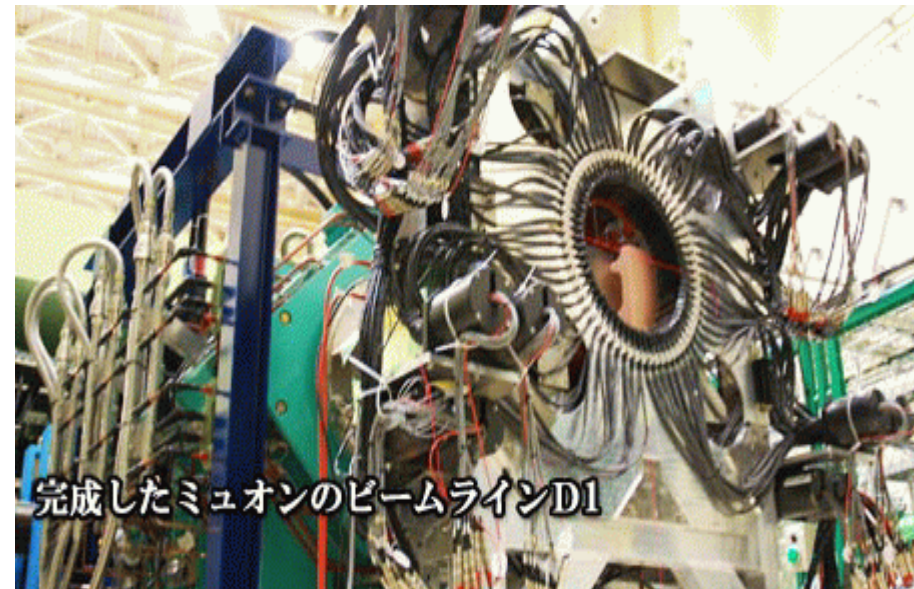
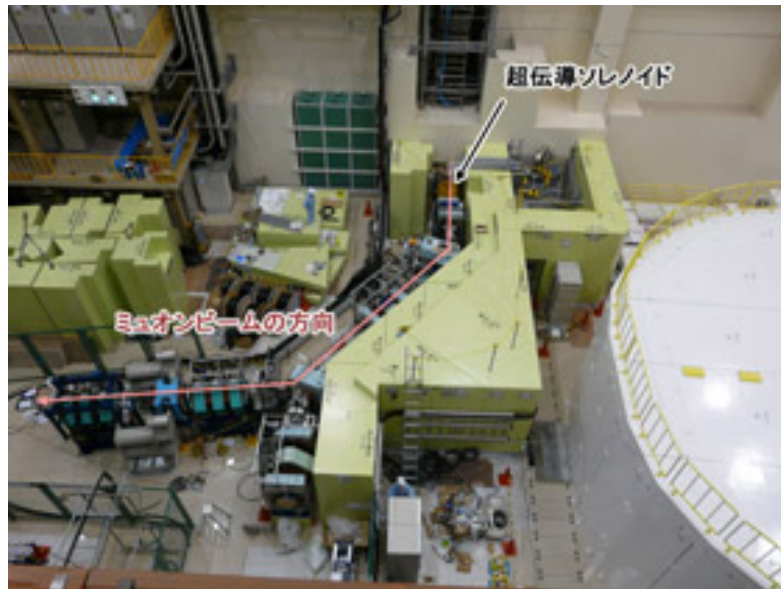


半導体先端デバイス開発のために ミュオンができること



下村浩一郎 (KEKミュオン)

Outline

1. μ SRとは
2. 半導体中の水素
3. レーザー照射 μ SR法のスピントロニクスへの応用
4. J-PARCへの期待
 - 負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究
 - 超低速ミュオンを用いた研究(三宅、池戸ポスター)

Collaborators (半導体中の水素)

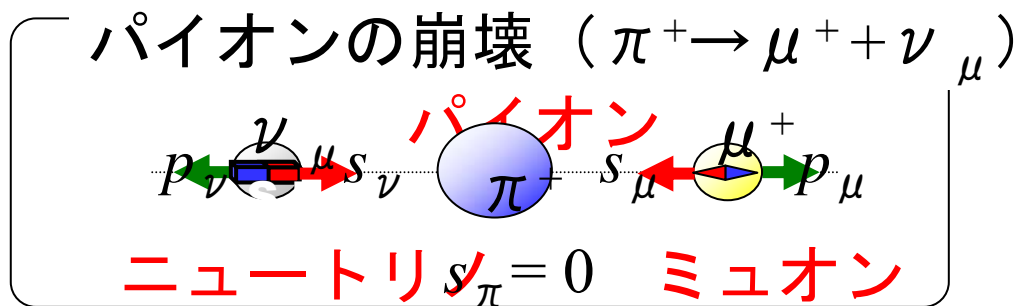
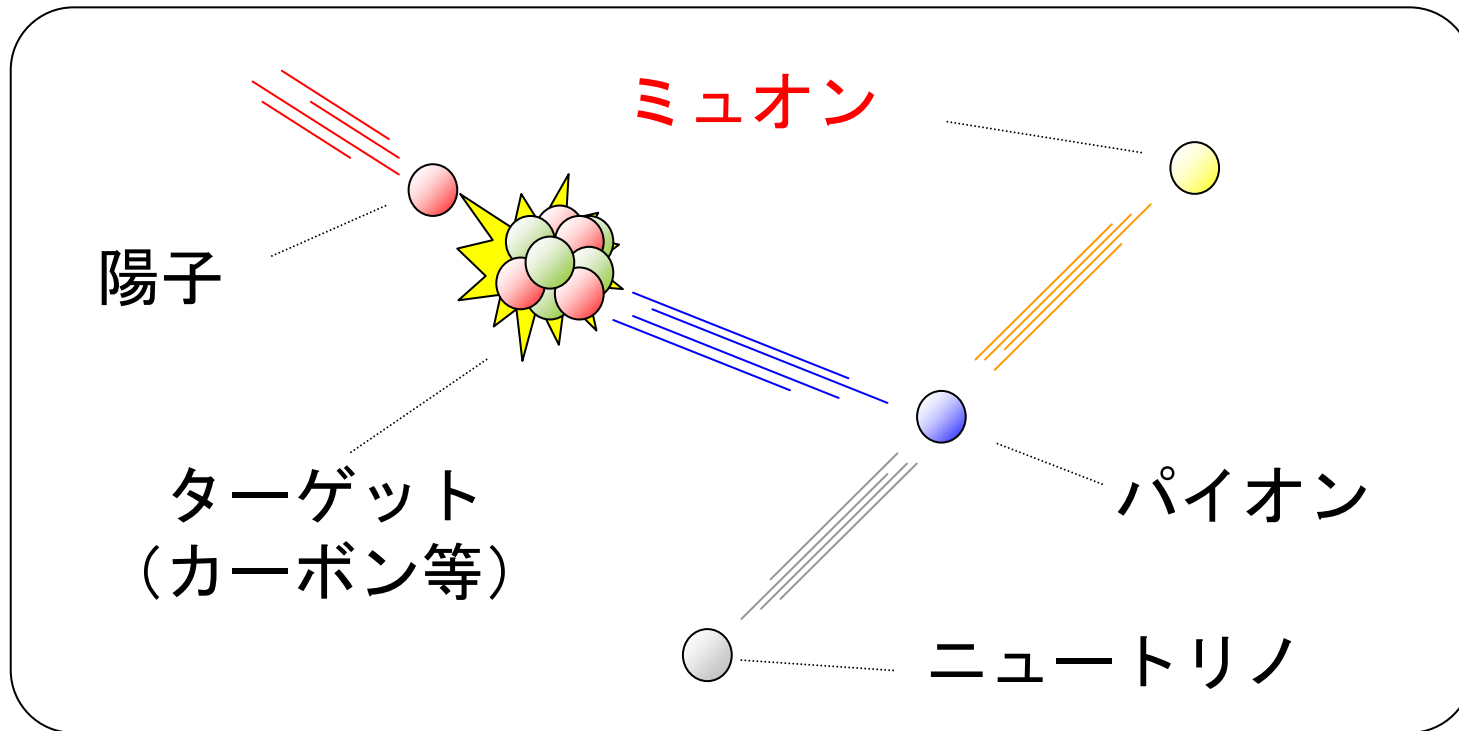
- 門野良典、西山樟生、幸田章宏、佐藤宏樹 (KEK)
- 三原基嗣 (大阪大学)
- 渡邊功雄、鈴木栄男、大石一城 (RIKEN)
- R.L.Lichti、K.H.Chow、B.Hitt (TRIUMF)
- 水田正志 (NEC)
- 齊藤峯雄 (金沢大学)

Collaborators (半導体スピントロニクス)

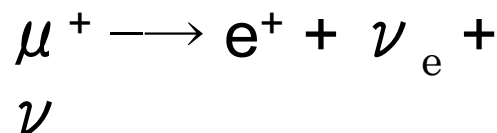
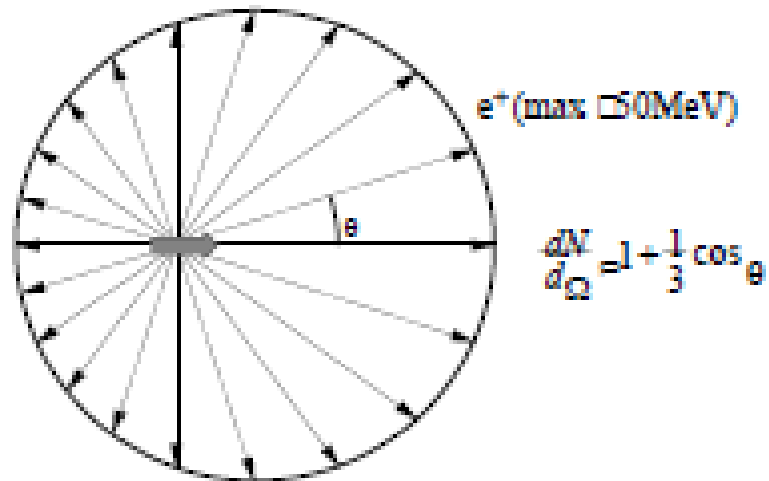
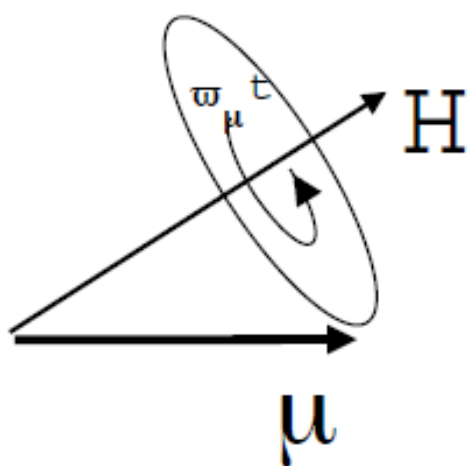
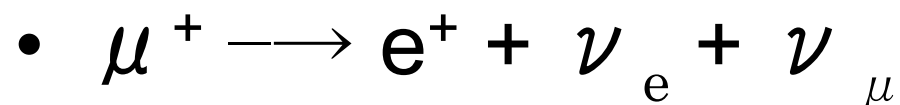
- K.Yokoyama、K.Nagamine、H.Tom、R.Kawakami (UCR)
- 鳥養映子 (山梨大学)
- 渡邊功雄、石田勝彦、大石一城 (RIKEN)
- P.Bacule、F.L.Pratt (ISIS)
- 松田恭幸 (東京大学)

Outline

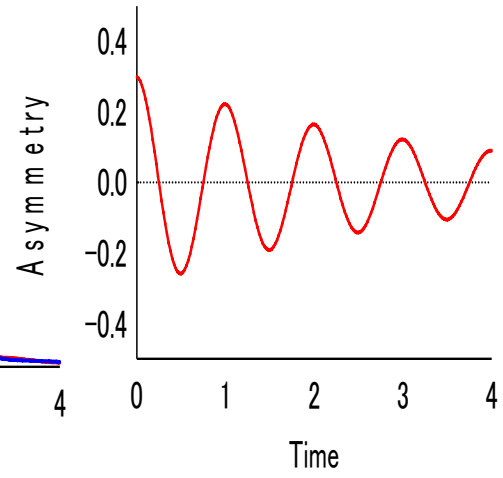
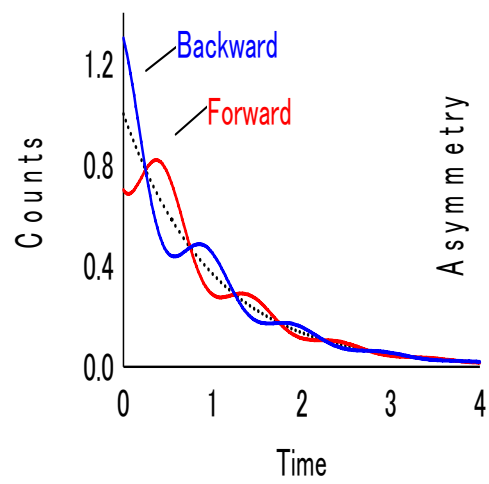
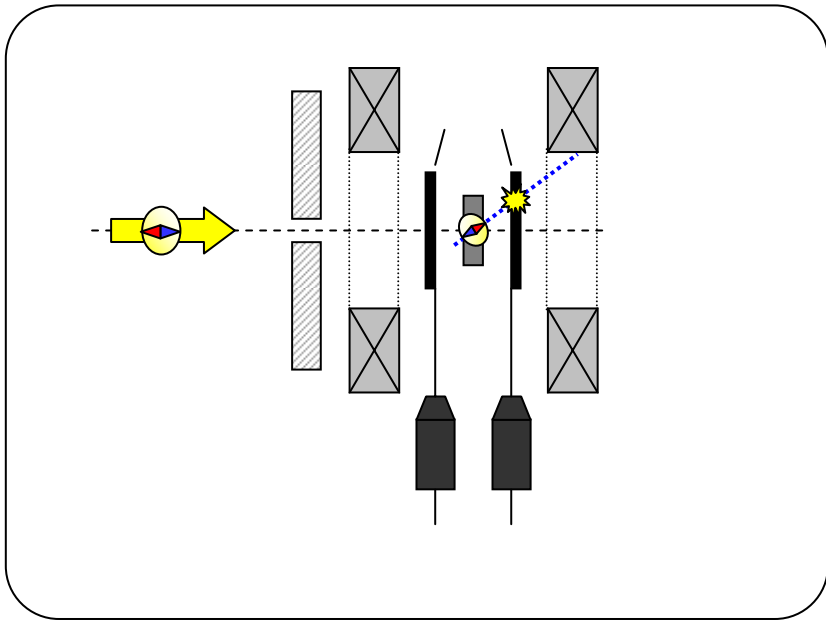
1. μ SRとは
2. 半導体中の水素
3. レーザー照射 μ SR法のスピントロニクスへの応用
4. J-PARCへの期待
 - 負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究
 - 超低速ミュオンを用いた研究(三宅、池戸ポスター)



