

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：14701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03420

研究課題名(和文) 光注入バレーキャリアのダイナミクス解明と制御方法の確立

研究課題名(英文) Investigation of dynamics and controllability of optically injected valley carriers

研究代表者

秋元 郁子 (Akimoto, Ikuko)

和歌山大学・システム工学部・准教授

研究者番号：00314055

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、バレー自由度の制御のためにバレー間散乱を捉えるためのキャリアダイナミクス研究を行った。高純度シリコン結晶にキャリアを光注入し、時間分解サイクロトロン共鳴法で、スペクトル形状が定常電場によって変化する様子を追跡した。その結果、光励起後1 us以内で、電場により励起子のイオン化が促進され、かつ、軽い電子程加速・散乱されることにより、観測できない程の高温状態になってしまうことが分かった。その高温電子はf過程によるバレー間散乱されている可能性が高い。一方、電場印加してもそれほど加速されずにバンド端領域にとどまりバレー分極を数十us程度まで保持する電子も存在することが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、今後のバレートロンデバイス開発において、バレー分極保持の観点からは、必要最小限の電場印加になるように設計すること、電場によるキャリア加熱を押さえることが必要であること、光キャリアを用いる場合は波長選択が重要であることが分かった。また、今回は励起子の束縛エネルギーが14.7 meVのシリコンでの研究であったが、同じく注目されているダイヤモンドでは励起子の束縛エネルギーが96 meVと大きく、室温でも励起子とキャリアが共存することから、励起子のインパクトイオン化にも注意する必要があること示唆された。

研究成果の概要(英文)：In this study, we conducted carrier dynamics research to elucidate inter-valley scattering to control the valley degree of freedom. We performed nanosecond time-resolved cyclotron resonance (CR) of optically injected carriers in a high-purity silicon crystal, and the change in the spectral shape due to an applied DC electric field was measured. We found that within 1 us after photoexcitation, the electric field promotes ionization of excitons and accelerates the electrons of lighter effective mass resulting in much scatter. The resulting hot electrons cannot be observed by the CR technique, but are likely inter-valley scattered by the f-process, inferred from the change in CR spectrum on subsequent delays of the cooled electrons. In contrast, we found that there are also electrons that are not accelerated much even when an electric field is applied, and remain in the band edge region, maintaining the valley polarization for up to several tens of us.

研究分野：光物性

キーワード：バレーキャリア バレーダイナミクス IV族半導体 サイクロトロン共鳴

## 1. 研究開始当初の背景

半導体材料における物性物理学分野において、2次元電子系やトポロジカル絶縁体、単原子層材料などの量子力学的現象が本質的である物性研究が活性化している。特に、電荷輸送だけでなく、スピンやバレーなどの量子自由度を利用したデバイス開発が盛んに取り組みは始めている。これらの自由度の分極を長時間保持するためには、キャリア散乱による自由度の散逸を制御する必要がある。

エレクトロニクス材料として利用されてきた従来型材料であるシリコンやゲルマニウムなどのIV族元素半導体においても、間接ギャップ型のエネルギー構造に特有な伝導帯底のマルチミニマム(バレー)構造に着目して、新たな自由度バレーについて、バレー分極伝導の研究が進められている。これまで長い研究蓄積があるIV族半導体でも、新たな自由度の応用を推し進めるためには、その自由度に注目してキャリア物性を捉え直す必要がある。新たに半導体として注目されているダイヤモンドでは、バレーの違いを飛行速度の違いとして検知できるTOF法により、電場駆動で異なるバレーのキャリアがマクロに伝搬することが実証されている[1, 2]。

