

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18861

研究課題名（和文）ノイズ分光による3次元スピン情報マッピング

研究課題名（英文）Three-dimensional spin information mapping by spin noise spectroscopy

研究代表者

足立 智（Adachi, Satoru）

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：10221722

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：AlGaAsバルク試料の時間分解カー回転分光と全光核磁気共鳴測定による基礎物性データの取得において、電子g因子、核スピン形成時間、核スピン緩和時間などがGaAs（Al=0.0）と比較して大きく異なることを検出した。Al密度の異なる3試料では、スピン結合系のダイナミクスの基礎パラメータが大きく異なるが、同じ形成モデルで説明できることが分かった。これらのデータは、スピンノイズ分光のデータと比較することができ、熱平衡状態と非平衡状態の違いを議論するために利用できるため、学術的に大きな意義がある。低S/Nとはいえスピンノイズスペクトルの取得に成功したことは、本手法改善に向けた大きな一歩と言える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピンノイズ分光は平衡状態の電子スピン集団の総量、g因子、緩和時間などの情報を与える画期的な線形分光の1つである。本研究では、スピンノイズ分光の長所の一端を解明したに過ぎないが、スピンノイズスペクトルの取得に成功したことは日本で同様の研究が無いことを考慮すると端緒に着けたと考えている。その意味で学術的意義は挑戦的研究萌芽としては十分である。また社会的意義、すなわち応用としての側面は、近年研究が盛んなスピン量子ビットを使用する量子メモリ・中継器開発においてコヒーレンス時間の上限を決める測定法として活用できる点にある。今後もこの手法を継続して発展させ、学術的、社会的意義を増大させる。

研究成果の概要（英文）：In obtaining fundamental physical property data of bulk AlGaAs samples by time-resolved Kerr rotation spectroscopy and all-optical nuclear magnetic resonance measurements, we detected that the electron g-factor, nuclear spin formation time, nuclear spin relaxation time, etc. are significantly different compared to GaAs (Al=0.0.) In three samples with different Al density, the fundamental parameters of the spin coupling system The fundamental parameters of the dynamics were found to be very different, but can be explained by the same formation model. These data are of great academic significance because they can be compared with data from spin noise spectroscopy and used to discuss the difference between thermal equilibrium and nonequilibrium states. The success in obtaining spin noise spectra, albeit with low S/N, is a major step toward improving this method.

研究分野：半導体光物性

キーワード：電子・核スピン結合系 核スピンエンジニアリング 量子メモリ

## 1. 研究開始当初の背景

スピンノイズを「時間変化する統計的なスピン分極」と定義するならば、それは1946年にBlochにより予言され[PRB 70, 460 (1946)], 1985年にSleatorにより観測されている[PRL 55, 1742 (1985)]. 1981年にAleksandrovとZapasskii [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 81, 132 (1981)]により、光学的手法によりNa原子蒸気を試料として開発されたスピンノイズ分光は、2005年にOestreichらによって固体材料として初めて半導体 (*n*-GaAsバルク) に適用された[PRL 95, 216603 (2005)]. 電子ノイズ測定は根底にある電子輸送メカニズムの物理プロセスに関する情報を与えてくれるのに対し、全光スピンノイズ分光はスピン緩和時間などの熱平衡状態での本質的なスピンダイナミクスと *g* 因子に関する情報 (図2参照) を与えてくれる。スピン緩和時間の極限值を知ることができるため、量子情報処理研究と相まって、Hannover大 (独)、Los Alamos 研 (米)、St. Petersburg 州大 (露) を中心に近年盛り上がりを見せている。

