

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月20日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22310063

研究課題名（和文） 半導体核スピンの全光ナノプローブ技術と実時間イメージング技術の開発

研究課題名（英文） Development of all-optical nano-probing and imaging techniques of nuclear spins in semiconductor nanostructures

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

研究成果の概要（和文）：

本研究は将来の量子演算、量子メモリ、量子メディア変換等のプラットフォームとして注目されている単一量子ドットで、それらの実現に非常に重要となっている電子スピン-核スピン間相互作用（超微細相互作用）の制御・応用を目的としており、これまでの成果をさらに発展させ、単一量子ドットでの核スピンの全光学的制御を行うことを目標としている。このために円偏光度およびオーバーハウザーシフトをプローブとする単一量子ドットでの核スピン分極の精密高感度ナノプローブ技術を開発した。この技術を単一量子ドットでの核スピン分極の揺らぎ測定に適用し、 $\sim 40$  mTの値を得るとともに、電子および正孔スピン緩和への影響を実験と理論の両面から明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

This study aims the manipulation of nuclear spins via hyperfine interaction by all-optical methods based on our previous studies, which is essential for the realization of the applications such as quantum gate operation, quantum memory, and quantum media conversion. For this purpose, in this year, we developed the following two techniques. This technique allowed us to measure the nuclear field fluctuations of  $\sim 40$  mT and to clarify their influences to electron and hole spin relaxations experimentally and theoretically.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2011年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2012年度	3,100,000	930,000	4,030,000
年度			
年度			
総計	14,600,000	4,380,000	18,980,000

研究分野：レーザー分光・固体光物性

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ材料・ナノバイオサイエンス

キーワード：量子ドット、核スピン、スピン緩和

## 1. 研究開始当初の背景

半導体において、核スピン分極に着目し利用するという視点の研究が最近になって盛んになり始めていた。自己集合単一量子ドット

(QD)においても、2005年の大きな核スピン分極の初観測 [Phys. Rev. B **71**,041307 (R)

(2005)] により、種々の応用が期待できるようになってきていた。例えば核磁場が電子にの

み作用するという特異な性質を利用した電子実効g因子の精密制御や、量子メモリ、量子情報転写などである。また $10^5$ 個の30%程度の原子核スピンの光によって数百ミリ秒以内で分極する（いわゆる核スピンスイッチング）ことが観測され、光誘起磁気相転移などアカデミックな興味も尽きない研究対象となっており、世界的には精力的に研究が行われていた（現在もそうである）。自己集合単一QDにおいて、核スピンの分極の光ポンピングと双安定現象の観測に成功している研究グループは世界的にも数少ない[我々の他に、スイスEHT Zurich (Imamogluグループ)、英国Sheffield大(Skolnickグループ)、仏CNRS (Voisinグループ)]。研究開始当初の段階では、自己集合InAlAs, InGaAs, InAs, GaAs単一QDにおいて、平均の核スピンの分極の検出と光学的な単純制御が行われているにすぎず、核種毎の検出や微細制御は実現していない。これはナノスケール領域からの超微弱信号となるために、これまでの方法では検出できないのが現状で、超微弱信号検出手法の確立が急務となっていた。

## 2. 研究の目的

単一QDで重要な電子スピン-核スピン間相互作用（超微細相互作用）の制御・応用を目的として、これまでの成果をさらに発展させ、単一QDでの核スピンの全光学的制御を行うことを目標とした。このため円偏光度(DCP)およびオーバーハウザーシフト(OHS)をプローブとする核スピンの分極の超精密高感度ナノプローブ技術とイメージング技術を開発する。

## 3. 研究の方法

単一InAlAs QDでの正の荷電励起子（スピンペアの2個の正孔+1個の電子,  $X^+$ ）およびSiドープGaAsでの束縛励起子からの発光に特に着目し、全光核磁気共鳴とハンル効果によるオーバーハウザーシフトと円偏光度変化をプローブとして、核スピン全光制御を実証する。同時に既に行っている単一QDポンプ・プローブ法による時間分解測定を2次元に拡張し、実空間の情報と関連させる実空間イメージングを行う。またこれらの測定から、核スピンの分極のダイナミクス・マルチ安定現象の物理解明が行えるように、構築しているモデル中のパラメータ（形成時間、緩和時間等）の実測を行い、モデルにフィードバックさせる。