間接遷移型半導体においては、光励起による最低エネルギー状態(電子・正孔注入)を形成するとき、フォノン放出・吸収の介在が不可欠である。ここで、特定のバレー内の電子分極とフォノンとの関係性、ある温度での熱平衡下で自由度がどれほど持続できるのか、駆動電場の有無によりどのようにキャリア散乱が変調を受けるのか、という問いが生じる。それらを明らかにするために、外場や温度などの外的要因によるバレー間散乱過程を解明するための新たな研究手法を確立する必要がある。本研究では、IV族元素半導体において、ナノ秒時間分解サイクロトロン共鳴法を適用し、各バレー内の電子のキャリア散乱を時間分解的に捉えキャリアダイナミクスを研究する。

## 2. 研究の目的

本研究では、高純度シリコン結晶において、ナノ秒時間分解サイクロトロン共鳴測定法を用いて、光注入したバレー分極キャリアの電場印加下でのバレーキャリアダイナミクスを明らかにすることを目的とする。この研究により、TOF法では見出せない伝導に関わるバレー間散乱のダイナミクスを明らかにして、バレー分極の制御法を見出すことを目指す。

## 3. 研究の方法

高純度シリコン結晶試料( $>1 \text{ k}\Omega\text{cm}$ ,  $3 \times 2 \times 0.5 \text{ mm}^3$ )をITO石英ガラス基板電極で挟み(ブロッキング電極、図1左)、X-bandマイクロ波(9.6 GHz)共振器内で(001)面に垂直にDC電場( $|E| \leq 400 \text{ V/cm}$ )を印加し、[110]軸方向の外部磁場の下で、時間分解サイクロトロン共鳴法を実施する(図1左)。0.5 mmの厚さの結晶に対して電圧 $\pm 10 \text{ V}$ を印加すると、掛けた電場は $\pm 200 \text{ V/cm}$ に相当する。吸収端領域の波長(1055~1030 nm)のパルス光(5 ns, 30 Hz)により、励起子もしくはバンド間遷移を介して光キャリアを注入する。[110]軸方向に磁場を印加した場合、有効質量の違いに基づき、軽い正孔(lh)、重い正孔(hh)、回転運動の質量が違う異なるバレーの電子(e1, e2)の4つのキャリア種を分解したCRスペクトルが観測できる(図1中)。すなわち、異なるバレーで運動す

る電子を識別して、キャリア散乱を捉らえることが可能である。このスペクトルが電場印加により、どのように変化するかを光励起後の遅延時間に対する時間分解スペクトルとして測定する。磁場下で非等価になるバレーの電子 (e1, e2) について、電場による加速によって余剰エネルギーを持つことが予想されるが、それによってバレー間散乱 (f過程) で別のバレーに緩和するかどうか (図1右) を、サイクロトロン共鳴スペクトルを時間分解的に観測することによって抽出する。

