



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	ナノ構造半導体における電子・核スピン結合系のダイナミクスと核四極子相互作用
Author(s)	松崎, 亮典
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第13991号
Issue Date	2020-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k13991
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/78207
Type	doctoral thesis
File Information	Ryosuke_Matsusaki.pdf



HOKKAIDO UNIVERSITY
GRADUATE SCHOOL OF ENGINEERING
DIVISION OF APPLIED PHYSICS

学位論文

ナノ構造半導体における
電子・核スピン結合系のダイナミクスと
核四極子相互作用

Dynamics of the coupled spin system of an electron and nuclear ensemble
and nuclear quadrupole interaction in semiconductor nanostructures

指導教員 足立 智 教授

北海道大学大学院 工学院 応用物理学専攻
極限量子光学研究室

松崎 亮典

2020 年 3 月

目 次

第 1 章 序論	1
1.1 ハイブリッド量子系と核スピンエンジニアリング	1
1.2 自己集合半導体量子ドットとその応用	3
1.3 本研究の目的	3
1.4 本論文の構成	4
参考文献	6
第 2 章 半導体量子ドットのスピン物性の基礎	10
2.1 半導体のバンド構造	10
2.2 量子ドットの荷電状態	11
2.3 光学遷移の偏光選択則	12
2.4 異方的交換相互作用によるエネルギー準位と偏光の変化	13
2.5 磁場中の励起子	16
2.5.1 スピン分裂の定義	16
2.5.2 Zeeman 分裂	17
2.6 電子-核スピン結合系の有効磁場	20
2.6.1 超微細相互作用	20
2.6.2 核による有効磁場: Overhauser field	23
動的核スピン分極	23
核スピン分極の形成と緩和	23
核スピン分極の双安定性	25
2.6.3 電子による有効磁場: Knight field	26
2.6.4 核スピン間に働く双極子-双極子相互作用	27
参考文献	28
第 3 章 試料構造と光学測定システム	30
3.1 量子ナノ構造試料	30
3.2 単一量子ドット定常発光測定系	32
3.3 発光スペクトルの同定	33
参考文献	36
第 4 章 電子・核スピン結合系のダイナミクス	37
4.1 磁場中の核スピン分極	37
4.1.1 励起光強度依存性	37
4.1.2 励起光偏光依存性	38
4.1.3 磁場強度依存性	39
4.1.4 電子・正孔 g 因子の個別評価と符号判定	40

4.2	核磁場揺らぎの評価	44
4.3	光子統計性で観る電子・核スピン結合系のダイナミクス	47
4.4	零磁場下における核スピン分極	52
4.4.1	発光の円偏光成分の同時検出	52
4.4.2	零磁場下における核磁場の検出	53
4.4.3	零磁場下における電子スピン安定化	55
参考文献		57
第 5 章	核四極子相互作用と核スピン分極ダイナミクス	59
5.1	核四極子相互作用	59
5.2	核四極子効果による有効磁場の検出	62
5.3	歪印加による核スピン分極制御	64
5.3.1	歪印加デバイスの作製と歪印加によるエネルギーシフトの観測	65
5.3.2	核四極相互作用の歪チューニング	66
参考文献		68
第 6 章	結論	70
6.1	総括	70
6.2	本研究の位置付けと今後の展望	71
付 録 A	角運動量演算子	73
付 録 B	交換相互作用	75
付 録 C	ゼーマン相互作用	80
付 録 D	核四極子相互作用とゼーマン効果	85
D.1	核四極子相互作用ハミルトニアン	85
D.1.1	(補足) CG 係数と既約テンソル演算子, Wigner-Eckart の定理	88
D.1.2	電場勾配の計算	92
D.2	核四極子相互作用とゼーマン効果	93
付 録 E	$3nj$ 記号 ($n \leq 3$)	99
研究業績目録		100
謝辞		105

目 次

1.1 単一 QD 中のスピン結合系に働く相互作用と有効磁場の概念図	2
2.1 半導体でのエネルギーバンドの概略図.	10
2.2 QD の荷電状態変化.	11
2.3 光学遷移の偏光選択則.	12
2.4 電子・正孔交換相互作用によるエネルギー分裂と状態混合.	15
2.5 電子と正孔の g 因子とスピン分裂の定義.	16
2.6 ゼーマン相互作用によるエネルギー分裂.	18
2.7 QD 内で電子・核スピン結合系に作用する有効磁場.	20
2.8 核スピン分極の形成・緩和モデル.	24
2.9 励起強度に対する核スピン分極の双安定性 (モデル計算)	25
2.10 磁場強度に対する核スピン分極の双安定性 (モデル計算)	25
2.11 核スピン拡散モデル.	27
3.1 InAlAs/AlGaAs QD 試料	30
3.2 InAs/GaAs QD 試料構造	31
3.3 顕微分光システムの概略図.	32
3.4 無偏光励起での QD 発光の 2 次元マップと発光スペクトル (@ 0 T).	34
4.1 X^+ 発光スペクトル (@ 6 K, 3 T).	37
4.2 OHS の励起強度依存性.	37
4.3 OHS の励起偏光依存性 (@ 6 K, 3 T)	38
4.4 OHS の磁場強度依存性 (@ 6 K)	39
4.5 直線偏光励起での X^+ 発光のゼーマンシフト.	40
4.6 電子・正孔 g 因子の個別評価.	41
4.7 電子・正孔 g 因子の符号判別.	42
4.8 InAlAs QD と InAs QR での励起偏光掃引による電子・正孔 g 因子の符号判別.	43
4.9 核磁場揺らぎによる電子スピン分極の緩和.	44
4.10 InAlAs QD と InAs QR における発光 DCP の電子ゼーマン分裂エネルギー依存性.	46
4.11 光子相関測定的光学系.	47
4.12 光子相関測定に向けた基礎データ取得.	48
4.13 交差相関信号 (@ 4.2 T, 8 K) と自己相関信号 (@ 0 T, 8 K).	48
4.14 X^+ の光生成・発光過程のダイナミクスモデルと計算結果.	49
4.15 光子相関の実験結果とモデル計算の比較.	50
4.16 発光の σ^+ , σ^- 偏光スペクトルの同時測定系.	52
4.17 零磁場下における発光スペクトル.	54
4.18 零磁場下での OHS, B_N 及び $\langle S_z \rangle$ の励起強度依存性.	55
5.1 核スピン $I \geq 1$ を持つ原子核の電荷分布と周囲の電荷.	59

5.2 核四極子相互作用とゼーマン相互作用によるエネルギー準位変化の概念図 ($I=5/2$ の場合)	60
5.3 $\mathbf{q} \parallel \mathbf{B}$ と $\mathbf{q} \perp \mathbf{B}$ での核準位エネルギーの磁場依存性 ($I=5/2$ の場合).	61
5.4 $B_z=0$ T と 0.8 T での OHS の $\langle S_z \rangle$ 依存性	62
5.5 歪み印加デバイスの概略図と用いた QD 試料構造	65
5.6 歪み印加による QD の発光エネルギーシフト (@ 30 K).	66
D.1 磁場と NQI の主軸の配置.	93
D.2 核準位エネルギー分裂の印加磁場に対する NQI の主軸の傾斜角依存性.	96

表 目 次

4.1	g 因子の符号判別.	43
4.2	交差相関信号のフィッティングパラメータ.	51
5.1	QDs での有効磁場の一覧.	64
D.1	角運動量 J の関数.	91

第1章 序論

本研究で対象とする自己集合半導体量子ドットは、バリア層とドット層間の格子不整合による歪エネルギーの解放を駆動力とした結晶成長法により作製された半導体ナノ構造であり、高さ数ナノメートル、直径数十ナノメートルの大きさを有する。したがって、半導体特有のエネルギーギャップ制御性を保持しつつ、ナノスケール領域へのキャリアの3次元閉じ込めを実現している。光照射により生成された電子・正孔がドット内空間に局在することで、並進運動が抑制されて散乱過程が減少するとともにスピン-軌道相互作用に基づくスピン緩和機構が強く抑制されるため、バルクや量子井戸などの高次元半導体に比較してコヒーレンス時間が伸長される。特に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）長さを持つことが実験的にも観測されている [1, 2]。この特質は量子情報処理分野に限らず、その他のスピントロニクスデバイスへの応用という観点からも望ましく、量子ドット研究全体の大きな推進力となってきた [3]。

一方、キャリアの局在化により増強されるスピン交換相互作用は、電子と正孔のスピン間だけでなく、量子ドットを構成する原子核とドット内電子スピンの間にもあてはまる。本論文を通じて鍵となる原子核と電子の間の磁氣的相互作用（超微細相互作用）は多くの場合、スピン-軌道相互作用など他の相互作用に比べて無視される程度に弱い。しかし、量子ドット構造で実現されるキャリアの局在化は、スピン-軌道相互作用を含めた電子の並進運動に関連する相互作用を抑える一方、超微細相互作用の効果を増強させるため、量子ドット構造特有の現象が観られるようになる。その一つが、動的核スピン分極過程による非平衡核偏極の生成であり、局在電子スピンに対して数テスラにも及ぶ有効磁場（核磁場）として現れる。さらに自己集合量子ドットを構成する III-V 族原子核スピンは、結晶成長過程における残留歪や原子の不規則配列（3 元半導体の場合）等に起因する電場勾配と結合し、核四極子相互作用を誘起する。これにより零磁場下での不等間隔なエネルギー分裂（核四極子分裂）や磁場下での複雑なゼーマン分裂が引き起こされる。自己集合量子ドット中の核四極子相互作用による効果（核四極子効果）は、種々の特異な振る舞いに関連すると推察されているが、その効果の全容は不明で統一的な解釈は得られていない。核四極子相互作用が核スピン分極の形成や緩和に与える影響の全容を解明し、電子・核スピン結合系のダイナミクスを再構築すれば、新たな核スピン集団の利用・応用領域を開拓できると考えられる。

本章では、研究の背景を述べるとともに、量子ドットにおける核スピンエンジニアリング研究に触れ、本論文の目的を明らかにする。

1.1 ハイブリッド量子系と核スピンエンジニアリング

局在電子と核スピン集団が結合したハイブリッド量子系（例えば図 1.1）において、制御可能な量子系（例えば電子スピン）は孤立多体系（例えば核スピン集団）の量子物性を観測・操作するための普遍的インターフェースとなり得ることが理論的に示されている [4]。またその量子多体系の集団励起はメモリとして量子情報を保存できるため [5]、電子スピンと結合する核スピン集団は特に有望である。この観点から今日までに、所謂セントラルスピンモデル [6, 7] で表される幾つかの系、例えば Si 中のドナー [8]、ダイヤモンド色中心 [9]、半導体ナノ構造 [10] で精力的な研究が行われている。

ナノ構造の 1 つである半導体量子ドット (QD) では、内部に局在する電子と核スピン集団との間に働く接触型超微細相互作用 (HFI) が増強されるため、電子から核へのスピン角運動量の転写が容易に実現し、QD には分極率 $\sim 80\%$ に及ぶ大きな核スピン分極 (NSP) が光励起により形成できる [11, 12]. 外界から孤立した NSP は、QD 内に不対電子が無ければ数時間に及ぶ長いスピンメモリ時間を持つ. 準位の離散化や長いスピンコヒーレンスを活かすことで、QD 内局在キャリアが単一光子源や量子ビットへ応用されている状況を鑑みると、QD は量子情報の通信・演算・ストレージの全てのプラットフォームとなり得る. これまでに光、電 (磁) 場等で電子スピンの精密な量子操作が実証されているので、ハイブリッド量子系である QD では HFI を介して電子スピンと同程度の量子操作を核スピン集団にも実現できると期待できるが、その精密な量子状態制御は未だ実現されておらず [13], 完全な電子・核スピン結合系の量子インターフェースの実現に向けて研究がなされている.

図 1.1 に示す様に、QD に代表されるナノ構造では HFI を介して 1 個の電子スピンと $10^4\text{--}10^5$ 個の核スピン集団が強く結合している. NSP は電子に対し核磁場 (Overhauser field) とも言う: B_N) として働く一方で、電子スピン分極も有効磁場 (Knight field: B_K) として NSP に影響するため、2 つのスピン系は複雑なダイナミクスを経て相互に発展する [11, 12]. その結果、結合系では相互に分極を制御できるというポジティブな側面と、互いのデコヒーレンスが伝搬し合うというネガティブな側面が共存する.

光励起した電子スピンとの HFI を通じて、NSP の分極率や分極方向を制御したり、核スピン揺らぎ (核スピンバズノイズ) を除去する等、リザーバとしての核スピン分極を積極的に利用する“核スピンエンジニアリング”を確立することで、電子スピンを量子ビットとする量子演算を支援する機能を付与したり、キャリアスピンの潜在的に持つ極限的なスピンコヒーレンスを引き出すことが可能になる. また、電子スピンは演算した量子情報を記憶しておくメモリ時間が十分ではないため、メモリ機能を核スピン集団に代替させることも期待できる. これらの応用には核四極子効果の積極利用が重要と考えており、外部歪による核四極子効果のチューニングは興味深いトピックスである.

光学的に操作できるスピン系に対し核スピン集団からの影響が小さければ、その量子状態操作自体はより容易になる. このため電子スピンに変わって正孔スピンを量子ビットとする方式も考えられる. 正孔スピンでは HFI によるスピンドコヒーレンスが $1/10$ 以下になると考えられるため、電子スピン利用に比較して優位性がある [14, 15]. この方式においても価電子帯混合 (VBM) の歪チューニングはエネルギー準位や正孔 g 因子の微細制御に利用可能であり、その実現が期待される.

光励起・光制御の特性として、図 1.1 に示す様に必ず電子と正孔が対で生成される. 電子・正孔間の交換相互作用 J_{ex} がそれぞれを量子ビットとしたときの制御に不都合な場合は、交換相互作用が働かない正または負の荷電励起子 (2.2 節参照) を用いることで回避できる.

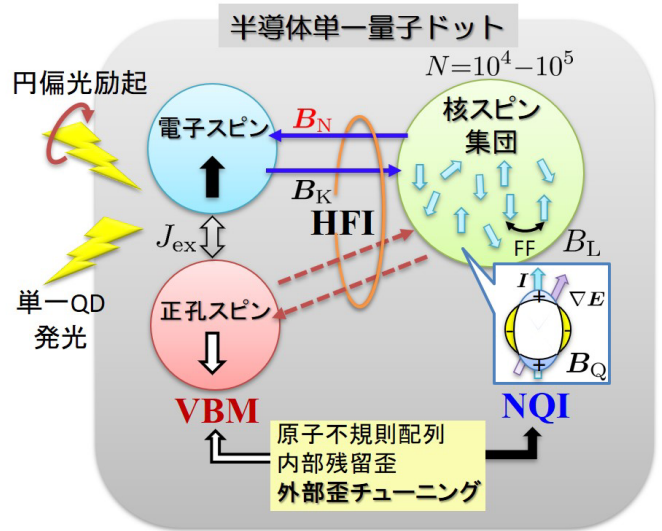


図 1.1: 単一 QD 中のスピン結合系に働く相互作用と有効磁場の概念図. J_{ex} : 交換相互作用, HFI: 超微細相互作用, ∇E : (主に歪誘起) 電場勾配, FF: 双極子相互作用による核スピンの同時スピン反転, VBM: 価電子帯混合, NQI: 核四極子相互作用, B_N : Overhauser field, B_K : Knight field, B_L : dipolar field, B_Q : quadrupolar field. 正孔スピンと核スピンとの HFI (双極子型) は電子スピンとの HFI (接触型) に比較して 1 桁以上小さい.

1.2 自己集合半導体量子ドットとその応用

近年、量子系の状態制御を基本原理として、量子力学・量子光学の情報処理・通信技術への応用研究が精力的に行われている。これには原子や光子、超電導量子回路などを用いて量子ビットや量子もつれが作られており、量子コンピュータ、量子シミュレーション、量子通信、量子センサなどの実現が期待されている。特に超電導を用いた量子コンピュータの開発が先行して進められており、カナダの D-Wave System 社で多数の量子ビットを用いた量子アニール機（簡易型量子コンピュータ）が開発され（D-Wave 200Q では 2000 量子ビット [16]）、米国の IBM 社や Google 社もアニール型ではない汎用型量子コンピュータの開発を競っている。一方で、これまで発見された量子制御法を利用した量子コヒーレンスや固体電子系の量子現象などの新たな研究も盛んである。

本研究の対象である半導体 QD も、電子や正孔のスピンを量子ビットとして利用することで量子情報処理の実現が期待されるものの一つである。3 次元閉じ込めにより、QD 内に閉じ込められた電子・正孔は原子のような離散的なエネルギー量子化準位を示し、状態密度も離散化する。このような性質から、QD は人工原子とも呼ばれる。また、1 個の QD へのアクセスやエネルギーが確定した状態へのアクセスが容易なため、量子情報処理のプラットフォームとしても有望である。

超電導回路を用いた量子コンピュータが先行していることは既に述べたが、QD の電子（正孔）スピンは量子ビットとして拡張性やコヒーレンス等の点で優れており、その将来性に注目して高速スピン操作 [11, 17]、光子-物質間における量子情報転写 [18]、量子メモリ応用 [5] 等が光学的・電気的手法により研究されている。

量子ビットの媒体としては、 $(0, 1)$ 状態の重ね合わせが不可欠であるが、QD の電子はスピン $1/2$ の素粒子であり、理想的な 2 準位系を形成できる。加えて、QD を用いて 3 次元的に閉じ込めることで量子情報を空間的に固定することが可能である。Stanford 大学の Yamamoto らは電子スピンの 2 つの状態間のコヒーレントな Rabi 振動を利用して、電子スピン状態の完全制御を目指した [19]。多量子ビットなどへの対応が不可欠であるものの、この報告は光による電子スピン制御の可能性を示唆している。

多数の QD を連結させた多量子ビットの実現に向けた研究は主に、量子点接触型 QD で電氣的測定から進められている。これまでに電子スピン共鳴を用いた各単一電子スピンへのアクセス [20, 21]、スピン 1 重項・3 重項量子ビットを 2 個用いた量子もつれ操作 [22] などが実現されており、QD の微小さを活用した更なる大規模な量子ビット系の構築が望まれている。

QD を構成する核スピン集団の揺らぎは核磁場の揺らぎとして電子系に作用し、スピンコヒーレンスを大きく減少させる原因になるため [23, 24, 25, 26] 電子スピン量子ビットのパフォーマンスの低下が懸念される。そのため、GaAs に代表される III-V 族半導体ではなく、核スピンを持たない IV 族半導体を用いた QD での研究 [27]、核スピンをもつ同位体の天然存在比が少ない II-VI 族半導体を用いた QD での研究、HFI の影響を受けにくい正孔スピンを量子ビットとして用いる研究 [14, 15] も行われている。また、残留歪を内包する自己集合 QD の特徴である核四極子効果も、電子スピンの影響を及ぼすことが示唆されている [28, 29, 30]。

1.3 本研究の目的

QD における大きな核磁場形成は、量子井戸の界面テラスにトラップされた界面 QD において Gammon らにより 2001 年に報告され [31]、Yokoi らによって 2005 年に自己集合 QD で初めて観測に成功 [32]、2007 年にその双安定性が観測された [33, 34]。AlGaAs バルク半導体でもハニル効果測定を

用いて NSP の双安定性が観測されているが [35], 分極率は QD での報告例に比べて桁違いに小さく, 形成メカニズムも大きく異なる。

本研究室では電子スピン操作における核スピン集団の重要性に早くから着目し, 自己集合 QD における核スピン分極の光形成・検出に世界で初めて成功するとともに [32], 量子ビット変換への応用を提案してきた [18]. 本研究で重要になる NSP の双安定性は, 現在までのところ自己集合 In(Ga)As/(Al)GaAs QDs [33, 34, 36, 37], 自己集合 InAlAs/AlGaAs QDs [38, 39, 40], 自己集合 InP/InGaP QDs [29], 液滴 GaAs/AlGaAs QDs [41] で観測されている. GaAs 界面 QD では 60% にも及ぶ巨大な NSP が報告されているが, その双安定性は確認されていない [31, 42]. また, 種々の外部パラメータに対して NSP の双安定性が報告されている自己集合 QD においても, QD 内における電子・核スピン結合系のダイナミクスは複雑であり, 基礎パラメータも含めて不明な点が多い。

本研究では, NQI が核スピン分極の形成・緩和メカニズムに与える効果を詳細に考慮して, 電子・核スピン結合系ダイナミクスを解明することを目的としている. NQI が横磁場環境下 (Voigt 配置) での NSP 形成に多大な影響を及ぼすことが指摘されているが [43, 44], まずは大多数の実験環境 (零磁場および弱い縦磁場印加環境) において観られる核スピン分極に注目し, その形成・緩和メカニズムを核四極子相互作用に関連させて考察する. また電子スピニコヒーレンスに重大な影響を与える核磁場揺らぎの簡便な計測法, および核磁場形成メカニズムでの重要な物性値である電子 g 因子の符号測定法について, InAlAs 単一 QD と InAs 単一量子リング (QR) を用いて実証する. 特に g 因子の符号は, 我々が提案している巨大な面内 NSP 形成モデルに対して重要な知見を与える [43, 44].

1.4 本論文の構成

本論文は 6 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, 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核スピンエンジニアリング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た。

第 2 章「半導体量子ドットのスピン物性の基礎」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, Zeeman 相互作用, 超微細相互作用, 核スピン間の双極子相互作用, およびスピン結合系での有効磁場等についての基礎的な事項について記述する。

第 3 章「試料構造と光学測定システム」では, 本研究で用いた自己集合 InAlAs/AlGaAs QD および InAs/GaAs QR の試料構造, 超電導マグネット (≤ 5 T) を含む単一 QD 定常発光測定システム, および単一 QD 発光スペクトル等について述べる。

第 4 章「電子・核スピン結合系のダイナミクス」では, 光生成電子スピンが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. 核スピン分極の励起強度, 励起偏光, 印加磁場強度に対する依存性を測定し, 現象論的なモデルに基づいて詳しく考察する。

更に, 核スピン分極の双安定現象 (核スピンスイッチング) を利用した電子・正孔の g 因子の個別評価方法を議論する. 核磁場による外部磁場補償を利用すると, 通常の光学手法では求めることが出来ない電子・正孔 g 因子の個別評価が可能になる点は既に報告されているが [38], 本研究では励起偏光や励起子ゼーマン分裂の変化に着目することで, g 因子の大きさだけでなく符号も含めて評価できることを示す. また, この測定データから核磁場揺らぎの大きさを抽出する手法を開発したので, InAlAs QD と InAs QR での適用例を示す。

その後, 光子相関法をベースとする電子スピン緩和時間の評価方法について, 測定系の概要と単一 InAlAs QD での測定結果, スピンドダイナミクスモデルの計算結果を報告する。

最後に、零磁場下での核スピン分極の観測結果から、電子スピンから生じる Knight field が分極形成で果たす役割を議論する。零磁場で発光の円偏光度や核磁場による電子スピン分裂 (Overhauser shift) を評価するには、発光の偏光選択検出が必要である。測定誤差を低減するために、直交する円偏光成分の同時測定系を構築した。

第 5 章「核四極子相互作用と核スピン分極ダイナミクス」では、まず核四極子相互作用が核のゼーマン分裂に与える影響を計算から議論する。その後、弱磁場下 (≤ 1 T) での核スピン分極の測定結果から、核四極子効果による有効磁場が核スピン緩和レートに与える影響を吟味する。

更に、現在作製中の歪印加デバイスの概要と、それを利用した価電子帯混合および核四極子相互作用のチューニングについての展望を記述する。歪が価電子帯混合に与える影響は、正孔 g 因子の歪チューニングとして、正孔スピンを量子ビットとして用いる量子演算に、核四極子相互作用の歪チューニングは電子スピンを介した核スピン集団の量子状態制御に特に重要である。

第 6 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。

参考文献

- [1] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, and J. M. Gérard, “Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1634-1637 (2001). DOI: [10.1103/PhysRevLett.86.1634](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.1634)
- [2] T. Watanuki, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Long spin relaxation in self-assembled InAlAs quantum dots observed by heterodyne four-wave mixing”, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 063114/1-3 (2005). DOI: [10.1063/1.1861978](https://doi.org/10.1063/1.1861978)
- [3] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (Springer-Verlag, Berlin, 2002).
- [4] L. Amico, R. Fazio, A. Osterloh, and V. Vedral, “Entanglement in many-body system”, *Rev. Mod. Phys.* **80**, 517-575 (2008). DOI: [10.1103/RevModPhys.80.517](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.80.517)
- [5] J. M. Taylor, C. M. Marcus, and M. D. Lukin, “Long-lived memory for mesoscopic quantum bits” *Phys. Rev. Lett.* **90**, 206803/1-4 (2003). DOI: [10.1103/PhysRevLett.90.206803](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.90.206803)
- [6] A. Abragam, and L. C. Hebel, “The principles of nuclear magnetism”, *Am. J. Phys.* **29**, 860-861 (1961). DOI: [10.1119/1.1937646](https://doi.org/10.1119/1.1937646)
- [7] D. Stanek, C. Raas, and G. S. Uhrig, “From quantum-mechanical to classical dynamics in the central-spin model”, *Phys. Rev. B* **90**, 064301/1-12 (2014). DOI: [10.1103/PhysRevB.90.064301](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.90.064301)
- [8] M. Steger, K. Saeedi, M. L. W. Thewalt, J. J. L. Morton, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, and H.-J. Pohl, “Quantum Information Storage for over 180 s Using Donor Spins in a ^{28}Si “Semiconductor Vacuum”, *Science* **336**, 1280-1283 (2012). DOI: [10.1126/science.1217635](https://doi.org/10.1126/science.1217635)
- [9] P. C. Maurer, G. Kucsko, C. Latta, L. Jiang, N. Y. Yao, S. D. Bennett, F. Pastawski, D. Hunger, N. Chisholm, M. Markham, D. J. Twitchen, J. I. Cirac, and M. D. Lukin, “Room-temperature quantum bit memory exceeding one second”, *Science* **336**, 1283-1286 (2012). DOI: [10.1126/science.1220513](https://doi.org/10.1126/science.1220513)
- [10] J. Wolters, G. Buser, A. Horsley, L. Beguin, A.s Jockel, J.-P. Jahn, R. J. Warburton, and P. Treutlein, “Simple atomic quantum memory suitable for semiconductor quantum dot single photons”, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 060502/1-4 (2017). DOI: [10.1103/PhysRevLett.119.060502](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.060502)
- [11] *Spin Physics in Semiconductors*, Springer Series in Solid-State Sciences Vol. 157, Chaps. 1 and 11, edited by M. I. Dyakonov (Springer, Berlin, 2008).
- [12] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky, and A. Högele, A. Imamoglu, “Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation”, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 79-133 (2013). DOI: [10.1103/RevModPhys.85.79](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.85.79)

- [13] D. A. Gangloff, G. Ethier-Majcher, C. Lang, E. V. Denning, J. H. Bodey, D. M. Jackson, E. Clarke, M. Hugues, C. Le Gall, and M. Atatüre, “Quantum interface of an electron and a nuclear ensemble”, *Science* **364**, 62-66 (2019). DOI: [10.1126/science.aaw2906](https://doi.org/10.1126/science.aaw2906)
- [14] C. Testelin, F. Bernardot, B. Eble, and M. Chamorro, “Hole-spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots”, *Phys. Rev. B* **79**, 195440/1-13 (2009). DOI: [10.1103/PhysRevB.79.195440](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.195440)
- [15] R. Kaji, S. Ohno, T. Hozumi, and S. Adachi, “Effects of valence band mixing on hole spin coherence via hole-nuclei hyperfine interaction in InAlAs quantum dots”, *J. Appl. Phys.* **113**, 203511/1-6 (2013). DOI: [10.1063/1.4807901](https://doi.org/10.1063/1.4807901)
- [16] about D-Wave 2000Q <http://dwavejapan.com/system/>
- [17] *Optical Generation and Control of Quantum Coherence in Semiconductor Nanostructures*, edited by G. Slavcheva and P. Roussignol (Springer-Verlag, Berlin, 2010).
- [18] S. Muto, S. Adachi, T. Yokoi, H. Sasakura, and I. Suemune, “Photon-spin qubit-conversion based on Overhauser shift of Zeeman energies in quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 112506/1-3 (2005). DOI: [10.1063/1.2043229](https://doi.org/10.1063/1.2043229)
- [19] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang, and Y. Yamamoto, “Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses”, *Nature* **456**, 218-221(2008). DOI: [10.1038/nature07530](https://doi.org/10.1038/nature07530)
- [20] A. Noiri, J. Yoneda, T. Nakajima, T. Otsuka, M. R. Delbecq, K. Takeda, S. Amaha, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha, “Coherent electron-spin-resonance manipulation of three individual spins in a triple quantum dot”, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 153101/1-5 (2016). DOI: [10.1063/1.4945592](https://doi.org/10.1063/1.4945592)
- [21] T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, T. Ito, R. Sugawara, A. Noiri, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha, “Single-electron spin resonance in a quadruple quantum dot”, *Sci. Rep.* **6**, 31820/1-6 (2016). DOI: [10.1038/srep31820](https://doi.org/10.1038/srep31820)
- [22] M. D. Shulman, O. E. Dial, S. P. Harvey, H. Bluhm, V. Umansky, and A. Yacoby, “Demonstration of entanglement of electrostatically coupled singlet-triplet qubits”, *Science* **336**, 202-205 (2012). DOI: [10.1126/science.1217692](https://doi.org/10.1126/science.1217692)
- [23] A. V. Khaetskii, and Y. V. Nazarov, “Spin relaxation in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. B* **61**, 12639-12642 (2000). DOI: [10.1103/PhysRevB.61.12639](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.12639)
- [24] A. V. Khaetskii, D. Loss, and L. Glazman, “Electron spin decoherence in quantum dots due to interaction with nuclei”, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 186802/1-4 (2002). DOI: [10.1103/PhysRevB.61.12639](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.12639)
- [25] I. A. Merkulov, Al. L. Efros, and M. Rosen, “Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. B* **65**, 205309/1-8 (2002). DOI: [10.1103/PhysRevB.65.205309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.205309)
- [26] A. Bechtold, D. Rauch, F. Li, T. Simmet, P. Ardel, A. Regler, K. Muller, N. A. Sinitsyn, and J. J. Finley, “Three-stage decoherence dynamics of an electron spin qubit in an optically active quantum dot”, *Nat. Phys.* **11**, 1005-1008 (2015). DOI: [10.1038/nphys3470](https://doi.org/10.1038/nphys3470)

