

GaAs 基自旋极化光阴极及其应用研究进展 *

胡朝烽^{1)2)#} 冉子祎^{1)2)#} 崔滔¹⁾²⁾ 杨洁¹⁾²⁾ 邴盟¹⁾ 秦林林²⁾
刘伟^{1)2)†}

1) (重庆大学超瞬态装置实验室, 重庆 400044)

2) (重庆大学材料科学与工程学院, 重庆 400044)

高品质自旋极化电子源是高能电子加速器以及自旋分辨电子显微成像和谱学装置的关键基础部件。GaAs 基自旋极化光阴极能够利用圆偏振光激发下的光学跃迁选择定则产生自旋极化电子, 并通过负电子亲和势 (NEA) 表面实现高效发射, 是目前获得高极化电子束的主要技术路线之一。然而, 高极化度、高量子效率 (QE) 和长寿命之间仍存在明显制约: 增加光阴极工作层厚度以增强光吸收会引入应变弛豫和缺陷, 从而降低极化度; 常规 Cs-O 激活层对残余气体和离子反轰高度敏感, 导致量子效率衰减和寿命缩短。本文围绕这一核心矛盾, 系统综述了 GaAs 基自旋极化光阴极的物理基础、典型结构设计 (单层应变、应变超晶格、应变补偿超晶格及分布式布拉格反射器 (DBR) 结构)、外延制备与表面激活技术、性能表征方法, 以及在高能电子加速器 (如 CEBAF、EIC 等) 和自旋分辨电子显微/谱学装置 (如 SPLEEM/SPLEED、SPTM 等) 中的应用进展。重点分析了能带调控、应变工程、界面优化与多组分激活层对极化度、量子效率和寿命的影响。最后, 从梯度掺杂、表面等离子激元增强光吸收、新型表面激活体系和二维材料保护层等新角度展望了进一步提升 GaAs 基自旋极化光阴极综合性能的技术路径。

关键词: 砷化镓; 自旋极化光阴极; 电子源; 量子效率; 应变超晶格

PACS: 29.25.Bx, 29.27.Hj, 73.61.Ey, 81.05.Ea

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: weiliu@cqu.edu.cn

* 国家自然科学基金 (批准号: 12405180); 中国中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 2024CDJXY004)

1 引言

高品质自旋极化电子源是核物理、粒子物理、表面物理和自旋电子学实验研究的重要基础^[1]。在连续电子加速器、电子-离子对撞机和自旋分辨电子显微/谱学装置中，电子源性能不仅决定可获得的束流强度，还直接影响实验测量的精度和稳定性^[2,3]。其中，自旋极化度决定自旋相关物理量的探测精度和灵敏度，量子效率（quantum efficiency, QE）影响获得电子束流所需的激光功率和阴极负载，寿命与稳定性则关系到电子枪以及实验装置的稳定运行和维护周期^[4]。

在众多极化电子源中，GaAs 基自旋极化光阴极能够在圆偏振光激发下依靠光学跃迁选择定则产生自旋极化电子，并在负电子亲和势（negative electron affinity, NEA）表面条件下实现高效发射，因而表现出高量子效率、高自旋极化度、低能散、低本征发射度等优势^[5]。目前，该类光阴极已成为连续电子加速器、电子-离子对撞机以及自旋分辨电子显微/谱学装置中的重要极化电子源。

GaAs 光阴极最早由 Pierce 等人于 1975 年提出用于产生自旋极化电子^[6]。由于体 GaAs 中 $P_{3/2}$ 价带的轻、重空穴能带存在简并，其电子自旋极化度的理论极限值为 50%。如图1所示，为突破这一物理限制，Nakanishi^[7] 和 Maruyama^[8] 于 1991 年通过在 GaAs、InGaAs 活性层中引入应变实现价带分裂，成功实现极化度的提升，但量子效率极低。同年，Omori^[9] 研发出应变超晶格 AlGaAs/GaAs 光阴极成功实现量子效率和极化度的同步提升。随后，Maruyama、Nishitani 等人^[10-12] 不断优化应变超晶格光阴极结构和生长技术，最终成功将光阴极的量子效率提升至 $\sim 1\%$ 和极化度提升至 $\sim 90\%$ 。为进一步提升量子效率，研究人员还研发了应变补偿超晶格结构^[13,14]、分布式布拉格反射器结构^[15-17] 和渐变组分技术^[18]，以增强光吸收或优化载流子输运行为，从而提高电子逃逸概率。

除体内结构设计外，表面激活和运行环境同样决定 GaAs 基光阴极的实际性能。传统 Cs-O 激活层可构建 NEA 表面，但对残余气体和表面污染高度敏感。近年来，Cs-NF₃、Cs-Sb-O、Cs-Li、Cs-Te 以及石墨烯保护层等表面工程路线被用于提升抗污染能力和运行寿命^[19-21]。同时，面向高压直流电子枪及超导射频电子枪等应用场景，GaAs 光阴极还需在更高束流负载和更复杂电磁环境下保持稳定发射，因而表面保护、寿命增强和电子枪兼容性已成为后续研究的重要方向^[22,23]。

本文围绕“高自旋极化度、高 QE 和长寿命协同提升”这一核心问题展开综述。首先介绍自旋极化电子的产生、电子输运过程中的去极化过程和 NEA 发射机制，再总结单层应变、应变超晶格、应变补偿超晶格和 DBR 结构的发展脉络及性能。在此基础上，进一步讨论外延制备、表面清洗、NEA 激活和性能表征方法，并结合高能电子加速器、自旋分辨电子显微和电子谱学应用，分析当前瓶颈并展望未来发展方向。

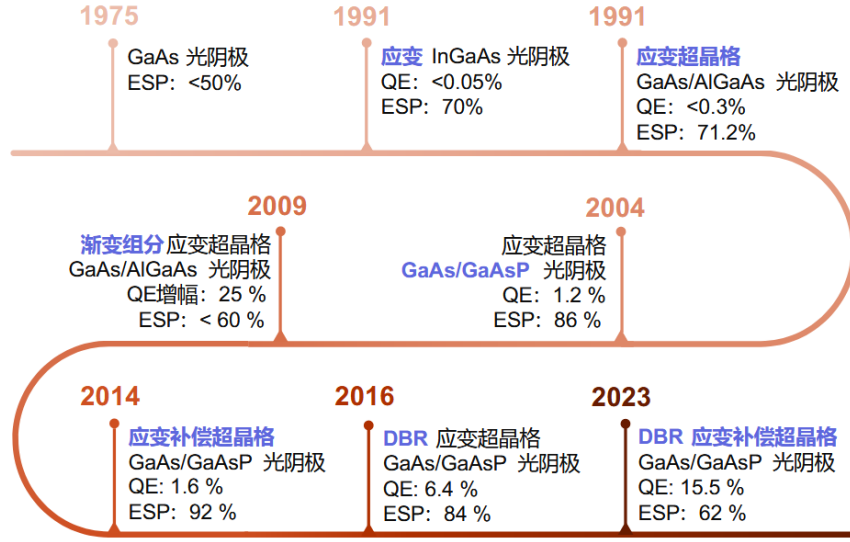


图 1 GaAs 基自旋极化光阴极发展的关键节点及性能参数。其中，QE 代表量子效率，ESP 代表电子自旋极化度

Fig. 1. Key milestones and performance parameters in the development of GaAs-based spin-polarized photocathodes. QE denotes quantum efficiency, and ESP denotes electron spin polarization.

2 自旋极化光阴极理论

2.1 自旋极化电子的产生

GaAs 基自旋极化光阴极中极化电子的产生，本质上来源于圆偏振光诱导的由价带到导带自旋选择性跃迁。光激发阶段，导带电子的初始自旋状态由 Γ 点附近的能带结构和跃迁选择定则决定^[6]。因此，本节将重点讨论自旋极化电子的形成机制，为后续分析去极化过程与结构设计策略提供理论基础。

GaAs 为直接带隙半导体，其导带底和价带顶均位于布里渊区中心 Γ 点，室温下禁带宽度 E_g 约为 1.424 eV。如图 2 (a) 所示，在 Γ 点处，导带底对应 Γ_6 态，价带顶则由重空穴带 (heavy-hole, HH) 和轻空穴带 (light-hole, LH) 构成，HH 与 LH 在 $k = 0$ 处简并^[25,26]。此外，由于自旋-轨道耦合的作用，价带还分裂出一支更低能量的分裂带 (split-off band, SO)，其与价带顶之间的能量差 $\Delta \approx 0.34$ eV^[27]。

当圆偏振光照射 GaAs 时，价带电子吸收光子后跃迁至导带，当入射光子能量满足^[26]：

$$E_g < h\nu < E_g + \Delta, \quad (1)$$

则只发生 HH 和 LH 到导带的跃迁，而分裂带不参与跃迁。由于圆偏振光携带确定角动量，HH 和 LH 跃迁产生的末态电子自旋方向相反，但跃迁几率之比为 3 : 1，因此在导带中可形成净自旋极化电子布居^[26]。

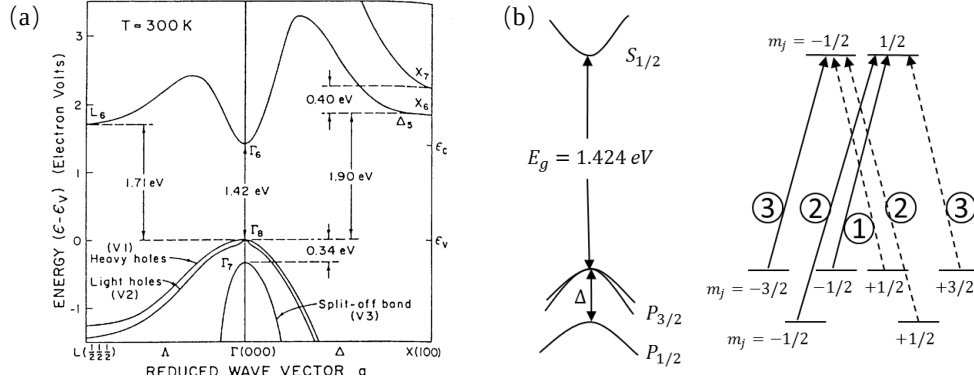


图 2 (a) GaAs 在室温下的能带结构示意图 [24]; (b) GaAs 在布里渊区中心的能带结构及电子吸收圆偏振光后的跃迁示意图 [25]

Fig. 2. (a) Schematic band structure of GaAs at room temperature [24]; (b) band structure of GaAs at the Brillouin-zone center and optical transitions induced by circularly polarized light [25].

HH/LH 价带顶简并导致两类相反自旋跃迁同时存在，如图 2 (b) 所示，这是限制体 GaAs 自旋极化度的根本原因 [28]。为了定量描述上述自旋选择性跃迁所形成的电子布居差异，通常将初始电子自旋极化度 P_0 定义为 [5]：

$$P_0 = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}, \quad (2)$$

其中， $N_{\uparrow}$ 和 $N_{\downarrow}$ 分别为导带中两种自旋取向的电子数， P_0 的符号由入射圆偏振光手性决定。对于体 GaAs，在理想选择定则条件下，初始极化度绝对值的理论上限为 [29]：

$$|P_0|_{\max} = \frac{3 - 1}{3 + 1} = 50\%. \quad (3)$$

式 (3) 表明，体 GaAs 虽可在圆偏振光激发下形成净自旋极化电子布居，但受 Γ 点 HH/LH 价带顶简并限制，其初始极化度不超过 50% [30]。需要指出的是，入射光子能量还会改变不同价带跃迁通道的相对贡献，进而影响极化度与 QE 的光谱响应 [31]。当光子能量满足 $E_g < h\nu < E_g + \Delta$ 时，自旋选择性较强， P_0 较高，但吸收系数较小，QE 通常偏低。随着光子能量升高，吸收增强并有利于提高 QE；当 $h\nu > E_g + \Delta$ 时，分裂带 $P_{1/2}$ 开始参与跃迁并贡献相反自旋电子，使极化度下降 [32,33]。因此，体 GaAs 光阴极存在“带边高极化、短波高 QE”的光谱响应权衡。

上述分析表明，体 GaAs 的初始自旋极化能力主要受到 HH/LH 价带顶简并和光谱响应权衡的共同限制。由于 P_0 仅描述光激发阶段形成的初始极化状态，最终发射电子极化度还需进一步结合输运与表面发射过程中的去极化机制进行讨论。

2.2 去极化过程

GaAs 光阴极初始激发所获得的极化度 P_0 并不等同于最终发射到真空中的电子极化度 P ，其光电发射过程可由三步模型 [5] 描述：（1）价带电子吸收光子并跃迁到导带；（2）导带电子从阴极内部传输到阴极表面；（3）表面电子发射进入真空。与上一节讨论的光激发阶段不同，后两个阶段会引入散射、自旋弛豫和表面逸出损失，从而使最终发射电子的极化度低于初始极化度，这一过程通常称为去极化过程 [32]。

为定量描述去极化过程对最终发射电子极化度的影响，可采用简化弛豫模型表征 P 与 P_0 之间的关系 [30]：

$$P = P_0 \frac{1}{1 + \tau/\tau_s}, \quad (4)$$

其中， P 为最终发射电子极化度， P_0 为初始极化度， τ 为电子在材料内部输运及逸出前后的有效停留时间， τ_s 为有效自旋弛豫时间。该式表明，有效停留时间越长，或自旋弛豫越快，最终发射电子的极化度越低；当 $\tau \ll \tau_s$ 时，电子能够在较大程度上保持初始自旋极化状态。这里的 τ 不同于后文表征光阴极运行稳定性的工作寿命。

