

平成 29 年 5 月 9 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25247047

研究課題名(和文) 光学的核スピンエンジニアリングと局在スピン操作

研究課題名(英文) Optical engineering of nuclear spins and localized spin manipulation

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) 31,200,000円

研究成果の概要(和文)：研究成果の概要(和文)：本研究では、単一量子ナノ構造での光注入局在スピンのリザーバである核スピン集団の分極率や分極方向等を制御する核スピンエンジニアリングを確立し、局在スピン操作に積極的に利用することを目的としている。特に以下に示すこれまでに報告例のない新たな成果を得た。発光スペクトルの直交偏光成分の同時検出系を構築し、InAlAs自己集合量子ドットにおいて、零磁場下で0.8 Tもの核磁場が形成されることを見出し、電子スピンの作る有効磁場とそれにより形成される核磁場との関係を明らかにした。また歪による核四極子磁場が結晶成長方向から傾いている場合、核スピン緩和の機構になることを実証した。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we aimed to establish the methods for optical engineering of nuclear spins in a single quantum dot structure. The following experimental achievements are especially important;

1. Even without any external magnetic field, the positive trion excited by the circularly-polarized light generated an Overhauser field of up to 0.8 T. From the excitation power dependences of the Overhauser field and degree of circular polarization of the photoluminescence spectra, the relation between the Overhauser field and Knight field under zero external magnetic field was revealed clearly.
2. we found a gradual reduction by almost one-order of the nuclear depolarization rate by increasing the longitudinal magnetic field up to 1 T. The change in the nuclear depolarization rate seemed to be related to the quadrupolar interaction with the tilted principal axis, and this observation can be interpreted as the restoring of the eigenaxis of nuclear spin.

研究分野：半導体スピン物性

キーワード：量子ドット 核スピン キャリアスピン 核磁場制御

### 1. 研究開始当初の背景

量子情報処理応用におけるビットの担い手として、半導体量子ドット(QD)中の電子や正孔のスピンの研究が精力的に行われている。QDでは、電子スピンと核スピン集団との間の磁気的相互作用である超微細相互作用 (HFI) が強化される。このことは、深刻な電子スピン緩和を引き起こす一方、巨大な核スピン分極形成を可能とし、数テスラにも及ぶ有効磁場 (核磁場) を介して電子エネルギー構造を制御する一つの興味深い方法を提供する。我々は1個の電子スピンのリザーバである数万個の核スピン集団を積極的に利用するために、その分極率や分極方向等を制御すること (核スピンエンジニアリング(図1)) を研究している。核スピンエンジニアリングを行うことで、電子スピンへのメモリ機能の付与、キャリアスピンの極限的スピンコヒーレンスの実現等が可能であり、量子メモリや単一光子源等のスピン応用デバイスに対しても広く貢献する。これには HFI の深い理解が必要である。これまで、数テスラに及ぶ大きな外部磁場下での HFI は良く研究されてきたが、単一光子源等での通常の運転モードである零磁場、あるいは低磁場下での HFI の実験的な研究報告は数例に留まっている[1]。また、残留歪を内包する自己集合 QD の特徴である核四極子効果も核スピンを介して電子スピンの影響を及ぼすことが示唆されている[2]。