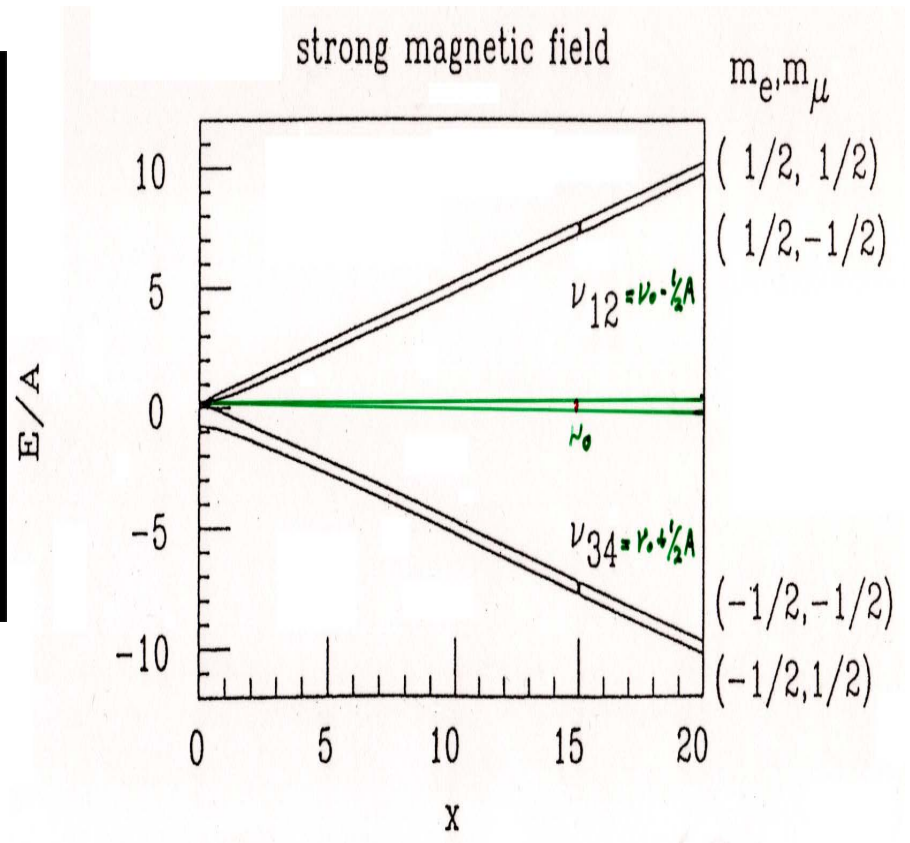
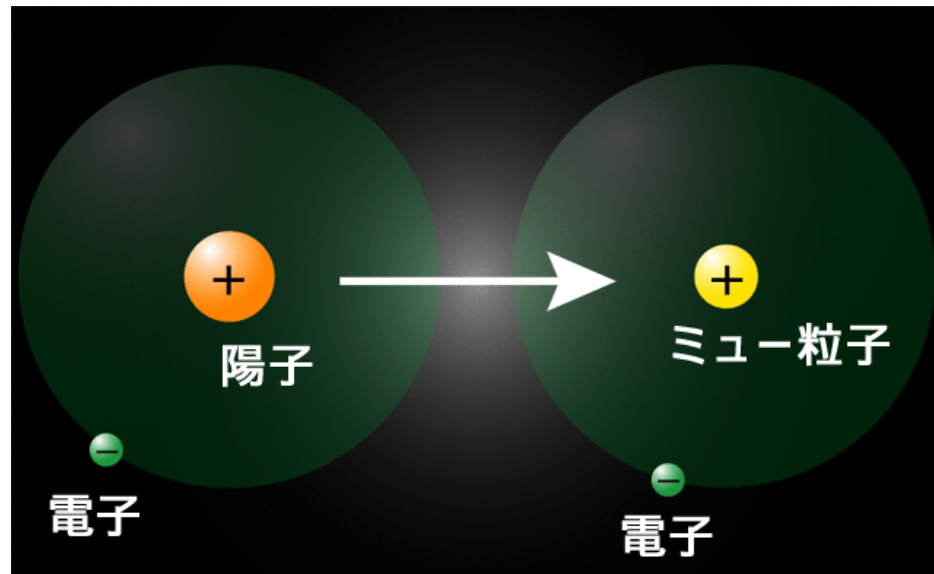
ミュオンはスピンの向きに陽電子を出して崩壊する



物構研シンポ^μ



ミュオニウムとは



電子のスピンがミュオンに
実効磁場を付与する。

Outline

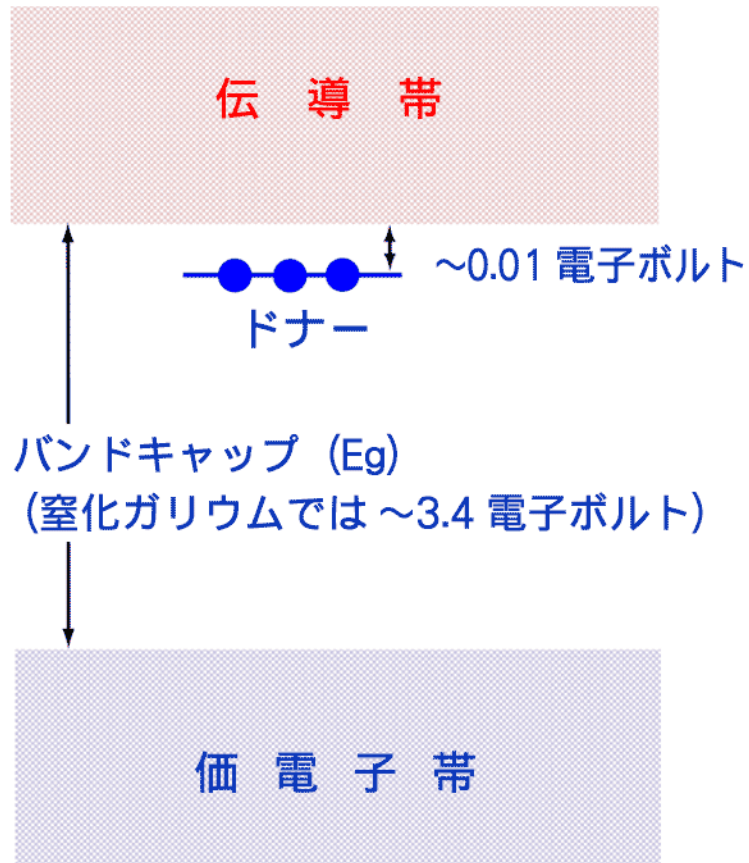
1. μ SRとは
2. 半導体中の水素
3. レーザー照射 μ SR法のスピントロニクスへの応用
4. J-PARCへの期待
 - 負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究
 - 超低速ミュオンを用いた研究(三宅、池戸ポスター)

半導体中の水素

- 通常、化学的にきわめて活性度が高い。
- 積極的に半導体中に導入して、必要としない不純物の電気的活性を失わせることができる場合が多い。
(不動態化、passivation)
- その機構
 - ・ 不純物と水素の複合体形成
 - ・ 多くの半導体 (Si, Ge, GaAs, GaP etc.) 半導体中の**孤立水素**
自身がn型の場合には負に帯電しやすくなるなど、半導体中の電気伝導性を打ち消すようにふるまう。(negative U)
- いくつかの重要な半導体 (ZnO, GaN, TiO₂) では**孤立水素**自身が電気伝導性の起源となる。

半導体中の不純物

浅いドナー、アクセプタ



ボーア半径

$$a = \epsilon \times (m_e / m^*) \times a_0 \sim 20 \times a_0$$

イオン化エネルギー

$$(13.6 \text{ eV}) \times (m^* / m_e) / \epsilon^2$$

$\sim 50 \text{ meV}$

超微細相互作用

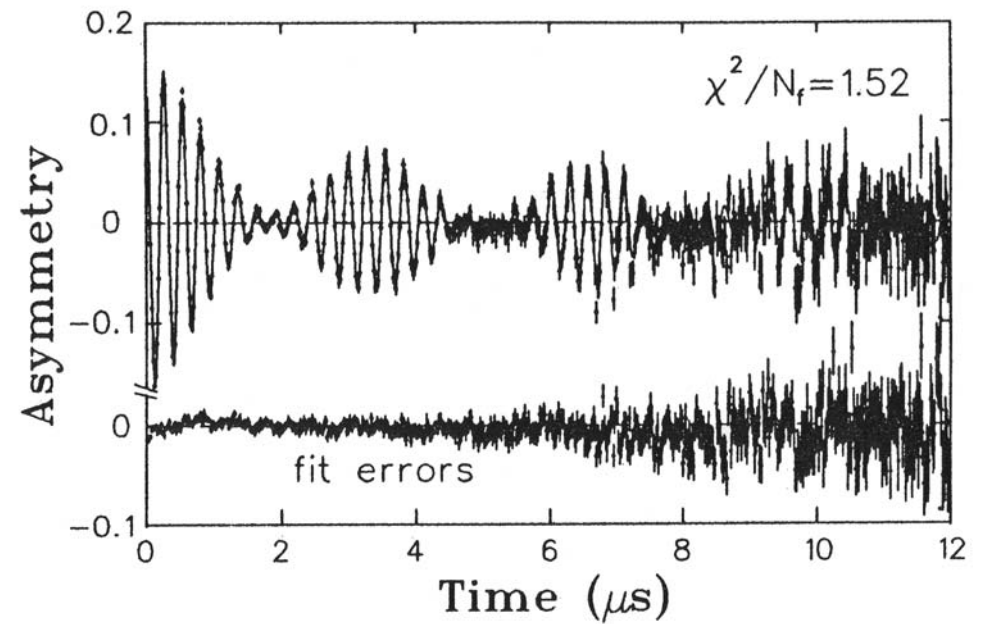
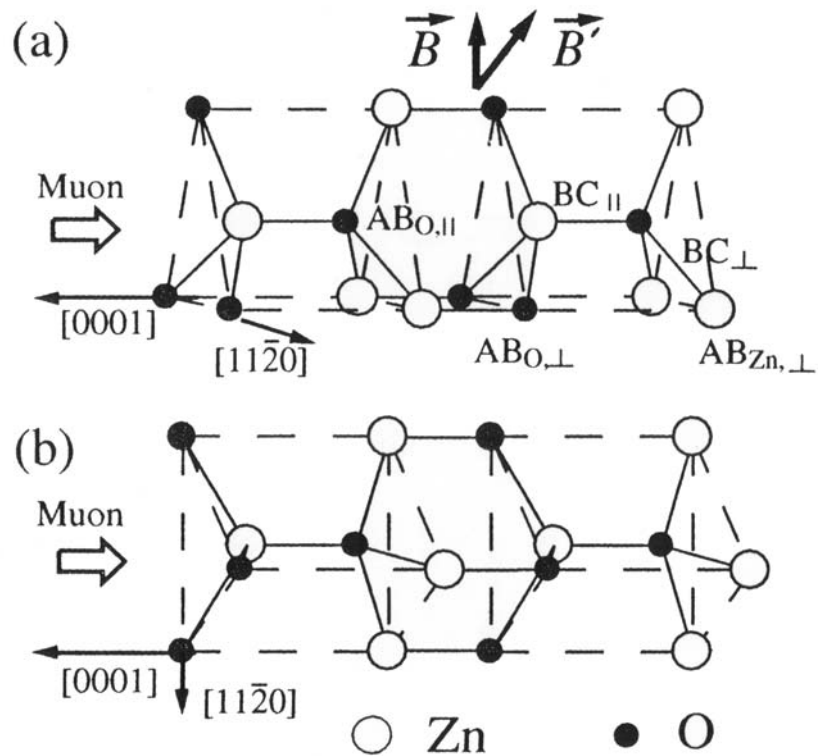
$$A \sim 10^{-4} A_0$$

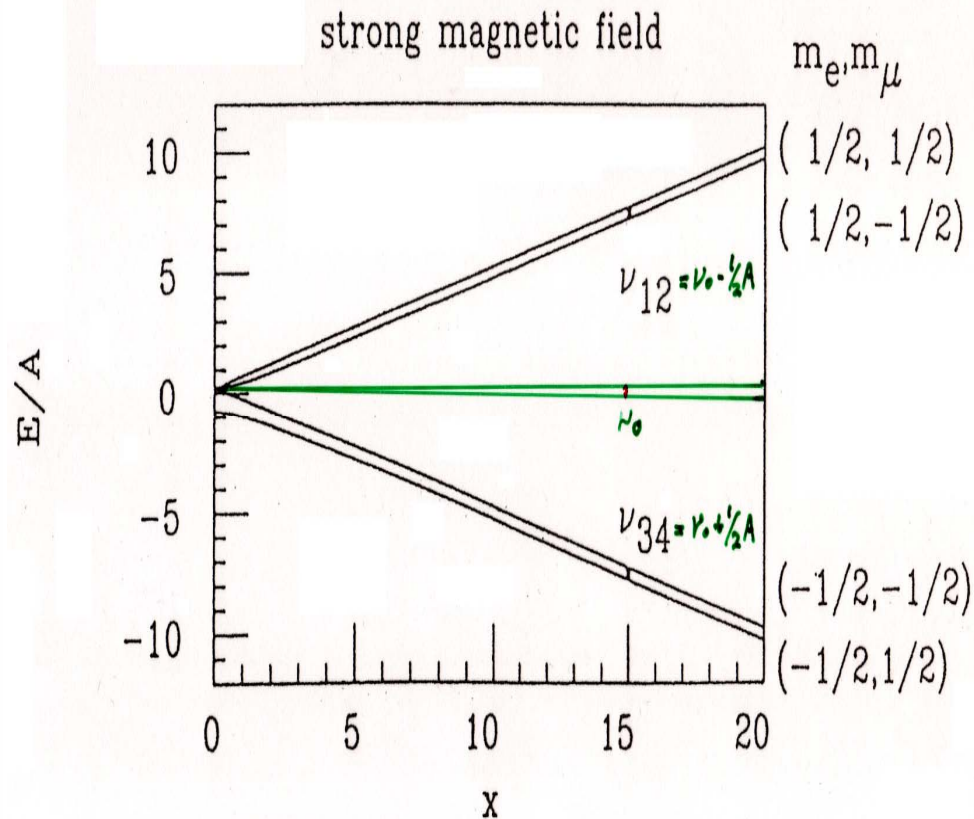
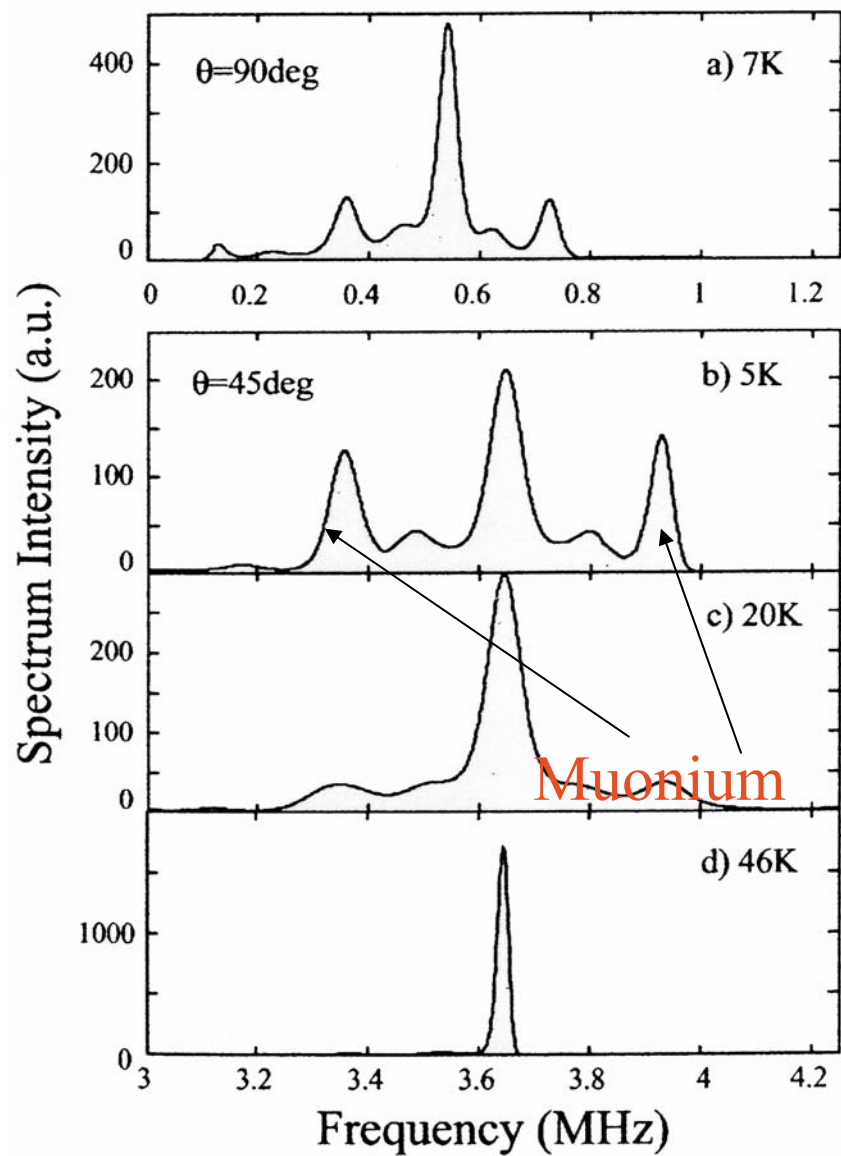
(真空中のミュオニウムでは約 4 GHz)

ZnOのn型電気伝導性の起源

- C.G.Van de Walleによる理論予想
Hydrogenが浅いドナーとなる。
Phys.Rev.Lett.85,1012(2000)
- μ SR測定による実験的証明
Weakly bounded muoniumの発見
S.F.Cox et. al Phys.Rev.Lett.86,1012(2001)
K.Shimomura et. al
Phys.Rev.Lett.89,25505(2002)