发射电子极化度下降主要来自体内输运损失和表面逸出散射。体内输运散射与位错、空位、界面粗糙、杂质缺陷、温度、掺杂浓度和发射层厚度等因素有关，这些因素会延长电子有效传输时间并提高自旋弛豫概率 [34-36]；表面逸出散射与激活层质量、表面污染以及 NEA 势垒均匀性相关，会影响电子逸出过程中的散射与能量弛豫 [19]。

总体而言，GaAs 光阴极发射电子的极化度取决于初始自旋极化的建立及其在输运过程中的保持。为获得更高实际发射极化度，一方面需要通过应变层、超晶格和应变补偿等结构设计解除 HH/LH 简并、提高 P_0 ；另一方面需要降低外延缺陷、缩短输运路径、优化掺杂和界面质量，以减弱自旋弛豫和散射损失。

3 GaAs 基自旋极化光阴极结构与性能

3.1 单层应变 GaAs 基光阴极

前文提到，体 GaAs 中价带顶 HH/LH 带在 Γ 点处简并，使其电子自旋极化度理论极限为 50%。为突破该限制，研究者尝试通过异质外延生长的方法在 GaAs、InGaAs 等工作层中引入应变，成功实现价带分裂并提高了电子自旋极化度 [37]。由此发展出的单层应变 GaAs 光阴极，是极高极化度 GaAs 基自旋极化光阴极研究中最早且最具代表性的结构之一。典型的单层应变 GaAs 光阴极由 p 型 GaAs 衬底、GaAs

缓冲层、GaAsP_x 组分渐变层、GaAsP 应变缓冲层（或势垒层）、GaAs 应变层（工作层）构成 [38]。

应变来源于应变层与衬底或应变缓冲层之间的晶格失配。其应变变量可表示为 [39]：

$$\varepsilon = \frac{a - a_0}{a_0}, \quad (5)$$

其中， a 为应变层晶格常数， a_0 为衬底或应变缓冲层晶格常数。当外应变层厚度低于临界厚度时，应变能够在活性层中保持，引起能带结构改变，同时不会产生大量失配位错。如图3所示，引入应变后，原本在体 GaAs 中简并的 HH 和 LH 子能带发生分裂。当吸收光子能量满足 $E_g < h\nu < E_g + \delta$ ，光学跃迁主要由 HH 带主导，LH 带跃迁受到抑制，在理想选择定则和完全应变条件下理论极化度可接近 100%。研究表明，通过在 GaAsP 等缓冲层上生长薄层应变 GaAs 活性层，可将发射电子的极化度提高到 80% ~ 90% [7,15,38]，明显高于体 GaAs 光阴极。

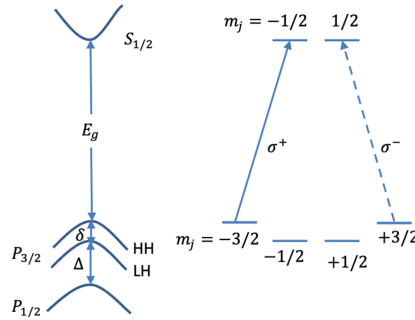


图 3 应变 GaAs 中重空穴 (HH) 与轻空穴 (LH) 子能带分裂及圆偏振光光学跃迁选择定则示意图 [25]

Fig. 3. Schematic illustration of heavy-hole (HH) and light-hole (LH) subband splitting in strained GaAs and the optical transition selection rules under circularly polarized excitation [25].

表 1 单层应变 GaAs 基光阴极的量子效率和极化度

Table 1. Quantum efficiency and spin polarization of single strained-layer GaAs-based photocathodes.

应变层	应变缓冲层	生长技术	量子效率 (%)	极化度 (%)
In _{0.13} GaAs(100 nm) [8]	GaAs	MBE	0.05	70
GaAs(80 nm) [7]	GaAsP _{0.17}	MOCVD	0.02	86
GaAs(110 nm) [38]	GaAsP _{0.279}	MOCVD	0.1	90
GaAs(140 nm) [15]	GaAsP _{0.12}	MOCVD	0.2	80

单层应变结构的主要瓶颈来自应变大小与临界厚度之间的反向约束。较大的应变虽然有利于增大 HH/LH 分裂并提高极化度，但通常也对应更小的临界厚度；当应变层厚度超过临界值时，应变弛豫将削弱 HH/LH 分裂，从而导致极化度下降；另一方面，为保持应变而采用的薄活性层又限制了激光的有效

吸收厚度，使 QE 偏低^[10,38]。表1列出了几种早期研发的单层应变 GaAs 基光阴极的性能参数。从表中可看出，单层应变 GaAs 基光阴极普遍表现出“高级化度、低 QE”的特征。由此，后续结构设计重点转向在不破坏价带分裂的前提下增加有效吸收厚度。

3.2 应变超晶格 GaAs 基光阴极

单层应变结构证明了应变调控价带分裂的有效性，但薄活性层造成的吸收不足限制了 QE。基于此，研究者进一步发展了应变超晶格 GaAs 光阴极，将多个应变量子阱层与势垒层周期性交替堆叠，在保持局部应变的同时增加工作层的有效厚度，从而实现极化度与量子效率的同步提升^[40]。

应变超晶格 GaAs 基光阴极一般由 p 型 GaAs 衬底、GaAs 缓冲层、组分渐变层、应变缓冲层（材料组分与超晶格势垒层相同）、超晶格工作层和 GaAs 发射层构成。其中，工作层由若干对量子阱层和势垒层交替堆叠，量子阱层厚度影响量子限域效应和价带分裂；势垒层厚度影响子能带结构及载流子输运行为；周期数共同决定有效吸收厚度、总应变积累和界面缺陷形成概率^[10]。表面发射层的厚度和掺杂浓度还会影响表面能带弯曲、电子逃逸概率及 NEA 激活后的发射性能^[11]。该类应变超晶格光阴极的性能由超晶格总厚度、周期结构、组分调控、界面质量和表面发射层共同决定。

目前已研发的应变超晶格结构有：GaAs/AlGaAs、InGaAs/GaAs、GaAs/GaAsP、AlInGaAs/GaAsP、InGaAs/AlGaAs、AlInGaAs/AlGaAs 等。表2列出了几种典型的应变超晶格光阴极的性能参数，部分结构的极化度可达到约 90% 以上，同时量子效率提升至 0.5% ~ 1.2%。其中，应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极可在 780 nm 工作波长附近实现 ~ 1% 的量子效率和 ~ 90% 的极化度，是高级化度自旋极化光阴极的典型代表和最常用的结构类型。

表 2 应变超晶格 GaAs 基光阴极的量子效率与极化度

Table 2. Quantum efficiency and spin polarization of strained-superlattice GaAs-based photocathodes.

应变超晶格层	厚度	生长技术	量子效率 (%)	极化度 (%)
GaAs/Al _{0.35} GaAs ^[9]	20×(1.98/3.11) nm	MBE	NA	71.2
GaAs/GaAsP _{0.36} ^[10]	14×(4/4) nm	MBE	1.2	86
GaAs/GaAsP _{0.34} ^[11]	16×(3.2/3.2) nm	MOCVD	0.5	92
Al _{0.19} In _{0.2} GaAs/Al _{0.4} GaAs ^[12]	20×(5.1/2.3) nm	MBE	0.85	92

需要指出的是，应变超晶格并未彻底消除临界厚度的问题。虽然单个量子阱层较薄且可较好保持应变，但随着超晶格周期数增加，总厚度仍会不断增大；当其超过一定范围后，依然会出现应变弛豫和缺陷累积，

从而削弱 HH/LH 分裂并降低电子极化度^[34]。

3.3 应变补偿超晶格 GaAs 基光阴极

为克服应变超晶格结构的整体临界厚度限制问题，应变补偿超晶格结构被提出，通过在势垒层中引入与量子阱层相反的应变，使一个周期内的平均应变减小^[13]。其设计目的是在保持 HH/LH 有效分裂的同时降低失配位错形成概率，从而为获得更厚工作层和更高 QE 提供结构基础。

应变补偿超晶格光阴极的构成与应变超晶格光阴极的唯一区别是：超晶格中的势垒层材料组分与应变缓冲层材料组分不同，从而使得势垒层也产生应变。通过合理的结构设计可使势垒层中的应变与量子阱层的应变大小相等、方向相反，通常情况下量子阱层保持压应变，势垒层保持张应变。每个周期内量子阱层和势垒层的应变相互抵消，可减弱超晶格中整体应变累积，从而可实现更厚工作层的外延生长，进而提高光阴极量子效率^[41]。

表3列出了几种应变补偿超晶格 GaAs 基光阴极的性能参数。其中，日本名古屋大学 Jin 等人^[14]研发的应变补偿超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极，实现了 1.6% 的量子效率和 92% 的极化度，表明该结构能够在保持高极化选择性的同时进一步提高有效吸收厚度。与普通应变超晶格相比，该类结构拥有更高的结构可设计性：量子阱层提供价带分裂和吸收，势垒层同时承担应变补偿、载流子约束和输运调节作用。

然而，该结构虽在一定程度上缓解了应变弛豫，并可通过增加超晶格周期数来提高量子效率，但研究亦发现，随着工作层总厚度进一步增加，其极化度仍会出现明显下降，高量子效率与高极化度之间的矛盾并未被彻底解决。这一现象可能与厚层结构中的载流子输运、界面质量、应变分布变化以及价带分裂减弱等因素有关，相关物理机制仍有待进一步研究^[34,42]。

表 3 应变补偿超晶格 GaAs 基光阴极的量子效率与自旋极化度

Table 3. Quantum efficiency and spin polarization of strain-compensated superlattice GaAs photocathodes

应变补偿超晶格层	厚度	生长技术	量子效率 (%)	极化度 (%)
$\text{Al}_{0.12}\text{In}_{0.18}\text{GaAs}/\text{GaAsP}_{0.17}$ ^[13]	20×(5/4) nm	MOCVD	0.4	84
$\text{GaAs}/\text{GaAsP}_{0.36}$ ^[43]	24×(4/4) nm	MOCVD	0.4	92
$\text{GaAs}/\text{GaAsP}_{0.38}$ ^[14]	24×(4/4) nm	MOCVD	1.6	92

3.4 DBR 超晶格 GaAs 基光阴极

为不增加超晶格工作层厚度而增强光吸收,研究者将分布式布拉格反射器(distributed Bragg reflector, DBR)引入超晶格 GaAs 基光阴极中,以增强目标波长附近的光学反射和谐振吸收^[16]。

如图4所示,入射圆偏振光首先穿过表面发射层和超晶格工作层,其中一部分光在工作层中被吸收并产生自旋极化电子;未被吸收的透射光到达位于工作层下方的 DBR 后被高效反射,并重新返回工作层。由此,光可在光阴极表面与 DBR 之间往返传播,并多次通过超晶格工作层,形成类似于法布里-珀罗腔(Fabry-Pérot cavity)的光学谐振结构。该过程能够增大工作层内的有效光程和局域光场强度,提高目标波长附近的光吸收概率,最终提升 QE 并降低获得给定束流强度所需的激光功率^[25]。此外,国内近期针对 532 nm 响应增强的 AlGaAs 光电阴极研究也表明,在发射层下方引入 DBR 结构可改善目标波长附近的光吸收,并提升激活后的光电响应^[44]。

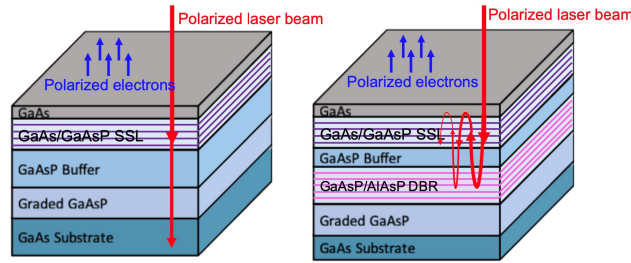


图 4 常规超晶格光阴极与 DBR 超晶格光阴极的结构及光吸收路径对比^[45]

Fig. 4. Comparison of structures and optical absorption pathways in conventional and DBR-enhanced superlattice photocathodes^[45].

DBR 通常由高折射率层与低折射率层周期性交替堆叠构成,其基本原理是利用多层界面反射产生的相干叠加,在目标波长附近形成高反射率反射镜。为获得较高反射率,DBR 各层通常满足四分之一波长条件,即^[46]

$$n_H(\lambda_{\text{DBR}})d_H = \frac{\lambda_{\text{DBR}}}{4} = n_L(\lambda_{\text{DBR}})d_L, \quad (6)$$

其中, n_H 和 n_L 分别为高、低折射率材料在设计波长 λ_{DBR} 处的折射率, d_H 和 d_L 分别为对应层厚。配对层数增加可以提高反射率,但也会增加外延厚度、异质界面数量及应变积累。因此,DBR 设计需要同时考虑反射谱中心、带宽、腔长相位匹配和材料外延兼容性^[25]。

DBR 超晶格 GaAs 基光阴极通常由 GaAs 衬底、GaAs 缓冲层、渐变组分层、DBR 层、应变缓冲层、超晶格工作层和表面发射层构成。其中,DBR 层通常位于超晶格工作层下方,以便将透过工作层而未被

吸收的激光重新反射回工作层中，实现共振增强吸收^[47]。实际设计中，DBR 材料体系常采用折射率差异较大的 GaAsP/AlAsP、AlAs/AlGaAs 等组合，超晶格工作层则多采用 GaAs/GaAsP、GaAs/AlGaAs 等结构。除了 DBR 本身的配对层数和层厚外，表面 GaAs 层、超晶格层、应变缓冲层及 DBR 层之间的总光学长度也需满足共振条件，其设计波长、折射率匹配及界面质量均会直接影响最终增强效果^[25]。

表4列出了几种 DBR 超晶格 GaAs 基光阴极的性能参数。其中，Liu 等人^[16]于 2016 年研发的 DBR 应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极成功实现了量子效率的重大突破，使量子效率纪录值达到了 6.4%（极化度 84%）。2023 年，Biswas 等人^[17]进一步将 DBR 与应变补偿超晶格相结合，研发出了量子效率超过 15% 的 DBR 应变补偿超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极。然而，此光阴极为增强光吸收而大幅增加的超晶格总厚度，引发了显著的应变弛豫与缺陷增殖，最终导致极化度仅 75%。

表 4 DBR 超晶格 GaAs 基光阴极的量子效率与极化度

Table 4. Quantum efficiency and spin polarization of DBR superlattice GaAs-based photocathodes.

