

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 7 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800162

研究課題名(和文)半導体量子ドットにおける正孔g因子制御と初期化技術の開発

研究課題名(英文)Control of hole g-factors and spin initialization technique in single quantum dots

研究代表者

鍛冶 怜奈 (Kaji, Reina)

北海道大学・工学(系)研究科(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) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：超微細相互作用によるスピン緩和を受けにくく、電子より長いコヒーレンスが期待される重い正孔スピンに着目し、スピン操作の鍵となるg因子制御とスピンドYNAMIKSの検出手法の開発に着手した。まず、正孔g因子とスピンコヒーレンスに影響を及ぼす価電子帯混合に注目し、外部歪みによる制御デバイス作製に着手すると共に、単一量子リング試料を用いて、歪み誘起価電子帯混合と正孔g因子の相関を実験的に調べた。また、現行の時間分解カー回転測定系の検出感度向上に努めて、負のトリオン生成ダイナミクスに関する知見を得たことに加え、ハンル測定を単一量子ドットに適用し、光誘起核スピン分極に起因するハンルカーブの異常を観測した。

研究成果の概要(英文)：Today, the spin control in the semiconductor quantum dots (QDs) has gained considerable attention. Since the hole spin coherence is expected to be longer than that of the electron due to weak hyperfine interaction, the usage of hole spin is especially favored. First, we studied the correlations between the g-factors and the degree of valence band mixing (VBM) in quantum rings, and found that the hole g-factor shows the anisotropic feature and its magnitude depends on the degree of VBM. Moreover, the effects of the shape and strain anisotropy were discussed theoretically. Next, we tried to improve the S/N ratio of Kerr rotation spectroscopy, and verified the negative trion dynamics in CdTe quantum well. Further, we performed the Hanle measurement in a single QD and observed the anomalous curve implying the formation of in-plane nuclear field. All results in this work are quite important for the demonstration of the hole spin manipulation.

研究分野：半導体光物性

キーワード：量子ナノ構造 正孔スピン g因子 スピン初期化技術 価電子帯混合

1. 研究開始当初の背景

量子ドット(Quantum Dot: QD) に代表される半導体ナノ構造におけるスピン制御は、量子情報処理デバイス応用の観点から益々の注目を集めており、国内外で精力的に研究が進められている。スピン制御を実現するには、スピンコヒーレンス時間の伸長に加え、磁気モーメントとスピン自由度の結合定数であるキャリアg因子の精密制御が必須課題である。

QDで実現される波動関数の3次元閉じ込めは、スピン軌道相互作用に起因するスピン緩和機構を強く抑制する反面、局在キャリアと結晶格子核スピンの間に働く超微細相互作用(Hyperfine Interaction: HFI)の増強をもたらす。このため、核スピン集団($10^4\sim 10^5$ 個/QD)から成る核スピン分極のランダムな揺らぎ(核磁場揺らぎ: ΔB_N)が、主要な局在キャリアのスピン緩和機構となり、III-V族半導体QD中の電子では、コヒーレンス時間がマイクロ秒オーダーからナノ秒オーダーにまで短縮されることが報告されている(図1参照)。

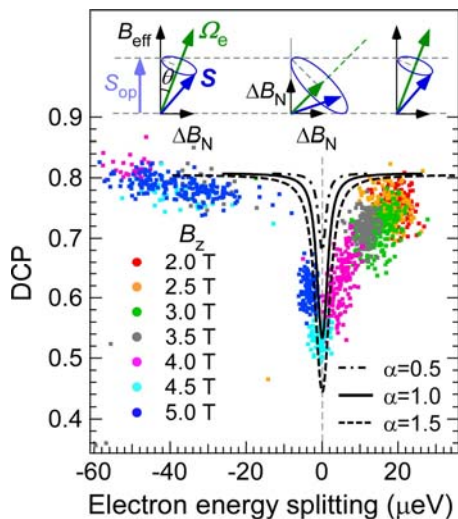


図1. InAlAs QD での ΔB_N による電子スピン緩和の実測 [R. Kaji, PRB **85**, 155315 (2012)].

