

平成 30 年 5 月 14 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26400298

研究課題名(和文) 動的自己核偏極現象を利用した原子核偏極法の開発

研究課題名(英文) Development of nuclear polarization method by dynamic nuclear self polarization

研究代表者

小泉 光生 (KOIZUMI, Mitsuo)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：30354814

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：III-V族半導体の価電子帯の電子を伝導帯に励起すると、数Kの低温下で、動的自己核偏極(DYNASP)と呼ばれる、大きな核偏極が相転移的に起きることが理論的に示されている。我々は、DYNASP現象を原子核研究等に適用するため、理論および実験研究を進めてきた。理論研究では、半導体中の自身の核偏極と伝導電子の偏極に加え、外部磁場の影響を取り入れた関係式を導出した。実験研究では、InP半導体において、In核が、2.3K以下で大きな核偏極が生じることを確認した。しかし、これがDYNASP現象を実証するものであると結論づけるには至らず、DYNASP理論の拡張を含め検証を進める必要があることがわかった。

研究成果の概要(英文)：A phenomenon of large polarization of nuclei in a III-V semiconductor suddenly appearing below few K is theoretically predicted, under the condition that electrons of the semiconductor are optically excited from the valence band to the conduction band. The phenomenon is called DYNASP (Dynamic Nuclear Self Polarization). Theoretical and experimental study were carried out aiming at applying DYNASP to nuclear physics researches and the others. The effect of external magnetic field, in addition to the nuclear and the conduction electron polarization, was theoretically taken into an relationship on DYNASP. Appearance of large nuclear polarization of In nuclei in an InP semiconductor was successfully observed in an experimental study below 2.3 K. However, that was not concluded as a DYNASP phenomenon. It was found that further experimental and theoretical study is required.

研究分野：原子核(実験)

キーワード：核偏極 レーザー III-V半導体

1. 研究開始当初の背景

近年、中性子過剰な不安定核領域で、安定核で見られなかった現象が見いだされている。たとえば、 $N=20$ などの魔法数の消失といった現象では、陽子数・中性子数がアンバランスになるため原子核の殻構造が変化していると指摘されている[1]。核磁気モーメントは、核子のスピン、陽子の軌道により発生するので、原子核の構造を理解する重要な手がかりとなっている。不安定核の核磁気モーメントの測定には、 γ -NMR の手法が多く用いられているが、より高感度に測定を行うためには、不安定核を多く生成することとともに、大きく偏極させることが重要である。

III-V 族化合物半導体の価電帯の電子をレーザーで伝導帯へ励起すると、緩和の過程で伝導電子は超微細相互作用を通し、原子核とスピンを交換する。臨界温度以下の極低温においては、核偏極による磁場が電子の緩和現象に影響を及ぼし、その結果、正のフィードバックにより、強磁性体的な相転移が引き起こされ、原子核が自動的に大きく偏極する。この現象を我々は、動的自己核偏極 (DYNASP : Dynamic Nuclear Self Polarization) と呼んでいる。

DYNASP は、Dyakonov らが先駆的な研究を行っており[2]、我々は、円偏光レーザーを用いて伝導帯電子を偏極させた場合に理論を拡張した。その結果、電子の偏極がない場合、臨界温度以下で突然、核偏極度が大きくなること、伝導電子を偏極させると、臨界温度以上でも偏極が得られること、伝導電子の偏極を徐々に変えていくと核偏極がヒステリシス曲線を描くことがわかった[3,4]。その一方で、DYNASP の実験に関する報告は、会議レポートのみで [5] ある。

2. 研究の目的

DYNASP は大きな核偏極を実現するため、原子核実験などにおける核偏極法の有用な手段の一つとなり得る。我々は、DYNASP が原子核実験の有用な技術となりうると考え、DYNASP 現象を理論的、実験的に検証することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 理論研究

DYNASP 現象は、伝導体に励起される電子の熱的緩和で起きると。これまで電子偏極度をパラメータとして公式化を行ってきた。電子の偏極度は、荷電帯から伝導体に励起する光励起により決定されるので、レーザーの偏光度によって制御できる[3,4]。核偏極はまた、外部磁場の影響を受ける、DYNASP の理論式にその効果は組み込まれていなかった。そこで、本研究において、外部磁場の核偏極への影響を組み込んだ関係式の導出を行った。