工作层	DBR	生长技术	量子效率 (%)	极化度 (%)
单层应变 GaAs ^[15]	Al _{0.1} GaAs/Al _{0.6} GaAs	MOCVD	1	80
应变超晶格 GaAs/Al _{0.35} GaAs ^[47]	AlAs/Al _{0.2} GaAs	MOCVD	2.3	68
应变超晶格 Al _{0.19} In _{0.2} GaAs/Al _{0.4} GaAs ^[48]	AlAs/Al _{0.19} GaAs	MOCVD	1	83
应变超晶格 GaAs/GaAsP _{0.35} ^[16]	GaAsP _{0.35} /AlAsP _{0.4}	MBE	6.4	84
应变超晶格 GaAs/GaAsP _{0.35} ^[49]	GaAsP _{0.35} /AlAsP _{0.4}	MOCVD	2.9	82
应变补偿超晶格 GaAs/GaAsP _{0.38} ^[17]	GaAsP _{0.19} /AlAsP _{0.22}	MBE	15	75

4 自旋极化光阴极的制备和激活

4.1 自旋极化光阴极的制备

GaAs 基自旋极化光阴极通常由生长于 GaAs 衬底上的多层薄膜材料构成，其结构和薄膜质量对光阴极性能起决定性作用。制备超晶格 GaAs 基自旋极化光阴极最常用的生长技术为金属有机化学气相沉积 (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD) 技术和分子束外延 (Molecular Beam Epitaxy, MBE) 技术。此外，化学束外延 (Chemical Beam Epitaxy, CBE) 技术也于近期被提出用于制备超晶格 GaAs 基自旋极化光阴极。三种制备技术的基本过程如图5所示，三者的主要差异体现在物质输运方式、生长反应机制及界面控制精度等方面，并进一步影响 GaAs 基光阴极的外延质量与发射性能。

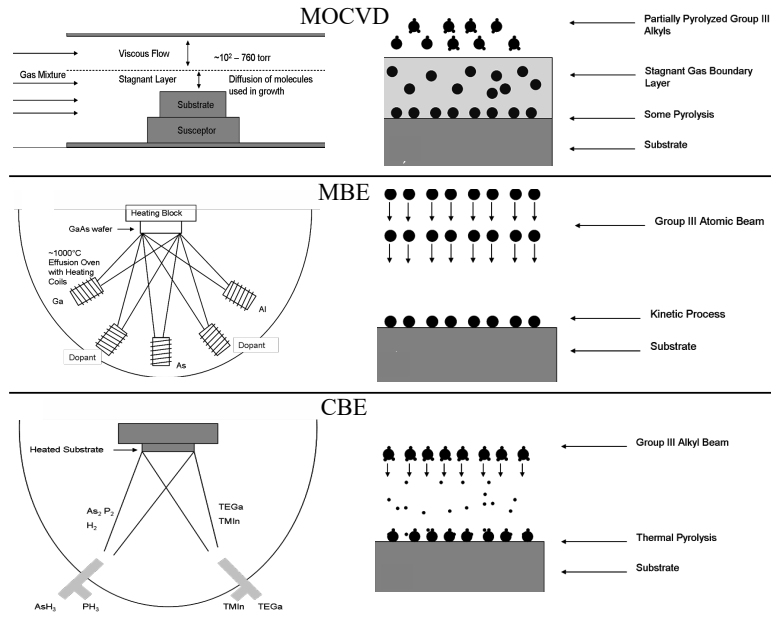


图 5 MOCVD、MBE 与 CBE 三种薄膜制备技术的基本过程示意图 [50–53]

Fig. 5. Schematic illustration of the basic processes of three thin-film growth techniques: MOCVD, MBE, and CBE [50–53].

MOCVD 主要以金属有机化合物和氢化物作为反应源，通过载气输运至加热衬底表面后发生热分解和表面反应，从而实现 III–V 族半导体外延生长 [54,55]。该方法具有生长速率高、组分均匀性好以及适合大面积外延生长等优点，在 GaAs/GaAsP、GaAs/AlGaAs 等异质结构及多种 GaAs 基光阴极样品制备中得到应用。如表1-表4所示，不同结构的 GaAs 基光阴极样品均有采用 MOCVD 技术制备。相比 MBE，MOCVD 更适用于大面积和批量化样品制备，但由于其生长过程中涉及气相反应和边界层扩散，在超薄层厚度控制和界面陡峭性方面通常不如 MBE。

MBE 属于超高真空条件下的物理外延方法，利用高纯原子束或分子束定向入射至加热衬底表面，并通过表面吸附、迁移和逐层排列的方式形成外延层 [56,57]。由于 MBE 可以精确调控材料组分、掺杂分布和界面结构，因此适合制备量子阱、超晶格、应变补偿超晶格和 DBR 等对界面质量要求较高的复杂结构。如表1-表4所示，MBE 技术同样广泛应用于不同结构的 GaAs 基光阴极研究中。值得注意的是，Liu 和 Belfore 等人 [16,49] 分别采用了 MBE 和 MOCVD 技术制备结构参数完全相同的 DBR 应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极，结果表明 MBE 制备样品的性能参数显著优于 MOCVD 制备样品（见表4）。

CBE 可视为介于 MBE 与 MOCVD 之间的外延方法 [58]，兼具气源外延的供给灵活性和类似 MBE 的表面反应控制特点，可在较低生长温度下获得较好的界面质量与组分均匀性 [59,60]。近期，Stutzman 等人 [61] 采用 CBE 技术成功制备出应变超晶格 InAlGaAs/AlGaAs 光阴极，获得了 0.3% 的量子效率和 80%

的极化度。然而，采用 CBE 制备超晶格 GaAs 基自旋极化光阴极的研究仍处于起步阶段，相关研究经验存在不足，还需进一步探索。

综上，表5显示了不同外延生长技术的差异。总体而言，MOCVD 更适合大面积和批量化制备，MBE 更适合高界面精度的超晶格及 DBR 光阴极研究，CBE 则在新型复杂异质结构光阴极制备中具有一定探索价值。

表 5 不同外延生长技术对比
Table 5. Comparison of different epitaxial growth techniques.

生长技术	源类型	真空/压力范围	生长速率	优点	缺点
MOCVD	III 族金属有机化合物和 V 族氢化物	10-760 Torr	1-10 μm/h	生长速率高，均匀性好，适合大规模工业生产	气相反应复杂，界面陡峭性较差
SSMBE	(As、P、Ga 等)	10 ⁻⁷ -10 ⁻⁶ Torr	<3 μm/h	超高纯度，结构控制精细，适合研究型材料	通量调节复杂，生长速率低，规模化能力有限
GSMBE	III 族固态源和 V 族氢化物	10 ⁻⁶ -10 ⁻⁴ Torr	<1 μm/h	V 族供给稳定，改善生长控制	生长速率低，系统复杂，设备成本高
MOMBE	III 族金属有机化合物和 V 族固态源	10 ⁻⁶ -10 ⁻⁴ Torr	<1 μm/h	兼具 MBE 精度与气源灵活性	工艺窗口较窄，控制复杂
CBE	III 族金属有机化合物和 V 族氢化物	~ 10 ⁻⁵ Torr	0.5-1 μm/h	表面反应主导，低温生长，掺杂易控	技术成熟度较低，应用较少

4.2 自旋极化光阴极的激活

GaAs 基自旋极化光阴极通过表面激活形成 NEA 表面，是获得高 QE 发射的必要条件。实际工艺通常包括外延片转移、湿法化学清洗、真空退火、激活以及性能测试等环节。表面清洗决定初始界面洁净度和终止状态，NEA 激活则通过在 GaAs 表面沉积 Cs 和 O（或 F、Te 等）化学元素，构建表面偶极层降低电子逸出势垒。两者共同影响初始 QE、激活重复性、极化度保持和运行寿命。

4.2.1 表面清洗

GaAs 暴露于空气后会形成由 Ga 和 As 氧化物构成的原生氧化层，并伴随碳氢残留、吸附水及有机污染物积累^[62]。这些残留会干扰 Cs 基偶极层的吸附和重排，降低 QE 并削弱激活重复性^[63]。对于 GaAs 光阴极而言，表面清洗通常包括湿法化学清洗与真空退火两个步骤，其核心任务是获得化学状态明确、表面终止可控且缺陷密度较低的初始界面，为后续激活提供稳定且可重复的表面条件^[64]。

早期 GaAs 表面湿法化学清洗主要是去除原生氧化层，典型清洗体系包括 H_2SO_4 、HF 和 HCl 等酸洗路线。随着对 NEA 激活界面研究的深入，清洗评价标准逐渐由“是否去除污染物”转向“能否形成适合高 QE 和长寿命激活的初始界面”。不同清洗体系在氧化物去除、碳污染控制和表面终止调节方面具有明显差异^[65]，其主要作用可概括如表6所示。

表 6 GaAs 光阴极常用湿法清洗体系及其对表面状态的典型影响

Table 6. Common wet-chemical cleaning systems for GaAs photocathodes and their typical effects on surface states.

清洗体系	主要作用	典型界面特征	局限性
$\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}_2\text{-H}_2\text{O}$	去除表面氧化物	对吸附碳污染和表面终止调节作用有限	冲洗和空气转移过程中易再氧化
HF	高效去除表面氧化物	可显著降低氧化物残留，表面较疏水	去碳能力不足，可能存在 F 残留
HCl-IPA	去除碳污染、部分氧化物，调节表面化学状态	有利于降低碳残留并改善表面状态	去除 As_2O_3 能力弱于 HF
HF + HCl-IPA	协同去除氧化物和碳污染	氧化物、碳残留均降低，有利于后续激活	步骤较多，对转移和退火条件敏感

在具体清洗体系中， $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}_2\text{-H}_2\text{O}$ 和 HF 是 GaAs 表面脱氧化物处理中常用的湿法清洗试剂，两种试剂均主要用于去除空气暴露后形成的原生氧化层。其中， $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}_2\text{-H}_2\text{O}$ 较早被用于 GaAs(001) 表面原生氧化层的去除^[66]，后续 Chen 等^[67] 进一步研究发现，经该体系处理后的 $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ 光阴极可获得较优的光谱响应，说明氧化层的去除对改善后续光电发射性能具有直接影响。相比之下，HF 体系表现出更强的脱氧化物能力。早期 Adachi 和 Kikuchi^[68] 对 HF 溶液处理后的 GaAs(100) 表面化学状态进行分析，指出水溶液 HF 可显著降低表面氧含量；Fang 等^[65] 的 X 射线光电子能谱 (X-ray photoelectron spectroscopy, XPS) 结果也表明，HF 对表面残留氧化物具有较好的去除效果，但对碳污染的去除作用并

不明显。上述两类体系均可作为 GaAs 表面原生氧化层去除的有效预处理方法，但对吸附碳残留、表面终止状态的调控能力相对有限。

与以脱氧化物为主要目标的酸洗体系相比，HCl-异丙醇（isopropanol, IPA）混合溶液对样品表面具有更好的表面终止调节和界面稳定化作用。Tereshchenko 等^[69]证明，HCl-IPA 不仅能够去除样品表面的 Ga、As 氧化物，还可在表面保留约 2 个单层的 As_0 覆盖层；该 As 覆盖层可以在后续真空退火过程中去除，同时一并去除残余烃类碳污染，形成有利于 NEA 激活的有序表面重构。Alperovich 等^[70]进一步指出，HCl-IPA 处理可在初始氧化表面形成 1-3 个单层的非晶 As_0 覆盖层，在保持较低表面粗糙度的同时，改善后续热清洗与激活的界面条件。

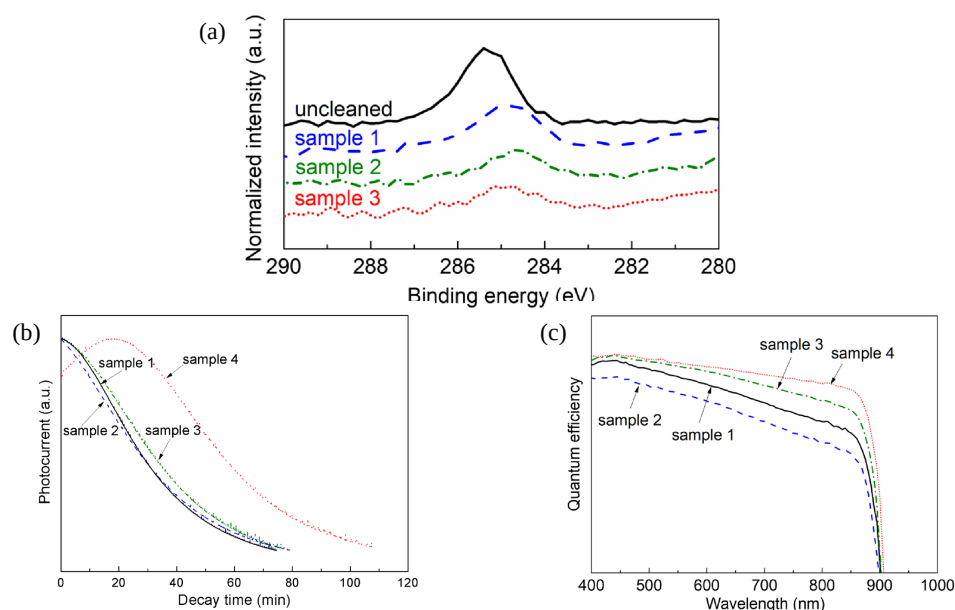


图 6 不同清洗与激活工艺对 GaAs 基光阴极表面状态和发射性能的影响：(a) C 1s XPS 谱；(b) 光电流衰减曲线；(c) 量子效率谱。其中，S1、S2、S3 和 S4 分别对应 HF、HCl-IPA、HF+HCl-IPA 和 HF+HCl-IPA（633 nm 单色光激活）处理。^[71]