## 4. 研究成果

本研究は単一量子ドットで重要な電子スピン-核スピン間相互作用（超微細相互作用）の制御・応用を目的として、単一量子ドットでの核スピンの全光学的制御を行うことを目標としている。

このためにまず、円偏光度(DCP)およびオーバーハウザーシフト(OHS)をプローブとする以下の核スピンの分極の超精密高感度ナノプローブ技術を開発した。

### (1) 光ヘテロダイン法による OHS の高感度検出技術の確立:

まず光ヘテロダインポンプ・プローブ測定系を構築し、単一量子井戸試料を用いて、通常のポンプ・プローブや四光波混合信号とヘテロダイン法を用いた場合の信号を比較し、ヘテロダイン法の効果を確認するとともに、参照光強度等の最適化を行った。これらの結果の一部は国際学会で発表を行い、詳細は修士論文および学術論文としてまとめた。

### (2) 単一 QD でのハンル効果による核スピン検出:

単一 QD でのハンル効果を用いることにより、零磁場での微小な核スピンの分極による OHS ( $5 \mu\text{eV}$ ) の検出に成功した。また同時に観測される DCP 変化から零磁場での電子スピン緩和時間を評価し、これまで同一試料で行った他の手法による評価結果と良い一致を得た(図1)。これらの成果は、国際会議、学術論文として発表した他、詳細は博士論文としてまとめた。この成果は単にこれまで成功していなかった自己集合 QD でのハンル効果観測に成功したというだけでなく、電子・核スピン結合系ダイナミクスのモデル構築に貴重な情報を与える成果として評価されている。

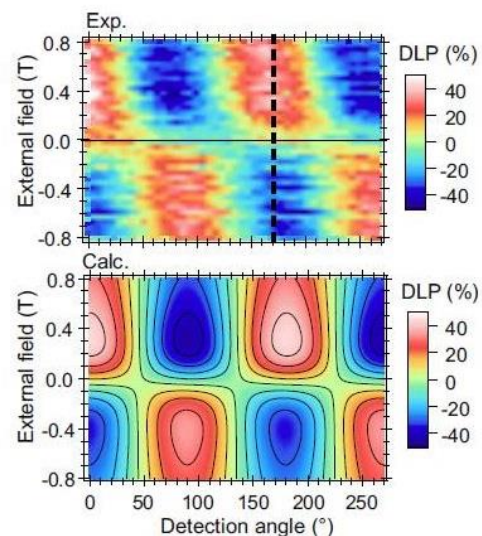


図1 単一量子ドットでのハンル効果による電子スピン緩和測定と微小核磁場の評価

### (3) OHS の高感度検出技術による核スピンの分極揺らぎの測定と電子スピン緩和への影響:

たとえ単一量子ドットからの発光を観測していても、多数回のサンプリング測定を行うならば、多数の核スピンの配置が測定毎に異なることに起因する核スピン分極揺らぎが、したがって核磁場揺らぎが影響する。我々は正の荷電励起子(X<sup>+</sup>)に着目し、その発光円偏光度 (DCP)とオーバーハウザーシフト(OHS)の時間発展を測定し、両者の同期した増減を確認した (図2)。これらのデータの組を外部磁場強度を変えて測定し、プロットすると、1本の曲線上に乗ることを見出した。その曲線の深さと幅から、核スピン揺らぎによる電子スピンのアンサンブルスピン緩和時間 (~1 ns)と核スピン揺らぎ(~40 mT)を得ることに成功した (図3)。これに関しては既に2, 3の報告例があるが、全く異なる新たな手法で実測したものであり、ここでは従来の理論からのずれが指摘でき、新たな研究問題を示唆する重要な結果となっている。

