への貢献を目指す。

3. 研究の方法

ワイドバンドギャップ半導体を NEA フォトカソードとして利用し、これに二光子励起を用いることでスピン偏極電子を伝導帯へと励起する。この励起電子は NEA 表面を介して真空中に引き出され、スピン偏極電子線として利用できるように

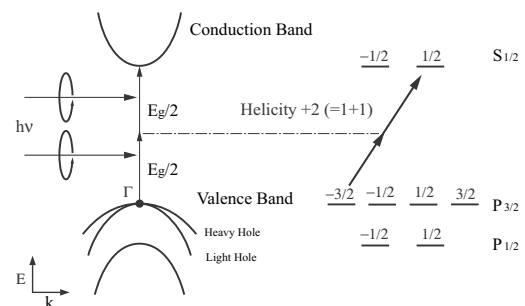


図 1. 二光子吸収におけるスピン偏極電子励起過程の模式図。左：バンド構造、右：状態模式図。

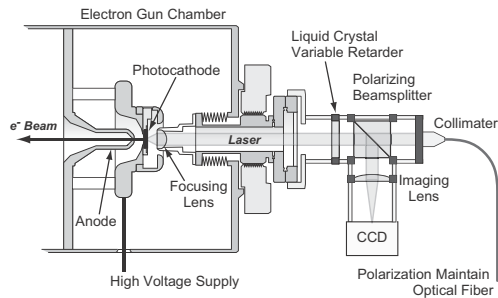


図 2. 使用する NEA フォトカソード電子銃の概略図

する。ワイドバンドギャップ半導体はももとの仕事関数が小さく、GaAs に Cs を添加させることで生成する NEA よりも大きな NEA 値を持つことが期待される。これにより、高耐久性を実現する。本研究ではこの半導体に InGaN/GaN 半導体を用いることで実現する。

これまでスピン偏極した電子を生成するには、超格子構造や歪みを導入することで縮退を解き、ここに円偏光を照射することで、一方の準位からのスピン選択励起を起こさせることで実現してきた。しかし、縮退分離幅(～30meV)しか励起レーザー波長の許容範囲がなく、利用できる波長幅が小さかった。またその作成には高度な技術を要する。一方、二光子励起にすれば、結晶に特別な工夫を加えることなく、図1に示す通り、ヘリシティ2を保存した励起が可能となり高いスピン偏極度が得られる。さらに NEA フォトカソードにおける空間・時間コヒーレンスの研究において、励起光スポットサイズの回折限界が高輝度化へのボトルネックであった。これに対して、線形光学効果を用いた放出スポットサイズの縮小を実現する。

4. 研究成果

(1) 背面照射型ワイドバンドギャップ半導体試料の作成

図2に示す背面照射型フォトカソード電子銃を活用する。この装置は、従来の GaAs-GaAsP 歪超格子結晶の励起波長帯である近赤外に合わせた光学系を用いているため、350nm～450nm のエネルギーバンドギャップの窒化物半導体フォトカソードの作成を進めた。さらに、背面から励起光を入れて表面付近でのみ電子励起を起こすため、半導体の構造は表面近傍の活性層のバンドギャップよりも基板部分のバンドギャップが大きくなる構造を取る必要がある。そこで、図3に示すよう

