

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot



足立 智 (Satoru ADACHI, Ph.D.)
北海道大学大学院工学研究院教授
(Graduate School of Engineering, Professor, Hokkaido University)

応用物理学会 日本物理学会 レーザー学会 会員
受賞：応用物理学会講演奨励賞 (2011, 2008, 2005) コニカ画像科学奨励賞 (1999)
著書：レーザーハンドブック 26章レーザーによる科学計測第4節 オーム社 (2004)
研究専門分野：レーザー分光・固体光物性

あらまし 半導体量子ドットは、伝導電子が数ナノメートルの空間に閉じ込められており、原子に類似した離散的なエネルギー準位を実現している。電子がナノメートル領域に安定して局在することで、電子と原子核の間のスピン交換相互作用が増強される。そのため電子エネルギー準位は大きくシフトし、ついには分光スペクトル上にゼーマン分裂を相殺するほどの核磁場シフトが現れる。ここでは量子ドットにおける核磁場の双安定特性と制御に関する最近の研究を励起偏光依存性を軸に詳しく紹介する。

1. はじめに

トンネル磁気抵抗効果に代表される磁気デバイスの進歩が目覚ましい。ナノスケール領域における磁性制御技術の確立、及び評価手法の開発は、スピントロニクス、量子情報処理等への応用の観点から重要である。一方で分極した核スピンによって発生する核磁場は、その特異な性質から新しい磁力源として注目されている。半導体量子ドットは、半導体特有のエネルギーギャップ制御性を保持しつつ、ナノスケールの3次元閉じ込めにより、原子に類似した離散的なエネルギー準位を実現している。それによりバルクや量子井戸などの高次元半導体に比較して増長されるコヒーレンスやパウリの排他原理を利用したデバイスが研究されている。特に生成される電子（正孔）のスピンコヒーレンスは、散乱過程の減少によって、その寿命と同程度の（もしくはそれを超える）長さを持つと予想される。この特質は量子演算や量子暗号通信など量子情報処理やその他のスピントロニクスデバイスには望ましく、それらの研究は量子ドット研究全体の推進力を与えている。物理的興味としては、ナノスケール閉じ込めにより増強されるスピン交換相互作用が注目され、その制御が応用への鍵となる。これはナノスケール領域にキャリアが長時間閉じ込められることによるが、電子と正孔の間だけでなく、量子ドットを構成する原子核と電子のスピン間にも当てはまる。

この記事において重要である原子核と電子間の磁気的相互作用（超微細相互作用）は、量子ドット以外では他の相互作用に比べ通常無視される程度に弱く、原子核は半導体において背景の周期ポテンシャルを与える役割以外には教科書には現れてこない。しかし量子ドットにおいては、それを構成する原子核数が少ないにも拘わらず、磁場下では電子エネルギー準位を大きくシフトさせ、ついにはその Zeeman 分裂を相殺することも可能にするほどの核磁場として現れる。応用としては、情報伝送に便利な光ビットと高速計算に有利な電子ビット間の量子ビット変換や保持時間の長い核スピンへの情報格納（量子メモリ）などが核スピンを利用して実際に研究されている。

量子ドット以外では核スピン制御に関する研究は早くから行われ、核磁気共鳴法は、物性研究を行うため

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

の確立した手法であり、その応用である核磁気共鳴画像は医療分野において、今や欠かせない。半導体における核スピンの研究も早くから始められているが、電子と原子核の間に働く相互作用(超微細相互作用)は弱く、実験による詳細な議論は難しかった。しかしながら量子ドット構造では三次元的に電子を閉じ込めることができるため、超微細相互作用が増強され、核磁場強度の分光探査が可能となる。上記の応用には精密な核スピン制御技術が要求されるため、核スピン分極形成ダイナミクスの詳細を知ることが不可欠である。

2. 核スピン分極の光誘起

図1に、研究に用いた(In, Al)Asの自己集合量子ドット試料とその発光スペクトルを示す⁽¹⁾。励起光スポット内には、図1の原子間力顕微鏡像より評価した面密度から約500個の量子ドットが存在する。各量子ドットは形状や歪の異方性から僅かに異なる発光波長をもつため、詳細な議論を行うには1個の量子ドットからの発光スペクトルを測定する必要がある。このため、図1(a)に示す様に、不要部分を電子ビーム等で削り取り、観測領域を制限する。この微小領域には平均して数個のドットのみとなり、単一ドットからの鋭い発

