

平成22年 5月31日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19340080
 研究課題名（和文） ユオニウムスピン交換反応を用いたスピントロニクス材料の機能開発
 研究課題名（英文） Functional development of materials for spintronics by the muonium spin exchange method
 研究代表者
 鳥養 映子（TORIKAI EIKO）
 山梨大学・大学院医学工学総合研究部・教授
 研究者番号：2018832

研究成果の概要（和文）：シリコン等の半導体をスピントロニクス材料に活用するための普遍的な伝導電子スピン偏極度（CEP）測定方法として、ユオニウムスピン交換反応法の確立を目指し、GaAs の円偏光キャリア励起により、ユオニウムがCEPに高い感度を持つことを、初めて証明した。さらに Si への歪 GaAs 蒸着膜を介した光励起電子注入により、Si 中での $3\mu\text{s}$ 以上の長いキャリア寿命と、キャリア拡散の様子の観測に成功し、この方法の普遍性を示した。

研究成果の概要（英文）：We demonstrate a new technique for directly probing conduction electron spin polarization (CEP) in semiconductors through exchange scattering with electron(s) bound to a polarized positive muon (μ^+). High sensitivity of the method was proved in the GaAs exciting CEP by the circular-polarized laser light. In Si, on the other hand, the long career life and long diffusion length were observed, indicating the wide application range and universality of the method.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	13,700,000	4,110,000	17,810,000
2008 年度	600,000	180,000	780,000
2009 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	14,900,000	4,470,000	19,370,000

研究分野：ミュオン科学，量子工学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：半導体，ミュオン，スピントロニクス，伝導電子スピン偏極

1. 研究開始当初の背景

(1) Si, Ge, グラファイトや、有機半導体などの軽元素半導体は、伝導電子の持つスピン軌道相互作用が弱いため、ひとたびスピン注入されれば、GaAs 等の重い元素からなる化合物半導体に比べて桁違いに長いスピン寿命とスピン拡散長が期待できる。しかし、この

ことは同時にスピン偏極の情報が格子に伝わらないために、レーザー光磁気 Kerr 効果 (MOKE) などの光学的方法を用いて伝導電子のスピン偏極 (CEP) を測定することの困難さを伴い、これまでスピントロニクス材料としての活用が進んでいなかった。

(2) ユオニウムスピン交換反応法は、これ

らの半導体中の CEP を高感度に、かつ、実験条件に大きな自由度を持たせて CEP を精度良く測定する方法として、研究代表者が 1998 年に提唱し、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) に設置されたパルス状ミュオン源とパルスレーザー光源によって予備実験に成功した方法である。高統計実験による原理の確認と実験技術の確立のため、世界最高尖頭強度を持つ英国理研ラザフォードアップルトン研究所 (理研 RAL) ミュオン施設における実験課題申請が認められ、ミュオン源に同期したパルスレーザー装置の開発を待つばかりの状態では 8 年間に経過した。

(3) Si へのスピン注入の方法として、これまで強磁性金属で挟む方法しかなかった。研究代表者らは、スピン偏極電子エミッターとして開発された歪んだ GaAs の円偏光励起で 80% 以上の偏極電子を真空中に取り出す技術に注目し、Si 基板上に歪 GaAs の薄膜や超格子を蒸着し、円偏光励起電子を界面を通して Si 基板に注入する方法を考案し、特許を取得していた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、ミュオニウムスピン交換反応法の実験技術を確立することによって、シリコンを中心とした新しいスピントロニクス材料の機能を開発する有効な手段を得ることである。理研 RAL ミュオン施設に、ミュオンパルスと同期したパルスレーザー・スピン偏極系を中心とする実験系を構築して、次の CEP 生成に関する研究を実施する。

(1) Si 中に GaAs 薄膜から注入された CEP の測定：当研究代表者が世界に先駆けて提案し、KEK において、テスト実験に成功している p-GaAs/GaAsP/Si の系について、高統計で完結したデータを取得する。歪み GaAs 表面で円偏光レーザーで励起された CEP が界面を介して Si 基板に注入する。

(2) GaAs に円偏光レーザーによって注入された CEP の測定：CEP に関する物性の良くわかった n 型 GaAs (Si) について測定を行う。

(3) 超低速ミュオンによる表面・界面における CEP 測定のための予備実験として、厚さ方向の CEP の分布測定を行う。

3. 研究の方法

(1) ミュオニウムスピン交換反応法の原理

ミュオンは質量が陽子質量の約 1/9 倍の不安定素粒子であり、2.2 μ s の寿命で崩壊して、高エネルギーの陽電子とニュートリノを発生する。正電荷を持つミュオン (正ミュオン) の化学的性質は、陽子とほとんど等価であるが、磁気能率は陽子のそれの約 3.18