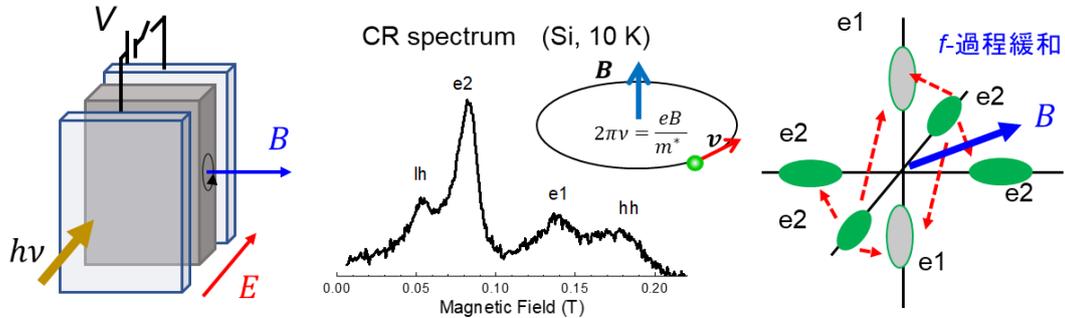


図1 電場印加下での TRCR 実験用試料配置 (左) とシリコン結晶での 10 K での TRCR ス

#### 4. 研究成果

##### (1) TRCR 信号の電場応答

図2に、遅延時間 506 ns での TRCR スペクトル(a)と e2 ピークの磁場 86 mT での時間プロファイル(b)が、電場印加により信号強度が減少する様子を示す。遅延時間 506 ns でのスペクトル(a)では、電場強度が強いほど信号強度が減少し線幅が広がった。特に、有効質量が軽いキャリア (lh, e2) ほど強く散乱され信号強度が減少するため、スペクトル形状は相似形から逸脱して変化した。時間プロファイル(b)では、0 V において第二ピークが 500 ns あたりで生じるが、その時間周辺で電場による著しい強度低下を示した。この第二ピークは、これまでの研究で光生成した励起子の二体衝突解離によるキャリア生成ピークであることが分かっている[3]。

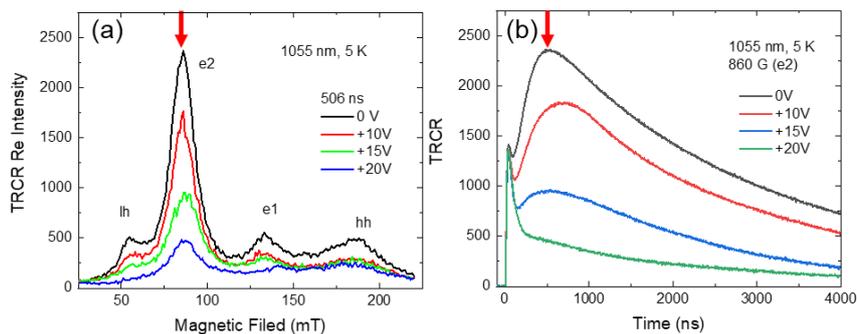


図2 励起波長 1055 nm での光照射下 5 K で測定した(a) 遅延時間 600 ns での TRCR スペクトルと(b) e2 ピーク磁場 86 mT での時間プロファイルの電場印加による変化

##### (2) スペクトル解析

図3にスペクトル分解した解析結果を示す。0 V のスペクトルについてキャリア種を分解し、電子のピークを斜線で強調したスペクトルを(a)に示す。電場印加下で取得

した各遅延時間でのスペクトルを同様に成分分解し、スペクトル半値半幅 $\Gamma$ からキャリア散乱レート $1/\tau = \omega\Gamma/B_0$  (b)を、ピーク強度と幅の積から面積強度(c)を算出し、それぞれ遅延時間 144~624 ns の各時間について電場に対してプロットした。ここで $\omega$ はマイクロ波の角振動数、 $B_0$ は共鳴磁場である。電場印加方向の正負に対する非対称性は今後の検討課題だが、キャリア散乱レートは、概ね電場の二次関数で変化する温度 ( $T = T_L + aE^2$ ) の 3/2 乗に依存して変化すると思なせる。ここで $T_L$ は格子温度、 $a$ は定数である。これはキャリア加速により発生するジュール熱による加熱と音響フォノン散乱の結果と考えることができる。図中破線は、 $E=400$  V/cm で約 0.5 K の温度上昇に対応する。励起後数百 ns の励起子の二体衝突解離によるキャリア生成が盛んに起きる時間領域 (図 2b、矢印前後) では、励起子が電場下で加速された電子・正孔と衝突し解離する Impact ionization が活性化し、それにより生成したキャリアは加熱され大きな運動エネルギーを持つホットなキャリアになり CR としては観測できなくなるため、信号面積が大きく低下したと考えられる。

