

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 18 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654079

研究課題名(和文) スピンコヒーレンスの新規検出法の実証と電子スピン高速制御への展開

研究課題名(英文) Development of novel detection method of spin coherence and application to rapid control of electron spins

研究代表者

足立 智 (ADACHI, SATORU)

北海道大学・工学(系)研究科(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) 2,800,000円、(間接経費) 840,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は物質中の電子(または正孔, 原子核, 励起子)の持つ最大のスピンコヒーレンスを引き出すことを目的に, スピン位相回折格子の概念の確立と核スピンゆらぎによるスピンコヒーレンス低減の抑制を目指している。H24年度において, 3パルス四波混合法において励起偏光の組み合わせにより, スピン位相回折格子の形成を確認した。H25年度は応用研究としてCdTe/CdMgTe単一量子井戸中の残留電子を用いて, そのスピン分極形成ダイナミクスを時間分解カー回転法を用いて, 観測された負の初期位相が負の荷電励起子の速い正孔スピン緩和に起因するものであることをモデル計算と実験から突き止めた。

研究成果の概要(英文)：This study aims at the establishment of spin phase grating concept to extract the maximum spin coherence of electron (or hole, nucleus, and exciton) in semiconductor nanostructures. 3-pulse four wave mixing with various pump polarization combinations revealed the formation of a spin phase grating. To suppress the spin decoherence due to the fluctuation of nuclear spin polarization, we used the CdTe for the nanostructure materials and succeeded to observe the small nuclear spin polarization. Moreover, the generation mechanism of the negative phase shift in time-resolved Kerr rotation signals of the resident electron polarization was found to be due to the fast hole spin relaxation in negative trions.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：スピンコヒーレンス スピン位相 半導体ナノ構造 核スピン分極

1. 研究開始当初の背景

量子情報処理を目指した半導体ナノ構造の応用においては、電子や正孔が持つ長いスピニコヒーレンスが最終的には核スピンのゆらぎ（核磁場ゆらぎ）で制限されてしまうことが問題視されており、解決策が模索されていた。

2. 研究目的

本研究ではInAsやGaAs等のIII-V族化合物半導体において問題となっている核磁場ゆらぎの影響を抑制し、物質が持つスピニコヒーレンスを最大限に引き出す方策を探索することを目的とする。

3. 研究の方法

核スピンのゆらぎ（核磁場ゆらぎ）がキャリアスピニコヒーレンスに与える影響を抑制する方法としては、

- 1) 100%核スピン分極を達成する
- 2) 原子核スピンとの相互作用（超微細相互作用）の大きな電子スピンではなく、相互作用定数が1桁以上小さな正孔スピンを利用する。
- 3) 核スピンのゼロで無い同位体の天然存在比が小さく、かつ核スピン量子数の小さいII-VI化合物半導体をナノ構造物質として用いる

等が考えられる。本研究では、方法として3を選択し、微小な核スピン分極を測定する方法を確立しつつ、実際に核スピン分極がどの程度生成されるのかを実験的に測定する。

4. 研究成果

(1) 残留電子スピン分極 (RESP) の長いスピニコヒーレンスの観測と RESP 形成ダイナミクスの解明

第1段階として、時間分解カー回転分光系を構築し、CdTe/CdMgTe 単一量子井戸 (QW) を試料として残留電子分極の長いスピニコヒーレンス測定に成功した。この残留電子分極は負の荷電励起子（負のトリオン T）の共鳴励起により生成されると考えられ、我々は残留電子分極の歳差運動の初期位相シフトに着目し、その生成ダイナミクスを励起強度依存性、磁場強度依存性等を通じて解明した。残留電子分極の歳差運動の初期位相シフトとは図1に示す信号の初期位相のことである。Tはスピン反平行な2つの電子と1つの正孔から成るが、その中の電子・正孔スピン対が再結合で消滅する時間はストリークカメラによる発光の時間分解測定から 85 ps と分かっている。したがってそれ以降のカー回転信号は残

