

NEA-GaAs 型電子源における表面近傍のエネルギー状態の考察

STUDY OF ENERGY STATE OF NEAR SURFACE OF THE NEA- GaAs TYPE PHOTOCATHODE

宮内智寛^{#,A)}, 山本尚人^{B)}, 金秀光^{B)}, 保坂将人^{C)}, 真野篤志^{C)},
高嶋圭史^{A,C)}, 加藤政博^{D,C,B)}

Tomohiro Miyauchi^{#,A)}, Naoto Yamamoto^{B)}, Xiuguang Jin^{B)}, Masato Hosaka^{C)}, Atsushi Mano^{C)},
Yoshifumi Takashima^{A,C)}, Masahiro Katoh^{D,C,B)}

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 have developed the spin polarization electron source using the GaAs-based semiconductor for the application to next-generation accelerators. Up to now, the spin polarization of 92% and quantum efficiency (QE) 1.6% were achieved by using strain-compensated superlattice photocathode. On the other hand, it is found that the quantum efficiency greatly depends on the state of the NEA surface, but the detail of the NEA structure has not been revealed. In this paper, I assumed an energy barrier depending on outside electric field and a state of the NEA surface and built a calculation model to calculate the electronic transmissivity for it. Because experimental data almost accorded with the result by the calculation model that I assumed, I can explain the electric field dependence of the quantum efficiency by a change of the electronic transmissivity with the change of the thickness of the energy barrier.

1. はじめに

我々が研究対象としている GaAs 系半導体を用いたスピン偏極電子源は、励起光を入射することによりスピンの揃った電子ビームを真空中に取り出すことの出来る半導体である。その応用先としては、次世代の素粒子実験に用いられる国際リニアコライダー^[1]や、スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡^[2]などにおける電子源などが挙げられる。これらへの応用を目指すに当たり、スピン偏極電子源の開発では90%以上の高い偏極度を維持しつつ、量子効率を向上させることが目標の一つである。

近年、我々の研究グループでは歪み補償型超格子構造を用いることで結晶性を高めると共に、従来の数倍の厚さの活性層を持つ電子源の作成が可能となった。また、活性層厚さ 196 nm のサンプルにおいて、スピン偏極度 92%・量子効率 1.6%を達成している^[3]。現在は膜厚とスピン偏極度及び量子効率の関係について研究を進めている^[4]。

一方で、量子効率は電子源の表面に作成する NEA 表面の状態にも大きく依存することが分かっており、その製膜条件の影響を大きく受けている。更に NEA 表面はビーム生成時に発生するイオンの逆流により劣化していく寿命問題も抱えている。しかし、これまで NEA 型電子源の界面エネルギー状態は解明されておらず、NEA 表面の状態に関する定量的評価や、量子効率に支配的な影響を与える物理現象の実証に

も至っていない。

本研究では、最大 4.2 MV/m までの高電界を印加できる電子銃を用いて、印加電界と量子効率の関係性を調べた。また、NEA 型電子源と真空の界面に存在するとされるエネルギー障壁の形状を仮定し、電子の透過率を算出する計算モデルの構築を試みた。

本発表では、計算モデルの詳細及びその結果と実験データの比較、更にはショットキー効果の影響を除いた NEA 表面の定量評価について報告する。

2. NEA-GaAs 型電子源について

2.1 歪み補償型超格子フォトカソード

我々が現在用いている歪み補償型超格子フォトカソードは、励起光の波長に対してほぼ透明な GaP 基板上にバッファー層として AlGaAsP を挟み、その上に GaAs 層と GaAsP 層を交互に積層した超格子層から成り立っている(Figure 1)^[5]。

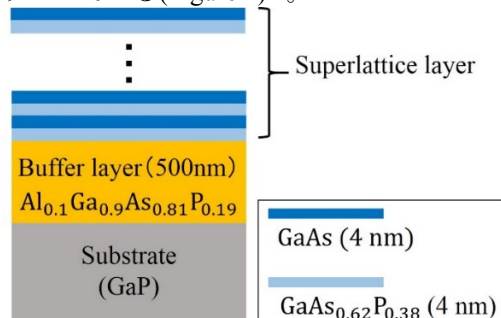


Figure 1: The structure of GaAs/GaAsP strain-compensated superlattice photocathode.