光スペクトル(図1(b))が観測できる。この定常発光スペクトルは、種々の測定から同じ唯一つのドットからの発光であることを確かめている。励起位置である濡れ層には、励起強度に依存して多くの電子・正孔が生成されるが、離散化したドット内の電子・正孔の各基底準位にエネルギー緩和するまでの速度や、不純物による微量の残留正孔の影響で、中性励起子(X^0 、電子と正孔が1つずつドットに存在する状態)だけでなく、他の荷電状態になる場合もある。各荷電状態の寿命は1ナノ秒程度であるので、観測時間(1秒)内では 10^9 回程度の発光現象を積算して見ていることになる。ただし同一ドットでは異なる荷電状態が同時に存在することはない。ここでは最も発光強度の強い正の荷電励起子(X^+)に注目する。 X^+ は図中に示した様に、1つの電子とスピン反平行の正孔2個から成る。

次に、5テスラ(T)の磁場を励起光と平行に印加した状態で観測した X^+ 発光ピークのゼーマン分裂量と円偏光度(DCP)の偏光依存性および励起強度依存性を図2に示す。直接遷移型半導体では、光学遷移の選択則により円偏光励起を行うことで、アップ(\uparrow)もしくはダウン(\downarrow)の電子を高い忠実度でドット内に注入できる。図2の横軸は、光路上に置いた1/4波長板

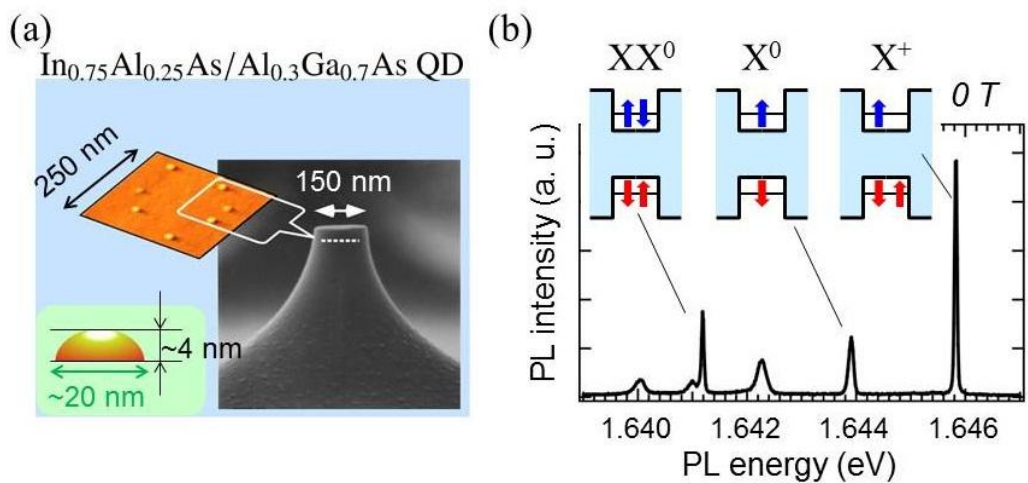


図1 (a) 半導体量子ドット試料のメサ構造 (b) 零磁場での単一ドットからの発光スペクトル (5 K, 濡れ層励起) ここでは正の荷電励起子 X^+ に着目する

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

の回転による励起光の円偏光度変化に相当し、ドットに注入する平均の電子スピン分極度に対応する。励起強度が低い場合 (A) では、直線偏光励起 (図中の点線) の分裂量 (~635μeV) に対し、左円偏光 (σ⁻) では分裂量が増加し、逆の円偏光では分裂量が減少することがわかる。ゼーマン分裂は、縮退していたスピン↑、↓の準位が磁場 (磁束密度 *B*) に比例して分裂する現象であるから、分裂量は励起偏光には依存しないはずである。実験結果は、スピン分極した電子が、核スピンの分極を促し、外部磁場と平行または反平行な核磁場 (*B_N*) が生じることで、電子が感じる磁場が実効的に変化し、ゼーマン分裂エネルギーが変わったことを示している。このような核磁場によるゼーマン分裂エネルギーの変化をオーバーハウザーシフト (OHS) と言う。スピンは小さな磁石のようなものであるから、多数の核スピンの同じ方向を向くと大きな磁場を発生する。1つの量子ドットは10⁴ ~ 10⁵ 個の原子核から構成されているが、現在では 80% 程度の核スピンの同じ向きに揃えることが可能である (図 2 B-D では核スピン分極度 ~ 30%)。

それではこの核磁場とはどのようにして形成されるのだろうか? 今、観測している系の有効ハミルトニアンは以下ようになる。

$$H = g_z^e \mu_B B_z S_z - \frac{1}{3} g_z^h \mu_B B_z J_z + \sum_i A_i \left(I_z^i S_z + \frac{I_+^i S_- + I_-^i S_+}{2} \right) \quad (1)$$