SNSの特長は高い検出感度と、熱平衡スピンへのアクセスを可能とする独特な測定スキームにある。後者は、揺動散逸定理 (互いに相互作用していない *N* 個のスピンのランダムな揺らぎは、 $\sqrt{N}$  のノイズ信号を生む) から導かれる性質であるが、半導体であればバンドギャップに満たないプローブ波長を用いることで電子や正孔の実励起 (及び非平衡スピン分極の光生成) を伴わない点は特筆すべきで、他のスピン分光法とは一線を画すものである。周波数解析を通して「揺らぎ」を定量的に議論できることや、残留キャリアの動向にアクセスできること、先行研究での努力で高い検出感度が実現されたことは、量子ドットでの電子スピン緩和に大きく影響する核スピンノイズの抑制という我々が直面している問題に対して SNS が大いに役立つことを示唆しているが、日本国内では全くと言うほど研究されていない。

更に調査を進める中で、本手法が半導体デバイス構造中のスピン探査においても有望であることにも気づいた。ナノスケールの微細加工に加え、金属や絶縁体など多様な材料系を内包する半導体デバイスにおいて、ドーピング密度の不均一性までを加味して、キャリアスピンダイナミクスを追跡することは必須課題であるにも関わらず、大きな困難を伴う作業である。しかしながら、SNSの応用形として3次元空間でのスピンノイズマッピングを実施できれば、優れたスピン探査ツールとしてデバイス応用分野に貢献できることに加え、単なる基礎物性評価の枠組みを超えて、新たな物理領域の開拓にも繋がると考えている。

## 2. 研究の目的

近年、スピンノイズ分光 (Spin Noise Spectroscopy: SNS) と呼ばれる画期的な線形分光技術が、固体物性探査において注目されている。スピンのランダムな揺らぎが生み出す「スピンノイズ信号」から、*g* 因子や横緩和時間など主要なパラメータの情報を抽出する本手法の強みは、

- 1) 測定対象に余計な擾乱を与えないため、熱平衡スピンの動向にアクセスできること、
- 2) 単一電子 (または正孔) での適用をも可能とする高い検出感度を有することにある。

これらの特性は、極小化の一途をたどる半導体デバイス中のスピン構造探査において、SNSがパワフルなツールとなる可能性を十二分に示唆するものである。本研究では、SNSの利点を最大限に生かすべく、熱平衡電子スピン集団情報の3次元マッピング手法とその応用技術の開発を目的とした。

## 3. 研究の方法

研究の方法としては、SNS分光は高いS/N比での信号取得が必要なことから、まずは物性値が既知もしくは別手法で取得可能な試料を用い、両者を比較することで信号感度の向上と高S/N比信号の取得を目指した。既存の手法としてSNSとファラデー (カー) 回転角を測定する点では同じではあるが、非平衡状態での電子スピン分極による効果を見るために、時間分解カー回転分光、全光核磁気共鳴法などを駆使して、基本試料の基礎物性値 (スピン緩和時間、*g* 因子など) を測定すると共に、SNS測定系を立ち上げた。

測定試料として、

1. *n*-doped Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>Asバルク (*x*=0.0, 0.05, 0.15) ドープ量 $\sim 10^{16}$  cm<sup>-3</sup>
2. <sup>167</sup>Er添加Y<sub>2</sub>Si<sub>5</sub>結晶

を選定した。1はスピンノイズ分光(SNS)測定系を構築する際の標準的な試料、2は量子メモリ材料として近年注目されており、SNSが適用できれば学術的・応用的にもインパクトが高い発展的試料である。1、2の試料共に現有しているものである。

1. 測定光学系の構築
2. 時間分解カー回転分光および全光核磁気共鳴法による試料の基礎物性評価
3. SNS測定

と段階を踏んでおこなった。以下の測定光学系の概略を示す。まずは第1段階として、図1に示す測定光学系を構築した。SNS測定系の光源としてはチューナブルであることが必須であ

