

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：32607

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22139

研究課題名(和文)ヘテロダイン検波を利用するスピニメージングシステムの開発

研究課題名(英文)Development of a spin-imaging system using heterodyne detection technique

研究代表者

三森 康義(Mitsumori, Yasuyoshi)

北里大学・理学部・教授

研究者番号：70375153

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):近年、量子情報通信や記憶素子開発において微小領域のスピンドायナミクス測定をイメージングの手法で行う研究が重要となっている。本研究では微小領域($\sim 1\mu\text{m}$)のスピニメージング測定を高感度で行うためのヘテロダイン検波型光誘起カー回転測定法の提案・開発を行った。半導体量子ドット中の単一励起子の微小カー回転測定を行い、本測定法の優位性を示すことに成功した。また、イメージング測定を行うための基礎技術開発についても目処を付けた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で提案・開発したヘテロダイン検波型カー回転測定法は微小領域の微小カー回転角測定を実現するものである。この測定法はサンプルに特別な加工等が必要なく、非常に汎用性の高い分光法である。また、周波数の異なる複数のプローブ光を同時にサンプルにマッピングして照射し、ヘテロダインシグナルの周波数の違いを利用し、スピンの空間分布を再構築するスピニメージング測定を行うことも可能である。このため、半導体分光のみならず、他の分光学的研究においても有効な手法であると考えられる。

研究成果の概要(英文):Recently, it has been important to study spin dynamics in microscopic systems for quantum information processing. In this research project, we proposed and demonstrated a transient photoinduced Kerr rotation spectroscopy technique using a heterodyne detection scheme. We realized to observe spin dynamics in a single quantum dot, which shows an extremely small Kerr rotation angle. We also developed basic technique for measuring spin images using the heterodyne detection scheme.

研究分野：半導体光物性

キーワード：ヘテロダイン検波 スピン カー回転

1. 研究開始当初の背景

近年、量子情報通信や記憶素子開発において固体中の電子・核スピンの利用が注目を集めている。そこではスピン軌道相互作用、交換相互作用などを利用し、スピン輸送・伝導によるスピン制御・マクロスコピックな核スピン偏極等がなされ、実空間からのスピンダイナミクスの測定が重要な研究手法となっている。一方、分光的にスピンを画像化する方法は2つ存在する。1つはスピンにより偏光回転(カー回転)したプローブ光を偏光素子で縦、横偏光に空間分離し、その強度差を差動検出器で測定する方法。この場合、プローブ光をサンプル上で走査し画像化する。もう1つはプローブ光の偏光と直行する偏光子を画像用 CCD カメラの前に挿入し、偏光回転を偏光子を透過する光強度で画像化する方法がある。前者は差動測定により微小回転を測定できるが、走査に時間を要す。後者は微小回転、回転符号は測定できないが画像データは迅速に取得できる。共通の難点は、検出に光量が必要なため顕微分光を併用する場合、プローブ光によりサンプル内に電子励起が行われる点である。

2. 研究の目的

本研究では上記の相反する問題点の克服を目指し、新原理のヘテロダイン検波型光誘起カー回転分光法を提案・開発・確立することを目的とする。本研究で提案・開発する分光法は、非常に微弱なプローブ光を用いても短時間に高感度測定が可能である。また、周波数の異なった複数のプローブ光をサンプル上にマッピングして同時に照射し、それらのヘテロダインシグナルの周波数の違いを利用し、スピンの空間分布を再構築して画像化を行う基礎技術開発を行う。

3. 研究の方法

ヘテロダイン検波とは周波数 ω_{ref} の参照光 $E_{ref} \exp(-i\omega_{ref}t)$ と、その周波数と数 ~ 数十 MHz 程度ずらした周波数 ω_{pr} の微弱光のプローブ光 $E_{pr} \exp(-i\omega_{pr}t)$ との干渉強度

$$I = |E_{pr} \exp(-i\omega_{pr}t) + E_{ref} \exp(-i\omega_{ref}t)|^2 = |E_{ref}|^2 + 2 E_{ref} E_{pr} \cos(\omega_{ref} - \omega_{pr}) t + |E_{pr}|^2 \quad (1)$$