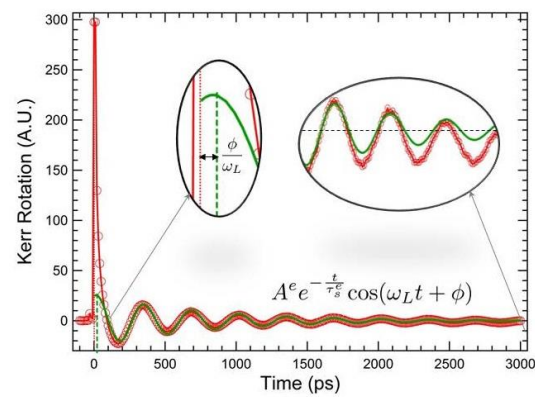


図1. CdTe/CdMgTe SQW における負のトリオン共鳴でのカー回転信号 (@ 9 K, 210 mT)

留電子分極により発生するものである。T再結合時間後のスピンの歳差運動信号をフィッティングし、それを時間原点まで外挿した時の初期位相には、T再結合時に残留電子に返却される電子スピンの方向に関する情報が含まれており、それによりダイナミクスに知見を得ることが可能であると判明した。図1では負の初期位相が観測されており、これまでの先行研究とは異なるものである。

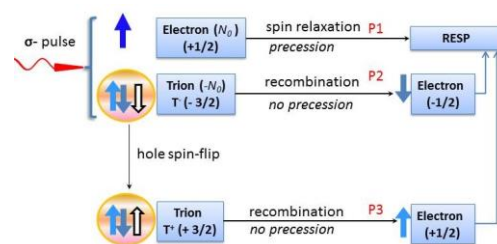


図2. 残留電子スピン分極 (RESP) 形成ダイナミクス

残留電子分極形成ダイナミクスは図2の様にまとめることができる。試料内に低密度で存在する残留電子集団はもともとスピニアップとダウンが同数あり、マクロには分極していない。負のトリオン (T) を円偏光で共鳴励起すると、円偏光でスピン選択的に生成された電子・正孔ペア (↑↓) が残留電子集団から電子を1つ捕獲し、基底準位の T を形成する。捕獲される電子のスピンはパウリの排他原理からスピンドアウン (↓) である。従ってこの瞬間、残りの残留電子集団には全体としてアップの分極が生じることになる。この過程が図2の P1 である。従って横磁場印加時に共鳴励起前には観測されなかった残留電子スピン分極 (RESP) の歳差運動がカー回転分光により観測される。形成された T が再結合する際、その時間と T 内の正孔スピン緩和時

間との大小により P2 および P3 プロセスが発生する。これら3つのプロセスの作用により負の初期位相が出現することがモデル計算と実験より明らかにした。これにより、速い正孔スピン反転が起こることが示唆された。

(2) g 因子の異方性測定と微小核スピン極の検出

ここでは斜め磁場配置での TRKR 測定から微小な核磁場の検出と g 因子の精密測定について述べる。試料に対して磁場を角度を付けて印加可能なように電磁石に回転機能を付けた。これにより斜め磁場印加で TRKR 信号を測定し、その角度依存性から試料面に垂直および平行な g 因子 (g_{\parallel}, g_{\perp}) を精密に求めることができる。ただしここで注意が必要なのは、試料に垂直な円偏光励起により生成した電子スピンに歳差ベクトルと平行な成分 S_{\parallel} が存在する場合には、その成分は磁場による回転を受けないため試料の原子核スピンと長時間に渡り相互作用（フェルミ接触型超微細相互作用）し、微小ではあるが核磁場を生成できることである。もし核磁場が生成されれば、ラーモア歳差運動の周波数に反映される。これらを利用し、微小な核磁場の測定を行った。

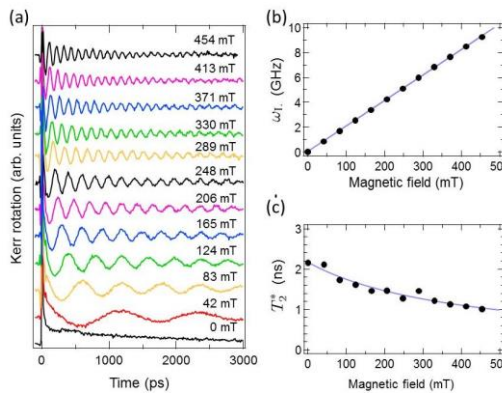


図 3. (a) TRKR 信号の磁場強度依存性 (@ $\theta=0, 9$ K). (b) 歳差周波数の磁場依存性. (c) 緩和時間の磁場依存性.