μ SR result on ZnO in KEK-MSL

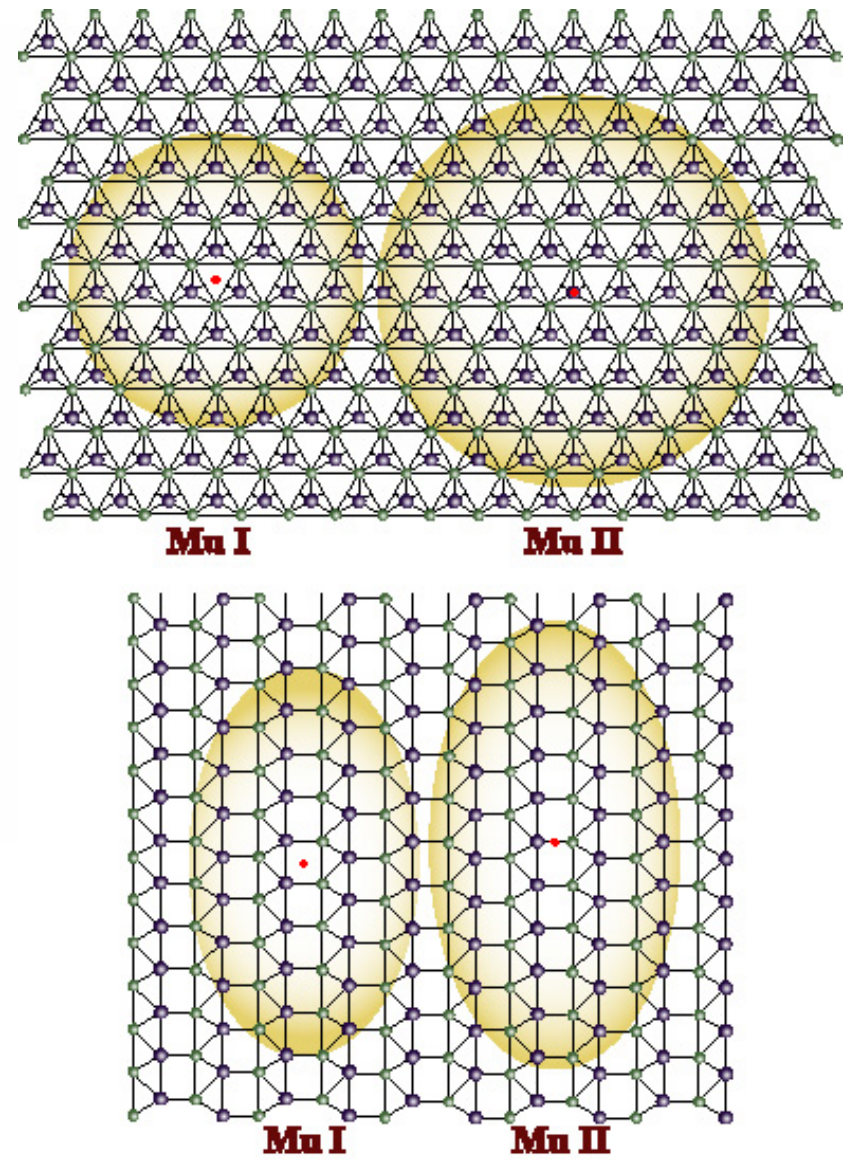
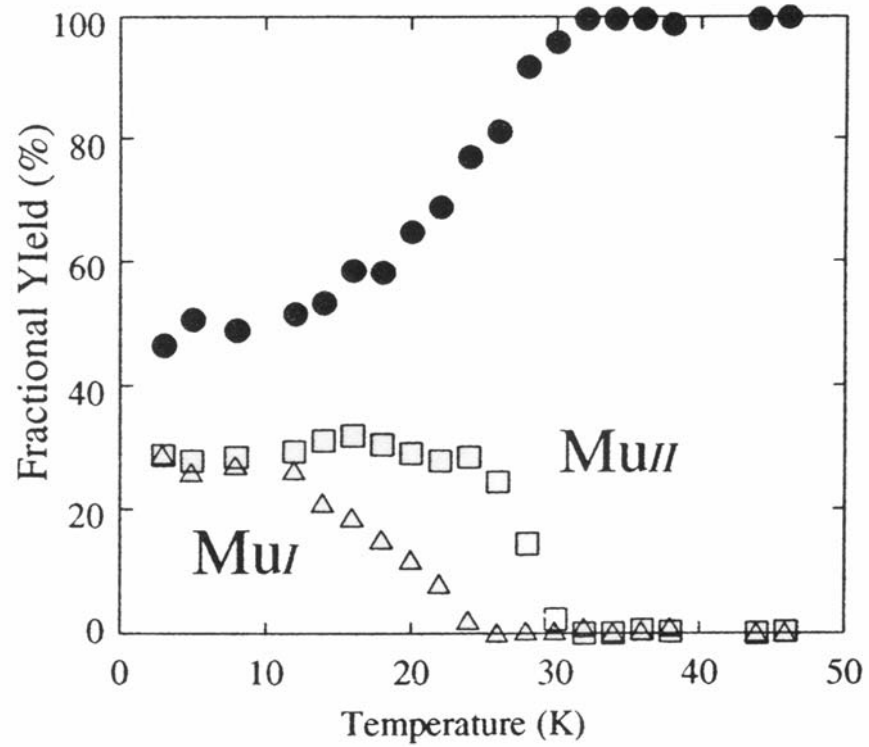




$$\nu_{12}(\theta) \simeq \nu_0 - \frac{1}{2}\Delta\nu(\theta),$$

$$\nu_{34}(\theta) \simeq \nu_0 + \frac{1}{2}\Delta\nu(\theta),$$

$$\Delta\nu(\theta) = A(\theta) = A_{\parallel}\cos^2\theta + A_{\perp}\sin^2\theta$$



μ SR result on ZnO in KEK-MSL

1. 2種類の大きく広がったミュオニムの存在を明らかにした。
2. どちらも [0001] 軸を対象軸に持つ。
3. ミュオニムの緒微細相互作用の大きさは真空中に比べて 10^{-4} 程度。これは浅いドナーの簡単な評価とよく合う。
4. イオン化エネルギーは、ホール効果で調べられた値とよく一致する。

これらの結果は水素がZnO中で浅いドナーとなり、n型電気伝導性の起源となることを示している。

GaNのn型電気伝導性の起源？

- 1.結晶構造 ウルツ型が安定
- 2.直接遷移型バンド構造
- 3.バンドギャップ $3.4\text{eV}\sim 365\text{nm}$
青色LEDの母体物質
- 4.欠陥の少ない単結晶を成長させることが難しい(多少の欠陥は光学的な性質に影響を与えない)
- 5.電気伝導性のコントロールの困難さ

GaNにも浅い準位の水素原子が発見されるのでは？

理論予想

Hydrogen (negative U)

J. Neugebauer, C.G. Van de Walle

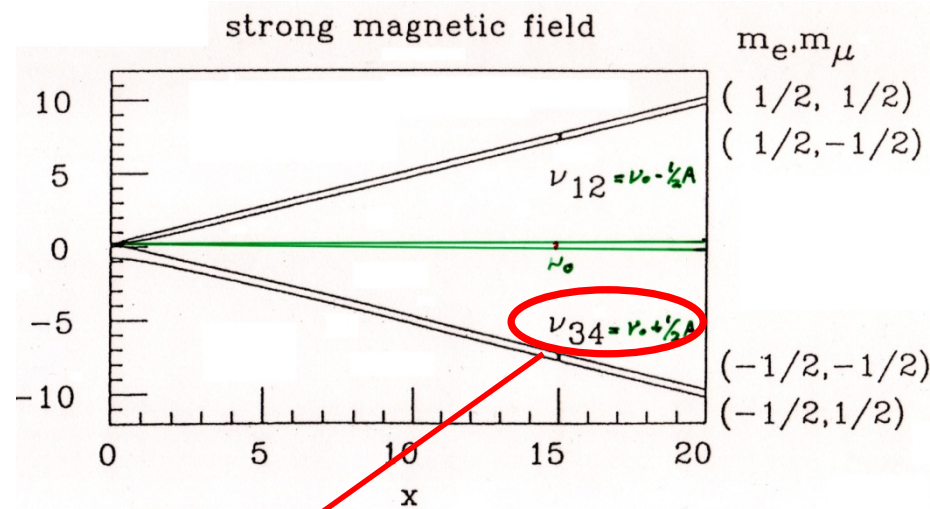
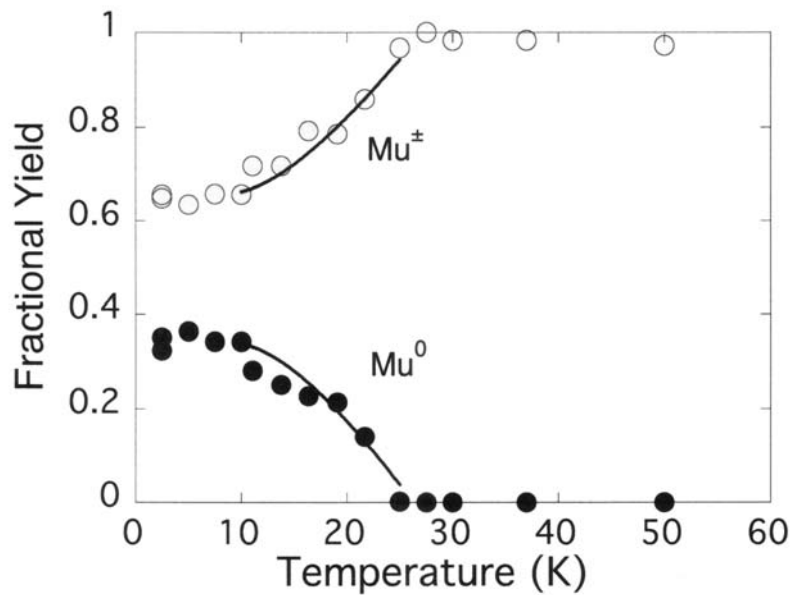
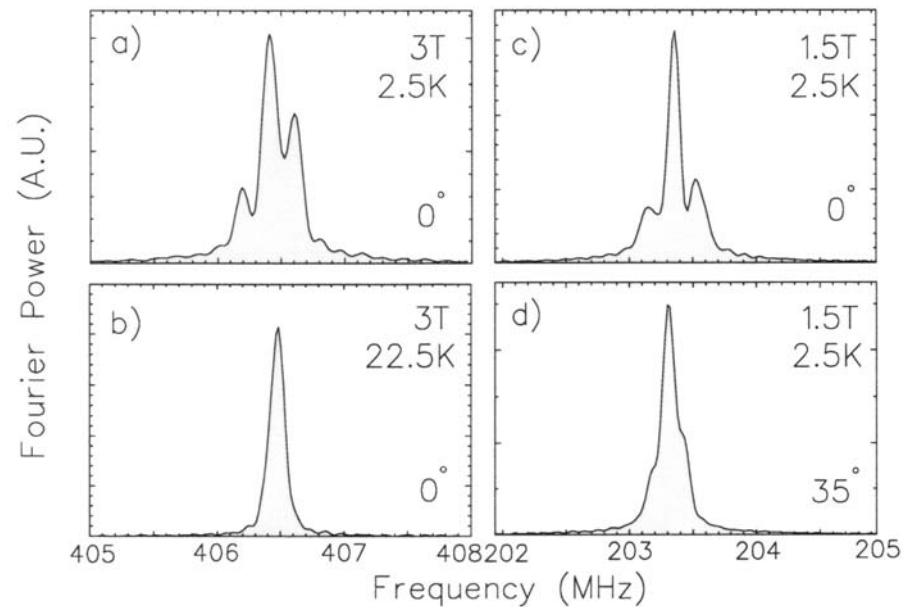
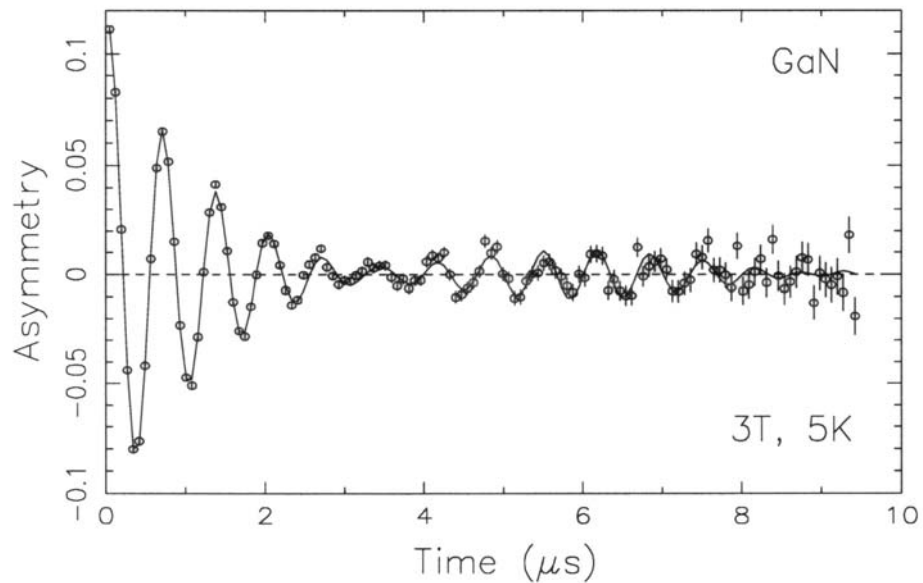
Phys. Rev. Lett, 75, 4452 (1995)

C.G. Van de Walle, J. Neugebauer

Nature 423, 626 (2003)