ここで、**S, J, I** は電子、正孔、原子核のスピン演算子であり、右辺第1(2)項は電子 (正孔) のゼーマン分裂エネルギー、以降が電子と核との相互作用を表す。相互作用項 (フェルミの接触型超微細相互作用と呼ばれる) は、対角要素である静的なオーバーハウザーシフトと、非対角要素である動的核分極 (電子と核との相互スピン反転: フリップフロップと呼ばれる) で記述される。*A_i* は結合強度を表わす定数であり、核の位置での電子の存在確率を含んでいる。このため核スピンは、s 軌道の波動関数を有する伝導電子とのみ結合し、p 軌道の波動関数を有する正孔とは結合しない。ここで核磁子の大きさは電子のボーア磁子の 1/2000 程度なので、核のゼーマンエネルギーは無視した。式 (1) を用いると、図 2 の A の結果は次のように説明できる。スピン分極した電子を光注入することで、フリップフロップ項を介して核スピン分極が形成され、その影響として電子スピンのエネルギーが変化する。入射円偏光度の変化が、光注入された電子スピン分極率の変化に対応

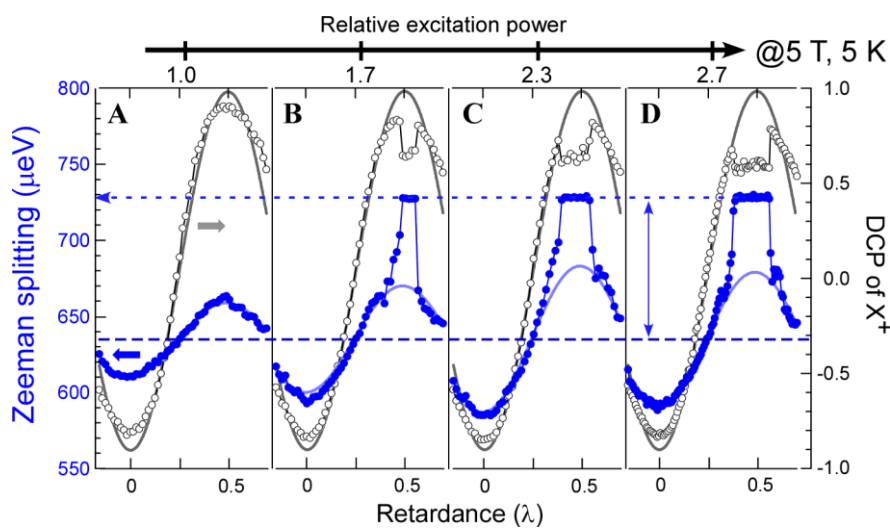


図 2 発光線の Zeeman 分裂 (●) と円偏光度 (○) A→D 順に励起強度を増加させている⁽²⁾

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

するため、核スピン分極度もまた (ほぼ線形に) 変化することになる。それでは次に B-D の励起強度で観られる分裂量の急激な増加やDCP の減少はどのように説明できるだろうか？

3. 動的核分極の双安定性

ここでは、図 2 D に相当する励起強度で、異なる量子ドット QD1、QD2 に対して、同様の実験をした結果を示す。上図が外部磁場 4T での結果であり、下図が 5 T での結果である。図 3 においても図 2 同様、励起の円偏光度に応じてエネルギーが変化している。図より以下の事が見て取れる。

- (1) 低スピン分極条件 (図 2 A) では、スペクトル変化は 1/4 波長板回転角に対して正弦関数的に変化した。これは、核分極度が入射偏光度に対して線形に依存することを示している。一方、高スピン分極条件 (図 2 B-D、 図 3) では、入射偏光度の変化に対し、閾値的に核磁場が変化する。いわゆる「核スピンスイッチング」が起きている。
- (2) 低スピン分極条件では、OHS は入射偏光に対して一意に定まり、波長板の角度 0 に対して左右対称な依存性を示す。一方、高スピン分極条件では (QD2、4 T の結果に顕著な通り) 波長板の角度に対して非対称となる。これは、励起光を σ^- 偏光から σ^+ 偏光

