

分光学的手法による自己集合単一量子ドットにおける 動的核スピン分極の研究

学位論文内容の要旨

半導体量子ドット (QD) 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 次元閉じ込め構造を有することから、原子に類似した離散的なエネルギー準位を実現する。この理由から生成される電子のスピンコヒーレンスは、その寿命と同程度の (もしくはそれを超える) 長さを持つと期待されるが、この特質は量子情報処理を含めスピン応用の観点から望ましい。一方、閉じ込めによって増強されるスピン交換相互作用は基礎物理としてだけではなく、QD のデバイス応用の観点からもその制御が重要である。これはナノスケール領域にキャリアが長い相互作用時間に亘って局在することに起因するが、電子と正孔の間だけでなく、QD を構成する原子核と電子のスピン間にも当てはまる。本論文を通じて鍵となる原子核と電子間の磁氣的相互作用 (超微細相互作用) は通常、他の相互作用に比べ無視される程度に弱い、QD では相互作用に関与する原子核数が少ないにも拘わらず、磁場下における電子エネルギー準位を大きくシフトさせ、実効的に電子準位を縮退させるほどの核磁場として顕現する。このため QD で増強される超微細相互作用を用いた核スピン分極の光制御が可能となり、長寿命量子メモリや電子-光子量子ビット変換の実現への期待が高まっている。また QD 構造では核スピン揺らぎによる電子スピン緩和機構が大きな影響を持つことが指摘されているため、電子スピン制御の観点からも高い核スピン分極状態の実現および光学的制御には大いに意義がある。

本研究では以上の背景の下、高核スピン分極状態達成を目指して、自己集合単一 InAlAs QD における核磁場の双安定性について詳細に議論する。この結果、励起光強度や偏光、外部磁場の掃引方向に依存したヒステリシス曲線の観測、核磁場による外部磁場補償特性を用いた電子・正孔 g 因子の個別評価、および約 30% に及ぶ高核スピン分極の達成に成功した。また InAlAs が研究報告例の乏しい材料であることから、種々の測定から光学異方性を含め基礎物性パラメータを明らかにした。

本論文は 8 章から構成される。以下に各章の概要を述べる。

第 1 章「序論」では、QD における核スピン分極研究の重要性をスピンドコヒーレンスと電子 g 因子制御の観点から述べるとともに、本論文の目的と意義を明らかにする。

第 2 章「量子ドットにおける励起子エネルギー」では、半導体 QD に関する光学データを読み解く上で考慮すべき荷電状態、複数の光生成キャリアスピン間の交換相互作用、Zeeman 分裂等の基礎的事項について考察する。またスピン研究における中心的トピックスであるスピン緩和現象を古典的なモデルを用いて概説する。

第 3 章「単一量子ドット発光測定系および試料構造」では、本研究で用いた単一量子ドット定常

発光測定系を紹介し、使用した自己集合 InAlAs/AlGaAs QD の試料構造やマクロ領域発光スペクトル等について述べる。

第4章「発光測定による単一量子ドットの特性評価」では、単一 QD に見られる複雑な発光スペクトルの荷電状態を種々の方法を用いて同定するとともに、QD の物性に関わる基礎パラメータを詳細な実験から明らかにした。InAlAs QD は発光波長が検出感度の高いシリコン検出器との整合が最良な領域にあるにも関わらず高品質結晶の成長が困難であったため、2000 年頃にカナダ NRC で一時期研究された以外では物性値評価の報告例が乏しい材料であった。加えて QD はバリア材料との格子歪みを駆動力として自己集合的に形成されるため、空間的に近接する複数の QD に着目してもサイズや形状、残留歪み等が異なり、物性値に多大な影響を与える。この理由から QD 毎に特性評価を行う必要がある。具体的には、標的 QD について電子-正孔間交換相互作用エネルギー、結合エネルギー、発光寿命、位相緩和時間、励起子 g 因子およびその異方性の評価を行った。これらの同定法の開発およびそこで得られた物性値は後述の章における考察の基礎を与える。

