偏極電子線陰極用歪格子GaAsの スピンの依存性発光

堀中博道^{* 1} , 中西 彊^{* 2} , 奥見正治^{* 3} , 坂 貴^{* 4} ,
加藤俊宏^{* 5}

Spin Dependent Luminescence of Strained-GaAs-Layer Photocathode of Polarized Electron Source

Hiromichi Horinaka, Tsutomu Nakanishi,Shoji Okumi, Takashi Saka and
Toshihiro KatoMasumi Hirotani

Synopsis

Luminescence polarization was measured on strained GaAs samples fabricated as a spin polarized photocathode. Photoluminescence (PL) spectrum of the strained GaAs layer showed large polarization at the band edge in comparison with that of the GaAs substrate. The increase of the band gap and the splitting of the valence band were observed in luminescence polarization spectra of photoluminescence excitation (PLE) although they are not clear in the PLE intensity spectra. Spin relaxation time and lifetime of electrons in the strained GaAs layer were measured by using a mode-locked Ti: sapphire laser and a streak camera. The spin relaxation time and the electron lifetime were 105 ps and 45 ps at room temperature, respectively. From the temperature dependence of spin relaxation time, the spin relaxation of our strained GaAs photocathode was found to be mainly caused by electron scattering by holes with simultaneous exchange interaction.

【 1 . 緒 論 】

GaAsなどのジंकブレンド構造の半導体が ,その基礎吸収端より少し大きな光子エネルギーをもつ円偏光で励起されたとき ,価電子帯から伝導帯にスピンの偏極した状態で電子が励起される .このような偏極電子を仕事関数を下げて ,外部へ取り出すようにしたものがスピンの偏極電子源陰極である .偏極電子の高エネルギー物理や物性研究の分野における応用に対する期待が高まるとともに ,高偏極度 ,高効率のスピンの偏極電子源陰極が求められてきた .しかし ,GaAsの場合は , 点における価電子帯の

縮退のために最大のスピンの偏極度は50%に制限されていた .我々 ,名古屋大学・大同特殊鋼・大阪府立大学・豊田工業大学の研究グループは ,ヘテロ接合における界面応力を利用してGaAs薄膜中に一軸性内部歪みを発生させ ,価電子帯の縮退を解き ,高い偏極度が期待できる光電陰極を作製した .引き出された電子のスピンを名古屋大学のモットアナライザーで解析したところ80%以上の高い偏極度を得ることに成功した^{1)~3)} .

このような半導体において光励起された伝導帯の偏極電子は ,価電子帯の正孔 ,または ,アクセプターレベルに捕らえられた正孔と放射再結合するとき ,スピンの偏極度に依存した偏りの円偏光を放出する .したがって ,発光の

1996年7月16日受付
^{*} 1大阪府立大学 工学部 工博(Dr., Eng., Faculty of Eng., Osaka Pre. Univ.)^{*} 2名古屋大学 理学部 理博(Dr., Science, Faculty of Science, Nagoya Univ.)^{*} 3名古屋大学 理学部(Faculty of Science, Nagoya Univ.)^{*} 4大同特殊鋼 (株) 技術開発研究所 工博(Dr., Eng., Research & Development Lab., Daido Steel Co., Ltd.)^{*} 5大同特殊鋼 (株) 技術開発研究所(Research & Development Lab., Daido Steel Co., Ltd.)

偏りを測定することで、伝導帯の電子のスピンの偏極状態や選択則を決定するバンド構造を調べることができる。発光の偏りの測定法は、モットアナライザのような特殊な装置や、電子の引き出しのための表面処理の必要もなく、半導体における電子のスピンの偏極の研究のための一般的で簡便な方法といえる。

偏極電子源陰極において実際に観測される偏りは、選択則による偏りだけでなく、伝導帯電子のスピンの緩和時間、ライフタイムの関数であり、実用的な高偏極度電子の実現のため、あるいは、バンド構造の影響だけを検出するには、これらも調べる必要がある。半導体における伝導帯電子のスピンの緩和はピコ秒～ナノ秒オーダーの非常に高速の現象と考えられるが近年のパルスレーザー、ストリークカメラなどの進歩により、発光の偏りの減衰から直接に求めることができるようになった。スピンの緩和現象を直接測定できることも発光の偏りの測定法の特徴と考えられる。