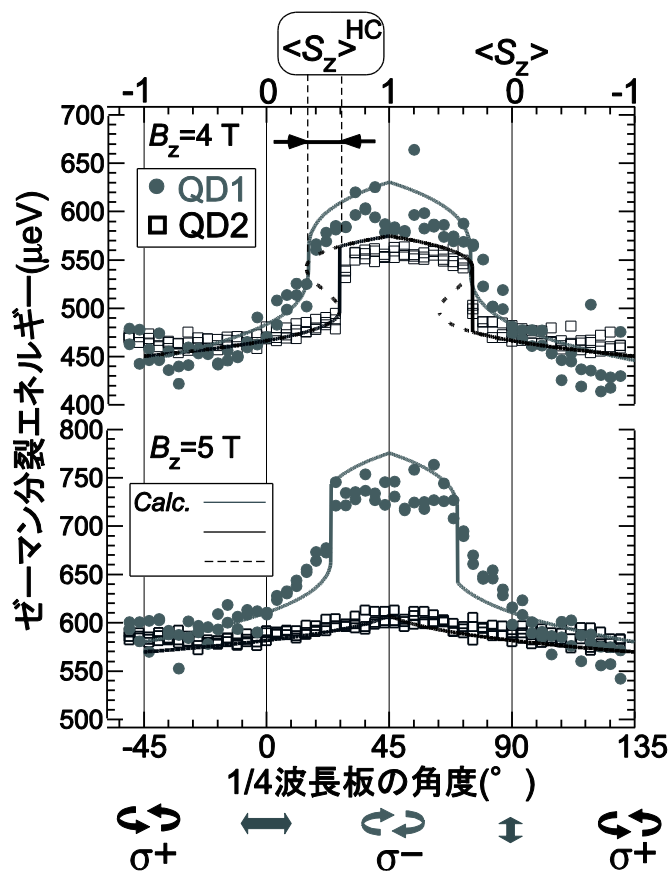


図 3 二つの量子ドット (QD1●, QD2□) に対して同一の励起条件で核磁場を形成させた様子 $B_z = 4.0\text{T}$ (上段)、 5.0T (下段)での励起偏光依存性

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

に掃引した時と、逆方向に掃引した時で、閾値が異なることを示している。すなわち、核分極に「双安定性」・「ヒステリシス」が生じている。

(3) QD1 と QD2 では、核スピンスイッチング閾値や核磁場の飽和値が異なる。また、QD2 の 5T における結果から分かる通り、高磁場においては、双安定性が消失する場合もある。

この振る舞いは現象論的ではあるが、核スピンのアンサンブル平均 $\langle I_z \rangle$ のレート方程式で説明できる^{(3),(4)}。このレート方程式を図示すると図 4 (a) のようになる。量子ドット中にレート W_{op} で注入された電子スピンは、 $1/T_{NF}$ のレートで核とフリップフロップを起こして核スピン分極を形成し、核磁場を発生させる。スピン緩和した電子は ~ 1 ナノ秒の内に正孔と発光再結合し、ドット中から消滅する。核分極はレート $1/T_{ND}$ でスピン拡散等で緩和するが、核スピンの緩和時間は電子と正孔の再結合時間に比べて十分長いいため、電子は外部磁場 (B_z) と準定常的な核磁場 (B_N) の両方を感じたゼーマン分裂を示す。電子の波動関数が量子ドット内で均一であると仮定すると、核スピン分極の形成レートは次のように記述できる。

$$\frac{1}{T_{NF}} = \left[f_e \tau_c \left(\frac{A}{N\hbar} \right)^2 \right] / \left[1 + \left(\frac{\tau_c}{\hbar} \right)^2 \left(g_z^e \mu_B B_z + A \langle I_z \rangle \right)^2 \right] \quad (2)$$

ここで N , f_e はそれぞれ核スピンの個数 ($\sim 10^4$ /QD)、電子スピン分極を担う電子が量子ドットに滞在する確率を表す。核スピンと電子スピンのフリップフロップは、両者の歳差運動のコヒーレンスが破られるときに起こり、その平均時間が τ_c (相関時間と呼ばれる) で与えられるとする。核スピンの緩和時間は一般的に長く、半導体量子ドットでは電子スピンのコヒーレンスが τ_c を支配していると考えられる。

ところで、電子スピンと核スピンではゼーマン分裂エネルギーが ~ 1000 倍程度異なるため、フリップフロップの過程において両者の間でエネルギーの大きな不整合が生じる。このエネルギー収支を補償する 1 つの原因と考えられるのが、 τ_c によるエネルギーの不確定性であり、 τ_c が短いほど効率よくフリップフロップが起きる。また、このエネルギー差を埋める方向で核

磁場を形成すると、フリップフロップ・レートが増加し、さらに電子と核のゼーマンエネルギー差が縮まっていく。このように、フリップフロップ時のエネルギー収支が緩和される条件では、スピン分極形成に正帰還がかかり一気に高い核分極状態になることができる。