第5章「量子ドットにおける光学異方性と偏光変換」では、円偏光で生成した中性励起子が、再結合時に直線偏光を輻射する偏光変換測定から、重い正孔励起子の偏光特性を詳細に議論するとともに、励起子スピン寿命を評価する。この現象は外部印加磁場と異方的交換相互作用による内部磁場、光誘起核磁場で構成される有効磁場による励起子スピンの歳差運動モデルを用いて解釈することが出来る。縦磁場下での実験から標的 QD についてスピン寿命が励起子寿命の 4 倍程度との結果が得られたが、これは零磁場下で複数の QD について得られた試料平均としてのスピン寿命と良い一致を示す。また重い正孔バンドと軽い正孔バンドの混合を考え、これが励起子発光の偏光特性に及ぼす効果を計算から議論する。この章で述べる励起子スピンドYNAMIKS のモデルは、単一 QD でのハル効果測定や自己集合 QD では未だ実現されていない時間分解カー回転測定、光検出核磁気共鳴測定等を記述できる統一的な考え方の基礎を与えている。

第6章「核スピン系における相互作用」では、電子-核スピン間に働く超微細相互作用に焦点を当てつつ、電子スピンによる有効磁場、核スピン間の双極子相互作用、核四極子シフトなど基礎的な相互作用について記述する。また QD において有望と思われる核スピン分極の検出方法及び QD を構成する原子核の物性値についてまとめる。

第7章「核スピン分極のダイナミクスと双安定特性」では、光生成電子スピンの巨視的な核スピン分極を形成するダイナミクスについて記述する。本論文の中心的研究対象となる核スピン分極の双安定特性について、その形成・緩和過程および印加磁場や励起強度などの外部制御パラメータへの応答を 1 つのモデルに基づいて詳しく考察する。その後、自己集合 QD で初めて観測した核スピン分極における双安定特性についての実験結果を吟味するとともに、核スピン分極の制御による電子・正孔の g 因子の個別評価方法、及び高核スピン分極状態の安定性を議論する。高い核スピン分極状態においては、電子の有効磁場（外部磁場と核磁場の和）が零となるため、正孔の Zeeman 分裂のみが観測に懸かる。この特性を利用することで、通常の光学手法では求めることが出来ない電子・正孔 g 因子を個別に、且つ高精度に評価することが可能であることを示す。また正の荷電励起子 (X^+) 発光において、核磁場変化に同期した円偏光度 (DCP) 変化を観測した。 X^+ の DCP が電子スピン分極を反映することから、歳差デコヒーレンスタイプの電子スピン緩和モデルを仮定することで、零磁場での電子スピン緩和時間および電子-核スピン系の相関時間を評価した。ここで得た相関時間は発光の自己相関測定 (4 章に記載) から見積もられる位相緩和時間と良い一致を示す。

第8章「結論」では、本論文の総括を行うとともに今後の展望について述べる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 足 立 智
副 査 教 授 武 藤 俊 一
副 査 教 授 森 田 隆 二
副 査 教 授 明 楽 浩 史

学 位 論 文 題 名

分光学的手法による自己集合単一量子ドットにおける 動的核スピン分極の研究

半導体量子ドットは、ナノスケールの3次元閉じ込め構造を有することから、光生成される電子のスピンコヒーレンスは、その寿命を超える長さを持つことが期待されると同時に、スピン交換相互作用が増強される。これらの利用・制御の研究が量子情報処理・スピントロニクス分野で精力的に行われている。増強されるスピン交換相互作用は、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。このため量子ドットではこのスピン間の磁氣的相互作用（超微細相互作用）を用いた核スピン分極の光制御が可能となり、長寿命量子メモリや電子-光子量子ビット変換の実現への期待が高まっている。また量子ドット構造では核スピン揺らぎによる電子スピン緩和機構が大きな影響を持つことが指摘されているため、電子スピン制御の観点からも高い核スピン分極状態の実現および光学的制御には大いに意義がある。

本論文では、半導体量子ドット中の電子とドットを構成する原子核のスピン間相互作用に着目し、高核スピン分極状態達成を目指して、自己集合 InAlAs 単一量子ドットの光学的物性評価を詳細に行い、その上で動的核スピン分極について議論している。この結果、励起光強度や偏光、外部磁場に依存した核スピン分極双安定特性の観測、核スピン分極を利用した電子・正孔 g 因子の個別評価法の開発、および約 30% に及ぶ高核スピン分極の達成に成功している。

本論文は 8 章から構成されている。以下に各章の要旨を示す。

第 1 章「序論」では、半導体量子ドットにおける核スピン分極研究の重要性をスピンドコヒーレンスと電子 g 因子制御の観点から述べるとともに、本論文の目的と意義を明らかにしている。