本研究では、偏極電子源陰極のために作製された歪格子GaAsを試料として光励起発光(Photoluminescence: PL)スペクトル、発光の励起(Photoluminescence excitation: PLE)スペクトルを測定し、それらの偏りを求め、バンド構造との関係を調べる。さらに、発光、および、発光の偏りの時間減衰を測定することで、伝導帯電子のライフタイム、スピンの緩和時間を求め、その温度特性からスピンの緩和機構についても議論する。

【 2 . 歪み格子GaAsにおける円偏光に対する光学遷移 】

試料としてMetalorganic Chemical Vapor Deposition (MOCVD)法を用いてp-GaAs基板(300 mm)の上に混晶層p-GaAs_xP_{1-x}(x=0.2-0.33)を2-3 μmの厚さで成長させ、その上に光電陰極としてp-GaAs薄膜(0.2 μm)を成長させたものを用いた^{3),4)}。一番上のp-GaAs層は、GaAsとGaAs_xP_{1-x}の間の格子不整合によって発生した2次元圧縮応力に基づく一軸性引っ張り応力のために歪んでいる。一軸性引っ張り歪みの場合、バンドギャップ自体は高エネルギー側にシフトするが、価電子帯はFig.1に示すように、相対的に重い正孔バンドが上に、軽い正孔バンドが下に移動するように分離する。円偏光を照射した場合、価電子帯の電子は角運動量保存則に従って伝導帯に励起される。伝導帯のアップスピン(m_j=+1/2)状態とダウンスピン状態(m_j=-1/2)における電子数を、それぞれ、N^A、N^Bと

Fig. 1. Optical transitions for circularly polarized light in the strained GaAs.

すると、伝導帯における電子偏極度 P_s は、次式で定義される。

$$P_s = \frac{N^A - N^B}{N^A + N^B} \quad (1)$$

伝導帯に励起されたスピンの偏極電子は、反対のスピンの状態に緩和、または、価電子帯に遷移する。伝導帯の電子数 N^A 、 N^B の変化は、次式のレート方程式によって表すことができる。

$$\frac{dN^A}{dt} = J^A - \frac{N^A}{\tau} - \frac{N^A - N^B}{2T_s} \quad (2)$$

$$\frac{dN^B}{dt} = J^B - \frac{N^B}{\tau} + \frac{N^A - N^B}{2T_s} \quad (3)$$

ここで、 J^A 、 J^B は、それぞれ、伝導帯のアップスピン状態、ダウンスピン状態への電子の励起能率を示している。励起光源としてcwレーザーを用いる場合、式(2)、(3)の左辺はゼロと置くことができ、式(1)の伝導帯電子の偏極度は、次式で与えられる。

$$P_s = P_e \frac{T_s}{T_s + \tau} \quad (4)$$

ここで、 $P_e = (J^A - J^B) / (J^A + J^B)$ は、スピンの緩和が無い場合の偏極度であり、励起直後の偏りと考えられる。これは、バンド間遷移の選択則によって決定され、伝導帯、価電子帯の対称性によって決まる。

次に、バンド間遷移、または、バンド・アクセプター間遷移による発光の偏りを検討するために、Fig.2に示すように、 $m_j = \pm 1/2$ 、 $m_j = \pm 3/2$ が混合した状態のレベルを考える。

Fig. 2. Radiative recombination process of spin polarized electrons of the conduction band.