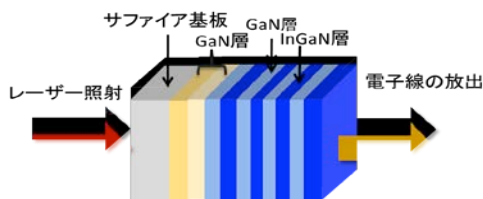


図 3. 背面照射型 InGaN-GaN 超格子フォトカソードの構造および電子線生成方向

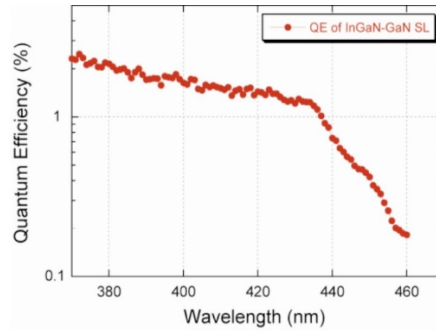


図 4. InGaN-GaN 超格子フォトカソード一光子励起での量子効率

なフォトカソードを設計した。基板はサファイア基板のウルツ鉱型 GaN を用い、活性層は In を混晶させバンドギャップを小さくし且つ量子効率を確保するため、活性層厚みを確保できるMQW構造を有するInGaN/GaNを作成した。これにより、730nm～860nm の励起波長で二光子励起による伝導帯電子の励起が、背面からレーザーを入射した場合でも可能となる。この構造を有するフォトカソードを実際に作成し、フォトルミネッセンス測定によりバンドギャップを確認した。発光ピーク波長は443nm であり、エキシトンエネルギーを考慮しても、設計値に近いバンドギャップを有する半導体フォトカソードができていることが分かった。さらに、この結晶に Cs と酸素を超高真空中にて付加することでバンドギャップ程度のエネルギーを持つレーザーを照射すると電子放出することを確認するに至った。これにより、エネルギー構造のみならず表面状態もフォトカソードとして使用できる性能を有していることを明らかにした。

(2) 二光子励起実験用光学系およびパルス電子線計測系の構築

フェムト秒レーザー(中心波長:700nm～950nm、パルス幅～150fs)を励起光源として、図6に示す光学系を構築した。サンプルは室温から4Kまで温度を変えながら計測するし、かつレーザーを小さく収束できるように、顕微分光用クライオスタットと単焦点レンズの組み合わせを選択した。また、ポンププローブ分光を実施できるように、追加の系としてビームスプリッターと100fsの分解能でディレイをかけられるディレイラインを構築した。また、電子線発生に用いる光学系には、群速度分散補償機能を追加し、偏波面保存ファイバーを介して電子銃へ導くことで短パルスを保

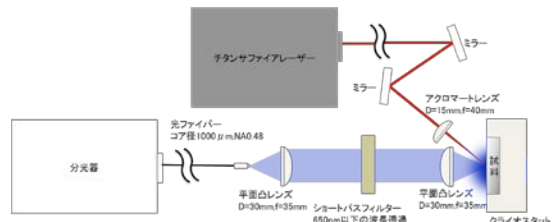


図 5. 二光子励起過程による PL,PLE 計測用光学系。紫外光用分光器、フェムト秒レーザー、レーザースポット極小化用単焦点レンズ、および顕微分光用クライオスタットからなる。

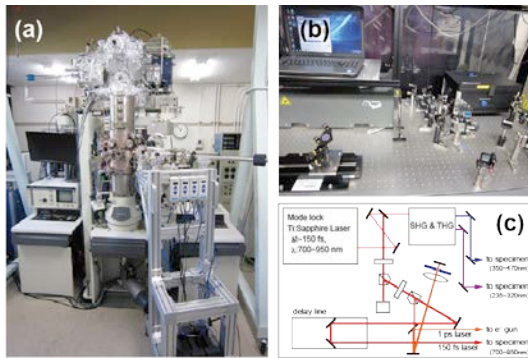


図 6. (a)電子線発生に用いた装置, (b)および(c)二光子励起による電子線発生のための光学系

持した状態で電子線発生を実現できるシステムの構築に成功した。

既存のスピンの偏極透過電子顕微鏡に上記のレーザー光を導入し、パルス動作を確認した。また、高速電場偏向器を作成し導入することで、ストリーク法の導入を試み図 7 に示すようにピコ秒電子パルス幅の測定を可能にした。

(3) 二光子吸収過程の実現

①②で作成したフォトカソード及び計測手法を用いて、二光子励起による電子励起が実現できることを確認した。まず、バンドギャップエネルギーに相当する発光波長の強度が励起パワーを変えた時、どのような関数に従うかを確認した。その結果、二次関数を用いた近似曲線で、(発光強度) = $166.5 \times (\text{入射光強度})^2$ という依存があることを確認した。これは、2 次分極が

$$P^{(2\omega)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^{(\omega)} E^{(\omega)}$$