(2) 実験研究

InP 結晶における DYNASP は、2K 以下の

温度で起きると予測されている[3,4]。そこで InP 試料を 2K 以下に冷却できるクライオスタットを用い、InP 試料をヘリウム温度以下に冷却して、In-115 安定核からの NMR (nuclear magnetic resonance) 信号を確認し、温度などの実験パラメータを変えながら、核偏極度の変化を調べる。

表 1 数式に使われた表記

P	核偏極度
$B_i(x)$	ブリルアン関数
I	核スピン
T	温度
A	超微細構造定数
k	ボルツマン定数
S	伝導電子偏極度
α	伝導電子偏極度を表すパラメータ
ϵ_{Bex}	外部磁場による電子準位エネルギーギャップ
a_i	半導体内の核種の構成割合
i, j	半導体内の核種

4. 研究成果

(1) 理論研究

DYNASP における核偏極度の関係式に外部磁場の影響を組み込んだ結果、式(1)を得た。数式に用いた表記は、表 1 の通りである。

$$P_j = B_{I_j} \left(\frac{3I_j \sum_i a_i A_i P_i}{T} + 2I_j \alpha' \right) \quad (1)$$

$$\alpha' = \alpha + \frac{\epsilon_{Bex}}{2kT}$$

$$\alpha = \frac{1}{2} \ln \left(\frac{1+S}{1-S} \right)$$

得られた結果より、核偏極は、ブリルアン関数の第一項と第二項により決定されることがわかる。第一項は、半導体内の核偏極 P_i を含んでおり、自身の核偏極が最終的な核偏極に関わっている。第二項は励起電子の偏極と外部磁場の効果である。この式(1)のパラメータ α' は、 α と磁場の効果が足し合わせたものである。 α は、伝導帯電子の偏極度 S が -0.5 から 0.5 までの値を取ることから、 $-0.55 < \alpha < 0.55$ となる。外部磁場の影響は、例えば温度 2K、外部磁場 1T とすると $\epsilon_{Bex}/(2kT) \sim 0.5$ となり、1T の磁場では、伝導帯電子の偏極度を同じ程度の影響力を持つことがわかる。

得られた関係式(1)を用いて、InP 半導体中の ^{115}In 核の核偏極度を反復法により計算した結果を図 1 と 2 に示す。図 1 は、核偏極度の温度依存性をプロットしたものである。横軸は温度、縦軸は核偏極度である。曲線の横の数值は、 α' である。 $\alpha' = 0$ の場合、臨界温度以下で大きな核偏極が現れることがわかる。一方、 $\alpha' > 0$ である場合、臨界温度以上でも核偏極が現れることがわかる。なお、臨界温度は、下の様に定義される。

$$\bar{T}_c = \sum_i a_i T_{ci} = \sum_i a_i \frac{A_i I_i (I_i + 1)}{3k} \quad (2)$$

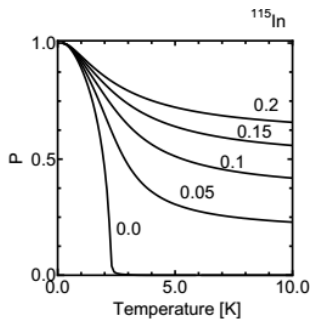


図 1 核偏極度の温度依存性。曲線の横にある数値は α' パラメータである。

図 2 は、 α' による核偏極度の変化を示したもので、臨界温度以下においては、 α' の変化に対し図のようなヒステリシス曲線を描くことがわかった。なお、このヒステリシス曲線は、温度の上昇に伴い小さく（狭く）なり、臨界温度以上では S 字を描くようになる。

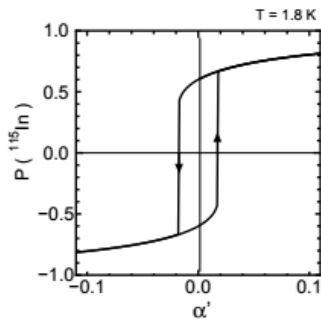


図 2 α' による核偏極度の変化。

(2) 実験研究

実験装置

実験装置は、試料を冷却するクライオスタット、レーザー装置、NMR 測定のための電磁石、NMR 測定機器で構成されている。図 3 はクライオスタットおよび電磁石を模式的に示したものである。クライオスタットは、3重構造の真空槽になっており、液体ヘリウムを充填する試料部は、液体窒素容器に接触している銅製の熱シールドに囲われている。銅製の熱シールド内と外は、真空的につながっており、ターボ分子ポンプによって真空引