倍と大きい。ミュオンを大強度で得るには、加速器を用いる。高エネルギー (300MeV 以上) の陽子や電子を標的に照射し、原子核との反応でパイオンを発生させると、26ns の寿命で崩壊して大量のミュオンが得られる。これらの素粒子反応のパリティ非保存の性質から、ミュオンは生まれる際に運動量を得た方向にスピン偏極して、崩壊時には偏極したスピンの方向に陽電子を放出する。この性質を利用して、100% スピン偏極したビーム状のミュオンが物質に止まってから崩壊するまでの時間に経験した磁場の大きさ、方向、時間的・空間的ゆらぎを、放出された陽電子の方向分布から高感度で測定することができる。

正ミュオンをキロ eV からメガ eV もの高エネルギーで半導体中に導入すると、ミュオンは減速中に電子をとらえ中性のミュオニウム (Mu) と呼ばれる水素原子状の原子となる確率がある。低ドープ量の Si ではミュオニウム生成率が 100% 近いものも見つかっている。もともと 100% 偏極していたミュオンは、電子と結合してスピン 1 の状態とスピン 0 の状態ができて、偏極度 50% のスピン 1 の Mu ができる。n 型半導体中では Mu にさらに電子が 1 個加わった負ミュオニウム (Mu⁻) も安定に存在する確率がある。

スピン 1 の Mu や

1/2 の Mu⁻ は、偏極した伝導電子との間のスピン交換反応が、パウリの排他律により、図 1 に示すように相互のスピン状態に依存するために、電子のスピンと伝導電子スピンとの間でスピンが平行か反平行かに応じて反応断面積が変わる。低エネルギーでは、反平行の場合の断面積が大きい。

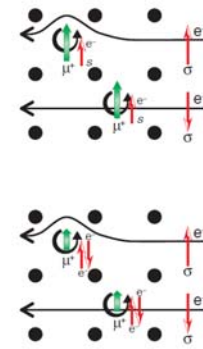


図 1 ミュオニウムスピン交換反応法の原理を示す概念図。

(2) 実験施設及び実験装置

実験は理研 RAL に設置された Port2 ミュオン源を用い、理研、KEK、カリフォルニア大学リバーサイド校 (UCR) の協力のもとに、図 2 に示すパルス状円偏光レーザー装置を設置して実施した。図中黄色部分は、本研究助成で整備した固体レーザーと、波長を制御のためのオプティカルパラメトリック振動子 (OPO: KEK 提供) からなるレーザー源であり、左側が円偏光光学系 (理研、UCR 提供) である。

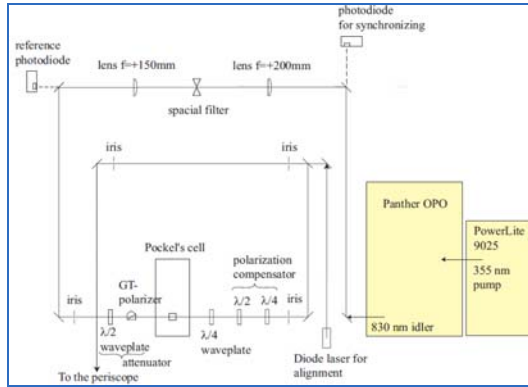


図2 円偏光レーザー装置

赤外から紫外光まで広範囲に波長可変で、加速器のタイミングに合わせて 25MHz の時間構造を持ち、ポッケルズセルでパルスごとに右回り、左回り円偏光を取り出すことができる。レーザーキャビンの出口から試料空間まで全てインターロック付きの光路管内を通し、光路の一部でも開けばシャッターが閉まる安全設計となっている。

(3) 半導体試料

①ミュオニウムスピン交換反応法による CEP 測定原理と感度の定量的な評価のため、MOKE 法によって光励起 CEP 生成の確認されている n 型 GaAs (001) ($3.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ Si doping) を用いた (市販品)。

②Si への光励起スピン注入の検証のため、室温で 80% 以上の高いミュオニウム生成率を示す n 型 Si (001) 基板に、歪 GaAs の薄膜を蒸着した 4 種類の試料(図 3 に例)を用いた (大同特殊鋼, 名古屋大学, 豊橋技術科学大学の協力により作成)。

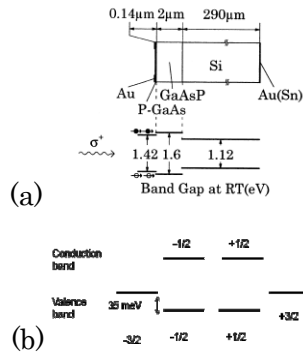


図3 試料構造の例(a)と、歪 GaAs のエネルギー準位(b). 歪みにより価電子帯の重いホールと軽いホールのエネルギー準位が分裂し、原理的な偏極度が 100%となる。

4. 研究成果

(1) レーザー実験装置の開発

750nm~900nm の範囲で試料空間に 100% スピン偏極したレーザー光をパルスごとに右回り、左回り、オフで繰り返し安定に照射できるシステムを構築することができた。

