

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400317

研究課題名(和文) 間接遷移型半導体におけるスピン偏極キャリアの光注入

研究課題名(英文) Optical injection of spin-polarized carriers in indirect gap semiconductors

研究代表者

中 暢子 (Naka, Nobuko)

京都大学・理学研究科・准教授

研究者番号：10292830

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：近年、シリコンに代表される間接遷移型IV族半導体に対して太陽電池やスピndeバイスとしての期待が急速に高まっている。しかし、長いスピンコヒーレンス時間が予想されるダイヤモンドにおいて、スピン輸送の担い手となりうる非局在キャリアのスピン緩和時間の測定例はなかった。そこで、本研究では、偏光レーザー照射によるスピン偏極キャリアの注入を試み、運動量緩和時間や輸送特性を明らかにした。本研究の成果は、次世代デバイスにおける非局在スピンの有効活用につながるものと期待される。

研究成果の概要(英文)：Indirect bandgap semiconductors including silicon are currently a major focus of research for solar cell and spin device applications. However, there had been no report on the spin relaxation time of optically injected delocalized carriers in diamond. In this study, we demonstrated optical injection of spin-polarized carriers in indirect bandgap semiconductors, which paves a way to the versatile applications of spin and momentum degrees of freedom.

研究分野：光物性物理学

キーワード：光キャリア 間接遷移型半導体 スピン緩和

1. 研究開始当初の背景

近年、間接遷移型半導体であるシリコンに対して太陽電池やスピンドバイスとしての期待が急速に高まっている。同じIV族半導体であるダイヤモンドは閾値電圧や熱伝導率の高さの点でシリコンを凌駕する性質を持ち、高いデバイ温度と核スピンの緩和時間が長いことにより、シリコンよりも長い、ミリ秒に及ぶスピンコヒーレンス時間を持つことが予言されている。しかし、これらの物質における伝導キャリアのスピン緩和やスピン輸送の実験研究は数例しかない。また、ダイヤモンドでは窒素欠陥中心を用いた局在スピンの研究が盛んに行われているが、スピン輸送の担い手となりうる非局在キャリアのスピン緩和時間や輸送現象の測定例はない。最近、間接遷移型半導体でのフォノン介在光遷移の第一原理計算が可能になったことから理論の論文が次々と発表されており、実験研究が待たれている状況であった。

2. 研究の目的

本研究では、偏光レーザー光の照射により、間接遷移型半導体へのスピン偏極キャリアの注入を試みた。また、光注入キャリアのスピン緩和時間や輸送現象を調べることで、これまで測定困難であった物質のスピン物性測定法を確立することを目指した。間接遷移型半導体において光注入キャリアのスピン特性を明らかにすることは、非平衡電子励起状態のダイナミクスや少数多体系の物理学の深化をもたらす、次世代デバイスにおける非局在スピンの有効活用につながるものと期待される。

3. 研究の方法

間接遷移型の軽元素半導体のうち最も長いスピン緩和時間が予測されている非ドープの真性ダイヤモンドを中心に、スピン偏極したキャリアを光注入し、それらの空間輸送及び緩和時間を以下の方法により実験的に明らかにした。

- ・ 偏光を制御した光によるスピン偏極キャリアの生成
- ・ 発光イメージング法とサイクロトロン共鳴法により得られる運動量緩和時間の比較
- ・ 不均一圧力の印加によるスピン輸送の実証

4. 研究成果

予定していた研究項目は順調に遂行することができた。また、光キャリアの生成・緩和過程やスピン配位の異なる状態間の緩和ダイナミクスについて、ダイヤモンドとシリコンの比較研究は当初の予想以上に進展し、シリコンのバレー偏極に関する新しい知見を得ることができた。