### 2. 研究の目的

本研究ではこれらの効果に着目し、単一 QD 分光により低磁場及び零外部磁場での動的核スピン分極に関して新知見を得ると同時に、それらを制御することを目的とした。

### 3. 研究の方法

以上の背景およびこれまでの成果を踏まえ、本研究では、量子ドット中の局在スピン操作を介した光学的核スピンエンジニアリングに向け、要点となる課題を以下に列挙する。

- (1) 零磁場での動的核分極と核四極子効果の解明
- (2) 歪み印加デバイスの作製と電子g因子精密制御技術の確立

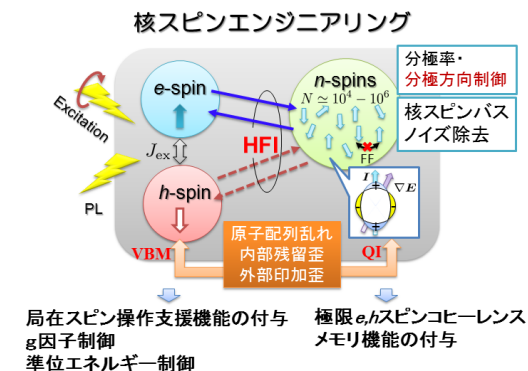


図1. 半導体 QD での核スピンエンジニアリング。

半導体単一 QD における面直方向の核スピン分極形成の研究は、電子が感じる有効磁場や発光円偏光度(DCP)を発光スペクトルの分裂エネルギーや発光強度を観測することにより行われている。零磁場の場合では、 $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  発光スペクトルの重なりが大きくなるため、DCPの精密評価が難しくなる。そのため、低磁場あるいは零磁場下における研究は数例に留まる。しかしながら、零磁場下では、面直核磁場形成に関わると予想される1個の電子スピンが作る有効磁場Knight fieldや核四極子分裂による核スピン緩和の抑制が特に重要と考えられるため、この条件下でも詳細な研究を行う必要がある。

### 4. 研究成果

まず上記の問題点を解決するために、申請者は発光スペクトルの直交円偏光成分の同時検出法を開発した。この同時検出法により、零磁場下のようなゼーマン分裂が発光スペクトル幅よりも狭い場合において、発光強度や発光エネルギーの時間変化による DCP のゆらぎを除去して、精密な発光スペクトルを取得することに成功した (図2(a))。通常、零外部磁場の下では核スピン分極は形成されない。これは、電子スピンと核スピン間のフリップフロップ(e-n FF)により生じる動的核

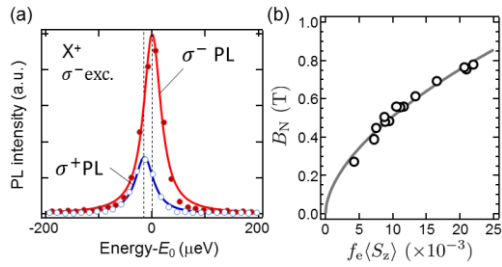


図2. (a) 単一InAlAs QDでの零磁場下における発光スペクトル (@ 6 K, 0 T). (b) Knight field vs. 核磁場 $B_N$ .

スピン分極が、核スピン間の双極子磁場 $B_L$  (~0.1 mT) に起因した速い核スピン緩和により、高い分極率になる前に脱分極していくからである。しかし、図 2(a)の示す様にスペクトル分裂が観測され、0.8 T に及ぶ大きな核磁場が形成されることが判明した。これは零磁場下で 1 個の電子スピンの Knight field  $B_e$  ( $\propto f_e \langle S_z \rangle$ ) による核スピン冷却により生じている。図 2(b)に示す様に、QD 内に 1 個の電子が存在する確率 $f_e$ を励起強度を介して調節し、核磁場 $B_N$ の $B_e$ 依存性を初めて明らかにした。その他、標的 QD の電子・正孔の z 方向 g 因子の符合まで含めた個別評価と核磁場揺らぎの評価(~40 mT)を行った。

更に、InAlAs QD において核スピン緩和レートの外部磁場依存性の観測を行なった。図 3(a)は、OHS の励起偏光依存性である。外部磁場 $B_z=0$  T では $\langle S_z \rangle$ に対し厳密に反対称であるが、0.8 T では、 $\langle S_z \rangle > 0$ では、双安定による高核スピン分極状態へのジャンプが見られる。過去の報告との大きな違いは、 $\langle S_z \rangle < 0$ においても 0 T よりも大きな核スピン分極が形成されていることである。これは既存の核スピン分極形成モデルでは説明できないが、核スピン緩和レート $T_{ND}^{-1}$ が外部磁場に依存して変化していることを明示している。理論計算 (実線) との比較から $T_{ND}^{-1}=1/6$  ms<sup>-1</sup> (@ 0 T), 1/56 ms<sup>-1</sup> (@ 0.8 T)と外部磁場印加で 1 桁近い減少が観られた。(b)に $T_{ND}^{-1}$ の外部磁場依存性を示す。挿入図に示す様に僅かに結晶成長方向(z)からずれている核四極子場 $B_Q$ を仮定す