- [27] J. Yoneda, K. Takeda, T. Otsuka, T. Nakajima, M. R. Delbecq, G. Allison, T. Honda, T. Kodera, S. Oda, Y. Hoshi, N. Usami, K. M. Itoh, and S. Tarucha, “A quantum-dot spin qubit with coherence limited by charge noise and fidelity higher than 99.9 percent”, *Nat. Nanotech.* **13**, 102-106 (2018). DOI: [10.1038/s41565-017-0014-x](https://doi.org/10.1038/s41565-017-0014-x)
- [28] R. I. Dzhioev, and V. L. Korenev, “Stabilization of the electron-nuclear spin orientation in quantum dots by the nuclear quadrupole interaction”, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 037401/1-4 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevLett.99.037401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.037401)
- [29] E. A. Chekhovich, K. V. Kavokin, J. Puebla, A. B. Krysa, M. Hopkinson, A. D. Andreev, A. M. Sanchez, R. Beanland, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii, “Structural analysis of strained quantum dots using nuclear magnetic resonance”, *Nat. Nanotech.* **7**, 646-650 (2012). DOI: [10.1038/nnano.2012.142](https://doi.org/10.1038/nnano.2012.142)
- [30] E. A. Chekhovich, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii, “Suppression of nuclear spin bath fluctuations in self-assembled quantum dots induced by inhomogeneous strain”, *Nat. Commun.* **6**, 6348/1-7 (2015). DOI: [10.1038/ncomms7348](https://doi.org/10.1038/ncomms7348)
- [31] D. Gammon, Al. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, S. W. Brown, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov, “Electron and nuclear spin interactions in the optical spectra of single GaAs quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5176-5179 (2001). DOI: [10.1103/PhysRevLett.86.5176](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.5176)
- [32] T. Yokoi, S. Adachi, H. Sasakura, S. Muto, H. Z. Song, T. Usuki, and S. Hirose, “Polarization-dependent shift in excitonic Zeeman splitting of self-assembled $\text{In}_{0.75}\text{Al}_{0.25}\text{As}/\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ quantum dots”, *Phys. Rev. B* **71**, 041307(R)/1-4 (2005). DOI: [10.1103/PhysRevB.71.041307](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.041307)
- [33] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto, “Direct observation of the electron spin relaxation induced by nuclei in quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 116601/1-4 (2005). DOI: [10.1103/PhysRevLett.94.116601](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.116601)
- [34] A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal’ko, A. B. Van’kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, A. Tahraoui, H.-Y. Liu, and M. Hopkinson, “Nuclear spin switch in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 026806/1-4 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevLett.98.026806](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.026806)
- [35] F. Meier and B. Zakharchenya (ed.) *Optical Orientation*, Modern Problems in Condensed Matter Sciences (North-Holland, New York, 1994) Vol. 8, Chaps. 2 and 5.
- [36] B. Eble, O. Krebs, A. Lemaitre, K. Kowalik, A. Kudelski, P. Voisin, B. Urbaszek, X. Marie, and T. Amand, “Dynamic nuclear polarization of a single charge-tunable InAs/GaAs quantum dot”, *Phys. Rev. B* **74**, 081306(R)/1-4 (2006). DOI: [10.1103/PhysRevB.74.081306](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.74.081306)
- [37] P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu, “Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins”, *Phys. Rev. B* **75**, 035409/1-7 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevB.75.035409](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.75.035409)
- [38] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Precise measurements of electron and hole g-factors of single quantum dots by using nuclear field”, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 261904/1-3 (2007). DOI: [10.1063/1.2827572](https://doi.org/10.1063/1.2827572)

-
- [39] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Hysteretic response of the electron-nuclear spin system in single InAlAs quantum dots: Dependences on excitation power and polarization”, *Phys. Rev. B* **77**, 115345/1-5 (2008). DOI: [10.1103/PhysRevB.77.115345](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115345)
- [40] H. Sasakura, R. Kaji, S. Adachi, and S. Muto, “Discrimination of quantum dots using an optically created nuclear field”, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 041915/1-3 (2008). DOI: [10.1063/1.2839615](https://doi.org/10.1063/1.2839615)
- [41] G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget, O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda, and B. Urbaszek, “Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field”, *Nat. Commun.* **5**, 3268/1-7 (2013). DOI: [10.1038/ncomms4268](https://doi.org/10.1038/ncomms4268)
- [42] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, A. Shabaev, A. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev, and I. A. Merkulov, “Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047402/1-4 (2005). DOI: [10.1103/PhysRevLett.94.047402](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.047402)
- [43] O. Krebs, P. Maletinsky, T. Amand, B. Urbaszek, A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie, and A. Imamoglu, “Anomalous Hanle effect due to optically created transverse Overhauser field in single InAs/GaAs quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 056603/1-4 (2010). DOI: [10.1103/PhysRevLett.104.056603](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.056603)
- [44] S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, “In-plane nuclear field formation investigated in single self-assembled quantum dots”, *Phys. Rev. B* **97**, 075309/1-8 (2018). DOI: [10.1103/PhysRevB.97.075309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.075309)

第2章 半導体量子ドットのスピン物性の基礎

この章では、ナノ構造半導体、特に量子ドットについて、バンド構造、荷電状態、光学遷移の偏光選択則、異方性交換相互作用によるエネルギー準位の変化（状態混合とエネルギー分裂）および発光の偏光変化について本研究に必要な基礎的事項を記述した後、磁気発光特性を解析するために磁場中の励起子（複合体）の振る舞いについて述べる。更に、ハイブリット量子系としての量子ドットの電子・核スピン結合系を理解するために不可欠な超微細相互作用と、それに関連する種々の有効磁場について記述する。

2.1 半導体のバンド構造

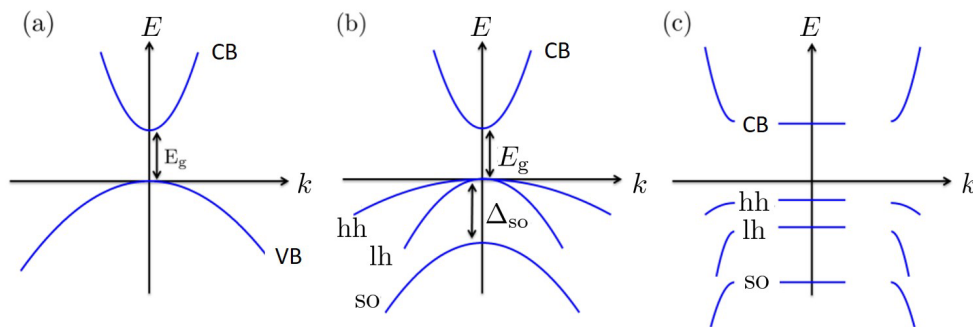


図 2.1: 半導体でのエネルギーバンドの概略図. (a) 相互作用を考慮しない結晶の場合. (b) スピン軌道相互作用と $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 摂動を考慮した結晶の場合. (c) 量子閉じ込め効果を考慮した場合.

半導体バルク結晶におけるエネルギーバンドは、相互作用を考慮しない場合、図 2.1(a) のようになる。軌道角運動量を $\mathbf{L}$ 、スピン角運動量を $\mathbf{S}$ としたとき、伝導帯の底付近では $|L_z, S_z\rangle = |0, \pm 1/2\rangle$ の 2 状態、価電子帯の頂上付近では $|L_z, S_z\rangle = |0, \pm 1/2\rangle, |1, \pm 1/2\rangle, |-1, \pm 1/2\rangle$ の 6 状態が縮退している。実際の結晶中では、軌道 $\mathbf{L}$ とスピン $\mathbf{S}$ の相互作用（スピン軌道相互作用）が働くために L_z と S_z を独立に決定できなくなり、全角運動量 $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ が状態を決める良い量子数になる。この際、価電子帯は $|J, J_z\rangle = |3/2, \pm 3/2\rangle, |3/2, \pm 1/2\rangle$ と $|J, J_z\rangle = |1/2, \pm 1/2\rangle$ の状態に分裂する。 $L_z = 0$ である $|J, J_z\rangle = |1/2, \pm 1/2\rangle$ の状態はスプリットオフバンド (so) と呼ばれる。さらに $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ 摂動法を用いると、 $k \neq 0$ において $|3/2, \pm 3/2\rangle$ と $|3/2, \pm 1/2\rangle$ の状態に分裂する。分裂した価電子帯のエネルギーバンドでは、光照射によって正孔が生成されるが、この時 $|3/2, \pm 3/2\rangle$ の状態の方が $|3/2, \pm 1/2\rangle$ の状態より有効質量が大きいため $|3/2, \pm 3/2\rangle$ を重い正孔 (heavy hole : hh)、 $|3/2, \pm 1/2\rangle$ を軽い正孔 (light hole : lh) と呼ぶ (図 2.1(b))。 $k = 0$ では hh と lh は縮退するが、歪による格子ポテンシャルの異方性や結晶場 (内部電場)、量子閉じ込め効果がある場合には hh と lh の縮退は解ける。

図 2.1(c) は量子閉じ込めがある場合のバンド構造を示している。半導体量子ドット (QD) では、キャリアがボーア半径程度の領域に閉じ込められるため、エネルギー準位は離散化する。また QD の離散化したエネルギー準位に加えて、SK (Stranski-Krastanov) モードで成長した QD では濡れ層

(Wetting Layer) による連続的なエネルギー準位が, QD の離散化準位よりも高エネルギー側に存在する. 本研究では濡れ層またはバリア層を連続波 (CW) レーザーで励起し, QD 基底準位を占有する電子・正孔対の消滅に伴う発光を測定する.

2.2 量子ドットの荷電状態

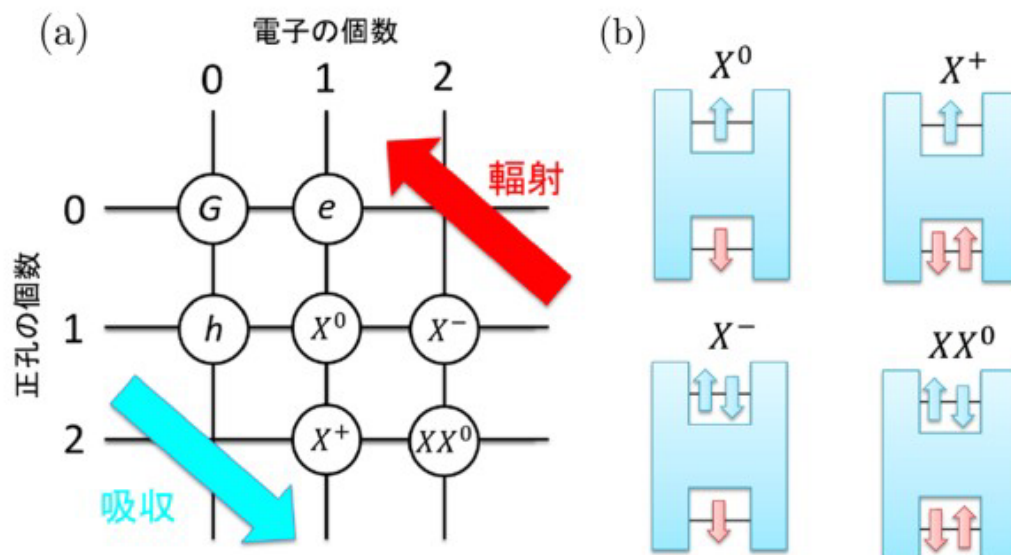


図 2.2: (a) 電子・正孔による QD の荷電状態変化. 光子の吸収・輻射に伴い矢印の方向に荷電状態が変化する. (b) X^0 , X^+ , X^- , XX^0 の基底状態を構成する電子・正孔の配置.

光照射によって電子が伝導帯に励起され, 価電子帯に正孔が生成されると, クーロン相互作用によって電子と正孔が結合した準粒子「励起子」が形成される. 1 個の電子と 1 個の正孔で構成される励起子は, 電気的に中性である. ドーピングしていない QD を低強度で光励起すると中性励起子 (X^0) のみが生成されるはずであるが, 実際に単一 QD からの発光を観測すると, X^0 以外を起源に持つ発光スペクトルが多く観測される.

基底準位を共鳴励起する場合を除くと, バリア層または濡れ層で生成された電子と正孔が, それぞれの量子化励起準位を経由して基底準位までエネルギー緩和し発光再結合するまでにかかる時間は異なる. III-V 族半導体 QD の場合, 再結合時間は約 1 ns 程度であり, 検出器の積算時間内 (100 ms ~ 1 s) に QD 内で確率的に様々な荷電状態 (charge state) を経由するので, 結果的に X^0 以外の発光が検出される. それらは励起子複合体と呼ばれ, X^0 に正孔 (電子) が余剰に結合した正 (負) の荷電励起子 X^+ (X^-) や, 2 個の X^0 が結合した中性励起子分子 (XX^0) などが存在している (図 2.2(b)).

パウリの排他原理から, 基底状態を占有できる 2 個の正孔 (電子) はアップスピンとダウンスピンのペアになる. 実際に観測される発光は電子-正孔の再結合に伴う発光であり, 各々の励起子複合体は, 光子の吸収 (電子・正孔対の生成)・輻射 (電子・正孔対の消滅) に伴って図 2.2(a) の矢印の方向に遷移する. 励起子複合体は, ナノスケール領域での複数の電子・正孔の結合状態であるため, 準粒子としての束縛エネルギーは異なる. 従って, 励起子複合体は中性励起子とは束縛エネルギーだけ異なるエネルギーの光子を放出する.

励起子複合体に含まれる電子・正孔が励起準位にある場合、エネルギー構造は図 2.2(b) から予想されるものよりも複雑になる¹。本研究では、励起状態からの発光が観測されるほど高い励起光強度で実験を行わないため、観測される発光スペクトルはいずれも基底状態の励起子複合体によるものと考えて差し支えない。

単一 QD からの発光スペクトルは通常の中性励起子発光に加え、励起子複合体の基底状態からの発光ピークを含めた数本が 1 組として観測される。励起光のスポット径内に含まれる複数の QD が同時に励起される場合は、更に多数のスペクトルが検出される。それぞれの発光ピークについて起源を同定する作業は困難を伴うが、QD 内のキャリアダイナミクスを議論する上では必要不可欠な作業である [1]。

2.3 光学遷移の偏光選択則

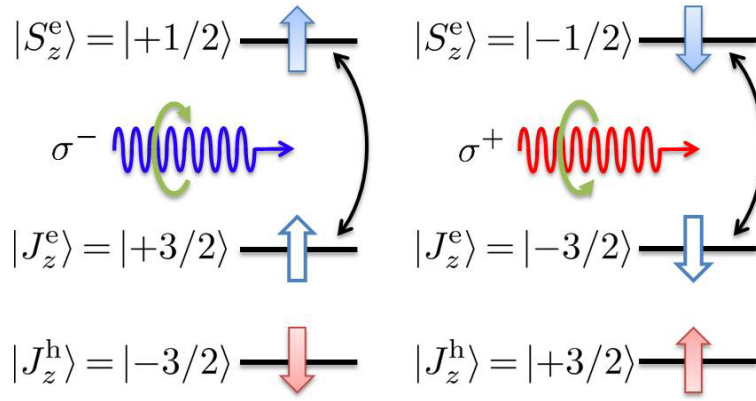


図 2.3: 光学遷移の偏光選択則。

励起子生成・消滅に伴う電子と正孔状態の光学的に許容な電気双極子遷移について定義する。結晶の成長方向を z 方向とすると、光学遷移の始状態と終状態の電子の軌道角運動量の差 ΔL_z 、電子のスピン量子数の差 ΔS_z を用いて全角運動量の変化 ΔJ_z を以下のように表す [1, 2]。

$$\Delta J_z = \Delta L_z + \Delta S_z \quad (2.1)$$

円偏光 $\sigma^\pm$ は角運動量 $p = \pm 1$ を持つため、 z 方向から入射された円偏光は L_z を ± 1 だけ変化させる。従って、円偏光によって電子の遷移が選択される。光学的にスピンを反転させることはできないので、双極子遷移において $\Delta S_z = 0$ である。これを光学遷移の選択則と呼び、図 2.3 に示す。

簡単のために価電子帯正孔（価電子帯電子）の全角運動量を J^h (J^e)、伝導帯電子の全角運動量を S^e と表記すると、電子-正孔間の許容な電気双極子遷移は

$$S_z^e - J_z^e = p \quad (\text{or } S_z^e + J_z^h = p) \quad (2.2)$$

と表すことができる。hh における全角運動量 $J_z^e = -3/2$ (但し $L_z = -1$, $S_z = -1/2$) の価電子帯“電子”が光から $+1$ の角運動量を受け取り、伝導帯へ遷移する。伝導帯に遷移した伝導帯電子は $S_z^e = -1/2$ ($L_z = 0$, $S_z = -1/2$) の角運動量を持ち、また価電子帯では $J_z^h = +3/2$ の角運動量を持つ正孔が生成

¹例えば、基底状態の電子・正孔に加え、励起状態の正孔を含む励起状態の X^+ 発光では、正孔スピンの配置に対応して 1 重項と 3 重項が存在する。更に、異方的交換相互作用の影響を受けるようになるため、零磁場下においてもエネルギー分裂が現れる。

される．生成された両者がクーロン相互作用で結合することによりスピン角運動量 $+1$ の励起子 $|+1\rangle$ が形成される．全角運動量 $J_z^e = +3/2$ ($L_z = +1$, $S_z = +1/2$) の価電子帯電子の場合，価電子帯から伝導帯へ遷移する際に -1 の角運動量を光から受け取って，角運動量 -1 の励起子 $|-1\rangle$ が形成される（励起子が生成されていない状態“真空準位” $|G\rangle$ の全角運動量は 0 である）．

lh においても同様であり，全角運動量 $J_z^e = -1/2$ ($L_z = -1$, $S_z = +1/2$) の価電子帯電子が光から $+1$ の角運動量を受け取るため，伝導帯へ遷移した電子は $S_z^e = +1/2$ の角運動量を持ち，価電子帯では $J_z^h = +1/2$ の角運動量を持つ正孔が生成される．

本論文では，図 2.3 に示すように角運動量 $+1$ の円偏光を σ^+ 偏光，角運動量 -1 の円偏光を σ^- 偏光と定義する²．この遷移の選択則は電子と正孔が再結合して発光する際にも成り立つため，発光を偏光選択検出して解析することで励起子のスピン状態を調べることができる．

σ^+ 偏光の発光スペクトル強度を I^+ ， σ^- 偏光の発光スペクトル強度を I^- とすると，発光の円偏光度 (Degree of Circular Polarization: DCP) を以下のように定義できる．

$$\text{DCP} : \rho_c \equiv \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \quad (2.3)$$

$\rho_c = +1$ (-1) は， σ^+ (σ^-) 偏光のみが検出されることを意味する．従って，発光に関与する励起子のスピン状態が $|+1\rangle$ ($|-1\rangle$) であると分かる．また，励起子が $|+1\rangle$ と $|-1\rangle$ の重ね合わせの場合， $-1 \leq \rho_c \leq 1$ となる．このように DCP は励起子や，励起子を成す電子・正孔スピン状態を知るうえで重要な指標となる．

本研究では主に正の荷電励起子の発光スペクトルに注目して解析を行っている．その理由は，次節で述べる異方的交換相互作用が働かない点にある．このため， X^+ には 1) 微細構造分裂が生じないため，零磁場で核磁場検出 (4.4 節参照) が容易，2) 正孔対がスピン一重項を成すため，発光の偏光状態が再結合時の電子スピン状態のみで決まる，といった利点がある．後者の理由は次式で示す X^+ 発光の DCP と電子スピン偏極の z 成分 $\langle S_z \rangle$ との関係に直結する．DCP を式 (2.3) で定義するとき，

$$\rho_c = -2 \langle S_z \rangle \quad (2.4)$$

が成立する．一方，基底状態の X^- では電子スピンのスピン一重項であり， X^- 発光の偏光は再結合直前の正孔スピン状態のみに依存する．

2.4 異方的交換相互作用によるエネルギー準位と偏光の変化

QD では閉じ込め効果による電子の波動関数と正孔の波動関数の重なりが増大によって，電子-正孔間のスピン交換相互作用が増強される．さらに，本研究で使用する自己集合 QD は，歪緩和による自己組織化で成長するために，その面内形状には QD によって差がある．面内形状が異方的である場合，QD の閉じ込め効果も異方的となるため，電子-正孔間の交換相互作用においても異方性が生じる．この節では，QD の面内形状異方性による異方的交換相互作用が励起子発光の偏光状態及びエネルギー準位に与える影響について述べる．

電子-正孔間のスピン交換相互作用ハミルトニアンは一般に次式のように記述される [3, 4]．

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}} = \sum_{i=x,y,z} (a_i J_i S_i + b_i J_i^3 S_i) \quad (2.5)$$

ここで S_i は電子スピンを表す行列， J_i は正孔スピン行列である（付録 A 参照）．また式 (2.5) において， a_i ， b_i はそれぞれの結合定数である．右辺第 1 項は実空間において単位胞でのみ作用し，第 2 項は双極子-双極子相互作用の形で電子-正孔間に作用する．

² σ^+ 偏光を左回り円偏光 (counter clockwise)， σ^- 偏光を右回り円偏光 (clockwise) とする．

重い正孔-電子間の交換相互作用に関して、式 (2.5) は次の行列形式に変換できる (付録 B)．以下の行列において空白になっている要素は全て 0 である．

基底： $|J_z, S_z\rangle = |+3/2, -1/2\rangle, |-3/2, +1/2\rangle, |+3/2, +1/2\rangle, |-3/2, -1/2\rangle$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{hh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0^{\text{hh}} & \delta_b^{\text{hh}} e^{-i2\theta_b} & & \\ \delta_b^{\text{hh}} e^{i2\theta_b} & \delta_0^{\text{hh}} & & \\ & & -\delta_0^{\text{hh}} & \delta_d^{\text{hh}} \\ & & \delta_d^{\text{hh}} & -\delta_0^{\text{hh}} \end{pmatrix} \begin{matrix} |+3/2, -1/2\rangle \\ |-3/2, +1/2\rangle \\ |+3/2, +1/2\rangle \\ |-3/2, -1/2\rangle \end{matrix} \quad (2.6)$$

$$\delta^{\text{hh}} \equiv -\frac{3}{2}(a_z + \frac{9}{4}b_z), \delta_b^{\text{hh}} \equiv \frac{3}{4}(b_x - b_y), \delta_d^{\text{hh}} \equiv \frac{3}{4}(b_x + b_y) \quad (2.7)$$

$\delta_{b(d)}^{\text{hh}}$ は明励起子 (暗励起子) 間の分裂エネルギー， θ_b は QD の面内形状異方性の方向に対応し，明励起子間結合の位相差である [5, 6, 7]．暗励起子間の状態混合は形状異方性が無くても生じる．

一方，軽い正孔-電子間の交換相互作用は以下の行列に変換できる．

基底： $|J_z, S_z\rangle = |+1/2, +1/2\rangle, |-1/2, -1/2\rangle, |+1/2, -1/2\rangle, |-1/2, +1/2\rangle$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{lh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0^{\text{lh}} & \delta_b^{\text{lh}} e^{-i2\theta_b} & & \\ \delta_b^{\text{lh}} e^{i2\theta_b} & -\delta_0^{\text{lh}} & & \\ & & \delta_0^{\text{lh}} & \delta_d^{\text{lh}} \\ & & \delta_d^{\text{lh}} & \delta_0^{\text{lh}} \end{pmatrix} \begin{matrix} |+1/2, +1/2\rangle \\ |-1/2, -1/2\rangle \\ |+1/2, -1/2\rangle \\ |-1/2, +1/2\rangle \end{matrix} \quad (2.8)$$

$$\delta^{\text{lh}} \equiv -\frac{1}{2}(a_z + \frac{1}{4}b_z), \delta_b^{\text{lh}} \equiv (a_x - a_y) + \frac{5}{2}(b_x - b_y), \delta_d^{\text{lh}} \equiv (a_x + a_y) + \frac{5}{2}(b_x + b_y) \quad (2.9)$$

式 (2.6)，(2.8) を対角化すると，重い正孔励起子と軽い正孔励起子の固有エネルギーと固有状態は次のように求められる．

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{hh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0^{\text{hh}} + \delta_b^{\text{hh}} & & & \\ & \delta_0^{\text{hh}} - \delta_b^{\text{hh}} & & \\ & & -\delta_0^{\text{hh}} + \delta_d^{\text{hh}} & \\ & & & -\delta_0^{\text{hh}} - \delta_d^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

$$\psi_{1(2)}^{\text{hh}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+3/2, -1/2\rangle \pm e^{i2\theta_b} |-3/2, +1/2\rangle) \quad (2.11)$$

$$\psi_{3(4)}^{\text{hh}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+3/2, +1/2\rangle \pm |-3/2, -1/2\rangle) \quad (2.12)$$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{lh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0^{\text{lh}} + \delta_b^{\text{lh}} & & & \\ & -\delta_0^{\text{lh}} - \delta_b^{\text{lh}} & & \\ & & \delta_0^{\text{lh}} + \delta_d^{\text{lh}} & \\ & & & \delta_0^{\text{lh}} - \delta_d^{\text{lh}} \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

$$\psi_{1(2)}^{\text{lh}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1/2, +1/2\rangle \pm e^{i2\theta_b} |-1/2, -1/2\rangle) \quad (2.14)$$

$$\psi_{3(4)}^{\text{lh}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1/2, -1/2\rangle \pm |-1/2, +1/2\rangle) \quad (2.15)$$

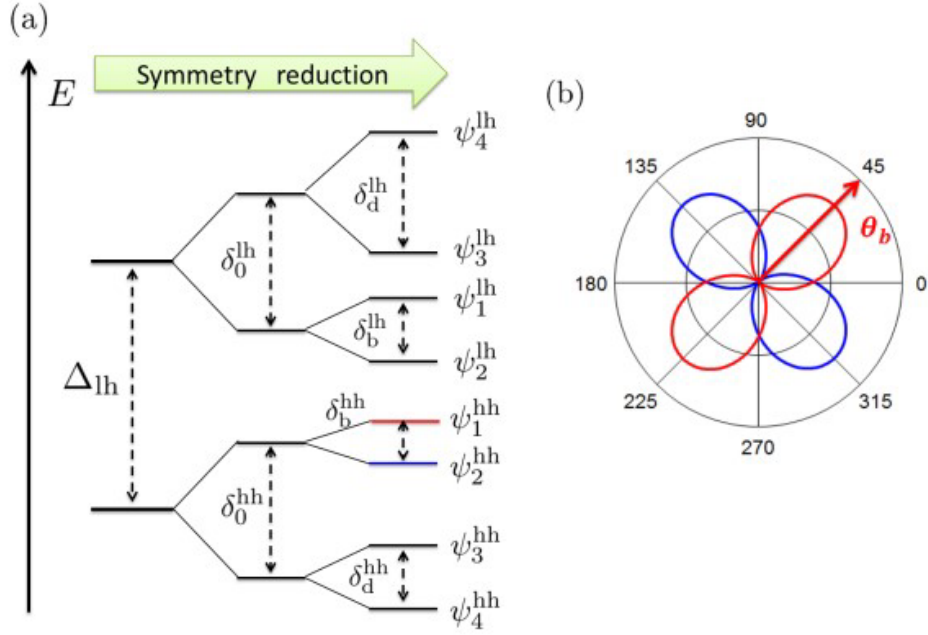


図 2.4: (a) 電子・正孔交換相互作用によるエネルギー分裂と状態混合の概略図. (b) AEI の影響を受けた励起子発光の偏光状態.

$\psi_1^{\text{hh(lh)}}$, $\psi_2^{\text{hh(lh)}}$ は明励起子, $\psi_3^{\text{hh(lh)}}$, $\psi_4^{\text{hh(lh)}}$ は暗励起子間の状態混合を表している.

上記の交換相互作用によるエネルギー分裂と状態混合を図 2.4(a) に示す. ここでは議論を簡単にするため, 重い正孔励起子と軽い正孔励起子の間にエネルギー分裂 Δ_{lh} ($\gg \delta_0, \delta_b, \delta_d$) が生じており, 交換相互作用による状態混合を無視できるとしている. QD の面内対称性が良い場合 ($b_x = b_y$), 等方的な交換相互作用しか働かず, 明励起子と暗励起子間のエネルギー分裂に加えて, 暗励起子間のみでエネルギー分裂と状態混合が起こる. QD の面内対称性が低下した場合 ($b_x \neq b_y$), 異方的な交換相互作用 (Anisotropic Exchange Interaction : AEI) が働く. AEI により明励起子間においてもエネルギー分裂と状態混合が起こる. この AEI によるエネルギー分裂を励起子微細構造分裂 (Fine Structure Splitting : FSS) と呼ぶ [8, 9].

光学遷移の選択則により, $\psi_{1(2)}$ による発光の偏光状態は以下ようになる.

$$e_{\sigma+} \pm e^{i2\theta_b} e_{\sigma-} \quad (2.16)$$

これらは図 2.4(b) に示すように, θ_b と $\theta_b + 90^\circ$ に偏光軸を持つ直線偏光である. 発光の偏光状態はここで述べた AEI だけでなく, 歪誘起の価電子帯混合によっても複雑に変化する [7, 10].

2.5 磁場中の励起子

2.5.1 スピン分裂の定義

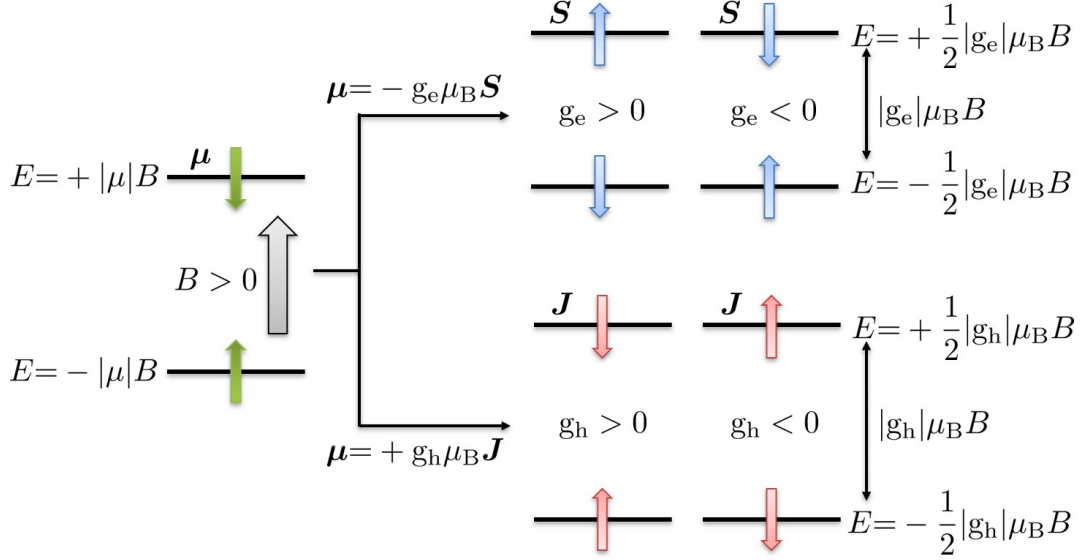


図 2.5: 電子と正孔の g 因子とスピン分裂の定義.