励起光の偏光度を変化させる実験では、電子スピン分極 $\langle S_z \rangle$ を変えて $\langle I_z \rangle$ の定常値を OHS として観測している。このとき $\langle I_z \rangle$ の定常解は、図 4 (b) における核スピンの形成項 (ローレンツ型) と緩和項 (直線) の交点に対応する。形成項は $\langle I_z \rangle$ の関数であり、その値は $\langle S_z \rangle$ が大きくなると増加する。

ここで $\langle S_z \rangle$ を -1 (σ^+ 偏光) から $+1$ (σ^- 偏光) へ変化させることを考える。これは核磁場を外部磁場と同じ方向から徐々に打ち消す向きに光誘起させることに対応する (図 4 (c))。 $\langle S_z \rangle = -1$ では分極形成項と緩和項の交点は一意に定まる。 $\langle S_z \rangle^{LC}$ を境に 2 つの安定解が発生し、 $\langle S_z \rangle^{LC} < \langle S_z \rangle < \langle S_z \rangle^{HC}$ では定常解として 2 つの安定解と 1 つの不安定解が存在する (双安定領域)。全系は履歴に従って低い核分極状態をとり、 $\langle S_z \rangle = \langle S_z \rangle^{HC}$ の点で低い核分極状態の安定解が消滅すると、系は急激に高核分極状態に遷移する ($b \rightarrow d$)。更に $\langle S_z \rangle$ を増加させる ($\langle S_z \rangle > \langle S_z \rangle^{HC}$) と核分極は単調に増加する。 $\langle S_z \rangle$ を $+1$ から -1 に変化させる逆過程の場合も同様に考えればよいのだが、 $\langle S_z \rangle^{LC}$ で急激に核スピンの分極度が変化する点 ($c \rightarrow a$) が異なり、これにより核スピン分極形成にはヒステリシス特性が現れる。安定な核分極状態をつくるフリップフロップ・レートの負のフィードバックと、不安定な核分極状態をつくる正のフィードバックが双安定特性を生む鍵である。

実験データの説明に戻ろう。図 3 の 4 T のデータでは、 $\langle S_z \rangle$ を増加させると、ある臨界値 (上述の $\langle S_z \rangle^{HC}$) においてゼーマン分裂が急峻に変化するが、その振る舞いは図 4 (c) に示した定性的な解釈と合致していることがわかる。しかしながら QD1 と QD2 では $\langle S_z \rangle^{HC}$ と OHS の飽和値が異なっている。これは式 (2) の核スピン分極形成項に量子ドット固有の物性値が含まれるためであり、QD1 と QD2 の g 因子と相関時間 τ_c の