1) スピン偏極キャリアの光注入法の検証：偏光を制御した光を用いて特定のバンドに伝導キャリアを注入する実験を非ドープの真性ダイヤモンドで行った。キャリア検出に用いる誘電体キャパシティにおける偏光消度についても実験的に吟味し、群論を用いた光遷移選択則の理論計算と実験結果の検証を行った。さらに、シリコンでも同様の実験を行い、バンド端近傍の光励起下で生成されるキャリアが高いバレー偏極度を保つことを初めて見出した。

2) スピン偏極キャリアの緩和時間の測定：真性ダイヤモンドを用いてキャリアの光注入を行い、スピン配位の異なる状態間の緩和ダイナミクスを時間分解サイクロトロン共鳴実験により明らかにした。すなわち、スピンの緩和していく様子を軽い正孔、重い正孔による信号強度の変化として捉え、励起波長依存性と温度依存性の詳細な測定に基づきスピン緩和機構を考察した。

3) 拡散定数に基づく運動量緩和時間の評価：真性ダイヤモンド中に光注入される電子正孔の拡散定数を、発光イメージング法により測定した。自由キャリアと励起子からの信号をスペクトル上で分離する方法により、極低温までの励起子の拡散定数を抽出することに初めて成功し、温度4ケルビンで9200 cm²/s という至大な値を得た。さらに、得られた拡散定数にアインシュタインの関係式を適用し、キャリアおよび励起子の運動量緩和時間を評価した。また、ダイヤモンドの光デバイス応用に欠かせない物質パラメータとして、室温でのライフタイム350ナノ秒と拡散長34ミクロンを得た。

4) 非局在キャリアの運動量緩和機構の考察：ダイヤモンド結晶中の極低濃度不純物の定量を電子スピン共鳴法と発光分光法により行い、不純物が非局在キャリアの運動量緩和に与える影響を精査した。また、運動量緩和時間の温度依存性を解析することにより、キャリアおよび励起子の緩和機構が縦波音響フォノンによるバンド内散乱、横波音響フォノンによるバンド間散乱、および励起子と自由キャリア系の間での化学平衡により説明できることを明らかにした。一方、最高純度のダイヤモンド試料を用いて運動量緩和時間を測定した結果、2ケルビンの極低温まで、不純物散乱の影響を受けないダイヤモンド固有のフォノンによる運動量緩和を観測することに成功した。

5) 圧力印加による励起子移動度の測定：単結晶ダイヤモンドに空間的に不均一な圧力を印加するための試料ホルダーを新たに製作し、極低温での圧力印加のもと励起子輸送を実験的に調査し、角運動量状態がJ=2に偏極した励起子の移動度を見積もることに成功した。

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 9 件)すべて査読あり

1. Ikuko Akimoto and Nobuko Naka: Two optical routes of cold carrier injection in silicon revealed by time-resolved excitation spectroscopy, *Applied Physics Express* **10** (2017) 061301-1-4 (**selected for Spotlights**). DOI: 10.7567/APEX.10.061301
2. Nobuko Naka, Hikaru Morimoto, and Ikuko Akimoto: Excitons and fundamental transport properties of diamond under photo-injection, *Physica Status Solidi A* **213** (2016) 2551–2563 (**Feature Article, selected for Front Cover**). DOI:10.1002/pssa.201600237
3. H. Morimoto, Y. Hazama, K. Tanaka, and N. Naka: Exciton lifetime and diffusion length in high-purity chemical-vapor-deposition diamond, *Diamond Relat. Mater.* **63** (2016) 47-50. DOI:10.1103/PhysRevB.92.201202
4. I. Akimoto, N. Naka, and N. Tokuda: Time-resolved cyclotron resonance on dislocation-free HPHT diamond, *Diamond Relat. Mater.* **63** (2016) 38-42. DOI:10.1016/j.diamond.2015.08.013
5. H. Morimoto, Y. Hazama, K. Tanaka, and N. Naka, Ultrahigh exciton diffusion in intrinsic diamond, *Phys. Rev. B* **92** (2015) 201202(R)-1-5. DOI:10.1103/PhysRevB.92.201202
6. Ikuko Akimoto, Katsuyuki Fukai, Yushi Handa, and Nobuko Naka: High carrier mobility in ultrapure diamond measured by time-resolved cyclotron resonance, *App. Phys. Lett.* **105** (2014) 032102-1-4. DOI:10.1063/1.4891039