ここでは、本論文における g 因子の符号を決定するため、磁場中における電子・正孔・核のスピン分裂を定義しておく。 g 因子とは、キャリア波動関数を閉じ込める試料の材料と構造により変化する各 QD に固有の値であり、QD の磁気特性を決定する。

g 因子の符号によって、磁場によるスピン分裂 (ゼーマン分裂) におけるアップ・ダウンスピン間のエネルギー関係 (どちらが高エネルギー側に配置されるか) が決まるが、論文毎に符号の定義は明確ではない。ここでは、磁気双極子相互作用のハミルトニアンを用いて、 g 因子の符号を定義する。

磁場 B と磁気双極子モーメント μ の相互作用ハミルトニアンは次のように書ける。

$$\mathcal{H} = -\mu \cdot B \quad (2.17)$$

このとき、 B と同方向の μ を生み出すスピンの低エネルギー側に配置される。

μ は粒子の電荷に依存しているため、負の電荷を持つ電子と正の電荷を持つ正孔では、逆方向の μ を持つ。これを式で表すと、

$$\mu^e = -g^e \mu_B S \quad (2.18)$$

$$\mu^h = +g^h \mu_B J \quad (2.19)$$

ここで、 g^e と g^h はそれぞれ電子と正孔の g 因子、 $\mu_B (= e\hbar/2m)$ はボーア磁子 (e , m は電子の電荷素量と質量) であり、 $\sim 58 \mu\text{eV/T}$ ($\sim 14 \text{ GHz/T}$) の値を持つ。

μ^e と μ^h を式 (2.17) に用いると、電子・正孔スピンと磁場 $\mathbf{B}$ との相互作用ハミルトニアン（ゼーマンハミルトニアン）は以下のように表せる．

$$\mathcal{H}^e = +g^e \mu_B \mathbf{S} \cdot \mathbf{B} \quad (2.20)$$

$$\mathcal{H}^h = -g^h \mu_B \mathbf{J} \cdot \mathbf{B} \quad (2.21)$$

従って各 g 因子が正の場合、電子のアップ（ダウン）スピンは高（低）エネルギー側にシフトするが、正孔のアップ（ダウン）スピンは低（高）エネルギー側にシフトすることが分かる（図 2.5）．

2.5.2 Zeeman 分裂

外部からの磁場や有効磁場と励起子の電子・正孔が相互作用することで、磁場の強度や方向に応じてスピン準位の縮退が解け、エネルギー分裂が生じる．この効果を Zeeman 効果と呼ぶ．Zeeman 効果は電子スピンや核スピンの緩和、電子-核スピン準位間フリップフロップのエネルギー不整合 (2.6.2 節参照) 等、本研究で着目する電子・核スピン結合系の物理を記述する上で重要な役割を担う．ここではゼーマンハミルトニアンの表式と、磁場によるエネルギー準位の変化について記述する [11, 12]．

電子スピン $\mathbf{S}$ に対するゼーマンハミルトニアンは、式 (2.20) から以下の形で表せる（付録 C 参照）．

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^e &= \mu_B \sum_{i=x,y,z} g_i^e S_i B_i \\ &= \mu_B (g_x^e S_x B_x + g_y^e S_y B_y + g_z^e S_z B_z) \end{aligned} \quad (2.22)$$

ここで $g_{i(=x,y,z)}^e$ は電子の g 因子成分、 $B_{i(=x,y,z)}$ は磁場成分である．

電子スピン $|S_z\rangle = |+1/2\rangle, |-1/2\rangle$ を基底にとると、(001) 方向に成長した結晶における電子のゼーマンハミルトニアンは $\mathbf{S} = \frac{1}{2} \boldsymbol{\sigma}^e$ を用いて、次の行列で記述できる．ここで $\boldsymbol{\sigma}^e$ はパウリ演算子である．

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman, e}}^{(001)} = \frac{\mu_B B_x}{2} \begin{pmatrix} 0 & g_x^e \\ g_x^e & 0 \end{pmatrix} + \frac{i\mu_B B_y}{2} \begin{pmatrix} 0 & -g_y^e \\ g_y^e & 0 \end{pmatrix} + \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} g_z^e & 0 \\ 0 & -g_z^e \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

また、正孔スピン $\mathbf{J}$ に対するゼーマンハミルトニアンは式 (2.21) から以下で記述される（付録 A, C 参照）．

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman, h}}^{(001)} = -2\mu_B \sum_{i=x,y,z} (\kappa_i J_i + q_i J_i^3) B_i \quad (2.24)$$

$$= -\frac{1}{2}\mu_B \left[3q_x \sigma_x^h B_x + 3q_y \sigma_y^h B_y - \left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right) \sigma_z^h B_z \right] \quad (2.25)$$

$$= -\frac{1}{2}\mu_B (g_x^h \sigma_x^h B_x + g_y^h \sigma_y^h B_y + g_z^h \sigma_z^h B_z) \quad (2.26)$$

ここで、

$$g_x^h \equiv 3q_x, \quad g_y^h \equiv 3q_y, \quad g_z^h \equiv -\left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right) \quad (2.27)$$

とおいた³． κ, q は Luttinger-Kohn パラメータである．

³ この定義だと次項で示す励起子 g 因子 g_z^X が、 $g_z^X = g_z^h - g_z^e$ となるが、 $g_z^h \equiv +\left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right)$ と定義すると、 $g_z^X = -(g_z^h + g_z^e)$ となる．

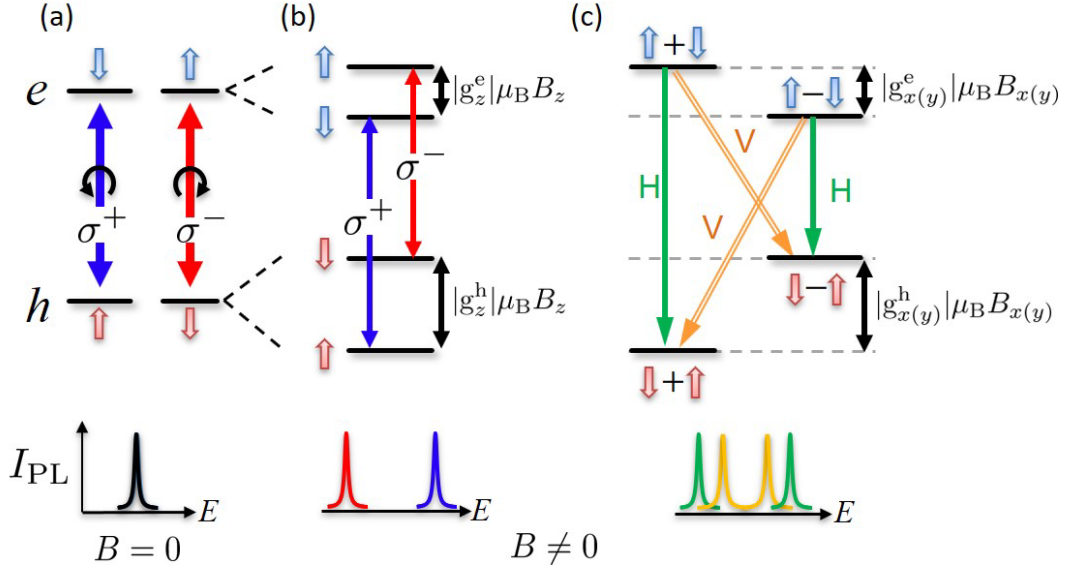


図 2.6: (a) 零磁場での電子・正孔のスピン準位. (b) Faraday 配置 $(0, 0, B_z)$ におけるエネルギー準位の概略図. スピン準位間で分裂が生じ, PL の偏光状態は円偏光である. (c) Voigt 配置 $(B_x, 0, 0)$ におけるエネルギー準位の概略図. 励起子状態間で混合し, PL の偏光状態は直線偏光となる. 下段はそれぞれの準位構造から発光スペクトルの模式図.

簡単のため, ここでは hh のみを考慮し, 励起子の基底状態を $|J_z, S_z\rangle = |+3/2, -1/2\rangle (\equiv |+1\rangle)$, $|-3/2, +1/2\rangle (\equiv |-1\rangle)$, $|+3/2, +1/2\rangle (\equiv |+2\rangle)$, $|-3/2, -1/2\rangle (\equiv |-2\rangle)$ とする. また印加する磁場は, 極座標表示を用いて,

$$\mathbf{B} = B(\sin \theta \cos \phi, \sin \theta \sin \phi, \cos \theta) \quad (2.28)$$

とした. θ は z 軸からの極角, ϕ は x 軸からの方位角である. 結晶成長方向である z に同軸な入射光に対し, $\theta=0$ で Faraday 配置, $\theta=\pi/2$ で Voigt 配置となる. 重い正孔励起子のゼーマンハミルトニアンは次の行列で記述できる.

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{(001)} &= \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^e + \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^h \\ &= \frac{\mu_B B_x}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_x^e \sin \theta \cos \phi & -g_x^h \sin \theta \cos \phi \\ 0 & 0 & -g_x^h \sin \theta \cos \phi & g_x^e \sin \theta \cos \phi \\ g_x^e \sin \theta \cos \phi & -g_x^h \sin \theta \cos \phi & 0 & 0 \\ -g_x^h \sin \theta \cos \phi & g_x^e \sin \theta \cos \phi & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ &+ i \frac{\mu_B B_y}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_y^e \sin \theta \sin \phi & -g_y^h \sin \theta \sin \phi \\ 0 & 0 & g_y^h \sin \theta \sin \phi & -g_y^e \sin \theta \sin \phi \\ -g_y^e \sin \theta \sin \phi & -g_y^h \sin \theta \sin \phi & 0 & 0 \\ g_y^h \sin \theta \sin \phi & g_y^e \sin \theta \sin \phi & 0 & 0 \end{pmatrix} \\ &+ \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} -(g_z^e - g_z^h) \cos \theta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & (g_z^e - g_z^h) \cos \theta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & (g_z^e + g_z^h) \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -(g_z^e + g_z^h) \cos \theta \end{pmatrix} \quad (2.29) \end{aligned}$$

図 2.6(b) に示す様に, Faraday 配置 $(0, 0, B_z)$ の場合, 非対角項が 0 であるため準位間の混合は生じず, 電子と正孔のスピン状態にはそれぞれ g_z^e と g_z^h を比例定数としたエネルギー分裂が生じる. こ

の時，発光の偏光状態は零磁場 (図 2.6(a)) と同じく，純粋な円偏光を示す．一方，Voigt 配置 ($B_x, 0, 0$) の場合，エネルギー分裂とともに励起子状態間の混合が生じ，励起子発光の偏光状態は円偏光の重ね合わせである直線偏光として観測される (図 2.6(c))．

本研究では，動的核スピン分極の実験で多用されている Faraday 配置での磁気発光測定を主に取り扱う．図 2.6(a) に示す様に，発光スペクトルは電子と正孔の対消滅から生じるため，観測される励起子ゼーマン分裂は電子・正孔ゼーマン分裂の両方から影響を受けることになる．その結果，励起子の g 因子 g_z^X は発光スペクトルから直接的に評価することができるが，正孔と電子の g 因子の絶対値と符号を個別に求めることは通常の手法ではできない．核スピン分極を利用することでこの問題は克服でき， (g_z^e, g_z^h) の絶対値を個別に評価する方法は 2.6.2 節で簡単に述べ，符号判別法の詳細は実験結果と共に 4.1.4 節で記述する．

2.6 電子-核スピン結合系の有効磁場

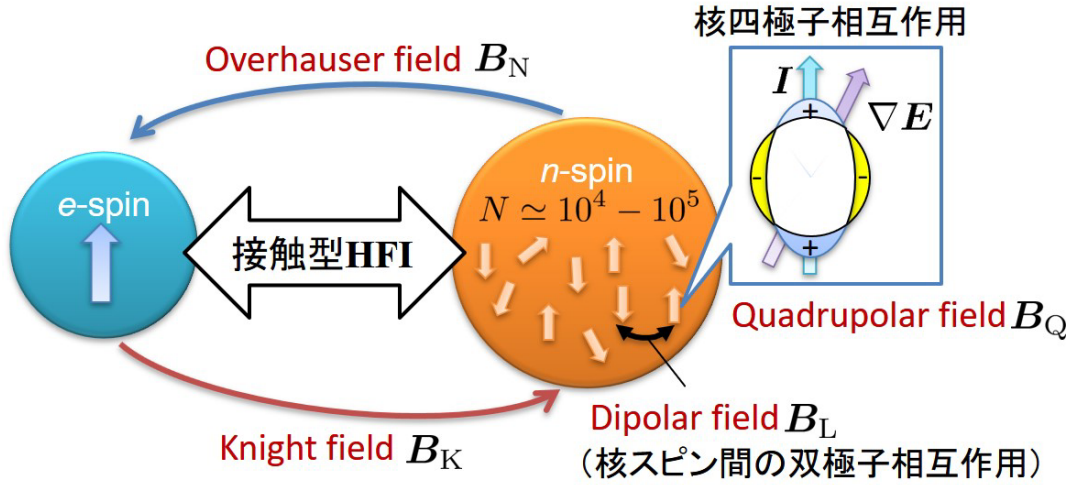


図 2.7: QD 内で電子・核スピン結合系に作用する有効磁場。電子に作用する Overhauser field (核磁場) や核に作用する Knight field の他, 核スピン間で働く双極子-双極子相互作用による Dipolar field, 核電気四重極子と電場勾配が結合して発生する Quadrupolar field が存在する。

電子スピンや核スピンの磁気モーメントを持つことから, QD 内部では外部から印加される磁場以外に複数の有効磁場が作用している。核スピン系が作る有効磁場を Overhauser field (核磁場 B_N) と呼び, それにより生じる電子スピン準位のエネルギーシフトを Overhauser シフト (OHS) と呼ぶ。一方, 電子スピン系がつくる有効磁場を Knight field (B_K) と呼び, それにより生じる核スピンのエネルギーシフトを Knight シフト (KS) と呼ぶ。これらは次節で述べる超微細相互作用 (HFI) を通して表裏の関係で作用し, 互いの緩和時間や分極率などに影響を与えている。

QD 内部では他にも複数の有効磁場が生じている。核スピン間では, 磁気的な双極子-双極子相互作用が働いており, 核スピン分極を緩和させる局所磁場 dipolar field B_L (GaAs bulk では ~ 0.15 mT) [13] が存在する。また QD 内に歪等により生じた電場勾配がある場合には, 核スピン $I \geq 1$ を持つ原子核との間に核四極子相互作用が働く。これは, 相互作用による分裂エネルギーを磁場換算した大きさを持ち, 電場勾配テンソルの主軸に沿った有効磁場 quadrupolar field B_Q を与える。核四極子相互作用の詳細は第 5 章に譲る。図 2.7 はここで紹介した有効磁場の概略図である。電子スピンは外部磁場 B に加えて B_N を感じ, 核スピン集団は B に加えて B_K , B_Q , B_L を感じることになる。各々の有効磁場の効果が顕わに見えるか否かは, 外部磁場との相対的な強さに依存する。

2.6.1 超微細相互作用

電子と核の間に作用する相互作用のうち, クーロン相互作用を除いた磁気的相互作用を総称して超微細相互作用 (HyperFine Interaction : HFI) と呼ぶ [2, 14]。ここでは核磁気モーメントと電子スピンの相互作用から HFI のハミルトニアン $\mathcal{H}_{\text{HFI}}$ を導出する。

核磁気モーメント μ_n の座標を原点に取り, 電子の位置ベクトルを $\mathbf{r}$ とする。 μ_n が位置 $\mathbf{r}$ につくるベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ とすると, $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ と電子の相互作用は次式のように書ける。但し電子の運動量を $\mathbf{p}$, スピンを $\mathbf{S}$ とした。

$$\mathcal{H}_{\text{HFI}} = \frac{1}{2m} \left(\mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A} \right)^2 + 2\mu_B \mathbf{S} \cdot \nabla \times \mathbf{A}, \quad \mathbf{A}(\mathbf{r}) = \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \quad (2.30)$$

ここで m は電子の質量, e は素電荷, c は真空中の光速, $\mu_B (= e\hbar/2mc)$ はボーア磁子である.
 $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \mathbf{0}$ の場合からの差を取ると

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{HFI}} &= \frac{e}{2mc} \left(\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A}^2 \right) + 2\mu_B \mathbf{S} \cdot \nabla \times \mathbf{A} \\ &= \frac{e}{2mc} \left(\mathbf{p} \cdot \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} + \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \cdot \mathbf{p} + \frac{e}{c} \mathbf{A}^2 \right) + 2\mu_B \mathbf{S} \cdot \nabla \times \mathbf{A} \\ &= \mathcal{H}_l + \mathcal{H}_s + \frac{e^2}{2mc^2} \mathbf{A}^2 \end{aligned} \quad (2.31)$$

ここで,

$$\mathcal{H}_l = \frac{e}{2mc} \left(\mathbf{p} \cdot \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} + \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \cdot \mathbf{p} \right) \quad (2.32)$$

$$\mathcal{H}_s = 2\mu_B \mathbf{S} \cdot \nabla \times \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \quad (2.33)$$

である. すぐ後で述べるが, $\mathcal{H}_l$ が核スピンと電子の軌道角運動量との相互作用, $\mathcal{H}_s$ が核スピンと電子スピンとの相互作用に対応する. 先に $\mathcal{H}_l$ の部分について述べる.

$$\nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} = \frac{\boldsymbol{\mu}_n \times \mathbf{r}}{r^3} \quad (2.34)$$

であるから, 式 (2.34) を使って, 式 (2.32) のハミルトニアン $\mathcal{H}_l$ は次のように書き直すことができる.

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_l &= \frac{e}{2mc} \left(\mathbf{p} \cdot \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} + \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \cdot \mathbf{p} \right) \\ &= \frac{e}{2mc} \frac{2\boldsymbol{\mu}_n \cdot (\mathbf{r} \times \mathbf{p})}{r^3} \\ &= \frac{\mathbf{l} \cdot \boldsymbol{\mu}_n}{r^3} \quad (\because \mathbf{r} \times \mathbf{p} = \hbar \mathbf{l}) \\ &= \frac{2}{g^e} \gamma_n \gamma_e \hbar^2 \frac{\mathbf{l} \cdot \mathbf{I}}{r^3} \\ &\simeq \gamma_n \gamma_e \hbar^2 \frac{\mathbf{l} \cdot \mathbf{I}}{r^3} \end{aligned} \quad (2.35)$$

γ_n , γ_e は核および電子の磁気回転比であり, $\gamma_n = g_N \mu_N / \hbar (= \mu_n / \hbar I)$, $\gamma_e = g^e \mu_B / \hbar$ である. この式から明らかなように, このハミルトニアンは核スピン $\mathbf{I}$ と電子の軌道角運動量 $\mathbf{l}$ との相互作用を表しており, $l \geq 1$ となる $p, d, f, \dots$ 軌道の電子に影響を及ぼし, s 電子には効かない.

次に $\mathcal{H}_s$ について調べる. ベクトル公式から次の関係が得られる.

$$\nabla \times \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} = \nabla(\nabla \cdot \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r}) - \Delta \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \quad (2.36)$$

この関係式を用いて, 式 (2.33) を書き直すと次のようになる.

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_s &= 2\mu_B \mathbf{S} \cdot \nabla \times \nabla \times \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \\ &= 2\mu_B \left[(\mathbf{S} \cdot \nabla)(\nabla \cdot \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r}) - \mathbf{S} \cdot \Delta \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \right] \\ &= 2\mu_B \left[(\mathbf{S} \cdot \nabla)(\nabla \cdot \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r}) - \frac{1}{3} \mathbf{S} \cdot \Delta \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \right] - \frac{4}{3} \mu_B \mathbf{S} \cdot \Delta \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \end{aligned} \quad (2.37)$$

第一項をまとめると,

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_s^1 &= 2\mu_B \sum_{i,j=1,2,3} s_{x_i} \mu_{n,x_j} \left[\frac{\partial^2}{\partial x_i \partial x_j} - \frac{1}{3} \delta_{i,j} \sum_k \frac{\partial^2}{\partial x_k^2} \right] \frac{1}{r} \\
 &= 2\mu_B \sum_{i,j=1,2,3} s_{x_i} \mu_{n,x_j} \frac{1}{3} \left[3 \frac{\partial^2}{\partial x_i \partial x_j} - \delta_{i,j} \sum_k \frac{\partial^2}{\partial x_k^2} \right] \frac{1}{r} \\
 &= 2\mu_B \sum_{i,j=1,2,3} s_{x_i} \mu_{n,x_j} \frac{3x_i x_j - r^2 \delta_{i,j}}{r^5}
 \end{aligned} \tag{2.38}$$

ここで x_1, x_2, x_3 は x, y, z に対応する. r に対応する場合 $\nabla(1/r) = 0$ となるので, 式 (2.37) の第二項はゼロとなり, $\mathcal{H}_s^1$ は磁気双極子相互作用の形で記述される.

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_s &= -\frac{2\mu_B \mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\mu}_n}{r^3} + \frac{3(2\mu_B \mathbf{S} \cdot \mathbf{r})(\boldsymbol{\mu}_n \cdot \mathbf{r})}{r^5} \\
 &= -\frac{2\gamma_n \gamma_e \hbar^2}{g^e r^3} \left[\mathbf{I} \cdot \mathbf{S} - \frac{3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{S} \cdot \mathbf{r})}{r^2} \right] \\
 &\simeq -\frac{2\gamma_n \gamma_e \hbar^2}{r^3} \left[\mathbf{I} \cdot \mathbf{S} - \frac{3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{S} \cdot \mathbf{r})}{r^2} \right]
 \end{aligned} \tag{2.39}$$

一方 $\mathbf{r} \neq 0$ の場合, ポアソン方程式から

$$\Delta \frac{1}{r} = -4\pi\delta(\mathbf{r}) \tag{2.40}$$

が言えるので, 原点で存在確率をもつ s 電子の波動関数を $\psi_s(\mathbf{r})$ とすると, 式 (2.38) の第二項は

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_s^2 &= -\frac{4}{3} \mu_B \mathbf{S} \cdot \Delta \frac{\boldsymbol{\mu}_n}{r} \\
 &= \frac{16}{3} \pi \mu_B \mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\mu}_n |\psi_s(0)|^2 \\
 &= \frac{16}{3 g^e} \pi \gamma_n \gamma_e \hbar^2 \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} |\psi_s(0)|^2 \\
 &= \frac{8}{3} \pi \gamma_n \gamma_e \hbar^2 \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} |\psi_s(0)|^2
 \end{aligned} \tag{2.41}$$

式 (2.31) において $\mathbf{A}^2$ の項は小さいとして無視して以上をまとめると, 超微細相互作用ハミルトニアンは次の形で記述される.

$$\mathcal{H}_{\text{HFI}} = -\frac{\gamma_n \gamma_e \hbar^2}{r^3} \left[\mathbf{I} \cdot \mathbf{S} - \frac{3(\mathbf{I} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{S} \cdot \mathbf{r})}{r^2} \right] + \frac{8}{3} \pi \gamma_n \gamma_e \hbar^2 \mathbf{I} \cdot \mathbf{S} |\psi_s(0)|^2 \tag{2.42}$$

第一項が双極子型 HFI(dipole term), 第二項がフェルミの接触型 HFI(contact term) に対応し, 前者は $l \neq 0$ の $p, d, f, \dots$ 軌道の電子に作用し, 後者は s 電子に作用する.

2.6.2 核による有効磁場: Overhauser field

動的核スピン分極

次に電子スピン系が感じる有効磁場 B_N について説明する．伝導帯電子 ($l = 0$) に対しては HFI の contact term のみを考えれば良いことは既に述べたが, p 軌道を持つ正孔では, 波動関数の対称性から核の位置での存在確率が零となるため, dipole term のみが作用する．通常 contact term $\gg$ dipole term が成り立つため [15], QD の基底準位を占有する電子・正孔を扱う場合, contact term が作用する電子・核スピン系のみを考えればよい．

HFI に外部磁場 $\mathbf{B}_{\text{ext}}$ による電子・核スピンのゼーマンエネルギーを加えたハミルトニアンは以下のように書ける．

$$\mathcal{H} = g^e \mu_B \mathbf{B}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{S} + \sum_i A^i \mathbf{I}^i \cdot \mathbf{S} - g_N \mu_N \mathbf{B}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{I} \quad (2.43)$$

$\mathbf{B}_{\text{ext}}$ による核のゼーマン分裂 (上式第 3 項) は, $\mu_N \sim \mu_B / 2000$ から電子のゼーマン分裂 (第 1 項) に比べて 10^{-3} 程度と小さいので無視すると, 上式は以下のように変形できる．

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= g^e \mathbf{B}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{S} + \sum_i A^i (\mathbf{I}_z^i \cdot S_z + \mathbf{I}_y^i \cdot S_y + \mathbf{I}_x^i \cdot S_x) \\ &= g^e \mathbf{B}_{\text{ext}} \cdot \mathbf{S} + \sum_i \left(A^i \mathbf{I}_z^i \cdot S_z + \frac{\mathbf{I}_+^i \cdot S_- + \mathbf{I}_-^i \cdot S_+}{2} \right) \end{aligned} \quad (2.44)$$

$$A^i = \frac{8}{3} \pi \gamma_n \gamma_e \hbar^2 |\psi_s(0)|^2 \quad (2.45)$$

式 (2.44) の Σ の項において, 第 1 項がエネルギーシフト (OHS) を与える静的な相互作用, 第 2 項が電子スピンと核スピンの同時反転 (Flip-Flop: FF) を表す動的な相互作用 (動的核スピン分極 Dynamic Nuclear spin Polarization : DNP) に対応する．

円偏光励起によって単一 QD 内に電子スピンの選択的に注入されると, 非平衡電子スピン分極 $\langle \mathbf{S} \rangle$ は DNP 項を通じて自身のスピン角運動量を核スピン系へ移すことができる．この同時スピン反転過程が, 不對電子スピンの QD から消える発光再結合時間 (~ 1 ns) と同程度のタイムスケールで効率的に起こるとする．これに対して, 核スピン拡散などによる緩和時間は数 10 秒と長いので, QD 内に向きの揃った核スピンの蓄積され, 結果的に巨大な核スピン分極が形成されることになる．式 (2.45) より, 相互作用の強さを表す A 係数が, 核の位置における電子の存在確率 $|\psi_s(0)|^2$ を含むことから, 電子-核 FF レートは電子の局在領域 (QD 内部) で最大となる．

核スピン分極の形成と緩和

核スピン分極の形成・緩和のモデルとして, 図 2.8 のようなレートを用いた簡単な現象論的モデルを考える． $\langle S_z \rangle$ は時間平均電子スピン分極, $\langle I_z \rangle$ は時間平均核スピン分極を表している．また, τ_R (~ 1 ns) は電子と正孔の発光再結合時間である．

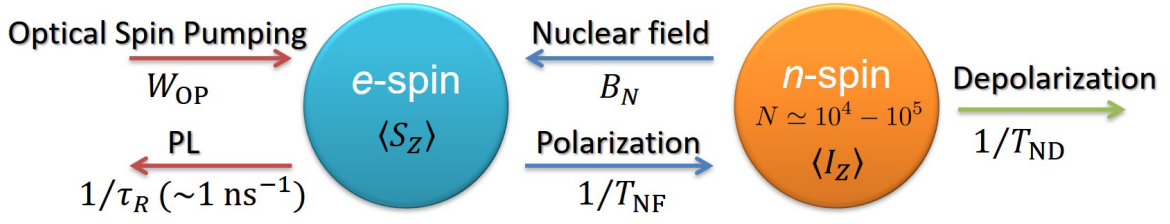


図 2.8: 核スピン分極の形成・緩和モデル. 光ポンピング (レート W_{OP}) により QD に注入される電子スピンの角運動量が $1/T_{NF}$ のレートで核スピン集団に転写される. 核スピン分極の緩和レートは $1/T_{ND}$. 形成された $\langle I_z \rangle$ によって, 電子スピン状態に影響する核磁場 B_N が生じる. 電子スピンは $1/\tau_R$ (電子-正孔再結合時間: τ_R) のレートで QD から消滅する.

光生成された $\langle S_z \rangle$ は $1/T_{NF}$ のレートで核と FF を起こし, $\langle I_z \rangle$ を形成する. その後, 電子は $1/\tau_R$ のレートで QD 内から消滅し, $\langle I_z \rangle$ は $1/T_{ND}$ のレートで緩和する. 観測される定常状態の $\langle I_z \rangle$ は, 形成と緩和のバランスで決定される. 以上を考慮すると, 核スピン分極のダイナミクスは以下のレート方程式で表される [1].

$$\frac{d\langle I_z \rangle}{dt} = \frac{1}{T_{NF}} [C_{am}(\langle S_z \rangle - S_0) - \langle I_z \rangle] - \frac{1}{T_{ND}} \langle I_z \rangle \quad (2.46)$$

ここで S_0 は熱平衡状態における電子スピン分極, C_{am} は電子系から核スピン系へのスピン輸送における角運動量変換係数 $C_{am} = I(I+1)/S(S+1)$ である. 式 (2.46) の左辺は $\langle I_z \rangle$ の時間変化を表し, 右辺第 1 項は核スピン分極形成項, 第 2 項は緩和項を表している. $1/T_{NF}$ は, 以下の式で与えられる.

$$\begin{aligned} \frac{1}{T_{NF}} &= f_e \tau_c \left(\frac{A}{N\hbar} \right)^2 / \left[1 + \left(\frac{\tau_c}{\hbar} \right)^2 (g_z^e \mu_B B_z + A \langle I_z \rangle)^2 \right] \\ &= f_e \tau_c \left(\frac{A}{N\hbar} \right)^2 / \left[1 + \left(\frac{\tau_c}{\hbar} \right)^2 g_z^e \mu_B \left(B_z + \frac{A \langle I_z \rangle}{g_z^e \mu_B} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad (2.47)$$

ここで, A , τ_c , N , f_e はそれぞれ HFI 定数, 相関時間, 核スピンの個数 ($\sim 10^4/\text{QD}$), QD 内に不対電子が滞在する時間的な確率を表す. 式 (2.47) より,

$$B_N \equiv \frac{A \langle I_z \rangle}{g_z^e \mu_B} \quad (2.48)$$

と B_z が同方向に作用し全体の有効磁場が大きくなる場合, 電子と核のゼーマン分裂に大きな差ができる. この時, 電子-核スピン FF のエネルギーコストが高くなり (FF でのエネルギー保存則の破綻度合いが大きくなり), $1/T_{NF}$ に負帰還がかかる. 一方で B_N と B_z が打ち消し合う場合, エネルギー保存の破綻度合いが小さくなる. 特に電子ゼーマン分裂エネルギーがゼロに近くなってエネルギー保存則が満たされる状況に近づくと, $1/T_{NF}$ が急増する.