伝導帯 V_c^A ($m_j = +1/2$) の電子は $m_j = +3/2$ と $m_j = -1/2$ のレベルの正孔と再結合し、それぞれ、 σ^+ と σ^- の円偏光を放出する。一方、伝導帯 V_c^B ($m_j = -1/2$) の電子は $m_j = -3/2$ と $m_j = +1/2$ のレベルの正孔と再結合し、それぞれ、 σ^+ と σ^- の円偏光を放出する。円偏光 σ^+ と σ^- の強度 I^+ と I^- は次式で表すことができる。

$$I^+ = N^B \alpha + N^A \beta \quad (5)$$

$$I^- = N^A \alpha + N^B \beta \quad (6)$$

ここで、 α は $m_j = \pm 1/2$ の伝導帯と $m_j = \pm 3/2$ のレベルの遷移強度を示し、 β は $m_j = \pm 1/2$ の伝導帯と $m_j = \pm 1/2$ のレベルの遷移強度を示す。したがって、発光の偏りは式 (5)、(6)、(7) より次式のようにになる。

$$\begin{aligned} P_1 &= \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \\ &= \frac{N^A - N^B}{N^A + N^B} \frac{\beta - \alpha}{\beta + \alpha} \\ &= P_e \frac{T_s}{T_s + \tau} P_r \end{aligned} \quad (7)$$

ここで、 $P_r = (\beta - \alpha) / (\beta + \alpha)$ と置いた式 (7) は、発光の偏り P_1 は、励起過程における偏極度 P_e 、スピン緩和による減衰係数 $T_s / (T_s + \tau)$ 、および、再結合過程における偏り P_r の積で与えられることを示している。

3. 発光の偏りの測定

歪格子 GaAs の発光 (PL) スペクトル、発光の励起 (PLE) スペクトルの測定のために用いた光学系を Fig. 3 に示す。Ti:サファイアレーザー (TSL-1S, Spectra Physics) が

らの光が光ファイバーによってガイドされ、偏光子とバビネソレイユ位相補償子を通して円偏光状態となり、

Fig. 3. Optical arrangement for measuring luminescence

クライオスタットの中の試料を励起する。試料の発光は位相補償子、偏光子、分光器 (CT-50, Jasco) を通して光電子増倍管によって検出される。

まず、円偏光励起のもとで、発光 (PL) スペクトルを 77K において測定した。発光測定においては、一般に、励起光の散乱成分のために、発光をバンド端近くで測定するときには、励起光をバンド端に合わせることはできない。この測定においては、励起光の波長を 780nm に固定して行った。この測定条件では、分離した重い価電子帯と軽い価電子帯から 2 種類の遷移が生じており、そのために、 P_e は -0.5 になる。Fig. 4 は、円偏光 σ^+ で励起された場合の発光のスペクトルを示している。 I^+ 、 I^- は、それぞれ、円偏光 σ^+ と σ^- の強度を表している。Fig. 5 は Fig. 4 のスペクトルから計算で求められた発光の円偏光成分の偏りを示し

Fig. 4. Photoluminescence spectra of strained GaAs at 77K. The wavelength of excitation light was fixed at 780 nm. I^+ and I^- denote intensities of the circularly polarized lights, σ^+ and σ^- , respectively.

Fig. 5. Luminescence polarization calculated from PL spectra in Fig. 4. Peaks E_{hh} and E_i are caused by the transition from the conduction band to the upper valence band (the heavy hole band) and the transition from the conduction band to the acceptor level, respectively, in the strained GaAs. The peak E_s originates in the interband transition in the GaAs substrate

ている E_s で示されたピークは、GaAs基板のバンド間遷移に起因していると考えられる。 P_r は P_e と同様に、価電子帯の縮退のために0.5の値をとり、したがって P_i は、スピン緩和時間 T_s がライフタイムより十分長い極限のもとでは、式(6)によって0.25になる。一方、Fig.5におけるピーク E_{hh} と E_i は、それぞれ、歪みGaAs層におけるバンド間遷移とバンド・アクセプター間遷移による発光を表している。歪みGaAsにおけるバンド間遷移の場合、伝導帯の電子は内部歪みによって一番上の価電子帯となった重い正孔バンドとのみ再結合するため、式(6)において P_r は-1.0である。このためにFig.5において E_{hh} が E_s より大きな値となっている。