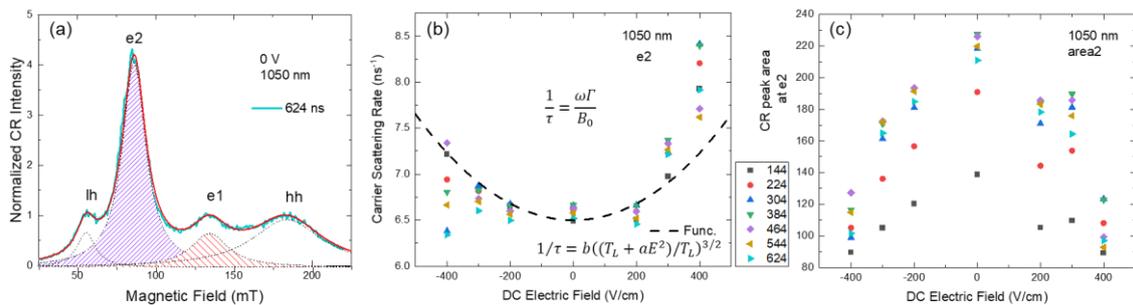


図 3 (a)TRCR スペクトル分解の例と、(b) e2 のキャリア散乱レートの印加電場依存性、および、(c) e2 の面積強度の印加電場依存性。

### (3) バレー分極の持続時間

図 4(a)に、図 2b で示した第二ピーク近傍での電子の面積強度比  $e2/e1$  の各電場強度での時間変化を示す。面積強度比  $e2/e1$  の平衡値 (約 2.5, 横破線) と比べ、初期の時刻においては電場の大きさが大きいほど  $e2/e1$  が小さくなる結果を得た。これは、質量が軽い  $e2$  が散乱され易く、スペクトルが非相似形に変化することに対応している。励起直後の変動を経て、電場下でも励起後 1.0~1.5  $\mu$ s までに平衡状態に達し、それ以降ではスペクトル形状は変化することなく信号強度が減少するのを 4~8  $\mu$ s まで観測した。つまり、励起子の Impact ionization が終わると、励起状態としての電子の存在は減少するものの、バレー分極の比率は変わらずに数 $\mu$ s にわたり持続することが分かった。

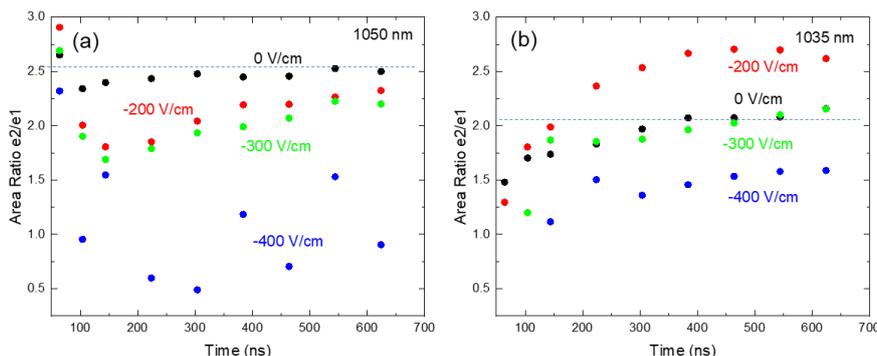


図 4 電子の面積強度比  $e2/e1$  の各電場下での時間変化 (a) 1050 nm 励起、(b) 1035 nm 励起

#### (4) 励起波長依存性

励起波長 1050 nm (1.181 eV) では励起子のみが注入されるが、励起波長 1035 nm (1.198 eV) では励起子と共にフォノンを介在したバンド間遷移によりキャリアも直接に励起されることがこれまでの研究で分かっている[3]。励起波長 1035 nm で生成した励起子は 25 meV の余剰エネルギーをもち、f 過程によるバレー間散乱をまねくフォノン放出 ( $\hbar\omega = 19.0$  meV [4]) が可能となるため、電場印加なしでも励起子解離により生成したキャリアは f 過程によるバレー間散乱を受ける可能性がある。図 4(b)に、励起波長 1035 nm での電子の面積強度比  $e2/e1$  の各電場強度での時間変化を示す。この励起波長での面積強度比  $e2/e1$  の平衡値 (約 2.0, 横破線) に対し、 $E=0$  V/cm でも初期の変動が大きく、また電場強度によって変化の方向が異なる複雑なふるまいを示した。この現象はある程度再現性があるため、励起波長 1035 nm では励起初期の CR では観測できない Hot な状態において、バレー間  $e2 \leftrightarrow e1$  の f 過程による散乱の存在を示している可能性が高い。今後詳細に検討する。