核スピン分極の双安定性

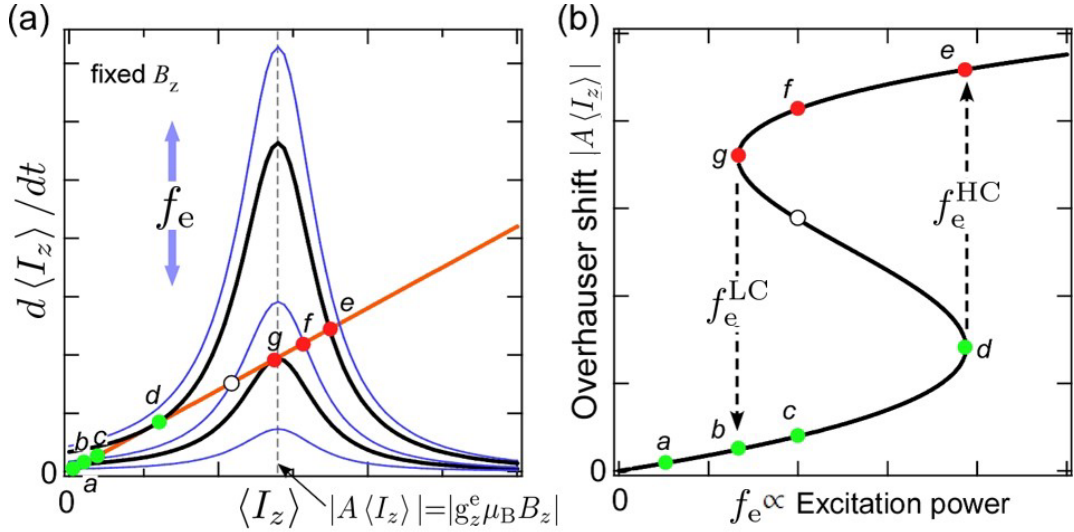


図 2.9: (a) 励起強度に対する核スピン分極モデル. f_e に対する分極形成レートの変化と低分極状態 a ~ d と高分極状態 e, f, g での定常解を示す. (b) 核スピン分極の励起強度依存性. [16, 17]

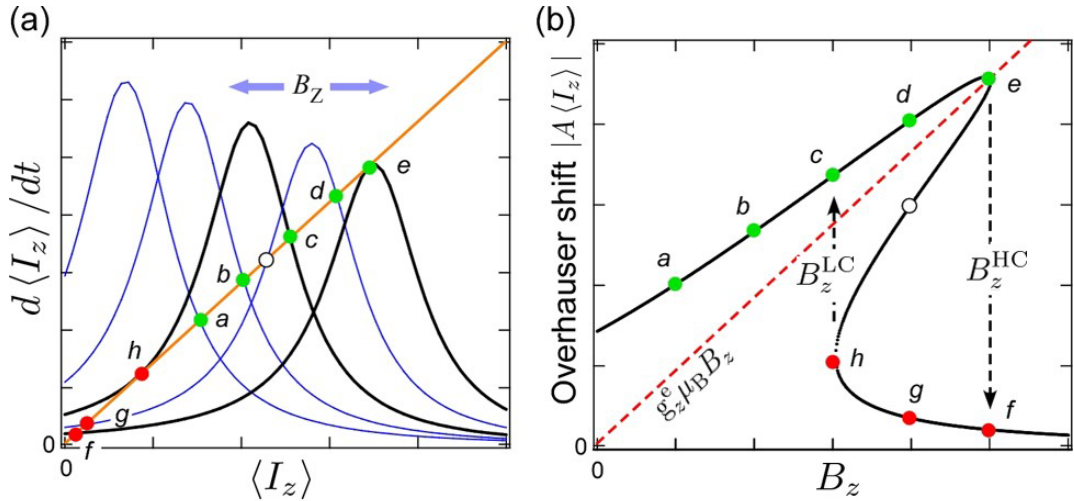


図 2.10: (a) 縦磁場強度に対する核スピン分極モデル. B_z に対する分極形成レートの変化と低分極状態 f, g, h と高分極状態 a ~ e での定常解を示す. (b) 核スピン分極の縦磁場強度依存性. [18, 19]

式 (2.46), 式 (2.47) から動的核スピン分極では形成項は $\langle I_z \rangle = |g_z^e \mu_B B_z / A|$ にピークを持つローレンツ型に類似した関数, 緩和項は線形型の関数になることが分かる. 定常解 ($d\langle I_z \rangle / dt = 0$) は形成項と緩和項の関数が一致する点となるため, 最大で 3 つの解を持つ. そのうち 2 つが安定解, 1 つが双安定状態の間に位置する不安定解となる. 励起強度, 外部磁場強度, 励起偏光等の外部パラメータによって定常解は変化し, それらのパラメータの増減で $\langle I_z \rangle$ のヒステリシス応答と双安定現象 (核スピンスイッチング) が観測される. ここでは, 外部パラメータに対し, 動的核スピン分極過程で生じる双安定現象について議論する [1, 16, 17, 18, 19, 20].

まず、核スピン分極の励起強度依存性について述べる。励起強度の変化は、モデルでは QD 中の不對電子の滞在確率 f_e の変化に対応する。式 (2.47) より、 f_e を掃引すると形成項のピークの高さが変わる。図 2.9(a) に示すように、低核偏極状態 (LNSP) から f_e を増加させると、形成項と緩和項の交点は図の $a \rightarrow b \rightarrow c \rightarrow d$ の順に変化していく。始状態が LNSP であれば、 $a \rightarrow d$ までは、高核偏極状態 (HNSP、形成項の中心よりも右側の $\langle I_z \rangle$) に遷移することはない。しかし、 d の位置で更に f_e を増加させると、交点が HNSP (e) のみになるので、 $d \rightarrow e$ への急峻なジャンプが観測される。逆に f_e を減少させる場合、図の $e \rightarrow f \rightarrow g$ の順に $\langle I_z \rangle$ は減少していく。e $\rightarrow$ g では HNSP が維持されるが、更に f_e が減少して形成項のピーク値が減少すると、 $g \rightarrow b$ への急峻なドロップが観測される。

以上より、図 2.9(b) に示すように、 f_e の掃引方向に依存して急峻な変化を示す励起強度が異なり (f_e^{HC} , f_e^{LC})、2 つの安定状態と 1 つの不安定状態を持つヒステリシス応答を示す。

続いて、外部磁場強度 (B_z) を変化させた場合の核スピン分極の応答を述べる。式 (2.47) より、 B_z を掃引させると形成項のピーク位置 ($\langle I_z \rangle = g_z^e \mu_B B_z / A$) がシフトする。図 2.10(a) に示すように、 B_z を増加させると形成項は図の右の方向に移動し、 $\langle I_z \rangle$ は $a \rightarrow b \rightarrow c \rightarrow d \rightarrow e$ の順に変化する。これらは HSNP に対応するが、更に B_z を増加させると LNSP (f) への急峻なドロップを示す。逆に B_z を減少させると、 $\langle I_z \rangle$ は $f \rightarrow g \rightarrow h$ の順に LNSP を辿るが、 h の点を過ぎると HNSP (c) への遷移が見られる。

2.6.3 電子による有効磁場: Knight field

電子スピンによって核が感じる有効磁場 B_K について記述する。 B_K は選択的に光励起された 1 個のアップスピン電子、あるいはダウンスピン電子から生じ、 B_N に比べ非常に小さい (数 mT)。ある特定の核スピン j に作用する時間平均 B_K の大きさは、 f_e ($\in [0, 1]$) と電子スピン分極のアンサンブル平均 $\langle S \rangle$ を用いて、以下のように表せる。

$$B_K^j = f_e b_e^j \langle S \rangle = -f_e \frac{A^j \langle S \rangle}{g_N^j \mu_N N} \quad (2.49)$$

ここで b_e^j は定数である。 $|B_K|$ は f_e と $\langle S \rangle$ によって決定されるが、HFI 定数 A^j と核の g 因子 g_N^j は同符号であるため、 B_K の方向は常に $\langle S \rangle$ と逆向きである。電子の波動関数が空間的に均一と仮定すると $b_e^j \rightarrow b_e$ として良い。 f_e は光励起強度に比例する値であり、その値は τ_R とポンピングレート W_{OP} (図 2.8 参照) とのバランスで決まる。もちろん QD 内に電子が不在 ($f_e=0$) であれば、 B_K は発生しない。

また、電子スピンの“揺らぎ”，すなわち B_K の揺らぎは HFI を通して核スピン分極緩和を促進させる効果がある。この核スピン分極緩和は、電子の波動関数が分布する領域全体において有効であるため、次項で紹介する核スピン拡散よりも速い緩和をもたらすと考えられる。

他方、 B_K には核スピン分極を安定化させる効果もある。 B_K が QD 内部で不均一な空間分布を持つ場合、 B_K による核のゼーマン分裂に空間的な不均一性が発生する。これは、隣接する同種核スピン間にさえ当てはまるため、エネルギー不整合を通して核スピン拡散を抑制すると考えられる⁴。また、電子が空間的に強く局在化する QD 構造では一般に $B_K > B_L$ となるので B_K に空間的な不均一性がなくても、この方向に沿った $\langle I_z \rangle$ は安定化される。

以上より、 B_K は核スピン分極緩和の促進と抑制の両方の効果を持ち、どちらが優勢かを判断するには他の有効磁場等を考慮する必要がある。

⁴同様の核スピン拡散の抑制は、核四極子相互作用による不等間隔分裂（核四極子分裂）でも起こる。

2.6.4 核スピン間に働く双極子-双極子相互作用

ここでは、核スピン間の双極子相互作用について議論する．式 (2.42) に示した電子スピン-核スピン相互作用と同様に、2つの核磁気モーメント μ_i, μ_j が距離 r だけ離れて存在する場合、両者の間に働く磁気双極子相互作用は次の式で記述される [13, 14].

$$\mathcal{H}_{\text{dipole}} = \frac{\mu_i \cdot \mu_j}{r^3} - \frac{3(\mu_i \cdot r)(\mu_j \cdot r)}{r^5} \quad (2.50)$$

$\mu_i = \gamma_i \hbar \mathbf{I}_i$ を用いて式 (2.50) を極座標 (r, θ, ϕ) で展開すると、以下のように表せる．

$$\mathcal{H}_{\text{dipole}} = \frac{\gamma_i \gamma_j \hbar^2}{r^3} (A + B + C + D + E + F) \quad (2.51)$$

$$A = I_i^z I_j^z (1 - 3 \cos^2 \theta) \quad (2.52)$$

$$B = -\frac{1}{4} (I_i^+ I_j^- + I_i^- I_j^+) (1 - 3 \cos^2 \theta) \quad (2.53)$$

$$C = -\frac{3}{2} (I_i^+ I_j^z + I_i^z I_j^+) \sin \theta \cos \theta e^{-i\phi} \quad (2.54)$$

$$D = -\frac{3}{2} (I_i^- I_j^z + I_i^z I_j^-) \sin \theta \cos \theta e^{i\phi} = C^* \quad (2.55)$$

$$E = -\frac{3}{4} I_i^+ I_j^+ \sin^2 \theta e^{-2i\phi} \quad (2.56)$$

$$F = -\frac{3}{4} I_i^- I_j^- \sin^2 \theta e^{2i\phi} = E^* \quad (2.57)$$

ここで $I^{+(-)}$ は核スピンに作用する昇降演算子である．外部からの静磁場 B_z が非常に小さい場合、量子化軸が定まらないため2つの核スピンの和を保存しない $C - F$ 項による緩和が生じる．しかし、1個の核磁気双極子が作る磁場 (双極子場: B_L) より大きな B_z が印加されると、核スピン系の横緩和による状態の広がり (エネルギーぼけ) よりもゼーマン分裂が大きくなるため、 $C - F$ 項の緩和が抑制される． A 項は静的な線幅の広がりを表す項で、 B 項は核スピン間の同時スピン反転項である． $B_z (> B_L)$ の下では、 B 項を通じて隣接する核スピンの間で FF が繰り返し起こり、QD 内の核スピン分極が QD 外部 (バリア層や濡れ層など) に流出する．これが核スピン拡散と呼ばれる現象である (図 2.11).

FF を介したスピン緩和の効率は、遷移の前後でエネルギー保存の破れに左右される．そのため、核スピン拡散は同種核スピンの間で最も顕著となるが、前に述べたとおり、 $\mathbf{B}_K$ の不均一性や核四極子分裂 ($= g_N \mu_N B_Q$) は、核スピン間の FF にかかるエネルギー保存を破る働きがあるため、この核スピン分極緩和プロセスが抑えられる．

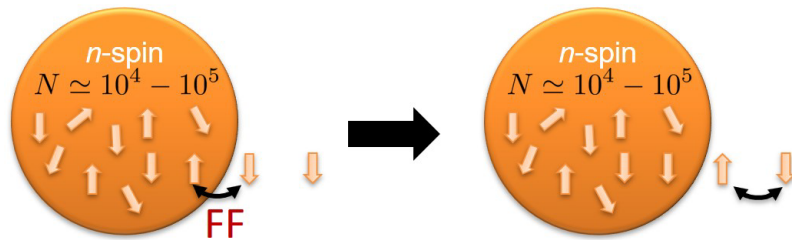


図 2.11: 核スピン拡散モデル． $B_z (> B_L)$ では、式 (2.53) の核スピン FF を繰り返すことで、QD 外部に核スピンが拡散する．

参考文献

- [1] *Spin Physics in Semiconductors*, Springer Series in Solid-State Sciences Vol. 157, Chaps. 1 and 11, edited by M. I. Dyakonov (Springer, Berlin, 2008).
- [2] *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).
- [3] H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel, and C. T. Foxon, “Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells”, *Phys. Rev. B* **41**, 5283-5292 (1990). DOI: [10.1103/PhysRevB.41.5283](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.41.5283)
- [4] E. Blackwood, M. J. Snelling, R. T. Harley, S. R. Andrews, and C. T. B. Foxon, “Exchange interaction of excitons in GaAs heterostructures”, *Phys. Rev. B* **50**, 14246-14254 (1994). DOI: [10.1103/PhysRevB.50.14246](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.14246)
- [5] E. L. Ivchenko, and G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures, Symmetry and Optical Phenomena in Solid-State Sciences*, Vol. 110 (Springer-Verlag, Berlin 1997).
- [6] R. Kaji, Doctoral Thesis, Appendix F, Hokkaido University, 2011.
- [7] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, and H. Mariette, “Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots”, *Phys. Rev. B* **76**, 045331/1-14 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevB.76.045331](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.76.045331)
- [8] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, and F. Klopfer, F. Schäfer, “Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots”, *Phys. Rev. B* **65**, 195315/1-23 (2002). DOI: [10.1103/PhysRevB.65.195315](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.195315)
- [9] J. G. Tischler, A. S. Bracker, D. Gammon, and D. Park, “Fine structure of trions and excitons in single GaAs quantum dots”, *Phys. Rev. B* **66**, 081310(R)/1-4 (2002). DOI: [10.1103/PhysRevB.66.081310](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.66.081310)
- [10] S. Ohno, S. Adachi, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura, “Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 161912/1-3 (2011). DOI: [10.1063/1.3583453](https://doi.org/10.1063/1.3583453)
- [11] M. Bayer, O. Stern, A. Kuther, and A. Forchel, “Spectroscopic study of dark excitons in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ self-assembled quantum dots by a magnetic-field-induced symmetry breaking”, *Phys. Rev. B* **61**, 7273-7276 (2000). DOI: [10.1103/PhysRevB.61.7273](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.7273)
- [12] Y. G. Semenov, and S. M. Ryabchenko, “Effects of photoluminescence polarization in semiconductor quantum wells subjected to an in-plane magnetic field”, *Phys. Rev. B* **68**, 045322/1-8 (2003). DOI: [10.1103/PhysRevB.68.045322](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.045322)

-
- [13] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V. I. Safarov, “Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions”, *Phys. Rev. B* **15**, 5780-5796 (1977). DOI: [10.1103/PhysRevB.15.5780](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.15.5780)
- [14] *The Principle of Nuclear Magnetism*, A. Abragam (Oxford University Press, Oxford, UK, 1961).
- [15] The coupling constants of contact and dipolar type HFI are summarized for III-V atoms in C. Testelin, F. Bernardot, B. Eble, and M. Chamarro, “Hole-spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots”, *Phys. Rev. B* **79**, 195440/1-13 (2009). DOI: [10.1103/PhysRevB.79.195440](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.195440)
- [16] A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal’ko, A. B. Van’kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, A. Tahraoui, H.-Y. Liu, and M. Hopkinson, “Nuclear spin switch in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 026806/1-4 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevLett.98.026806](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.026806)
- [17] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Hysteretic response of the electron-nuclear spin system in single InAlAs quantum dots: Dependences on excitation power and polarization”, *Phys. Rev. B* **77**, 115345/1-5 (2008). DOI: [10.1103/PhysRevB.77.115345](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115345)
- [18] P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu, “Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins”, *Phys. Rev. B* **75**, 035409/1-7 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevB.75.035409](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.75.035409)
- [19] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Precise measurements of electron and hole g-factors of single quantum dots by using nuclear field”, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 261904/1-3 (2007). DOI: [10.1063/1.2827572](https://doi.org/10.1063/1.2827572)
- [20] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky, and A. Högele, A. Imamoglu, “Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation”, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 79-133 (2013). DOI: [10.1103/RevModPhys.85.79](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.85.79)

第3章 試料構造と光学測定システム

3.1 量子ナノ構造試料

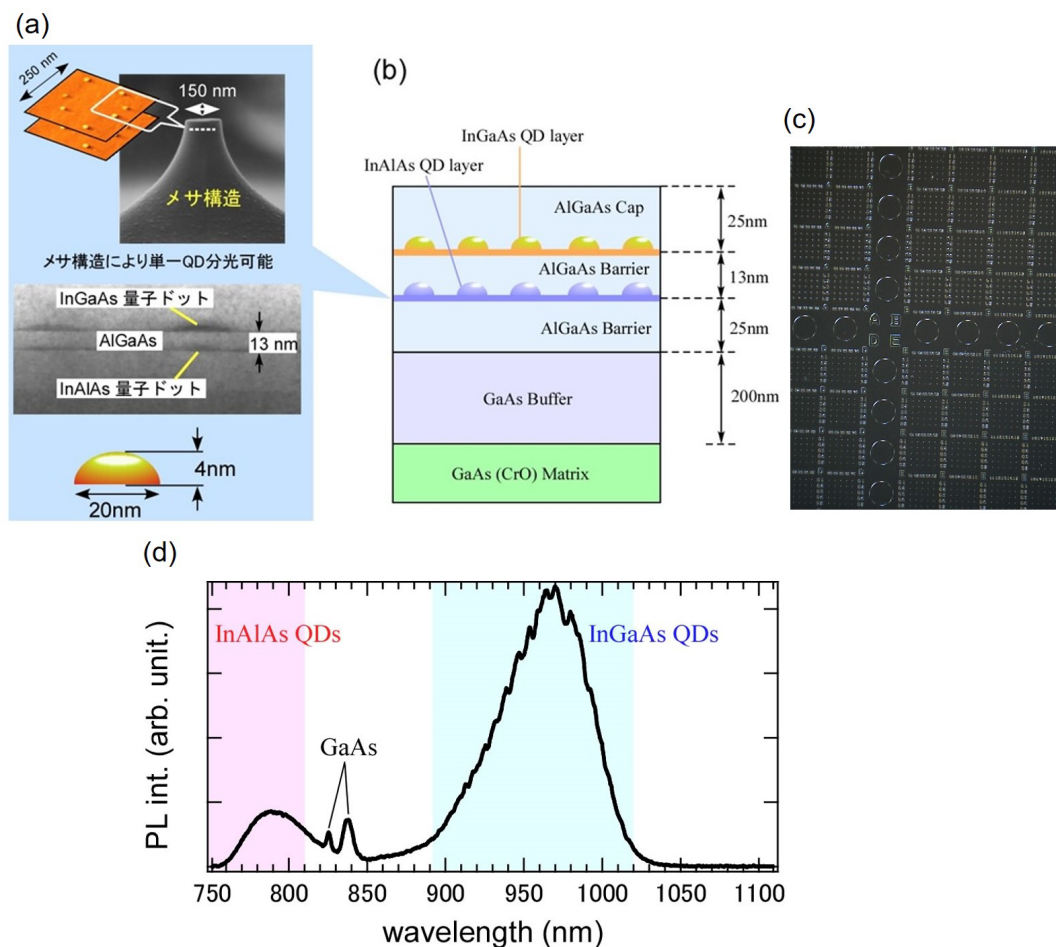


図 3.1: (a) InAlAs/AlGaAs QD 試料のメサ構造の SEM 画像と断面 TEM 画像, (b) 試料構造, (c) メサパターン拡大図. 大きな円部分はマクロ PL が測定可能な部分. (d) QD 試料からのマクロ PL スペクトル.

QD に代表される量子閉じ込め構造は, 分子線エピタキシー結晶成長法 (Molecular Beam Epitaxy: MBE) により, 基板上にエネルギーギャップの異なる半導体を原子層単位で積層することで形成される. 一般にバリア層材料の格子定数と量子閉じ込め層の材料は, 格子定数が異なるものを使用する. 積層成長するドット層の膜厚が小さい場合, 格子不整合による歪みは内包されバンド構造の変化を引き起こすが, ある臨界膜厚まで層状のコヒーレント成長は続く. 臨界膜厚に達すると限界まで内包された歪みを緩和するように島状成長が始まり, 自己集合型の量子ドットが形成される. この格子不整合を利用した成長モードを Stranski-Krastanov モード (SK モード) と呼び, 成長過程の基板温度や

材料供給量・材料温度により, QD 密度や大きさの制御が可能である [1, 2].

本研究で主に使用した自己集合 InAlAs/AlGaAs 量子ドットの試料構造を図 3.1(b) に示す. CrO ドープした GaAs[100] 基板の上に GaAs 緩衝層 (200 nm) とバリア層 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ QD (25 nm) を積み, その上に $\text{In}_{0.75}\text{Al}_{0.25}\text{As}$ QD 層, 更に 13 nm の $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ バリア層を挟んで $\text{In}_{0.7}\text{Ga}_{0.3}\text{As}$ QD を成長させて $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ でキャップしている. 試料最表面に同じ条件で成長させた表面観察用 InAlAs QD を原子力間顕微鏡 (AFM) で測定した結果, ドット密度が $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ ($500 \mu\text{m}^{-2}$) であり, 平均的なドットサイズが, 直径 20 nm, 高さ 4 nm であることが確認されている [3, 4]. また, ウェットエッチングと電子ビーム加工により (c) に示すメサパターンを加工した. 1 つのメサは (a) の SEM 画像に見られるように上部が 150 nm の直径の富士山型の形状をしており, 1 つのメサに含まれるドットの数 は 10 個弱となる. メサ間隔は $20 \mu\text{m}$ とレーザースポット径 ($\sim 1.8 \mu\text{m}$) に比べて十分広いため, 1 つのメサ中の QD のみを励起することができる.

自己集合 QD では, ドットサイズ分布等のために生じる発光エネルギーの不均一性により, CCD の同時観測波長領域に検出されるドットの個数は更に減少する. その結果, 単一 QD の発光スペクトルのみを議論することが可能である. また (d) に示す様に, この試料からは InGaAs QD からの発光 ($\sim 970 \text{ nm}$ 近傍にピーク) を観測することも可能であるが, 本研究では Si-CCD 検出器の感度の良い短波長域に発光スペクトルが観測できる InAlAs QD ($\sim 790 \text{ nm}$ 近傍にピーク) の測定に焦点を当てている. InAlAs QD 層と InGaAs QD 層の間のスペーサー層の厚みは 13 nm であり, QD 層間のトンネリング確率は小さく, 独立の発光が観測できる.

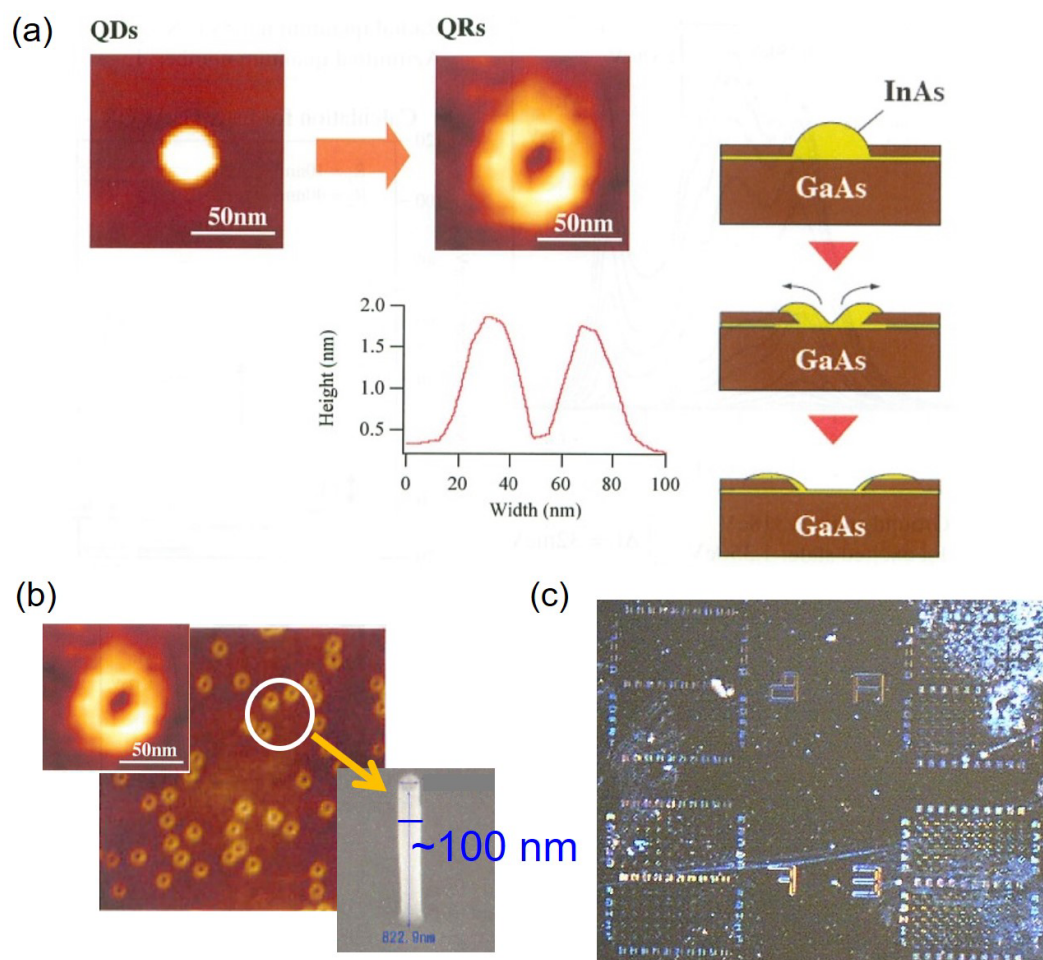


図 3.2: (a) InAs/GaAs QR の成長プロセス. (b) 表面 AFM 画像とピラー構造. (c) 試料面のピラー加工パターン.

