

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03812

研究課題名(和文) スピンノイズ・核磁気共鳴法で観る電子・核スピン結合系のミクロな揺らぎ

研究課題名(英文) Microscopic fluctuations in electron-nuclei coupled systems observed by Spin Noise Spectroscopy-Nuclear Magnetic Resonance Technique

研究代表者

鍛冶 怜奈 (Kaji, Reina)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：40640751

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：熱平衡電子のスピン探査に特化したスピンノイズ分光と、核スピン研究で実績がある核磁気共鳴法の特長を併せ持つ「スピンノイズ・核磁気共鳴法」の開発に向けて、光学系の構築・改良作業とテスト試料の選定、歪み印加デバイスの作製に取り組んだ。本研究で注目したn-AlGaAsバルクでは当初の予想に反して、外部磁場を大きく上回る巨大核偏極の形成が確認された。また、サブテームで進めた単一量子ドットの磁気発光測定では、電子-核スピン相関時間の評価と核四極子相互作用に関する新たな知見の獲得に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

混晶化や格子歪みに起因する核四極子効果は、サブテームの磁場領域において、核スピン系のエネルギー構造を大きく変化させる重要な相互作用の一つである。これとの関連が濃厚なn-AlGaAsバルクにおける巨大核偏極形成は報告例がなく、非常に興味深い発見と言える。また、単一量子ドット発光の時間分解測定から、核四極子相互作用の主軸成分が電子-核スピンダイナミクスで果たす役割が明らかになった。これらを含む一連の成果は、将来的に半導体中の電子-核スピン結合系の応用領域を拡大する上で大いに役立つものであり、高い学術的・社会的意義がある。

研究成果の概要(英文)：To develop a new spectroscopic technique “SNS-NMR” that combines the features of Spin Noise Spectroscopy (SNS), which specializes in studying for the electron spin in thermal equilibrium, and Nuclear Magnetic Resonance (NMR), which has a proven track record in the study of nuclear spin, we worked on the construction and improvement of optical systems, selection of test samples, and fabrication of strain-tuning devices. Contrary to initial expectations, the formation of giant nuclear spin polarization, which greatly exceeds the external magnetic field, was detected in n-AlGaAs bulk. In the magneto-photoluminescence measurement of single quantum dots, which was carried out as a subproject, we evaluated the correlation time of the hyperfine interaction which couples the electron and nuclear spins in the localization volume and obtained new knowledge about the nuclear quadrupole interaction.

研究分野：半導体スピン物性

キーワード：半導体 核スピン分極 核四極子相互作用 量子ドット

1. 研究開始当初の背景

量子情報分野への応用を駆動力として、固体材料におけるスピン物性探査および操作技術の研究が進む中、半導体量子ドット構造 (Quantum Dots: QDs) では、格子核スピン集団 ($\sim 10^4$ - 10^6 個) と電子スピンの間に働く超微細相互作用 (HFI) の増強を通して、種々の興味深い現象が報告されてきた [1]. 特に、非平衡核スピン分極 (NSP) の発生は量子メモリ [2] や電子スピン操作の支援ツール [3] としての展開も期待されてきたが、核スピン集団の揺らぎが「核スピンノイズ」として深刻な電子スピン緩和をもたらす [4] ことは、当時から大いに問題視されていた。

2005 年以降、スピンノイズ分光 (Spin Noise Spectroscopy: SNS) と呼ばれる測定法が、半導体中の電子スピン探査に用いられている [5]. スピンの揺らぎが生み出すスピンノイズ信号を非共鳴プローブ光で検出し、周波数領域で解析する本手法の特徴は、電子や正孔などの実励起を伴わず、注目するスピンの g 因子や緩和時間、粒子数等の情報を抽出できる点にあるが (図 1)、本課題の申請当時は単一 QD への適用例にみられるように、非常に高い検出感度を実証されつつあった [6].

一方、核磁気共鳴 (Nuclear Magnetic Resonance: NMR) 応答を光学的に調べる光検出 NMR は、1970 年代のバルク半導体での提案以来、QD 集団 [7] や単一 QD [8] にも適用範囲を拡大、Sheffield 大の Chekhovich グループが HFI 定数の実測に初めて成功する [9] など、その有用性が再注目されていた。

測定対象に余計な擾乱を与えず、物質や構造が持つ本質的なコヒーレンスを抽出する点が SNS の最大の特色であるが、検出感度の向上が優先された結果、測定自体のポテンシャルを引き出せていない現状が当時であった。超高感度性を有する SNS と、目覚ましい進化を見せる光検出 NMR を組み合わせることで、新たなスピン探査ツールの開発に繋がると考えた。