ΔB_N によるスピン緩和機構は、スピンコヒーレンスの劇的な短縮をもたらすことから、その解消法の開発が急務であり、世界的には大規模ファンドのバックアップの下、分野の第一線で活躍する研究機関が連携して研究を

進めている。打開策としては、1) 100%核スピン分極の生成、2) ゼロHFIキャリアスピンの利用、3) スピン・エコー法による位相揺らぎの収束が挙げられるが、本研究は2)に着目したものである。波動関数の対称性から、正孔-核間HFIは電子-核間HFIに比べて1桁弱く、更に純粋な重い正孔スピンは ΔB_N によるスピン緩和を全く受けないことが理論的に指摘されている。

しかし、軽い正孔スピンとの価電子帯混合 (Valence Band Mixing: VBM) が起こると、重い正孔であっても ΔB_N によるスピン緩和を受けることに加え (R. Kaji, JAP **113**, 203511 (2013)), スピン制御のキーパラメータであるg因子にも変化が生じることが予想される。バリア材料との格子歪みを形成駆動力とする自己集合QDでは、残留歪みの面内異方性により顕著なVBMが誘起されるが、歪み強度と価電子帯混合度の定量的な関係性を明らかにし、その結果として生ずる正孔スピン緩和時間とg因子の変化を系統的に評価することは大いに意義がある。将来的には、打開策3)も組み合わせ、光パルス列を用いた正孔スピンの全光学的制御を目指す、その要素技術としての正孔スピンg因子制御およびスピン初期化技術開発の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究課題では、 ΔB_N の影響を受けにくく、電子より長いスピンコヒーレンスを持つと期待される重い正孔スピンの全光学的制御を目指し、(1) 歪みの電圧制御を用いたg因子制御法の開発と、(2) ヘテロダイン・カー回転顕微分光法を用いた正孔スピンコヒーレンス時間の評価に着手した後、(3) 光ポンピング法を用いた残留正孔スピンの初期化を単一QDで実証することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、(1) 歪みの電圧制御を用いた正孔g因子制御法と、(2) ヘテロダイン・カ

一回転顕微分光法を用いた正孔スピンコヒーレンス時間の評価、(3) 光ポンピング法による正孔スピン初期化技術の開発に着手する。研究期間内に上の要素技術が確立した場合、光パルス列による正孔スピンの全光学的操作の実証を行う。以下、具体的な手法を述べる。

(1) VBM測定の実績がある (S. Ohno, APL **98**, 161912 (2011)) InAlAs QD試料を、圧電素子PMN-PTに貼り付けて外部歪みを印加し、価電子帯混合度の変化を系統的に評価する。その際、試料基板の除去を含むプロセス技術の習得は必須である。歪み印加デバイスが完成したら、磁気発光測定を行い、外部歪みが正孔g因子に与える影響を評価すると共に、正孔g因子制御の可能性を吟味する。

(2) 時間分解カー回転 (TRKR) 分光による正孔スピン緩和時間の評価を目指す。単一QDへの適用に向け、次の段階を設ける：
i) 現行のTRKR測定系での集光用レンズを対物レンズに置き換え、顕微分光用に改造する、ii) 微弱信号検出を可能とするヘテロダイン法適用の準備を行う、iii) TRKR信号取得の実績がある量子井戸試料でのデモ実験を行う。以上の準備が整った後、構築したヘテロダインTRKR測定系を(1)で作製した歪み印加デバイス試料に適用し、正孔スピンコヒーレンス時間を評価すると共に、 ΔB_N によるスピン緩和の影響を吟味する。

(3) 単一QD中の残留正孔スピンと正の荷電励起子から成る3準位ラムダ系に面内磁場を印加し、狭帯域CWレーザーで片方の正孔準位 (例えばアップスピン状態)のみを励起し続けると、選択励起→発光再結合のサイクルが繰り返されることで、残留正孔スピン (この場合、ダウンスピン状態に) を揃えることができる (スピンの初期化)。

