

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24510145

研究課題名(和文)揺らぎ分光法による量子ドット・スピン緩和機構の解明

研究課題名(英文) Study on the spin relaxation of charge carriers in semiconductor quantum dots by photon fluctuation measurement

研究代表者

黒田 隆 (Kuroda, Takashi)

独立行政法人物質・材料研究機構・先端フォトニクス材料ユニット・主席研究員

研究者番号：00272659

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：単一の量子ドットからの発光信号は、内在するキャリア・スピンの向きに応じて異なる偏光をもつ。そのため、量子ドットから発する光子束に対し、偏光度の時間揺らぎを計測することで、スピン状態の緩和過程が観測できるはずである。本研究では、このようなアイデアに基づく「スピン揺らぎ分光法」を開発し、従来の手法では観測できなかった、ナノ秒からマイクロ秒に至る広い時間領域において、スピン緩和過程の観測を目指す。

研究成果の概要(英文)：The polarization state of photons emitted from a single quantum dot depends on the spin state of charge carriers existing in the dot. Thus, the fluctuation of photon polarization is expected to reveal the spin relaxation of charge carriers. Here we develop a new spectroscopy technique based on photon polarization correlations, and explore the charge spin relaxation with extended time scales.

研究分野：光物性物理学

キーワード：量子ドット

### 1. 研究開始当初の背景

量子ドットに閉じ込められた電子や正孔は、運動量の自由度が凍結しているため、バルクや量子井戸構造に比べて、スピン状態が安定になる。スピン緩和の時間スケールは、低温の電子でマイクロ秒まで至り、バルクに比して3桁以上の増大を示す。

安定なスピンの存在は量子情報処理など先端的なスピン応用のための鍵である。一方、閉じ込めキャリアのスピン緩和に関しては、未だ基礎理解には至っていない。例えば、次のような未解明の問題がある：

- 低温の電子スピン緩和は、核スピンとの散乱が支配要因と考えられている。より安定なスピン状態を実現するために、核スピンとデカップルする方策や、動的核偏極を用いた核スピン冷却の方策が提案されているものの、実証には至っていない。
- 一方、正孔は p-like な波動関数を持つため、原子核と接触しない。そのため正孔スピンは核スピンに対して堅固だと考えられていた。しかしバンド混成を反映して正孔と核スピンが結合するとの報告もあり、正孔のスピン緩和は未解明な部分が多い。
- 高温におけるスピン緩和は、格子散乱とスピン軌道相互作用の効果に起因する。バルクに比べて量子ドットでは、電子状態が離散化するため、格子散乱の寄与が抑制するはずである。しかし温度特性などの系統的な実験は皆無であった。

これら研究状況の背景には、量子ドットのスピン緩和を観測する有用な手法がなかったことがある。まず通常の rf パルスを用いた ESR 信号は、量子ドットの数が少ないため観測できない。一方バルクや量子井戸では、円偏光パルスで励起し、その後の発光の偏光度を観測する方法が用いられてきた。しかし、量子ドットのスピン緩和時間は、再結合寿命より桁のオーダーで長く、従来方法では精度よい観測は不可能であった。

### 2. 研究の目的

本研究は、時間スケールの制限がなく、さらに電子または正孔単独のスピン状態を観測できる「スピン揺らぎ分光法」の開発を目的とする。実験原理を図 1 に示す。ここでは、量子ドットに 2 電子 / 1 正孔(または 1 電子 / 2 正孔)が存在する「荷電励起子」に注目する(以下は負の荷電励起子を考える)。荷電励起子が発光するとき、量子ドットから 1 対の電子と正孔が消え、電子が 1 つ残される。このとき光子の偏光と、残された電子のスピンは一意に対応する。引き続きレーザーを照射すると、量子ドットに注入さ

れるキャリアは、残された電子のスピン・ブロッケードの影響を受ける。そのため再形成した荷電励起子は、先のイベントの荷電励起子と同じスピン配置となり、そこから発する光子は、先の光子と同じ偏光となる。一連の発光イベントが連続するとき、光子列の偏光状態は、内在する電子のスピンの保たれてる間、同じヘリシティを持つことになる。このため、単一量子ドット発光の偏光揺らぎが計測できれば、揺らぎの相関時間としてスピン緩和時間を決めることが可能となる。