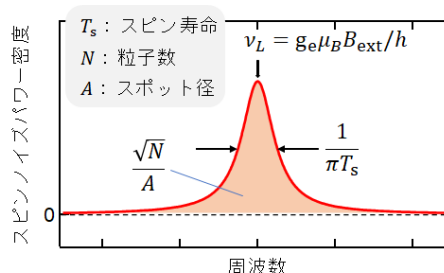


図 1. スピンノイズスペクトルの例。

2. 研究の目的

熱平衡電子のスピン探査に特化したスピンノイズ分光と、核スピン研究で確立されている核磁気共鳴法の特長を併せ持つスピンノイズ・核磁気共鳴法 (SNS-NMR法) を開発し、核スピンノイズが電子スピン緩和に与える効果を明らかにすることが、研究開始当初の目的であった。

3. 研究の方法

目的の達成には、測定系の構築やテスト試料の選定はもちろん、核スピンノイズの源である「核スピン集団の物理」に関する理解を深める必要があった。特に、格子歪みは核四極子相互作用 (Nuclear Quadrupole Interaction: NQI) を通して核スピン系に強く影響することが知られているが [10, 11], 歪みの変調を通して NQI を制御することができれば (NQI チューニング), 核スピンノイズが電子スピン緩和に及ぼす効果が明らかになると共に、電子-核スピン結合系の制御における新たなチューニングノブとして応用範囲の拡大が見込めると考えた。

以上を踏まえて研究期間中は、(1) SNS 信号検出系の構築・改良と (2) テストサンプルの選定、(3) 歪み印加デバイスの作製を主要テーマに定めた。またサブテーマとして、(4) 自己集合 QD の磁気発光測定にも着手、電子-核スピン結合系における重要パラメータの実測や、新たな測定法を導入して NQI に関する知見を得る試みを行った。

各テーマの概要は、以下の通り：

- (1) 時間分解カー回転分光 (TRKR) 系を改造し、SNS 信号取得に向けた光学系を構築した。半導体電子スピンで予想される信号帯域に合わせて、アンプや周波数フィルター等の電気素子を選定、更に長時間測定にも対応できるように無冷媒クライオスタットを導入した。
- (2) n -AlGaAs (Al: 5%, 15%) バルク試料に注目し、TRKR 法で電子 g 因子やスピン緩和時間などのパラメータを収集した。また、核スピンドダイナミクスの調査を進めた。
- (3) 圧電結晶を用いた歪み印加デバイスの作製し、動作確認を行った。併せて、半導体試料のプロセス加工技術を習得した。
- (4) NSP 関連のテーマで実績がある自己集合 InAlAs QD 試料を用いて、時間分解ハル測定 [12] と 2 重双安定現象の調査 [13] を実施した。

4. 研究成果

(1) SNS 信号検出系の構築

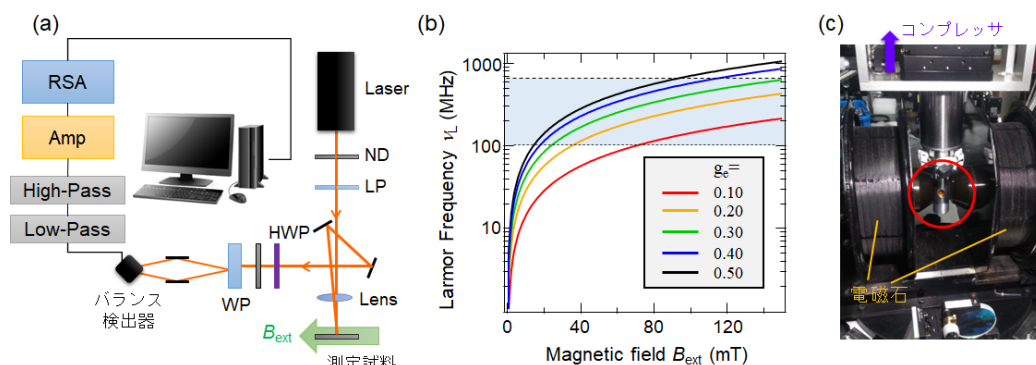


図 2. (a) SNS 光学系の概要 [ND: ND フィルター, LP: 直線偏光子, WP: ウォラストンプリズム, HWP: 半波長板]. (b) 電子歳差周波数の磁場依存性. 本光学系で検出可能な周波数帯 (100-650 MHz) を背景色で表した. (c) 改造したクライオスタットの写真.