また、本研究の一部で使用した半導体量子リングについてもここで説明する．半導体量子リングは、図 3.2(a) に示す様に自己集合 QDs からの形状変化により形成される [5]．QD 成長過程でバリア材料の薄膜を積層させ、一定時間高温に加熱する高速熱アニーリング (30–60 秒, 300–600 °C) を施すことで量子ドットが外側へ広がり、リング形状となる．作製の最後に島やリング上に形成した試料の上にバリア層を成長することで、量子構造は完成する．この過程により形成された量子構造を量子リング (QR) と呼ぶ．量子リング下の薄い層は濡れ層である．

リング形状は、QD 上に積層させる層の厚さやアニーリングの条件により制御できると考えられており、形状異方性の軽減が期待できる．実際に多数の QR のスペクトルを観測してみると、アニーリング工程を含まない InAs QD に比べ形状異方性による励起子微細構造分裂が小さい感触を得ており、もつれ合い光子対発生 の観点から大きな利点となる．

本研究で使用した InAs/GaAs QRs の平均的なリングのサイズは、高さ=10 nm , 外円直径=40 nm , 内円直径=10 nm であり、密度は $5.0 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ である．今回の試料は電子線リソグラフィとウェットエッチングによりメサ加工を施し (図 3.2(b)) , 1 つのメサに含まれる量子リングの数を ~ 10 個までに制限した．既に面直、面内の g 因子の絶対値とその異方性が詳細に測定されている [6, 7]．

3.2 単一量子ドット定常発光測定系

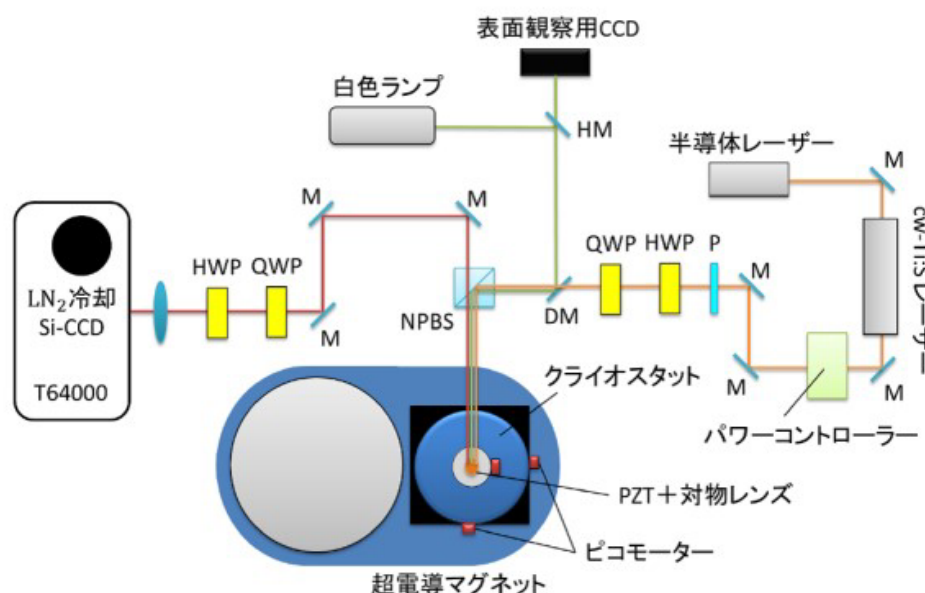


図 3.3: 実験で用いた顕微分光システムの概略図．M : 全反射ミラー，HM : ハーフミラー，P : 直線偏光子，HWP : 1/2 波長板，QWP : 1/4 波長板，NPBS : 無偏光ビームスプリッター，DM : ダイクロイックミラー．

単一 QD 発光 (PL) の定常測定に用いた光学系を図 3.3 に示す．励起光源には半導体レーザー励起 cw-Ti:Sapphire レーザー (3900S, Spectra Physics 社製) を用い、対物レンズ (Mitsutoyo M Plan Apo NIR $\times 20$, NA ~ 0.4) で試料に照射している．QD からの発光は同じ対物レンズで集められた後、トリプル回折格子分光器 (Horiba Jobin-Yvon T64000, 1200 grooves/mm $\times 3$) に導かれる．PL スペクトルの検出には液体窒素冷却の Si-CCD 検出器 (Princeton Instruments Spec-10:100BR) を使用し、積算時間 1 秒で測定した．トリプル回折格子分光器の加分散モードにおける同時観測波長領域は

約 9 nm である．測定系のスペクトル分解能は $\sim 12 \mu\text{eV}$ だが，スペクトルフィッティングを行うことで $5 \mu\text{eV}$ 以下の精度でピークエネルギーを決定することが可能である．また試料の表面観察用に，白色光源と CCD カメラを光路上に挿入している．この測定系ではアクチュエータ (ピコモーター) 駆動 XY ステージを用いたサンプル位置の自動制御を行っており，データをより安定した状況で取得することが出来る．試料冷却用のクライオスタット (Oxford Instruments MicrostatHiRes) はヘリウムフロー式で，約 4 K まで冷却可能である．磁気発光測定用の超電導マグネット (Oxford Instruments MicrostatBT) はバイポーラ電源で駆動し， $-5.0 \sim +5.0 \text{ T}$ までの磁場を発生させることが出来る．

励起レーザー光路上にはスピン選択励起を行うため，偏光子 (P)，1/2 波長板 (HWP)，1/4 波長板 (QWP) 等の偏光選択・変換素子を挿入している．本実験では，試料に対し円偏光励起を行った．通常，直線偏光子の透過軸に対し，光学軸を 45° 傾けた QWP を用いることで円偏光を作成するが，試料までの間にミラーなどの光学素子があると水平・垂直偏光成分の間の位相差が変化するため，試料直前では円偏光が楕円偏光になってしまう．この位相変化を補正するため，QWP に加えて HWP を挿入している．透過軸が垂直方向の直線偏光子，光学軸が水平方向から θ だけ傾いた HWP，光学軸が水平方向から 45° 傾けた QWP の順に配置して光を透過させると，水平・垂直成分の間の位相差は $\Delta\phi = \pi/2 + 4\theta$ となる．従って，HWP の角度を回転させることで任意のリターダンスを付加することができ，光学素子が誘起するリターダンスを補償，試料直前でも円偏光が得られるようになる．検出側も同様の方法で位相補正系を挿入し PL 測定を行った．試料位置制御の詳細は文献 [8]，位相補償の詳細は文献 [9] に譲る．

3.3 発光スペクトルの同定

2.2 節で述べたように，単一 QD からの発光スペクトルは数種類の励起子荷電状態から生じる．励起子の荷電状態により偏光特性や発光エネルギーが異なり，励起子微細構造の有無は電子・正孔エネルギー準位に大きな影響を及ぼす．電子-核スピン結合系ダイナミクスを考慮する上で，電子スピン状態やエネルギー分裂を正確に評価する必要があるため，各スペクトルの発光起源の特定は重要な作業である．

ここでは，4.1 節以降で標的とする InAlAs QD を用いて発光スペクトルの同定方法について説明する．InAs QR も同様の同定方法を使用した．ここでは同定方法として零磁場下で無偏光励起-直線偏光検出の定常発光測定を用いており，励起子微細構造の有無とそのエネルギー分裂の大きさ，結合エネルギーの大きさに着目する．

測定した発光スペクトルの検出角依存性を図 3.4(a) に示す．ここでは L1, L2, L3 の 3 本のスペクトルに着目する．L3 発光スペクトルは検出した全ての角度においてエネルギー分裂は測定されず，偏光状態は楕円偏光を示した．それに対し L1, L2 発光スペクトルは明確なエネルギーの検出角依存性を示している．図 3.4(a) の H 偏光と V 偏光を切り取ると図 3.4(b) になる．L1, L2 の発光ピークは反相関であり，その分裂エネルギーは共に $\sim 30 \mu\text{eV}$ であった．

電子-正孔間の異方的交換相互作用により励起子発光の偏光状態は直線偏光になるが，交換相互作用が作用しない励起子状態も存在する． X^0 は 1 個ずつの電子と正孔から構成されるため，スピン交換相互作用が働く．一方， X^+ は 1 個の電子と 2 個の正孔から構成され，その基底状態においてはパウリの排他律により 2 個の正孔のスピンは互いに反平行 (スピン一重項状態) である．そのため， X^+ には交換相互作用が働かず，発光において検出角に依存するエネルギー分裂は観測されない．2 個の電子と 1 個の正孔から構成される X^- の基底状態も同様である． XX^0 は 2 個ずつの電子と正孔から構成されるため，その基底状態は電子・正孔ペアともにスピン一重項状態をとり，交換相互作用は働かない．しかし， XX^0 は 1 光子の輻射により X^0 に遷移するため， X^0 における微細構造分裂により， XX^0 においてもエネルギー分裂は観測される．このとき $XX^0 \rightarrow X^0$ と $X^0 \rightarrow G$ の両遷移がカスケードに起こることから，辿る経路の違いによって発光の偏光状態は偏光軸が直交する直線偏光に

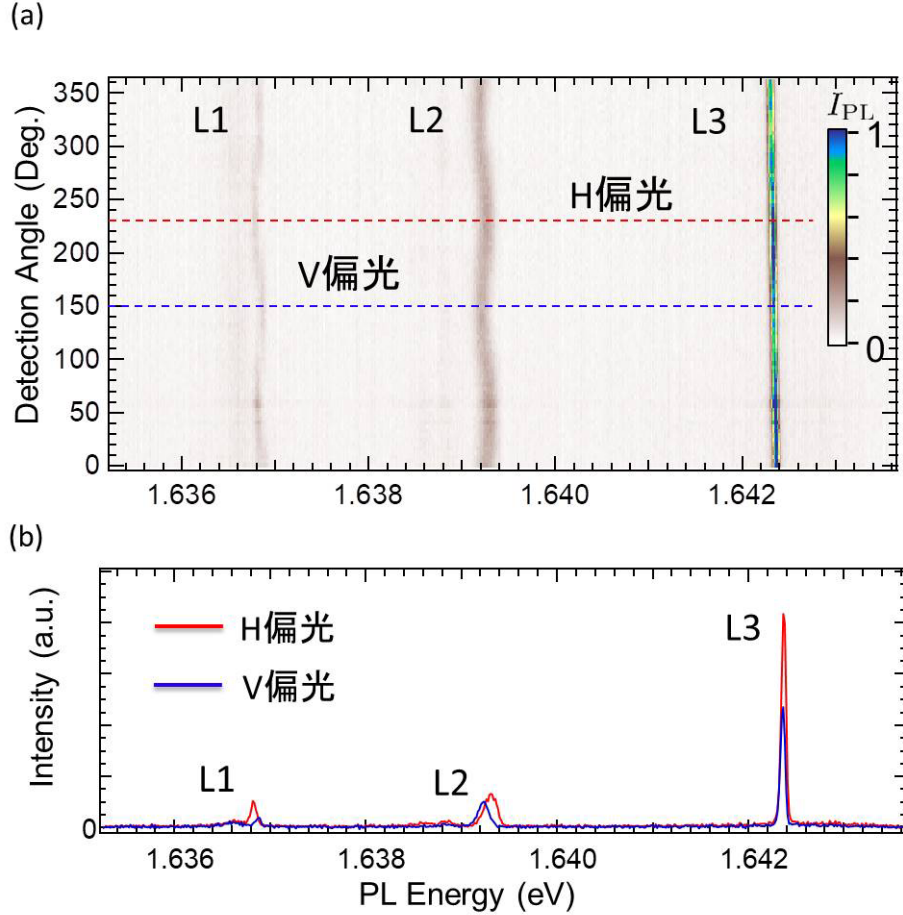


図 3.4: (a) 零磁場における無偏光励起-直線偏光検出により得られた QD 発光の 2 次元図. (b) 零磁場における QD 発光スペクトル. 赤線: H 偏光, 青線: V 偏光.

分かれる. その結果, X^0 と XX^0 において観測されるエネルギー分裂幅は等しくなり, 検出角に対するエネルギーパターンは X^0 と XX^0 で 90° 位相がずれる.

以上から L3 は荷電励起子, L1, L2 は中性励起子, もしくは中性励起子分子からの発光であると考えられる. さらに L1 スペクトルの低 (高) エネルギー側と L2 スペクトルの高 (低) エネルギー側は同一の偏光軸である V(H) 偏光を持つ直線偏光であるため, L1 と L2 の発光起源は同一 QD における X^0 , XX^0 のペアである予想される.

次に観測スペクトルの荷電状態について発光エネルギーから考察を行う. 一般に電子に比べ正孔の方が有効質量が大きいため, QD 内における波動関数の広がり, 電子に比べ正孔の方が小さくなる. したがって, QD 周辺では電子と正孔の波動関数の重なりは小さくなり, それらが作る電界は外向きである. ここに新たに 1 個の電子または正孔を加えようとする, クーロンポテンシャルによって正孔には反発力, 電子には引力が働く. その結果, X^0 を基準にとると発光エネルギーは X^+ は高エネルギー側, X^- は低エネルギー側に現れやすいことが指摘されている [10]. 励起子状態の結合エネルギーは, 中性励起子のエネルギー E_{X^0} , 正孔 (電子) のエネルギー $E_{h(e)}$, E_{XX^0} , 各々の状態のエネルギー $E_{X^{+(-)}}$, E_{XX^0} を用いて次のように記述できる.

$$B_{X^{+(-)}} = -[E_{X^{+(-)}} - (E_{X^0} + E_{h(e)})] \quad (3.1)$$

$$B_{XX^0} = -(E_{XX^0} - 2E_{X^0}) \quad (3.2)$$

従って、各励起子状態の発光エネルギーは $X^- < XX^0 < X^0 < X^+$ となることが予想される（ただし QD サイズに対する依存性がある）。

以上より、L1, L2, L3 の発光起源は XX^0, X^0, X^+ と推察した。

参考文献

- [1] 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”, *J. Crystal Growth* **322**, 6-9 (2011). DOI: [10.1016/j.jcrysgro.2011.02.034](https://doi.org/10.1016/j.jcrysgro.2011.02.034)
- [2] X. M. Lu, M. Koyama, Y. Izumi, Y. Nakata, S. Adachi, S. Muto, “Size distribution and its scaling behavior of InAlAs/AlGaAs quantum dots grown on GaAs by molecular beam epitaxy”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52** 025602/1-4 (2013). DOI: [10.7567/JJAP.52.025602](https://doi.org/10.7567/JJAP.52.025602)
- [3] H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, H.Z. Song, T. Miyazawa, Y. Nakata, “Carrier tunneling in asymmetric coupled quantum dots”, *Physica E* **21**, 511-515 (2004). DOI: [10.1016/j.physe.2003.11.076](https://doi.org/10.1016/j.physe.2003.11.076)
- [4] H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, H.Z. Song, T. Usuki, “Spin depolarization via tunneling effects in asymmetric double quantum dot structure”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, 2110-2113 (2004). DOI: [10.1143/JJAP.43.2110](https://doi.org/10.1143/JJAP.43.2110)
- [5] S. Suraprapapich, S. Panyakeow, and C. W. Tu, “Effect of arsenic species on the formation of (Ga)InAs nanostructures after partial capping and regrowth”, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 183112/1-3 (2007). DOI: [10.1063/1.2735676](https://doi.org/10.1063/1.2735676)
- [6] R. Kaji, T. Hozumi, Y. Hachiyama, T. Tomii, H. Sasakura, M. Jo, and S. Adachi, “Dispersions of hole and electron g-factors in single InAs quantum rings evaluated using optically induced nuclear spin polarization”, *Appl. Phys. Express* **7**, 065002/1-4 (2014). DOI: [10.7567/APEX.7.065002](https://doi.org/10.7567/APEX.7.065002)
- [7] R. Kaji, T. Tominaga, Y.-N. Wu, S.-J. Cheng, and S. Adachi, “Anisotropic nature of hole g-factor in individual InAs quantum rings”, *Phys. Status Solidi B* **254**, 1600486/1-7 (2017). DOI: [10.1002/pssb.201600486](https://doi.org/10.1002/pssb.201600486)
- [8] R. Kaji, Doctoral Thesis, “Spectroscopic studies on dynamic nuclear spin polarization in self-assembled single quantum dots”, Hokkaido University 2010.
- [9] S. Yamamoto, Master Thesis, “Formation of nuclear field orthogonal to electron spin and nuclear quadrupole effects in self-assembled single quantum dots”, Hokkaido University 2017.
- [10] T. Tsuchiya, “Biexcitons and charged excitons in quantum dots: a quantum Monte Carlo study”, *Physica E* **7**, 470-474 (2000). DOI: [10.1016/S1386-9477\(99\)00362-8](https://doi.org/10.1016/S1386-9477(99)00362-8)

第4章 電子・核スピン結合系のダイナミクス

4.1 磁場中の核スピン分極

2.6節で述べたように、QD内の電子・核スピン結合系では核スピン間の双極子-双極子相互作用や核四極子相互作用が働いているが、数テスラの外部磁場 B_z の下では、核四極子相互作用による有効磁場 ($B_Q \sim 0.3$ T, 5.2節参照) や核双極子場 ($B_L \sim 0.15$ mT) の効果は無視できる。特に双極子-双極子相互作用による核スピン緩和が大きく抑制されるため、大きな核磁場 B_N が形成されることが考えられるが、実際には B_z によって電子-核スピン間に大きなエネルギー不整合が生じるために電子-核の FF レートが低下する。従って 2.6.2 項で記述したように、大きい B_N を得るにはエネルギー不整合を相殺する条件を満たす必要がある。

ここでは、高磁場下 ($B_z \geq 3$ T) における Overhauser シフト (OHS) の測定を通じて、形成される核スピン分極の励起強度、励起偏光、外部磁場強度依存性について調べ、実験と計算の両方から核スピン分極の双安定性について議論する。その後、電子・正孔スピンの磁気応答を決める重要なパラメータである g 因子の個別評価を行う。

4.1.1 励起光強度依存性

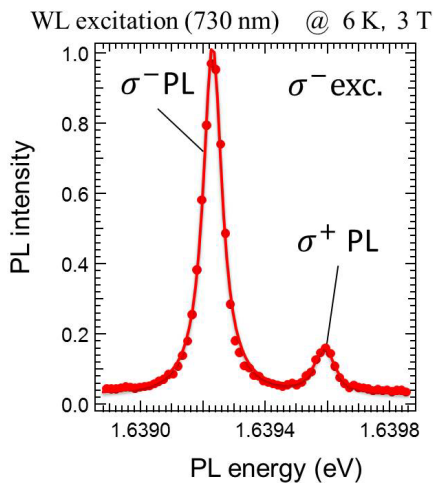


図 4.1: $B_z = 3$ T における X^+ 発光スペクトル (σ^- 励起)。

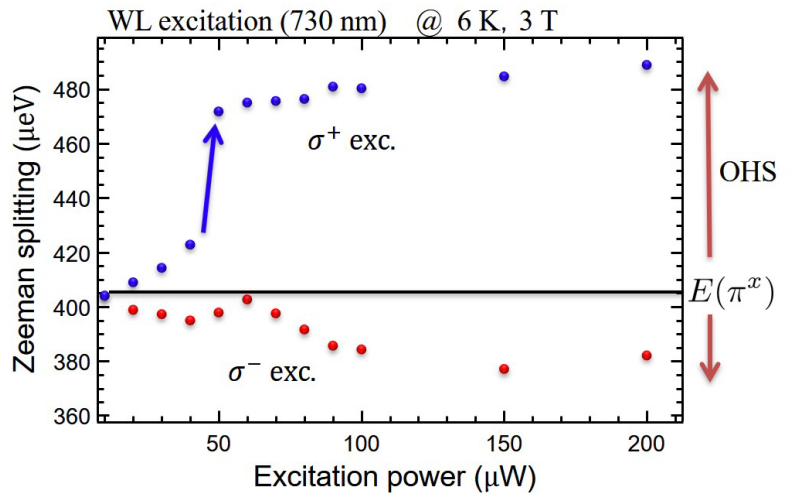


図 4.2: 3 T における ΔE_Z の励起強度依存性。

図 4.1 に 3 T の縦磁場下における X^+ PL スペクトルを示す。高磁場下では、励起子発光で評価されるゼーマン分裂幅が QD 発光のスペクトル幅 (X^+ PL の場合 ~ 40 μ eV) に比べて十分が大きくなるため、発光の偏光選択検出 (4.4.1 項参照) は不要である。図 4.2 は 6 K, 3 T の条件のもと、 X^+ のゼーマン分裂エネルギー (ΔE_Z) の励起強度依存性をプロットしたものである。青丸が σ^+ 励起、赤

丸が σ^- 励起での ΔE_Z を表しており、励起光強度 P_{exc} を増加させる方向に変化させた。また、直線偏光励起での ΔE_Z を $E(\pi^x)$ とし、 $B_z = 3$ T では $405 \mu\text{eV}$ となる。 P_{exc} の増加に伴い、 σ^+ 励起では ΔE_Z が増加したが、 σ^- 励起では ΔE_Z が減少した。 B_z によるゼーマン分裂エネルギー（この場合、 $E(\pi^x)$ に相当）は、 $|B_z|$ と励起子 g 因子 ($g_z^X = -g_z^h - g_z^e$) で決まる量であり、 P_{exc} で変わることはない。円偏光励起での ΔE_Z と $E(\pi^x)$ の差が、核磁場 B_N によるエネルギーシフト (OHS) である。 B_N が電子にのみ働くことを考慮すると、 $\Delta E_Z = -g_z^h \mu_B B_z - g_z^e \mu_B (B_z + B_N)$ と書くことができる。

また、 P_{exc} に対する依存性を詳しく調べると、 σ^+ 励起では ΔE_Z がある点 (図中の矢印) で急激に増加するのに対し、 σ^- 励起では ΔE_Z がゆるやかな減少を示すことが分かった。これは、2.6.2 節で述べた核スピン分極の形成緩和ダイナミクスから説明される。 σ^+ 励起で形成される B_N は B_z に対して逆方向であるため、電子・核スピン間の同時スピン反転 (FF) に係るエネルギー不整合が緩和される。この結果、正帰還による核スピン分極形成レート (T_{NF}^{-1}) の急上昇が起こり、低核偏極状態 (LNSP) から高核偏極状態 (HNSP) への遷移が現れる (核スピンスイッチング)¹。

σ^- 励起の場合、形成される B_N は B_z と同じ方向になるため、電子・核スピン FF でのエネルギー不整合が大きくなる。そのため、 T_{NF}^{-1} は P_{exc} に対して単調に減少、 σ^+ 励起の場合に比べて小さな OHS で飽和する。

4.1.2 励起光偏光依存性

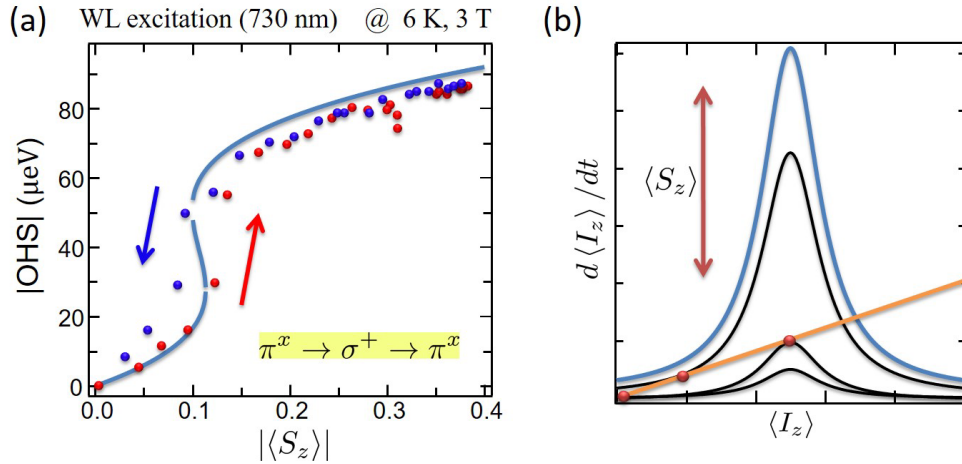


図 4.3: (a) 3 T における $|\text{OHS}|$ の励起偏光依存性。赤丸： $|\langle S_z \rangle|$ を増加させた場合 (励起偏光を $\pi^x \rightarrow \sigma^+$ と変化)、青丸： $|\langle S_z \rangle|$ を減少させた場合 (励起偏光を $\sigma^+ \rightarrow \pi^x$ と変化)。 (b) $\langle S_z \rangle$ の変化に対する T_{NF}^{-1} の変化。

次に励起偏光に対する OHS の変化について述べる。励起偏光を $\pi^x \rightarrow \sigma^+ \rightarrow \pi^x$ と系統的に変えることで、光注入する電子スピン分極 $\langle S_z \rangle$ を実験的に変えている。図 4.3(a) は $B_z = 3$ T における $|\text{OHS}|$ の $|\langle S_z \rangle|$ 依存性をプロットしたものであり、横軸の $|\langle S_z \rangle|$ は X^+ 発光の DCP から式 (2.4) を用いて評価した。今回の実験では、 $-0.4 \lesssim \langle S_z \rangle \leq 0$ の値を取る。 $|\langle S_z \rangle|$ の増加 (図中の赤丸)・減少 (図中の青丸) に対して、異なる点で $|\text{OHS}|$ の急峻な変化を示すヒステリシス特性が見られた。これは、図 4.3(b) で示すように $\langle S_z \rangle$ の増減に伴って T_{NF}^{-1} が変化するためである。図 4.3(a) の実線は、式 (2.46) 及び (2.47) による計算曲線であり、実験データとの良い一致を示している。

¹ 今回の実験では P_{exc} を増加させる向きのデータしか取得していないが、 P_{exc} を減少する向きに変化させて OHS を観測すると、核スピン分極のヒステリシス応答が観測できる [1]。

$\langle S_z \rangle$ に対する T_{NF}^{-1} の依存性が、励起強度に対する依存性 (図 2.9 参照) と類似している点は興味深い。QD 内に不対電子が存在する時間的確率 (f_e) と電子スピン時間平均分極 ($\langle S_z \rangle$) という違いはあるものの、両者は共に核スピン分極形成の電子スピン変化に寄与するため、同様の傾向を示す。

4.1.3 磁場強度依存性

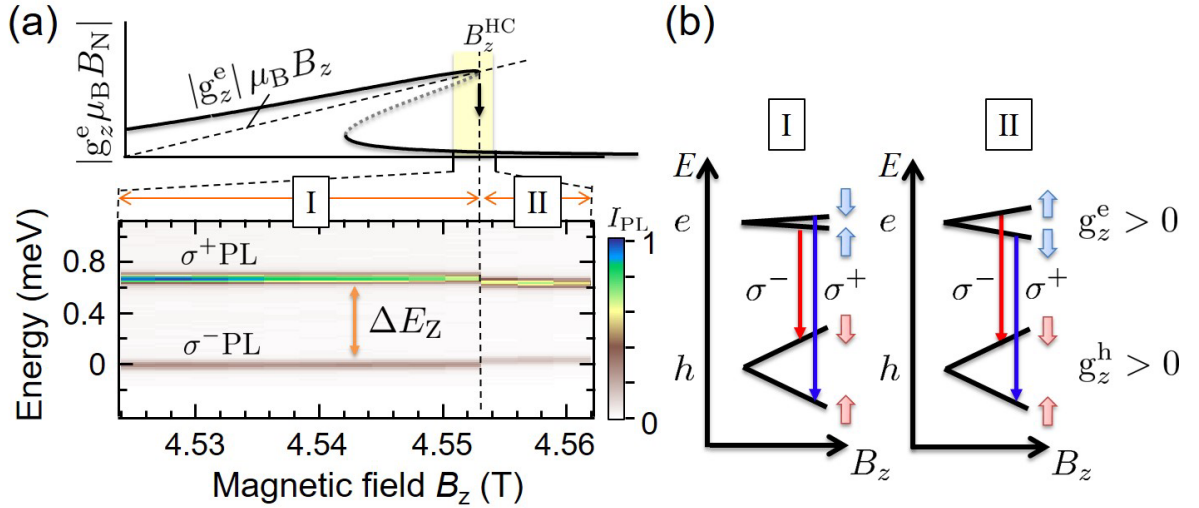


図 4.4: (a) B_z に対する OHS の双安定性の計算例 (上パネル) と B_z を増加させた場合の X^+ PL の 2 次元プロット (下パネル). (b) $B_z (> 0)$ での電子および正孔スピン状態の概略図. I : $B_z \leq B_z^{\text{HC}}$ (左), II : $B_z > B_z^{\text{HC}}$ (右).

次に、外部磁場 B_z に対する OHS の依存性を調べる。図 4.4(a) は σ^+ 励起での X^+ 発光スペクトルの 2 次元プロットであり、横軸は B_z 、縦軸は発光エネルギー (但し σ^- PL を起点とする) を表す。図では一部のみを示しているが、 B_z を 4 T から 5 T まで 0.1 T/min の掃引速度で増加させた。 B_z の増加に伴い ΔE_Z は緩やかに増加するが、4.553 T 近傍で急激な減少が見られた。この時の B_z を、臨界磁場 B_z^{HC} と呼ぶことにする。

2.6.2 項で説明したように、 T_{NF}^{-1} (ローレンツ型) のピークの位置 $\langle I_z \rangle = g_z^e \mu_B B_z / A$ は、 B_z と B_N が釣り合う点 (つまり、電子ゼーマン分裂 ~ 0 の点) に対応する。 B_z を増加させると、 T_{NF}^{-1} は $\langle I_z \rangle$ が大きい点に移動するため、核スピン系が取り得る状態 (HNSP, LNSP, 不安定解) の数とその点での $\langle I_z \rangle$ が B_z に伴って変化する。図 4.4(a) の上パネルは、 B_z に対する OHS の双安定性を計算した例である。掃引方向の違いによる OHS のヒステリシス特性と、 B_z^{HC} での OHS の急峻な変化 (HNSP $\rightarrow$ LNSP) がモデル計算にも表れている。

図 4.4(b) に遷移前 ($B_z \leq B_z^{\text{HC}}$, 領域 I) と遷移後 ($B_z > B_z^{\text{HC}}$, 領域 II) での電子・正孔スピンのエネルギー準位を示す。領域 II (LNSP) では、 B_N による B_z の補償が不完全であるため、電子が受ける有効磁場 $\mathbf{B}_{\text{eff}}^e (= \mathbf{B}_z + \mathbf{B}_N)$ は正になる。一方、領域 I (HNSP) では、 B_N が B_z を過度に補償するために $\mathbf{B}_{\text{eff}}^e < \mathbf{0}$ となる。この結果、電子スピンのアップ・ダウンの配置が、領域 I と領域 II では反転している。これは、電子の実効的な g 因子の符号が反転したと見なすこともできる。

4.1.4 電子・正孔 g 因子の個別評価と符号判定

この節では、核磁場による外部磁場の補償を用いて、結晶成長方向の電子・正孔 g 因子 (g_z^e , g_z^h) を符号まで含めて評価する方法を述べる。核スピン分極の双安定性を利用すると、通常の発光測定ではアクセスできない $|g_z^e|$, $|g_z^h|$, および $g_z^e \cdot g_z^h$ の符号が評価できることは既に報告されている [2]。本研究では、励起偏光と観測されるゼーマン分裂のパターンを詳細に調べることで、 g_z^e と g_z^h の符号を個別に判定する方法を開発した。

まずは、($|g_z^e|$, $|g_z^h|$) の個別評価について簡単に述べる。励起子ゼーマン分裂エネルギー ΔE_Z は、電子スピン・正孔スピンのゼーマン分裂エネルギー (それぞれ ΔE_Z^e , ΔE_Z^h と表す) の両方から決まる。図 4.5(a) は直線偏光励起での X^+ 発光のゼーマンシフトを表し、高エネルギー側が σ^+ 偏光, 低エネルギー側が σ^- 偏光成分のシフト量を表す。両偏光成分が、 B_z に対して線形にシフトしていることが分かる。 σ^+ , σ^- 偏光成分のエネルギーを $E(\sigma^+)$, $E(\sigma^-)$ とし、 $|\Delta E_Z|$ をプロットしたものが図 4.5(b) である。但し、本論文では

$$\Delta E_Z \equiv E(\sigma^+) - E(\sigma^-) \quad (4.1)$$

と定義している。直線偏光励起の下では B_N が生じないため、 $|\Delta E_Z|$ は $|B_z|$ の増加に伴って線形に増加する²。励起子 g 因子 $g_z^X = -(g_z^h + g_z^e)$ を用いて $|\Delta E_Z| = |g_z^X| \mu_B B_z$ でフィッティングすると (図中の実線), 標的とする InAlAs QD について $|g_z^X| = 2.23 \pm 0.01$ が得られた。

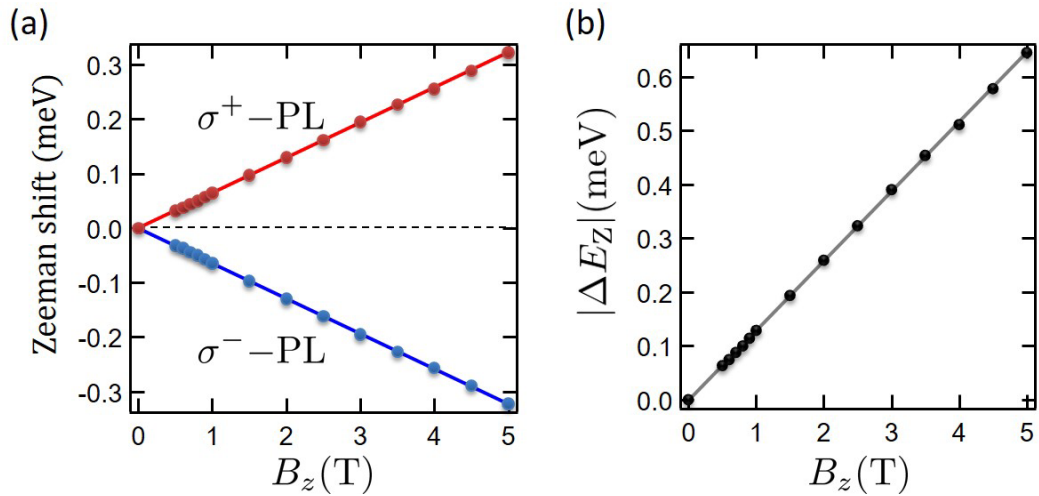


図 4.5: (a) 直線偏光励起での X^+ 発光のゼーマンシフト. (b) $|\Delta E_Z|$ の B_z 依存性.