[#] miyauchi.tomohiro@j.mbox.nagoya-u.ac.jp

従来用いてきた歪み超格子構造では、膜厚の増大に伴って超格子全体に歪みが蓄積され、すぐに臨界膜厚を迎えてしまう。その結果超格子中で歪み緩和が発生し、バンド構造が乱れるのでスピン偏極度と量子効率の低下を招く。即ち、歪み超格子では量子効率とスピン偏極度の両立には限界がある。

一方、歪み補償超格子構造は GaAs と GaAsP のほぼ中間の格子定数を持つ AlGaAsP をバッファ層として使用することで、GaAs 層と GaAsP 層のそれぞれに加わる歪みを相殺させ、超格子層全体として膜厚増大による歪みの蓄積が小さい構造を実現している。これにより超格子層の臨界膜厚が飛躍的に向上し、従来よりも結晶性の良い厚さ 720 nm のフォトカソードの製作に成功している^[3]。

2.2 バンド構造と電子の放出機構

本研究で用いた NEA-GaAs 型半導体では、電子が下記の三つのプロセスを経て真空へと放出される^[6]。電子が放出される様子を Figure2 に示す。

- I. GaAs 型半導体に円偏光レーザーを照射し、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. 伝導帯へと遷移した電子は、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)

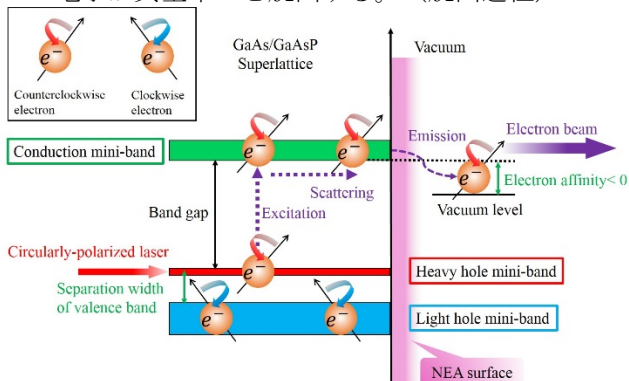


Figure 2: Band structure of photocathode and electronic release mechanism.

また、歪み補償超格子構造によりバルク GaAs では縮退している価電子帯の $P_{3/2}$ の状態をとる電子は、有効質量の違いから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励起光を入射することで、スピンの揃った電子を取り出すことが可能となっている^[7]。

2.3 NEA 表面

前項でも触れたが、NEA 表面は電子親和力が負となる特徴を持っており、Figure 2 から分かるように伝導帯下端よりも真空準位がエネルギー的に下位に位置する。これにより半導体中の電子は真空中へと

脱出することが可能となっている^[7]。

また、NEA 表面作成の様子を示す模式図を Figure3 に示す。実験では加熱洗浄をし、室温まで自然冷却した後、「Yo-Yo method」と呼ばれる手法を用いて NEA 表面を作成した。「Yo-Yo method」とは、Cs と O_2 を量子効率に応じて交互に蒸着させていく手法である。Cs と O_2 を付与することで何故 NEA の状態になるかは理論的には解明されていないが、NEA 表面の性能は洗浄・成膜条件や電子源表面の状態に大きく左右されることが経験的に分かっている。また、電子源の表面近傍のエネルギー状態も、界面での物理現象であるため直接的な観察が難しく正確な解明に至っていない。

量子効率の値を決める大きな要素が、NEA 表面の状態に伴って変化する、半導体の表面近傍のエネルギー状態にあると考えられている。第 3 節では、半導体表面に存在するエネルギー障壁に対する電子の透過率の計算内容や、その計算を行う際に仮定したエネルギー状態の詳細、更には計算結果と実験データの比較について述べる。

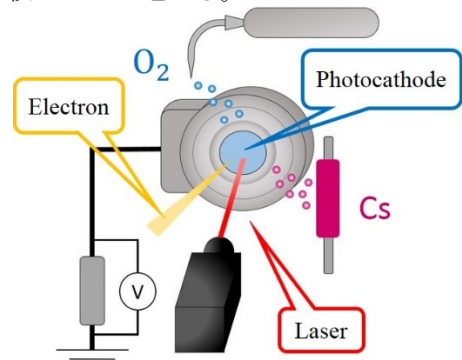


Figure 3: State of the making of the NEA surface.