7. Yuji Hazama, Nobuko Naka, and Heinrich Stolz: Mass-anisotropy splitting of indirect excitons in diamond, *Phys. Rev. B* **90** (2014) 045209-1-7. DOI:10.1103/PhysRevB.90.045209
8. S. Koirala, M. Takahata, Y. Hazama, N. Naka, and K. Tanaka: Relaxation of localized excitons by phonon emission at oxygen vacancies in Cu₂O, *J. Lumin.* **155** (2014) 65-69. DOI:10.1016/j.jlumin.2014.06.027
9. N. Naka, K. Fukai, Y. Handa, and I. Akimoto: Nanosecond cyclotron resonance in ultrapure diamond, *J. Lumin.* **152** (2014) 93-97. DOI:10.1016/j.jlumin.2013.12.055

[学会発表](計 43 件)

1. N. Naka, H. Morimoto, and I. Akimoto: Excitons and fundamental properties of diamond, Hasselt Diamond Workshop SBDD-XXI (Hasselt, Belgium, March 9, 2016). **Invited**
2. 中暢子: ダイヤモンド - 究極の半導体光学材料、日本学術会議主催公開シンポジウム(東京大学本郷キャンパス April 21, 2015) . **Invited**
3. Nobuko Naka: Diamond- an extreme material for semiconductor optics, 9th Japanese-French Frontiers of Science Symposium (Kyoto, January 22-25, 2015). **Invited**
4. Nobuko Naka, Yuji Hazama, and Ikuko Akimoto: Excitons and carrier effective masses in intrinsic diamond, International Conference on Diamond and Carbon Materials (Madrid, Spain, September 10, 2014). **Invited**
5. Ikuko Akimoto and Nobuko Naka: Momentum relaxation times for optically excited delocalized electrons

- and holes in pristine diamond, Awaji International Workshop on "Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Applications" (Awaji, Japan, June 17, 2014). *Invited*
6. Nobuko Naka: Polyexcitons and electron-hole droplet condensation in diamond, 7th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems (Hakone, Japan, April 22, 2014). *Invited*
 7. N. Naka, I. Akimoto, T. Shimomura, Ian Friel, and J. Isberg: Enhanced electron mobility in intrinsic diamond at cryogenic temperatures, Hasselt Diamond Workshop SBDD-XXII (Hasselt, Belgium, March 10, 2017).
 8. T. Shimomura, N. Naka, N. Tokuda, and I. Akimoto: Quantitative discussion on the relevance of substitutional impurities to exciton and charge-carrier lifetimes, Hasselt Diamond Workshop (Hasselt, Belgium, March 10, 2017).
 9. Nobuko Naka and Ikuko Akimoto : Excitation–energy dependent carrier dynamics in silicon, 13th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (Dortmund, Germany, October 11, 2016).
 10. M. Takahata, N. Naka, and K. Tanaka: Nonlocal coupling of light and weakly confined excitons in Cu₂O thin films, 13th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (Dortmund, Germany, October 11, 2016).
 11. Ikuko Akimoto and Nobuko Naka: Exciton interband relaxation observed by time-resolved cyclotron resonance in diamond, 19th International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids (Paris, France, July 21, 2016).
 12. J. Omachi, N. Naka, K. Yoshioka, and M. Kuwata-Gonokami: Mid-infrared response of Fermi-degenerate electron-hole droplets in diamond, FOPS 2015 (Breckenridge, CO, USA, August 2-7, 2015).
 13. I. Akimoto, N. Naka, and N. Tokuda: Time-resolved cyclotron resonance on dislocation-free HPHT diamond, 9th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2015 (Shizuoka, Japan, May 26, 2015).
 14. H. Morimoto, Y. Hazama, K. Tanaka, and N. Naka: Exciton diffusion coefficient measured by photoluminescence imaging in ultrapure diamond, The 9th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2015 (Shizuoka, Japan, May 27, 2015).
 15. N. Naka and I. Akimoto: Momentum and spin relaxation times for optically excited delocalized carriers in group IV semiconductors, NOEKS (Bremen, Germany, September 23, 2014).
 16. Y. Hazama, N. Naka, M. Kuwata-Gonokami, and K. Tanaka: Observation of nonequilibrium gas-liquid phase transition of the electron-hole system in diamond, NOEKS (Bremen, Germany, September 23, 2014).
 17. I. Akimoto, Y. Handa, K. Fukai, and N. Naka: High carrier mobility of diamond measured by cyclotron resonance, The 15th IUMRS-International Conference