り、ノイズの少ないチューナブルダイオードレーザーが望ましいが、現有のcwリングチタンサファイアレーザーを用いた。試料の基礎物性測定のために、現有の時間分解カー回転分光(TRKR)測定系の励起光変調周波数をAOMにより数MHzにすることで全光核磁気共鳴(AONMR)も可能とした。またSNS測定では長時間測定が予想されるため、現有の循環型クライオスタットを改造し、使用した。測定時間はリアルタイムスペクトルアナライザーの同時観測周波数帯域に依存するが、DCから広帯域で観測できる装置は非常に高額であるため購入可能な価格であるテクトロニクスRSA603Aを選定した。アンプの飽和を避けるため、測定域以外のノイズを除去する必要があるため、バンドパスフィルター(BRF)を挿入した。試料からの反射がレーザーに戻ると励起強度が不安定になるため、ファラデーアイソレータは必須であった。またレーザー強度の揺らぎを除去するために、バランスド検出器も必須である。更なる改良点としては、励起スポット径を縮小するために空間フィルターの挿入による空間モードの改善が上げられるが、スペースの関係で今回は使用していない。

将来的に計画している核スピンドダイナミクスをSNSで測定する際には、核スピン分極を形成するために円偏光ポンプ光が必要であるため、TRKR光学系のポンプ光も利用できる。