本研究で構築した測定系の概要を図 2(a)に示す. レーザー反射光の偏光状態にエンコードされたスピンノイズ信号は, バランス検出器の差分シグナルとして電気信号に変換される. ノイズカット用の周波数フィルター (R&K 製, HP100CH3-0S, LP650CH3-0S) を通過し, 超低ノイズアンプ (NF 回路製, SA251-F6) で増幅した後, リアルタイムスペクトラムアナライザ (Tektronix 製, RSA603A, バンド幅: 9 kHz-3 GHz) に導いた. 電子歳差周波数の推定値を図 2(b)に示す. 本測定系では, バランス検出器 (NewFocus 製, 1609) のバンド幅 (650 MHz) が検出帯域の上限を決める. 予想される信号線幅 [例えばスピン緩和時間が 1 ns の場合 ~320 MHz] とのバランスを勘案して, 実験に適したフィルターの帯域と外部磁場強度 (B_{ext}) を見積もった. また, 長時間測定を可能とするため, 現有していた無冷媒クライオスタットを導入した. 電磁石の磁極間 (~30 mm) に設置できるようにコールドフィンガー部分を改造したところ [図 2(c)], 数日にわたり 10 K 以下で試料温度を保つことが可能となった. また, コンプレッサ由来の振動が十分に抑えられ, 位置の安定性が保たれる点も確認済みである. 以上の準備を経て SNS 測定に臨んだが, 信号検出には至らなかった. 背景ノイズの除去が不十分な点が最大の原因と考えられ, 今後も素子の選定作業に加え電磁波シールドの増設などが必要である.

(2) n-AlGaAs バルク試料の基礎パラメータ収集と巨大核磁場生成の発見

SNS の報告例は *n*-GaAs バルクにおけるものが大多数を占めるが, 本研究では, 報告件数が少なく新規物理現象の発見が期待できる *n*-AlGaAs バルク試料に注目した.

図 3 は *n*-AlGaAs (Al: 15%) における TRKR 信号の時間発展とフーリエスペクトルの外部磁場 (B_{ext}) 依存性である. 残留電子の長いスピン緩和を反映して, 明瞭な振動が 1 ns 以上で観られる. 横磁場配置のデータ [図 3(a)] から, 電子 *g* 因子が 0.172 ± 0.001 と求められた. この値は過去の報告例 [14] と良い一致を示す. また, 信号の減衰時間からスピン緩和時間 $T_s^* \sim 0.7$ ns が得られた.

磁場の印加軸を傾けると, $B_{\text{ext}} = 0$ について非対称なパターンが観られる [図 3(b)]. これは歳差運動をしない電子スピンを介して核磁場 B_N が形成された結果 [15], $B_{\text{ext}} < 0$ ($B_{\text{ext}} > 0$) の領域で B_{ext} の相殺 (増強) が起こるためである. 励起光強度や B_{ext} の印加方向を変えたところ, 最大で ~1.4 T に及ぶ核磁場が検出された. 光による核磁場形成は, GaAs バルクや QD でも報告されているが [1, 15, 16], 外部磁場 (~0.55 T) を大きく上回る核磁場が生じた点は特筆に値する. また, GaAs バルクに比べ, 核磁場形成・緩和時間が非常に長いことが分かった.

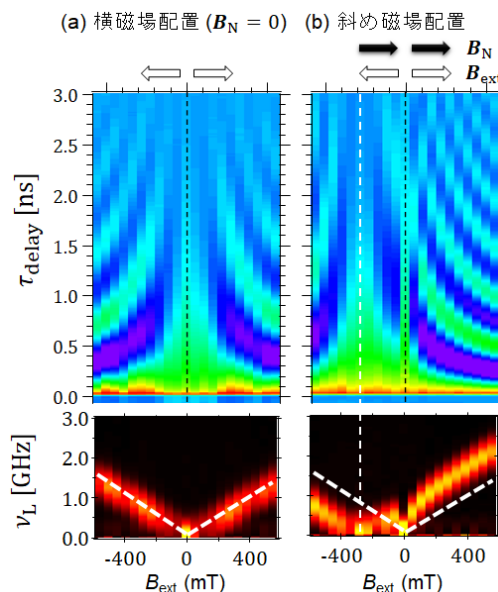


図 3. 横磁場配置(a)と斜め磁場配置(b)における *n*-AlGaAs の TRKR 信号 (上段) とフーリエスペクトル (下段). NSP によって波形が大きく変化.