さて、 σ^+ 励起の下で実験条件 (P_{exc} , B_z) を調整すると、 B_N による B_z の補償が見られる点は本節で述べてきたとおりである。注目すべきは、HNSP $\rightarrow$ LNSP の時に $\Delta E_Z^e = g_z^e \mu_B (B_z + B_N)$ がちょうど零になる点である。このため、 ΔE_Z から $\Delta E_Z^h = g_z^h \mu_B B_z$ のみを抽出することが可能となり、 g_z^h が求められる。その後、 g_z^X と g_z^h を比較すると、 g_z^e まで評価できる。

図 4.6(a) は σ^+ 励起の下、 X^+ 発光の $|\Delta E_Z|$ と $\rho_c(X^+)$ の B_z 依存性 (但し B_z を増加させる方向に掃引) を測定した結果である。マーカーの色の違いは、 P_{exc} の違い (赤 $\rightarrow$ 青 $\rightarrow$ 緑の順に P_{exc} を増加) に対応する³。前節と同様、 B_z^{HC} において $|\Delta E_Z|$ の急激な減少が見られるが、それと同期して

² X^0 や XX^0 など零磁場で FSS を持つ場合は、低磁場領域 ($B_z \lesssim \delta_b / (g_z^X \mu_B)$) での ΔE_Z の変化が緩やかになる。

³ P_{exc} の増加に伴って B_z^{HF} が増加するが、これはモデル計算からも確認されている。この特性は、 ΔE_Z^h の測定点を増やし、 g_z^h (と g_z^e) の測定精度を向上させる上で役立つ。

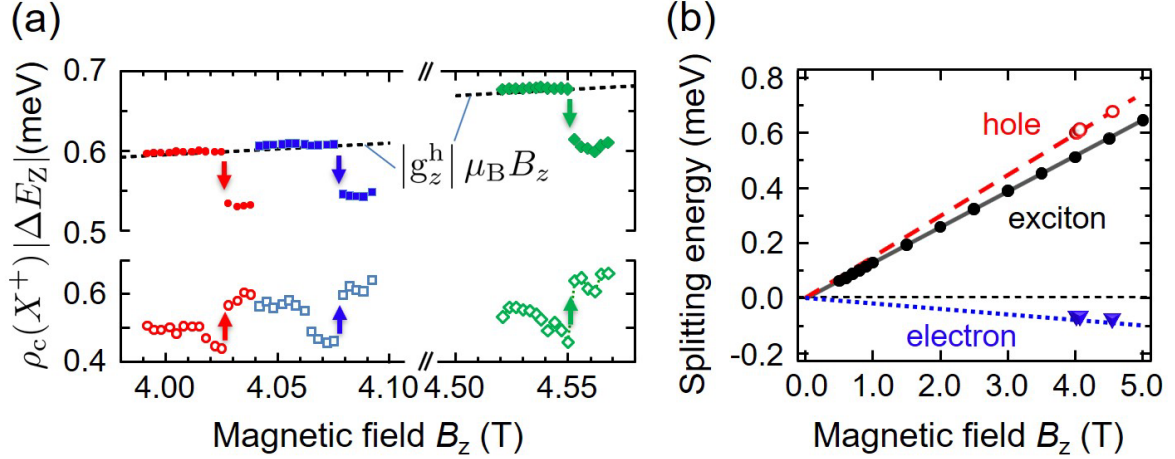


図 4.6: (a) σ^+ 励起での $|\Delta E_Z|$, $\rho_c(X^+)$ の B_z 依存性. 破線は $|\Delta E_Z^h|$ の計算曲線を表す. (b) ΔE_Z^h , ΔE_Z^e (σ^+ 励起) と ΔE_Z (直線偏光励起) の B_z 依存性.

$\rho_c(X^+)$ も急峻な変化を示すことが分かった. $\rho_c(X^+)$ に関する議論は次節に譲り, ここでは ΔE_Z の変化にのみ注目する. 図 4.6(b) に, B_z^{HC} における ΔE_Z から抽出した ΔE_Z^h (○) と, 直線偏光励起での ΔE_Z (●) をプロットした. フィッティングから $|g_z^h| = 2.57 \pm 0.01$ が得られたので, $|g_z^x|$ との比較から $|g_z^e| = 0.34 \pm 0.02$ (但し, $g_z^h \cdot g_z^e < 0$) まで求めることができる.

ここまでの議論に加えて, 励起偏光と ΔE_Z の関係から (g_z^e, g_z^h) の個々の符号を判別する. これまで InAlAs QD では LNSP→HNPS 遷移 (核スピンスイッチング) の結果, $|\Delta E_Z|$ が増加することを見てきた. 一方, In(Ga)As QD での先行研究では, 核スピンスイッチングによって $|\Delta E_Z|$ が減少することが報告されている [3, 4]. 核スピンスイッチングに伴う $|\Delta E_Z|$ のパターンの違いは, $g_z^e \cdot g_z^h$ の符号の違いとして説明することができた (InAlAs QD では $g_z^e \cdot g_z^h < 0$, In(Ga)As QD では $g_z^e \cdot g_z^h > 0$ [2]). ここでは更に, 核スピンスイッチングを起こす励起偏光 (つまり光注入電子スピンの向き) に注目する.

図 4.7 に, (g_z^e, g_z^h) の符号が異なる 4 パターンについて, 予想される電子・正孔スピン配置と ΔE_Z の励起偏光依存性をまとめた. ここでは, $|g_z^h| > |g_z^e|$ を仮定している⁴. σ^+ 励起でダウンスピンの電子を光注入すると, $\langle I_z \rangle < 0$ が誘起されるが, σ^- 励起ではアップスピンの電子が光注入されるので, $\langle I_z \rangle > 0$ が生じる. $\langle I_z \rangle$ の符号は $\langle S_z \rangle$ の符号で決まるが, これが $\mathbf{B}_N$ として電子の有効磁場として働く場合, $\mathbf{B}_N = A_z \langle I_z \rangle / (g_z^e \mu_B)$ の関係を通して, g_z^e の符号が $\mathbf{B}_N$ の方向を決めることになる.

$g_z^e > 0$ である (a), (c) の場合, σ^+ 励起で生じる $\langle I_z \rangle < 0$ が $B_N < 0$ として $B_z > 0$ を補償するため, σ^+ 励起の下で核スピンスイッチングが現れる. 逆に, $g_z^e < 0$ である (b), (d) の場合, $\langle I_z \rangle > 0$ を作る σ^- 励起の下で核スピンスイッチングが見られることになる. 以上を踏まえて ΔE_Z の振る舞いに着目すると, $g_z^e > 0$ (a, c) では ΔE_Z が σ^+ 励起で増加, $g_z^e < 0$ (b, d) では ΔE_Z が σ^- 励起で減少すると予想される.

更に, (a) と (c), (b) と (d) を区別するには, $g_z^e \cdot g_z^h$ の符号を判別する必要がある. これは $|\Delta E_Z| = |\Delta E_Z^e| + |\Delta E_Z^h|$ (c, b) と $|\Delta E_Z| = |\Delta E_Z^e| - |\Delta E_Z^h|$ (a, d) を識別することと等価であるが, これまで適切な指標がなかった. ここでは, 式 (4.1) で定義した ΔE_Z の符号に注目する. $g_z^h < 0$ である (a), (b) の場合, $|g_z^h| > |g_z^e|$ の仮定から $\Delta E_Z > 0$ となるのに対して, $g_z^h > 0$ である (c), (d) の場合, $\Delta E_Z < 0$ となる. 従って, 核スピンスイッチングによる ΔE_Z の変化と, ΔE_Z の符号の組み合わせから, 4 つの状態を識別することが可能である. 以上を表 4.1 にまとめる.

⁴この仮定は, III-V 族 QD での z 方向の g 因子について広く当てはまる.

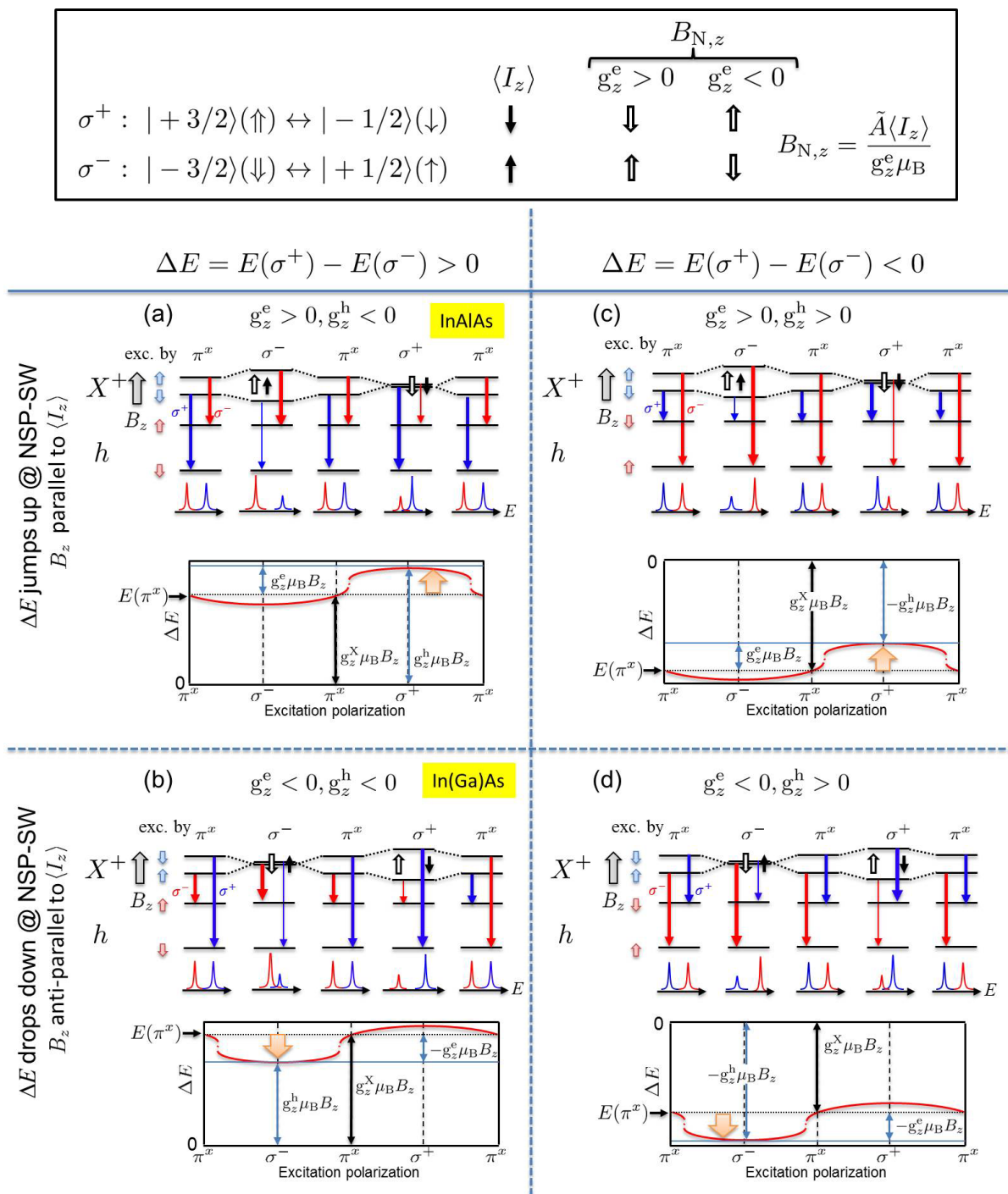


図 4.7: 電子・正孔 g 因子の符号判別.

表 4.1: g 因子の符号判別. ここで $\Delta E_Z \equiv E(\sigma^+) - E(\sigma^-)$ である.

sign of g -factors	change of ΔE_Z	sign of ΔE_Z
$g_z^e > 0, g_z^h > 0$	jump-up	negative
$g_z^e < 0, g_z^h > 0$	drop-down	negative
$g_z^e > 0, g_z^h < 0$	jump-up	positive
$g_z^e < 0, g_z^h < 0$	drop-down	positive

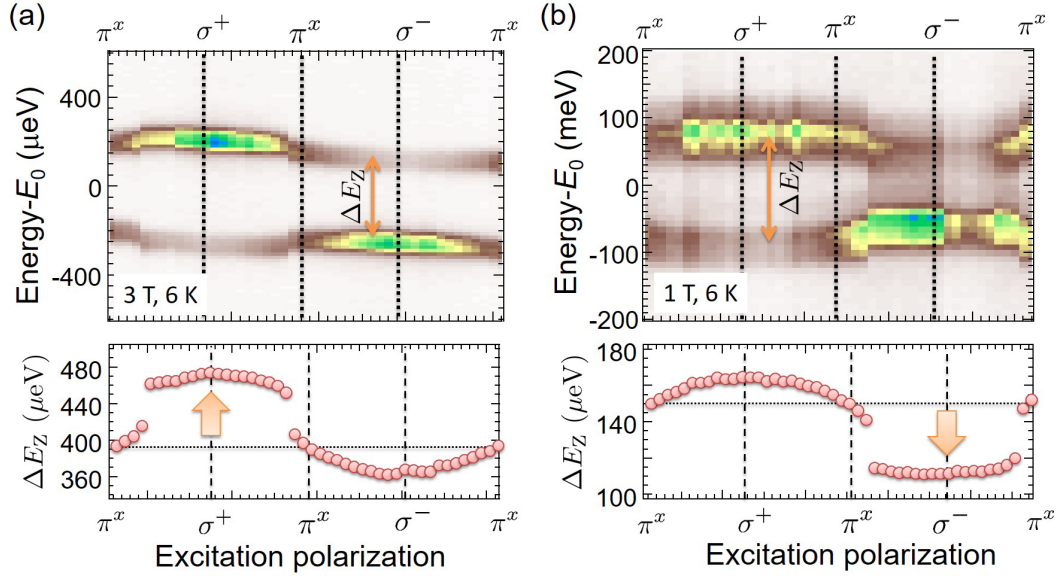

 図 4.8: (a) InAlAs QD と (b) InAs QR での励起偏光掃引による電子・正孔 g 因子の符号判別. 上段: 発光スペクトルの 2 次元表示. 下段: ΔE_Z の励起偏光依存性.

図 4.7 の g 因子符号判別法の実証結果を図 4.8 に示す. (a) は InAlAs QD での, (b) は InAs QR での結果である. 図の上段は励起偏光を掃引した時の発光スペクトルの 2 次元表示, 下段は ΔE_Z の励起偏光依存性をプロットしている. それぞれの実験結果は, 図 4.7 の (a) と (b) に該当する. 共に $\Delta E_Z > 0$ であることから, $g_z^h < 0$ が分かる. 更に, 核スピンスイッチングにより ΔE_Z が増加 (減少) することから, InAlAs QD (InAs QR) では $g_z^e > 0$ ($g_z^e < 0$) と識別することができる.

本手法で得られた結果は, $g_z^e \cdot g_z^h$ の符号に関するこれまでの報告と矛盾しない. 更に, In(Ga)As QD での理論計算 [5] では, $g_z^h < 0, g_z^e < 0$ となることが指摘されているが, 本研究で使用了 InAs QR も, In(Ga)As QD と同符号の g 因子を持つと考えられるため, 図 4.8(b) の実験結果と理論の一致が得られたと言える. 通常, 半導体バルクや量子井戸の g 因子の符号判別は時間分解測定で行われるが, 単一 QD ではその発光微弱性により測定が困難となる. 従って, 信号の取得が容易な定常発光測定手法をベースとしており, かつ, 核スピン分極が形成される III-V 族半導体ならば適応可能な本手法は, QD の g 因子の符号判別を行う上で優位性を持つと考えている.

4.2 核磁場揺らぎの評価

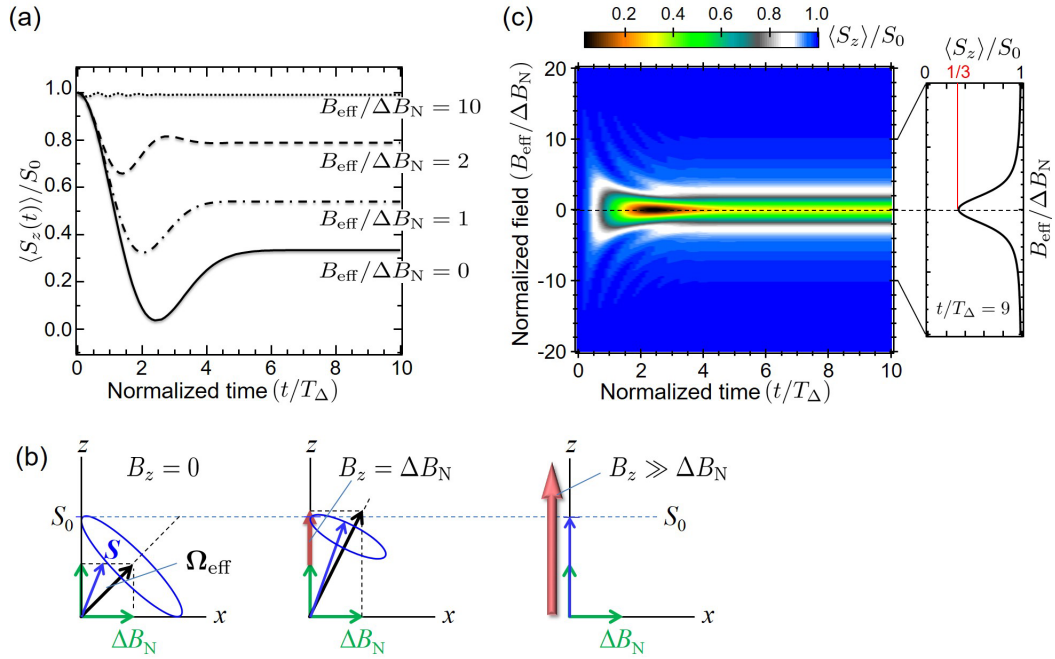


図 4.9: (a) 電子スピン分極の時間発展の計算曲線. 縦軸は S_0 で規格化した $\langle S_z(t) \rangle$, 横軸は T_Δ で規格化した時間を表す. 有効磁場として, ΔB_N と $\mathbf{B}_{\text{eff}} = B_z \mathbf{e}_z$ ($\mathbf{e}_z$: z 軸方向の単位ベクトル) を想定している. (b) $B_{\text{eff}} = 0$ (左), $B_{\text{eff}} = \Delta B_N$ (中), $B_{\text{eff}} \gg \Delta B_N$ (右) における電子スピン $\mathbf{S}$ と歳差ベクトル $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ のモデル. (c) $\langle S_z(t) \rangle / S_0$ の 2 次元プロットの計算結果. 縦軸は ΔB_N で規格化した B_{eff} , 横軸は t/T_Δ . $t/T_\Delta = 9$ でのプロファイルを右のパネルに載せる.

ここでは, QD 局在電子のスピン緩和ダイナミクスで重要な役割を果たす核磁場揺らぎを評価する. 核スピン集団 (10^4 - 10^6 atoms/QD) は巨視的な核スピン分極から生じる核磁場 ($\mathbf{B}_N$) に加え, ランダムな揺らぎ成分である核磁場揺らぎ ($\Delta \mathbf{B}_N$) を通して電子スピンに影響を与える.

スピンは有効磁場 $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ の周りを歳差運動し, そこで受ける散乱過程を経て初期スピン分極を失う (スピン緩和). スピン緩和時間は一般に, $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ の大きさと, $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ が一定と見なせる特徴的な時間 (相関時間: τ_c) によって決定される [6, 7]. バルクや量子井戸構造では, 波数に依存する有効磁場がスピン緩和で支配的な役割を果たすことが知られているが, キャリアの並進運動が抑制される QD 構造では, 核スピン集団が作る有効磁場 ($= \mathbf{B}_N + \Delta \mathbf{B}_N$) の影響が支配的になる.

HFI のみで電子スピン緩和が決まる場合, 発光再結合寿命 τ_R に対して τ_c が長くなるため, τ_R の間, 電子スピンは $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ の周りをコヒーレントに回転する. 但し $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}} = \Delta \mathbf{B}_N$ の場合, QD 毎に $\Delta \mathbf{B}_N$ の大きさと方向が異なるため, 個々の電子スピンコヒーレンスが保たれているに関わらず, QD 集団のアンサンブル平均としての電子スピン分極 $\langle S_z \rangle$ は減衰する. これを, 核磁場揺らぎによる電子スピン緩和と言う⁵. HFI が 3 次元空間で等方的に働くことと仮定すると, $\langle S_z \rangle$ は初期電子スピン分極 S_0 の 1/3 まで減衰する (図 4.9(a) の実線参照). 単一 QD の電子スピンについても, 長時間にわたって多数回測定を行い, アンサンブル平均としての $\langle S_z \rangle$ に注目すると, 測定のタイミング毎で $\Delta \mathbf{B}_N$ が少しずつ異なるため, QD 集団の場合と同様のスピン緩和が観られる.

⁵ 対象とするタイムスケールでは, 電子スピンの歳差運動を引き起こす $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}}$ が一定と見なせることから, *frozen fluctuation model* とも呼ばれる.

ΔB_N の大きさは、核スピン集団を特徴づけるパラメータ (N : 核の個数, I : 核スピン量子数, A : 超微細相互作用係数) と電子 g 因子⁶ から概算することができる:

$$\Delta B_N \cong AI / (\sqrt{N} g^e \mu_B) \quad (4.2)$$

また, ΔB_N と電子スピン緩和時間 T_Δ は次の式で関係付けられる:

$$T_\Delta = \hbar / (g^e \mu_B \Delta B_N) \quad (4.3)$$

以上は, 図 4.9(b) の左に示すように, マクロな有効磁場 $\mathbf{B}_{\text{eff}} \equiv \mathbf{B}_N + \mathbf{B}_{\text{ext}}$ (但し, $\mathbf{B}_{\text{ext}}$: 外部磁場) が存在しない場合の議論である. 次に $\mathbf{B}_{\text{ext}} = (0, 0, B_z)$ が加わると, 電子スピン緩和ダイナミクスにどのような変化が生じるかを見てみよう. 方向がランダムに変わる ΔB_N に加えて, z 軸方向 (光注入電子スピンと同軸) に定常的な有効磁場が働くと, $\mathbf{\Omega}_{\text{eff}} (= \Delta \mathbf{B}_N + \mathbf{B}_{\text{eff}})$ は B_z の増加に伴って z 軸方向に漸近する (図 4.9(b) 参照).

B_z に対する $\langle S_z(t) \rangle$ の計算曲線の変化を図 4.9(a) にまとめる. 縦軸は S_0 で規格化した電子スピン分極, 横軸は T_Δ で規格化した時間を表す. B_z の増加に伴って $\langle S_z(t) \rangle$ の振動は抑えられ, 強い B_z ($= B_{\text{eff}}$) の極限では S_0 がほとんど減衰しないことが分かる.

同様の計算を, $-20 \leq (B_{\text{eff}}/\Delta B_N) \leq 20$ の範囲で行い, 図 4.9(c) の 2 次元プロットを作った. $B_{\text{eff}}/\Delta B_N = 0$ の破線に対して, 対称なパターンが得られた. 更に, 十分に長い時間領域の例として, $t/T_\Delta = 9$ のプロファイルを図右パネルに示す. $B_{\text{eff}}/\Delta B_N = 0$ の点で $\langle S_z(t) \rangle / S_0$ は最小値 (電子スピンの場合, $\Delta \mathbf{B}_N$ の等方性を反映して $1/3$) を取り, $|B_{\text{eff}}/\Delta B_N|$ の増加に伴い 1 (つまり $\langle S_z(t) \rangle = S_0$) に漸近する様子が見られる.

我々の実験では, X^+ 発光の円偏光度 ρ_c から時間平均としての $\langle S_z \rangle$ を評価する. 上のモデル計算での $\langle S_z(t) \rangle$ と観測にかかる ρ_c は, 次式で関係付けられる:

$$\rho_c = -\frac{2}{\tau_R} \int_0^\infty \langle S_z(t) \rangle \exp(-\frac{t}{\tau_R}) dt \quad (4.4)$$

ここで, τ_R は X^+ の発光寿命である. 式 (4.4) から導かれる ρ_c は, 図 4.9(c) の右パネルと同様, $B_{\text{eff}}/\Delta B_N = 0$ で最小となるディップ構造を取るが, その深さと幅は T_Δ と τ_R の比で決定される.

以上の議論を踏まえて, 実際に単一 QD の T_Δ と ΔB_N を評価してみる. 図 4.10(a) は InAlAs QD の $\rho_c(X^+)$ を $|\Delta E_Z^e|$ に対してプロットしたものである⁷. モデル計算では B_z によって B_{eff} を変えたが, 本実験では B_N によって実効的な B_{eff} を変えている⁸. 実験的に, $|\Delta E_Z^e| \sim 0$ の近傍で $\rho_c(X^+)$ が最小となることが確認された. 式 (4.4) を使ってフィッティングした結果が図中の実線である. カーブの幅については議論の余地があるが, 実験結果を概ね再現していると言える. この解析から, $S_0 = 0.31 \pm 0.05$, $T_\Delta = 0.80 \pm 0.10$ ns (但し, 他の測定で評価した $\tau_R = 0.75$ ns を考慮) が得られた.

次に, T_Δ から ΔB_N を求める. 式 (4.3) を用いると, この InAlAs QD (但し, $g_z^e = +0.34 \pm 0.02$) の核磁場揺らぎの大きさは $\Delta B_N \sim 40$ mT と評価された. この値と, 式 (4.1) から見積もられる理論値 ~ 42 mT (但し, InAlAs QD の固有パラメータとして $(g_z^e, \tilde{A}, \tilde{I}, N) = (+0.34, 52.6 \mu\text{eV}, 2.75, 3 \times 10^4)$ を採用) を比較すると良い一致が得られたことから, この解析方法が妥当であると言える. また, 今回の測定で得られた ΔB_N は, 異なる単一 InAlAs QD (但し, $\rho_c(X^+), \Delta E_Z^e$ のデータを時間分解 PL 測定で取得) での測定値と一致した [8].

図 4.10(b) に, 同様の測定を InAs QR で行った結果を示す. InAlAs QD の場合と同じく, $|\Delta E_Z^e| \sim 0$ の近傍で $\rho_c(X^+)$ が最小になっており, ΔB_N による電子スピン緩和が起こっていると考えられる. 式

⁶ ここでは議論を簡単にするために, 電子 g 因子は等方的であると仮定している.

⁷ $\rho_c(X^+)$ とそれに対応する $|\Delta E_Z^e|$ は, 図 4.6 のデータを利用した.

⁸ B_N の双安定現象を利用しているため, $|\Delta E_Z^e| = 10\text{--}50 \mu\text{eV}$ の箇所データ点に跳びが生じている.

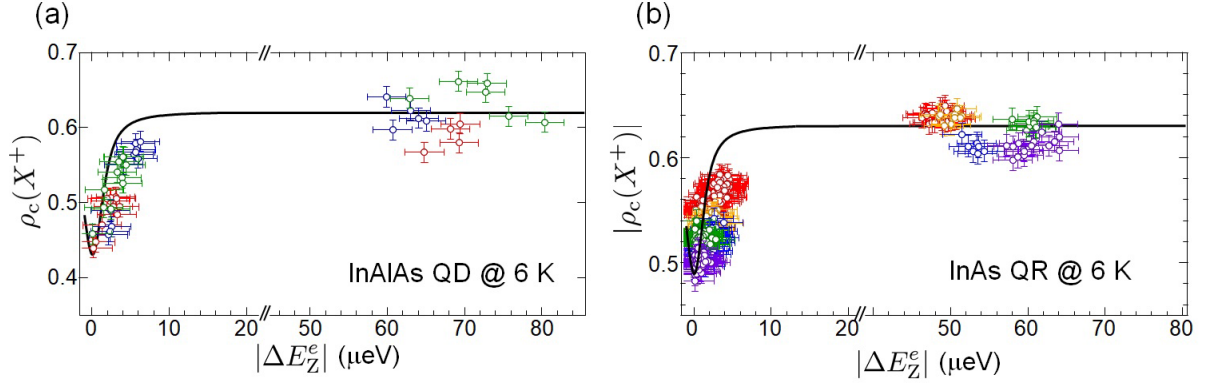


図 4.10: (a) InAlAs QD での $\rho_c(X^+)$ の $|\Delta E_Z^e|$ 依存性. 図 4.6 で示したデータ点を利用している. (b) InAs QR での $\rho_c(X^+)$ の $|\Delta E_Z^e|$ 依存性. (a) (b) ともに, 実線は式 (4.4) と図 4.9(c) の計算コードを組み合わせたフィッティング曲線である. フィッティングから InAlAs QD では $T_\Delta = 0.8 \pm 0.1$ ns (但し, $\tau_R = 0.75$ ns と想定), InAs QR では $T_\Delta = 1.00 \pm 0.05$ ns (但し, $\tau_R = 0.70$ ns と想定) と評価できた.

4.4 で実験データをフィッティングすると, $S_0 = 0.31 \pm 0.03$, $T_\Delta = 1.00 \pm 0.05$ ns (但し, $\tau_R = 0.70$ ns と想定) が得られた. この InAs QR での $g_z^e = -0.60$ (測定値) と, その他のパラメータを考慮すると $\Delta B_N \sim 19$ mT が得られた. これまでに計測された核磁場揺らぎの報告例としては, InAs QD: ~ 30 mT [9, 10], In(Ga)As QD: ~ 10.5 mT [11], InP QDs: ~ 15 mT [12]. があり, これらの値も今回の測定方法が妥当であることを示している.

電子-核スピン結合系において電子スピンコヒーレンスに大きな影響を与える核磁場揺らぎは無視できるものではなく, その効果を調べることは重要である. 核磁場揺らぎの効果は時間分解測定系で電子スピン緩和を直接観測することで評価されてきた. しかし, g 因子符号判別と同様に発光が微弱な単一 QD に適用することは難しく, 個々の QD を評価するには不向きである. 本測定は核磁場揺らぎの大きさを簡便に測定するものであり, 時間分解測定を行う必要ないため個々の QD に適用する上で有効である.