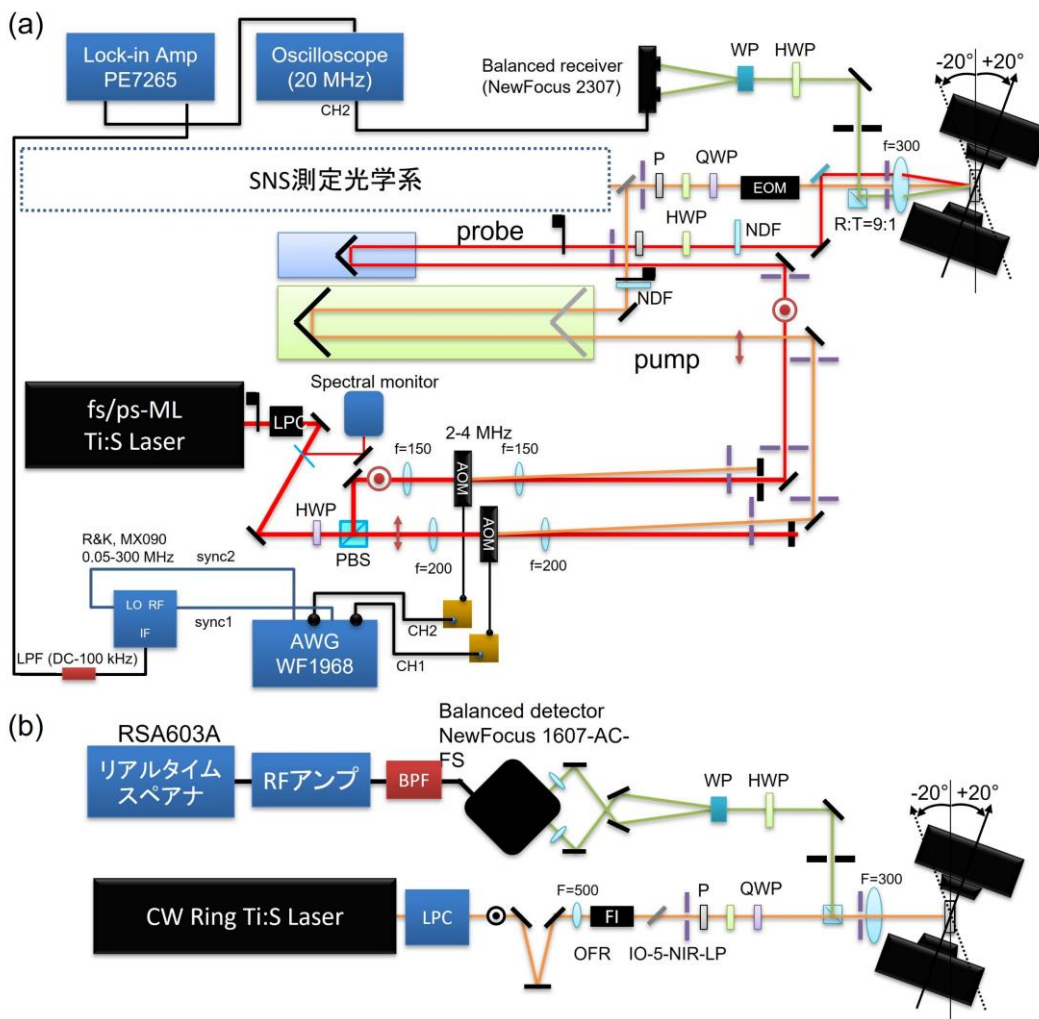


図1 (a) 測定光学系の全体図. 全光核磁気共鳴(AONMR)が可能な時間分解カー回転分光(TRKR)測定系. (b) 全光スピンノイズ分光測定系. (a)の測定系の点線部に配置し、光学系の一部と電磁石、循環型クライオスタットを共有している。

#### 4. 研究成果

##### A. TRKR, AONMR による試料の基礎物性測定

SNS では図 2(a)の様で時間域でノイズスペクトルを取得して、フーリエ変換して周波数スペクトルを得る。したがって、測定中に一見して S/N 比の高い良いデータかどうか判別しにくい。また測定感度を上げるために、磁場の有無でのデータを取得し、差分を取る必要がある。測定データからは(b)に示す様に、様々な熱平衡状態での基本的な物性値が得られるが、SNS 分光系は立ち上げたばかりであるため、測定系のチェックとデータの信頼性を確認するために、まずは他の

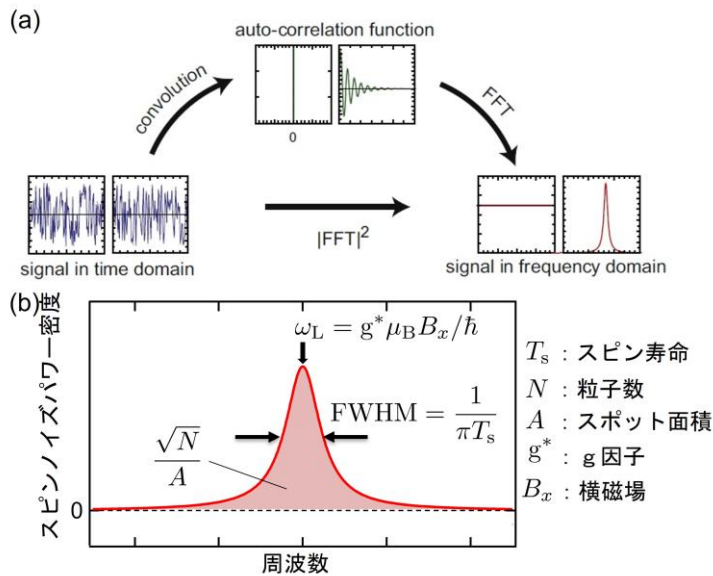


図2. SNS 分光でのデータ処理の流れ(a)とノイズスペクトルの概略.

手法で得られる値との比較が非常に重要と考えた. そこで光学系を共有している時間分解カー回転(TRKR)分光系で試料の g 因子などの基礎物性値を測定した.

図3に Voigt 配置での n-AlGaAs バルク (Al=0.15)での TRKR 信号の磁場依存性と同様のデータから得られる Al 組成の異なる3つの試料での g 因子を示す. (a)は TRKR 信号の印加磁場依存性 (10 K, Voigt 配置, pump/probe=10 mW/1 mW), (b)は(a)の矢印の磁場での TRKR 信号である. (a)の時間軸方向でのフーリエ変換が(a)の下図であり, 磁場に対するラーモア周波数の変化を表している. このデータおよび(b)の時間変化のフィッティングから電子 g 因子は小