3. 電子源表面近傍のエネルギー状態とトンネル率の計算

3.1 電子源表面近傍のエネルギー状態の仮定

まず初めに、電子の透過率の計算を行うに当たって仮定した半導体表面近傍のエネルギー状態のモデルについて説明する。Figure 4 はそのバンド構造を模式的に表した図である。

本論文の第 2 章でも述べたように、NEA 表面における真空準位は伝導帯下端よりもエネルギー的に下に位置しており、このエネルギー低下分は 2 つの異なる現象により生じている。一つ目は NEA 表面作成による低下分であり、本研究ではこの低下分の値を NEA 値 (Figure4 中の χ) と名付け NEA 表面を定量評価するパラメータとして定義した。

真空準位を低下させるもう一つの要因は、半導体表面に印加した電場により生じるショットキー効果である。ショットキー効果とは、電子が半導体中から真空へ脱出する際に感じるポテンシャルが印加された電場に大きさに依存して低下する現象である。

これは放出した電子により半導体表面に生ずる鏡映電荷と、外部電場に寄ってポテンシャルが緩和されるためである。ショットキー効果による仕事関数の減少分 S は式(1)で表される^[8]。

$$S = \sqrt{\frac{eE}{4\pi\epsilon_0}} \quad (1)$$

ここで、式(1)において e は電子の素電荷、 E は表面に印加する電場、 ϵ_0 は真空の誘電率である。 χ と S を合計した値が、実際の伝導帯下端と真空準位のエネルギー差であり、 Φ と定義する。

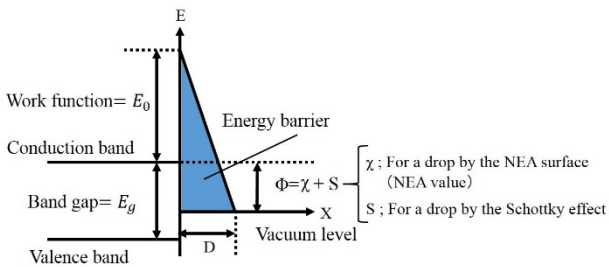


Figure 4: Energy state of the semiconductor surface which I assumed.

次に、超格子膜厚が 480 nm の試料において実際に印加電圧を変化させながら量子効率を測定した例を Figure 5 に示す。

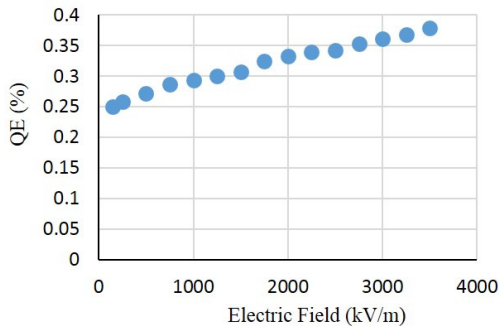


Figure 5: Data example, change of the quantum efficiency with the applied voltage.

ショットキー効果を考慮して Figure 5 の実験データを考察すると、真空準位の低下分が超格子表面の電子の透過率を変化させていると言える。この現象を説明するには、電子が脱出の際に通過するエネルギー障壁の形状・厚さが、真空準位の低下分に依存して変化するモデルを考える必要がある。

それを受けて、今回の計算モデルでは Figure 6 に示すように底辺の長さ D と仕事関数を頂点に固定し、 Φ の値の変化に伴って伝導帯下端における幅が変化していくエネルギー障壁のモデルを仮定した。エネルギー障壁の形状は、超格子表面からの距離を x 、真空準位からのエネルギーを E とした際、Figure 4 中の記号を用いて式(2)で表される。

$$E = -\frac{E_0 + \Phi}{D}x + E_0 + \Phi \quad (2)$$

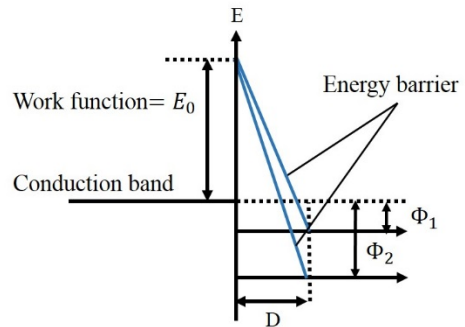


Figure 6: Shape change of the energy barrier with the vacuum level.