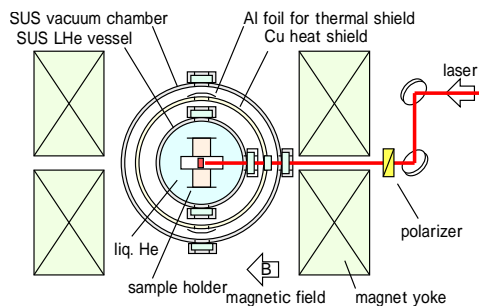


図 3 クライオスタット断面図。

きされている。試料部は、液体ヘリウムをロータリ-ポンプで減圧することにより、2K 以下の温度まで下げることができる。このクライオスタットで長時間効率よく実験を行うため、液体ヘリウムレベル計および熱伝導の低い RF 信号ケーブルを導入した。

レーザー光源にはレーザーダイオードを用いた。固定波長（半導体を交換すると変えられる）であるが、数ワット程度出力まで得られる。レーザー出力は電源装置により調整できる。レーザー光は、電磁石の中央に開けられた穴、そしてクライオスタットのガラス窓を通して、試料に照射する。ダイオードレ

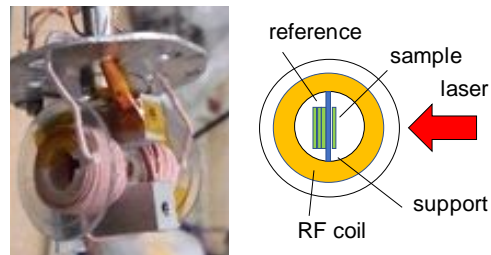


図 4 試料ホルダー

ーザーは直線偏光しており、レーザーの偏光度は電磁石の前に設置した波長板の角度によって偏光を - から + まで変えることができる。

図 4 は、試料ホルダーを示したもので、左側が写真、右側が側面から見た概略図である。コイルを試料の両脇に配し、レーザーは、コイルのギャップにある穴から入射する。試料は、板状の試料サポートに取り付けて、コイルの中央まで挿入して固定する。サポートの表にはレーザー照射用（DYNASP 試験用）の試料を、裏には NMR 用の参照試料を取り付けることができる。

核偏極度の測定には、パルス NMR の手法を使用した。高周波発生装置、パルス RF 発生装置、RF アンプを組み合わせたシステムで RF パルスを発生し、これを RF コイルに送る。試料は磁場中にあり、RF パルスにより、核偏極を磁場方向に対し 90 度の向きを軸として回転させることができる。核偏極の向きが磁場に対して角度を持つと、原子核は集団で歳差運動を始める。この運動は同じ RF コイルを通して拾い上げられ、得られた

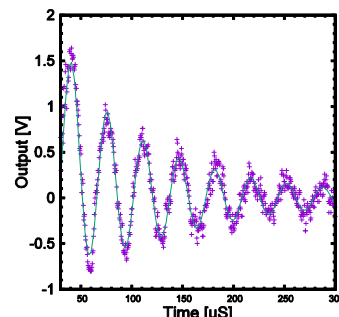


図 5 InP 中の ^{115}In 核からの FID 信号

信号は、アンプを通して増幅し、NMR 信号として記録される。

図5は、得られた NMR 信号で、FID (free induction decay) 信号と呼ばれる。この信号にみられる減衰は、横緩和(スピン-スピン緩和、T2 緩和)による効果で、歳差運動の回転速度がばらけるために生じたものである。振幅の大きさは核偏極の大きさと試料中の原子核の量によって決定されるため、同一試料においては、振幅により核偏極の相対的な大きさを決定することができる。

InP 半導体の緩和時間

緩和は、原子核偏極が次第に熱化する過程であり、試料の物性的な性質を示す。特に縦緩和(スピン-格子緩和、T1 緩和)は、核偏極が進む時間を決定する重要なパラメータである。