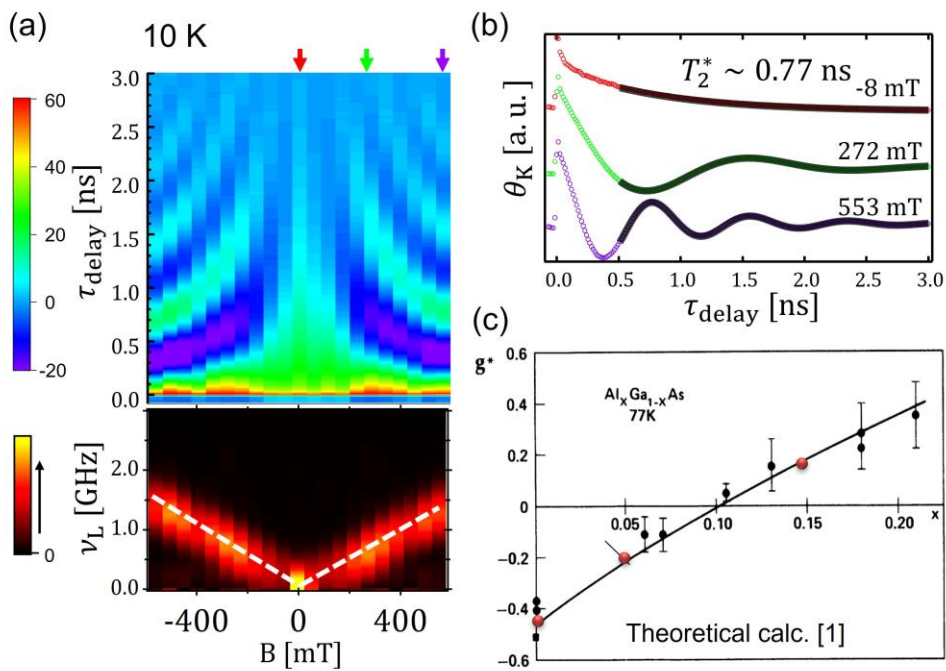


図3. (a) TRKR 信号の印加磁場依存性の2次元プロット (上), 上図の時間軸方向でのフーリエ変換 (下). 白点線がラーモア歳差周波数の磁場依存性. (b) (a)上部矢印の磁場値での TRKR 信号とそのフィッティング曲線. (c) 3つの試料での電子 g 因子と理論曲線[1]. [1] C. Hermann and C. Weisbush, PRB 15 823 (1977).

数点3桁目まで正確に求めることが可能である. (c)は3つの試料(Al=0.0, 0.05, 0.15)での g 因子と理論計算曲線の比較であり, 理論計算との良い一致を得ている.

以上で SNS データと比較できる試料の基礎データが取得できた. これらの他には, 図4に示すように, これらの試料のうち Al=0.05, 0.15 の試料で斜め磁場配置において印加磁場を超える大きな核磁場 (最大 1.4 T @ 0.56 mT, 10 K) の形成が確認できた. 最大 1.4 T もの核磁場がバルク半導体で形成されたという観測事実はいくつかのバルク半導体では観測されていなかった新発見であり, その形成メカニズムを明らかにする必要がある. これまで単一量子ドット半導体で構築してきた核磁場形成モデルに従って考えると非常に遅い核スピン緩和がその原因と予想される. AlGaAs は[111]方向に不規則な原子の配列があるため, 核四極子相互作用による核のエネルギー準位の不等間隔分裂が発生する. 核のエネルギー準位の不等間隔分裂は核スピン間