#### 5. まとめ

本研究では、高純度シリコン結晶に 400 V/cm 以下の定常電場を印加し、時間分解サイクロトロン共鳴のスペクトル形状が電場によって変化する様子を追跡し、電子のバレー分極に対する電場の影響を調べた。シリコンでは数十 V/cm 程度の電場で励起子のインパクトイオン化が起こること[5]と合致して、パルス励起後、励起子のイオン化が電場により促進され、光生成したキャリアの電場による加速により、一部のキャリアは CR 測定できない程の散乱レートをもち高温状態になってしまうこと、その間余剰エネルギーをもった状態で f 過程によるバレー間散乱が生じている可能性が高いこと、が分かった。これらは励起後 1  $\mu$ s 以内で起きている現象である。一方、電場印加してもそれほど加速されずにバンド端領域にとどまる電子も存在し、わずかに温度上昇はするものの、それらはバレー分極を数十  $\mu$ s 程度まで保持することが分かった。

本研究により、今後のバレートロンクスデバイス開発において、バレー分極保持の観点からは、必要最小限の電場印加になるように設計すること、電場によるキャリア加熱を押さえることが必要であること、光キャリアを用いる場合は波長選択が重要であることが分かった。また、今回は励起子の束縛エネルギーが 14.7 meV のシリコンでの研究であったが、同じく注目されているダイヤモンドでは励起子の束縛エネルギーが 96 meV と大きく、室温でも励起子とキャリアが共存することから、励起子のインパクトイオン化にも注意する必要があること示唆された。

#### References

- [1] J. Isberg et.al., Nature Mat. **12**, 760 (2013),
- [2] N. Suntornwipat et.al. Appl. Phys. Lett. **115**, 192121 (2019).
- [3] I. Akimoto and N. Naka, APEX**10**, 061301-1-4 (2017).
- [4] C. Jacoboni and L. Reggiani, Rev. Mod. Phys. **55**, 645 (1983).
- [5] H. Weman et.al., Phys. Rev. B **36**, 5054 (1987).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hamabata Sayaka, Kaneko Junichi H., Naka Nobuko, Akimoto Ikuko	4. 巻 120
2. 論文標題 Transient coexistence of excitons and charge carriers in high-purity diamond	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Diamond and Related Materials	6. 最初と最後の頁 108678 ~ 108678
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.diamond.2021.108678	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Konishi K., Akimoto I., Matsuoka H., Isberg J., Naka N.	4. 巻 17
2. 論文標題 Intrinsic Mobility of Low-Density Electrons in Photoexcited Diamond	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 L031001-(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.17.L031001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 秋元郁子, 中暢子
2. 発表標題 DC電場印加下での光注入パレー電子のサイクロトロン共鳴II
3. 学会等名 日本物理学会 2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 秋元郁子, 中暢子, 松岡秀人
2. 発表標題 極低温でのサイクロトロン共鳴イメージングの試み
3. 学会等名 第62回電子スピンサイエンス学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 秋元郁子, 中暢子
2. 発表標題 DC電場印加下での光注入バレー電子のサイクロトロン共鳴
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 秋元郁子, 北尾大和, 松岡秀人, 中暢子
2. 発表標題 分子研パルスESR装置による静電場印加下での時間分解サイクロトロン共鳴測定
3. 学会等名 第61回電子スピンサイエンス学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 秋元郁子, 中暢子
2. 発表標題 光注入バレー電子の電場印加下でのサイクロトロン共鳴
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	中 暢子  (Naka Nobuko)  (10292830)	京都大学・理学研究科・教授    (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------