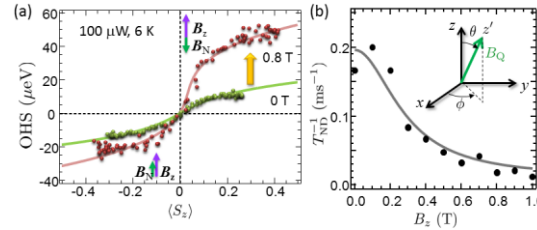


図 3. (a) 外部磁場下での Overhauser シフト (OHS) と平均電子スピン分極の関係。実線は理論計算曲線。(b) 核スピン緩和レート $T_{ND}^{-1}$ の外部磁場依存性。実線は $B_Q=280$  mT とした理論曲線。

ると、 $T_{ND}^{-1}$ の $B_z$ による減少は、 $B_Q$ の方向を向いていた核スピン分極が $B_z$ 印加により徐々に z 方向に向いていくことで、HFI 揺らぎの $S_z I_z$ の項から起こる核スピン緩和が抑制されていく様子を捉えたものと解釈できる。この解釈から $B_Q=280$  mT が求められた。理論的には予想されてはいたが[3]、このような核四極子効果による核スピン緩和の実験的報告は本研究が初めてであり[4]、動的核スピン分極の量子情報処理への応用に大いに寄与する知見である。

上述の 2 点が最も重要な研究成果と考えており、その他の得られた成果については 5 の発表論文等を参照いただきたい。

#### <引用文献>

- [1] C. W. Lai et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 167403, (2006), G. Sallen et al., Nat. Commun. **5**, 3268 (2014).
- [2] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky et al., Rev. Mod. Phys. **85**, 79-133 (2013).
- [3] C.-W. Huang and X. Hu, Phys. Rev. B **81**, 205304 (2010).
- [4] R. Matsusaki, R. Kaji, S. Yamamoto, H. Sasakura, and S. Adachi, cond-mat. arXiv:1703.06046 (2017).

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 15 件)

- ① "Dynamic nuclear spin polarization in self-assembled quantum dots under zero magnetic field", R. Matsusaki, R. Kaji, S. Yamamoto, H. Sasakura, and S. Adachi, cond-mat arXiv:1703.06046 (2017)  
<https://arxiv.org/abs/1703.06046>

②"Effect of isotopic purification on spectral hole narrowing in  $^{167}\text{Er}^{3+}$  hyperfine transitions", T. Tawara, G. Mariani, K. Shimizu, H. Omi, S. Adachi, and H. Gotoh, *Appl. Phys. Express* **10**, 042801/1-4 (2017).  
(DOI: 10.7567/APEX.10.042801)

③"Mechanism of concentration quenching in epitaxial  $(\text{Er}_x\text{Sc}_{1-x})_2\text{O}_3$  thin layers", T. Tawara, Y. Kawakami, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, and H. Gotoh, *Opt. Mater. Express* **7**, 1097-1104 (2017).  
(DOI: 10.1364/OME.7.0010971)

④"Excitation energy dependence of initial phase shift in Kerr rotation of resident electron spin polarization in a CdTe single quantum well", L.-P. Yan, T. Takamura, R. Kaji, G. Karczewski, S. Takeyama, and S. Adachi, *Phys. Status Solidi B* **254**, 1600449/1-6 (2017).  
(DOI: 10.1002/pssb.201600449)