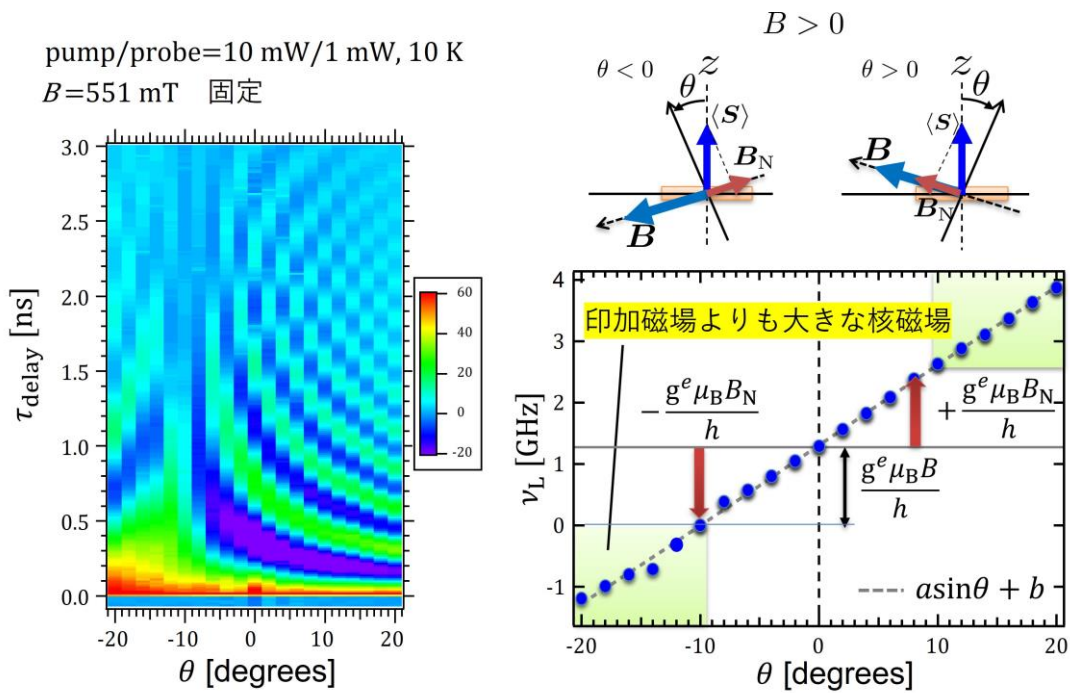


図4. TRKR 信号の印加磁場角度  $\theta$  への依存性. 右: 角度依存性の2次元プロット. 左: 正負の角度での外部磁場, 入射電子スピン, 生成される核磁場のベクトル配置とラーモア歳差周波数の磁場印加角度依存性. 印加磁場より大きな核磁場が形成される角度領域が存在する.

のフリップ・フロップによる核スピン角運動量の拡散 (核スピン拡散) が抑制される. 実際に, 全光核磁気共鳴法により,  $^{69}\text{Ga}$ ,  $^{71}\text{Ga}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{75}\text{As}$  の核磁気共鳴スペクトルを取得した際, 予想されるよりブロードな共鳴スペクトルが観測された. これらの観測結果は非常に新規なものであるため, 本研究でも追及したが, 今後も更に研究を進める予定である.

最後に SNS 測定であるが, 2 年の研究期間内においては, 学術論文誌に投稿できるほどの高い S/N 比の信号は現段階では取得できなかったため, 本成果報告書でも実験データを掲載しないが, 例えば n-GaAs バルク (Al=0.0) では 30 mT の外部磁場で,  $\sim 185$  MHz の周波数にピークが観測でき, g 因子の値は 0.44 と TRKR 分光結果と一致する結果を得ている. 測定時間短縮のためのリアルタイムスペアナの拡張, ノイズスペクトルのリアルタイムフーリエ変換表示, アンプのショットノイズの低減, 磁場印加の有無による背景ノイズの引き去り法の工夫など課題は多いが, SNS で核スピン形成ダイナミクスを観測できる日も近いと感じている.

本研究により, 循環型クライオスタットなどの装置を揃え, 初歩的ではあるが SNS 信号をとらえるところまで達成できたため, 今後も手法を改善し初期の目的を完遂できるよう努力する所存である.