次に、発光の励起(PLE)スペクトルを77Kにおいて同じ試料を用いて測定した。発光の測定波長を伝導帯とアクセプターレベルの間で光放射再結合が生じる835 nmに固定し、Ti:サファイアレーザーの励起波長に対する発光強度を測定した。PLEスペクトルは励起過程における遷移能率を反映しており、したがって、PLE法は、一番上の価電子帯だけではなく、それ以外の価電子帯のバンド構造の研究に適用することができる。Fig.6は、発光の円偏光 I^+ と I^- の強度 I^+ と I^- の励起光 I^+ の波長に対する依存性を示す。Fig.7は、Fig.6のスペクトルから計算された発光の偏りを示している。内部歪みによる偏りの増加は、励起過程においても観測される。歪みによる重い正孔バンドと軽い正孔バンドのエネルギーシフトは、それぞ

Fig. 6. Photoluminescence excitation spectra of strained GaAs at 77K. The wavelength of measured light was fixed to 830 nm which corresponds to the peak

Fig. 7. Luminescence polarization calculated from PLE spectra in Fig. 6. Peaks E_{hh} and E_s have the same meaning as those in Fig. 5 but they originate in the transitions of the excitation process. The trough E_{lh}

れ、次式によって示すことができる⁵⁾。

$$\Delta E_{hh} = \left[-2a \left(\frac{C_{11} - C_{12}}{C_{11}} \right) + b \left(\frac{C_{11} + 2C_{12}}{C_{11}} \right) \right] \epsilon \quad (8)$$

$$\Delta E_{lh} = \left[-2a \left(\frac{C_{11} - C_{12}}{C_{11}} \right) - b \left(\frac{C_{11} + 2C_{12}}{C_{11}} \right) \right] \epsilon \quad (9)$$

ここで、 C_{11} ($=11.88 \times 10^{11}$ dyn/cm²) と C_{12} ($=5.38 \times 10^{11}$ dyn/cm²) は、弾性スティッフネス、 α ($=-8.7$ eV) は、静水圧変形ポテンシャルであり、 β ($=-1.7$ eV) は、正方歪みに対するせん断変形ポテンシャルである。最小バンドギャップのシフト E_{hh} と価電子帯の分離 E_d ($= E_{hh} - E_{lh}$) は弾性定数や変形ポテンシャルの値を式(8)(9)に代入することによって求められ、次式のようになる。

$$\Delta E_{hh} = 6.3 \text{ eV} \quad (10)$$

$$\Delta E_d = \Delta E_{hh} - \Delta E_{lh} = 6.4 \text{ eV} \quad (11)$$

Fig.7のバンドエッジのシフトは、約20meVである。また、式(10)(11)より価電子帯の分離は20meVである。したがって、伝導帯と重い正孔バンドとのバンドギャップは、798 nmの波長に相当する。軽い正孔バンドと伝導帯間の遷移は最小バンドギャップ間の遷移と逆の選択則をもつために、発光の偏りを減衰させると考えられる。Fig.7において、 E_{lh} で示された窪みは軽い正孔バンドからの遷移によると考えられる。

4. 発光の偏りによる電子スピン偏極度の推定

PLおよびPLEの測定から求められた発光の偏りを基に、伝導帯の電子スピンと光励起発光の偏りの関係を検討する。式(7)によれば、Fig.5の E_{hh} における発光の偏り P_{11} は、次式で与えられる。

$$P_{11} = P_e^{hh, lh} \frac{T_s}{T_s + \tau} P_r^{hh} \quad (12)$$

ここで、 $P_e^{hh, lh}$ は分離した2つの価電子帯から伝導帯への遷移確率によって決定され、 P_r^{hh} は伝導帯から重い正孔バンドへの再結合確率によって決定される。