3.2 透過率の計算

前節で仮定した超格子表面のエネルギー状態において、電子がエネルギー障壁を透過する確率を求める。電子が透過する時の概念図を Figure 7 に示す。

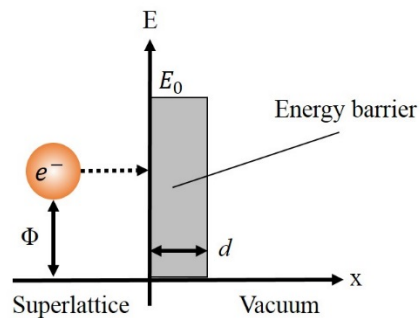


Figure 7: Conception diagram when an electron penetrates an energy barrier.

透過率を計算する際にいくつかの仮定、前提条件を定めた。

- 超格子フォトカソードの仕事関数 E_0 は 3.5 eV とする^[7]。
- 超格子表面に達した電子は、全て伝導帯下端までエネルギー緩和している
- Figure 4 中の表面バリアの底辺の長さ D は、NEA 表面の状態や電場に寄らず 3 Å と仮定する。
- 透過率を計算する際、伝導帯下端よりエネルギー的に上側に広がる障壁の形状は、計算を簡略化するため幅 d 、高さ E_0 の長方形とする。(d は式(3)を参照)
- 障壁透過前後において、電子の持つ運動量は変化しないとする。

また、伝導帯下端から脱出する電子が透過するエネルギー障壁の厚さ d は式(2)に $x=d$ 、 $E=\Phi$ を代入して式変形することによって、式(3)で与えられる。

$$d = \frac{DE_0}{E_0 + \Phi} \quad (3)$$

式(3)が電場依存する Φ を含んでいることから、電子が透過するエネルギー障壁の厚さが電場依存することが分かる。

上記のモデルにて電子がエネルギー障壁を透過する確率 T は、下記の式(4)で算出される^[9]。

$$T = \left\{ 1 + \frac{V_0^2 \sinh^2 kd}{4\Phi(V_0 - \Phi)} \right\}^{-1} \quad (4)$$

以上の仮定と計算式を用いることで、NEA 値 χ が決まれば電場に依存した電子の脱出率が求まる計算モデルを構築した。

3.3 実験データとの比較と NEA 表面の評価

前節で構築した計算モデルを検証するため、実験から得られた量子効率の電場依存性の再現を試みた。ここで、計算モデルで算出される値は電子がエネルギー障壁を透過する確率である一方、実験では光子の入射数に対して放出される電子の割合を表す量子効率である。従って、実験データと計算値は直接比較できないので、各々の初期電場の時の値を 1 とした時、電場の増大に従って何倍になっているかを比較した（この時の評価値を「脱出率増加割合」と名付ける）。

計算に必要な NEA 値は、理論的にバンドギャップの半分以下であるはずなので、0.7 eV より小さい値である。この範囲内で様々な値の χ を計算モデルに代入していき、実験データと計算結果のグラフが良く一致する時の値を、当該の NEA 表面における NEA 値として設定した。

NEA 表面の状態が異なる 3 つのデータについて計算値と実験値を比較したグラフが Figure 8,9,10 である。また、NEA 値の算出に当たり、3 MV/m 以上のデータは電界放出の傾向が見られたため考慮から除くこととした。Figure 8,9,10 の各グラフにおいて 150 kV/m (-600V)の電場を印加した時の量子効率と計算に用いた NEA 値を Table 1 にまとめた。

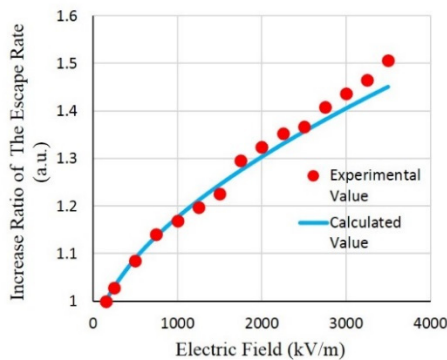


Figure 8: Comparison between calculated value and experimental value of the escape rate increase ratio. (QE=0.25%, NEA value (χ)=0.17 eV)