中の唸りに相当する項(cosの項)の振幅 $E_{ref} E_{pr}$ を電気的に検出する検波法である。この方法の利点として、(I)唸りの検出により、微弱なプローブ光を大光量の参照光の利用により光学的に増強。(II)複数のプローブ光を1つの検出器で測定し、唸りの周波数の違いを利用することで測定後の電気信号から電気フィルターの利用で個々のプローブ光の情報を抽出可。これら2点に着目し、新しいヘテロダイン検波型光誘起カー回転分光法の実験系の構築とテストサンプル(半導体量子ドット、半導体量子井戸)を用いる測定を行い、従来の分光法と比較することで、本研究で開発した分光法の優位性を示す。また、周波数の異なった複数のプローブ光をサンプルに同時に照射し、それらのヘテロダインシグナルの周波数の違いを利用し、サンプル上でのカー回転角のマッピングを行う新しいスピンイメージング分光法の基礎技術開発を行う。

4. 研究成果

本研究ではヘテロダイン検波型光誘起カー回転分光法の提案と開発を行った。ヘテロダイン検波型カー回転測定法は本研究で初めて提案・実装される測定法である。構築した実験系を図1に示す。ピコ秒パルスのチタンサファイアレーザー(Ti:S.Laser)からのレーザー光を2つのビームスプリッタ(BS1、BS2)で3分岐し、うち2つを音響光学素子(AOM)によってレーザー光の周波数をそれぞれ20MHz、21MHzずらし、21MHzずらしたレーザー光をヘテロダイン検波を行う参照光(局発光)として利用し、20MHzずらしたレーザー光をサンプルに光学的に注入したスピンで誘起されるカー回転角を測定するプローブ光として利用した。参照光、プローブ光の偏光方向は水平直線偏光に設定した。BS2を通過した残りのレーザー光はサンプルに光学的にスピンを注入するポンプ光として利用した。ポンプ光は光学的遅延回路(DL)を通過後、円偏光板で円偏光にし、光チョッパーで1KHzに変調後、プローブ光とビームスプリッタBS3で再び合波した。合波した光をビームスプリッタBS5で対物レンズ(OL)に導入し、サンプル上で~1μmに集光した。サンプルからの反射光をBS5を通過させ、さらに、プローブ光と参照光をビームスプリッタBS4に同時に入射するように合波した。BS4からの合波光の片方を直接、ディテクタで測定し、電気的なバンドパスフィルター(BPF)を用い