4. 研究成果

前項の研究方法に則って、以下の成果(1)~(3)を得た。これらは何れも、本研究課題で目指す正孔スピンの全光学的制御を単一

QDで実証する上で重要な成果であり、今後も継続して、学術論文誌および国内外の会議で報告する予定である。

(1) 外部歪みによる正孔g因子制御を実証するために、必要なプロセス技術の習得に努めると共に、現有するIn(Ga)As量子リング(QR)試料を用いて、正孔g因子と残留歪みに起因するVBMの相関を詳細に調べた。

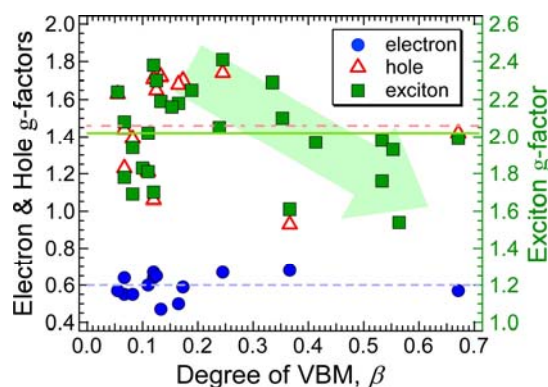


図2. In(Ga)As QRにおける電子・正孔g因子 (面直方向)とVBMの相関 [業績: 雑誌論文3].

まず縦磁場配置において、光誘起核スピン分極を利用した電子・正孔g因子の個別評価を行い、歪み誘起VBMとの相関を調べた (図2)。これは、QR構造における核磁場形成と電子・正孔面直g因子評価に関する初めての報告である。同一試料内に存在する複数のQRで測定を行った所、電子g因子(g_e)に対して正孔g因子(g_h)のばらつきは大きく、更に $|g_h|$ がVBMの増加に対して減少することを示した。

更に、直交する成分である面内g因子に着目して、より包括的な議論の展開を目指した。縦磁場配置の場合と同様に、横磁場下における(g_e, g_h)とVBMの相関データを蓄積すると共に、本課題で導入した試料回転機構を活用して、g因子の面内異方性を調査した (図3参照)。その結果、面内磁場下においても $|g_h|$ のみが大きな値のばらつきを示すこと、及び g_h が面内と面直の両方で大きな異方性を持つことを見出した (但し g_e は等方的)。後者の傾向は、波動関数の対称性を反映した結果であると考えられる。

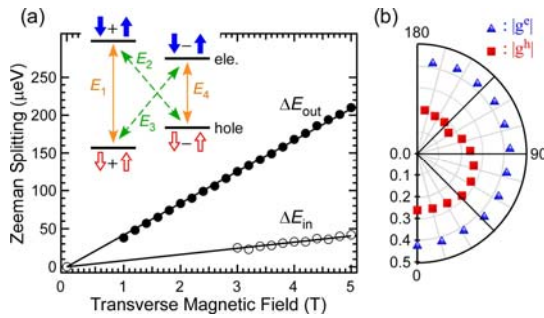


図 3. In(Ga)As QR の電子・正孔面内 g 因子評価
(a) 横磁場下での Zeeman 分裂, (b) (g^e , g^h) の面内異方性 [業績: 雑誌論文 1].