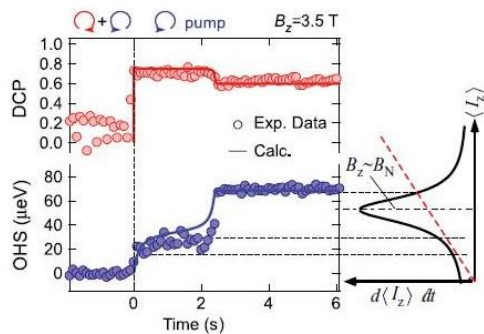


図2. X<sup>+</sup>でのDCPとOHSの時間分解測定

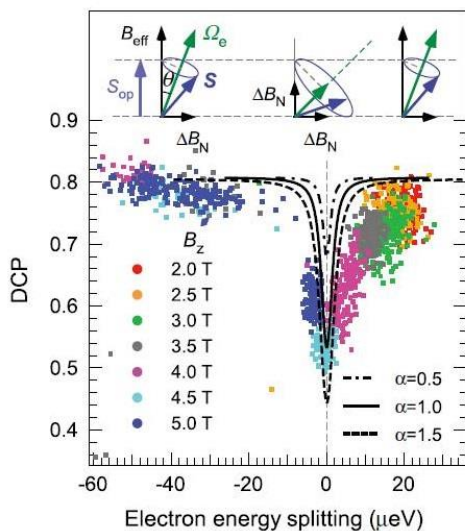


図3. X<sup>+</sup>でのDCPとOHSの磁場依存性。上段はそれぞれの電子準位エネルギー分裂における電子スピン $S$ とトルクベクトル $\Omega_e$ および核磁場揺らぎ $\Delta B_N$ の配置。

#### (4) 核スピン分極揺らぎによる正孔スピン緩和への影響:

核スピン分極揺らぎによる正孔スピン緩和への影響と量子ドットの歪誘起価電子帯混合(VBM)を詳細に調査するとともに、100%核スピン分極達成を目指した新規光ポンピングおよび制御法開発を行った。計測手法として、定常発光のオーバーハウザーシフトの精密計測、2色ポンプ・プローブ法とカー回転法による時間分解計測を用いた。これらの成果のうち、1件については学術論文として近日中に掲載される。他については学会発表を行った。

純粋な重い正孔(HH)はx(y)成分を持たないので、スピンのz成分は揺らぎの面内成分と結合せず、緩和は生じない。しかし実際の量子ドットでは、純粋なHHは存在せず、軽い正孔(LH)が混合した状態になる。このため面内スピン成分を持つようになり、揺らぎの面内成分とスピンのz成分の結合が生じ、スピン緩和を引き起こす。即ち核磁場揺らぎによる正孔スピン緩和にはVBMの程度が大きく影響することが分かった。計算と多数の単一量子ドットでのVBMの実測から、InAlAs量子ドットでは電子に比べ10倍のスピン緩和時間(~10 ns)であることを示した(図4)。

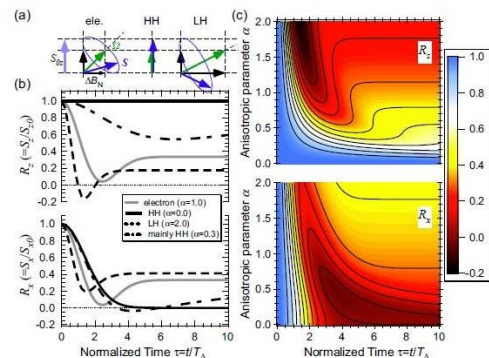


図4. 核磁場揺らぎ正孔スピン緩和への影響。

最後に、新規光ポンピングおよび制御手法開発については、まず共鳴励起を行っても発光のオーバーハウザーシフトを観測可能とするために、2カラーポンプ・プローブ法を開発した。通常は共鳴励起を行うとQDからの微弱な発光信号が強いレーザー散乱光に埋もれていますが、これを励起とプローブを時間的に分離して計測することにより共鳴励起でもS/N比の良い発光信号を得ることができる。次にこれまでの濡れ層励起と異なり、飽和しにくい励起準位への禁制遷移を共鳴励起し、フリップ・プロップ支援禁制遷移を利用する手法により30%以上の高核スピン分極率を達成する見込みを得た。しかし現在の励起レーザーのスペクトル幅が電子ゼ

一マン分裂に比較して狭くなく、許容遷移と禁制遷移を完全に分けて励起できていないため、クリアなデモンストレーションを実行できずにいる。理論的にはさらに高い励起効率が期待できる。電子 g 因子の小さな InAlAs QD においては励起スペクトル幅 < 1 MHz 程度のレーザーが必要であることがこれまでの成果から予想される。