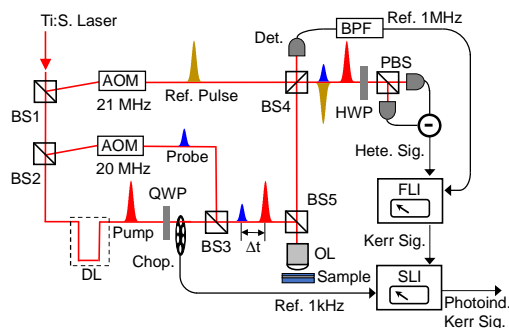


図1：構築した実験系の模式図

ることで、プローブ光と参照光の唸りの周波数 1 MHz のヘテロダインシグナル測定用の参照シグナルを作製した。BS4 からのもう一つの合波光は偏光を 45° 方向に回転させ、偏光ビームスプリッタ (PBS) を利用し、垂直成分と水平成分に空間的に分離し、差動測定を行った。差動測定の出力量電信号中のヘテロダインシグナルに相当する 1 MHz の唸りの成分を 1 段目のロックインアンプ (FLI) により検出した。本測定法においては、ポンプ光もプローブ光と同軸にディテクタに入射するが、参照光の強度をポンプ光より十分に大きくすることで、差動測定の出力量電信号中のヘテロダインシグナルの割合を大きくしている。さらに、ヘテロダインシグナルのみを 1 段目のロックインアンプで測定しているため、ポンプ光による影響 (測定精度の劣化等) は除去されている。1 段目のロックインアンプの検出シグナルを 2 段目のロックインアンプ (SLI) に入力し、ポンプ光の光チョッパーと同期するシグナルを測定することで、微小領域の光誘起カー回転シグナルの測定を行った。サンプルは III-V 族系のピラミッド型半導体量子ドットを用いた。本研究で用いた量子ドットの発光スペクトルとレーザー光のスペクトルを図 2 に示す。レーザー光は 1.5795 eV に位置する量子ドット中の励起子の発光スペクトルに共鳴励起した場合と非共鳴励起した場合の測定を行っている。また、レーザー光パルス幅は約 1 ps である。測定結果を図 3 に示す。どちらの励起条件においてもポンプ光の円偏光の方向 σ^+ 、 σ^- によってカー回転角の符号が変化している。このことはポンプ光により電子スピンの注入が正確に行われていることを意味している。図 3 下に示す通り、非共鳴励起では非常に速いスピンの緩和が観測された。一方、共鳴時 (図 3 上) では非共鳴時に観測された速い緩和成分につづき、ゆっくりと緩和する成分を観測した。この遅い緩和成分は量子ドット中の単一励起子のスピンの緩和を表している。速い緩和時間を示す成分は基板の GaAs 中の自由キャリアのスピンの緩和を表していると推測される。

単一量子ドットのスピンの緩和時間の測定の先行研究では量子ドットを微小共振器中に設置するなどして、励起子と光の相互作用を増強することでカー回転角を増幅する工夫が必要であった。本研究ではヘテロダイン検波を利用し、プローブ光と参照光を干渉させ、式 (1) 中の唸りの成分を測定している。この物理的意味は微弱なプローブ光の微小カー回転角を参照光の大きな電場振幅により光学的に増幅して測定していることに相当している。図 4 に示すように参照光の強度を変化させると 2 段目のロックインアンプ (SLI) の出力がそれに応じて変化している。このことから参照光により微小なカー回転角を光学的に増幅して測定していることが実際の実験により確認された。本研究で提案・開発したヘテロダイン検波型カー回転測定はサンプル構造に依存しない測定法であり、単一量子ドットの単一励起子のスピンの緩和、つまり単一電子スピンの起因する効果を測定できたことから、非常に高感度な測定を可能とするものである。また、差動測定の方のディテクタへの光の入射を遮ることにより、容易にポンプ・プローブ分光法に切り替え可能である。本研究では同じ光学系で単一量子ドットの寿命測定にも同時に成功している。

半導体量子ドット以外に、テストサンプルとして半導体量子井戸でも測定を行い、スピンの緩和時間のポンプ光のスポット径依存性が観測され、2 次元系励起子ではスピンの緩和機構に励起子拡散機構が重要な要素になっていることを強く示唆する結果を得ている。また、実験技術的な面として、量子ドットの測定では図 1 に示した通り、ヘテロダインシグナルを検出するためにロックインアンプ (FLI) を利用した。これは、複数のプローブ光を同時にサンプルに照射してイメージングを行う際に、非常に高価な分光システムになることを意味する。そこで、本研究では安価な方法でヘテロダイン検波を行う方法の開発も行った。具体的には図 1 中のバンドパスフィルタ (BPF) からの出力と差動測定からの出力を電気的な掛け算回路を用いて所望の周波数のヘテロダインシグナルを DC シグナルとして検出する方法の開発を行った。また、この単純な電気回路を用いることにより、周波数の異なる複数のプローブ光をサンプルに同時に照射し、