実験

K. Shimomura et al PRL 92, 135505 (2003)

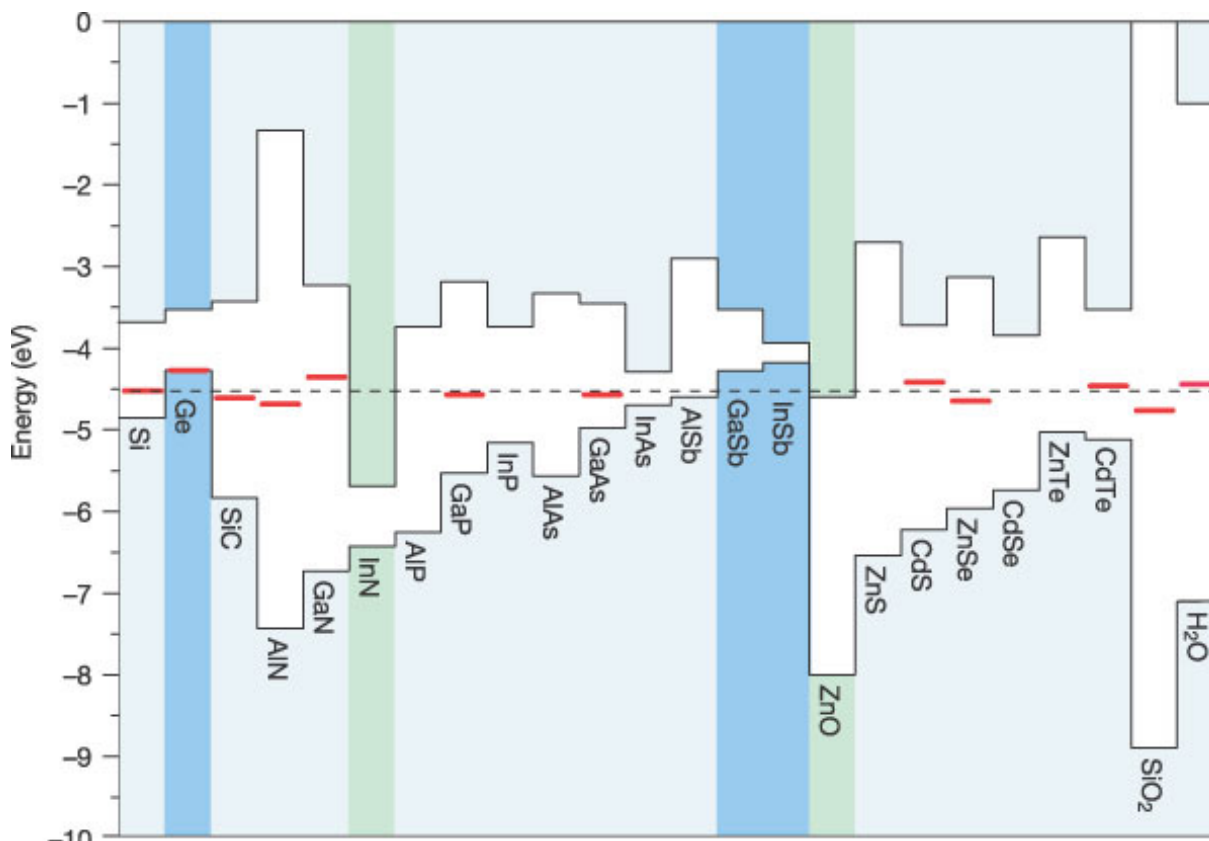


Correspond to Upper Satellite
~A// is positive

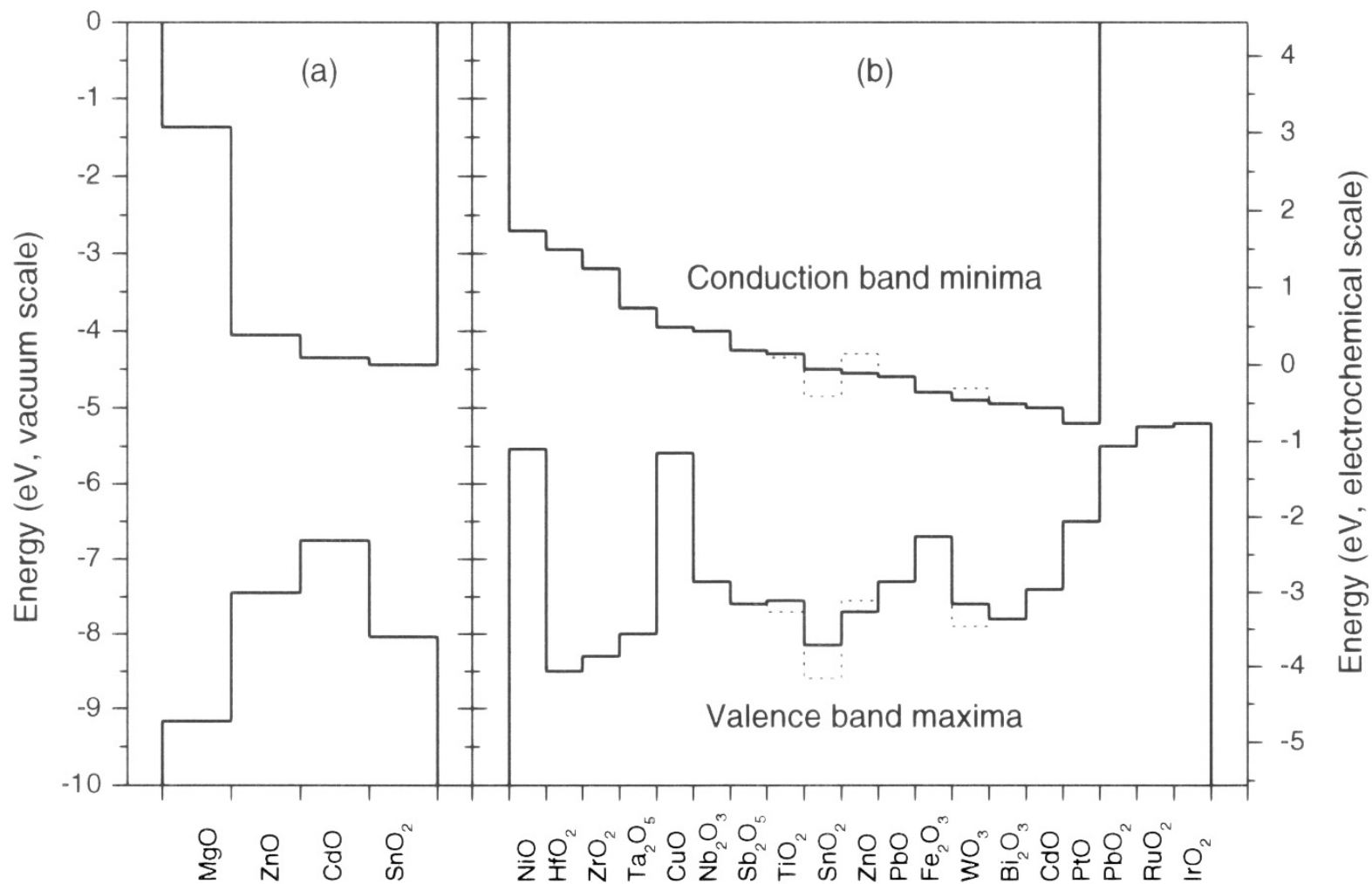
得られた結果

- サテライトの高さの磁場依存性はミュオニウム電子の高磁場下での偏極の影響
- Muoniumは[0001]軸に対称な電子構造を持ちそのHyperfine parameterは
 $A_{//} = +337(10) \text{ kHz}$, $A_{\perp} = -243(30) \text{ kHz}$
- イオン化エネルギーは14meV以下

半導体／絶縁体中での水素準位の理論予想



酸化物での水素準位の予想

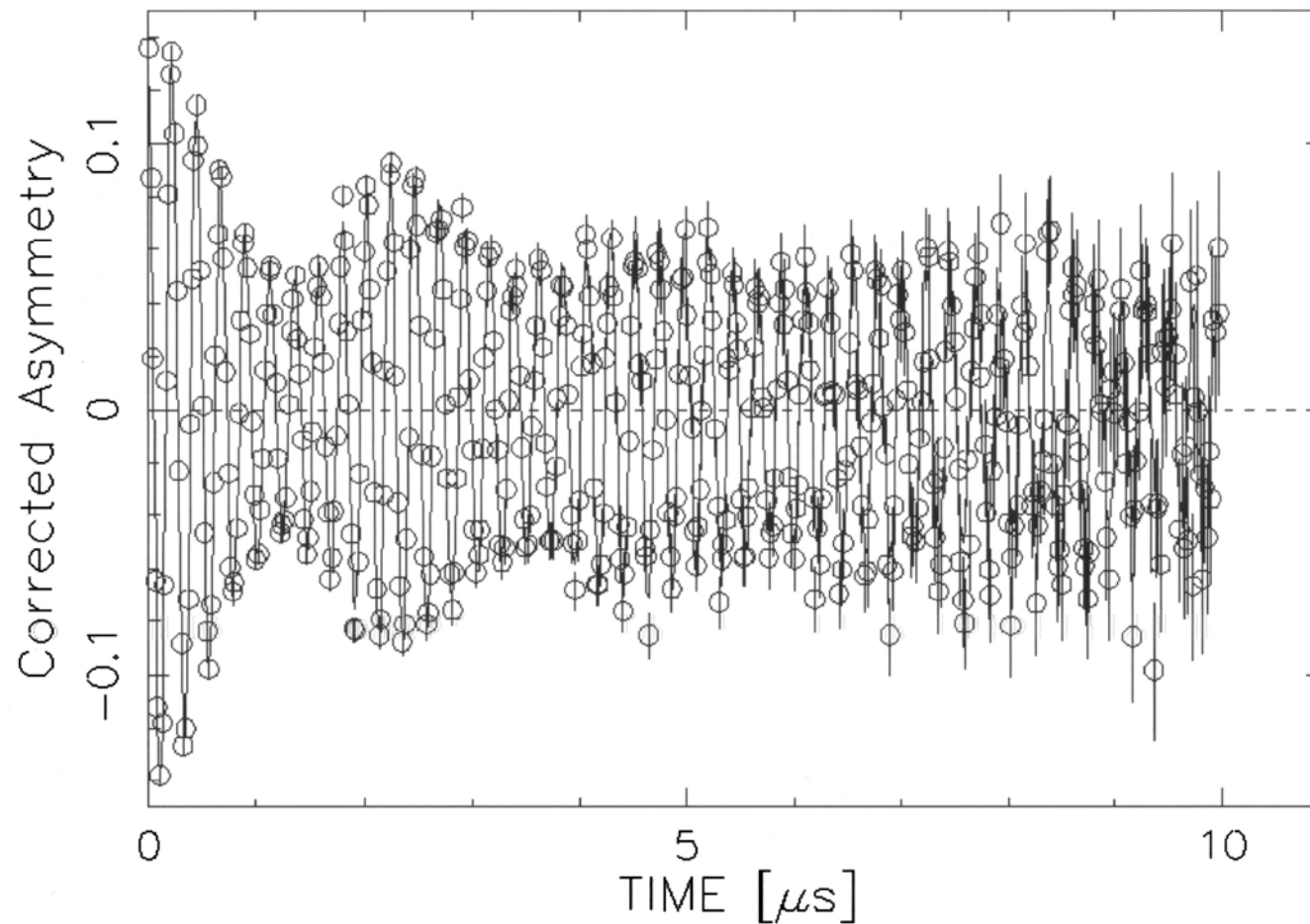


TiO₂のn型電気伝導性の起源？

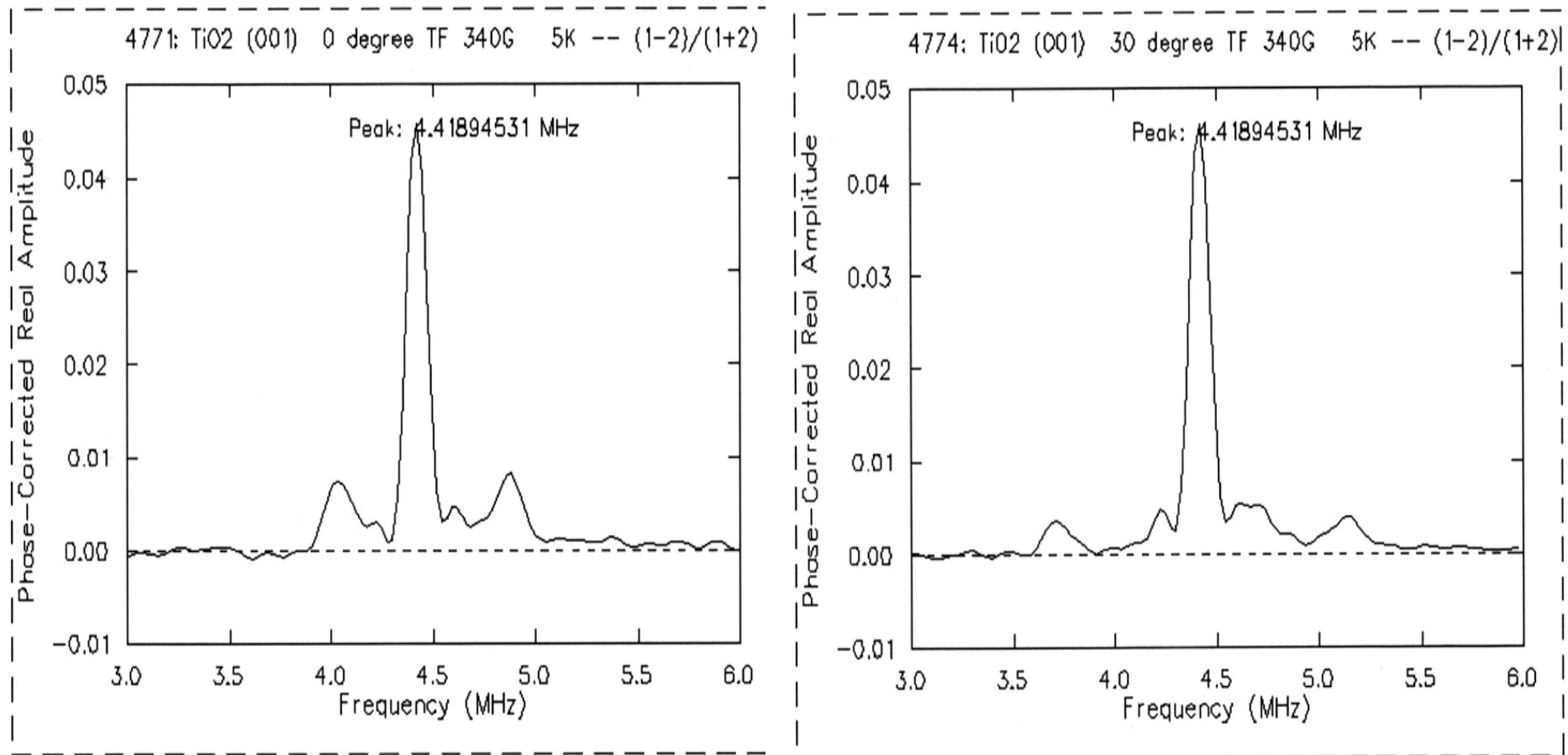
- 光触媒として広く応用研究がなされている。
- 結晶構造はルチル型が最も安定。
- 強いn型電気伝導性を有する。
- バンドギャップ 3.3eV(紫外光を吸収)
- 最近窒素を添加することで可視光の吸収するタイプが研究されてきている。

二酸化チタンの結果

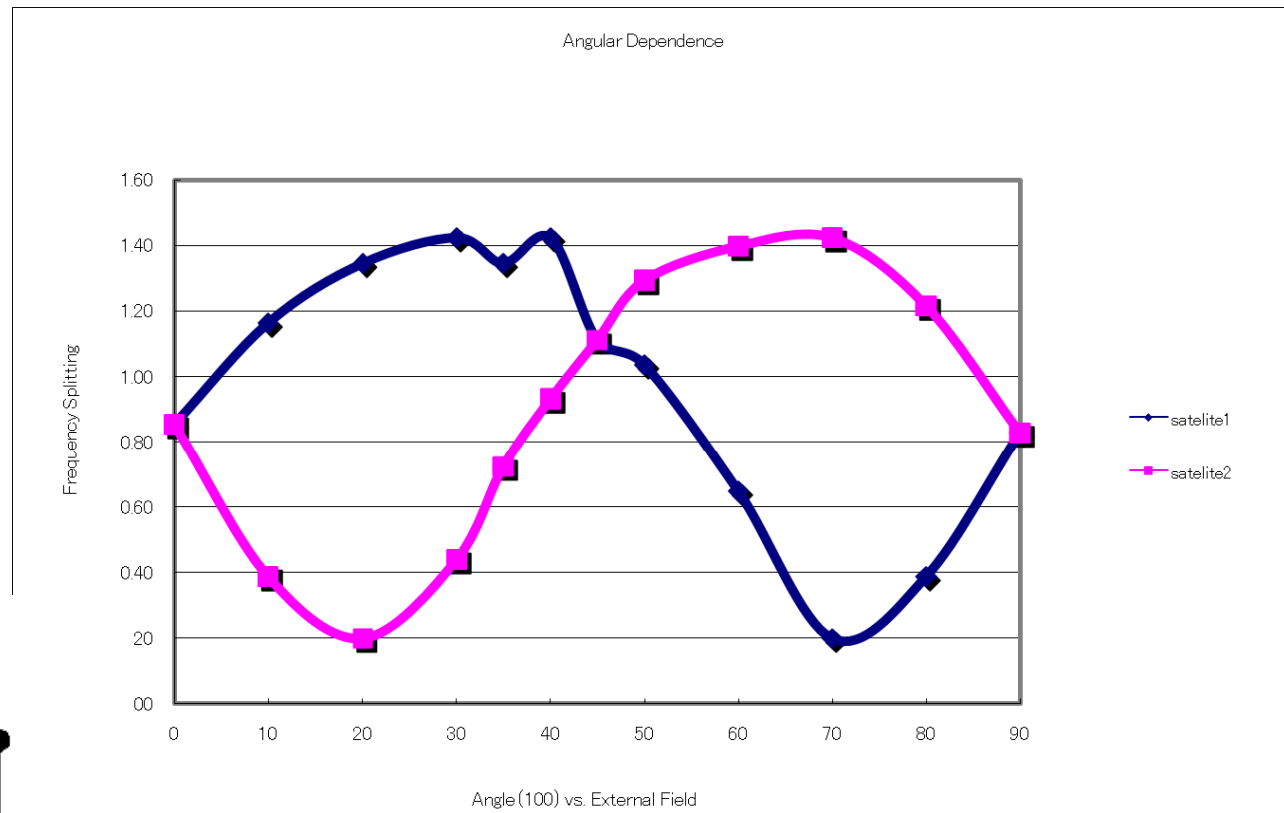
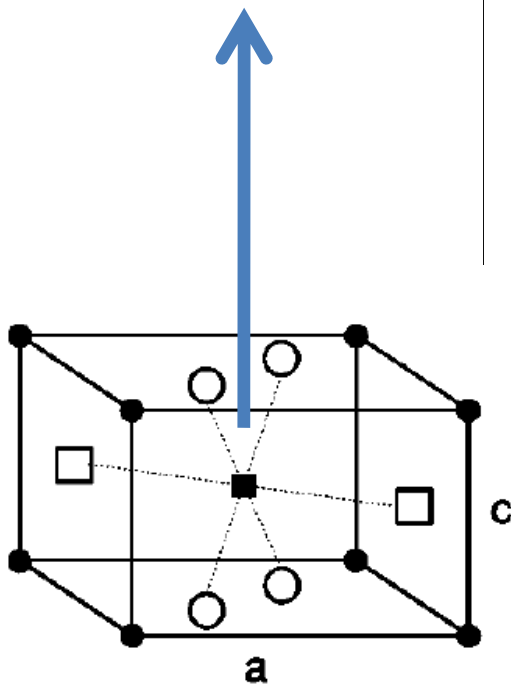
4771: TiO₂ (001) 0 degree TF 340G 5K [2 vs 1]