第 2 章「量子ドットにおける励起子エネルギー」では、半導体量子ドットに関する光学データを読み解く上で考慮すべき荷電状態、複数の光生成キャリアスピン間の交換相互作用、Zeeman 分裂等の基礎的事項について理論的側面から記述している。またスピン研究における中心的トピックであるスピン緩和現象を古典的なモデルを用いて分かりやすくまとめている。

第 3 章「単一量子ドット発光測定系および試料構造」では、本研究で用いた単一量子ドット定常発光測定系を紹介し、使用した自己集合 InAlAs/AlGaAs 量子ドットの試料構造やマクロ領域発光スペクトル等について解説している。

第4章「発光測定による単一量子ドットの特性評価」では、単一半導体量子ドットに見られる複雑な発光スペクトルの荷電状態を種々の方法を用いて同定するとともに、量子ドットの物性に関わる基礎パラメータを詳細な実験から明らかにしている。InAlAs 量子ドットについては、これまで物性評価の報告例が乏しい材料であったことに加えて、量子ドットが結晶成長中の歪みを駆動力として自己集合的に形成されるため、空間的に近接する複数の量子ドットに着目してもサイズや形状、残留歪み等が異なり、物性に多大な影響を与えている。これらの理由から量子ドット毎に特性評価を行う必要があり、標的量子ドットについて電子-正孔間交換相互作用エネルギー、結合エネルギー、発光寿命、位相緩和時間、励起子 g 因子およびその異方性の評価を行っている。これらの同定法の開発およびそこで得られた物性値は後述の章における考察の基礎を与えている。

第5章「量子ドットにおける光学異方性と偏光変換」では、円偏光で生成した中性励起子が、再結合時に直線偏光を輻射する偏光変換測定から、重い正孔励起子の偏光特性を詳細に議論するとともに、励起子スピン寿命を評価している。この現象を外部印加磁場と異方的交換相互作用による内部磁場、光誘起核磁場で構成される有効磁場による励起子スピン歳差運動モデルを用いて解釈しており、縦磁場下での実験結果を同モデルを用いて解析し、スピン寿命を励起子寿命の4倍程度と評価している。これは零磁場下で複数の量子ドットについて得られた試料平均としてのスピン寿命とも良い一致を示している。また歪み誘起価電子帯混合を考え、これが励起子発光の偏光特性に及ぼす効果を計算と実験から議論している。本章で多くの実験結果によりその妥当性を検討された励起子スピンダイナミクスモデルは、単一量子ドットでのハル効果、時間分解カー回転測定、光検出核磁気共鳴測定等を記述できる統一的な考え方の基礎を与えている。

第6章「核スピン系における相互作用」では、電子-核スピン間に働く超微細相互作用に焦点を当てつつ、電子スピンによる有効磁場、核スピン間の双極子相互作用、核四極子シフトなど基礎的な相互作用について記述している。また量子ドットにおいて有望と思われる核スピン分極の検出方法及び量子ドットを構成する原子核の物性値についてうまくまとめている。

第7章「核スピン分極のダイナミクスと双安定特性」では、光生成電子スピンの巨視的な核スピン分極を形成するダイナミクスについて記述している。自己集合量子ドットで初めて観測した核スピン分極における双安定特性について、その形成・緩和過程および印加磁場や励起強度などの外部制御パラメータへの応答等の実験結果を1つのモデルに基づいて詳しく考察している。またそれを応用して核スピン分極制御による電子・正孔 g 因子個別評価方法を開発し、加えて高核スピン分極状態の安定性を議論している。核スピン分極が作る有効磁場で外部磁場を補償することで、通常の光学手法では個別に求めることが困難な電子・正孔 g 因子を、符号まで含めて高精度に評価することが可能であることを示している。また正の荷電励起子発光において、核磁場変化に同期した円偏光度変化を観測し、歳差デコヒーレンスタイプの電子スピン緩和モデルを仮定することで、零磁場での電子スピン緩和時間および電子-核スピン系の相関時間を評価している。この結果は、別途行った発光自己相関実験から見積もられる位相緩和時間と良い一致を示すことを指摘している。

第8章「結論」では、本論文の総括を行うとともに今後の展望について述べ、ナノ・マイクロ領域の磁気秩序形成や核スピンポーラロン、核スピンの自己分極現象の発見に繋がる研究であると位置づけしている。

これを要するに、本研究は半導体量子ドットにおける電子・核スピン相互作用を種々の単一量子ドット分光を駆使して明らかにした先駆的研究であり、量子情報処理および固体光物性の発展に寄与するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。