⑤"Anisotropic nature of hole g-factor in individual InAs quantum rings", R. Kaji, T. Tominaga, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, *Phys. Status Solidi B* **254**, 1600486/1-7 (2017).  
(DOI: 10.1002/pssb.201600486)

⑥"Electron and hole in-plane g-factors in single InAs quantum rings", R. Kaji, T. Tominaga, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, *J. Phys.: Conf. Ser.* **647**, 012011/1-4 (2015).  
(DOI: 10.1088/1742-6596/647/1/012011)

⑦"Energy transfers in telecommunication-band region of  $(\text{Sc},\text{Er})_2\text{O}_3$  thin films grown on Si(111)", S. Adachi, Y. Kawakami, R. Kaji, T. Tawara, H. Omi, *J. Phys.: Conf. Ser.* **647**, 012031/1-4 (2015).  
(DOI: 10.1088/1742-6596/647/1/012031)

⑧"Optical detection of anisotropic g-factor and nuclear spin polarization in a single CdTe quantum well", L.-P. Yan, M. Kurosawa, W.-T. Hsu, W.-H. Chang, and S. Adachi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 033003/1-4 (2015).  
(DOI: 10.7567/JJAP.54.033003)

⑨"Negative initial phase shift of Kerr rotation generated from the building-up process of resident electron spin polarization in a CdTe single quantum well", L.-P. Yan, M. Kurosawa, R. Kaji, G. Karczewski, S. Takeyama, and S. Adachi, *Phys. Rev. B* **90**, 205307/1-6 (2014).  
(DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.205307>)

⑩"Dispersions of hole and electron g-factors in single InAs quantum rings evaluated using optically induced nuclear spin polarization", R. Kaji, T. Hozumi, Y. Hachiyama, T. Tomii, H. Sasakura, M. Jo, and S. Adachi, *Appl. Phys. Express* **7**, 065002/1-4 (2014).  
(DOI: 10.7567/APEX.7.065002)

⑪"Effective nuclear field measurement in a single quantum well via time-resolved Kerr rotation technique", L.-P. Yan, R. Kaji, S. Adachi, *Advanced Materials Research* **936**, 534-539

(2014)  
(DOI:10.4028/www.scientific.net/AMR.936.534)

⑫"Effects of valence band mixing on hole spin coherence via hole-nuclei hyperfine interaction in InAlAs quantum dots", R. Kaji, S. Ohno, T. Hozumi, S. Adachi, *J. Appl. Phys.* **113**, 203511/1-6 (2013).  
(DOI: 10.1063/1.4807901)

⑬"Size distribution and its scaling behavior of InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy", X. M. Lu, M. Koyama, Y. Izumi, Y. Nakata, S. Adachi, S. Muto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 025602/1-4 (2013).  
(DOI: 10.7567/JJAP.52.025602)

⑭"Population dynamics in epitaxial  $\text{Er}_2\text{O}_3$  thin films grown on Si(111)", T. Tawara, H. Omi, T. Hozumi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, T. Sogawa, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 241918/1-4 (2013).  
(DOI: 10.1063/1.4812294)

⑮"Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN", Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, S. Adachi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 08JL03/1-3 (2013).  
(DOI: 10.7567/JJAP.52.08JL03)

[学会発表] (計 51 件)

①"Spectral Hole Narrowing in  $\text{Er}^{3+} 4f$  Transitions by Isotope Separation", T. Tawara, G. Mariani, K. Shimizu, H. Omi, S. Adachi, and H. Gotoh, *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO:2017)* (San Jose Convention Center, San Jose, CA, USA, 14-19 May, 2017).