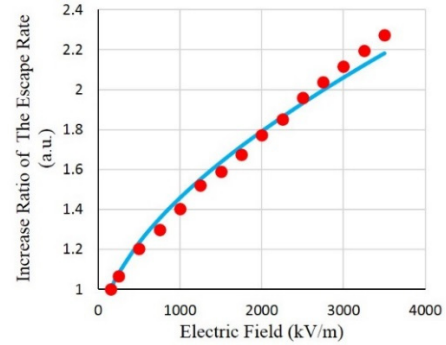


Figure 9: Comparison between calculated value and experimental value of the escape rate increase ratio. (QE=0.054%, NEA value (χ)=0.045 eV)

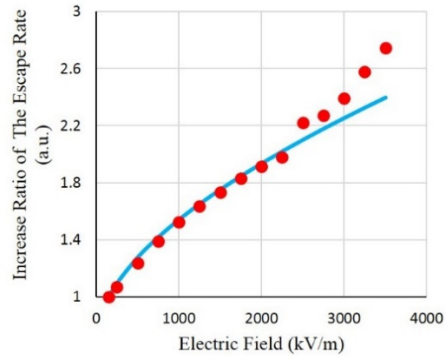


Figure 10: Comparison between calculated value and experimental value of the escape rate increase ratio. (QE=0.0062%, NEA value (χ)=0.035 eV)

Table 1: The NEA Value Which I Used for a Calculation

Figure	QE [%]	NEA Value [eV]
Figure 8	0.25	0.17
Figure 9	0.054	0.045
Figure 10	0.0062	0.035

Figure 8,9,10 において、計算結果と実験データが概ね一致していることが分かる。この結果は、量子効率の電場依存性が電子源の界面に存在するエネルギー障壁の厚みの変化に起因していると言う仮説の一つの根拠となり得る。また、ショットキー効果の影響を除いた NEA 表面の効果のみに寄る真空準位の低下分 (NEA 値) を定めることで量子効率の電場依存性を再現できたことから、今回定義した NEA 値が NEA 表面を定量評価する際に有用であることを示唆している。

4. まとめと今後

4.1 まとめ

本研究では、未解明な電子源表面近傍のエネルギー状態を仮定し、量子効率の電場依存性を算出する計算モデルの構築を試みた。電子は電子源の界面に存在するとされるエネルギー障壁をトンネル効果によって透過してくるものと考え、その厚さが真空

準位の低下分に依存して変化するモデルを提案した。

このモデルによれば、実験データに見られる量子効率の電場依存性が、エネルギー障壁の厚さの変化に伴う電子の透過率の変化で説明できる。また、真空準位の低下分からショットキー効果の影響を除いたパラメータ（NEA 値）を用いて、状態の異なる NEA 表面から得られた実験データの再現を試みた結果、それが NEA 表面の定量評価に関して有用なパラメータであることが示唆された。

4.2 今後

現段階で構築した計算モデルには、実測が成されていない値や、計算の便宜上多くの仮定や近似が含まれている。今後は、これら一つ一つについて現実的なものに近づけていき、最終的には量子効率の値を NEA 表面の性能を表すパラメータを用いて算出できる計算モデルの構築に至りたいと考えている。

また、異なる厚さの超格子層を持った電子源や性能の異なる NEA 表面についてもデータを取得し、評価していく予定である。

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] <http://www.linearcollider.org/>
- [2] 越川孝範, “スピン偏極低エネルギー電子顕微鏡” *Journal of the Vacuum Society of Japan* 57(10), 382-390, 2014.
- [3] X.G. Jin, et.al., “Effect of crystal quality on performance of spin-polarized photocathode”, *Applied Physics Letters* 105, 203509 (2014).
- [4] N.Yamamoto, et.al., This proceedings, WEP042.
- [5] X.G. Jin, et.al., ”High-Performance Spin-Polarized Photocathodes Using a GaAs/GaAsP Strain-Compensated Superlattice”, *Applied Physics Express* 6 (2013) 015801.
- [6] S. Karkare, et.al., “Monte Carlo charge transport and photoemission from negative electron affinity GaAs photocathode”, *Applied Physics Letters* 113,104904 (2013).
- [7] 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” .
- [8] 栗木雅夫, “電子源”, OHO テキストⅢ(2002).2.
- [9] 原康夫, 岩波基礎物理シリーズ 5 量子力学, 岩波書店.