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

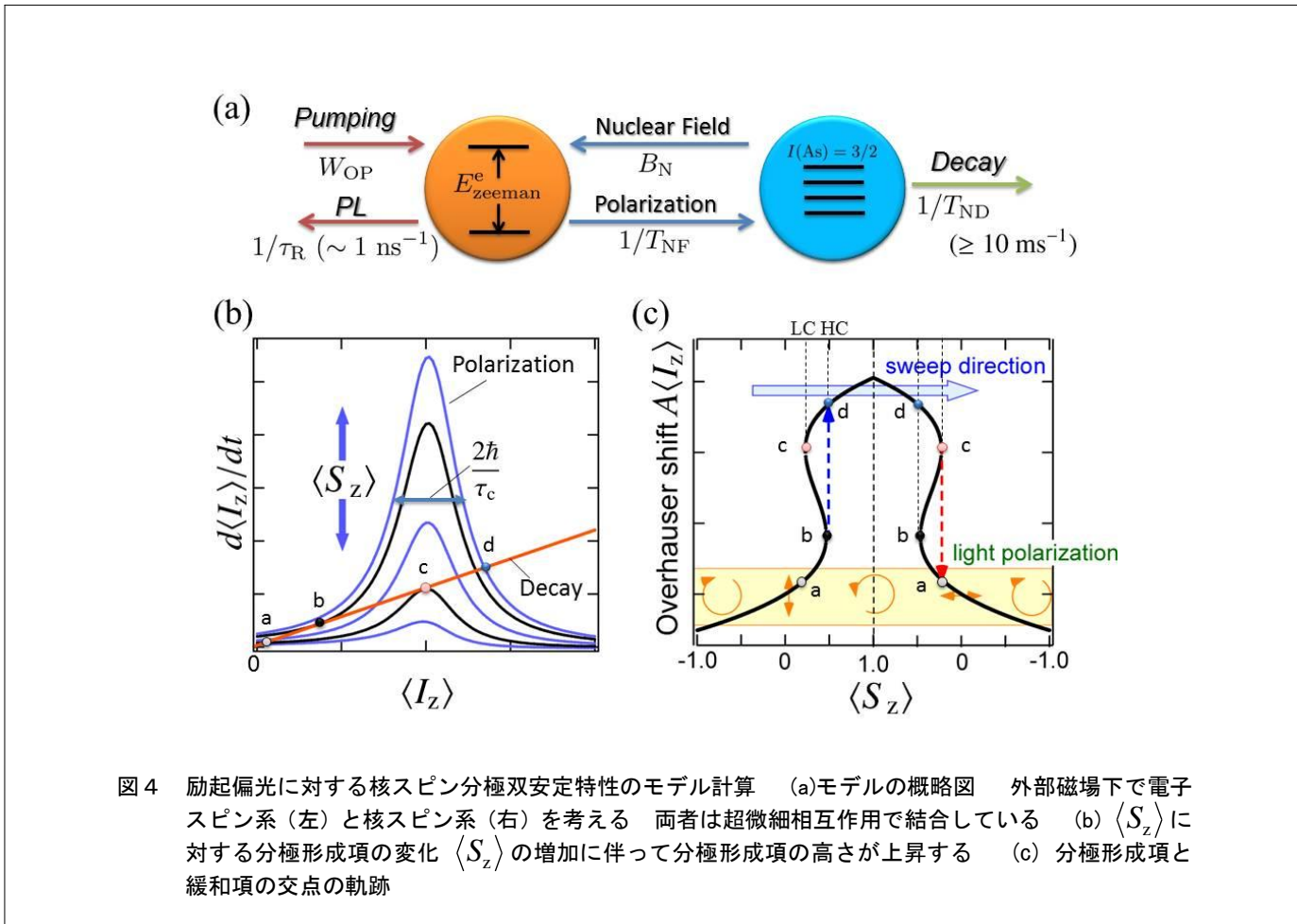


図4 励起偏光に対する核スピン分極双安定特性のモデル計算 (a)モデルの概略図 外部磁場下で電子スピン系(左)と核スピン系(右)を考える 両者は超微細相互作用で結合している (b) $\langle S_z \rangle$ に対する分極形成項の変化 $\langle S_z \rangle$ の増加に伴って分極形成項の高さが上昇する (c) 分極形成項と緩和項の交点の軌跡

違いによって定性的に説明できる。式(2)を見て判るように、相関時間はフリップフロップ過程におけるエネルギー不整合を緩和する働きをする(核分極形成項の半値全幅が $2\hbar/\tau_c$ に対応する)。つまり τ_c が短いほど高い核分極状態が実現しやすく、結果として臨界電子スピン分極度 $\langle S_z \rangle^{HC}$ が小さくなる。一方、電子の g 因子は核磁場形成前の電子のエネルギー分裂を与えるが、これが大きいほど高い分極状態で釣り合うために必要な核磁場が大きくなるため、観測に掛かるOHSの飽和値も大きくなる。

外部磁場を5 T にすると、励起光の条件は同一であるにもかかわらず、QD1 とQD2 で明確な違いが生じる。QD2 では5 Tにおいて双安定現象が観測されない。双安定現象が消失している状況は、図5(c)に示した外部磁場依存性の(I)の領域に対応する。 $\langle S_z \rangle$ を-1

から+1へ変化させているため、どちらのQDにおいても初期状態としての $\langle I_z \rangle$ は低い分極状態である。QD2はQD1と比べて相関時間 τ_c が長いので、図4(b)で示した核スピン分極形成項の半値全幅が狭く、低い核スピン分極状態(a~b)が安定解として存在し続けるためと考えられる。

図4に示した実線は、別の実験で得られた g 因子と位相緩和時間を用いて実験結果を再現したものである。二つの量子ドットの電子(正孔)の g 因子は図4(b)に示したOHSの外部磁場依存性を利用して $g_z^{e(h)} = -0.42(2.52) : \text{QD1}$ 、 $g_z^{e(h)} = -0.34(2.36) : \text{QD2}$ と測定された⁽⁵⁾。電子スピンと核スピンの間の相関時間は、発光の1次の自己相関信号により測定した電子スピンの位相緩和時間 $\tau_c^{\text{QD1(QD2)}} = 18.8(38.7)$ ピコ秒から推定した⁽⁶⁾。これらの測定値を用いることで、実