Fig. 6. Effects of different cleaning and activation processes on the surface state and emission performance of GaAs-based photocathodes: (a) C 1s XPS spectra; (b) photocurrent decay curves; (c) quantum efficiency spectra. S1, S2, S3, and S4 correspond to HF, HCl-IPA, HF+HCl-IPA, and HF+HCl-IPA treatment with 633 nm monochromatic activation, respectively.^[71]

基于不同酸溶液在去除氧化物和表面终止调节作用的不同，复合清洗逐渐成为 GaAs 表面预处理的重要策略。Fang 等^[65]比较多种湿法清洗路线后分析得出，先采用 HF 去除表面氧化物，再利用 HCl-IPA 降低碳残留并改善 As 相关终止状态的两步化学清洗方法，可获得氧化物和碳残留较低、富 As_0 的表面。

Liu 等^[71] 比较了 HF、HCl-IPA 以及 HF+HCl-IPA 两步清洗路线后发现，两步清洗路线可有效降低表面碳残留，提升 GaAs 光阴极的长波响应和工作寿命（图6）。后续 Yu 等^[72] 从理论上比较了 HF、HCl 和 H₂SO₄ 对 Ga₂O₃ 和 As₂O₃ 吸附表面的作用差异，为复合清洗策略中酸液选择性去除氧化物提供了依据。

湿法清洗后通常需真空退火以去除残余吸附物并恢复表面有序性，但过高温度可能引起掺杂扩散、表面粗化和应变释放^[73]。原子氢清洗（atomic hydrogen cleaning, AHC）可降低真空退火温度，适合薄发射层或应变结构预处理，但氢暴露剂量和退火窗口需严格控制^[74]。总体而言，GaAs 光阴极表面清洗已由单一脱氧化物处理，发展为面向 NEA 激活的界面工程，其关键在于协同控制氧化物、碳污染、表面终止和热损伤，为后续 Cs 基激活层构建稳定、均匀且可重复的初始界面。

4.2.2 表面激活

在外延结构和表面清洗分别确定材料体质量与初始表面状态后，表面激活决定 GaAs 基自旋极化光阴极能否形成稳定且高效的发射界面。表面激活通常是在超高真空环境中通过 Cs 与氧化剂或稳定化元素调控表面偶极层和能带弯曲，使真空能级降低至导带以下，以构建 NEA 发射表面^[5]。因此，表面激活并非单纯提高初始 QE 的工艺步骤，而是同时影响表面势垒均匀性、界面散射、残余气体反应、电子自旋极化度保持和工作寿命的关键界面工程。

Cs-O 是最经典、应用最广泛的 NEA 激活方案，也是评价新型激活体系的重要基准。对于传统体 GaAs 光阴极，Iijima 等^[75] 采用 Cs/O 交替沉积的 yo-yo 激活方法获得了约 10% 的典型量子效率。Sada 和 Meguro^[76] 从功函数演化角度指出，Cs 沉积主要降低初始表面势垒，而氧的引入则有助于形成更强的偶极层同时增强电子发射响应。Zhang 等^[77] 通过对激活过程分析，发现过量 Cs 或 O 均会破坏最优 NEA 状态，这表明 Cs-O 体系对剂量配比和激活终点较为敏感。因此，Cs-O 体系虽具有工艺成熟、初始 QE 较高等优势，但对试剂剂量、残余气体和腔体真空状态高度敏感，使用寿命提升空间有限。

针对 Cs-O 体系稳定性不足的问题，研究者尝试以新型氧化剂替代 O，以提高激活层的抗污染能力。Cs-NF₃ 体系是这一方向的代表，通过循环通入 Cs 与 NF₃，同样能构建稳定发射电子的 NEA 激活层，早期 Liu 等^[78] 在 632 nm 下获得 3%-5% 的最大 QE。后续 Chanlek 等^[79] 比较了该体系在不同残余气体暴露下的发射响应，发现 Cs-NF₃ 激活的光阴极在 O₂、CO₂ 和 CO 等环境中较 Cs-O 体系具有更高稳定性；Li 等^[80] 也结合实验与第一性原理计算指出，在过量 Cs 供给条件下，Cs-NF₃ 激活光阴极可获得更高量子效率和更好的白光照射稳定性（图7（a））。

除氧化剂替代外,引入 Li、Sb、Te 等稳定化元素也是延长 GaAs 光阴极寿命的另一条重要路径。Li 的引入会改变 Cs-Li-NF₃ 激活层中 N、F 和 Cs 的电荷分布,从而影响表面化学状态与稳定性^[81]。Zhang 等^[82]比较了 Cs-Li-O 与 Cs-Li-NF₃ 激活效果,其中含 O 的一组更有利于改善发射稳定性;含 NF₃ 的一组有助于提高量子效率,但对残余气体更敏感,这与仅通过 Cs-O 与 Cs-NF₃ 激活所获得结果有一定差异,具体机理还需通过后续研究探索。Herbert 等^[20]报道称 Cs-Li-O 激活层可使 GaAs 光阴极寿命提高至传统体系的 (19 ± 2) 倍,总提取电荷提高至 (16.5 ± 2.4) 倍,且量子效率未出现明显下降(图7(b))。

Cs-Sb-O 激活体系能够提高激活层稳定性,并在兼顾寿命提升与高极化发射方面表现出重要优势。Bae 等^[19]指出, Cs-Sb-O 激活层可在基本保持量子效率和自旋极化度的同时,使 GaAs/GaAsP 超晶格光阴极寿命较 Cs-O 体系提高约一个数量级,并维持接近 90% 的自旋极化度。随后,该团队在高压直流电子枪条件下验证了该体系的应用可行性,结果表明,在 780 nm 条件下,相较于 Cs-O 激活,经该体系激活后的寿命提高约 45% (图7(c))。Guo 等^[83]通过调控 Sb 厚度优化 Cs-Sb-O 激活层结构,在 780 nm 下实现了约 2% 的量子效率,并使暗寿命提升约 10 倍,显示出该体系在高量子效率、长工作寿命及高极化度获取之间能有较好的综合平衡。

与 Cs-Sb-O 体系类似,Te 参与的激活体系同样以提升 NEA 表面稳定性为主要目标。Bae 等^[2]较早采用 Cs-Te 激活 GaAs(001) 表面,以形成更稳定的 Cs₂Te 激活层。Mott 极化度测量结果显示,该体系相较于 Cs-O 激活,可以在未明显损伤发射电子极化度的同时使寿命提高约 5 倍。Biswas 等^[84]进一步提出 Cs-O-Te 协同激活方案,使 GaAs 光阴极在 532 nm 和 780 nm 下分别获得 8.8% 和 4.5% 的量子效率。近期,Liu 等^[21]从实验和理论两方面比较 Cs-Te 与 Cs-O 体系,发现 Cs-Te 激活光阴极在室温下可获得 11.83% 的峰值量子效率,并在不同测试温度下表现出优于 Cs-O 体系的寿命(图7(d))。Cs-Te 激活体系为传统 Cs-O 激活提供了具有潜力的替代方案,尤其适用于更关注长运行寿命与稳定性的应用场景。

除激活层组分调控外,利用石墨烯、六方氮化硼(h-BN)等二维材料在光阴极表面构筑保护层,也为提高 GaAs 基光阴极稳定性提供了新的思路。该方法的核心在于通过原子级覆盖层阻隔残余气体对 Cs 基激活层的化学污染,同时保持光透过和电子逸出通道^[85,86]。Biswas 等^[87]通过插层方式实现了单层石墨烯覆盖下 GaAs/GaAsP 超晶格光阴极的 Cs-O 激活,初步证明二维保护层可与自旋极化电子发射具有一定兼容性;其结果显示,相较于未覆盖保护层的样品,带有石墨烯保护层的光阴极发射电子的自旋极化度有一定提高。二维材料保护层为面向自旋电子器件的高稳定性 GaAs 自旋极化光阴极设计提供了新的界面工程思路,但其对量子效率、电子逸出势垒及长期运行稳定性的影响仍需进一步系统研究。

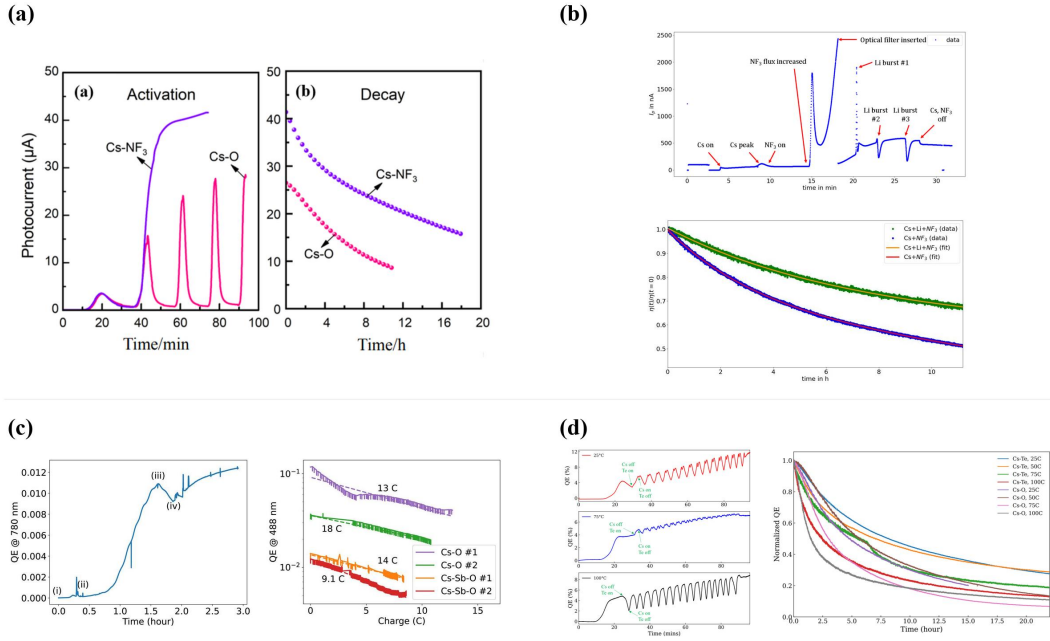


图 7 不同 GaAs 光阴极表面激活体系在激活过程、量子效率衰减、寿命等方面的性能对比 [20,21,80,88]

Fig. 7. Comparison of activation processes, quantum-efficiency decay, and lifetime characteristics for different surface activation systems of GaAs photocathodes [20,21,80,88].

5 自旋极化光阴极的性能表征

常用于自旋极化光阴极研究的表征手段主要包括反射式高能电子衍射 (reflection high-energy electron diffraction, RHEED)、原子力显微镜 (atomic force microscopy, AFM)、扫描透射电子显微镜结合能量色散谱 (scanning transmission electron microscopy-energy dispersive spectroscopy, STEM-EDS)、光致发光 (photoluminescence, PL) 光谱以及莫特极化度测量仪 (Mott polarimeter), 这些方法分别对应原位生长监测、表面与截面结构分析、光学响应评估以及发射性能测试。

其中, RHEED 主要用于 MBE 生长过程中的原位监测, 可反映外延表面的重构状态、二维生长稳定性及异质结构界面演化, Liu 等 [16] 利用 RHEED 并结合表面温度控制, 确定了 $\text{GaAs}_{0.65}\text{P}_{0.35}$ 与 $\text{AlAs}_{0.6}\text{P}_{0.4}$ 两类 DBR 层的适宜生长条件, 最终在 776 nm 处获得约 6.4% 的 QE 和约 84% 的自旋极化度。对于生长后的样品, AFM 可以用于表征表面粗糙度和台阶起伏等形貌特征。Karkare 等 [89] 通过 AFM 发现, GaAs 光阴极在高温热处理和 NEA 激活后会产生明显的纳米尺度粗糙化 (图8 (a)); Zhuravlev 等 [91] 进一步指出, NEA 激活过程中的表面粗糙化会降低电子逸出概率和光发射量子产额, 从而影响界面稳定性; Biswas 等 [17] 利用 TEM/STEM 及 EDS 对样品截面进行表征, 结果显示 DBR 层和超晶格层具有较清晰的周期结构与元素分布 (图8 (b)), 该样品最终在近带隙激发下实现了超过 15% 的 QE 和约 75% 的自旋极化度。

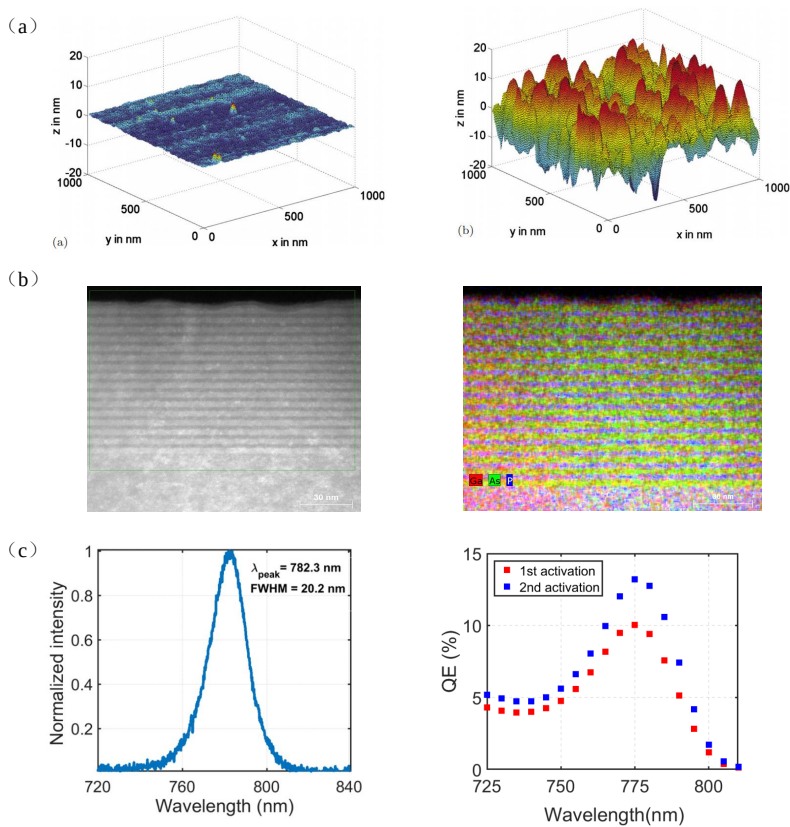


图 8 GaAs 基光阴极的结构与性能表征：(a) AFM 表面形貌^[89]；(b) TEM/STEM 截面结构与元素分布^[17]；(c) PL 与量子效率光谱^[90]

Fig. 8. Structural and performance characterizations of GaAs-based photocathodes: (a) AFM topographies^[89]; (b) cross-sectional TEM/STEM images and elemental mapping^[17]; (c) PL and QE spectra^[90].