また、(g^e , g^h) の実測結果に関して、鄭舜仁教授 (台湾国立交通大学) と協力して、QR 構造の形状・歪み分布異方性が VBM や g^h に与える影響を理論的に考察し、外部歪みによる正孔 g 因子制御の可能性を吟味した。

スピン操作の実証には、直交する 2 方向の g 因子制御は必須課題であり、本研究で得られた知見は大いに有用なものである。

(2) 正孔スピンのコヒーレンス測定および光ポンピングの実証に有効な TRKR 信号の検出感度向上に努めると共に、CdTe 量子井戸試料において、負の荷電励起子の生成ダイナミクスがスピン歳差運動の初期位相に与える影響を解明した [業績: 雑誌論文 2]。この成果は、本研究で対象とする正の荷電励起子にも適用できるものであり、重要である。

(3) TRKR 分光法と併せて、発光円偏光度 (DCP) 変化を使うハンル測定に着手した。ハンル測定は、定常分光手法でありながら、スピンコヒーレンスや有効磁場変化の検出を可能とする有力な手法であるが、発光が弱い単一 QD の場合、DCP を長時間にわたり安定的に取得することは困難である。我々は、偏光の同時検出光学系を導入して問題を解決し、単一 InAlAs QD のハンル測定を実施した所、光誘起核スピン分極に起因するハンルカーブの異常を観測した。これは、電子 g 因子に大きな変調を与えることに加え、VBM を誘起する残留歪みと密接に関連

するため、正孔スピンコヒーレンスや g 因子制御の知見を得る上で重要な成果である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

1. "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, Journal of Physics: Conference Series **647**, 012011/1-4 (2015), (10.1088/1742-6596/647/1/012011), 査読有。
2. "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, Physical Review B **90**, 205307/1-6 (2014), (<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.205307>), 査読有。
3. "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, Applied Physics Express **7**, 065002/1-4 (2014), (10.7567/APEX.7.065002), 査読有。
4. "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), 査読有, (10.4028/www.scientific.net/AMR.936.534)

[学会発表] (計 24 件)

1. "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 International Conference Center, Toyama, Japan, 26-30 June, 2016).
2. "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 International Conference Center, Toyama, Japan, 26-30 June, 2016).