まずはラーモア歳差運動ベクトルを高精度で求めるために、励起偏光を光弾性変調器で光速に変調し、核磁場形成が無い条件で測定を行い g 因子を求めた。まずは角度 0 で図 3(a) の様に磁場強度を変え、フィッティングにより歳差周波数を測定し (b), その傾きから $g_{\parallel} = 1.478 \pm 0.003$ と求められた。また (c) に示すように磁場増加に従いマクロな RESP の緩和時間が短くなっている。これは個々の電子ス

ピンコヒーレンスは長いのが多数の集団としてのアンサンブル平均を観測しているために、僅かな g の違いが磁場強度が増大するに伴って歳差運動の位相のずれとして現れて、見かけの緩和時間短縮となっていると考えられる。横緩和レートを $1/T_2^*(B) = 1/T_2^*(0) + \Delta g_{\perp} \mu_B B / (\sqrt{2} \hbar)$ として、g 因子分布による見かけの減衰を導入し、(c) に示すデータをフィッティングすると $\Delta g_{\perp} = 0.014, T_2^*(0) = 2.40$ ns と分かった。

また試料に対し角度 θ で磁場を斜めに印加し、同様に TRKR 信号を取得することで、

$$|g_{\theta}| = \sqrt{(g_{\perp} \cos \theta)^2 + (g_{\parallel} \sin \theta)^2}$$

より試料の面内 g 因子 g_{\parallel} を測定することができる。角度依存性測定の結果、 $g_{\parallel} = 1.536$ と分

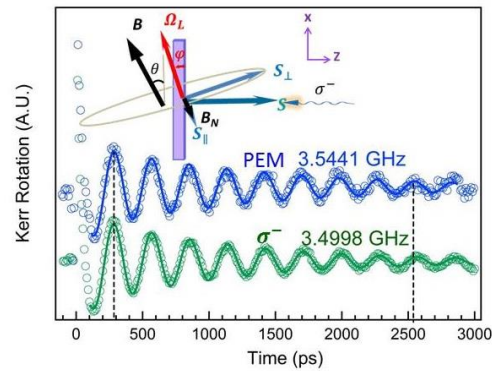


図 4. 斜め磁場配置での TRKR 信号. 核磁場が形成されていない場合 (上) と核磁場が形成されている場合 (下).

かり、面直と面内の g 因子に比較的大きな異方性は在ることが明らかになった。

このような g 因子の異方性がある場合には、磁場の方向とラーモア歳差運動ベクトルの方向が微妙に異なる。円偏光励起で生成した電子スピン S の歳差運動ベクトル Ω_L に平行な成分が原子核スピンと相互作用し、核磁場 B_N を形成する。図 4 の挿入図に示す様に、 σ^- 円偏光で励起した場合、外部印加磁場とほぼ逆方向に核磁場 B_N が形成され、歳差周波数が低下する。形成される核磁場は数 mT と微小であるが、長周期の振動が観測されることから精密に測定することが可能である。これは核磁場をスペクトル領域で観測するオーバーハウザーシフトに比較して大きな利点である。

まとめ

核磁場ゆらぎは電子スピンコヒーレンスを最終的に制限するとして、量子情報処理基盤技術の確立に大きな障害になっている。これを解決する1つの手法として核スピンの小さなCdTeを材料として用いる方法を提案し、実際に微小な核磁場の大きさの精密測定をおこなった。簡便さからQWを用いたが、量子情報処理に用いられるQDでは電子の局在化から超微細相互作用の増強が懸念される。しかし強い局在化による電子波動関数と原子核の重なる増強は50倍程度と見積もられる。したがって電子波動関数が局在化するQD等においても核磁場の影響はInAs等のIII-V化合物半導体に比較して格段に小さいと結論できる。これは特にCdTeの場合には超微細構造定数は同程度であるが($A_{Cd} = -31 \mu\text{eV}$, $A_{Te} = -45 \mu\text{eV}$)核スピン量子数が小さいこと、ゼロでな核スピンを持つ同位体の天然存在比が小さいこと($I_{Cd} = 1/2$, $P_{Cd} = 25\%$, $I_{Te} = 1/2$, $P_{Te} = 8\%$)に由来するものである。

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8件)