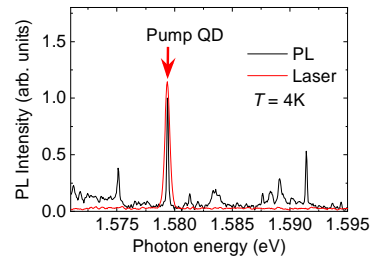


図 2 : 量子ドットの発光スペクトルと励起レーザー光スペクトル

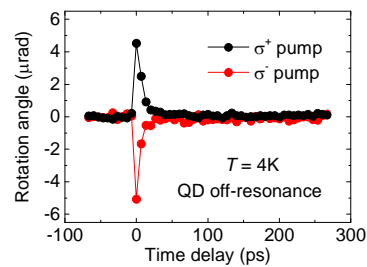
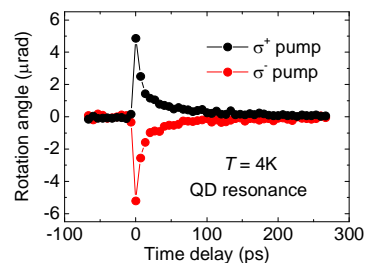


図 3 : 励起子共鳴励起時 (上) と非共鳴励起時 (下) のヘテロダイン検波型光誘起カー回転の測定結果

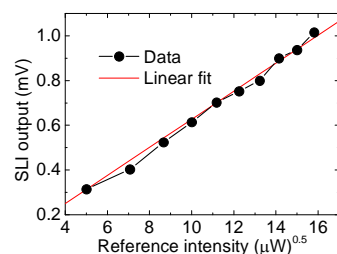


図 4 : 2 段目のロックインアンプの出力の参照光強度依存性

ヘテロダイニングシグナの周波数の違いにより、1つ1つのプローブ光の情報を電氣的に分離することに成功し、スピンイメージング測定の基礎技術の開発に目処を付けた。

以上、まとめるとヘテロダイニング検波型光誘起カー回転測定法を提案・開発を行った。ヘテロダイニング検波を分光法に応用することにより微弱なプローブ光が示す微小なカー回転角を効率よく測定できることを実証した。これらの結果は論文として発表を行った。今後、量子井戸における励起子スピン緩和過程、ならびに複数のプローブパルスサンプルに照射するスピンイメージング測定法なども研究成果としてまとめる予定である。本研究で開発した手法は、極めて微小なカー回転角をサンプルに依存せず測定できる点において非常に汎用的な測定法である。このため半導体物性だけでなく、他の分光学的研究分野に対しても本研究成果を活用できるようにしていきたいと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yasuyoshi Mitsumori , Kentaro Uedaira , Satoshi Shimomura , Keiichi Edamatsu	4. 巻 29
2. 論文標題 Photoinduced Kerr rotation spectroscopy for microscopic spin systems using heterodyne detection	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Opt. Express	6. 最初と最後の頁 10386-10394
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.417193	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 -
1. 著者名 Fumihiro Kaneda, Jo Oikawa, Masahiro Yabuno, Fumihiro China, Shigehito Miki, Hirotaka Terai, Yasuyoshi Mitsumori, Keiichi Edamatsu	4. 巻 28
2. 論文標題 Spectral characterization of photon-pair sources via classical sum-frequency	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Opt. Express	6. 最初と最後の頁 38993 - 39004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.412448	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 -
1. 著者名 T. Yoshino, D. Yamaura, M. Komiya, M. Sugawara, Y. Mitsumori, M. Niwano, A. Hirano-Iwata, K. Edamatsu, M. Sadgrove	4. 巻 28
2. 論文標題 Optical transport of sub-micron lipid vesicles along a nanofiber	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Opt. Express	6. 最初と最後の頁 38527-38538
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.411124	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 -
1. 著者名 Masakazu Sugawara, Yasuyoshi Mitsumori, Keiichi Edamatsu, and Mark Sadgrove	4. 巻 28
2. 論文標題 Optical detection of nano-particle characteristics using coupling to a nano-waveguide	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Opt. Express	6. 最初と最後の頁 18938-18945
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.393776	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 -