と電場の 2 乗に比例することが観測されていることに相当する。よって、二光子吸収により価電子帯から伝導帯への励起された電子と正孔の再結合による発光であり、二光子励起によるバンド間遷移が起きていることが確かめられた。一方、PL 強度の励起波長依存 (PLE 測定) についても確認を行った。その結果、室温、150K、80K のいずれの温度においても、励起光子エネルギー 1.4eV 付近の発光強度にピーク

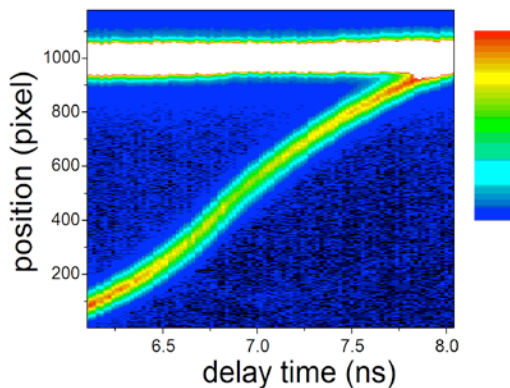


図 7. ストリーク法により計測されたスクリーン上のパルスビームの様子

が見られた。このピーク波長よりも低いエネルギー側では、発光強度の低下が確認された。ピーク波長に対応する光子エネルギーを 2 倍にすると 2.8eV となり InGaN-GaN 超格子フォトカソードのバンドギャップに等しい事がわかる。これらから、このピーク波長は二光子励起による励起子吸収ピークであると判断することができる。励起子吸収ピークが見られたということは、不純物準位などを介することなく、バンド間の遷移が起きたということである。よって、PLE 測定からも二光子励起によるバンド間遷移が起きていることがわかった。さらに、2 光子吸収という特殊な励起過程を介しても、もともとの状態密度を反映した PLE スペクトルが得られることから、スピン選択励起におけるヘリシティ保存則が破れず且つ 1 光子吸収時の量子効率を生み出すことが可能となることを示唆する結果を得た。

(4) 二光子励起を介した電子線発生、エミッタンスおよび輝度

PL 測定系においてパルス励起光源を円偏光にして、ルミネッセンス光の高次特性を測定した。これにより、2 光子励起のみならず 3 次の吸収も確認される光子強度および波長があることを確認した。二次の吸収によってのみスピン偏極電子励起が可能であるため、その条件を探索し、最適な条件を見いだすことに成功した。

また、同波長のレーザーを用いた場合、その回折限界を超える励起スポット径が実現でき、30% 小さなスポット径が得られることがわかった。さらに、1 光子励起時のエミッタンスと 2 光子励起におけるエミッタンスの違いを評価したところ、二次の吸収過程に起因する放出スポットの縮小が初期エミッタンス低減に寄与されると推察された。実際に 780nm 励起における GaAsP-GaAs 歪超格子フォトカソードでは 3.7×10^{-9} m rad に対して、InGaN-GaN 超格子フォトカソードでは 3.3×10^{-9} m rad となった。これは、伝導帯電子のもつ余剰エネルギーが GaAsP-GaAs 歪超格子よりも大きく、それに伴って横方向運動量広がりが大きくなってしまふ。このため、スポット径の縮小効果は運動量広がり増大とのコンボリューション