- ① R. Kaji, S. Ohno, T. Hozumi, S. Adachi, "Effects of valence band mixing on hole spin coherence via hole-nuclei hyperfine interaction in InAlAs quantum dots", *Journal of Applied Physics* **113**, 203511/1-6 (2013) 【査読有】 DOI: 10.1063/1.4807901.
- ② X. M. Lu, M. Koyama, Y. Izumi, Y. Nakata, S. Adachi, and S. Muto, "Size distribution and its scaling behavior of InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy", *Japanese Journal of Applied Physics* **52**, 025602/1-4 (2013) 【査読有】, DOI: 10.7567/JJAP.52.025602
- ③ T. Tawara, H. Omi, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, "Population dynamics in epitaxial Er_2O_3 thin films grown on Si(111)", *Appl. Phys. Lett.* **102**, 241918/1-4 (2013). 【査読有】 DOI: 10.1063/1.4812294
- ④ Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, S. Adachi, "Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN", *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 08JL03/1-3 (2013). 【査読有】 DOI: 10.7567/JJAP.52.08JL03
- ⑤ K. Hazu, S. F. Chichibu, S. Adachi, T.

Sota," Valence-band-ordering of a strain-free bulk ZnO single crystal identified by four-wave-mixing spectroscopy technique", *Journal of Applied Physics* **111**, 093522/1-6 (2012) 【査読有】 DOI: 10.1063/1.4711103

- ⑥ A. Takagi, A. Nakamura, A. Yoshikaie, S. Yoshioka, S. Adachi, S. F. Chichibu, T. Sota, "Signatures of Γ_1 - Γ_5 mixed-mode polaritons in polarized reflectance spectra of ZnO", *Journal of Physics Condensed Matter* **24**, 415801/1-8 (2012) 【査読有】 DOI: 10.1088/0953-8984/24/41/415801
- ⑦ S. Adachi, R. Kaji, S. Furukawa, Y. Yokoyama, S. Muto, "Nuclear spin depolarization via slow spin diffusion in single InAlAs quantum dots observed by using erase-pump-probe technique", *Journal of Applied Physics* **111**, 103531/1-6 (2012) 【査読有】 DOI: 10.1063/1.4721902
- ⑧ R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, "Direct observation of nuclear field fluctuation in single quantum dots", *Physical Review B* **85**, 155315/1-6 (2012) 【査読有】 DOI: 10.1103/PhysRevB.85.155315

[学会発表] (計20件)

- ① L.-P. Yan, R. Kaji, and S. Adachi, "Effective nuclear field measurement in a single quantum well via time-resolved Kerr rotation technique", International Conference on Materials Science and Engineering Technology (MSET 2014) (Shanghai Dazhong Merrylin Hotel (上海市, 中国, 28-29 June, 2014).
- ② 鍛冶怜奈「半導体量子ドットにおける核磁場揺らぎのスピンデコヒーレンスへの効果」【招待講演】、第61回応用物理学会春季学術講演会(2014年3月17-20日, 青山学院大学, 神奈川県).
- ③ 八山雄太, 鍛冶怜奈, 穂積貴人, 富井拓真, 笹倉弘理, 定昌史, 足立智, 「光学励起核スピン分極を用いた単一InAs量子リングにおける電子・正孔のg因子測定」第49回応用物理学会北海道支部学術講演会(2013年12/9-10, 北海道大学, 札幌市).
- ④ 鍛冶怜奈, 穂積貴人, 八山雄太, 富井拓真, 笹倉弘理, 定昌史, 足立智, 「単一量子リングにおけるg因子測定と価電子帯混合度の評価」第18回半導体スピン工学の基礎と応用: PASPS18(2013年12/9-10, 大阪大学豊中市).
- ⑤ 足立智, 「半導体量子ドットからの発光の不思議」【招待講演】卓越した大学院拠