この偏光揺らぎは、単一量子ドットの光応答にのみ表出するものであり、マクロな数の量子ドットに対しては統計平均を経て消失する。偏光揺らぎの大きさは、キャリア注入におけるスピンのブロッケードの強さで決まり、他の実験結果から 10 % 程度の fidelity が予想できる。この大きさはコインシデンス計測を用いて十分観測可能である。

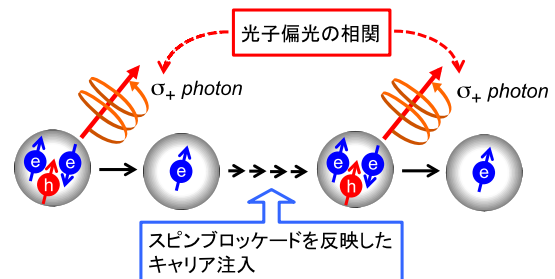


図 1 . スピン揺らぎ分光法概念図。荷電励起子から発する光子は、内在するキャリアスピンを反映して偏光が揺らぐ。揺らぎの相関時間を計測し、スピン緩和時間を決定する。

### 3. 研究の方法

#### (1) 偏光光子相関系の構築

量子ドットから発する単一光子に対して、偏光の相関関数を計測するための光学実験系を構築する。具体的には、既存の顕微分光装置にポラリメーターを組み込み、右周り-右周り、右周り-左周り、左周り-右周り、左周り-左周りの偏光光子対に対して、コインシデンス計測を行い、時間相関関数を比較する。

偏光揺らぎの時間スケールはマイクロ秒程度と予想される。そのため、従来コインシデンス測定に用いられてきた、アナログ的な光子計測装置 (Time-to-Amplitude Converter) は適用できない。ここでは光子の到着時間を時系列で全て記録し、その後相関関数を計算するデジタル処理手法を用いる。また 3 つの光子検出器を併用して、ルーター的な同時処理を行い、精度の高い相関関数を観測する。

## (2) 荷電制御型試料の作製

本研究では、1 個の量子ドットの内部に 2 電子 / 1 正孔または 1 電子 / 2 正孔が存在する荷電励起子状態に着目する。これまでの研究から、単一量子ドットの発光スペクトルにおいて、中性の励起子線や励起子分子線、および正負の荷電励起子の発光線が確定できるようになった。一方、光励起の下では、これらの状態のいずれが形成されるかは確率的である。スピン由来の揺らぎを計測するには、このようなランダム過程を極力排除せねばならない。そのため、量子ドット内の電荷数を外部電圧で制御できる、荷電制御型の試料を実現する。

試料の基本構造は、最も研究が進んでいる InAs/GaAs 系の量子ドットにおいて既に報告例がある。具体的には、n 型ドープした障壁層が量子ドットの近傍に置かれた構造であり、ドープ層の電位を変化することで電荷数を制御する。この構造を我々の GaAs/AlGaAs 量子ドットに適用する場合、障壁層が混晶半導体となることや、バンド不連続が小さいことからの影響を考慮せねばならない。そのため試料作製において、不純物密度やトンネル・スペーサー層の厚さ、試料上面に蒸着する半透明電極などを最適化する。

光学評価としては、新しい試料での多励起子発光線を同定し、外部電圧による電荷制御が実現しているかを検証する。さらに、荷電励起子からの発光信号に対して偏光度の測定を行い、既に報告例があるスピン・ブロック効果の実現していることを確認する。

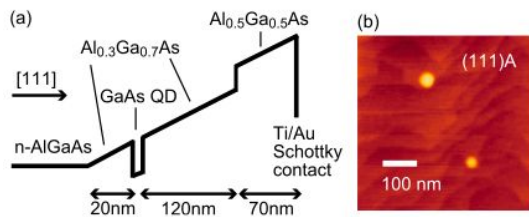


図 2 . (a) 液滴エピ成長ガリウム砒素量子ドットを用いた電荷制御型試料。(b) GaAs 量子ドットの原子間力顕微鏡写真。

## (3) 光子相関実験によるスピン緩和の観測

荷電励起子の発光信号に対し、偏光揺らぎの相関関数を観測する。ここから揺らぎ相関関数の時定数で表せられるスピン緩和時間を決定する。正の荷電励起子の偏光揺らぎ信号から正孔のスピン緩和がわかり、負の荷電励起子の偏光揺らぎ信号から電子のスピン緩和がわかると期待できる。実験は液体ヘリウム温度で行う。