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

験結果の双安定性を見事に説明することができる。更に、二つの量子ドット間の距離がおおよそ 100 nm 以下であることから、ここでの結果は核スピン分極がナノスケールサイズの局所磁場として働くことを示している。核分極による有効磁場の大きさを見積もると、外部磁場 5T では QD1 には -0.27 T 、QD2 には $+4.27\text{ T}$ の実効的な磁場が形成されている⁽⁷⁾。

4. 核磁場形成のダイナミクス

これまで光誘起された核磁場の定常状態について見てきたが、ここでは核磁場が形成されていく過渡的变化について扱う。図 5 (a) に $B_z = 3.5\text{ T}$ での核磁場形成の過渡的变化を示す。ここでは励起光の偏光を高速変調させて、OHS がゼロとなるように核スピン分極を擬似的にランダムにしながら σ^- 偏光に固定し、その後

のゼーマンエネルギーの変化を測定した。サンプル時間間隔は約100ミリ秒である。 σ^- 偏光励起開始後、約2秒後に核スピン分極が急峻に増加し、高分極状態に遷移する様子がわかる。これは核スピン分極形成レートが $\langle I_z \rangle$ に対して $g_z^e \mu_B B_z = A \langle I_z \rangle$ で極値をもつためである (式(3)、図 3 (a) 参照)。また同時に発光の円偏光度 (DCP) が低下しており、特にOHS が急峻な変化をとる時刻で DCP にも極値が現れる。これは電子-核間のフリップフロップ・レートが増大し、光注入した電子スピンの反転してから発光する過程が増加すること及び B_z が B_N によって打ち消されて電子スピンのエネルギー縮退し、分極せずに残っている核スピンの揺らぎによる電子スピンの散乱が増加する為だと考えられる⁽⁹⁾。