同様に、Fig.5の発光のスペクトルの E_{l1} における偏り P_{12} は、次式のように示される。

$$P_{12} = P_e^{hh, lh} \frac{T_s}{T_s + \tau} P_r^i \quad (13)$$

ここで、 P_r^i は伝導帯とアクセプターレベル間の再結合確率によって決定される。一方、Fig.7の発光の励起スペクトルの E_{hh} における偏り P_{13} は次式で与えられる。

$$P_{13} = P_e^{hh} \frac{T_s}{T_s + \tau} P_r^i \quad (14)$$

ここで、 P_e^{hh} は一番上の価電子帯から伝導帯へ励起された電子のスピン偏極度であり、共鳴励起された場合の偏りである。

もし、電子が一番上の価電子帯から伝導帯へ励起され、一番上の価電子帯の正孔と再結合するならば、そのときの発光の偏り P_{10} は次式で示される。

$$P_{10} = P_e^{hh} \frac{T_s}{T_s + \tau} P_r^{hh} \quad (15)$$

P_e^{hh} は P_r^{hh} に等しいと考えられるので、式(12)(15)を用いて、 P_{10} は P_{11} 、 P_{12} 、 P_{13} から求められる。

$$P_{10} = \frac{P_{11} P_{13}}{P_{12}} \quad (16)$$

Fig.5の E_{hh} 、 E_{l1} における偏りから P_{11} と P_{12} はそれぞれ、0.42、0.17であることが分かる。Fig.7の E_{hh} から P_{13} は0.21である。これらの値を式(16)に代入すれば、 P_{10} は0.52であることが分かる。式(15)において $T \gg \tau$ であるならば、スピン偏極度 $|P_e^{hh}|$ は $(P_{10})^{1/2}$ によって決定される。したがって、発光スペクトル、発光の励起スペクトルの測定より予想される電子スピンの偏極度は0.72となり、モットアナライザーで求めた偏極度0.75と良い一致を示す。

5. 発光の偏りの減衰特性によるスピン緩和時間の測定

式(2)(3)のレート方程式について、2節では励起に定常光を用いた場合を考えたが、本節では幅の狭いパルス光を用いた場合を考える。

式(2)(3)において J^A 、 J^B をゼロと置くと、 N^A と N^B の時間変化は次式ようになる。

$$N^A = \frac{N_0}{2} \{1 + P_i \exp(-\frac{t}{T_s})\} \exp(-\frac{t}{\tau}) \quad (17)$$

$$N^B = \frac{N_0}{2} \{1 - P_i \exp(-\frac{t}{T_s})\} \exp(-\frac{t}{\tau}) \quad (18)$$

ここで、 N_0 は $N^A + N^B$ の $t=0$ における値である。

伝導帯の偏極電子における発光の左右円偏光成分の和 $I^+ + I^-$ は伝導帯の電子数 N^A 、 N^B の和に比例すると考えられ、次のような減衰を示す。

$$\begin{aligned} I^+ + I^- &\propto N^A + N^B \\ &= N_0 \exp(-\frac{t}{\tau}) \end{aligned} \quad (19)$$

歪みのために価電子帯が分離している試料においては、発光の偏りは伝導帯電子の偏りに等しいと考えられるので、式(17)(18)から次式ようになる。

$$P_i \equiv \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} = \frac{N^A - N^B}{N^A + N^B} = P_i \exp(-\frac{t}{T_s}) \quad (20)$$

と T_s は、それぞれ、発光の円偏光成分の和と発光の偏りの時間減衰特性から求められる。このような、発光の円偏光成分の時間特性の測定に用いた光学系は、Fig.3のcw光励起の場合と光学系の配置は同じであるが、励起光源としてパルス幅が2psのモード同期Ti:サファイアレーザー(Spectra Physics 3950/3960)を用い、減衰特性の測定のために時間分解能が15psのストリークカメラ(Hamamatsu Photonics C4332-02)を用いた。

歪みGaAsの発光の時間分解特性が、歪みによってシフトしたバンドエッジ近くの波長において調べられた。Fig.8は、290Kと44Kで測定された歪み格子GaAsの発光の円偏光成分の時間特性を示している。ここで、 I^+ 、 I^- は左右円偏光成分を示している。伝導帯電子のライフタイム τ を $I^+ + I^-$ から式(19)を用いて求め、スピン緩和時間 T_s