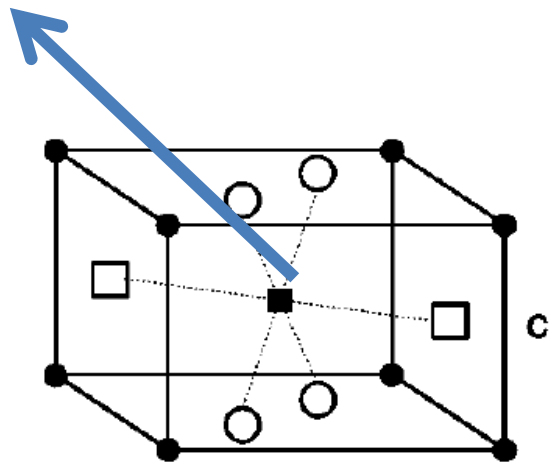
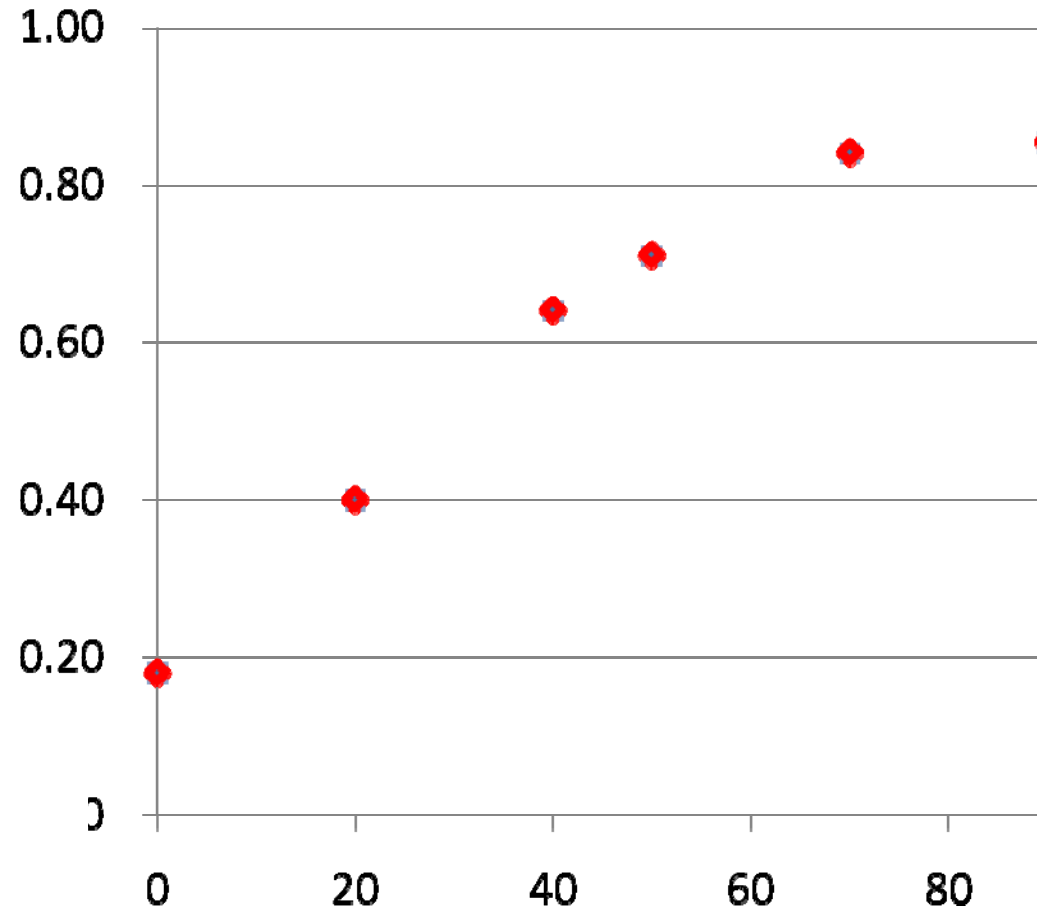
二酸化チタンの結果



c axis $\perp B$ a axis rotate



a axis \perp *B c* axis rotate to *B*

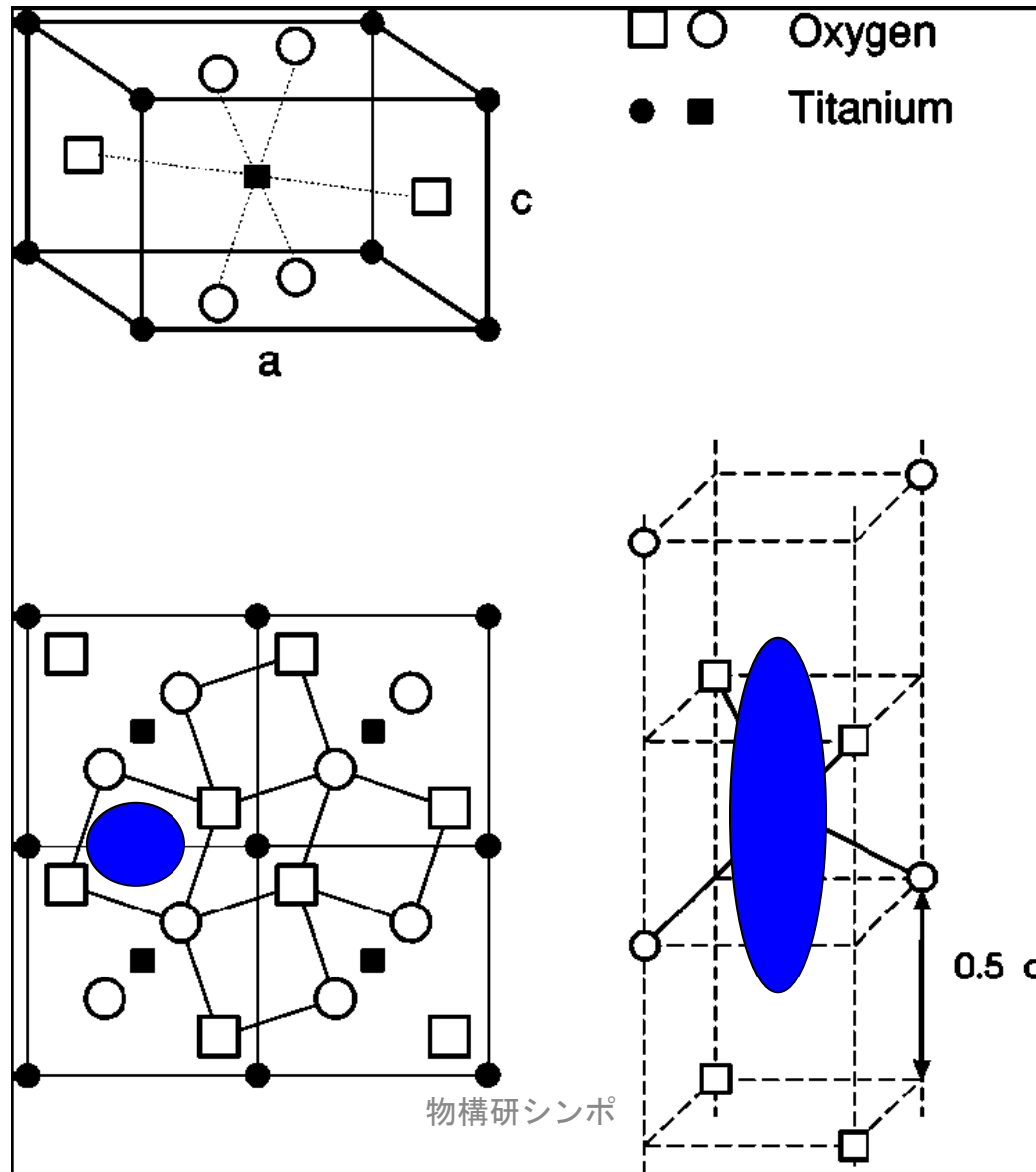


2010/1/20 **a**

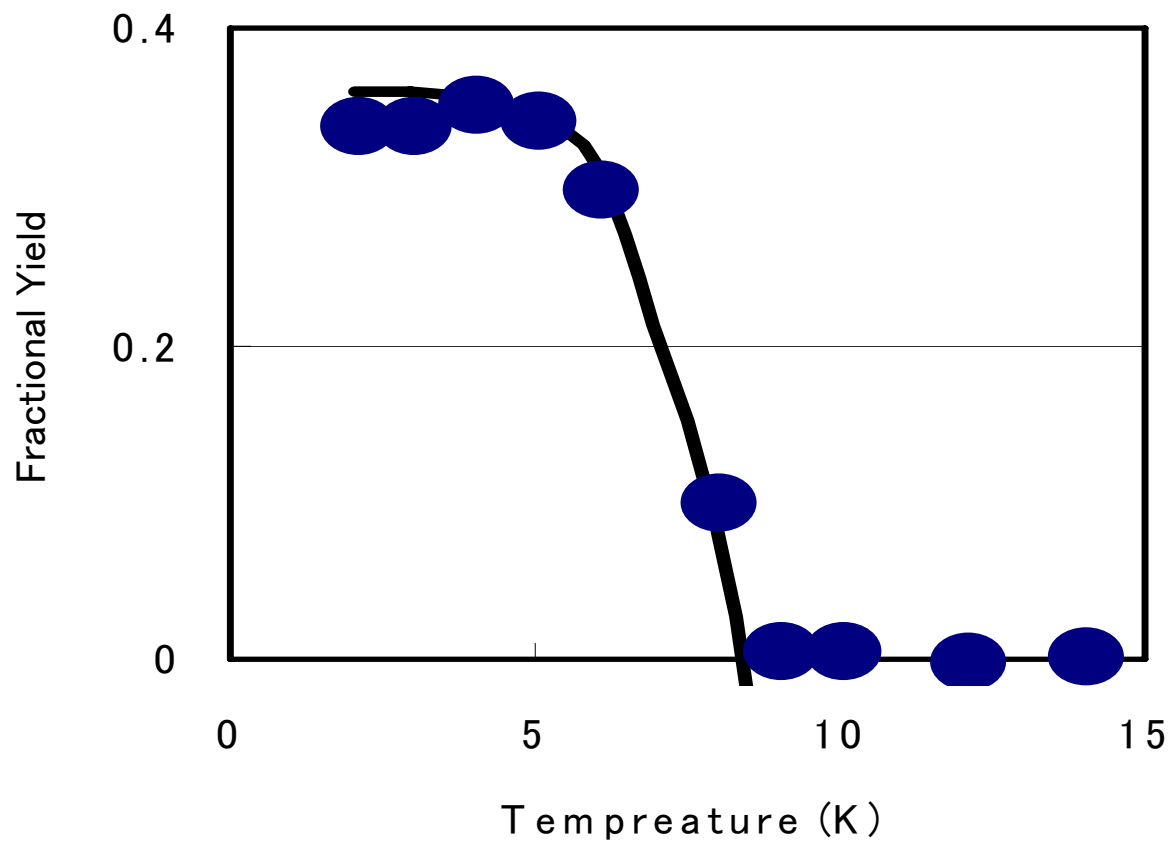
物構研シンポ

27

Rutile TiO_2



Temperature dependence of muonium fraction



TiO₂の結果

- A ~ 0.2から1.2MHz
- 4回対称性
- イオン化エネルギー ~ 5meV

- Shallow Muonium !

Outline

1. μ SRとは
2. 半導体中の水素
3. レーザー照射 μ SR法のスピントロニクスへの応用
4. J-PARCへの期待
 - 負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究
 - 超低速ミュオンを用いた研究(三宅、池戸ポスター)

ミュオニウムのスピトロニクスへの応用(鳥養、永嶺)

- ナノ技術とスピントロニクスを発展させるために、代表的な半導体である、Si, Ge, グラファイト・有機半導体などのなかでの伝導電子スピン偏極(CEP)を測定する実験技術を確立することが、きわめて重要。
- これらの物質では、伝導電子の持つスピン軌道相互作用が弱く、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効果などの光学的方法を用いる事が出来ない。

ミュオニウムを用いて偏極電子を捉えることは可能か？

triplet Mu: spin s conduction electron: spin σ

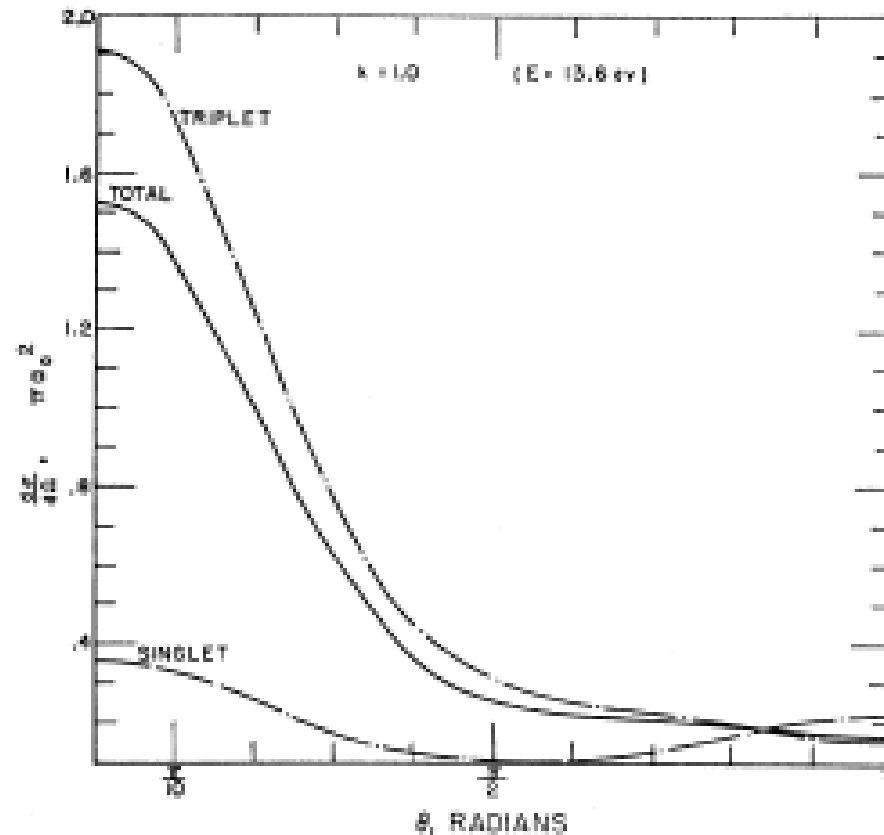
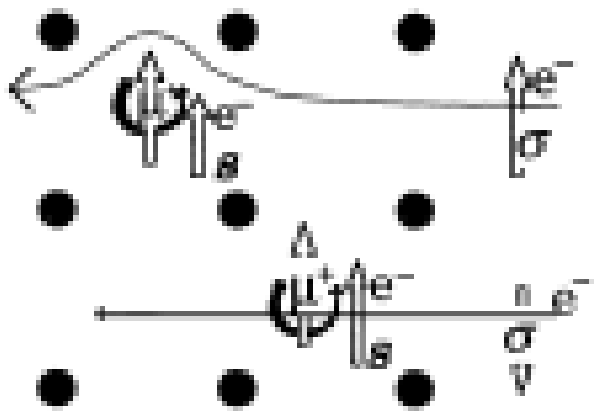


FIG. 4. Pol. orbital differential cross sections for $k=1.00$ ($E=13.6$ eV).