このDCPの変化を利用して電子と核の相関時間 τ_c

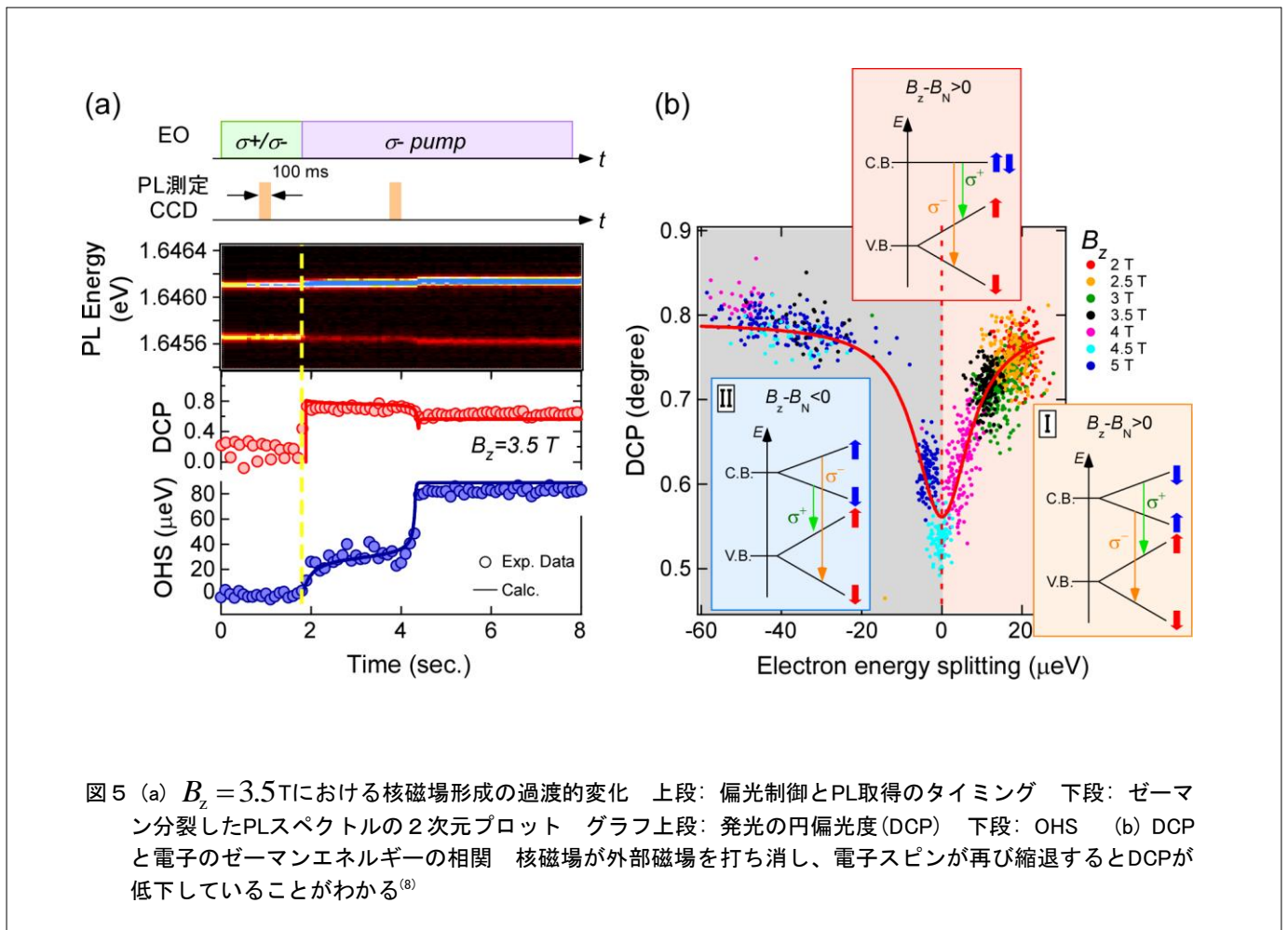


図 5 (a) $B_z = 3.5\text{ T}$ における核磁場形成の過渡的变化 上段: 偏光制御とPL取得のタイミング 下段: ゼーマン分裂したPLスペクトルの2次元プロット グラフ上段: 発光の円偏光度(DCP) 下段: OHS (b) DCPと電子のゼーマンエネルギーの相関 核磁場が外部磁場を打ち消し、電子スピンの縮退するとDCPが低下していることがわかる⁽⁸⁾

光で観る半導体単一量子ドットでの核スピン分極とその操作

Optical observation and manipulation of nuclear spin polarization in a single semiconductor quantum dot

を直接的に観測することができる(図5 (b))。これは図4 (b) 及び式(2)で示した核スピン分極形成項を実験的に再現したことに対応する。図5 (a) で示した $B_z = 3.5\text{T}$ での過渡的な B_N 形成過程では、 $\langle I_z \rangle$ が $b \rightarrow d$ 点へ急峻に変化するため(図4 (a)参照)、筆者らの測定系の時間分解能では、 $B_z + B_N = 0$ となる核スピン分極形成項の極値付近(すなわち電子の準位がエネルギー縮退する状態)を観測することが困難であった。そこで B_z を変化させて測定を行い、図5 (b) 中の実線で示すように核スピン分極形成項を外挿した。電子の準位のみ注目すると $B_z + B_N = 0$ となる点を境に高エネルギー側に配置されるスピンの向きが逆転し(図5 (b) 中、エネルギー準位図)、電子の準位が縮退するとDCPが極値をとっている。DCP 変化の半値全幅は式(2) から $2\hbar/\tau_c$ に対応し、約80ピコ秒であった。これは電子スピンの位相緩和時間とよい一致を示している。

5. おわりに

単一量子ドットにおける核スピン分極の双安定特性を観測した。局所性及び双安定性といった特異性をもつ核磁場は、さらなる高分極化を進めることで、巨大な磁場を安定して供給する新たな磁力源となりうる可能性を秘めている。またナノ・マイクロ領域での磁気秩序形成・零磁場下での核スピンポーラロン形成などに発展する可能性もあり学術面でも興味が尽きない。

参考文献

- (1) T. Yokoi, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, H. Z. Song, T. Usuki, and S. Hirose, *Phys. Rev. B* **71**, 041307(R) / 1-4, (2005).
- (2) R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto. *Phys. Rev. B* **77**, 115345/1-5, (2008).
- (3) Optical Orientation, Modern Problems in Condensed Matter Sciences **Vol.8**, Chaps.2 and 5, edited by F. Meier and B. Zakharchenya (North- Holland, New York, (1984).
- (4) A. Abragam, The Principles of Nuclear

Magnetism (Clarendon, Oxford), (1961).

- (5) R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 261904/1-3, (2007).
- (6) S. Adachi, N. Yatsu, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 161910, (2007).
- (7) H. Sasakura, R. Kaji, S. Adachi, and S. Muto, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 041915/1-3, (2008).
- (8) R. Kaji, S. Adachi, S. Muto, H. Sasakura, "Direct observation of correlation time between electron and nuclear spins in single quantum dots", arXiv 1108. 5239.
- (9) I. A. Merkulov, Al. L. Efros, and M. Rosen, *Phys. Rev. B* **65**, 205309, (2002).

この研究は、平成19年度SCAT研究助成の対象として採用され、平成20年度～22年度に実施されたものです。