②「量子ドットにおける面内核磁場形成機構の研究」山本壮太, 松崎亮典, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (2017 年 3 月 14 - 17 日, パシフィコ横浜, 神奈川県横浜市)

③「希土類 4f 遷移における位相緩和時間と同位体制御の効果」俵毅彦, Giacomo Mariani, 清水薫, 尾身博雄, 足立智, 後藤秀樹, 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (2017 年 1 月 18-19 日, 伊勢市観光文化会館, 三重県伊勢市)

④"Hole g-Factor Anisotropies in Individual InAs Quantum Rings", R. Kaji, T. Tominaga, Y.-N. Wu, M.-F. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, *The 43rd International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS)* (Toyama, Japan, 26-30 June, 2016).

⑤"Investigation of Spin Dynamics Based on Initial Phase Shift Analysis of Kerr Rotation in a CdTe Single Quantum Well", L.-P. Yan, R. Kaji, and S. Adachi, *The 43rd International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS)* (Toyama, Japan, 26-30 June, 2016).

⑥「InAlAs 量子ドットで観る零磁場動的核分極効果」松崎亮典, 山本壮太, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 21 回スピン工学の基礎と応用

(PASPS21) (2016年12月12-13日, 北大学術交流会館, 北海道札幌市)

⑦「単一 GaAs 液滴量子ドットの磁気発光測定」 鍛治 怜奈, 富永隆宏, 間野高明, 小田島聡, 黒田隆, 笹倉弘理, 足立智, 第77回応用物理学学会秋季学術講演会 (2016年9月13-16日, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市)

⑧「スピン歳差運動の初期位相に注目した残留電子スピン分極ダイナミクス」 巖 麗平, 高群 哲義, 鍛治 怜奈, 足立智, 第77回応用物理学学会秋季学術講演会 (2016年9月13-16日, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市)

⑨「Hanle 効果による単一量子ドットの面内核磁場検出」 山本壮太, 松崎亮典, 鍛治 怜奈, 足立智, 第63回応用物理学学会春季学術講演会 (2016年3月19-22日, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区)

⑩「零磁場下における核磁場形成と検出」 松崎亮典, 山本壮太, 足立智, 鍛治 怜奈 第63回応用物理学学会春季学術講演会 (2016年3月19-22日, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区)

⑪「単一 InAs 量子リング正孔 g 因子の面内異方性と歪・形状異方性」 富永隆宏, 鍛治 怜奈, 呉祐年, 巫明帆, 鄭舜仁, 足立智 第63回応用物理学学会春季学術講演会 (2016年3月19-22日, 東京工業大学大岡山キャンパス, 東京都目黒区)

⑫"Anisotropy of electron and hole in-plane g-factors in single InAs/GaAs quantum rings" (T. Tominaga, R. Kaji, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS17) (Sendai, Japan, 26-31 July, 2015).

⑬"Electron and hole in-plane g-factors in single InAs quantum rings", R. Kaji, T. Tominaga, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, 19th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON 19) (Salamanca, Spain, 29 June-2 July, 2015).

⑭"Electron and hole spin dephasing induced by nuclear field fluctuation in semiconductor quantum dots", R. Kaji and S. Adachi, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials (Kobe Univ., Japan, 13-14 November, 2014).

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称: 光素子  
発明者: 足立 智, 俵毅彦, 尾身博雄  
権利者: 日本電信電話株式会社, 北海道大学  
種類: 特許権  
番号: 特願 2015-28251  
出願年月日: 平成 28 年 11 月 29 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 1 件)

名称: 光素子の製造方法  
発明者: 足立 智, 尾身博雄, 俵毅彦  
権利者: 日本電信電話株式会社, 北海道大学  
種類: 特許権  
番号: 6086321  
取得年月日: 2017/02/10  
国内外の別: 国内

〔その他〕

ホームページ等

[http://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/ultrafast/Adachi/toppage\\_ja.html](http://labs.eng.hokudai.ac.jp/labo/ultrafast/Adachi/toppage_ja.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

( )

研究者番号:

(3) 連携研究者

( )

研究者番号:

(4) 研究協力者

( )