- in Asia (IUMRS-ICA 2014) (Fukuoka, Japan, August 26, 2014).
18. Nobuko Naka and Ikuko Akimoto: High-efficiency detection of free carriers via Auger ionization in wide-gap semiconductors, 32nd International Conference on The Physics of Semiconductors (Austin, Texas, August 14, 2014).
 19. S. Koirala, M. Takahata, Y. Hazama, N. Naka, and K. Tanaka: Trapping mechanism and energy relaxation of paraexcitons localized at oxygen vacancies in cuprous oxide, The 7th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems (Hakone, Japan, April 22, 2014).
 20. Y. Hazama, N. Naka, M. Kuwata-Gonokami, and K. Tanaka: Polyexcitons in the phase diagram of the electron-hole system in diamond, The 7th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems (Hakone, Japan, April 22, 2014).
 21. I. Akimoto and N. Naka: Free-carrier generation by excitonic two-body collisions in semiconductors, The 7th International Conference on Spontaneous Coherence in Excitonic Systems (Hakone, Japan, April 22, 2014).
 22. 高畑光善、北村達矢、中暢子: 非弾性二体衝突による Cu_2O リュードベリ励起子の生成と消滅、日本物理学会第 72 回年次大会(大阪大学豊中キャンパス、2017 年 3 月 20 日)
 23. 下村尊明、中暢子、徳田規夫、秋元郁子: ダイヤモンド中の光励起キャリアに対する不純物散乱の定量評価、日本物理学会第 72 回年次大会(大阪大学豊中キャンパス、2017 年 3 月 20 日)
 24. 秋元郁子、中暢子: 高純度シリコン結晶におけるバレー選択的光キャリア生成、日本物理学会第 72 回年次大会(大阪大学豊中キャンパス、2017 年 3 月 20 日)
 25. 市井智章、中暢子、挾間優治、田中耕一郎: ダイヤモンドにおける光励起キャリアのテラヘルツ時間領域分光、日本物理学会第 72 回年次大会(大阪大学豊中キャンパス、2017 年 3 月 19 日)
 26. 矢田部翼、嵐田雄介、南不二雄、中暢子、渡邊幸志、片山郁文、武田淳: ダイヤモンド超格子における励起子及び電正孔液滴発光、応用物理学会(パシフィコ横浜、2017 年 3 月 14 日)
 27. 下村尊明、中暢子、徳田規夫、秋元郁子: 高純度ダイヤモンドにおける不純物の定量評価と不純物散乱レートの考察、第 27 回光物性研究会(神戸大学百年記念館、2016 年 12 月 2 日)
 28. 下村尊明、中暢子、徳田規夫、秋元郁子: 電子スピン共鳴法を用いた高純度ダイヤモンドにおける窒素不純物の定量、第 55 回電子スピンサイエンス学会(大阪市立大学杉本キャンパス、2016 年 11 月 11 日)
 29. 高畑光善、中暢子、田中耕一郎: Cu_2O 励起子の非局所応答による輻射緩和増強の温度依存性、日本物理学会 2016 年秋季大会(金沢大学角間キャンパス、2016 年 9 月 16 日)
 30. 秋元郁子、高山敏暢、大島慶三、中暢子: 結晶成長法の異なる高純度シリコンにおける光キャリアサイクロトン共鳴、日本物理学会 2016 年秋季大会(金沢大学角間キャンパス、2016 年 9 月 15 日)
 31. 下村尊明、中暢子、徳田規夫、秋元郁子: 高純度 CVD 及び HPHT ダイヤモンド基板における格子欠陥の赤外分光、日本物理学会第 71 回年次大会(東北学院大学泉キャンパス、2016 年 3 月 21 日)