#### 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 14 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 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
- ④ A. Takagi, A. Nakamura, A. Yoshikaie, S. Yoshioka, S. Adachi, S. F. Chichibu, T. Sota, “Signatures of  $\Gamma_1$ - $\Gamma_5$  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
- ⑤ 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
- ⑥ 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
- ⑦ X. M. Lu, Y. Izumi, M. Koyama, Y. Nakata, S. Adachi, S. Muto, “Effects of growth conditions on the size and density of self-assembled InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy”, *Journal of Crystal Growth* **322**, 6-9 (2011) 【査読有】 DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2011.02.034
- ⑧ R. Kaji, S. Adachi, S. Muto, “Exciton spin alignment observed via Hanle effect in single quantum dots”, *physica status solidi (c)* **8**, 30-33 (2011) 【査読有】 DOI: 10.1002/pssc.201000685
- ⑨ S. Ryuzaki, T. Kai, Y. Toda, and S. Adachi, J. Onoe, “Effects of inter-molecular charge-transfer excitons on the external quantum efficiency of zinc-porphyrin/C60 heterojunction photovoltaic cells”, *Journal of Physics D* **44**, 145103/1-4 (2011) 【査読有】 DOI:10.1088/0022-3727/44/14/145103
- ⑩ S. Ohno, S. Adachi, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura, “al anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots”, *Applied Physics Letters* **98**, 161912/1-3 (2011) 【査読有】 DOI: 10.1063/1.3583453
- ⑪ K. Tomoda, S. Adachi, S. Muto, S. Shimomura, “Transient grating studies of phase and spin relaxations of excitons in GaAs single quantum wells”, *Physica E* **42**, 2714–2717 (2010) 【査読有】 DOI:10.1016/j.physe.2009.12.009
- ⑫ R. Kaji, T. Shindo, S. Adachi, S. Muto, “Polarization conversion of excitonic photoluminescence under zero and nonzero magnetic fields in single InAlAs quantum dots”, *Physica E* **42**, 2501–2504 (2010) 【査読有】 DOI: 10.1016/j.physe.2010.01.051
- ⑬ 笹倉弘理, 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「核スピンを光で見る・操作する. 半導体量子ドットの動的核偏極」 *日本物理学会誌* **65**, 247-250 (2010) 【査読有】 .
- ⑭ 足立智, 戸田泰則, 「光波混合法による窒化ガリウム薄膜での励起子間相互作用の実空間マッピング」 *J. Vac. Soc. Jpn.* **56**, 387-392 (2010) 【査読有】 .

[学会発表] (計 30 件)

- ① 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) .
- ② 尾身博雄, 俵毅彦, 鍛冶怜奈, 穂積貴人, 足立智, 後藤秀樹, 寒川哲臣, 「Si 基板上酸化エルビウムのMBE成長」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) .
  - ③ 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) .
  - ④ 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)
  - ⑤ 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) .
  - ⑥ 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) .
  - ⑦ Y. Toda, K. Shigematsu, A. Hasegawa, S. Adachi, "Exciton-exciton interactions in tensile-strained GaN", International Workshop on Nitride Semiconductors: IWN2012 (Oct. 14-19, 2012, Sapporo Convention Center, Sapporo, Japan).
  - ⑧ 黒澤雅博, 巖麗平, 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).
  - ⑨ 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).
  - ⑩ 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).
  - ⑪ 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) .
  - ⑫ 大野慎悟, 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「自己集合量子ドットの対称性低下によるスピン状態混合: 光学異方性からの考察」第 59 回 応用物理学関係連合講演会 (2012 年 3 月 15-18 日, 早稲田大学, 東京).
  - ⑬ S. Adachi, "Spin interactions of electron and nuclei in individual quantum dots" 【invited talk】 , Workshop on Fabrication, Spectroscopy and Modeling of Semiconductor Quantum Dots (5-6 March, 2012, NCTU, Taiwan).
  - ⑭ R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, "Spin dynamics of coupled electron-nuclear system in individual quantum dots", 第 16 回 半導体スピン工学の基礎と応用 PASPS16 (11/28-29, 2011, 東京工業大学, 東京) .
  - ⑮ R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, "Direct observation of the correlation time of Overhauser field in single quantum dots", 12th International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems: OECS12 (September 12-16, 2011, Cité Internationale Universitaire, Paris, France).
  - ⑯ S. Adachi, S. Ohno, R. Kaji, S. Muto, "Strain-induced valence-band mixing on photoluminescence polarization in individual quantum dots", 12th International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems: OECS12 (September 12-16, 2011, Cité Internationale Universitaire, Paris, France).
  - ⑰ 大野慎悟, 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「単一量子ドットの光学異方性: 異方的交換相互作用と歪誘起価電子帯混合」第 72 回 応用物理学会学術講演会 (8/29-9/2, 2011, 山形大学, 山形市) .
  - ⑱ R. Kaji, S. Adachi, S. Muto, H. Sasakura, "Experimental estimation of the effective field correlation time in a single InAlAs quantum dot", 6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology: SPINTECH6 (August 1-5, 2011, Shimane Prefectural Convention Center, Matsue, Japan).
  - ⑲ S. Ohno, R. Kaji, S. Adachi, "Optical anisotropy and polarization states in individual self-assembled InAlAs quantum dots", 6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology: SPINTECH6 (August 1-5, 2011, Shimane Prefectural Convention Center, Matsue, Japan).