Fig. 8. Time evolutions of photoluminescence of the strained GaAs measured by the streak camera at 290K (a) and 44K (b). I^+ and I^- denote the left and

を $I^+ - I^-$ ($I^+ + I^-$) から式(20)を用いて求めた。290Kでは、 T_s は105ps、 τ は45psであり、44Kでは、 T_s は245ps、 τ は60psであった。同様な測定を、4.2Kから室温までの温度範囲で行った。伝導帯電子のスピン緩和時間 T_s とライフタイム τ の温度に対する測定結果をFig.9(a)に示す。 T_s は温度に大きく依存しているが、 τ はほとんど変化していない。Fig.9(b)は、スピン緩和時間の温度依存性を対数目盛で示す。 T_s は、44Kから290Kまでの間で温度 T に対して $T^{-1/2}$ の関数で変化している。半導体の伝導帯電子の代表的なスピン緩和の機構としてDR(D'yakonov, Perel)機構とBAR(Bir, Aronov, Pikus)機構がある^{6),7)}。DP機構は、ジंकブレンド半導体が反転対称性をもっていないことによって生じる伝導帯の2つのスピン成分間の微小分離による緩和であり、スピン緩和時間は理論的に温度 T に対して T^{-3} の関数で変化すると考えられる。一方、BAR機構は、光励起電子が正孔に散乱されることによる緩和であり、電子スピンは交換相互作用によって正孔スピンの影響を受ける。この場合、スピン緩和時間は温度 T に対して $T^{-3/2}$

Fig. 9. Spin relaxation time and lifetime of photoelectrons of the strained GaAs as a function of temperature on the linear scale (a) and on the logarithmic scale (b).

$\sim T^{-1/2}$ の関数で変化すると考えられる。求められた温度依存性から、測定した試料のスピン緩和機構はBAR機構、すなわち、交換相互作用を伴う正孔による散乱によると考えられる。

6. 結 論

円偏光によって励起された歪みGaAsの発光スペクトルと発光の励起スペクトルを77Kにおいて測定した。発光スペクトルの偏りは内部歪みによるバンドエッジのシフトと価電子帯の分離を示した。伝導帯における電子のスピン偏りと種々の測定条件における発光の偏りの関係が議論された。その結果、共鳴励起の場合は72%の高いスピンの偏りが期待できることが示された。次に、伝導帯に光励起された電子のスピン緩和時間とライフタイムが発光の偏りの時間減衰から測定された。スピン緩和時間は、温度 T に対して $T^{-1/2}$ の関数で変化し、交換相互作用を伴う正孔による散乱がスピン緩和の主な機構であることが示された。

(文 献)

- 1) T. Nakanishi, H. Aoyagi, H. Horinaka, Y. Kamiya, T. Kato, S. Nakamura, T. Saka and M. Tsubata: Phys. Letters **A158**(1991)345
- 2) H. Aoyagi, H. Horinaka, Y. Kamiya, T. Kato, T. Kosigoh, S. Nakamura, T. Nakanishi, S. Okumi, T. Saka, M. Tawada and M. Tsubata: Phys. Letters, **A167**(1992)415
- 3) T. Saka, T. Kato, T. Nakanishi, H. Aoyagi, T. Kosugoh, S. Nakamura, M. Tawada, M. Tsubata, H. Horinaka and Y. Kamiya: J. Crys. Growth, **124**(1992)346
- 4) 坂 貴 ,加藤俊宏 ,中西 彊:電気製鋼, **63**(1992)186
- 5) H. Asai and K. Oe: J. Appl. Phys., **54**(1983)2052
- 6) G. Fishman and G. Lample: Phys. Rev., **B15**(1977)820
- 7) K. Zerrouati, F. Fabre, G. Bacquet, J. Brandet, J. Frandon, G. Lample and D. Paget: Phys. Rev., **B37**(1988)1334