3. 「Hanle 効果による単一量子ドットの面内核磁場検出」(20a-S223-6) 山本壮太, 松崎亮典, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 63 回応用物理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, 目黒区, 東京都).
4. 「零磁場下における核磁場形成と検出」(20a-S223-5) 松崎亮典, 山本壮太, 足立智, 鍛冶怜奈, 第 63 回応用物理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, 目黒区, 東京都).
5. 「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」(20a-S223-4) 富永隆宏, 鍛冶怜奈, 呉祐年, 巫明帆, 鄭舜仁, 足立智, 第 63 回応用物理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, 目黒区, 東京都).
6. 「単一量子ドットにおける核スピン分極ダイナミクス測定のためのダブルパス AOM の検討」(B-1) 高安遼, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 51 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2016 年 1 月 9 - 10 日, 北海道大学 学術交流会館, 札幌市, 北海道).
7. 「CdTe 単一量子井戸における残留電子スピン分極の形成ダイナミクス」(B-2) 高群哲義, 巖麗平, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 51 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2016 年 1 月 9 - 10 日, 北海道大学 学術交流会館, 札幌市, 北海道).
8. 「零磁場下における量子ドット核スピン分極」(B-3) 松崎亮典, 足立智, 鍛冶怜奈, 第 51 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2016 年 1 月 9 - 10 日, 北海道大学 学術交流会館, 札幌市, 北海道).
9. 「単一 InAs 量子リングにおける正孔面内 g 因子の測定」(B-4) 富永隆宏, 鍛冶怜奈, 呉祐年, 鄭舜仁, 足立智, 第 51 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2016 年 1 月 9 - 10 日, 北海道大学 学術交流会館, 札幌市, 北海道).
10. "*Anisotropy of electron and hole in-plane g-factors in single InAs/GaAs quantum rings*"(poster, Tu-PM-9), T. Tominaga, R. Kajii, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S Adachi, 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS17) (Sendai International Center, Sendai, Miyagi, Japan, 26-31 July, 2015).
11. "*Formation dynamics and initial phase shift of resident electron spin polarization observed by time-resolved Kerr rotation spectroscopy*"(poster, Mo-PM-1), L.-P. Yan, R. Kajii, and S. Adachi, 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS17) (Sendai International Center, Sendai, Miyagi, Japan, 26-31 July, 2015).
12. "*Anisotropy of electron and hole g-factors in individual InAs quantum rings*"(invited), R. Kajii and S. Adachi, Japan, Vietnam, Bulgaria and Taiwan Joint Workshop (Shinchu, Taiwan, 17-20 July, 2015).
13. "*Electron and hole in-plane g-factors in single InAs quantum rings*"(oral, Mo III.B-6), R. Kajii, 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. 「単一 InAs 量子リングにおける正孔面内 g 因子異方性の測定」(13a-2Q-13) 富永隆宏, 鍛冶怜奈, 呉祐年, 鄭舜仁, 足立智, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 (2015 年 9 月 13 - 16 日, 名古屋国際会議場, 名古屋市, 愛知県).
15. 「単一量子リングにおける電子・正孔面内 g 因子評価」(11a-A10-8) 富永隆宏, 富井拓真, 鍛冶怜奈, 呉祐年, 鄭舜仁, 足立智, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会 (2015 年 3 月 11 - 14 日, 東海大学湘南キャンパス, 平塚市, 神奈川県).
16. 「面内磁場下での単一 InAs 量子リングの偏光特性」(A-11) 富井拓真, 富永隆宏, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 50 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2015 年 1 月 9 - 10 日, 旭川勤労者福祉会館, 旭川市, 北海道).
17. 「単一 InAlAs 量子ドットにおける核スピンの緩和」(A-8) 畠中道大, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 50 回応用物理学会北海道支部学術講演会 (2015 年 1 月 9 - 10 日, 旭川勤労者福祉会館, 旭川市, 北海道).
18. *"Electron and hole spin dephasing induced by nuclear field fluctuation in semiconductor quantum dots"*(invited), R. Kajii and S. Adachi, International Symposium on Recent Progress of Photonic Devices and Materials (Kobe University, Kobe, Hyogo, Japan, 13-14 November, 2014).
19. *"Effective nuclear field measurement in a single quantum well via time-resolved Kerr rotation technique"* (oral), L.-P. Yan, R. Kajii, and S. Adachi, International Conference on Materials Science and Engineering Technology (MSET 2014) (Shanghai, China, 28-29 June, 2014).
20. 「単一 InAs 量子リングの面内 g 因子測定と光学異方性の考察」(18a-A27-11) 富井拓真, 鍛冶怜奈, 足立智, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 (2014 年 9 月 17 - 20 日, 北海道大学札幌キャンパス, 札幌市, 北海道).
21. 「単一量子リングにおける正孔 g 因子のばらつきと価電子帯混合の相関」(18a-A27-12) 鍛冶怜奈, 富井拓真, 笹倉弘理, 呉祐年, 鄭舜仁, 足立智, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 (2014 年 9 月 17 - 20 日, 北海道大学札幌キャンパス, 札幌市, 北海道).
22. *"Resident electron spin polarization via trion dynamics in a single quantum well"*(19a-A27-4) L.-P. Yan, S. Adachi, and R. Kajii, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 (2014 年 9 月 17 - 20 日, 北海道大学札幌キャンパス, 札幌市, 北海道).
23. *"Precise measurement of electron and hole g-factors using nuclear spin switching in semiconductor nanostructures"*(invited) S. Adachi, R. Kajii, Hokudai-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences (10-11 Spetember, 2014, RIES, Hokkaido University, Sapporo, Hokkaido).
24. 「単一ナノ構造における核スピン分極形成と g 因子制御」(招待講演) 足立智, 鍛冶怜奈, 日本分光学会北海道支部シンポジウム (2014 年 7 月 1 日, 北海道大学札幌キャンパス, 札幌市, 北海道).

[その他]

所属研究室 HP:

http://labs.eng.hokudai.ac.jp/lab0/ultrafast/Adachi/toppage_ja.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鍛冶 怜奈

(KAJI, Reina)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：40640751