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 1件）

1. 著者名 S. Yamamoto, R. Kaji, H. Sasakura, and S. Adachi	4. 巻 60
2. 論文標題 Double nuclear spin switching in single quantum dots	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SBBH07/1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abd709	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 S. Yasui, M. Hiraishi, A. Ishizawa, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, and T. Tawara	4. 巻 29
2. 論文標題 Precise spectroscopy of 167Er:Y2SiO5 based on laser frequency stabilization using a fiber laser comb	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 27137-27148
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.433002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 S. Yasui, M. Hiraishi, A. Ishizawa, H. Omi, T. Inaba, X. Xu, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara
2. 発表標題 Remarkable improvement of atomic-frequency-comb memory efficiency by comb transfer method in 167Er3+:Y2SiO5 under zero magnetic field
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO:2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Yasui, M. Hiraishi, A. Ishizawa, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara
2. 発表標題 Frequency and time domain measurements of 167Er3+:Y2SiO5 by stabilizing the optical frequency using a fiber laser comb
3. 学会等名 International Symposium on Novel maTERials and quantum Technologies (ISNTT2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Yasui, M. Hiraishi, A. Ishizawa, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara
2. 発表標題 Evaluation of homogeneous linewidth of 167Er3+:Y2SiO5 in frequency domain measurement using laser stabilization with optical frequency comb
3. 学会等名 The 2021 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 俵 毅彦, 平石 真也, 稲葉 智宏, 徐 学俊, 太田 竜一, 足立 智, 尾身 博雄
2. 発表標題 量子情報プラットフォームとしてのEr添加固体材料の開発
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安井 翔一郎, 平石 真也, 石澤 淳, 尾身 博雄, 稲葉 智宏, Xuejun Xu, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 俵 毅彦
2. 発表標題 167Er3+:Y2SiO5における零磁場下での通信波長帯Atomic Frequency Comb時間多重量子メモリプロトコルの実証
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 野添 胡桃, 鳥井 純平, 鍛冶 怜奈, 小田島 聡, 足立 智
2. 発表標題 外部歪みによる単一量子ドット発光特性の変化
3. 学会等名 第57回応用物理学会北海道支部/第18回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 齋藤 圭吾, 沈 安東, 安井 翔一郎, 山本 壮太, 鍛治 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 時間分解力一回転分光で観るバルクAlGaAsでの大きな核磁場形成
3. 学会等名 57回応用物理学会北海道支部/第18回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鍛治 怜奈, 山本 壮太, 足立 智
2. 発表標題 n-GaAs/バルクにおける全光核磁気共鳴信号の検出
3. 学会等名 57回応用物理学会北海道支部/第18回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安井 翔一郎, 平石 真也, 石澤 淳, 尾身 博雄, 稲葉 智宏, Xuejun Xu, 鍛治 怜奈, 足立 智, 俵 毅彦
2. 発表標題 167Er <sup>3+</sup> :Y <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> における Atomic Frequency Comb多重量子メモリプロトコルの実証
3. 学会等名 第57回応用物理学会北海道支部/第18回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安井 翔一郎, 平石真也, 俵 毅彦, 尾身 博雄, 鍛治 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 67Er <sup>3+</sup> :Y <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> の超微細構造 型準位系における位相緩和時間の周波数および時間領域測定
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 笹倉 弘理, 足立 智
2. 発表標題 半導体量子ドットでの核スピン分極の第3安定状態と3重安定性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安井 翔一郎, 平石真也, 依 毅彦, 尾身 博雄, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 167Er <sup>3+</sup> :Y <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> の 型超微細準位系でのホールパーニングによるコヒーレンス時間の測定
3. 学会等名 第56回応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 五十嵐 与樹, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 価電子帯混合による (111) 単一量子ドットの発光の偏光状態と正孔 g 因子の変化
3. 学会等名 第56回応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 笹倉 弘理, 足立 智
2. 発表標題 核スピン揺らぎが誘起する半導体量子ドットでの核スピン分極の第3安定状態
3. 学会等名 第56回応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室HP <a href="https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/UFQ0/adachi_ja.html">https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/UFQ0/adachi_ja.html</a>
--

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	小田島 聡  (Odajima Satoshi)  (20518451)	北海道大学・電子科学研究所・特任准教授    (10101)	

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
---------	---------