実験においては、プリパルス(RF パルス幅が約 17 μ s)を複数回送り核偏極を乱し、間隔を開けて、再び RF パルスを送り、FID 信号の測定を行った。使用した NMR の RF 周波数は約 2.6 MHz、磁場は約 0.28 T である。プリパルスと NMR パルスの間隔を変えて測定した FID の振幅の変化をプロットすると、図6の様な飽和曲線が得られる。このときの試料は InP 参照試料(350 μ m, Sn doped, $1.0 \sim 1.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)4枚、測定温度は 4.2 K(液体ヘリウム温度)であった。図6の飽和曲線から、 $T_1 = 149 \pm 18 \text{ s}$ という結果が得られた。

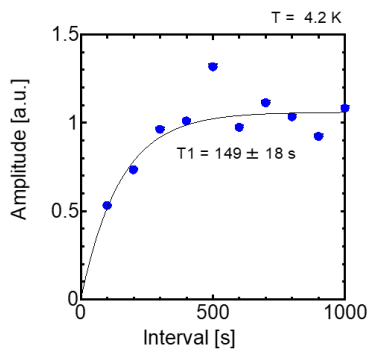


図6 プリパルスから NMR パルスの時間を変えながら測定した FID 振幅。

上記の測定を温度を変えながら行った結果、図7の様な T1 の温度依存性を得た。4 K か

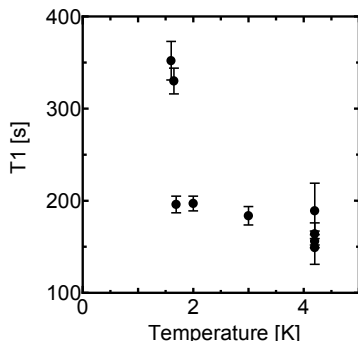


図7 縦緩和時間の温度依存性

ら温度が下がるに従って、わずかに T1 が長くなるそれが、それが 2.7 K で急激に長くなった。この現象の理由については、現在考察を進めているところである。

DYNASP 実験

DYNASP 実験においては、InP 参照試料を3枚、DYNASP 用試料1枚を用いた(いずれも、Fe doped, 350 μ m, n-type, $6.9 \times 10^7 \text{ cm}^{-3}$)。レーザーの照射を行わず、T1 の測定を行った結果、4.2 K で $T_1 \sim 1300 \text{ s}$ という結果が得られた。前に測定した InP (Sn doped) より長くなっているのは、半導体のドーピングの違いによるものと考えられる。

次に、レーザーを InP 試料に照射して、FID に違いが生じるかどうかを確認した。ダイオードレーザーには、LDX-3530-860-C (860nm) を使用した。図8は、レーザー照射時(赤)、レーザーを照射しない時(黒)、2つの差分(青)を示したもので、上のパネルが温度 4.2 K の場合、下のパネルが温度 1.6 K の場合である。プロットから明らかなように、2 K 以下の温度で、核偏極に差が生じた。しかも FID の振幅が、レーザー照射ありとなしで、ほぼ同じ程度であることがわかる。レーザー光は、半導体の表面(約 1 μ m)で吸収され、かつレーザー照射面積は、半導体の半分程度であったので、DYNASP に関与する原子核は、全試料(照射試料と参照資料)の約 2800 分の 1 程度でしかない。低温で、低磁場中での核偏極の大きさは、千分の一程度なので、数十パーセント以上の核偏極が起きている可能性がある。

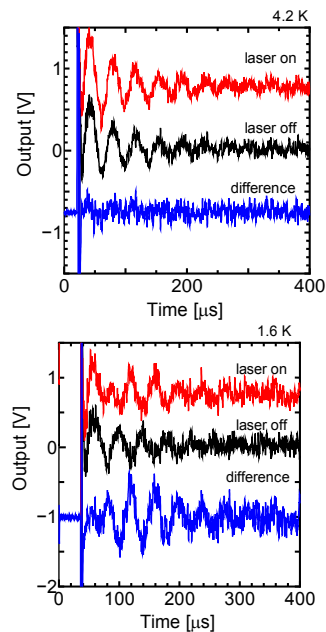


図8 レーザー照射有無による FID の違い。プリパルスと NMR パルスの時間差は 600 秒

図9は、レーザー照射の有無で得られた差分(すなわち、レーザーによる核偏極)から

得られた FID 振幅の温度依存性をプロットしたものである。図中の点線は、フリーハンドで書き加えたものである。このプロットから、約 2.3 K 以下で、核偏極が現れることがわかった。また、2 K 以下では、核偏極が飽和しているように見える。この核偏極が出現し始める温度は、InP 半導体の臨界温度 (T_c) とほぼ同じである。