32. 森本光、挟間優治、田中耕一郎、中暢子：ダイヤモンドにおける非平衡電子正孔系の熱緩和と輸送、日本物理学会第 71 回年次大会（東北学院大学泉キャンパス、2016 年 3 月 20 日）
33. 高畑光善、中暢子、田中耕一郎：Cu₂O ナノ薄膜における励起子の非局所光応答の観測、日本物理学会第 71 回年次大会（東北学院大学泉キャンパス、2016 年 3 月 20 日）
34. 秋元郁子、大島慶三、中暢子：高純度シリコン結晶における光生成キャリアのダイナミクス、日本物理学会第 71 回年次大会（東北学院大学泉キャンパス、2016 年 3 月 20 日）
35. 森本光、挟間優治、田中耕一郎、中暢子：高純度ダイヤモンド単結晶における励起子拡散のメカニズム、第 26 回光物性研究会（神戸大学百年記念会館、2015 年 12 月 12 日）
36. 秋元郁子、大島慶三、半田裕之、中暢子：高抵抗シリコンにおける光キャリア生成過程の励起波長依存性、日本物理学会 2015 年秋季大会（関西大学千里山キャンパス、2015 年 9 月 17 日）
37. 森本光、挟間優治、中暢子、田中耕一郎：高純度ダイヤモンドにおける励起子拡散の起源、日本物理学会 2015 年秋季大会（関西大学千里山キャンパス、2015 年 9 月 17 日）
38. 大島慶三、合羽一貴、半田裕之、秋元郁子、中暢子：高抵抗シリコンにおける定常・パルス光生成キャリアによるサイクロトロン共鳴の比較、日本物理学会 2015 年秋季大会（関西大学千里山キャンパス、2015 年 9 月 18 日）
39. 中暢子、秋元郁子：時間分解サイクロトロン共鳴による励起子二体衝突レートの測定、日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学早稲田キャンパス、2015 年 3 月 21 日）
40. 秋元郁子、中暢子：時間分解サイクロトロン共鳴による励起子と正孔緩和の観測、日本物理学会第 70 回年次大会（早稲田大学早稲田キャンパス、2015 年 3 月 23 日）
41. 秋元郁子、深井克行、中暢子：高純度シリコン結晶における光キャリアの時間分解サイクロトロン共鳴、日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学春日井キャンパス、2014 年 9 月 10 日）
42. 森本光、挟間優治、中暢子、田中耕一郎：高純度ダイヤモンド単結晶における励起子移動度の測定、日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学春日井キャンパス、2014 年 9 月 10 日）
43. 挟間優治、S. A. McGill、J. G. Cherian、J. S. Brooks、中暢子：ダイヤモンドの励起子における異方的交換相互作用、日本物理学会 2014 年秋季大会（中部大学春日井キャンパス、2014 年 9 月 8 日）

〔図書〕(計 1 件)

1. 中暢子、森本光、挟間優治、田中耕一郎：高純度ダイヤモンドにおける励起子拡散のメカニズム（解説）、光アライアンス vol. 28 (2017 年 3 月号) pp. 35-38.

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ：

<http://www.hikari.scphys.kyoto-u.ac.jp/jp/index.php?Nobuko%20Naka>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

中 暢子 (NAKA, Nobuko)

京都大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：1 0 2 9 2 8 3 0

(2)研究分担者

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：0 0 3 1 4 0 5 5

(3)連携研究者

(4)研究協力者

STOLZ, Heinrich

ロストック大学・物理学科・教授