## 4 . 研究成果

### (1) 偏光光子相関系の構築と偏光もつれ光子対の観測

量子ドットから発する単一光子に対して、偏光の相関関数を計測するための光学実験系を構築した。それを活用することで、量子ドットカスケードを用いた偏光もつれあひ光子対発生の検証を行った。

我々は、等方的な量子ドットを制御性よく実現することで、外部制御の手間いらずに、世界最高値のもつれあひ度の観測に成功した。量子ドットの創製には、独自に開発した液滴エピタキシー法を用いた。量子ドットの成長基板として、通常用いる(100)面のガリウム砒素ではなく、(111)A面のガリウム砒素を適用する。(111)A面の原子の配列は、正三角形のユニットから構成される。このため量子ドットの形状も正三角形に近くなり、等方的な性質を持つと期待した。作製したガリウム砒素量子ドットから発する蛍光信号を解析すると、忠実度が 86 (±2) % のもつれ光子対になることを見出した。さらに、量子もつれの厳密な評価基準である、ベルの不等式の破れを、雑音レベルの 5 倍以上の大きさに観測した。いずれも過去の報告値を凌駕する。これまでの光源では、ポストセレクションと呼ばれる信号選別を経て、量子もつれの特性を得ていた。我々の光源は、付加的な選別を用いることなく優れた特性を示している。このため、直接、量子通信システムへの実装が可能である。

代表的な量子ドットにおける、同時計数の結果を図 3 に示す。R, L, H, V は偏光子の設定であり、それぞれ、右円偏光、左円偏光、水平偏光、垂直偏光に偏光した光が透過する条件である。D, A は、おのおの H, V から偏光面が 45 度傾いた直線偏光である。

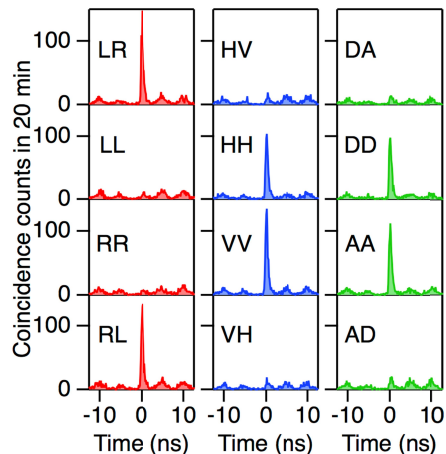


図 3 . 励起子分子-励起子発光の同時計数ヒストグラム. 時間軸の binning 幅は、128 ps である。

図 3 (a) の最上図には、L 偏光の光子と R 偏光の光子の同時計数(LR)を示した。時刻

ゼロに現れる同時計数ピークは、2光子対が、無相関の光子より高い確率で発生することを示している。同時計数ピークは、LLの偏光セットで消失し、2つの光子がともにL偏光になる確率は、ゼロに近いことがわかる(図3(a)の上から2番目)。

同様の負の相関はRRでも確認でき(図3(a)の上から3番目)。一方、正の相関はRLで再現する(図4(a)の上から4番目)。この結果は、2光子の偏光状態が、次式に表されるベル状態(最大にもつれている状態)の1つで近似できることを示唆している:

$$|\Psi\rangle = \frac{|LR\rangle + |RL\rangle}{\sqrt{2}},$$

もつれあいの必要条件は、偏光基底に依らない相関があることである。図3(b)には、直線偏光での結果を示した。平行な偏光配置(HH, VV)で正の相関が現れ、一方、直交した偏光配置(HV, VH)で相関が消失する。これは、上記ベル状態の直線偏光の表記と一致する。同様の相関は、D/A基底の場合にも現れる(図4(c))。