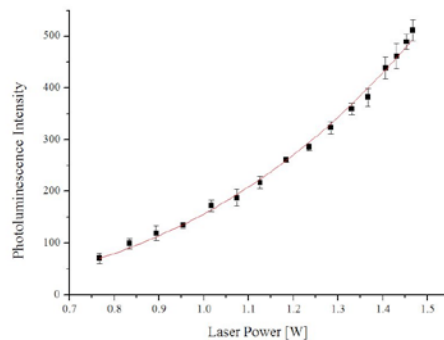


図 8. 二光子励起における発光強度の励起パワー依存性

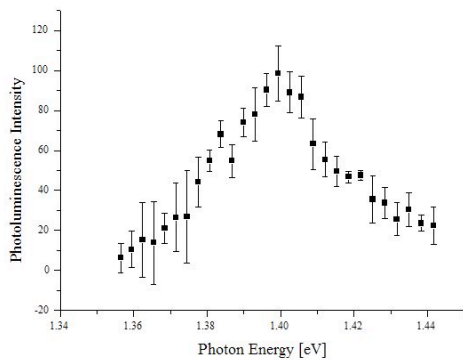


図 9. 二光子励起における PLE スペクトル。横軸に励起波長、縦軸にバンドギャップ波長における発光強度をとっている。

で決まるエミッタンスから見ると、1 割程度の低減にとどまる可能性が示唆された。ただ、耐久性が高い点については変わらないため、初期エミッタンスの劣化を伴わずに長寿命化を実現する、フォトカソード型スピン偏極電子源の新しい展開を示唆する知見を得たといえる。

(5) 国際的な成果発表

これまでの研究成果を電子顕微鏡関連の国際会議 (2nd East-Asia Microscopy Conference, Young scientists satellite meeting in EAMC, International Symposium on EcoTopia Science 2015) にて発表した。このうち1つは招待講演である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

1. 桑原真人, 宇治原徹, 浅野秀文, 齋藤晃, 田中信夫, "スピン偏極パルス TEM における超高速時間分解能とそのビーム品質", 顕微鏡, 査読有, Vol. 50, No.3, pp. 151-155, 2016 年
http://www.microscopy.or.jp/magazine/50_3/50_3j03mk.html
2. M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, X. G. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, N. Tanaka, "Coherence of a spin-polarized electron beam emitted from a semiconductor photocathode in a transmission electron microscope", Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol.105, pp. 193101, 2014 年
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4901745>
3. T. Nishitani, M. Tabuchi, H. Amano, T. Maekawa, M. Kuwahara, T. Meguro, "Photoemission lifetime of a negative electron affinity gallium

nitride photocathode", J. Vac. Sci. Tech. B, 査読有, Vol. 32, pp. 06F901, 2014 年
<http://dx.doi.org/10.1116/1.4901566>

4. N. Nishimori, R. Nagai, S. Matsuba, R. Hajima, M. Yamamoto, Y. Honda, T. Miyajima, H. Iijima, M. Kuriki, M. Kuwahara, "Experimental investigation of an optimum configuration for a high-voltage photoemission gun for operation", Phys. Rev. ST. Accel. Beam, 査読有, Vol. 17, pp. 053401, 2014 年
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevSTAB.17.053401>
 5. Y. Honda, S. Matsuba, X. G. Jin, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, M. Kuwahara, Y. Takeda, "Temporal response measurements of GaAs-based photocathodes", Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 52, pp. 086401, 2013 年
<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.52.086401>
 6. M. Kuwahara, Y. Nambo, S. Kusunoki, X. G. Jin, K. Saitoh, H. Asano, T. Ujihara, Y. Takeda, T. Nakanishi, and N. Tanaka, "Phase-locking of oscillating images using laser-induced spin-polarized pulse TEM", Microscopy, 査読有, pp.607-6014, 2013 年
doi: 10.1093/jmicro/dft035
 7. N. Nishimori, R. Nagai, S. Matsuba, R. Hajima, M. Yamamoto, T. Miyajima, Y. Honda, H. Iijima, M. Kuriki, and M. Kuwahara, "Generation of a 500-keV electron beam from a high voltage photoemission gun", Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol. 102, pp. 234103, 2013 年
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4811158>
 8. 桑原真人, 中西彊, 竹田美和, 田中信夫, "スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発", 顕微鏡, 査読有, Vol. 48, No. 1 pp. 3-8, 2013 年
http://www.microscopy.or.jp/magazine/48_1/pdf/48-1-3.pdf
- その他 2 件
- [学会発表] (計 20 件)
1. "コヒーレントスピン偏極電子線をもちいた時間分解顕微法の開発", 桑原真人, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19~22 日, 東北学院大学泉キャンパス (仙台市), 口頭 (招待)
 2. "Time-resolved LVTEM using