GaAsでの実験

Optical Properties of GaAs

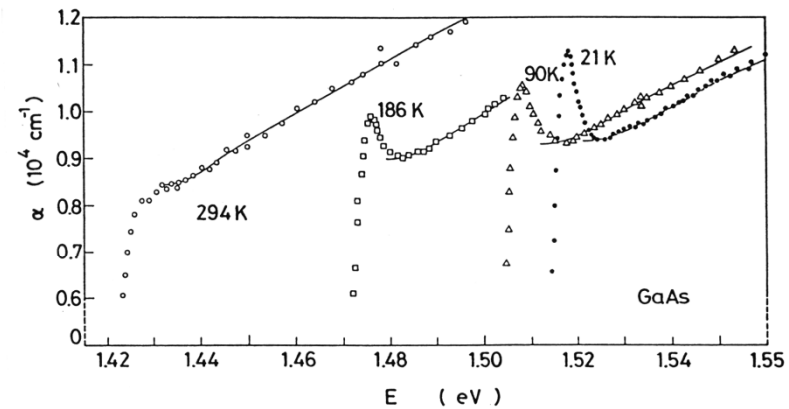
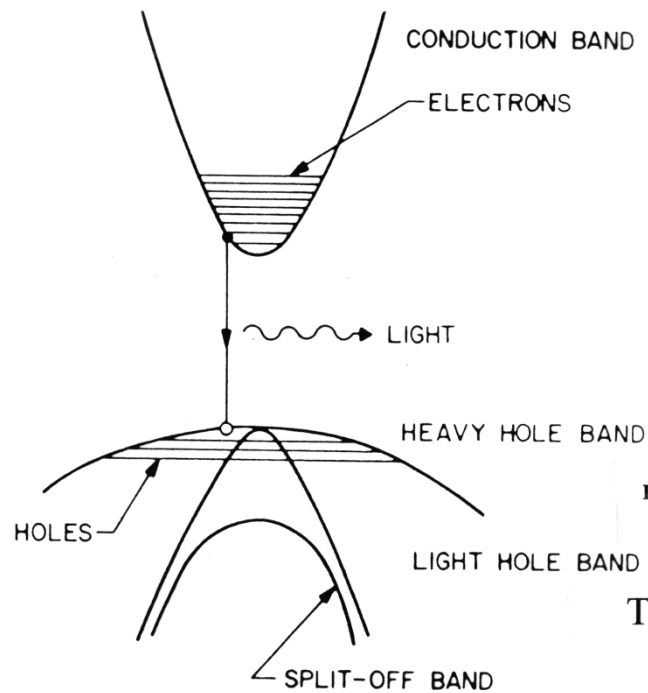
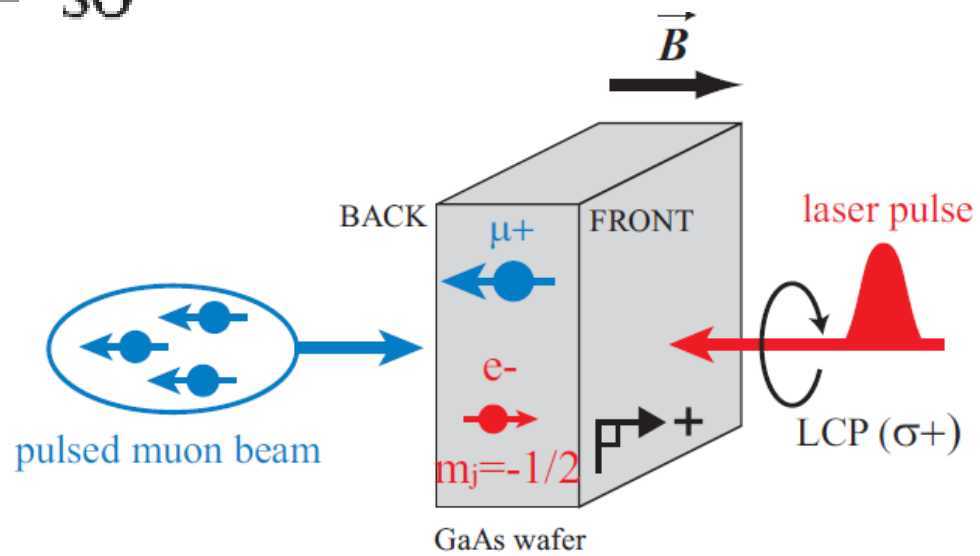
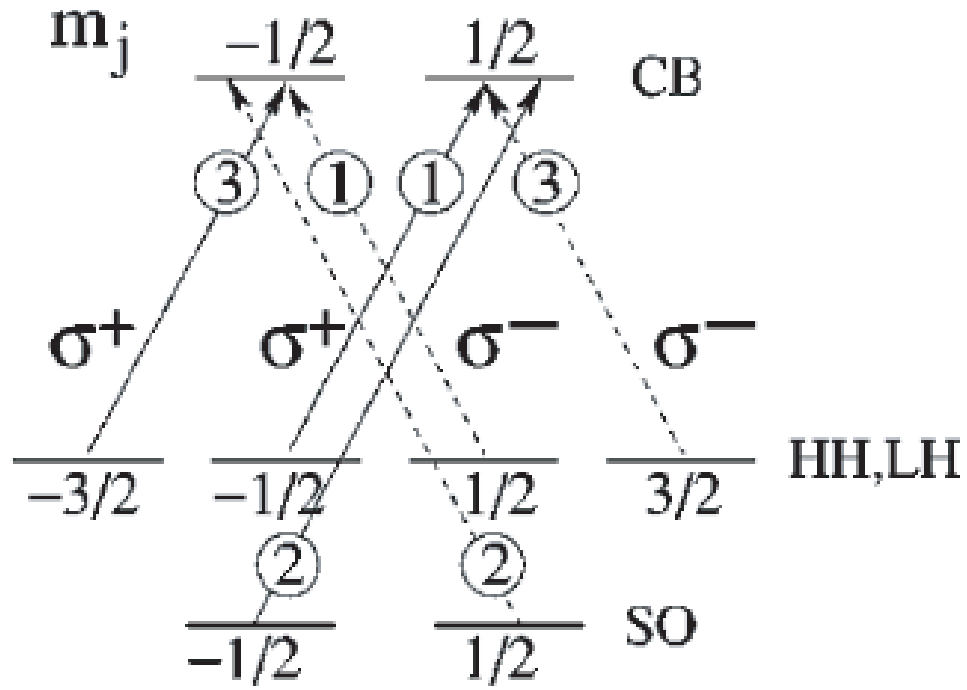


Figure 11.72 Exciton absorption in GaAs at four different temperatures. (From Sturge.⁵⁵)

Typical absorption length is about $1 \mu\text{m}$



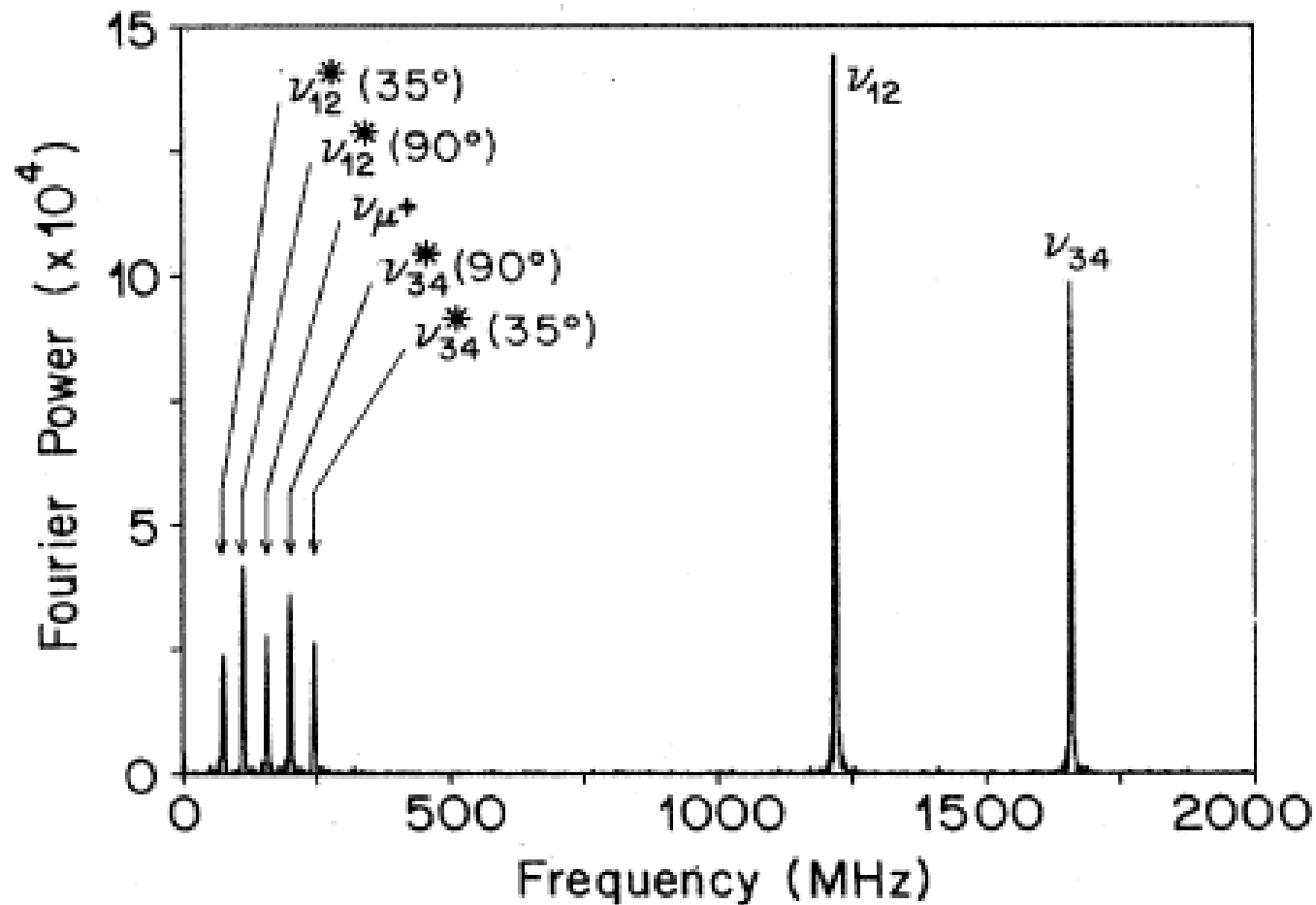
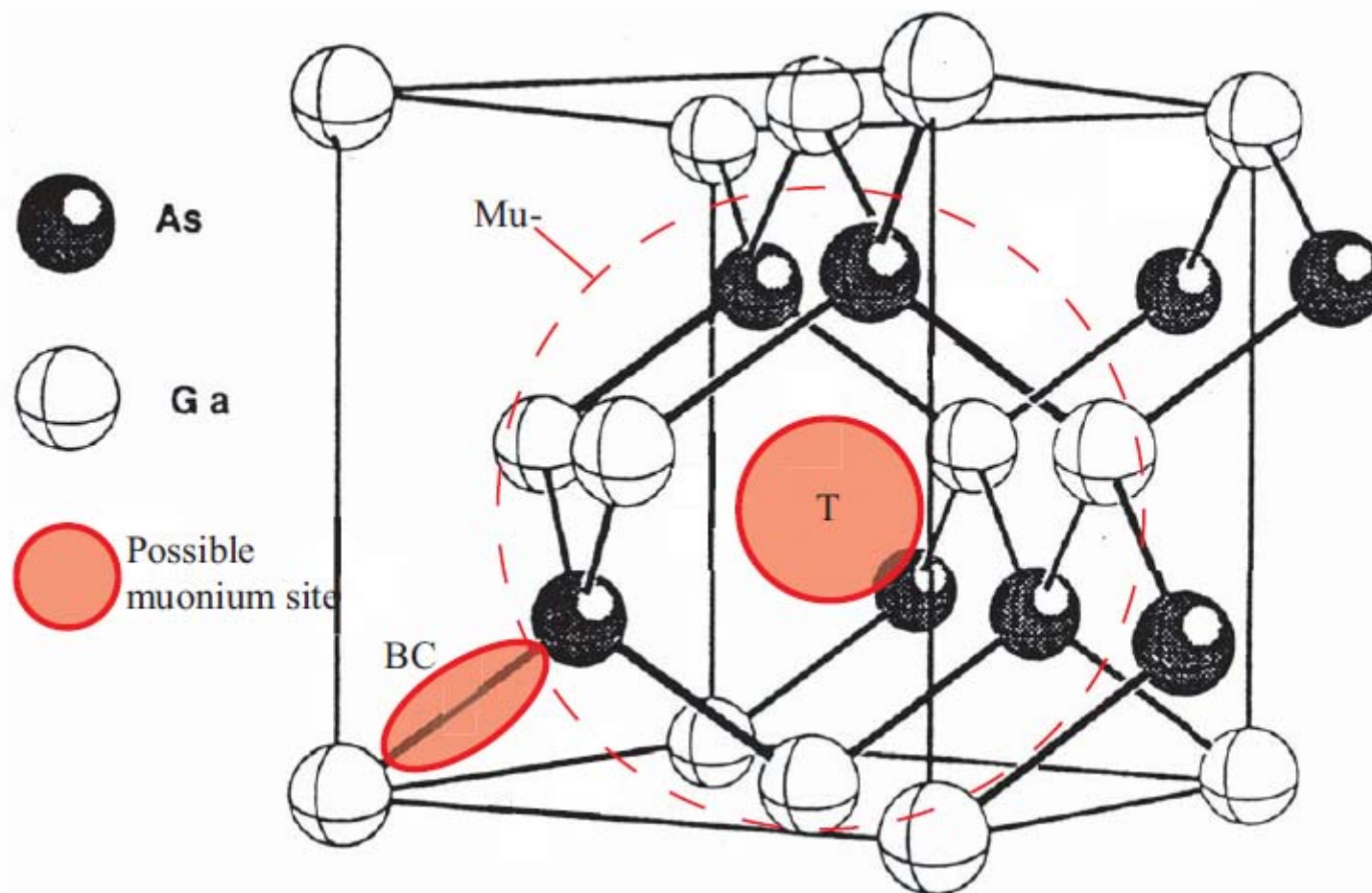


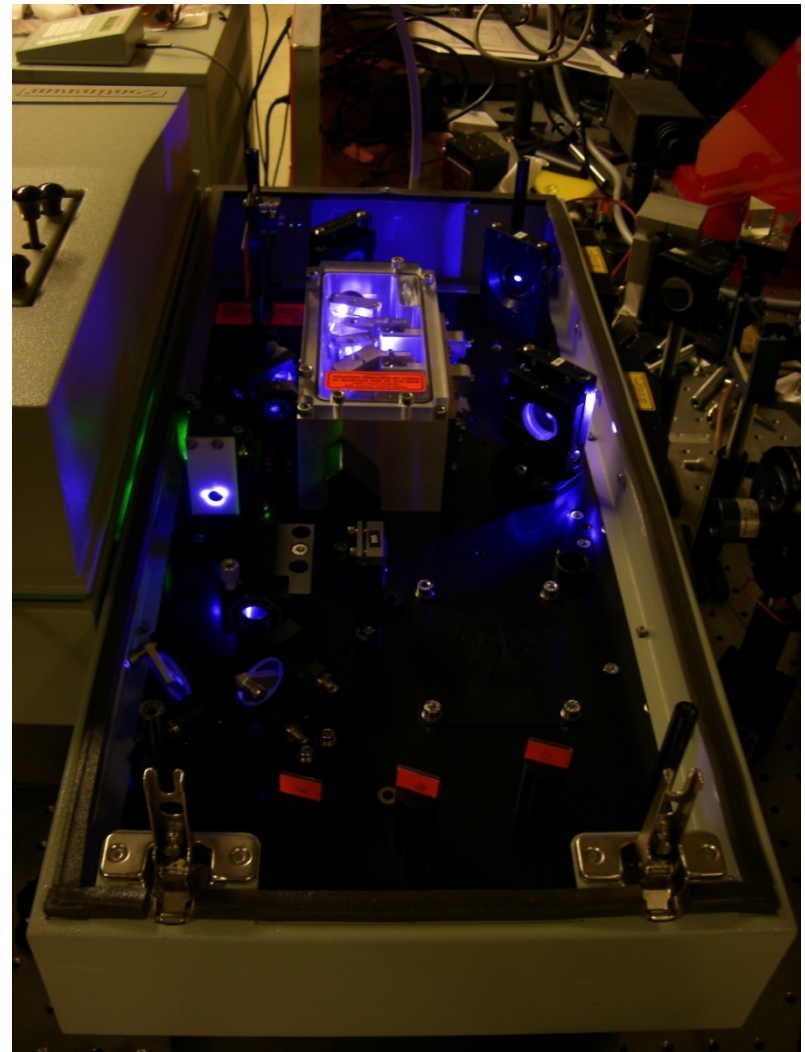
FIG. 29. A μ SR frequency spectra taken with the high-field, high-time-resolution apparatus in high-resistivity GaAs at 10 K with a 1.15-T field applied along the [110] axis. Note the two Mu lines ν_{12} and ν_{34} , the Mu* lines $\nu_{ij}^*(\theta)$ (θ is the angle between the [111] Mu* symmetry axis and the applied field), and the diamagnetic muon line ν_{μ^+} . From Kiefl *et al.* (1985).