2光子間の偏光相関の大きさを  $C = |(n_{\parallel} - n)/(n_{\parallel} + n)|$  で評価する。ここで、 $n_{\parallel}$ ,  $n$  は、それぞれ平行および直交偏光での同時計数レートである。Cの値は、それぞれ0.87(R/L偏光)、0.78(H/V偏光)、0.77(D/A偏光)となる。

観測した2光子状態から、目的とするベル状態への射影強度を、もつれあいの忠実度(fidelity,  $f$ )と呼び、 $f$ とCの間には、 $f = (1 + C_{R/L} + C_{H/V} + C_{D/A})/4$ の関係がある。 $f$ は、最大もつれ状態にどのくらい近いかを表す量であり、理想極限では1である。我々の結果は  $f = 0.86 (+0.02)$  となり、同種の光子源の報告値を超えることができた。

## (2) 荷電制御型試料の作製と光学評価

上記で用いた(111)A面成長のガリウム砒素(GaAs)量子ドットをベースに、荷電制御型デバイス構造を作製した。

試料構造は図1にある。n+ GaAs(111)A基板に、シリコンを不純物とする50 nmのn-GaAsバッファ層、および100 nmのn-Al<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As電荷注入層を成長した。シリコンの不純物密度は  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  である。共鳴トンネリングの障壁層として、ノンドープのAl<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As層を20層堆積し、その上にGaAs量子ドットを液滴エピタキシー法で作製した。その後、120 nmのAl<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>Asと、電流ブロッキングのために、70 nmのAl<sub>0.5</sub>Ga<sub>0.5</sub>Asを成長し、10 nmのGaAsでキャップした。

成長試料に、半透明のチタン/アルミ薄膜(6 nm)を堆積し、ショットキーゲートとした。試料の鍵となるのは、GaAs(111)AおよびAlGaAs(111)Aでのシリコン・ドーピングである。成長時の砒素圧力を比較的高い値に設定し、かつ基板温度を比較的低く設定する

ことにより、再現性のよいn型ドーピングに成功した。

図4に、この試料における単一量子ドットの発光スペクトルのバイアス依存性を示す。電圧の変化に伴って、不連続的にスペクトルが変化することがわかる。これは、電荷注入層のフェルミエネルギーと、量子ドットの離散エネルギー準位が交差するとき、量子ドット内の電荷の数が不連続に変化することを示している。すなわち、バイアスの変化により、電荷数を制御することに成功した。

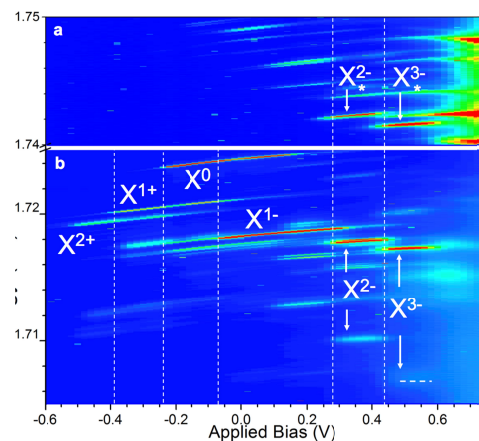


図4. 電荷制御型 GaAs 量子ドット試料の発光スペクトルにおける印加バイアスの依存性。温度は4K。

## (3) 光子相関実験によるスピン緩和の観測

当初計画にあった偏光相関実験についても最終年度に実施した。その結果、想定していた荷電励起子の自己相関信号に現れる偏光ノイズは、残念ながら計測限界以下であることが分かった。しかし、中性励起子-荷電励起子の相互相関に、クーロンブロックド由来のアンチバンチング信号が明瞭に現れることを発見した。アンチバンチングの立ち上がり時間から、単一電荷のスピン緩和時間を評価できる。実験を進めるなかで、立ち上がり時間が、励起強度に強く依存することが判明した。これは励起強度の変化でキャリアの滞在時間が変わるからである。弱励起限界のデータから正孔スピン緩和時間の値を見積もると20ナノ秒(以上)と評価できた。現在、詳細な解析を進めている。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

- (1) 査読有, X. Liu, N. Ha, H. Nakajima, T. Mano, T. Kuroda, B. Urbaszek, H. Kumano, I. Suemune, Y. Sakuma, and K. Sakoda, Vanishing fine structure splittings in telecom wavelength quantum dots grown on (111)A surfaces by droplet epitaxy, *Physical Review B* 90, 081301(R) (2014); doi:10.1103/PhysRevB.90.081301.