- ⑳ X. M. Lu, Y. Jiang, S. Adachi, and S. Muto, "Preferred orientation and magnetic properties of ZnO thin films doped with Fe and Mn prepared by sol-gel method", 30th Electronic Materials Symposium: EMS30 (Laforet Biwako, Shiga, 6/29-7/1, 2011).
- ㉑ Y. Yokoyama, S. Furukawa, R. Kaji, and S. Adachi, "Nuclear spin diffusion in a single InAlAs quantum dot observed by using erase-pump-probe technique" 30th Electronic Materials Symposium: EMS30 (Laforet Biwako, Shiga, 6/29-7/1, 2011).
- ㉒ S. Adachi, S. Ohno, and R. Kaji, "Optical anisotropy and polarization states in individual self-assembled InAlAs quantum dots" 30th Electronic Materials Symposium: EMS30 (Laforet Biwako, Shiga, 6/29-7/1, 2011).
- ㉓ X. M. Lu, Y. Izumi, M. Koyama, S. Adachi, S. Muto, "Effects of growth conditions on self-assembled InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy" 30th Electronic Materials Symposium: EMS30 (Laforet Biwako, Shiga, 6/29-7/1, 2011).
- ㉔ 鍛冶怜奈, 笹倉弘理, 足立智, 武藤俊一, 「自己集合単一量子ドットでの動的核スピンの分極過程相関時間の直接評価」第58回 応用物理学関係連合講演会 (3/24-27, 2011, 神奈川工科大学, 神奈川県) .
- ㉕ 大野慎悟, 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「自己集合半導体量子ドットでの光学異方性と発光の偏光状態変化」第58回 応用物理学関係連合講演会 (3/24-27, 2011, 神奈川工科大学, 神奈川県) .
- ㉖ 黒澤雅博, 足立智, 「GaAs 単一量子井戸でのスピン寿命の時間分解カー回転測定」第46回 応用物理学会北海道支部/第7回 日本光学会北海道地区 合同学術講演会 (1/7-8, 2011, 室蘭工業大学, 室蘭市) .
- ㉗ 大野慎悟, 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「自己集合半導体量子ドットにおける光学異方性」第46回 応用物理学会北海道支部/第7回 日本光学会北海道地区 合同学術講演会 (1/7-8, 2011, 室蘭工業大学, 室蘭市) .
- ㉘ 鍛冶怜奈, 足立智, 武藤俊一, 「単一ドットのハンル測定: 励起子スピンドイナミクスからの考察」第71回 応用物理学会学術講演会(2010年9月14日~9月17日, 長崎大学, 長崎市) .
- ㉙ K. Tomoda, S. Adachi, "Motional narrowing of exciton spin relaxation in GaAs single quantum wells", 9th

International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials: EXCON10 (11-16 July, 2010, Novotel Brisbane, Brisbane, Australia).

- ③⑩ R. Kaji, S. Adachi, S. Muto, "Exciton spin alignment observed via Hanle effect in a single quantum dot", 9th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed and Nano Materials: EXCON10 (11-16 July, 2010, Novotel Brisbane, Brisbane, Australia).

[その他]

ホームページ等

<http://labs.eng.hokudai.ac.jp/labou/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

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：