除结构表征外，PL 光谱可进一步用于判断超晶格吸收层与 DBR 结构的光学匹配情况。Saha 等^[90]对 GaAs/GaAs_{0.62}P_{0.38} DBR 应变补偿超晶格光阴极进行了 PL 表征，测得 PL 峰值位于约 782.3 nm，最终在 775 nm 附近通过两次激活分别获得约 10% 和 13% 的 QE（图 8 (c)）；Cultrera 等^[92]在布鲁克海文国家实验室（Brookhaven National Laboratory, BNL）搭建了包含减速场 Mott 极化度测量仪的光阴极表征平台，用于超晶格光阴极的量子效率与自旋极化度同步测量；Saha 等^[90]利用该平台对前述 DBR 应变补偿超晶格光阴极样品进行测量，在 790 nm 处获得约 73% 的最大自旋极化度。另外，Biswas 等^[87]在单层石墨烯保护的 GaAs/GaAsP 超晶格光阴极研究中，利用 Mott 极化度测量仪比较了有无保护层样品在 780–800 nm 波段内的发射电子自旋极化度的差异，为二维保护层与自旋极化发射兼容性的判断提供了直接表征依据。

6 自旋极化光阴极的应用

GaAs 基自旋极化光阴极凭借其高自旋极化度、高量子效率、低能散、低本征发射度以及可通过圆偏振光快速翻转自旋方向等突出优势,已成为产生高品质自旋极化电子束的主流技术方案。目前,该类光阴极已在多个前沿领域中获得了广泛应用,其中最为核心的两大应用场景分别为高能电子加速器和自旋分辨电子显微成像与电子谱学装置。在高能电子加速器中,GaAs 基光阴极为核物理与粒子物理实验提供了不可或缺的高极化、高亮度电子束;在电子显微成像与谱学装置中,其产生的自旋极化电子束则成为探测材料磁性结构、自旋电子态及量子现象的关键探针。本章重点阐述 GaAs 基自旋极化光阴极在上述两类装置中的应用进展、技术需求及面临的挑战。

6.1 高能电子加速器中的应用

GaAs 基自旋极化光阴极之所以能够在高能电子加速器中占据核心地位,根源于其多项独特的性能优势。首先,依靠圆偏振光激发下 GaAs 及其应变/超晶格结构中价带到导带的自旋选择性光学跃迁,并结合负电子亲和势 (NEA) 表面实现高效发射,该类光阴极能够产生自旋极化度超过 90% 的电子束。其次,DBR 应变超晶格及应变补偿超晶格结构在解除轻重空穴价带简并的同时可维持较高的量子效率,使得其在较低激光功率下即可获得满足实验需求的高流强和高亮度束流。此外,GaAs 光阴极发射的电子束具有低能散和低发射度的特点,有利于后续加速和束流品质控制。通过调节入射激光的圆偏振方向,还可快速实现电子束自旋方向的翻转,为高精度宇称破坏实验和自旋相关测量提供了便利。正是由于上述综合优势,GaAs 基自旋极化光阴极在过去三十余年间被全球多个大型加速器装置先后采纳,并持续推动了核物理、强子物理及粒子物理实验的发展。

从时间发展脉络来看,GaAs 基自旋极化光阴极在高能电子加速器中的应用始于 20 世纪 90 年代初。美国斯坦福直线加速器中心 (SLAC) 是世界上第一个将应变 GaAs 光阴极应用于高能电子加速器的研究机构。1992 年起,SLAC 的 3 km 直线加速器(如图9所示)在 120 kV 直流高压极化电子枪中采用了单层应变 GaAs 光阴极,配合圆偏振脉冲钛宝石激光激发,为 SLC (Stanford Linear Collider) 实验持续提供了极化度约 80%、峰值流强超过 8 A 的高品质极化电子束^[93]。在 SLAC 近十年的运行实践中,单层应变 GaAs 光阴极的极化度虽长期维持在 80% 左右但始终难以超越,量子效率亦偏低(约 0.3%)^[94],这促使研究者进一步探索超晶格等新型结构以期获得更高性能。

同一时期,荷兰国家核物理研究院 (NIKHEF) 在其 AmPS (Amsterdam Pulse Stretcher) 储存环上开

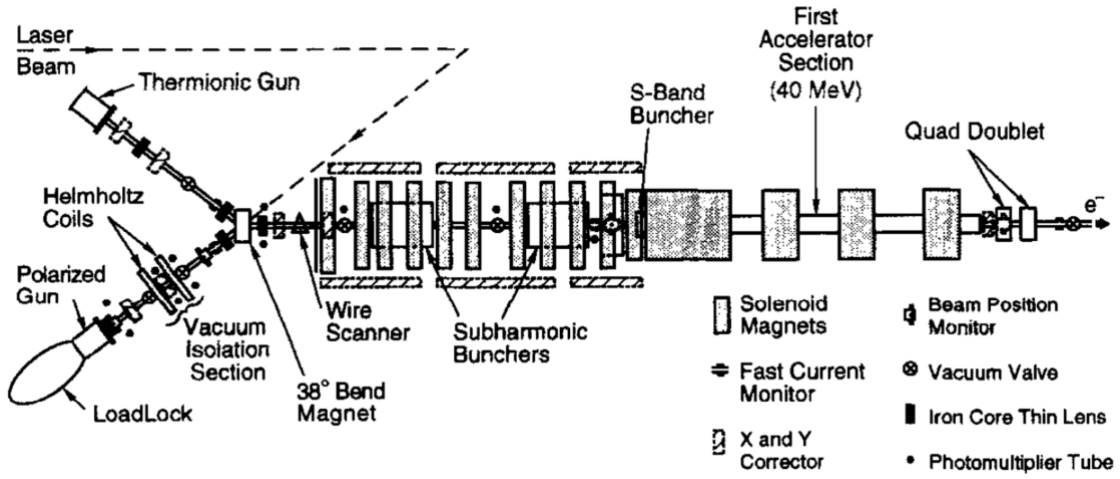


图 9 美国斯坦福直线加速器中心的自旋极化电子注入器 [93]。

Fig. 9. The spin-polarized electron injector at SLAC [93].

展了基于极化电子束的轻核内靶物理实验。NIKHEF 建造的 100 kV 极化电子枪，采用单层应变 InGaAsP 光阴极，实现了极化度 82.5%、脉宽 2 s 的脉冲极化电子束，为极化轻核物理研究提供了关键的实验条件 [95]。NIKHEF 在改善光阴极运行寿命方面也做出了重要探索：通过将电子枪高压由直流供电改为脉冲供电，使光阴极工作寿命获得大幅提升 [96]。

德国波恩大学 ELSA (Electron Stretcher Accelerator) 装置于 2000 年前后建成了一套 50 kV 极化电子枪，以应变超晶格 InGaAs/AlGaAs 光阴极为核心，配合 Ti:Sa 激光驱动，可长期提供极化度约 80%、脉宽 1 s、单脉冲电荷量 100 nC 的脉冲极化电子束 [97]。ELSA 利用该极化电子束或圆偏振光子束开展双重极化条件下的强子物理实验，是国际上此类实验的重要平台之一。值得关注的是，ELSA 的光阴极在运行中表现出优异的长寿命特性，连续运行寿命超过 3000 小时。此外，ELSA 还建设了可同时存放多种不同类型光阴极的负载锁系统，进一步提高了极化电子源的运行灵活性 [98]。

20 世纪 90 年代末至 21 世纪初，美国麻省理工学院贝茨 (MIT-Bates) 直线加速器 [99] 建设了一套基于 GaAs 光阴极的极化电子源系统，主要用于宇称破坏等精密核物理实验。该源设计了多室级联真空系统以同时存放多个光阴极样品，显著增强了运行保障能力。Bates 极化电子源在 SAMPLE-III 宇称破坏实验 (125 MeV 电子-碳散射) 中表现出色，向实验提供了超过 140 C 的高品质极化束流，展现了 GaAs 光阴极在精密弱相互作用测量中的巨大应用价值。

美国杰弗逊国家实验室 (Jefferson Lab, JLab) 的连续电子束加速器装置 (Continuous Electron Beam Accelerator Facility, CEBAF，如图10所示) 是目前全球规模最大、性能最为先进的高极化连续波电子加

速器。自 1995 年以来, CEBAF 已研制了五代极化电子源^[100,101]。目前, CEBAF 的极化电子源以应变超晶格 GaAs 基光阴极为核心, 可长期产生自旋极化度超过 85%、量子效率优于 1% 的高品质极化电子束, 为 12 GeV 能区的核物理与强子物理实验提供了不可替代的实验条件。JLab 对极化电子源技术的发展做出了系统性的贡献: 一方面, 在直流高压电子枪中引入阳极偏压以有效抑制离子反轰效应, 从而大幅延长了光阴极工作寿命^[3]; 另一方面, 持续推动超晶格结构设计和表面激活工艺的优化, 以实现更高的量子效率与极化度^[16,30,49]。近年来, JLab 进一步提出了极化正电子源 (Ce^+BAF) 的概念设计^[102], 其核心方案是利用应变超晶格 GaAs 基光阴极产生的高强度极化电子束轰击靶材产生极化正电子, 要求光阴极提供极化度大于 90%、流强高于 1 mA 的连续波电子束, 这对 GaAs 光阴极性能提出了新的极高挑战。

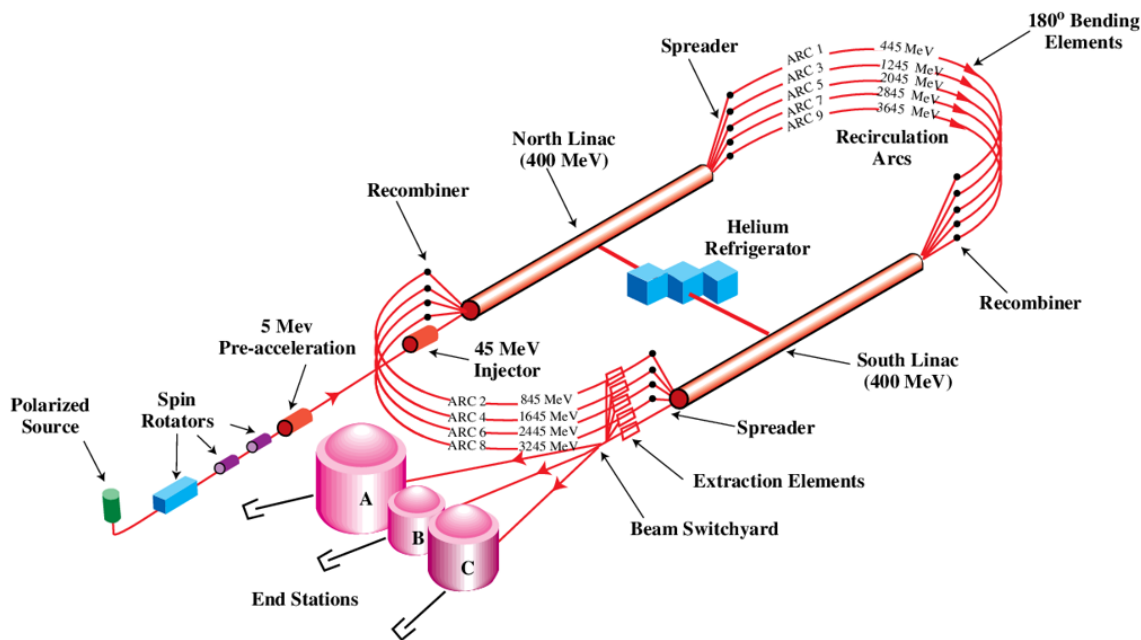


图 10 美国杰弗逊国家实验室连续电子束加速器装置布局图^[103]。

Fig. 10. Schematic layout of the CEBAF at JLab^[103].