4.3 光子統計性で観る電子・核スピン結合系のダイナミクス

光子相関測定は、光子の統計性を調べるための有力なツールとして広く用いられている。本節では、この測定手法を用いて電子・核スピン結合系のダイナミクスにアクセスする方法を紹介する。磁場下での光子相関測定は珍しく、またこの手法を結合系のダイナミクスに適用した報告は殆ど見られない。

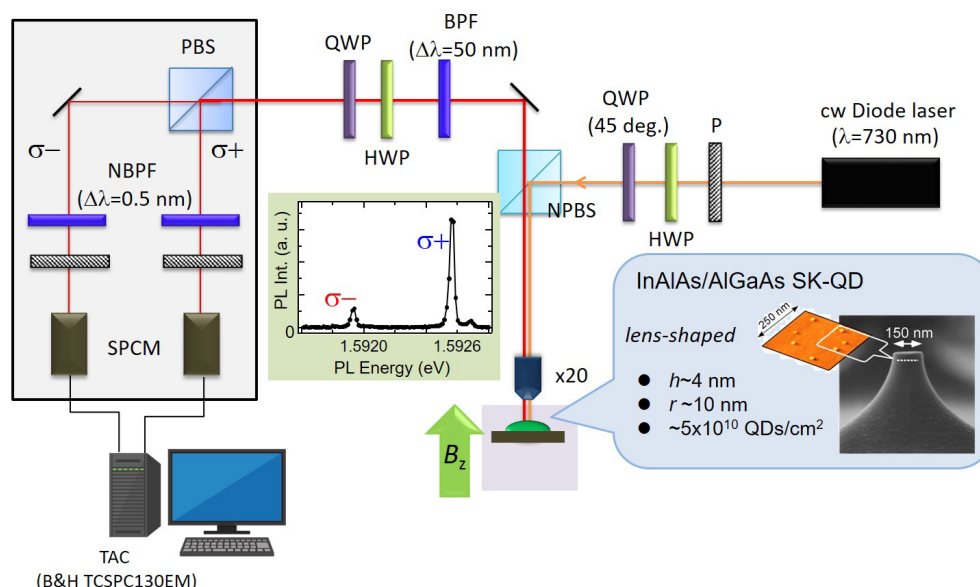


図 4.11: 光子相関測定の光学系。単一 QD 発光の偏光とエネルギーを選択した後、単一光子計数モジュール (SPCM) で検出、TAC で 2 ポート間の同時計数を記録する。また、室内灯を含むノイズ光を抑えるために、黒枠で示す箇所は覆いで囲われている。

実験では、縦磁場配置 ($B_z = 4.2$ T), 円偏光励起 (σ^+ 励起) の下で高核偏極状態 (HNSP)・低核偏極状態 (LNSP) に設定し, X^+ 発光の (σ^+ , σ^-) 成分の交差相関 (Cross Correlation: CC) 信号を取得する。測定に用いた光学系を図 4.11 に示す。特筆すべき点は以下の通り：

- 励起光源として半導体ダイオードレーザー ($\lambda = 730$ nm) を使用⁹。
- 狭帯域バンドパスフィルタ (NBPF, 設計中心波長 : 775 nm, バンド幅 : 0.5 nm) で (σ^+ , σ^-) 成分をエネルギー選択した後, 単一光子計数モジュール (SPCM) で検出。
- SPCM 信号をコンピュータに接続した TAC (=Time to Amplitude Converter, Becker & Hickl GmbH 社製 TCSPC130FM) に入力し, 2 ポート間の同時計数を記録。

更に, SPCM にレーザー散乱光が入ることを防ぐために, 検出側の光軸上にバンドパスフィルタ (BPF, 中心波長 : 775 nm, バンド幅 : 50 nm) を挿入している。

⁹ cw Ti:S レーザーを使ったところ, レーザー共振器の特性周波数に対応する強い信号が目立つタイムスケールが出現し, 単一 QD 信号が観測できなくなった。この問題を回避するために共振器長が小さいダイオードレーザーで代用した。

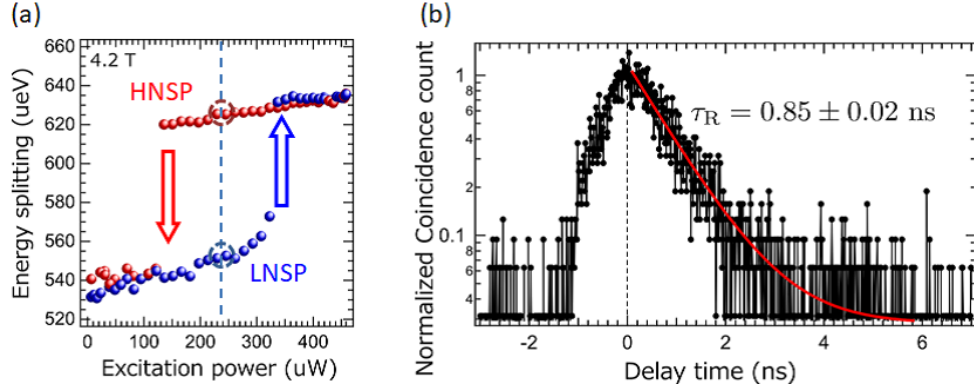


図 4.12: 光子相関測定に向けた準備. (a) $B_z = 4.2$ T における核スピン分極の励起強度依存性. 双安定領域の中ほどの $P_{\text{exc}} \sim 230 \mu\text{W}$ では, HNSP と LNSP の両方が安定して存在できる. (b) X^+ 発光強度の時間変化.

光子相関測定を行う前に, 本実験で用いる単一 InAlAs QD の電子・正孔 g 因子 ($g_z^e = +0.38 \pm 0.02$, $g_z^h = -2.58 \pm 0.01$) に加えて, 核スピン分極の励起強度依存性と X^+ の発光寿命を評価した. 図 4.12(a) より, 核スピン分極が励起強度 P_{exc} に対して明らかなヒステリシス特性を示すこと, 更に $P_{\text{exc}} \sim 230 \mu\text{W}$ で HNSP と LNSP の両方が安定して存在できることが確認された. 図 4.12(b) は X^+ 発光強度の時間減衰を表す¹⁰. 単一指数関数によるフィッティングから, X^+ の発光寿命として $\tau_R = 0.85 \pm 0.02$ ns が得られた.

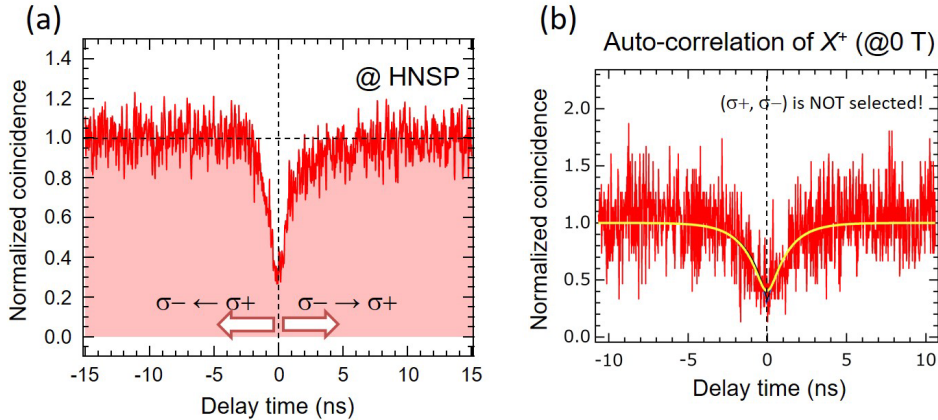


図 4.13: (a) σ^+ 励起での (σ^+, σ^-) -CC 信号 (@ 4.2 T, 8 K), (b) 自己相関信号 (@ 0 T, 8 K).

図 4.13(a) は σ^+ 励起の下での (σ^+, σ^-) -CC 信号の測定結果を表す. $P_{\text{exc}} = 230 \mu\text{W}$ とし, 測定時間 (~ 1.5 hours) にわたって HNSP となるように設定している. 遅延時間 $\tau_{\text{delay}} = 0$ の点で信号強度が最小値を取り, $|\tau_{\text{delay}}|$ の増加に伴い 1.0 (図の縦軸は $|\tau_{\text{delay}}| \rightarrow \infty$ での信号強度で規格化してある) に漸近する様子が観られる. これは単一 QD から生じる光子が「光子数状態」を取ることに由来しており, QD が単一光子源として利用できることの証左となる¹¹. この特性は (σ^+, σ^-) -CC 信号に限らず, 図 4.13(b) に示す自己相関信号 (ゼロ磁場, 直線偏光励起の下, X^+ 発光を無偏光ビームスプリッターで分離して同時計数を測定) でも確認できる. 興味深いことに, X^+ 発光の自己相関信号と比較すると, (σ^+, σ^-) -CC 信号では τ_{delay} の符号反転に対して明らかな非対称性が生じている.

¹⁰パルス TiS レーザーで単一 QD を光励起し, モードロック信号と X^+ 発光シグナルの同時計数を取ることで発光強度の時間変化が得られる.

¹¹実験結果は, 空間的に離れた 2 つのポートで同時に光子が検出される確率が低い (理想的にはゼロ) ことを表すが, これは 1 回の発光イベントで光子が 1 個ずつ放出されていることを示唆している.

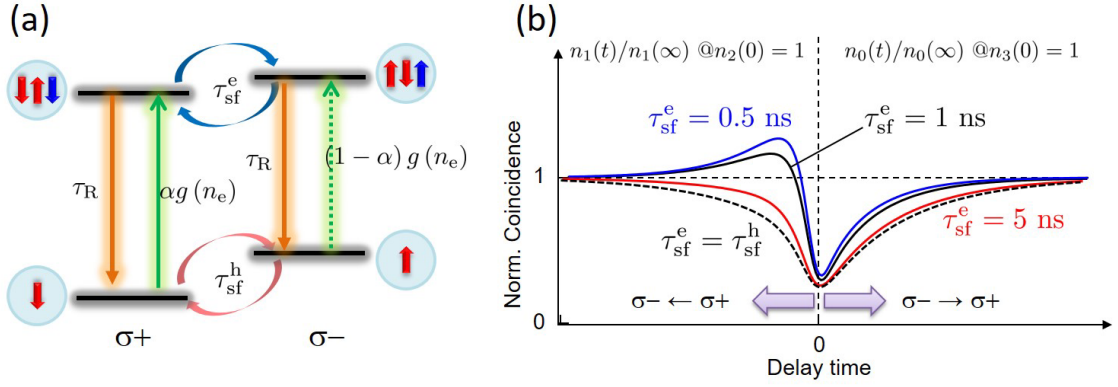


図 4.14: (a) X^+ の光生成・発光過程のダイナミクスモデル. (b) レート方程式解析による同時計数の計算結果. $\tau_{sf}^h = 10$ ns, τ_{sf}^e を 0.5 ns (青), 1 ns (黒), 5 ns (赤), 10 ns (破線) として同時計数信号の非対称性を再現した.

この非対称性の原因を簡単なモデルから探る. 図 4.14(a) に, X^+ の光生成・発光過程に関連するダイナミクスモデルを示す. 考えているエネルギー準位は, 不対電子スピンのアップ・ダウンの X^+ と, 残留正孔スピンのアップ・ダウン状態の 4 つであり, 次のプロセスによって互いに関連づけられる:

- ・光励起: $g(n_e)$ のレートで残留正孔スピン (n_2, n_3) から X^+ (n_0, n_1) に遷移,
- ・緩和輻射: $1/\tau_R$ のレートで光子を輻射して (n_0, n_1) から (n_2, n_3) に遷移,
- ・電子スピン反転: $1/\tau_{sf}^e$ のレートで n_0 と n_1 の間で遷移,
- ・正孔スピン反転: $1/\tau_{sf}^h$ のレートで n_2 と n_3 の間で遷移.

パラメータ α ($0 \leq \alpha \leq 1$) は励起光の円偏光度を記述するパラメータであり, $\alpha = 1$ では $|\downarrow\rangle \rightarrow |\uparrow\downarrow\rangle$ ($n_2 \rightarrow n_0$), $\alpha = 0$ では $|\uparrow\rangle \rightarrow |\downarrow\uparrow\rangle$ ($n_3 \rightarrow n_1$) の遷移が誘起される.

これらを現象論的に取り込んだレート方程式は以下の通りである:

$$X_{\sigma^+}^+ : \frac{dn_0}{dt} = -\frac{n_0}{\tau_R} - \frac{n_0 - n_1}{\tau_{sf}^e} + n_2 \alpha g(n_e) \quad (4.5)$$

$$X_{\sigma^-}^+ : \frac{dn_1}{dt} = -\frac{n_1}{\tau_R} - \frac{n_1 - n_0}{\tau_{sf}^e} + n_3 (1 - \alpha) g(n_e) \quad (4.6)$$

$$\text{hole } \downarrow : \frac{dn_2}{dt} = +\frac{n_0}{\tau_R} - \frac{n_2 - n_3}{\tau_{sf}^h} - n_2 \alpha g(n_e) \quad (4.7)$$

$$\text{hole } \uparrow : \frac{dn_3}{dt} = +\frac{n_1}{\tau_R} - \frac{n_3 - n_2}{\tau_{sf}^h} - n_3 (1 - \alpha) g(n_e) \quad (4.8)$$

今回のセットアップにおいて, 正の遅延時間は, σ^- 光子が計測されてから σ^+ 光子がカウントされるまでの時間を表している (つまり, σ^- 光子がスタートシグナル, σ^+ 光子がストップシグナルの役割を果たしている). まずは, この時間領域におけるスピンドイナミクスを考えてみよう. σ^- 光子が放出された直後 ($\tau_{\text{delay}} = 0$), 系は必ず正孔スピンアップの状態にある. この初期状態からスタートして, σ^+ 励起の下でストップシグナルである σ^+ 光子を放出するには, 正孔スピン反転 ($n_3 \rightarrow n_2$) が必須である. その後, σ^+ ビームで X^+ へ励起 ($n_2 \rightarrow n_0$) されて $1/\tau_R$ のレートで σ^+ 光子を輻射 ($n_0 \rightarrow n_2$) すると, この 1 サイクルが同時計数としてカウントされる. これが, 正の遅延時間で期待されるスピンドイナミクスである.

一方, 負の遅延時間領域では, σ^+ 光子がスタートシグナル, σ^- 光子がストップシグナルの役割を果たすため, スピンサイクルの初期状態が正孔スピンドアウンの状態に確定する. この正孔はスピン反転を受ける前に, σ^+ ビームで光励起される ($n_2 \rightarrow n_0$). その後, 電子スピン反転 ($n_0 \rightarrow n_1$) を経て, σ^- 光子を放出する ($n_1 \rightarrow n_3$) ことで同時計数カウントを得る.

両者を比較すると、 $1/\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ と $1/\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ の違いが同時計数カーブの違いを引き起こすことが容易に想像できる。このモデルから得られた計算結果を図 4.14(b) に示す。ここでは、正孔スピン反転時間 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ が電子スピン反転時間 $\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ よりも長いと仮定している。 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} = 10$ ns と固定した状態で、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ のみを 0.5 ns (青), 1 ns (黒), 5 ns (赤), 10 ns (破線) と変えて同時計数カーブを計算した。モデル計算でも、遅延時間の符号反転に伴う非対称性が再現されており、 $\tau_{\text{delay}} < 0$ の領域において、 $\tau_{\text{delay}} > 0$ よりも速い信号の立ち上がりが見られる¹²。また予想されたように、 $1/\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ と $1/\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ の差が大きいほど、非対称性が顕著になることが分かった。

ここで、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} = \tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ (破線) の条件下においても、わずかながら非対称性が残ることに注意しておく。これは円偏光励起の下、偏光選択検出の同時計数を評価する測定手法に深く関連している。 σ^+ 励起の下では、系の初期状態として正孔スピンドアウンに確定する確率が、正孔スピニアップに確定する確率に比べて高くなる。この結果、 $\tau_{\text{delay}} < 0$ に対応するサイクルを辿る可能性が高くなるので、たとえ電子・正孔スピン反転時間が等しくても、同時計数として大きい値を取りやすくなる。従って、 $\tau_{\text{delay}} < 0$ の領域の方が $\tau_{\text{delay}} > 0$ よりも時間的に速く立ち上がっているように見えるのである。

この計算モデルを用いて、実験結果にフィッティング曲線を加えたのが図 4.15(a) であり、フィッティングに用いたパラメータを表 4.2 にまとめた。 τ_{R} は実測値であり、 $(\alpha, g(n_{\text{e}}), \tau_{\text{sf}}^{\text{e}}, \tau_{\text{sf}}^{\text{h}})$ をフィッティングパラメータとしたところ、 $\tau_{\text{delay}} = 0$ でのディップの幅と深さはもちろん、 τ_{delay} の符号反転に伴う非対称性も再現することができた。ここで注目すべき点は、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ と $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ の大小関係である。今回はフィッティングでのフリーパラメータの数を減らすために、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} = 5$ ns と仮定した。測定精度の問題から、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ を正確に求めることは、現段階では難しい。しかしながら、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ として 5 ns よりも大きい値を用いても、フィッティング結果に大きな変化が現れないことを確認している。非対称性のパターンから $\tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ が $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}}$ よりも短いことが分かり、モデル計算によるフィッティングから $\tau_{\text{sf}}^{\text{e}} = 1.1$ ns と求めることができた。この値は、核磁場揺らぎによる電子スピン緩和時間 (4.2 節) と同程度である。また、 $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} > \tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ の関係は、HFI による影響を受けにくい正孔が QD では電子よりも長いスピンコヒーレンスを持つ [13] ことと矛盾しない¹³。

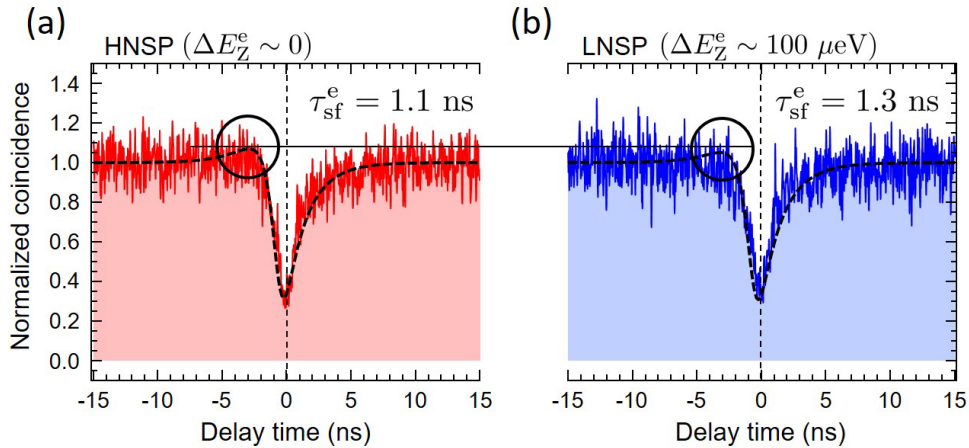


図 4.15: 光子相関の実験結果とモデル計算の比較。どちらのパネルも $B_z = 4.2$ T, $P_{\text{exc}} = 230$ μW , σ^+ 励起で、 (σ^+, σ^-) CC 信号を取得。(a) HNSP ($\Delta E_Z^e \sim 0$), (b) LNSP ($\Delta E_Z^e \sim 100$ μeV) に設定。

¹² $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} < \tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ と仮定すると、 $\tau_{\text{delay}} > 0$ の方が信号の立ち上がりが速くなる。

¹³ 今回の実験条件で $\tau_{\text{sf}}^{\text{h}} > \tau_{\text{sf}}^{\text{e}}$ となる原因には、正孔のゼーマン分裂エネルギー (~ 530 μeV) が電子のそれ (~ 100 μeV) に比べて大きいことも考えられるが、HFI と比較してどちらの影響が大きいかを議論することは現段階では困難である。

表 4.2: 交差相関信号のフィッティングパラメータ.

	α	$g(n_e)$ [1/ns]	τ_R [ns]	τ_{sf}^e [ns]	τ_{sf}^h [ns]
HNSP	0.85	1.0	0.85	1.1	> 5
LNSP	0.85	1.0	0.85	1.3	> 5

次に、核スピン分極が τ_{sf}^e と CC 信号に与える影響を見てみよう。前節で述べたように、同じ B_z 下で HNSP と LNSP を比較すると、電子のゼーマン分裂エネルギー ΔE_Z^e (および有効磁場 B_{eff}) が異なることから、 τ_{sf}^e に違いが現れると予想される。このことを検証するために、同じ QD に対して同じ B_z ($=4.2$ T), P_{exc} ($=230$ μ W), 励起偏光 ($=\sigma^+$) の下で核スピン分極のみを変えて (σ^+ , σ^-)-CC 信号を取得し、両者を比較した。

図 4.15 は観測結果のまとめであり、(a) は HNSP ($\Delta E_Z^e \sim 0$), (b) は LNSP ($\Delta E_Z^e \sim 100$ μ eV) に対応する。今回の測定精度では (a) と (b) の CC 信号の違いは顕著ではないが、同じモデルから得られるフィッティングの曲線を比較すると、LNSP の方が CC 信号の非対称性が僅かながらも解消されていることが分かった。実験条件を鑑みると、パラメータ (α , $g(n_e)$, τ_R , τ_{sf}^h) はパネル (a), (b) で共通であり、フィッティング曲線の差は τ_{sf}^e の違いから生じると考えるのが妥当である。フィッティングから LNSP では $\tau_{sf}^e = 1.3$ ns となることが示唆された。これは HNSP での値 ($=1.1$ ns) よりも長い。

今回の実験で得られた $\tau_{sf}^e(\text{HNSP}) < \tau_{sf}^e(\text{LNSP})$ の関係は、4.2 節までの議論と矛盾しない。つまり、大きい ΔE_Z^e を持つ LNSP の方が、HNSP ($\Delta E_Z^e \sim 0$) に比べて核磁場揺らぎによる電子スピン緩和を受けにくい、長い電子スピン反転時間を持つと考えることは妥当である。しかし、 $\tau_{sf}^e(\text{HNSP})$ と $\tau_{sf}^e(\text{LNSP})$ の差については、議論の余地がある。実際、 ΔE_Z^e (~ 100 μ eV @ LNSP, 4.2 T) や核スピンスイッチングと同期した DCP の変化を考慮すると、LNSP では更に長い τ_{sf}^e を持つと予想される。

実験結果と理論的な予想の違いを生み出す原因として、主に次の 2 点が考えられる：

1. 測定精度 (S/N 比や計測器の時間分解能を含む) が低く、微細な時間変化を検出できていない、
2. 現行のスピンダイナミクスモデル (図 4.14) で考慮していないプロセスが大きく関与している。

測定の積算時間を大きく取ることで S/N 比の問題を軽減することは原理的に可能であるが、使用した測定系の安定性を考えると現実的な解決策とは言い難い。また今回の解析では、モデル計算の結果と計測器の応答時間 (~ 0.8 ns) の畳み込み積分を取ってフィッティング曲線を出力していることから、測定系としての時間分解能の低さは原因として考えにくい。

一方、現行のモデルには改善の余地が多い。例えば、想定している 4 準位系に対して 1) WL から QD 基底準位にエネルギー緩和する途中のスピン反転や、2) 正孔ゼーマン分裂の大きさを反映した不均衡な正孔スピン反転 (つまり、 $\tau_{sf}^h(n_2 \rightarrow n_3) \neq \tau_{sf}^h(n_3 \rightarrow n_2)$) などを組み入れることが可能である。更に、QD 荷電状態の時間的な揺らぎを反映して、残留正孔スピンの出入りや、他の荷電状態 (X^0 , XX^0 , XX^+ , ...) までモデルを拡張することも可能である。

定量性については課題が残るが、簡便な測定手法と単純なモデル計算を使うことで標的とする系のスピンダイナミクスを検出し、定性的な一致を得た点は大きな成果である。

4.4 零磁場下における核スピン分極

本節では、零磁場下における動的核スピン分極と電子-核スピン系の有効磁場について議論する。数テスラに及ぶ大きな外部磁場下での動的核スピン分極は、これまでに多く報告されてきたが [8, 14], 単一光子源等への応用を考えたとき通常の運転モードとなる零磁場での実験的な研究報告は数例に留まっている [15, 16].

低磁場領域 ($|B| \lesssim 1$ T) では、発光スペクトルの線幅 (~ 40 μeV) との兼ね合いから、励起子発光のゼーマン分裂パターンを詳しく調べるのが困難である。ここでは、発光円偏光度 (DCP) と分裂エネルギー (OHS 含む) を精密に評価するために構築した直交円偏光成分 (σ^+ , σ^-) の同時測定系について説明し、そこで得られた DCP と OHS の励起強度依存性から零磁場下での有効磁場と核スピン分極を議論する。

4.4.1 発光の円偏光成分の同時検出

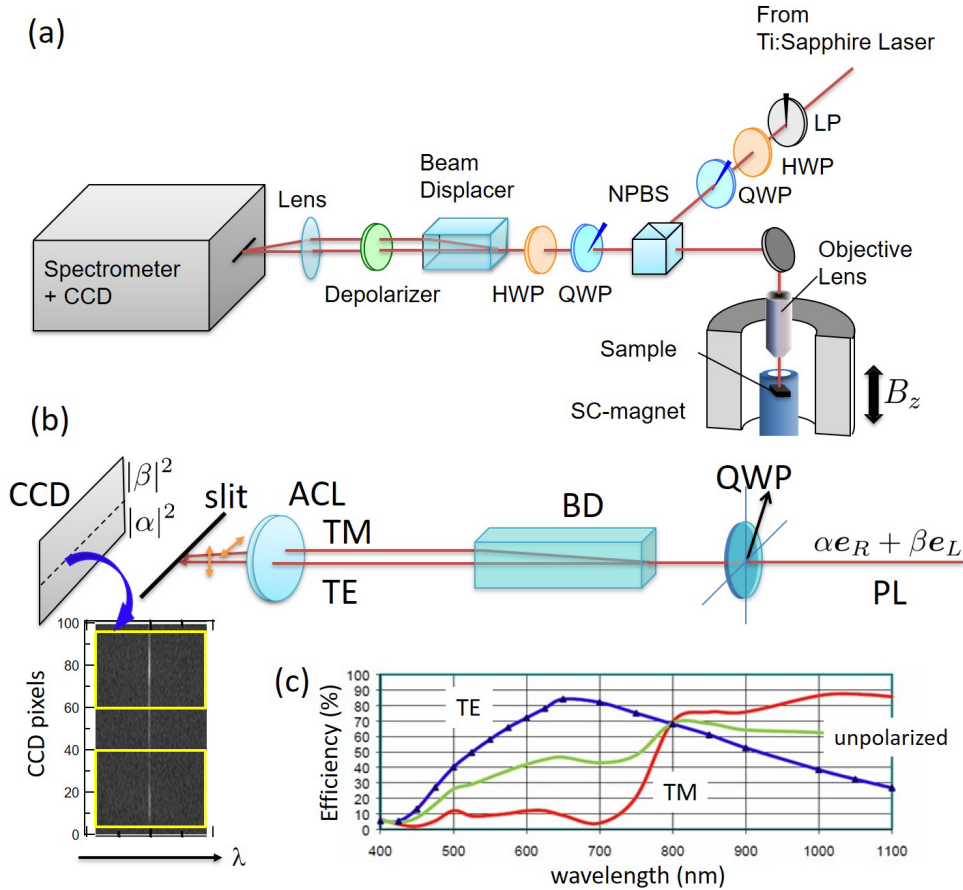


図 4.16: (a) 発光の σ^+ , σ^- 偏光スペクトルの同時測定系の概略図。HWP と QWP により円偏光の位相補正を励起側と検出側で行っている。(b) ビームディスプレイサー (BD) による垂直偏光成分と水平偏光成分の分離の概略図。QWP を通過した発光は (σ^+ , σ^-) から (H , V) に変換されビームディスプレイサー、偏光解消板を通過して CCD 検出器上の異なる領域に結像する。(c) 測定に使用した分光器の回折格子の回折効率。

低磁場領域において、 (σ^+, σ^-) スペクトル間の分裂エネルギーと DCP を評価するには通常、 $\lambda/4$ 位相板 (QWP) と検光子 (P) の組を用いて各偏光成分の選択検出を行い、2 つのスペクトルを比較する必要がある。この方法では、少なくとも 2 回のスペクトル測定が必要である。しかし、2 回の測定に間に時間的な差が生じるため、その間に意図しない実験条件の変化 (温度変化や励起スポットの位置ずれ等) が起こると、測定結果 (特に発光強度) に影響が生じる。我々の研究室では、QWP を回転させて σ^+ と σ^- の間の偏光状態についても細かく測定し、正弦関数でデータ補間することで測定精度の向上に努めているが、測定誤差の低減と測定時間の短縮の観点から (σ^+, σ^-) 成分の同時検出が望ましい。

図 4.16(a) に構築した (σ^+, σ^-) 同時測定系の概略図を示す。本測定系のポイントは、直交する 2 つの偏光成分を CCD 検出器の異なる領域に結像させることで、1 回の積算処理で 2 種類のスペクトルが同時に取得できる点にある。3.2 節で述べたように、QWP に加えて $\lambda/2$ 位相板 (HWP) を用いることにより、励起レーザーと発光シグナルの偏光状態の補正を行なっている。

検出したい発光シグナルが $\alpha e_R + \beta e_L$ と右回り e_R と左回り e_L 円偏光成分を持つ場合、速軸を 45 度に設定した QWP を通すことにより、発光シグナルを直線偏光基底のシグナル $i\alpha e_V + \beta e_H$ に変換できる。

$$\begin{aligned} \text{output} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & i \\ i & 1 \end{pmatrix} \left[\alpha \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + \beta \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \right] \\ &= i\alpha e_V + \beta e_H \end{aligned}$$

QWP と HWP の後ろに設置したビームディスプレイ (ThorLabs 方解石ビーム分離プリズム BD40) を透過させる。ビームディスプレイは方解石の単結晶 (1 軸結晶) から成り、光学軸に垂直な偏光成分と水平な偏光成分に対し異なる屈折率を持つ。そのため図 4.16(b) に示すように、これらの成分の伝搬方向を空間的に分離することが可能である。空間的に分離された発光直線偏光の組 H, V (TE, TM) は分光器の入射スリット上の異なる部分に集光されるため、図に示す様に CCD 検出器上の異なる領域にそれぞれ $|\beta|^2$, $|\alpha|^2$ の強度を持つスペクトルとして結像する。以上が、本研究で用いた直交円偏光成分の同時測定系の概要であり、本節で示す結果はいずれもこの測定系を用いて得られたものである。

また、図 4.16(a) ではビームディスプレイの後に偏光解消板 (ThorLabs マイクロリターダーデポライザ DPP25-B) を挿入しているが、これは分光器の回折効率の差を解消するためである。図 4.16(c) に測定で用いた分光器の水平 (TE) ・垂直 (TM) 偏光成分に対する回折効率の波長依存性を示す。InAlAs QD の発光波長帯 (~ 750 nm) において、垂直偏光と水平偏光で回折効率に大きな差があることが分かる。水平・垂直偏光に変換された (σ^+, σ^-) 発光の強度比 (i.e., DCP) を正しく評価するには、偏光解消板を挿入することで各偏光成分を無偏光化して、回折効率の差を抑える必要がある。本研究では更に、CCD のエリア感度の違いも考慮して、 (σ^+, σ^-) 成分の検出効率の校正を行った。

4.4.2 零磁場下における核磁場の検出

ここでは、観測された発光スペクトルのエネルギー分裂から零磁場下における核スピン分極形成について考察する。

図 4.17(a) は X^+ の発光スペクトルであり、励起偏光は σ^+ とした。検出されたスペクトル (σ^+ , σ^-) に対しそれぞれローレンツ関数でフィッティングしてピークエネルギーを求めたところ、 ~ 15 μeV のエネルギー分裂が観測された。また、図 4.17(b) は励起偏光を $V \rightarrow \sigma^+ \rightarrow V \rightarrow \sigma^- \rightarrow V$ と系統的に変化させた際のエネルギー分裂である。この実験では、 σ^+ と σ^- 偏光でエネルギー分裂が明

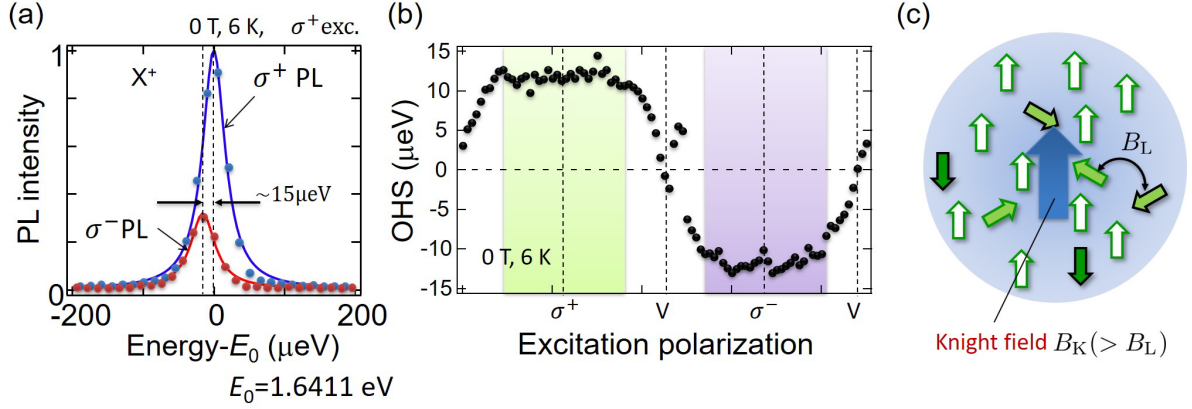


図 4.17: (a) 零磁場下における発光スペクトル. σ^+ 成分と σ^- 成分のスペクトル間に $\sim 15 \mu\text{eV}$ のエネルギー分裂が生じている. スペクトルは $E_0=1.6411 \text{ eV}$ からの相対エネルギーを横軸にプロットしている. (b) 励起偏光を変化させたときの Overhauser シフト. 励起円偏光の違いによって明確に OHS の反転が生じている. (c) B_K による核スピン分極形成のイメージ図. 核スピン間に作用する局所場 B_L より大きな B_K が存在することで核スピン分極の緩和が抑制される.