- 点形成支援事業シンポジウム（2013年12/2-4, 早稲田大学, 東京都）.
- ⑥ 長谷川明, 戸田泰則, 足立智, 森田隆二, 中山正昭, 「強励起条件下におけるワイドギャップ半導体励起子のコヒーレントダイナミクス」日本物理学会秋季年次大会（2013年9/25-28, 徳島大学, 徳島県）.
- ⑦ 川上欣洋, 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 俵毅彦, 尾身博雄, 「ダブル誘導ラマン断熱通過による酸化エルビウム薄膜での量子ビット任意回転操作」第74回応用物理学会秋季学術講演会（2013年9月16-20日, 同志社大学, 京田辺市）.
- ⑧ L.-P. Yan, W.-T.Hsu, and S. Adachi, “Resident electrons spin formation and spin dephasing in a single CdTe quantum well”, International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM13) (9/24-27, 2013, ヒルトン福岡シーホーク, 福岡県).
- ⑨ R. Kaji, T. Hozumi, S. Ohno, S. Adachi, “Electron and hole g-factor measurements via optically-induced nuclear spin polarizations in single InAs/GaAs quantum rings”, 13th International Conference on Optics of Excitons in Confined System: OECS13 (9/9-13, 2013, Angelicum Congress Centre, Roma, Italy).
- ⑩ Y. Kawakami, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, T. Tawara, H. Omi, “Arbitrary qubit rotation by double STIRAP in Er₂O₃ thin film”, 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures: EDISON18 (7/22-26, 2013, くにびきメッセ, 島根県).
- ⑪ R. Kaji, S. Ohno, T. Hozumi, S. Adachi, “Impact of band mixing to heavy hole spin dephasing induced by nuclear field fluctuation”, 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures: EDISON18 (7/22-26, 2013, くにびきメッセ, 島根県).
- ⑫ 大野慎悟, 鍛冶怜奈, 穂積貴人, 足立智, 「InAlAs 量子ドットでの価電子帯の非対称結合効果」第60回応用物理学会春季学術講演会（2013年3月27-30日, 神奈川工大, 神奈川県）.
- ⑬ 俵毅彦, 穂積貴人, 尾身博雄, 鍛冶怜奈, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 「酸化エルビウムエピタキシャル薄膜の光学特性」第60回応用物理学会春季学術講演会（2013年3月27-30日, 神奈川工大, 神奈川県）.
- ⑭ 鍛冶怜奈, 足立智, 「量子ドットにおける核スピン分極の光ポンピングと揺らぎの光学的検出」【招待講演】第68回日本物理学会年次大会（2013年

- 3月26-29日, 広島大学, 東広島市)
- ⑮ 鍛冶怜奈, 大野慎悟, 穂積貴人, 足立智, 「単一量子ドットにおける核磁場揺らぎの実測と電子・正孔スピン緩和」第17回「半導体スピン工学の基礎と応用」研究会: PASPS17 (2012年12月19-20日, 九州大学, 福岡) .
- ⑯ 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 「核磁場を利用した InAs 量子リングの g 因子評価」第17回「半導体スピン工学の基礎と応用」研究会: PASPS17 (2012年12月19-20日, 九州大学, 福岡) .
- ⑰ 黒澤雅博, 厳麗平, 鍛冶怜奈, 足立智, 「量子井戸での残留電子による核スピン偏極の形成と検出」第73回 応用物理学会学術講演会 (9/11-14, 2012, 愛媛大学, 松山市).
- ⑱ 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「量子ドットでの電子・正孔-核スピン結合系のダイナミクス」第73回 応用物理学会学術講演会 (9/11-14, 2012, 愛媛大学, 松山市).
- ⑲ 穂積貴人, 鍛冶怜奈, 足立智, 「核磁場を利用した InAs 量子リングの g 因子評価」第73回 応用物理学会学術講演会 9/11-14, 2012, 愛媛大学, 松山市).
- ⑳ 鍛冶怜奈, 足立智, 笹倉弘理, 武藤俊一, 「単一自己集合量子ドットにおける核磁場揺らぎの評価」第73回 応用物理学会学術講演会 (9/11-14, 2012, 愛媛大学, 松山市).

〔図書〕 (計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計2件)

名称: 量子ビットの操作方法
 発明者: 足立智, 俵毅彦, 尾身博雄
 権利者: 同上
 種類: 特許
 番号: 特願 2013-147283
 出願年月日: 2013年07月16日
 国内外の別: 国内

名称: 光素子およびその製造方法
 発明者: 尾身博雄, 俵毅彦, 足立智
 権利者: 同上
 種類: 特許
 番号: 特願 2013-162076
 出願年月日: 2013年08月05日
 国内外の別: 国内

○取得状況 (計0件)

名称:
 発明者:
 権利者:
 種類:
 番号:

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/ultrafast/Adachi/research.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

足立 智 (ADACHI SATORU)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：10221722

(2) 研究分担者 なし
()

研究者番号：

(3) 連携研究者 なし
()

研究者番号：