德国美因茨大学的 MESA (Mainz Energy-recovering Superconducting Accelerator) 是一台正在建设中的能量回收型超导加速器, 其核心实验 P2 旨在精确测量弱混合角以检验标准模型。MESA 的注入系统 STEAM (Small Thermalized Electron Source at Mainz) 采用应变超晶格 GaAs 基光阴极, 设计在 200kV 偏压下提供 150 A 的自旋极化电子束^[104]。与美因茨早期用于 MAMI 加速器的极化电子源^[105]相比, MESA 对极化电子束的流强和稳定性要求显著提高——这也体现出新一代核物理实验对 GaAs 光阴极不断增长的需求。

在规划建设中的下一代加速器中, GaAs 基自旋极化光阴极继续扮演关键角色。美国电子-离子对撞

机 (EIC, 如图11所示) ^[106] 由 BNL 主导建设, 是目前全球高能核物理领域最为瞩目的下一代大科学装置。EIC 的预注入器要求应变超晶格 GaAs 基光阴极提供束团电荷量 7 nC、自旋极化度不低于 85% 的高品质极化电子束 ^[4], 这对光阴极的量子效率、极化度及长时间运行稳定性提出了极为严苛的工程要求。为此, BNL 联合 Sandia 国家实验室等单位持续开展应变补偿超晶格结构、分布式布拉格反射器 (DBR) 增强吸收以及新型表面激活层等关键技术攻关 ^[17,87], 在量子效率和极化度同步提升方面取得了显著进展。

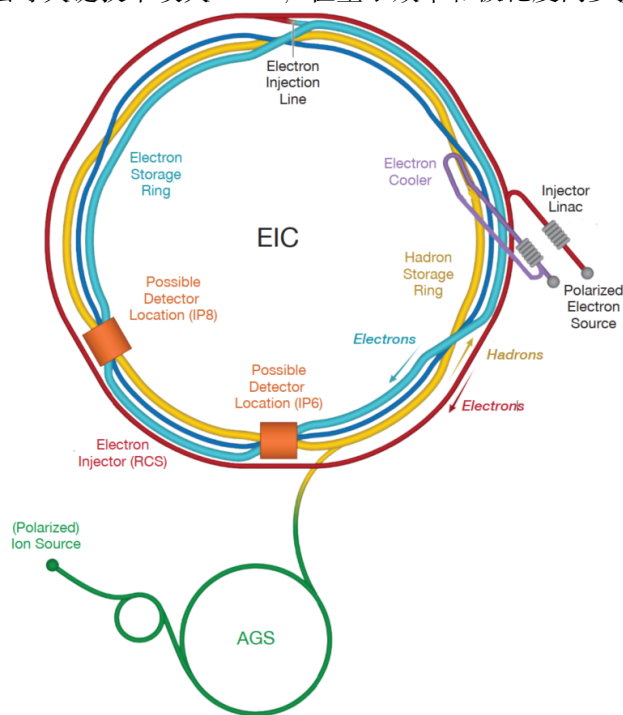


图 11 美国布鲁克海文国家实验室电子-离子对撞机布局图 ^[106]。

Fig. 11. Schematic layout of the Electron-Ion Collider at BNL ^[106].

在中国, 中国电子-离子对撞机 (Electron-Ion Collider in China, EicC) ^[107] 由中科院近代物理研究所主导提出并发布了项目白皮书, 其核心物理目标之一是深入研究核子质量与自旋起源等重大科学问题, 对极化电子束的自旋极化度和亮度提出了较高要求。尽管目前 EicC 项目尚处于概念设计报告准备阶段, GaAs 基自旋极化光阴极已被视为其极化电子源的核心候选技术。与此同时, 环形正负电子对撞机 (Circular Electron Positron Collider, CEPC) ^[108] 作为中国高能物理研究所倡议的下一代大型正负电子对撞机, 旨在运行于 Higgs 粒子、Z 玻色子和 W 玻色子工厂模式以全面检验标准模型, 其物理方案中也包含通过注入高极化度电子束实现共振退极化测量和纵向极化对撞实验等目标, 从而对极化电子源提出了现实需求。国际上, 国际直线对撞机 (International Linear Collider, ILC) ^[109] 同样将 GaAs 基自旋极化光阴极列为极化电子源的核心候选方案。ILC 要求极化电子源提供自旋极化度大于 85%、发射度低、流强

高的极化电子束用于 5 GeV 阻尼环注入。此外, ILC 对流强需求的进一步提升——至少为当前 GaAs 技术所能提供水平的数倍以上——也激励研究者持续探索新的结构设计方案。

综上所述, GaAs 基自旋极化光阴极在过去三十余年间经历了从 SLAC 的单层应变结构到 JLab/CEBAF 的应变超晶格结构、再到面向 EIC 和 ILC 的应变补偿超晶格及 DBR 增强结构的技术演进。其在高能电子加速器中的应用已覆盖从脉冲到连续波、从宇称破坏测量到强子物理实验、从运行中装置到规划中未来对撞机的广泛场景。未来, 随着加速器向更高亮度、更高流强和更高极化度方向持续发展, GaAs 基自旋极化光阴极仍将是极化电子源领域不可替代的核心技术, 而其与电子枪运行环境、表面激活技术及真空技术的同步优化将是进一步提升其性能的关键所在。

6.2 电子显微成像和谱学中的应用

与高能电子加速器侧重于产生高能量、高平均流强极化电子束以探究核子内部结构不同, 电子显微成像与电子谱学装置对电子源的需求更侧重于低能散、高空间/能量分辨率以及优异的长时稳定性。GaAs 基自旋极化光阴极由于可提供高自旋极化度、低发射度、低能散的电子束, 且自旋方向可通过圆偏振激光快速切换, 已成为自旋分辨电子显微和谱学装置中不可替代的核心电子源。当自旋极化电子束与固体表面或薄膜相互作用时, 其散射、衍射、二次电子发射及光子发射等过程均携带了材料表界面的磁化状态、自旋相关电子结构以及元素化学态等信息, 从而使得自旋和电荷等信息得以同时被探测, 这是传统非极化电子探针无法实现的功能。根据电子能量、探测信息类型以及成像模式的不同, 目前已发展出自旋极化电子能谱仪、自旋极化逆光致发射谱仪、自旋极化低能电子显微镜/衍射以及自旋极化透射电子显微镜等多种专用仪器。

自旋极化电子能谱仪是利用自旋极化电子束作为探针, 通过测量被测样品发射的次级电子的能量分布与其自旋极化度, 获取材料表面元素组成、电子态和磁化信息的一类分析技术。根据所探测的次级电子来源不同, 主要包含俄歇电子、二次电子、背散射电子和电子能量损失谱等模式。2016 年, Vasilyev 等人^[110]研制了一套自旋极化电子能量损失谱仪, 采用应变超晶格 AlInGaAs/AlGaAs 光阴极^[12], 配合波长为 826 nm 的激光, 可产生极化度高达 92%、流强 200 nA 的极化电子束, 为研究铁磁性和顺磁性固体中的电子激发动力学提供了强大工具。

自旋极化逆光致发射谱仪将自旋极化电子束入射至固体表面, 通过测量逆光致发射过程中产生光子的极化度和不对称性, 探测材料未填充态的自旋相关电子结构。当自旋极化电子进入铁磁样品后, 电子跃迁

至未占据态时所释放的光子携带自旋信息，其圆偏振度依赖于未填充态的自旋极化电子态密度。自旋极化逆光致发射谱仪大都采用体 GaAs 光阴极^[111-113]，可产生极化度约 35% 的极化电子束，为研究复杂材料未占据态电子自旋结构提供独特手段。相比于光致发射谱，逆光致发射可直接探测费米能级以上未占据态的自旋极化信息，但因光子产额较低，对电子束亮度提出了更高要求。GaAs 基光阴极提供的高亮度电子束使得该技术信噪比和测量效率得到显著改善。

自旋极化低能电子显微镜/衍射 (SPLEEM/SPLEED) 通常为一种系统的两种工作模式：衍射模式通过测量倒易空间衍射斑点强度随入射电子自旋取向的变化获取表面磁化信息；显微成像模式则利用弹性背散射电子在荧光屏上直接形成实空间磁畴图像。在衍射模式下，通过顺序采集正、负极化电子束入射下的衍射图样并逐点对比，可获得磁散射贡献。Pradeep 等人^[114]于 2016 年研制的一套自旋极化低能电子衍射 (SPLEED) 系统，采用应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极，配合波长为 830 nm 的圆偏振激光，可产生极化度为 75% 的极化电子束，为测量由自旋-轨道和交换作用引起的不对称性提供实验条件。在显微镜模式下，能量低于约 20 eV 的自旋极化电子正入射磁性样品，反射率随电子自旋与局域磁化方向的相对取向而改变，图像中各处强度对比度可直接转换为样品局部磁化取向，从而重构出三维磁畴结构，无需机械扫描即可一次成像，成像速度较快，适用于自旋重定向相变等磁化动力学过程的实时观测，被广泛用于原位外延生长过程中磁性演化和磁层间耦合研究^[115-117]。2020 年，Yu 等人^[118]研制的像差校正自旋极化低能电子显微镜 (如图 12 所示)，采用应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极^[119]，可产生极化度 90%、亮度高达 $1.3 \times 10^7 \text{ A} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1}$ 的极化电子束，从而使电镜实现了 3.3 nm 的超高磁空间分辨率。SPLEEM/SPLEED 是表面磁学研究的强有力工具，其对电子束的能散和发射度要求极高，这正是 GaAs 基自旋极化光阴极具备优势之处。

自旋极化透射电子显微镜 (如图 13 所示) 是近年来新兴的极化电子束应用方向。与传统洛伦兹显微镜利用非极化电子束穿过磁性材料时因洛伦兹力偏转成像不同，自旋极化透射电镜将高极化度电子束透射过薄膜样品后，通过分析电子束的干涉条纹和强度分布，直接获取材料内部磁感应场和自旋相关的量子信息。Kuwahara 等人^[120-122]采用应变超晶格 GaAs/GaAsP 光阴极产生的自旋极化电子束，首次实现了自旋极化电子干涉条纹的观测，测量了相干电子束的空间相干长度和时间相干长度，并证实可通过自旋极化控制实现电子束的反聚束效应。这项研究不仅为透射电镜下的磁感应场定量测量开辟了新途径，还将自旋极化电子源带入了电子量子光学的交叉领域。自旋极化透射电镜对电子源的要求极为苛刻：除需高极化度外，还要求电子束具有较高的加速能量、极低的能散以保证干涉条纹的相干长度，以及优异的束斑亮度和

续面临脉冲压缩、能散降低和量子效率提升等多方面的技术挑战。

7 总结与展望

GaAs 基自旋极化光阴极经过近五十年的发展, 已从最初的体 GaAs 结构演变为涵盖单层应变、应变超晶格、应变补偿超晶格及分布式布拉格反射器 (DBR) 增强结构在内的完整技术体系。在物理机制层面, 本文系统阐述了圆偏振光激发下自旋选择性光学跃迁产生极化电子的基本原理, 分析了价带 HH/LH 简并对极化度的本征限制, 以及电子输运和表面发射过程中的去极化机制。在结构设计层面, 单层应变结构通过引入晶格失配解除 HH/LH 简并, 首次突破了体 GaAs 极化度 50% 的理论极限; 应变超晶格结构将多个应变量子阱与势垒层周期性堆叠, 在保持价带分裂的同时增加了有效吸收厚度, 实现了极化度与量子效率的同步提升; 应变补偿超晶格通过在势垒层中引入反向应变降低了整体应变积累, 为更厚工作层的外延生长提供了结构基础; DBR 结构的引入则在不增加工作层厚度的条件下, 利用法布里-珀罗共振效应增强了目标波长的光吸收, 使量子效率纪录得以进一步提升。在外延制备方面, MOCVD、MBE 和 CBE 三种技术路线各有优势, 其中 MBE 因其原子级精度和优异界面质量, 在高性能超晶格光阴极制备中占据主导地位。在表面激活方面, 传统 Cs-O 激活体系虽可获得较高初始量子效率, 但其对残余气体和表面污染高度敏感; Cs-NF₃、Cs-Sb-O、Cs-Li-O、Cs-Te 等新型激活体系在提升抗污染能力和延长工作寿命方面展现出显著优势。在性能表征方面, RHEED、AFM、STEM-EDS、PL 光谱和 Mott 极化度测量仪等手段构成了从原位生长监测到发射性能评估的完整表征链。在应用层面, GaAs 基自旋极化光阴极已成为高能电子加速器中不可或缺的极化电子源, 覆盖了从已运行的 SLAC、NIKHEF、ELSA、MIT-Bates 到正在运行的 CEBAF、MESA, 再到在建或规划中的 EIC、EicC、CEPC 和 ILC 等装置; 在电子显微成像与谱学领域, 自旋极化电子能谱仪、逆光致发射谱仪、低能电子显微镜/衍射和透射电子显微镜等装置利用 GaAs 基光阴极提供的自旋极化电子束, 实现了对材料磁性结构、自旋电子态和量子现象等的高分辨探测。

尽管 GaAs 基自旋极化光阴极已在极化度、量子效率和寿命等方面取得了长足进步, 但三者之间的同步提升仍是制约其进一步发展的核心瓶颈。展望未来, 以下新技术方向的探索有望推动 GaAs 基自旋极化光阴极性能实现新的突破。

在提升量子效率方面, 梯度掺杂技术和表面等离子体增强光吸收是两项值得重点关注的技术路线。梯度掺杂技术通过沿外延层生长方向对掺杂浓度进行渐变调控, 可在阴极内部构建内建电场, 加速光激发电子向表面输运, 从而有效提高电子逃逸概率和量子效率。该技术已在常规非极化 GaAs 光阴极中成功应

用, 实现了量子效率的大幅提升^[123,124]。将其引入应变超晶格 GaAs 基自旋极化光阴极中, 有望在保持高极化度的同时, 通过优化载流子输运动力学进一步提高量子效率。另一条重要路径是利用表面等离子激元共振效应增强光吸收。通过将光阴极表面加工成纳米结构, 入射光可激发表面等离子激元, 将光场局域在亚波长尺度的近场区域内, 从而显著增强工作层对入射光的吸收效率。该技术已在常规 GaAs 光阴极中得到验证, 量子效率获得了数倍乃至一个数量级的提升^[125,126]。将表面等离子激元结构与应变超晶格 GaAs 光阴极相结合, 有望突破传统吸收厚度限制, 实现量子效率的阶跃式提升。