1. 著者名 Yoshihiro Ogawa, Hirokazu Tahara, Nanako Igarashi, Yasuhiro Yamada, Yoshihiko Kanemitsu	4. 巻 103
2. 論文標題 Spectral characterization of the Rashba spin-split band in a lead halide perovskite single crystal by photocurrent heterodyne interference spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L081201-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.103.1081201	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 Keita Ishida, Kanta Naruse, Yuta Mizouchi, Yoshihiro Ogawa, Michio Matsushita, Takeshi Shimi, Hiroshi Kimura, Satoru Fujiyoshi	4. 巻 46
2. 論文標題 Variable immersion microscopy with a high numerical aperture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 856-859
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/ol.416006	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 Sadgrove Mark, Yoshino Takaaki, Sugawara Masakazu, Mitsumori Yasuyoshi, Edamatsu Keiichi	4. 巻 16
2. 論文標題 Optically Induced Sieve Effect for Nanoparticles near a Nanofiber Taper	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 44034
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.16.044034	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 -

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 及川 憧, 三森康義, 枝松圭一, 金田文寛
2. 発表標題 変調された周期分極反転結晶による周波数不可識別伝令付き単一光子対源の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金井天馬, 三森康義, 枝松圭一, 金田文博
2. 発表標題 光ファイバーを用いた長周期リング型量子メモリの開発
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 地主将規, 三森康義, 枝松圭一, 赤羽浩一, 山本直克
2. 発表標題 GaAs中の不純物中心に局在する励起子のフォトンエコー
3. 学会等名 第31回 光物性研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 三森康義, 持山英, 枝松圭一, 小川佳宏
2. 発表標題 ヘテロダイン時間分解顕微鏡回転測定法の開発
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Fumihiro Kancda, Jo Oikawa, Yasuyoshi Mitsumori, Keiichi Edamatsu
2. 発表標題 High-Precision Spectral Measurements of Photon-Pair Sources via Frequency-Resolved Sum-Frequency generation
3. 学会等名 CLEO: Applications and Technology 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉野峻晶、山浦大地、小宮麻希、菅原大和、三森康義、平野愛弓、枝松圭一、Mark Sadgrove
2. 発表標題 ナノ光ファイバ近傍のエパネッセント場を用いたサブマイクロ-リボソームの光操作
3. 学会等名 日本応用物理学会 第80回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 及川懂、金田文寛、三森康義、枝松 圭一
2. 発表標題 自発パラメトリック下方変換光子対の高精度位相整合スペクトル評価方法の開発
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会、第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鈴木聖也、三森康義、Sadgrove Mark、枝松圭一、小川佳宏
2. 発表標題 半導体中の不純物中心に局在する励起子の四光波混合
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会、第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原大和、Sadgrove Mark、三森康義、枝松 圭一
2. 発表標題 ナノ光ファイバ上の金ナノロッド - 量子ドット結合系からの発光光子の偏光測定
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会、第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉野峻晶、山浦大地、小宮麻希、菅原大和、三森康義、平野愛弓、枝松圭一、Sadgrove Mark
2. 発表標題 ナノ光ファイバ近傍のエバネッセント場を用いたサブマイクロリポソームの光操作
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会、第40回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原大和、Mark Sadgrove、三森康義、枝松圭一
2. 発表標題 回折限界下の微小スケール物質のナノ導波路伝搬モードとの結合を利用した光学検出
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 及川懂、金田文寛、三森康義、枝松圭一
2. 発表標題 和周波発生を用いた光子対源の高精度スペクトル特性評価
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Pierre Vidil、三森康義、枝松圭一
2. 発表標題 Nonlocal generalized quantum measurement on a pair of photonic qubits
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小川佳宏, 田原弘量, 金光義彦
2. 発表標題 鉛ペロブスカイト太陽電池のヘテロダイン干渉分光II
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	小川 佳宏 (Ogawa Yoshihiro) (50372462)	上越教育大学・大学院学校教育研究科・教授 (13103)	

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