GaAs中のミュオニウム

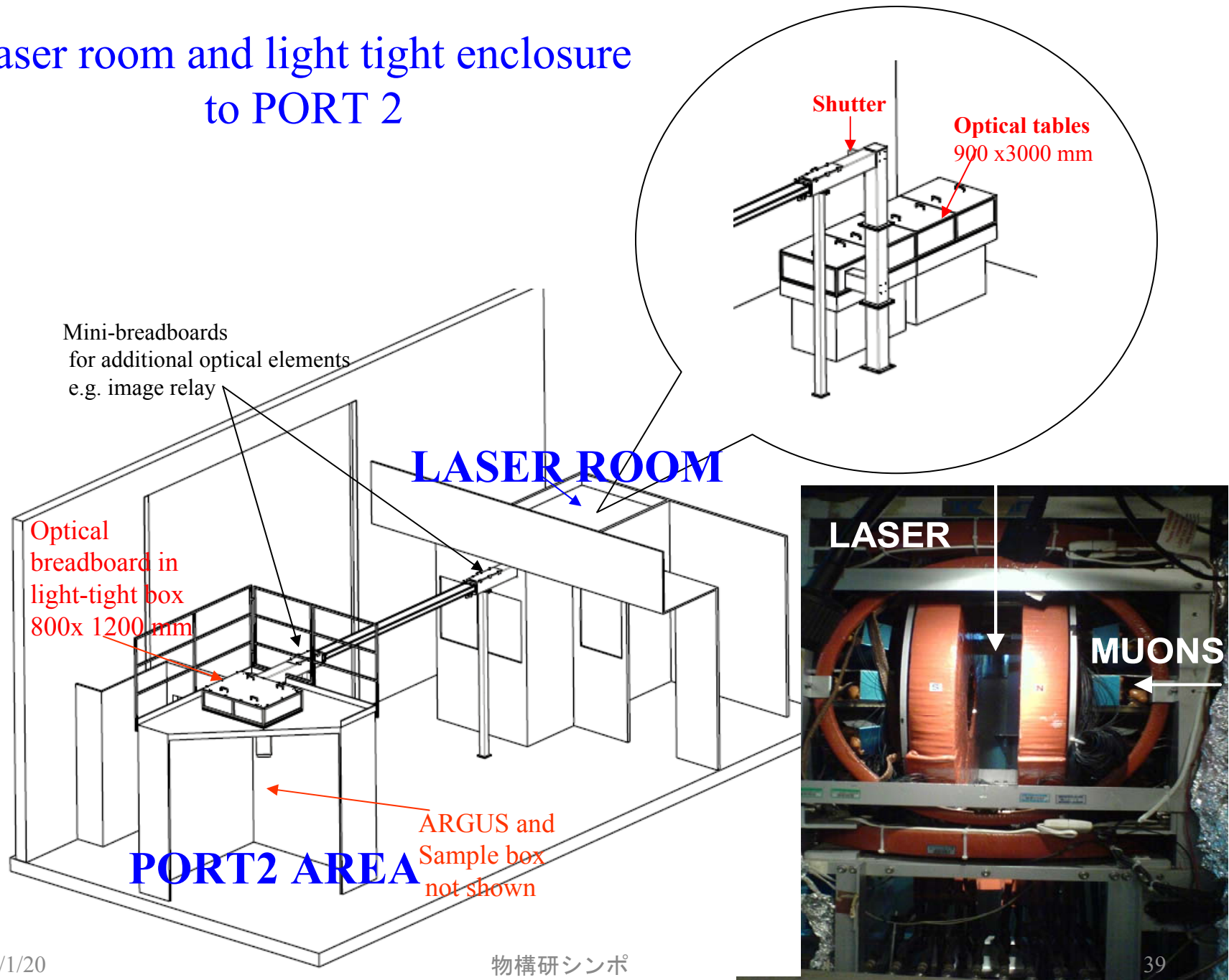


RIKEN-RALでの新しい実験

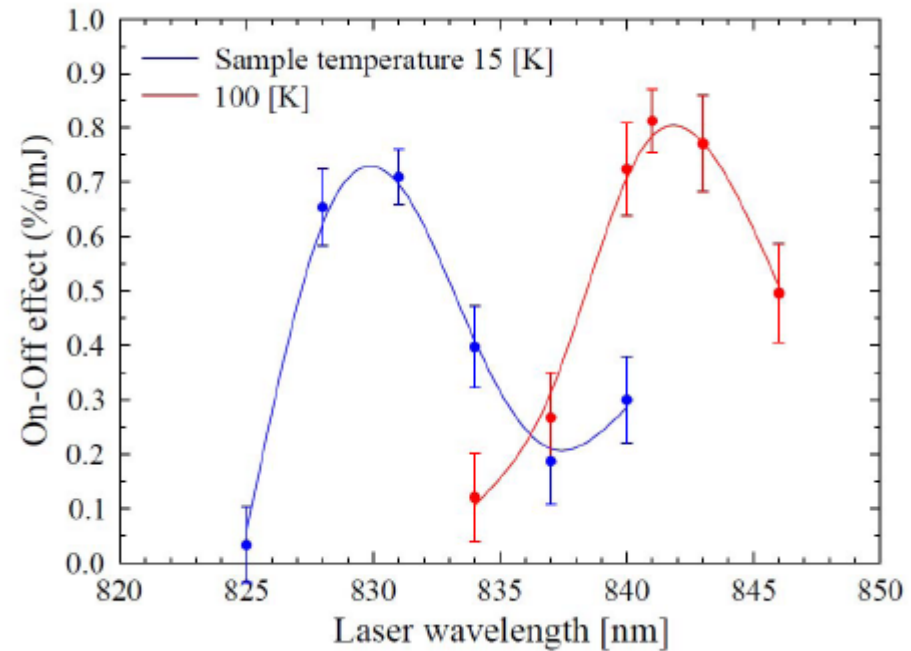
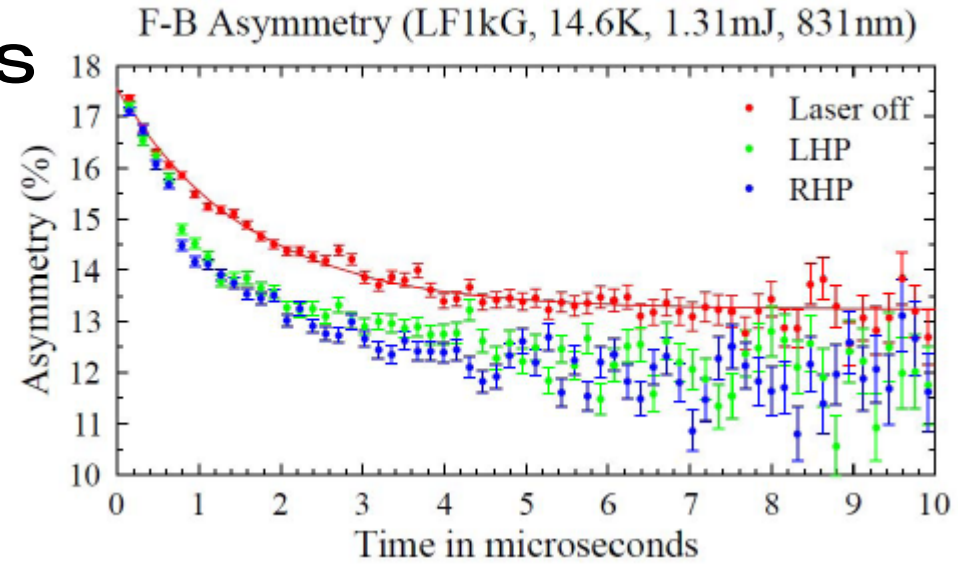
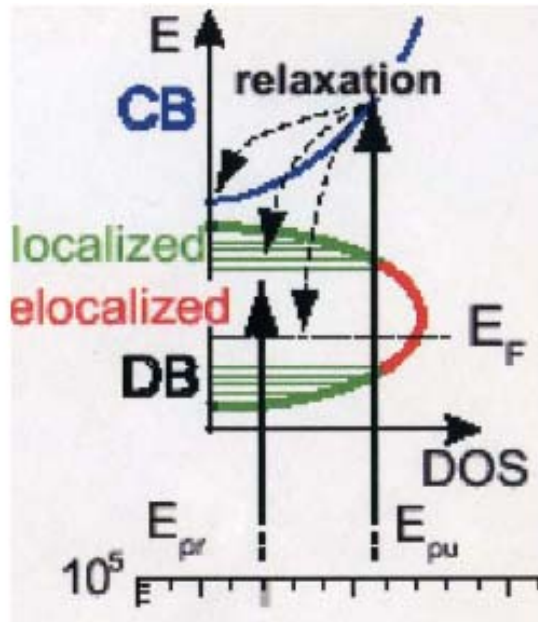
- Nd:YAGレーザー+OPOレーザーの導入
(山梨大学+高エネ研)
- ポツケルセルを用いたパルス毎のスイッチング可能な円偏光生成システム(UCR)
- その他の実験機器
(RIKEN-RAL)



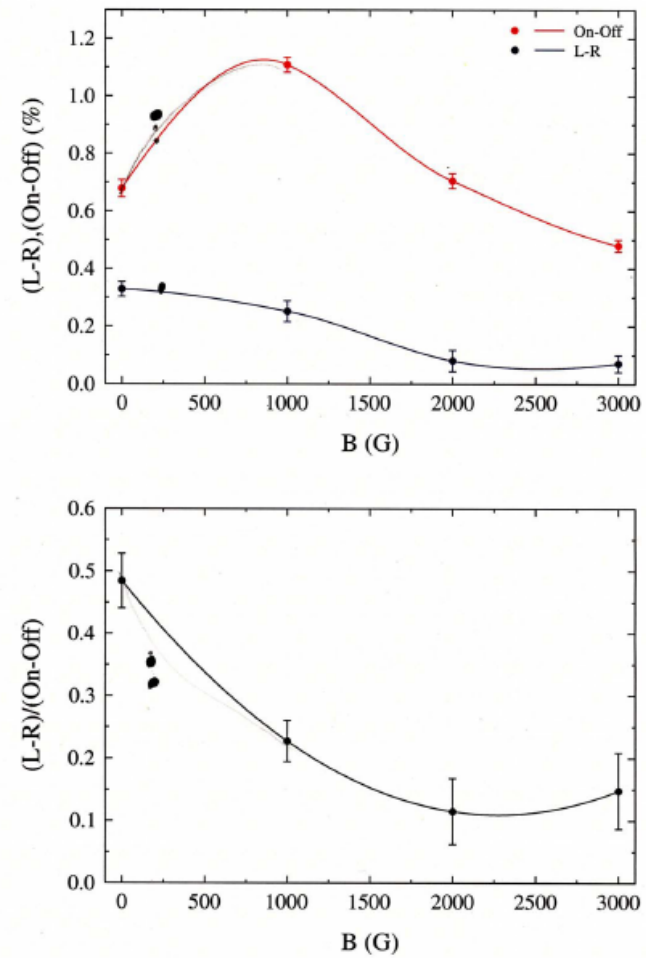
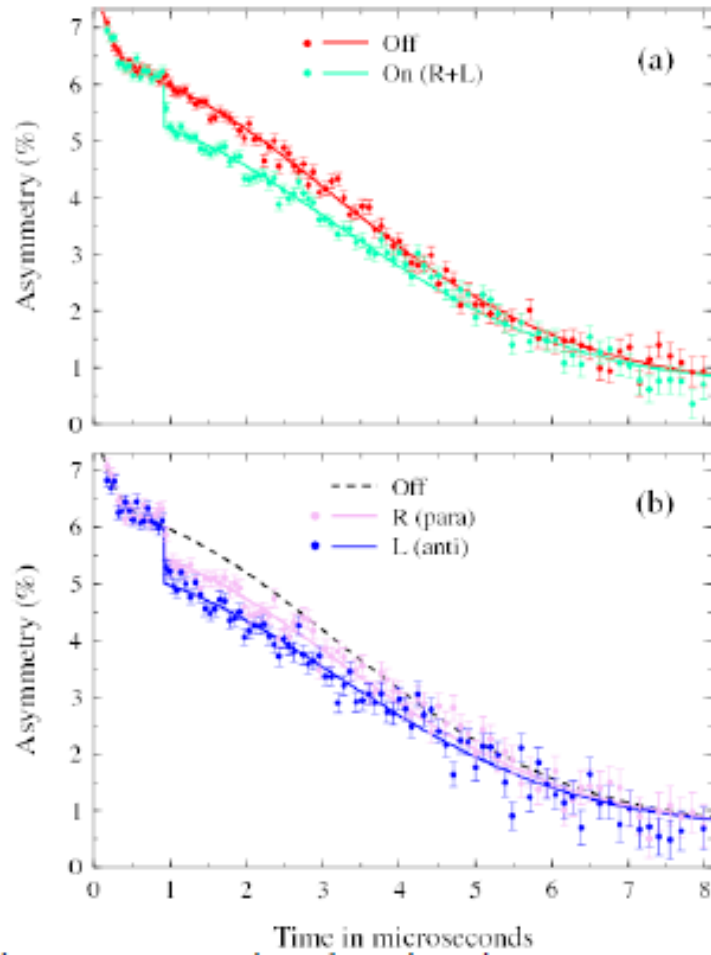
Laser room and light tight enclosure to PORT 2



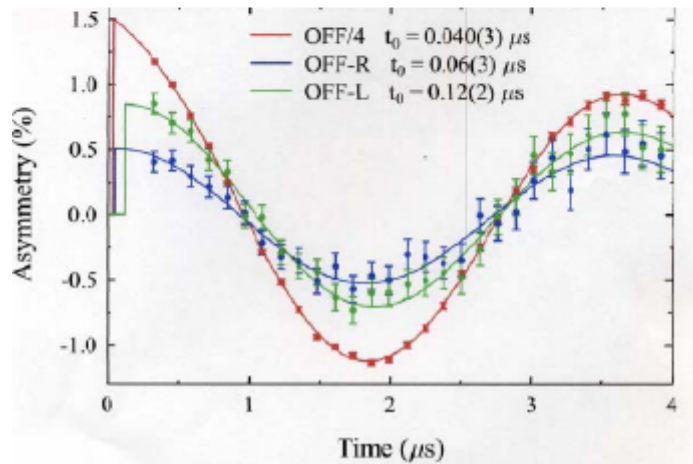
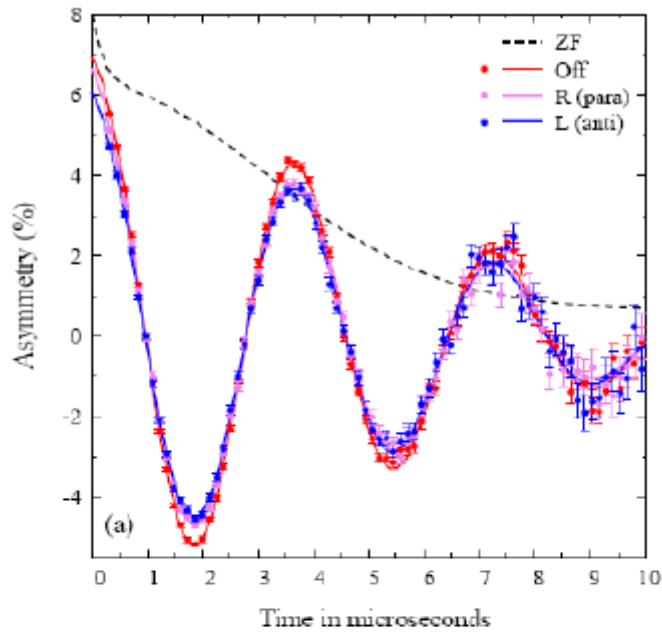
Si doped n type GaAs