在延长工作寿命方面, 开发新型表面激活体系和构建表面保护层是两条重要的探索方向。在激活体系方面, 尽管 Cs-O 体系仍是目前应用最广泛的 NEA 激活方案, 但 Cs-NF₃、Cs-Sb-O、Cs-Li-O 和 Cs-Te 等新型体系已在抗污染能力和寿命方面展现出不同程度的优势。进一步探索多组分激活方案 (如 Cs-Te-NF₃、Cs-Sb-NF₃ 等), 或开发基于碱土金属 (如 Ba、Sr) 和稀土元素的非常规激活体系, 有望构建对残余气体更为稳定、在更高电流密度下仍能保持 NEA 特性的激活表面。在表面保护层方面, 采用二维材料对激活后的 GaAs 光阴极进行表面封装的思路近年来开始受到关注。Biswas 等人^[87] 已开展了在 GaAs/GaAsP 超晶格光阴极表面覆盖单层石墨烯保护层的初步研究, 虽在 780-800 nm 波段内自旋极化度较未保护样品提高了约 8%, 但由于石墨烯对低能电子的散射效应, 量子效率出现明显下降, 整体效果尚不理想。在常规多碱光阴极 (如 Na₂KSb/Cs₃Sb) 领域, 研究者已尝试利用石墨烯、六方氮化硼 (h-BN) 等二维材料作为保护层, 在维持较高量子效率的同时有效抑制了表面活性的退化^[85,127]。借鉴上述经验, 在 GaAs 光阴极表面探索石墨烯/h-BN 异质结、过渡金属硫族化合物 (如 MoS₂、WS₂) 或其他超薄惰性保护层, 结合优化层间耦合和界面电子结构设计, 有望在量子效率损失与寿命延长之间找到更好的平衡点。

面向未来电子-离子对撞机 (EIC、EicC)、环形正负电子对撞机 (CEPC) 和国际直线对撞机 (ILC) 等新一代大型加速器对极化电子源提出的超高流强、超长寿命和极高极化度的综合需求, 以及超快自旋分辨电子显微镜对超短脉冲极化电子束的迫切要求, GaAs 基自旋极化光阴极的研究将继续沿着“材料结构-表面化学-运行环境”三者同步优化的路径深入发展, 其性能边界的持续拓展将为核物理、粒子物理、自旋电子学和量子材料科学的前沿探索提供不可替代的关键技术支撑。

参考文献

- [1] Grames J, Poelker M 2023 In Méot F, Huang H, Ptitsyn V, Lin F, editors, *Polarized Beam Dynamics and Instrumentation in Particle Accelerators* (Cham: Springer), p 261

- [2] Bae J K, Cultrera L, DiGiacomo P, Bazarov I 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 154101
- [3] Yoskowitz J T, Krafft G A, Palacios-Serrano G, Wijethunga S A K, Grames J, Hansknecht J, Hernandez-Garcia C, Poelker M, Stutzman M L, Suleiman R, Valerio-Lizarraga C A, Van Der Geer S B 2024 *Phys. Rev. Accel. Beams* **27** 123401
- [4] Wang E, Rahman O, Skaritka J, Liu W, Biswas J, Degen C, Inacker P, Lambiase R, Paniccia M 2022 *Phys. Rev. Accel. Beams* **25** 033401
- [5] Pierce D T, Meier F 1995 In *Advances in Electronics and Electron Physics*, vol. 88 (Academic Press), p 1
- [6] Pierce D T, Meier F, Zürcher P 1975 *Appl. Phys. Lett.* **26** 670
- [7] Nakanishi T, Aoyagi H, Horinaka H, Kamiya Y, Kato T, Nakamura S, Saka T, Tsubata M 1991 *Phys. Lett. A* **158** 345
- [8] Maruyama T, Garwin E L, Prepost R, Zapalac G H, Smith J S, Walker J D 1991 *Phys. Rev. Lett.* **66** 2376
- [9] Omori T, Kurihara Y, Nakanishi T, Aoyagi H, Baba T, Furuya T, Itoga K, Mizuta M, Nakamura S, Takeuchi Y, Tsubata M, Yoshioka M 1991 *Phys. Rev. Lett.* **67** 3294
- [10] Maruyama T, Luh D A, Brachmann A, Clendenin J E, Garwin E L, Harvey S, Jiang J, Kirby R E, Prescott C Y, Prepost R, Moy A M 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2640
- [11] Nishitani T, Nakanishi T, Yamamoto M, Okumi S, Furuta F, Miyamoto M, Kuwahara M, Yamamoto N, Naniwa K, Watanabe O, Takeda Y, Kobayakawa H, Takashima Y, Horinaka H, Matsuyama T, Togawa K, Saka T, Tawada M, Omori T, Kurihara Y 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 094907
- [12] Mamaev Y A, Gerchikov L G, Yashin Y P, Vasiliev D A, Kuzmichev V V, Ustinov V M, Zhukov A E, Mikhrin V S, Vasiliev A P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 081114
- [13] Subashiev A V, Gerchikov L G, Mamaev Y A, Yashin Y P, Roberts J S, Luh D A, Maruyama T, Clendenin J E 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 171911

- [14] Jin X, Ozdol B, Yamamoto M, Mano A, Yamamoto N, Takeda Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 203509
- [15] Saka T, Kato T, Nakanishi T, Tsubata M, Kishino K, Horinaka H, Kamiya Y, Okumi S, Takahashi C, Tanimoto Y, Tawada M, Togawa K, Aoyagi H, Nakamura S 1993 *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** L1837
- [16] Liu W, Chen Y, Lu W, Moy A, Poelker M, Stutzman M, Zhang S 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 252104
- [17] Biswas J, Cultrera L, Liu W, Wang E, Skaritka J, Kisslinger K, Hawkins S D, Lee S R, Klem J F 2023 *AIP Adv.* **13** 085106
- [18] Moy A, Maruyama T, Zhou F, Brachmann A 2009 *AIP Conf. Proc.* **1149** 1038
- [19] Bae J K, Galdi A, Cultrera L, Ikponmwen F, Maxson J, Bazarov I 2020 *J. Appl. Phys.* **127** 124901
- [20] Herbert M, Eggert T, Enders J, Engart M, Fritzsche Y, Meier M, Schulze J, Wende V 2025 *Phys. Rev. Accel. Beams* **28** 013401
- [21] Liu W, Hu C, Ran Z, Li M 2026 *Appl. Surf. Sci.* **728** 166069
- [22] Litvinenko V N 2026 *Nat. Phys.* **22** 325
- [23] Kuriki M 2026 *Nat. Phys.* **22** 186
- [24] Blakemore J S 1982 *J. Appl. Phys.* **53** R123
- [25] Liu W 2017 *Research on Advanced Photocathodes for Highly Polarized Electron Sources*. Ph.d. dissertation, University of Chinese Academy of Sciences (Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences), Beijing, China. (in Chinese) [刘伟 2017 高极化度电子源先进光阴极的研究博士学位论文 (中国科学院大学 (中国科学院近代物理研究所))]
- [26] Meier F, Zakharchenya B P, editors 1984 *Optical Orientation* (Amsterdam: North-Holland), p 536
- [27] Vurgaftman I, Meyer J R, Ram-Mohan L R 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 5815
- [28] Saka T, Omori T, Nishitani T, Nakanishi T, Kuwahara M, Takeda Y, Kurihara Y, Yamamoto M, Horinaka H 2000 *Vacuum* **59** 299
- [29] Pierce D T, Meier F 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5484

- [30] Liu W, Poelker M, Peng X, Zhang S, Stutzman M 2017 *J. Appl. Phys.* **122** 035703
- [31] Zhao J, Yu H L, Liu W W, Guo J 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 227801. (in Chinese) [赵静, 余辉龙, 刘伟伟, 郭婧 2017 物理学报 66 227801]
- [32] Chubenko O, Karkare S, Schaff W, Bazarov I 2021 *J. Appl. Phys.* **130** 063101
- [33] Sáez P J 1997 *Polarization and Charge Limit Studies of Strained GaAs Photocathodes*. Ph.D. Dissertation, Stanford University. SLAC-R-501, UC-414
- [34] Jin X, Maeda Y, Sasaki T, Arai S, Ishida Y, Kanda M, Fuchi S, Ujihara T, Saka T, Takeda Y 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 094509
- [35] Krishnamurthy S, van Schilfgaarde M, Newman N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1761
- [36] McCarter J L, Afanasev A, Gay T J, Hansknecht J, Kechiantz A, Poelker M 2014 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **738** 149
- [37] Nakanishi T 1997 In *Frontiers of Accelerator Technology* (Singapore: World Scientific), pp 665–678
- [38] Maruyama T, Garwin E L, Prepost R, Zapalac G H 1992 *Phys. Rev. B* **46** 4261
- [39] Matthews J W, Blakeslee A E 1974 *J. Cryst. Growth* **27** 118
- [40] Nakanishi T, Nishitani T, Yamamoto M, Okumi S, Furuta F, Kuwahara M, Yamamoto N, Naniwa K, Yasui K, Watanabe O, Takeda Y, Kobayakawa H, Takashima Y, Horinaka H, Matsuyama T 2004 In *Proceedings of the 22nd International Linear Accelerator Conference*, LINAC2004. p THP24
- [41] Yamamoto N, Hosaka M, Mano A, Miyauchi T, Takashima Y, Takeda Y, Jin X J, Yamamoto M 2015 In *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference*, IPAC2015. p 2479
- [42] Jin X, Ohki S, Ishikawa T, Tackeuchi A, Honda Y 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 164501
- [43] Jin X, Mano A, Ichihashi F, Yamamoto N, Takeda Y 2013 *Appl. Phys. Express* **6** 015801
- [44] Wang D Z, Zhang Y J, Li S M, Tong Z H, Tang S, Shi F, Jiao G C, Cheng H C, Fu R G, Qian Y S, Zeng Y G 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 118503. (in Chinese) [王东智, 张益军, 李诗曼, 童泽昊, 唐嵩, 石峰, 焦岗成, 程宏昌, 富容国, 钱芸生, 曾玉刚 2024 物理学报 73 118503]

- [45] Zhang S, Poelker B, Stutzman M, Chen Y, Moy A 2015 In *Proceedings of the 6th International Particle Accelerator Conference*. p 1923. Paper TUPMA038
- [46] Macleod H A 2010 *Thin-Film Optical Filters*. 4th edn. (Boca Raton: CRC Press), pp 73–74
- [47] Nishitani T 2001 *AIP Conf. Proc.* **570** 1021
- [48] Gerchikov L G, Aulenbacher K, Clendenin J E, Kuz'michev V V, Mamaev Y A, Maruyama T, Mikhlin V S, Roberts J S, Ustinov V M, Vasiliev D A, Vasiliev A P, Yashin Y P, Zhukov A E, Kponou A, Makdisi Y, Zelenski A 2008 *AIP Conf. Proc.* **980** 124
- [49] Belfore B, Masters A, Poudel D, Blume G, Polly S, Wang E, Hubbard S M, Stutzman M, Grames J M, Poelker M, Grau M, Marsillac S 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 222102
- [50] Manfra M J 2014 *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5** 347
- [51] Tsang W 1987 *J. Cryst. Growth* **81** 261
- [52] Tsang W T 1989 *J. Cryst. Growth* **95** 121
- [53] Lan H, Ding Y 2012 *Nano Today* **7** 94
- [54] Coleman J J 1997 *Proc. IEEE* **85** 1715
- [55] Sarangan A 2016 In *Fundamentals and Applications of Nanophotonics* (Elsevier), p 149
- [56] McCray W P 2007 *Nat. Nanotechnol.* **2** 259
- [57] Arthur J R 2002 *Surf. Sci.* **500** 189
- [58] Miyamoto T, Kageyama T, Makino S, Schlenker D, Koyama F, Iga K 2000 *J. Cryst. Growth* **209** 339
- [59] Tsang W T 1986 *J. Electron. Mater.* **15** 235
- [60] Tsang W T, Miller R C 1986 *J. Cryst. Growth* **77** 55
- [61] Stutzman M, Engel A, Palmström C 2023 In *25th International Spin Physics Symposium (SPIN 2023)*. p 215

- [62] Elbahnasawy R F, McInerney J G, Hughes G 1999 *MRS Proc.* **573** 145
- [63] Su C Y, Spicer W E, Lindau I 1983 *J. Appl. Phys.* **54** 1413
- [64] Wang X, Shi M, Su L, Yang L, Deng X, Zhang Y, Tan H 2025 *Mater. Today Phys.* **52** 101680
- [65] Fang C, Zhang Y, Zhang K, Shi F, Jiao G, Cheng H, Dai Q, Zhang J 2019 *Appl. Opt.* **58** 5281
- [66] Massies J, Contour J P 1985 *J. Appl. Phys.* **58** 806
- [67] Chen X, Chang B, Zhao J, Hao G, Jin M, Xu Y 2013 *Opt. Commun.* **309** 323
- [68] Adachi S, Kikuchi D 2000 *J. Electrochem. Soc.* **147** 4618
- [69] Tereshchenko O E, Chikichev S I, Terekhov A S 1999 *J. Vac. Sci. Technol. A* **17** 2655
- [70] Alperovich V, Tereshchenko O, Rudaya N, Sheglov D, Latyshev A, Terekhov A 2004 *Appl. Surf. Sci.* **235** 249
- [71] Liu J, Guo Y, Feng C, Zhang J, Wang Z, Qian Y 2020 *Appl. Opt.* **59** 8147
- [72] Yu X, Jin Z, Huang Q, Liu F 2023 *Appl. Surf. Sci.* **612** 155915
- [73] Baylac M, Adderley P, Brittian J, Clark J, Day T, Grames J, Hansknecht J, Poelker M, Stutzman M, Wu A T, Terekhov A S 2005 *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **8** 123501
- [74] Maruyama T, Luh D A, Brachmann A, Clendenin J E, Garwin E L, Harvey S, Kirby R E, Prescott C Y, Prepost R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 4184
- [75] Iijima H, Kubo D, Kuriki M, Masumoto Y, Shonaka C 2010 In *Proceedings of the 1st International Particle Accelerator Conference, IPAC2010* (Kyoto, Japan: JACoW Publishing), p 2323
- [76] Sada Y, Meguro T 2020 *Appl. Surf. Sci.* **513** 145699
- [77] Zhang Y, Zhang K, Li S, Li S, Qian Y, Shi F, Jiao G, Miao Z, Guo Y, Zeng Y 2020 *J. Appl. Phys.* **128** 173103
- [78] Liu Z, Sun Y, Peterson S, Pianetta P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 241107