(2) ミュオニウムスピン交換反応法による CEP 測定の原理的検証

図 4 に、n 型 GaAs を、右回り (桃) 及び左回り (橙) 円偏光で CEP 励起したときのミュオンスピン偏極度の時間発展を比較して示す。黒は励起光非照射時である。

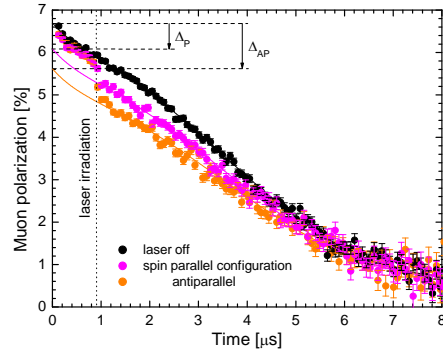


図4 n 型 GaAs 中のミュオンスピン偏極度の時間発展。記号の色は本文参照。レーザー波長 830nm, ミュオン入射から 0.9μs 後に励起パルス光照射。黒丸は励起光非照射時。

桃色と橙色では約 0.5% の大きな差異が観測された。このことは、固体中において、伝導電子とミュオニウムとのスピンの相対関係によって反応断面が異なることを世界で初めて明確に示すとともに、この現象を利用した CEP 測定方法の感度の高さを示すものである。偏光依存性は GaAs のバンドギャップと試料の厚さからもっとも伝導電子励起の高いと予想される 820~840nm でのみ観測され、また MOKE 実験と同じレーザー強度依存性を持つなどの複数の実験結果から、CEP によるものであることが支持されている。

(3) Si への伝導電子注入と寿命測定

歪 GaAs を蒸着した Si 基板へのスピン注入に関して、4 種類のモデル標的について実験を行い、光誘起キャリアの Si 基板注入を検証することができた。磁場依存性、レーザー周波数依存性、レーザータイミング依存性、ミュオン停止位置依存性から、歪 GaAs 薄膜で励起された伝導電子が、pn 接合を介して Si 基板まで注入され、基板全体に拡散する様子を、その時間構造と厚さ方向の分布から確認することができた。これまでに伝導電子の寿命は 3μs 以上あることが確認されている。スピン依存性に関しては、2010 年 6 月のビームタイムでの確認を目指して研究中である。

以上、ミュオニウムスピン交換反応法による CEP 測定の成功により、半導体中の「スピン輸送」の一般的観測方法が得られ、全ての半導体に拡張することが可能になった。この成功によって Si や Ge 等の半導体のスピン輸送の性質を明らかにすることができ、実用的なスピントロニクス材料設計にイノベーション

オンをもたらすと期待される、波及交換は計り知れない。

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7件)

- ① K. Yokoyama, K. Nagamine, K. Shimomura, H.W.K. Tom, R. Kawakami, P. Bakule, Y. Matsud[†], F.L. Pratt, and E. Torikai,
“Muons for Spintronics:
Photo-induced Conduction Electron Polarization in n-type GaAs Observed by Muonium Method”, Physica B, 404, 856-858, 2009, 査読有.
- ② Pavel Bakule, Olexandr Sukhorukov, Yasuyuki Matsuda, k Francis Pratt, Peter Gumplinger, Takamasa Momose, Eiko Torikai, Donald Fleming,
“Towards the first study of chemical reaction dynamics of Mu with vibrational-state-selected reactants in the gas phase: The $\text{Mu}+\text{H}_2^*(v=1)$ reaction by stimulated Raman pumping”, Physica B, 404, 1013-1016, 2009, 査読有.
- ③ Eiji Hirose and Eiko Torikai,
“Dynamics of spin exchange in alkali atom-surface scattering”, Surf. Int. Analysis, 40, 1705-1708, 2008, 査読有.

[学会発表] (計4件)

- ① 鳥養映子, 「ミュオニウムスピン交換法による半導体 (Si, GaAs) 中の伝導電子スピン偏極測定」日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月23日, 岡山大学.
- ② K. Shimomura, “Pilot experiment for muonium photo ionization in GaAs”, Advanced Science Research Symposium 2009, 2009.11.13, Techno Community Square Ricotti, Tokai, Japan.
- ③ K. Yokoyama, “Muons for Spintronics: Photo-induced Conduction Electron Polarization in n-type GaAs Observed by Muonium Method”, International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance, 2008.7.22, EPOCAL Tsukuba, Japan.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鳥養 映子 (TORIKAI EIKO)
山梨大学・大学院医学工学総合研究部・教授
研究者番号：20188832

(2) 研究分担者

白木 一郎 (SHIRAKI ICHIRO)
山梨大学・大学院医学工学総合研究部・助教

研究者番号：10399389

永嶺 謙忠 (NAGAMINE KANETADA)

(独) 理化学研究所・山崎原子物理研究室・名誉研究員

研究者番号：50010947

(H20, H21:連携研究者)

下村 浩一郎 (SHIMOMURA KOICHIRO)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・講師

研究者番号：60242103

(H20, H21:連携研究者)

(3) 連携研究者

上に記載.