GaAs と AlGaAs (Al: 15%) を比較すると、核磁場の大きさや形成・緩和時間に大きな違いが観られた。これは研究開始時に想定しなかった事柄である。AlGaAs 固溶体では混晶化による電場勾配が NQI を誘起することが知られていたが [15]、この潜在的な NQI と今回の観測結果の関連を追及することで、電子-核スピン結合系の新たな物理を見出せると考えた。そのため、Al 混晶比が異なるバルクサンプル (Al: 5%) を用意し、継続調査を進めている。

本テーマに関して、2 件の学会発表を行った。

(3) NQI チューニングに向けた歪み印加デバイスの作製

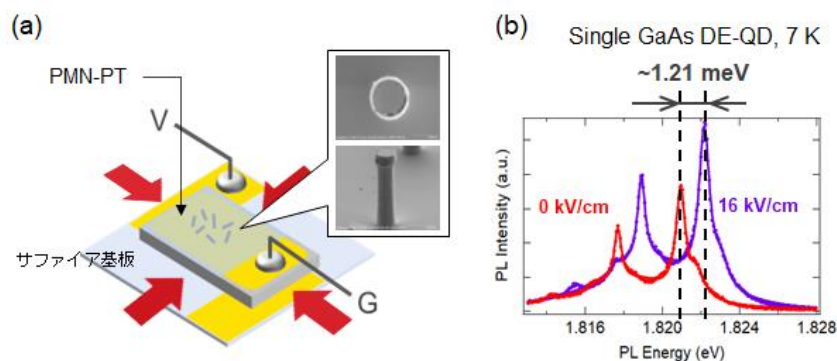


図 4 (a) 歪み印加デバイスの概要と作製したナノピラーの SEM 画像, (b) ピラー散布型デバイスにおける単一 GaAs QD の発光エネルギーシフト (@ 7 K, 0 T).

外部歪みによる NQI チューニングを実証するために、圧電結晶である $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) 単結晶をベースとした歪み印加デバイスを作製した。デバイス概要を図 4(a) に示す。圧電結晶の両面に電極 (Cr: 3 nm, Au: 100 nm) を成膜し、その間に電圧 (≤ 800 V) を印加すると、結晶面内に歪みが発生する。その上半導体試料を固定し、発光エネルギーのシフト量から歪みの伝播量を評価した。

研究当初は、ナノピラー加工 (直径: ~ 700 nm, 長さ: $2 \mu\text{m}$) を施した QD 試料を圧電素子上に散布し、透明レジスト材料の一種である HSQ で固定する方法を採用した。このデバイスでも標的 QD に対して ~ 1.2 meV のエネルギーシフトを与える圧縮歪みを加えることができた ([17], 1 件の学会発表済み)、素子自体の変形量から期待される歪みの伝播には至らなかった。この原因として、圧電素子と半導体試料の接触面積が小さいことや、周囲のレジスト材料で生じたひび割れによる歪み緩和が挙げられた。更にこの固定方法では、歪みの主軸に対して半導体の結晶軸を細かく定めることが難しいという問題があった。

これらの問題を解決するため、R4 年度以降は半導体基板を機械的に研磨した後で、シート状のまま圧電素子に接着する方法を試みた。簡易的な研磨方法でも基板部分を $100 \mu\text{m}$ 程度まで削ることができたため、薄膜化した $n\text{-AlGaAs}$ バルク (Al: 5%) を含むデバイスで TRKR 測定を実施、外部歪みによって信号波形に僅かながらも有意な変化が現れることを確認した [18]。今後は、プラズマエッチング法を併用することで更なる薄膜化を進め、より効率的な歪み伝播、および NQI チューニングの実証を目指す。

(4) 自己集合 QD の磁気発光測定に関する成果

① 時間分解ハル測定の実施と NQI 主軸分布に関する新たな知見

格子歪みを形成駆動力とする自己集合 QD では、通常は NSP 形成が抑制される横磁場配置においても、 100 mT オーダーの強い核磁場が生じる (異常ハル効果 [11])。この現象と歪み誘起 NQI との関連が指摘されてきたが [19]、より詳しい情報を得るために、発光偏光度の時間分解測定を異常ハル効果が現れる条件下で行った。この測定結果とモデル計算を通して、NQI の主軸成分 (結晶成長軸に沿った成分と、それに直交する成分) が異常ハル効果で担う役割が明らかになった。本件について 2 件の学会発表 (共に国際会議での口頭発表) を行ったことに加え、1 編の学術論文を投稿した (現在、査読中 [12])。

② 電子-核スピン相関時間の外部磁場依存性の検証

2020 年に QD 中の核スピン分極が 2 度の双安定性を示すことが発見されたが (2 重双安定現象 [13], 3 件の学会発表済み)、この調査を進める中で、電子-核スピン結合系の相関時間が外部磁場強度に対して実効的に依存することが明らかになった。相関時間は、スピンドイナミクスを特徴づける重要なパラメータである。本件について 3 件の学会発表 (内 1 件は国際会議でポスター発表) に加え、1 編の学術論文を執筆、投稿に向けて準備を進めている。