- (2) 査読有, N. Ha, X. Liu, T. Mano, T. Kuroda, K. Mitsuishi, A. Castellano, S. Sanguinetti, T. Noda, Y. Sakuma, and K. Sakoda, Droplet epitaxial growth of highly symmetric quantum dots emitting at telecommunication wavelengths on InP(111)A, *Applied Physics Letters* 104, 143106 (2014); doi:10.1063/1.4870839.
- (3) 査読有, G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget, O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda and B. Urbaszek, Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field, *Nature Communication* 5:3268 (2014) doi:10.1038/ncomms4268
- (4) 査読有, T. Kuroda, T. Mano, Neul Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo, M. Abbarchi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, and T. Amand, Symmetric quantum dots as efficient sources of highly entangled photons: Violation of Bell's inequality without spectral and temporal filtering, *Physical Review B* 88, 041306(R) (2013); doi: 10.1103/PhysRevB.88.041306.
- (5) 査読有, M. V. Durnev, M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, M. Jo, T. Mano, T. Kuroda, K. Sakoda, S. Kunz, G. Sallen, L. Bouet, X. Marie, D. Lagarde, T. Amand, B. Urbaszek, Magnetic field induced valence band mixing in [111] grown semiconductor quantum dots, *Physical Review B* 87, 085315/1-11 (2013); doi: 10.1103/PhysRevB.87.085315.
- (6) 査読有, M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, M. Gurioli, K. Sakoda, Bunched photon statistics of the spectrally diffusive photoluminescence of single self-assembled GaAs quantum dots, *Physical Review B* 86, 115330-1-4 (2012); doi: 10.1103/PhysRevB.86.115330.
- (7) 査読有, Y.-H. Liao, C.-C. Liao, C.-H. Ku, Y.-C. Chang, S.-J. Cheng, M. Jo, T. Kuroda, T. Mano, M. Abbarchi, K. Sakoda, Geometrical impact on the optical polarization of droplet epitaxial quantum dots, *Physical Review B* 86, 115323-1-11 (2012); doi: 10.1103/PhysRevB.86.115323.

〔学会発表〕(計 20 件)

- (1) 招待講演, 2015/03/17-19, 黒田隆, 量子ドットもつれ光子源, 2015 年度精密工学会春期大会学術講演会シンポジウム量子光工学の現状, 東洋大学(東京)
- (2) 招待講演, 2014/08/17-21, T. Kuroda, Postselection-free entangled photons from highly symmetric quantum dots grown by droplet epitaxy, SPIE Optics+Photonics

2014, San Diego Convention Center, San Diego, US

- (3) 招待講演, 2013/05/17, 黒田隆, 半導体量子ドットを用いた量子もつれ光子対の発生, 2013 年度レーザ・量子エレクトロニクス研究会, 金沢大学(金沢)

他

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計 0 件)  
取得状況(計 0 件)

〔その他〕  
プレスリリース,  
世界最高性能の量子ドットもつれ光子源の開発, 独立行政法人物質・材料研究機構, 北海道大学, 2013 年 7 月 29 日

研究代表者のホームページ  
[http://www.nims.go.jp/laser\\_kuroda](http://www.nims.go.jp/laser_kuroda)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

黒田 隆 (KURODA, Takashi)  
独立行政法人物質・材料研究機構・先端  
フォトンクス材料ユニット・主席研究員  
研究者番号: 00272659

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

間野 高明 (MANO, Takaaki)  
独立行政法人物質・材料研究機構・先端  
フォトンクス材料ユニット・主任研究員  
研究者番号: 60391215

### (4) 研究協力者

Bernhard Urbaszek, Xavier Marie, and Thierry Amand, Université de Toulouse (France)

Shun-Jen Cheng, National Chiao Tung University (Taiwan)

ハヌル (HA, Neul), 劉祥明 (LIU, Xiangming), 独立行政法人物質・材料研究機構・ポスドク