NMR 実験において使用した磁場の強さは、式 (1) において、 $\alpha' \sim 0.14$ に相当する。この磁場では、図 1 に示したように、レーザーを照射すると、ある程度の核偏極が生じることが予測されていたが、そのような核偏極は観測されなかった。また、入射したレーザー光を直線偏光、+偏光、-偏光と変えて FID の測定を行ったが、顕著な変化は観測されなかった。

以上のことから、光で励起された伝導電子により、核偏極がなんらかの影響を受けていることは明らかである。しかしながら、それが DYNASP 理論で予測された現象なのかどうかは結論づけることはできなかった。これらの現象については、レーザー波長や半導体のドーパントによる影響の可能性もあり、考察を進めているとことである。今後、さらに理論的、実験的な検証を進めていく必要がある。

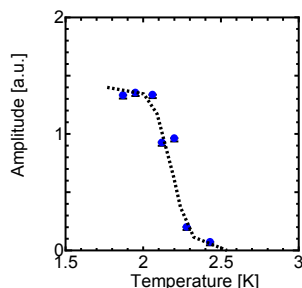


図 9 レーザーによる核偏極度 (FID 信号の振幅) の温度依存性

(3) まとめ

III-V 族化合物半導体の価電帯の電子をレーザーで伝導帯へ励起すると、緩和の過程で伝導電子は、原子核とスピンを交換する。極低温環境において電子は、核偏極による磁場の影響を受け、正のフィードバックにより大きな核偏極が実現する。我々は、この DYNASP 現象について、理論研究および実験研究を進めてきた。

理論研究では、外部磁場の影響を取り入れた核偏極度に関係式を導出した。

実験研究では、レーザーの導入により、2.3 K 以下で大きな核偏極が得られることがわかった。しかしながら、理論と整合性が取れない現象もみられており、DYNASP 現象を実証するには至らなかった。今後は、より詳細な実験を進めていく必要がある。

参考文献

[1] たとえば、O.Sorlin and M.-G.Porquet,

Prog. Part. Nucl. Phys. 60 (2008) 602.

[2] M.I. Dyakonov and V.I. Perel, Sov. Phys. JETP Lett. 16, (1972) 398-401.; M.I. Dyakonov, Sov. Phys. JETP 40 (1975) 746-749.

[3] M.Koizumi, J.Goto and S.Matsuki, J. Appl. Phys. 110 (2011) 013911. (selected for the issue of July 25, 2011 of Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology.)

[4] M. Koizumi, J. Goto, S. Matsuki, and S. Nakamura, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B317 (2013) 689-692.

[5] S. Nakamura, I. Ogawa, T. Takimoto, K. Okano, and S. Matsuki, JHP-Supplement 15, 1994, 241-242.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

M. Koizumi, J. Goto, and S. Matsuki, "Dynamic nuclear self-polarization of III-V semiconductors", to be published in Journal of Semiconductors, 査読有り, vol. 39 (2018).

〔学会発表〕(計 1 件)

M. Koizumi, J. Goto, and S. Matsuki, "Dynamic nuclear self-polarization of III-V semiconductors", Energy Materials Nanotechnology Europe meeting 2017 (Sept. 11-15, Barcelona, Spain) (招待講演) (国際学会)

〔その他〕

ホームページ等

<https://nscience.jaea.go.jp/>

<https://nscience.jaea.go.jp/laser/theme04.html>

<https://nscience.jaea.go.jp/en/index.html>

<https://nscience.jaea.go.jp/en/dynasp/dynasp-en.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小泉 光生 (KOIZUMI, Mitsuo)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：30354814

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

後藤 淳 (GOTO, Jun)

新潟大学・研究推進機構・助教

研究者番号：90370395

飯村 秀紀 (IIMURA, Hideki)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機
構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学
研究センター・特別嘱託
研究者番号：10343906

中村 詔司 (NAKAMURA, Shoji)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機
構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学
研究センター・研究副主幹
研究者番号：90421461

(4)研究協力者
なし