REFERENCES

- (1) まとめは B. Urbaszek *et al.* Rev. Mod. Phys. **85**, 79 (2013).
- (2) J. M. Taylor *et al.* Phys. Rev. Lett. **90**, 206803 (2003).
- (3) S. Muto *et al.* Appl. Phys. Lett. **87**, 112506 (2005).
- (4) I. A. Merkulov *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 205309 (2002)等.
- (5) M. Ostreich *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 216603 (2005). まとめは G. M. Müller *et al.*, Physica E **43**, 569 (2010).
- (6) Kuhlmann *et al.*, Nat. Phys. **9**, 570 (2013), Dahbashi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 156601 (2014).
- (7) Flisinski *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 081308 (2010).
- (8) E. Chekhovich *et al.*, Nat. Phys. **9**, 74 (2013).
- (9) E. Chekhovich *et al.* Nat. Mat. **16**, 982 (2017).
- (10) C. Latta *et al.*, Nat. Phys. **5**, 758 (2009), A. Hogele *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 197403 (2012) 等.
- (11) O. Krebs *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 056603 (2010).
- (12) S. Yamamoto, RK, S. Adachi, submitted to Phys. Rev. B (under peer review).
- (13) S. Yamamoto, RK, H. Sasakura, S. Adachi, Phys. Rev. B **101**, 245424 (2020), Jpn. J. Appl. Phys. **60**, SBBH07 (2021).
- (14) C. Hermann and C. Weisbush, Phys. Rev. B **15**, 823 (1977) など.
- (15) F. Meier and B. Zakharchenya, “*Optical Orientation*” Chap.5, North-Holland (1983).
- (16) M. Dyakonov, “*Spin Physics in Semiconductors, 2nd ed.*”, Springer International Publishing AG (2017).
- (17) 野添胡桃：修士論文（2021年度，北海道大学大学院工学院）.
- (18) 田端孝成：卒業論文（2022年度，北海道大学工学部）.
- (19) S. Yamamoto, R. Matsusaki, RK, S. Adachi, Phys. Rev. B **97**, 075309 (2018).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0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 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Reina Kaji, Sota Yamamoto, Zirong Li, Hirotaka Sasakura, Satoru Adachi
2. 発表標題 Emergence of the third stable nuclear state due to the reaction of electron spin relaxation via hyperfine interaction (Poster)
3. 学会等名 22nd International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON22) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Satoru Adachi, Sota Yamamoto, Reina Kaji, Hirotaka Sasakura
2. 発表標題 Impact of nuclear quadrupole interaction in anomalous Hanle effect (oral)
3. 学会等名 22nd International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON22) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Kaji, S. Yamamoto, and S. Adachi
2. 発表標題 Time-resolved measurements of electron-nuclear spin dynamics via anomalous Hanle effect in a single semiconductor quantum dot (oral H-1-03)
3. 学会等名 The 2022 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 沈 安東, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 全光核磁気共鳴によるAlGaAsバルクでの核分極ダイナミクスの研究 (oral B-I-1)
3. 学会等名 第58回応用物理学会北海道支部/第19回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 李 梓榕, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 単一InAlAs量子ドットでの電子・核スピン相関時間の磁場依存性 (oral B I-2)
3. 学会等名 第58回応用物理学会北海道支部/第19回日本光学会北海道支部 合同学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 李 梓榕, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 ナノ構造半導体での超微細相互作用の相関時間の磁場依存性 (oral 15p-D411-8)
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鍛冶 怜奈, 陳ジュアン, 足立 智
2. 発表標題 (111)単一量子ドットにおける価電子帯混合の効果: 発光の偏光状態と 正孔 g 因子の変化(oral 15p-D411-9)
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鍛冶 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 (B-7)
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 斎藤 圭吾, 沈 安東, 安井 翔一郎, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 足立 智
2. 発表標題 時間分解カー回転分光で観るバルク AlGaAsでの大きな核磁場形成 (B-8)
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 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 (B-11)
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 S. Yamamoto, R. Kaji, H. Sasakura, and S. Adachi
2. 発表標題 Double nuclear spin switching in single self-assembled quantum dots
3. 学会等名 The 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2020) (国際学会)
4. 発表年 2020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 (B-6)
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 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 (18p-Z23-1)
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

〔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	足立 智	北海道大学・工学研究院・教授	
	(Adachi Satoru)		
	(10221722)	(10101)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	小田島 聡 (Odashima Satoru)		

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