- spin-polarized electron beam”, Makoto Kuwahara, Young Scientists Satellite Meeting in The 2nd East-Asia Microscopy Conference, 2015年11月27~28日, 淡路夢舞台国際会議場(淡路市), 口頭(招待)
3. “Coherences of spin-polarized and pulsed electron beam extracted from a semiconductor photocathode in TEM”, Makoto Kuwahara, The 2nd East-Asia Microscopy Conference, 2015年11月24~27日, 姫路商工会議所(姫路市), 口頭(一般)
 4. “スピンの偏極透過電子顕微鏡が拓く材料解析の可能性”, 桑原真人, 日本物理学会2015年秋季大会, 2015年9月16~19日, 関西大学千里山キャンパス(吹田市), 口頭(招待)
 5. “負の電子親和性をもつエミッタから放出される電子の性質”, 桑原真人, 南保由人, 齋藤晃, 浅野秀文, 宇治原徹, 田中信夫, 日本顕微鏡学会第71回学術講演会, 2015年5月13~15日, 国立京都国際会館(京都市), 口頭(招待)
 6. “スピンの偏極透過電子顕微鏡”, 桑原真人, 南保由人, 齋藤晃, 宇治原徹, 田中信夫, 荷電粒子ビームの工業への応用第132委員会第212回研究会, 2014年10月3日, 東京理科大学森戸記念館(新宿区), 口頭(招待)
 7. “スピンの偏極パルス TEM におけるコヒーレンス”, 桑原真人, 楠聡一郎, 南保由人, 金秀光, 齋藤晃, 浅野秀文, 宇治原徹, 竹田美和, 田中信夫, 日本放射光学会第6回若手研究会, 2014年8月22, 23日, SPring-8キャンパス(佐用郡), 口頭(招待)
 8. “Development of spin-polarized transmission electron microscope”, M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Sameshima, K. Saitoh, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda, T. Nakanishi and N. Tanaka, 9th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices `13, 2013年12月2~6日, ハワイ(米国), 口頭(一般)
 9. “スピンの偏極パルス TEM によるパルス同期 TEM 像の取得”, 桑原真人, 南保由人, 楠聡一郎, 齋藤晃, 宇治原徹, 竹田美和, 中西彊, 田中信夫, 日本顕微鏡学会第69回学術講演会, 2013年5月20~22日, ホテル阪急エキスポパーク(吹田市), 口頭(一般)

その他11件

[産業財産権]

○出願状況(計 3 件)

名称: スピンの偏極電子線のコヒーレンス測定装置と、その利用方法
 発明者: 桑原真人, 田中信夫, 齋藤晃, 宇治原徹
 権利者: 国立大学法人 名古屋大学
 種類: 特許
 番号: PCT/JP2015/077393
 出願年月日: 2015年9月28日
 国内外の別: 国外

名称: スピンの偏極電子線のコヒーレンス測定装置
 発明者: 桑原真人, 田中信夫, 齋藤晃, 宇治原徹
 権利者: 国立大学法人 名古屋大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2014-208345
 出願年月日: 2014年10月9日
 国内外の別: 国内

名称: 反射電子を検出する走査電子顕微鏡
 発明者: 桑原真人, 田中信夫, 齋藤晃, 宇治原徹
 権利者: 国立大学法人 名古屋大学
 種類: 特許
 番号: 特願 2015-117920
 出願年月日: 2015年6月11日
 国内外の別: 国内

○取得状況(計 2 件)

名称: 電子顕微鏡
 発明者: 田中信夫, 中西彊, 竹田美和, 浅野秀文, 齋藤晃, 宇治原徹, 桑原真人
 権利者: 国立大学法人 名古屋大学
 種類: 特許
 番号: 8,841,615
 出願年月日: 2011年2月22日
 取得年月日: 2014年9月23日
 国内外の別: 国外

名称: 電子顕微鏡
 発明者: 田中信夫, 中西彊, 竹田美和, 浅野秀文, 齋藤晃, 宇治原徹, 桑原真人
 権利者: 国立大学法人 名古屋大学
 種類: 特許
 番号: P05626694
 出願年月日: 2011年2月22日
 取得年月日: 2014年10月10日
 国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等
<http://sirius.esi.nagoya-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

桑原真人 (KUWAHARA Makoto)
 名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授
 研究者番号: 50377933