- [79] Chanlek N, Herbert J D, Jones R, Jones R M, Jones L B, Middleman K J, Militsyn B L 2015 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **48** 375102
- [80] Li S, Zhang Y, Zhang K, Zhang J, Zhan J, Shi F, Jiao G, Cheng H, Feng C 2022 *J. Colloid Interface Sci.* **613** 117
- [81] Sun Y, Kirby R E, Maruyama T, Mulhollan G A, Bierman J C, Pianetta P 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 174109
- [82] Zhang K, Zhang Y, Zhang J, Ma X, Tang S, Li S, Jiao G, Shi F, Yan L, Qian Y, Feng C 2024 *Surf. Interfaces* **45** 103913
- [83] Guo L, Takashima Y, Kuriki M, Yamamoto M 2025 *Results Phys.* **80** 108552
- [84] Biswas J, Wang E, Gaowei M, Liu W, Rahman O, Sadowski J T 2021 *AIP Adv.* **11** 025321
- [85] Wang G, Yang P, Moody N A, Batista E R 2018 *npj 2D Mater. Appl.* **2** 17
- [86] Wang G, Yang P, Batista E R 2020 *Phys. Rev. Mater.* **4** 024001
- [87] Biswas J, Gaowei M, Mondal K P, Wang E, Sadowski J T, Al-Mahboob A, Tong X 2025 *APL Mater.* **13** 061101
- [88] Bae J K, Andorf M, Bartnik A, Galdi A, Cultrera L, Maxson J, Bazarov I 2022 *AIP Adv.* **12** 095017
- [89] Karkare S, Bazarov I 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 094104
- [90] Saha P, Walsh J, Lathpandura L, Cultrera L, Boukhicha M, Bagy R, Tsang T, Muhowski A 2025 In *Proceedings of the North American Particle Accelerator Conference (NAPAC'25)* (Sacramento, CA, USA: JACoW Publishing), p 1030
- [91] Zhuravlev A G, Kazantsev D M, Khoroshilov V S, Kozhukhov A S, Alperovich V L 2018 *J. Phys.: Conf. Ser.* **993** 012007
- [92] Cultrera L, Muhowski A, Boukhicha M, Saha P, Hawkins S, Patel V 2024 In *Proceedings of the 15th International Particle Accelerator Conference (IPAC'24)* (Nashville, TN, USA: JACoW Publishing), p 2064

- [93] Alley R, Aoyagi H, Clendenin J, Frisch J, Garden C, Hoyt E, Kirby R, Klaisner L, Kulikov A, Miller R, Mulhollan G, Prescott C, Sáez P, Schultz D, Tang H, Turner J, Witte K, Woods M, Yeremian A D, Zolotarev M 1995 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **365** 1
- [94] Clendenin J E, Alley R, Frisch J, Kotseroglou T, Mulhollan G, Schultz D, Tang H, Turner J, Yeremian A D 1998 In *AIP Conf. Proc.*, vol. 421. pp 250–259
- [95] van den Putte M J J, de Jager C W, Konstantinov S G, Korchagin V Y, Kroes F B, van Leeuwen E P, Militsyn B L, Papadakis N H, Popov S G, Serdobintsev G V, Shatunov Y M, Shevelev S V, Sluijk T G B W, Terekhov A S, Tokarev Y F 1998 *AIP Conf. Proc.* **421** 260
- [96] de Jager C W, Korchagin V Y, Militsyn B L, Osipov V N, Papadakis N H, Popov S G, van den Putte M J J, Shatunov Y M, Tokarev Y F 1998 *AIP Conf. Proc.* **421** 483
- [97] Hoffmann M, v Drachenfels W, Frommberger F, Gowin M, Helbing K, Hillert W, Husmann D, Keil J, Michel T, Naumann J, Speckner T, Zeitler G 2001 *AIP Conf. Proc.* **570** 756
- [98] Eberhardt M, Wittschen J, Gowin M, Hillert W, Neff B 2007 In *AIP Conf. Proc.*, vol. 915 (AIP), pp 1031–1036
- [99] Tsentalovich E, Barkhuff D, Chen J, Dodson G, Farkhondeh M, Franklin W, Ihloff E, Kaertner F, Tschalaer C, Yang B, Zwart T 2007 *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **582** 413
- [100] Sinclair C K, Adderley P A, Dunham B M, Hansknecht J C, Hartmann P, Poelker M, Price J S, Rutt P M, Schneider W J, Steigerwald M 2007 *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **10** 023501
- [101] Adderley P A, Clark J, Grames J, Hansknecht J, Surles-Law K, Machie D, Poelker M, Stutzman M L, Suleiman R 2010 *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **13** 010101
- [102] Grames J, Benesch J, Bruker M, Cardman L, et al. 2023 *arXiv:2309.15581*
- [103] Adderley P, Ahmed S, Allison T, et al. 2024 *Phys. Rev. Accel. Beams* **27** 084802
- [104] Friederich S, Aulenbacher K, Matejcek C 2019 *J. Phys.: Conf. Ser.* **1350** 012045

- [105] Aulenbacher K, Euteneuer H, v Harrach D, Hartmann P, Hoffmann J, Jennewein P, Kaiser K H, Kreidel H J, Leberig M, Reichert E, Schemies M, Schuler J, Steigerwald M, Zalto M 1998 *AIP Conf. Proc.* **421** 229
- [106] Willeke F, Beebe-Wang J 2021 Electron ion collider conceptual design report 2021. *Tech. rep.*, Brookhaven National Laboratory (BNL), Upton, NY (United States); Thomas Jefferson National Accelerator Facility (TJNAF), Newport News, VA (United States)
- [107] EicC Working Group 2021 *Front. Phys.* **16** 64701
- [108] CEPC Study Group 2019 *Chin. Phys. C* **43** 043002
- [109] Yamamoto H 2021 *Symmetry* **13** 674
- [110] Vasilyev D, Kirschner J 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 083902
- [111] Alvarado S, Campagna M, Hopster H 1982 *Phys. Rev. Lett.* **48** 51
- [112] Budke M, Renken V, Liebl H, Rangelov G, Donath M 2007 *Rev. Sci. Instrum.* **78** 083903
- [113] Campos A F, Duret P, Cabaret S, Duden T, Tejeda A 2022 *Rev. Sci. Instrum.* **93** 093904
- [114] Pradeep A V, Roy A, Kumar P S, Kirschner J 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 023906
- [115] Altman M S, Pinkvos H, Hurst J, Poppa H, Marx G, Bauer E 1991 *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **232** 125
- [116] Duden T, Bauer E 1998 *Surf. Rev. Lett.* **5** 1213
- [117] Rougemaille N, Schmid A K 2010 *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **50** 201011
- [118] Yu L, Wan W, Koshikawa T, Li M, Yang X, Zheng C, Suzuki M, Yasue T, Jin X, Takeda Y, Tromp R, Tang W X 2020 *Ultramicroscopy* **216** 113017
- [119] Jin X, Yamamoto N, Nakagawa Y, Mano A, Kato T, Tanioku M, Ujihara T, Takeda Y, Okumi S, Yamamoto M, Nakanishi T, Saka T, Horinaka H, Kato T, Yasue T, Koshikawa T 2008 *Appl. Phys. Express* **1** 045002

- [120] Kuwahara M, Takeda Y, Saitoh K, Ujihara T, Asano H, Nakanishi T, Tanaka N 2011 *J. Phys.: Conf. Ser.* **298** 012016
- [121] Kuwahara M, Kusunoki S, Nambo Y, Saitoh K, Jin X, Ujihara T, Asano H, Takeda Y, Tanaka N 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 193101
- [122] Kuwahara M, Yoshida Y, Nagata W, Nakakura K, Furui M, Ishida T, Saitoh K, Ujihara T, Tanaka N 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 125501
- [123] Yang Z, Chang B, Zou J, Qiao J, Gao P, Zeng Y, Li H 2007 *Appl. Opt.* **46** 7035
- [124] Zhang Y J, Zhao J, Zou J J, Niu J, Chen X L, Chang B K 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 044205
- [125] Peng X, Wang Z, Liu Y, Manos D M, Poelker M, Stutzman M, Tang B, Zhang S, Zou J 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 064002
- [126] Rahman A A, Zhang S, Elsayed-Ali H E 2023 *J. Appl. Phys.* **133** 023105
- [127] Biswas J, Gaowei M, Liu A, Poddar S, Stan L, Smedley J, Sadowski J T, Tong X 2022 *APL Mater.* **10** 111115

录用稿件，非最终出版稿

Research progress of GaAs-based spin-polarized photocathodes and their applications*

HU Chaofeng^{1)2)#} RAN Ziyi^{1)2)#} CUI Tao¹⁾²⁾ YANG Jie¹⁾²⁾ LI Meng¹⁾ QIN Linlin²⁾ LIU Wei^{1)2)†}

1) (*Laboratory for Ultrafast Transient Facility, Chongqing University, Chongqing, 400044, China*)

2) (*College of Materials Science and Engineering, Chongqing University, Chongqing, 400044, China*)

Abstract

High-quality spin-polarized electron sources are essential for high-energy electron accelerators and spin-resolved electron microscopy and spectroscopy, where they enable precision studies in nuclear physics, particle physics, and materials science. GaAs-based photocathodes offer a favorable combination of high electron spin polarization (ESP), high quantum efficiency (QE), low energy spread, and low emittance, while also enabling rapid reversal of the electron-spin orientation by switching the helicity of the excitation light. Their photoemission process comprises spin-selective interband excitation, spin transport toward the surface, and electron emission through a negative-electron-affinity (NEA) surface. In bulk GaAs, the degeneracy of the heavy-hole and light-hole bands at the Γ point limits the ideal initial ESP to 50%, while carrier scattering, structural defects, and surface-escape processes cause additional polarization loss. This review discusses how material structure, carrier transport, and surface chemistry collectively govern ESP, QE, and operational lifetime.

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12405180) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant No. 2024CDJXY004)

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: weilu@cqu.edu.cn

The structural evolution from bulk GaAs and single strained layers to strained superlattices, strain-compensated superlattices, and distributed Bragg reflector (DBR) structures is systematically assessed. Strain and quantum confinement lift the heavy-hole/light-hole degeneracy, whereas active-layer thickness, superlattice periodicity, interface quality, and optical-field distribution determine the balance among spin selectivity, optical absorption, and carrier transport. Single strained layers can achieve ESP values of 80–90%; however, the limited thickness required to maintain strain generally restricts their QE to below 0.2%. Strained superlattices increase the effective absorption thickness, while strain-compensated designs mitigate cumulative strain, thereby enabling ESP values near 92% together with QE up to 1.6%. DBR structures recycle transmitted light and enhance resonant absorption without simply increasing the active-layer thickness. Reported devices have achieved QE values ranging from 6.4% at an ESP of 84% to more than 15% at an ESP of approximately 75%. These advances demonstrate that structural optimization must be accompanied by effective control of strain relaxation, interface quality, and defect formation.

Epitaxial growth, doping-profile engineering, and surface/interface preparation are also reviewed. Molecular beam epitaxy enables precise control over layer thickness, composition, doping, and interface quality, whereas metal-organic chemical vapor deposition offers higher growth rates and advantages in large-area uniformity and batch production. Reproducible NEA activation depends on effective surface cleaning, appropriate vacuum annealing, and careful control of surface contamination and morphology. Conventional Cs–O activation can provide high initial QE but remains highly sensitive to residual gases and ion back-bombardment. Multicomponent activation schemes, including Cs–Li–O and Cs–Sb–O, can improve contamination tolerance or operational lifetime under specific conditions, although their relative advantages and microscopic mechanisms remain to be clarified. Atomically thin graphene and hexagonal boron nitride also show promise as protective layers, provided that sufficient electron transmission and QE can be retained.

GaAs-based photocathodes are now widely used in high-energy accelerators and spin-resolved microscopy and spectroscopy, where high ESP, low energy spread, low emittance, and long-term stability are simultaneously required. A magnetic spatial resolution of 3.3 nm has been demonstrated in spin-polarized low-energy electron microscopy using a strained superlattice photocathode, illustrating the performance

achievable with advanced photocathode structures. Nevertheless, the central challenge remains the simultaneous improvement of ESP, QE, and operational lifetime. Increasing the absorber thickness enhances QE but can promote strain relaxation and depolarization, while doping profiles designed to facilitate carrier transport must also preserve spin polarization. In addition, efficient NEA activation must remain stable under high-average-current operation. Future progress will therefore require the coordinated optimization of material structure, surface chemistry, vacuum conditions, and electron-gun operation. Gradient doping, plasmon-enhanced optical absorption, multicomponent activation, and atomically thin protective layers should be evaluated not only in terms of initial QE, but also with respect to reproducibility, polarization retention, electron transmission, operational lifetime, and reliability under high-current conditions.

Keywords: GaAs, spin-polarized photocathode, electron source, quantum efficiency, strained superlattice

录用稿件，非最终出版稿