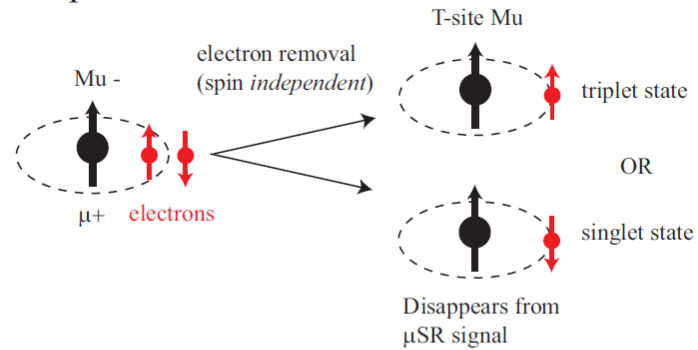
ZFデータ、縦磁場依存性



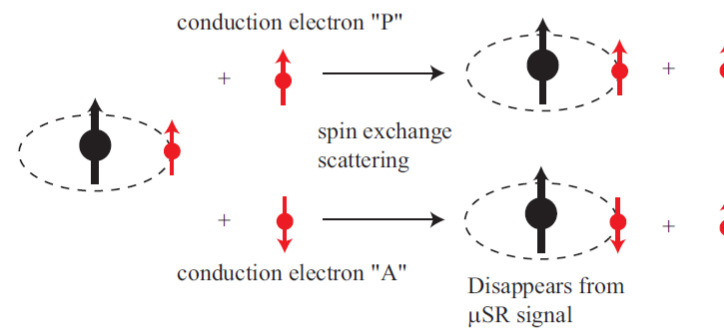
TF20Gでのデータ



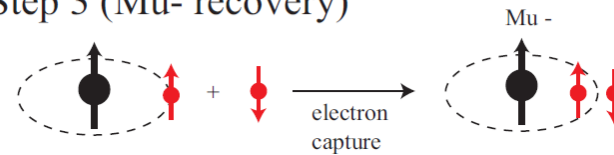
Step 1



Step 2 (P-A effect)



Step 3 (Mu- recovery)



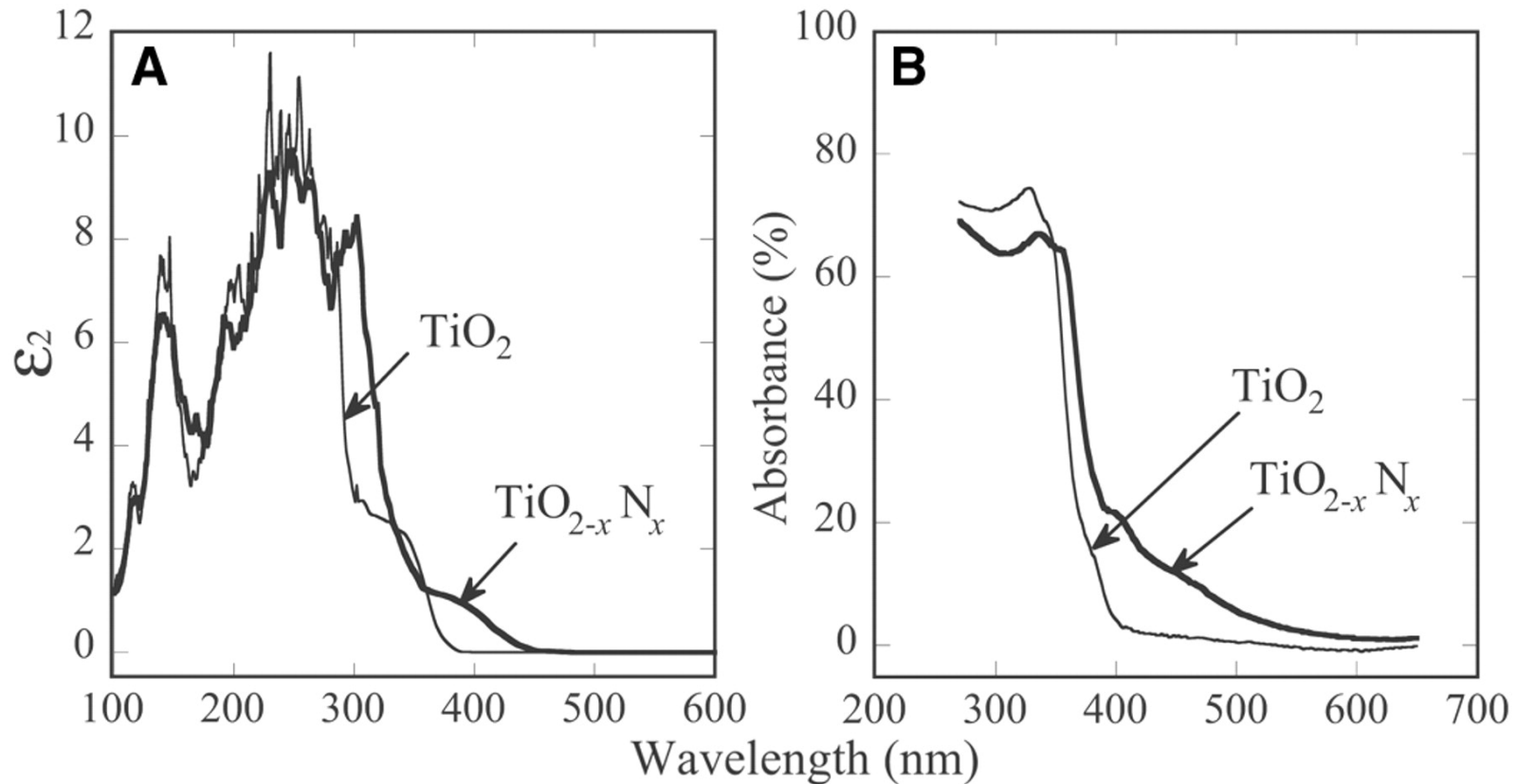
Outline

1. μ SRとは
2. 半導体中の水素
3. レーザー照射 μ SR法のスピントロニクスへの応用
4. J-PARCへの期待
 - 負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究
 - 超低速ミュオンを用いた研究(三宅、池戸ポスター)

μ -SR法の酸化物半導体への応用

- 次世代オプトエレクトロニクス、光触媒の母材料として広く注目を集めている、酸化亜鉛 (ZnO)、二酸化チタン (TiO_2) などの酸化物半導体中の窒素原子不純物の原子レベルでの電子構造（エネルギー準位構造、結晶間位置、不純物核および電子間の超微細相互作用等）の解明

窒素ドーピングTiO₂(豊田中研)



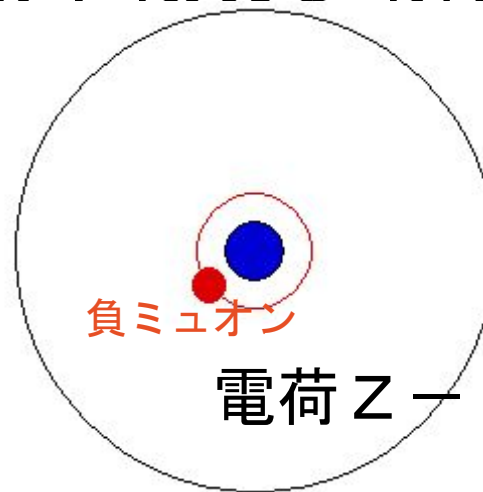
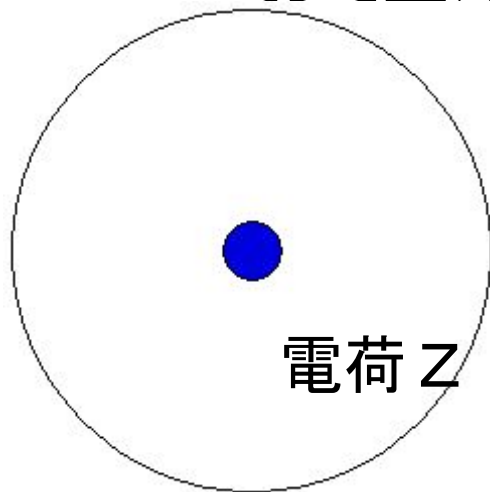
R.Asahi *et.al*

Science 13 July 2001:

Vol. 293. no. 55.28, pp. 269 - 271

酸化物半導体中の空素不純物の 微視的理解

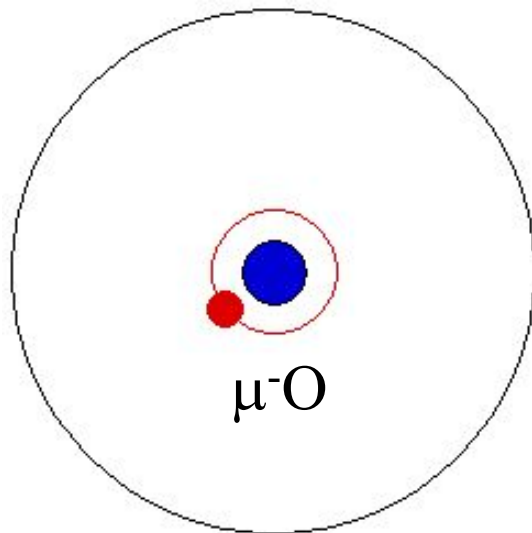
- 負ミュオンを μ SR法が有効
- 負ミュオンは原子核の近傍を回る



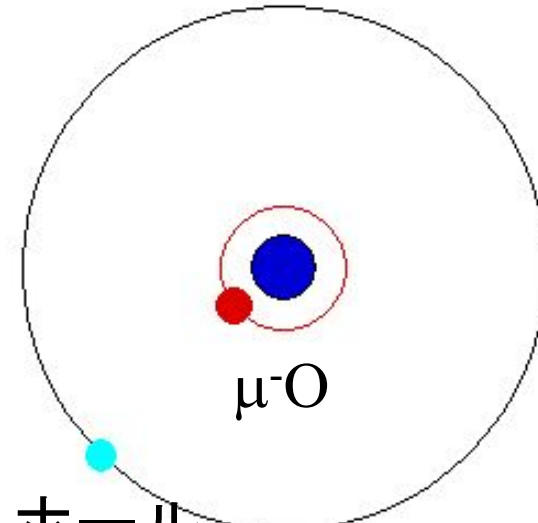
μ^- O原子はN原子
と等価！格子位置
に
選択的に空素原子
を導入できる

他の原子核に捕らわれた場合とは寿命が異なるため
容易に識別できる

アクセプタとしての 窒素不純物の振舞い



室温

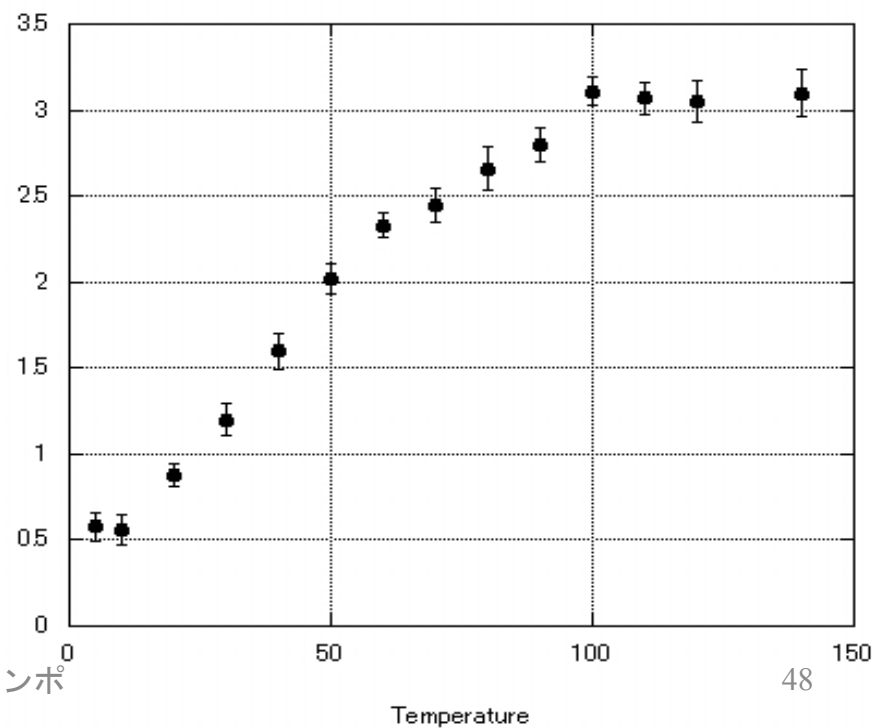
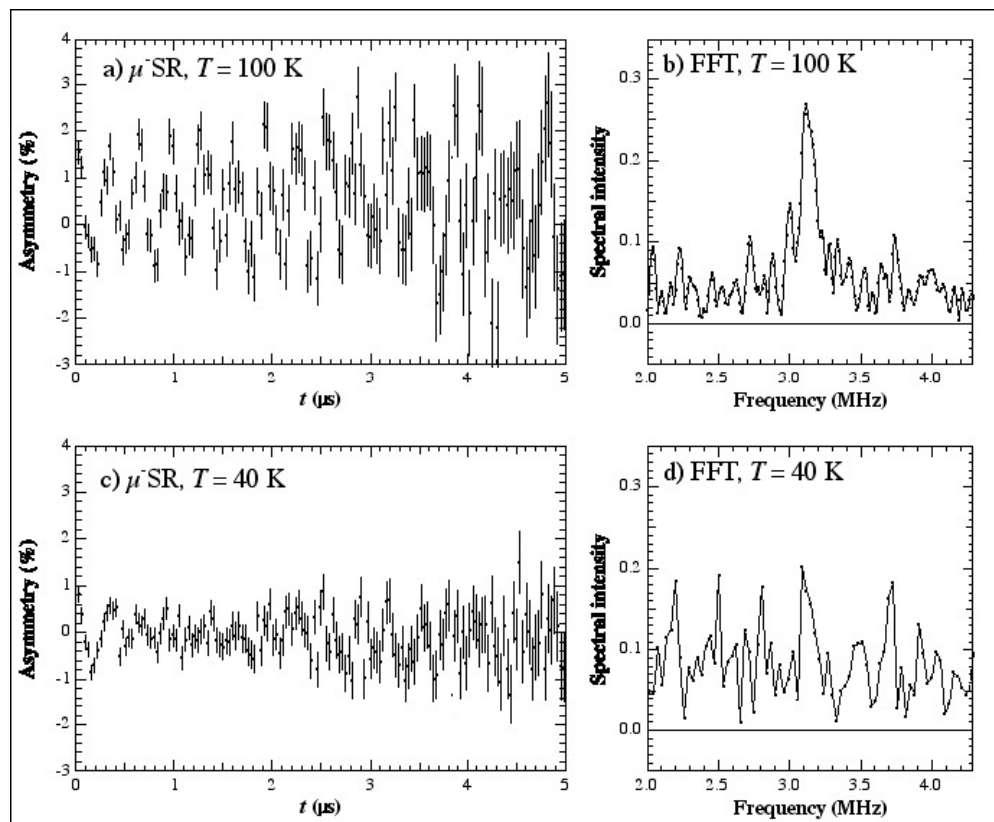


ホール

低温

ホールとの超微細相互作用
による信号の変化

TiO₂中のμ⁻Oからの信号



Summary

- ・半導体中の水素の振る舞いを調べるのに μ SR法が有効である。どのような半導体で水素が浅いドナーになるかの系統的な理解が必要。

ENDOR,ラマン分光など他の手法による研究、理論研究の進展へ期待。

- ・ミュオニムを用いて、GaAs中の伝導電子スピン偏極を観測できることを確かめた。今後、Si,Ge,グラファイトなどへの展開を考えている。

- ・負ミュオンを用いた酸化物半導体中での窒素原子不純物の研究等の研究のJ-PARCで進展が期待される。