確に反転することが観測された. 4.1.4 節で述べたように σ^+ と σ^- 偏光を順次照射することで, 注入される電子スピンの向きは反転し, 同時に HFI を介して形成される核スピン分極の向きも反転する. 従って, このエネルギー分裂に寄与する有効磁場は, 動的核偏極プロセスを経て形成される核磁場 B_N と考えられる. 観測された ΔE_Z は核磁場による電子スピンのエネルギーシフト (OHS: ΔE_{OHS}) と一致する. この InAlAs QD の電子 g 因子 $g_e^z = +0.34$ (4.1.4 節参照) を考慮すると, 図 4.17(a) では零磁場下で -760 mT の B_N が生じたと言える.

ここで, 零磁場下での B_N について考察する. 電子・核スピン結合系の有効磁場が十分小さく, 核スピン分極の形成レートが定数と見なせる場合, B_N は以下の式で表せる [17, 18].

$$B_N = b_n \frac{B_T^{(N)} (B_T^{(N)} \cdot S)}{|B_T^{(N)}|^2 + \xi |B_L|^2} \quad (4.9)$$

ここで, ξ は 1 に近い係数, B_L は核スピン間の双極子-双極子相互作用によって生じる局所場 (バルク GaAs の場合は $\sim 0.1 \text{ mT}$), S は電子スピンである. また, b_n は核スピン分極の冷却効率を表す定数であり, $B_T^{(N)} (= B_z + B_K)$ は核に生じる有効磁場の和である.

式 (4.9) によると, 電子スピン分極に沿った有効磁場がない場合 ($B_T^{(N)} \cdot S = 0$), B_N は 0 である. スピンの分極形成に関する多くの先行研究は, 数テスラの縦磁場配置で行われている. これは, $B_T^{(N)} \cdot S \neq 0$ を実現するためであるが, それ以外にも, B_L による核スピン緩和や ΔB_N による電子スピン緩和を抑える上でも効果的である. 以上の理由から, B_N の形成には縦磁場の印加が必要のように思われるが, 図 4.17(a)(b) の結果は零磁場下でも大きな核スピン分極が形成されたことを明確に示している.

この核スピン分極形成は B_K に起因すると考える. 核スピン分極が形成されるには B_z 以外の電子スピン分極 $\langle S \rangle$ に沿った有効磁場が必要である. B_K は電子スピン S が作り出す有効磁場であるため, $\langle S \rangle$ に平行であり, この条件を満たす. また, 双極子-双極子相互作用による局所場 B_L より大きな有効磁場がなければいけない. そこで, 核スピン集団に作用する B_K を見積もる. 式 (2.49) より z 軸方向に作用する B_K は $B_K = f_e b_e \langle S_z \rangle$, $b_e = \tilde{A} / \gamma_n \hbar N$ と表せる. 不対電子が QD 内に存在する時間割合である f_e は相関時間 τ_c , 発光再結合時間 τ_R , 電子の存在確率 n_e で決定される. この際, 発光スペクトルの強度は励起強度に対し飽和したことを考慮し, QD 内に電子は常に存在していると

考え, $n_e \sim 1$ とした. また, 図 4.17(a) の発光スペクトルより $\langle S_z \rangle \sim 0.3$ を得られた. InAlAs QD の固有パラメータとして $(\gamma_n, \tilde{A}, N) = (5.38 \times 10^7 \text{ rad/T/s}, 52.6 \text{ } \mu\text{eV}, 3 \times 10^4)$ を採用したところ, $B_K \sim 0.7 \text{ mT}$ を見積もった. $B_L (\sim 1 \text{ mT})$ と比較すると, B_K が B_L による核スピン緩和を抑制することは十分に考えられる.

以上より, 電子スピンから生じる有効磁場は核スピン分極の形成要因になることが示唆される. 図 4.17(c) に零磁場での核スピン分極形成のモデルを示す. 電子スピンと同方向に生じる B_K が B_L による核スピン緩和を打ち消し, 電子波動関数の広がりの中に在る核スピン分極の安定化に寄与すると予想される.

4.4.3 零磁場下における電子スピン安定化

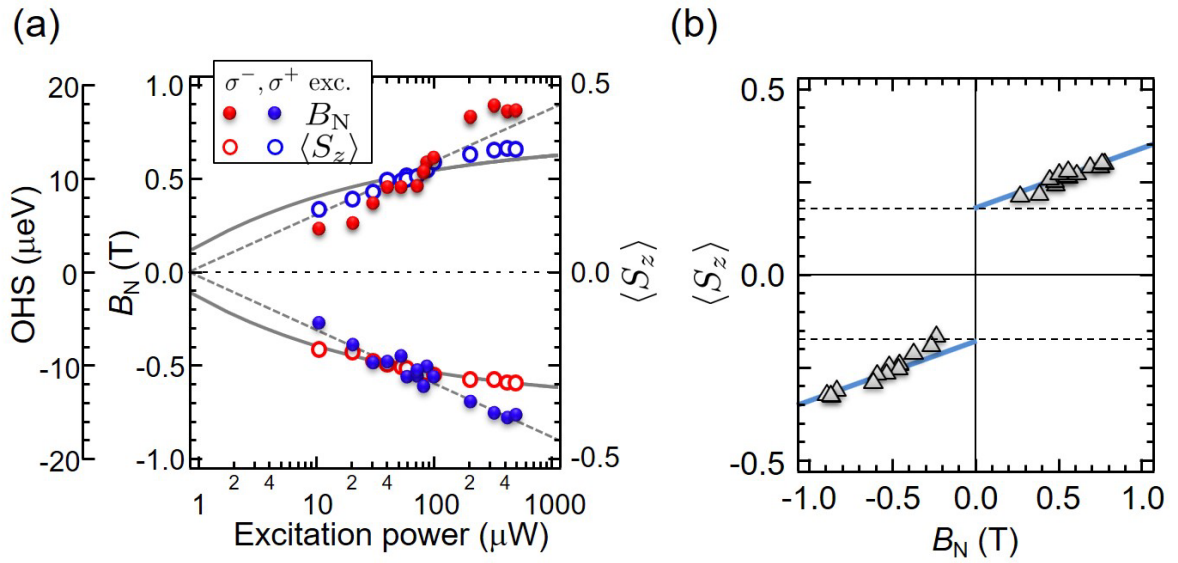


図 4.18: (a) B_N 及び $\langle S_z \rangle$ の励起強度依存性. (b) B_N による $\langle S_z \rangle$ の変化. (a) の B_N と $\langle S_z \rangle (= -\rho_c/2)$ を再プロットしたものである. 実線は $\langle S_z \rangle$ の傾向を示す.

続いて, 形成された核スピン分極が電子スピンに与える影響を議論する. 図 4.18(a) は 6 K, 0 T での OHS とそれを換算した核磁場 B_N , DCP ρ_c を換算した $\langle S_z \rangle (= -\rho_c/2)$ の励起強度依存性を示している. 青のマーカーが σ^+ 励起, 赤のマーカーが σ^- 励起による結果であり, $\circ$ が $\langle S_z \rangle$, $\bullet$ が B_N を表す. $\langle S_z \rangle$ は励起強度と共に徐々に増加し, 高励起状態で $\sim 30\%$ で飽和している. 一方, 対応する OHS は $10 \leq P_{\text{ex}} \leq 500 \text{ } \mu\text{eV}$ の範囲で $\log(P_{\text{ex}})$ に対してほぼ線形に増加している. OHS の増加は, B_K の励起強度依存性から説明できる. 励起強度を増加させると, 電子スピンのポンピングレートが上昇し, QD 内部の電子存在確率 f_e が増加する. 式 (2.47) から $B_K \propto f_e$ であるため, 形成される OHS も増加したと考えられる.

しかし, $\langle S_z \rangle$ の増加を説明するには, B_N が電子スピンに与える影響を考慮しなければならない. 図 4.18(a) のデータを使って同図 (b) に, 縦軸を $\langle S_z \rangle$, 横軸を B_N とするプロットを作った. 図の実線は $\langle S_z \rangle$ の傾向を示す. 原点に対して点対称のパターンが得られ, $|\langle S_z \rangle|$ は $|B_N|$ の増加に伴って増大する. また, $B_N = 0$ の点では, 核磁場揺らぎによる電子スピン緩和を受けて, $|\langle S_z \rangle| \sim 1/6$ ($|\text{DCP}| \sim 1/3$) となることが確認された. 今回の実験条件では, $|B_N| \gtrsim 200 \text{ mT}$ が観測されており, $\Delta B_N \sim 40 \text{ mT}$ (4.2 節参照) を打ち消すことができる核磁場が形成されている.

本節では QD の場合，零磁場下においても数 100 mT の核磁場が形成されることを見てきた．これは電子スピンの 3 次元閉じ込めによって B_K が増強されることに由来するが，核磁場揺らぎによる電子スピン緩和を抑える上で極めて効果的である．以上は，零磁場での QD 電子スピンの応用を考える上で，有用な知見である．

参考文献

- [1] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Hysteretic response of the electron-nuclear spin system in single InAlAs quantum dots: Dependences on excitation power and polarization”, *Phys. Rev. B* **77**, 115345/1-5 (2008). DOI: [10.1103/PhysRevB.77.115345](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115345)
- [2] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Precise measurements of electron and hole g-factors of single quantum dots by using nuclear field”, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 261904/1-3 (2007). DOI: [10.1063/1.2827572](https://doi.org/10.1063/1.2827572)
- [3] A. I. Tartakovskii, T. Wright, A. Russell, V. I. Fal’ko, A. B. Van’kov, J. Skiba-Szymanska, I. Drouzas, R. S. Kolodka, M. S. Skolnick, P. W. Fry, A. Tahraoui, H.-Y. Liu, and M. Hopkinson, “Nuclear spin switch in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 026806/1-4 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevLett.98.026806](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.026806)
- [4] P. Maletinsky, C. W. Lai, A. Badolato, and A. Imamoglu, “Nonlinear dynamics of quantum dot nuclear spins”, *Phys. Rev. B* **75**, 035409/1-7 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevB.75.035409](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.75.035409)
- [5] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi, and Y. Arakawa, “Size, shape, and strain dependence of the g factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots”, *Phys. Rev. B* **70**, 235337 (2004). DOI: [10.1103/PhysRevB.70.235337](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.70.235337)
- [6] *Spin Physics in Semiconductors (second edition)*, Springer Series in Solid-State Sciences Vol. 157, Chaps. 1 and 11, edited by M. I. Dyakonov (Springer, Berlin, 2008).
- [7] I. A. Merkulov, A. L. Efros, and M. Rosen, “Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots”, *Phys. Rev. B* **65**, 205309/1-8 (2002). DOI: [10.1103/PhysRevB.65.205309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.65.205309)
- [8] R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura, and S. Muto, “Direct observation of nuclear field fluctuations in single quantum dots”, *Phys. Rev. B* **85**, 155315/1-6 (2012). DOI: [10.1103/PhysRevB.85.155315](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.155315)
- [9] O. Krebs, B. Eble, A. Lemaître, B. Urbaszek, K. Kowalik, A. Kudelski, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin, “Role of hyperfine interaction on electron spin optical orientation in charge-controlled InAs/GaAs single quantum dots”, *Phys. Stat. Solidi. A* **204**, 202-207 (2007). DOI: [10.1002/pssa.20067302](https://doi.org/10.1002/pssa.20067302)
- [10] O. Krebs, B. Eble, A. Lemaître, P. Voisin, B. Urbaszek, T. Amand, and X. Marie, “Hyperfine interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots: dynamical nuclear polarization versus spin relaxation (Interaction hyperfine dans des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs : polarisation dynamique des noyaux versus relaxation de spin)”, *C. R. Physique* **9**, 874-884 (2008). DOI: [10.1016/j.crhy.2008.10.001](https://doi.org/10.1016/j.crhy.2008.10.001)
- [11] A. Bechtold, D. Rauch, F. Li, T. Simmet, P. Ardel, A. Regler, K. Muller, N. A. Sinitsyn, and J. J. Finley, “Three-stage decoherence dynamics of an electron spin qubit in an optically active quantum dot”, *Nat. Phys.* **11**, 1005-1008 (2015). DOI: [10.1038/nphys3470](https://doi.org/10.1038/nphys3470)

-
- [12] B. Pal, S. Y. Verbin, I. V. Ignatiev, M. Ikezawa, and Y. Masumoto, “Nuclear-spin effects in singly negatively charged InP quantum dots”, *Phys. Rev. B* **75**, 125322/1-6 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevB.75.125322](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.75.125322)
- [13] B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand, A. Miard, A. Lemaitre, X. Marie, and M. Chamarro, “Hole-Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots”, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 146601/1-4 (2009). DOI: [10.1103/PhysRevLett.102.146601](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.146601)
- [14] C. Latta, A. Högele, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, P. Maletinsky, M. Kroner, J. Dreiser, I. Carusotto, A. Badolato, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Atatüre, and A. Imamoglu, “Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization”, *Nat. Phys.* **5**, 758-763 (2009). DOI: [10.1038/nphys1363](https://doi.org/10.1038/nphys1363)
- [15] C. W. Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu, “Knight-field-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 167403/1-4 (2006). DOI: [10.1103/PhysRevLett.96.167403](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.167403)
- [16] G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget, O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda, and B. Urbaszek, “Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field”, *Nat. Commun.* **5**, 3268/1-7 (2013). DOI: [10.1038/ncomms4268](https://doi.org/10.1038/ncomms4268)
- [17] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval, and V. I. Safarov, “Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions”, *Phys. Rev. B* **15**, 5780-5796 (1977). DOI: [10.1103/PhysRevB.15.5780](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.15.5780)
- [18] V. L. Berkovits, C. Hermann, G. Lampel, A. Nakamura, and V. I. Safarov, “Giant Overhauser shift of conduction-electron spin resonance due to optical polarization of nuclei in semiconductors”, *Phys. Rev. B* **18**, 1767-1779 (1978). DOI: [10.1103/PhysRevB.18.1767](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.18.1767)

第5章 核四極子相互作用と核スピン分極ダイナミクス

これまでの章において、核集団と電子間のスピン相互作用を詳細に調べることで核スピン分極の形成と緩和、電子スピン分極への影響について議論してきた。しかし、QD 内部では核スピンに対し大きな影響を及ぼす核四極子相互作用 (Nuclear quadrupole interaction: NQI) [1] が存在する。

NQI はスピン $I \geq 1$ を持つ原子核と電場勾配との結合に起因する電氣的な相互作用の一つである。磁気量子数の大きさ $|\pm m_I|$ の異なるサブレベル間に不等間隔なエネルギー分裂（核四極子分裂）を発生させるため、核スピン間の FF による核スピン拡散の抑制 [2] 及び形成された核スピン分極の NQI 主軸方向への安定化 [3] に効果があると言われてきた。電場勾配の起源は核外電子や励起子 (複合体) の電子・正孔による電場分布、歪によるピエゾ電場など考えられるが、本論文で扱う自己集合 QD は結晶成長過程での歪が残留しやすい構造であるから、歪誘起 NQI が動的核スピン分極過程に与える影響を無視することはできない。本章では、NQI の概要について述べた後、NQI が核スピン分極緩和時間に与える影響を実験結果を交えながら議論する。最後に、外部歪みによる NQI チューニングの実現可能性と、その取り組みについて紹介する。

5.1 核四極子相互作用

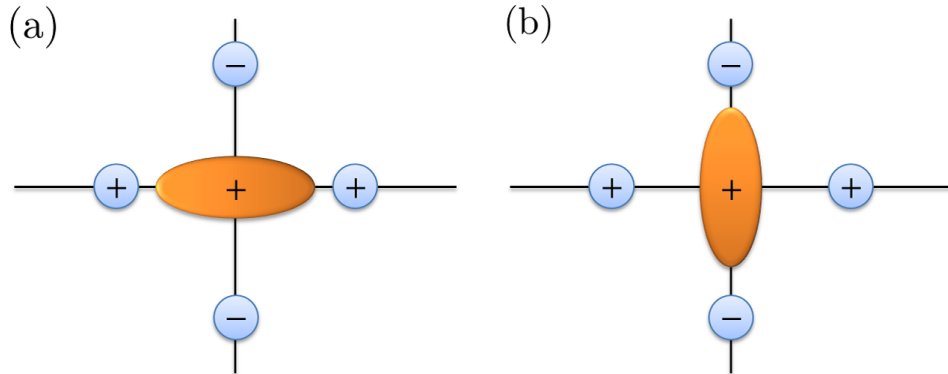


図 5.1: 核スピン $I \geq 1$ を持つ原子核の電荷分布と周囲の電荷。(a) エネルギーが最も高い状態。(b) エネルギーが最も低い状態。核四極子相互作用によって零磁場でも核準位の分裂が起きる。

核スピン $|I| \geq 1$ の原子核は、正電荷分布が完全な球対称からずれ、ラグビーボール (楕円球) 状の電荷分布を持つ。この時、電場勾配が存在すると図 5.1(a) の配置よりも負の電荷が近くにある (b) の配置がより低いエネルギー状態になる。それぞれの量子状態 $m_I = \pm 1/2, \pm 3/2, \pm 5/2, \dots$ で電荷分布が変化するために準位間にエネルギー分裂が生じる。

核四極子モーメント Q と素電荷 e を用いると NQI のハミルトニアンは以下ようになる (付録 D.1).

$$\mathcal{H}_Q = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \sum_{i,j} V_{i,j} \left[\frac{3}{2} (I_i I_j + I_j I_i) - \delta_{i,j} I^2 \right]. \quad (5.1)$$

この式で V_{ij} ($i, j = x, y, z$) は電場勾配テンソルであるが, $V_{ij} = 0$ ($i \neq j$) となるように主軸を選ぶと,

$$\mathcal{H}_Q = \frac{eV_{zz}Q}{4I(2I-1)} \left[(3I_z^2 - I^2) + \frac{\eta}{2} (I^+ I^+ + I^- I^-) \right]. \quad (5.2)$$

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}, \quad 0 \leq |\eta| \leq 1. \quad (5.3)$$

と書き換えることができる. η は非対称パラメータである. 議論を簡単にするために軸対称座標系をとると $\eta = 0$ となる. このとき, 外部磁場によるゼーマン相互作用 $\mathcal{H}_Z$ が $\mathcal{H}_Q$ に比べて十分小さい場合, エネルギー固有値は次のようになる.

$$E_m = A [3m_I^2 + I(I+1)], \quad A \equiv \frac{eV_{zz}Q}{4I(2I-1)}. \quad (5.4)$$

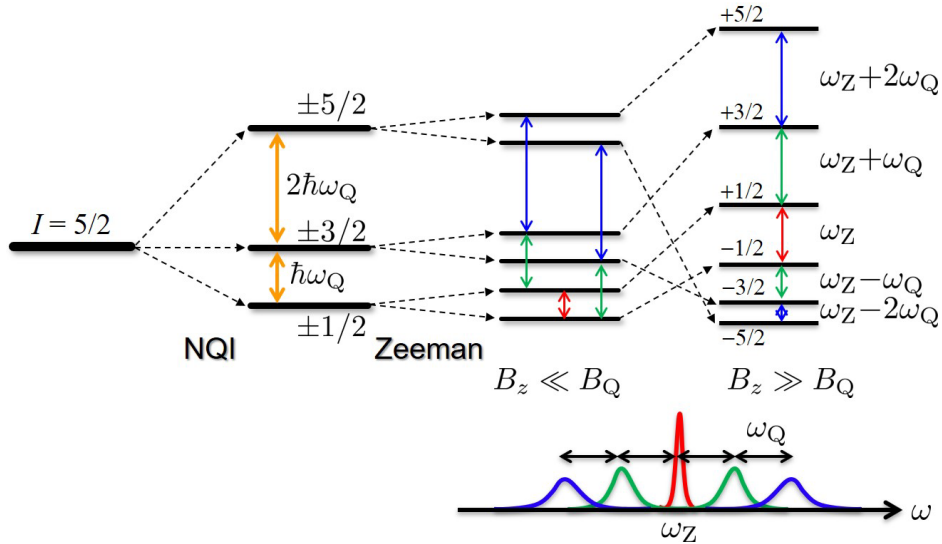


図 5.2: 核四極子相互作用とゼーマン相互作用によるエネルギー準位変化の概念図 ($I=5/2$ の場合). NQI の主軸 $\mathbf{q}$ と磁場方向は z 軸に平行と仮定している. 下は核のスペクトルの模式図.

図 5.2 は一例として, $I=5/2$ の核でのエネルギー準位変化を示している. $I=5/2$ の核準位は零磁場において NQI による分裂 (核四極子分裂: quadrupolar splitting) が生じる. 電場によるエネルギー分裂 (Stark 分裂) であるためスピン縮退は解けないが, $|m_I|^2$ に依存して不等間隔にエネルギー準位が分裂する. 図中の $\hbar\omega_Q (= 6A)$ は核四極子分裂エネルギーである.

外部からの磁場を印加するとゼーマン相互作用によりスピンの縮退が解ける. 印加磁場を増加させ, ゼーマン分裂エネルギー ($\hbar\omega_Z$) $\gg$ 核四極子分裂エネルギー ($\hbar\omega_Q$) となると, 図の最も右側の準位のように分裂する. ここで $\omega_Z = g_N \mu_N B_z / \hbar$ である. B_Q (核四極子場: quadrupolar field) は NQI エネルギーを磁場換算したもので, NQI の強さを表す 1 つの指標として,

$$B_Q = \frac{\hbar\omega_Q}{g_N \mu_N} \quad (5.5)$$

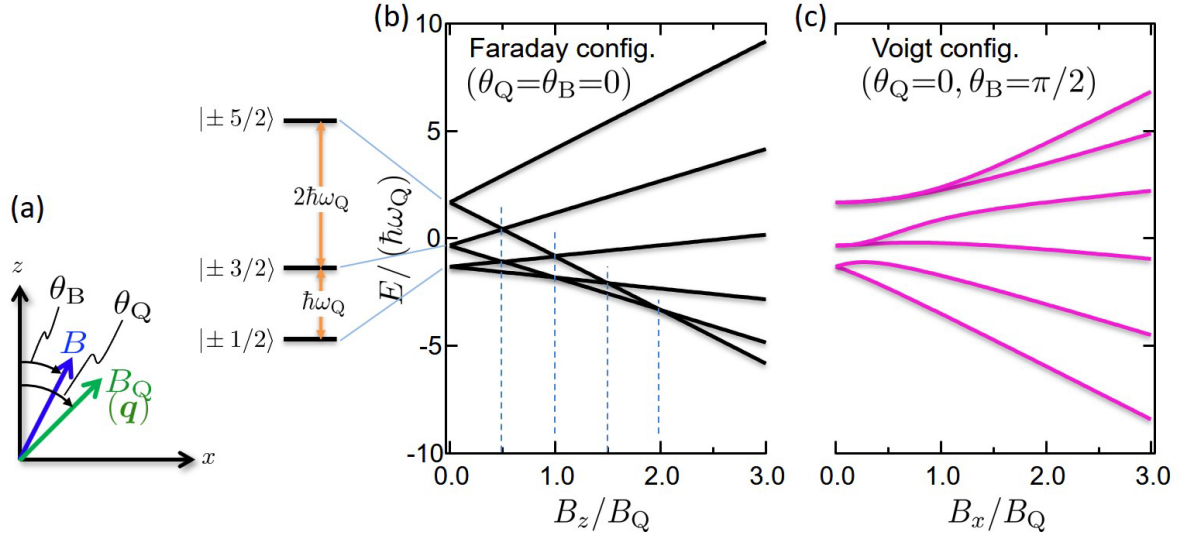


図 5.3: (a) NQI 主軸 q と印加磁場 B の配置, $\theta_Q=0$ に固定し, (b) $q \parallel B$ (Faraday 配置) と (c) $q \perp B$ (Voigt 配置) での核準位エネルギーの磁場依存性 ($I=5/2$ の場合). 縦軸, 横軸はそれぞれ $\hbar\omega_Q$, B_Q で規格化して表示している.

と定義される. このため $\hbar\omega_Z \gg \hbar\omega_Q$ の条件は $B_z \gg B_Q$ とも書ける. $|m_I|=1/2$ の間のゼーマン分裂エネルギーでは, NQI による影響は生じないが, $m_I \geq 1$ のスピン準位では核のゼーマン分裂幅が不等間隔になる.

図 5.3 に, 付録 D.1 に示した NQI とゼーマンハミルトニアンを使って計算した Faraday および Voigt 配置での核準位のゼーマン分裂エネルギーを示す. 縦軸は NQI エネルギー $\hbar\omega_Q$ で, 横軸は B_Q で規格化して表示している. Faraday 配置 (図 5.3(b)) において模式図 5.2 で示したエネルギー準位変化が起こっていることが分かる. Faraday 配置では零磁場での核四極子分裂から出発した後で, 準位の交差が見られるが, Voigt 配置 (同図 (c)) では準位の反交差を含む複雑なエネルギー変化が生じる.

2.6.4 節で述べた様に, 双極子場 B_L より大きな磁場が印加されていても, 核スピン拡散 (核スピン間の FF によるスピン流出) は生じる. したがって, QD 内に不対電子が存在しない状況での核スピン分極緩和の主要因は, 核スピン拡散である. この緩和機構は, FF に関与する 2 つの核スピンが異なるエネルギー分裂をもつ場合は, エネルギー保存則を満たさなくなるために抑制される. このような状況は, 異種核スピン同士の場合はもちろん, 同種核スピン同士でも四極子分裂でエネルギーが不等間隔になっている場合でも起こる¹.

また Voigt 配置での NQI は図 5.3(c) で示したように, 大きな $|m_I|$ を持つ準位ほど磁場に対する応答が鈍くなっている. これは, 核の実効的な g 因子が準位ごとに異なり, 更に $|m_I|$ の増加に伴って g_N が小さくなっているとみなすことができる. g_N の減少は, 横磁場 B_x に対する $\langle I_z \rangle$ の歳差運動を実効的に抑えることから, 一種の NSP 安定効果と捉えることもできる [3]. この効果は近年, 自己集合単一 QD で観測されている面内 NSP 形成において, 重要な役割を担っていると考えられる [4, 5, 6, 7, 8]. 光注入電子スピンと直交する方向に現れる大きな面内 NSP は, バルクや量子井戸構造で展開されて

¹ 異種核スピンの場合は, 一般的に g_N が核種毎に異なるため, 同じ外部磁場下でもゼーマン分裂エネルギーが異なる. 一方, NQI の影響を受けた同種核スピン同士の場合, 分裂エネルギーが $|m_I|$ によって異なるため, エネルギー保存を満たす遷移が限定される (つまり, $|+3/2, -3/2\rangle \rightarrow |+1/2, -1/2\rangle$ は許容となるが, $|+3/2, -3/2\rangle \rightarrow |+1/2, -5/2\rangle$ は禁制になる等). 更に, 歪み分布に空間的な異方性があると, 同じ $|m_I|$ でも分裂エネルギーに違いが生じるため, 核の FF がより強く抑制されることになる.

きた従来の理論 [9] では説明できない現象であり、将来的には核磁場の 3 次元方向制御などの応用技術に繋がる可能性を秘めている。その他、QD 準位が励起レーザー光周波数に追従するラインドラッキング [10]、電子スピン緩和への影響 [11] 等にも NQI が関与していると考察されており、統一的な NQI 効果の解釈が望まれている。

以上のように、NQI が核スピン分極形成ダイナミクスに与える影響は複雑である。NQI の NSP 安定化効果を顕著に観測するには横磁場下での実験が有利だが、本研究ではまず大多数の実験環境・デバイス動作環境である零磁場下および弱い縦磁場下での実験を通じて NQI の効果を考察する。

5.2 核四極子効果による有効磁場の検出

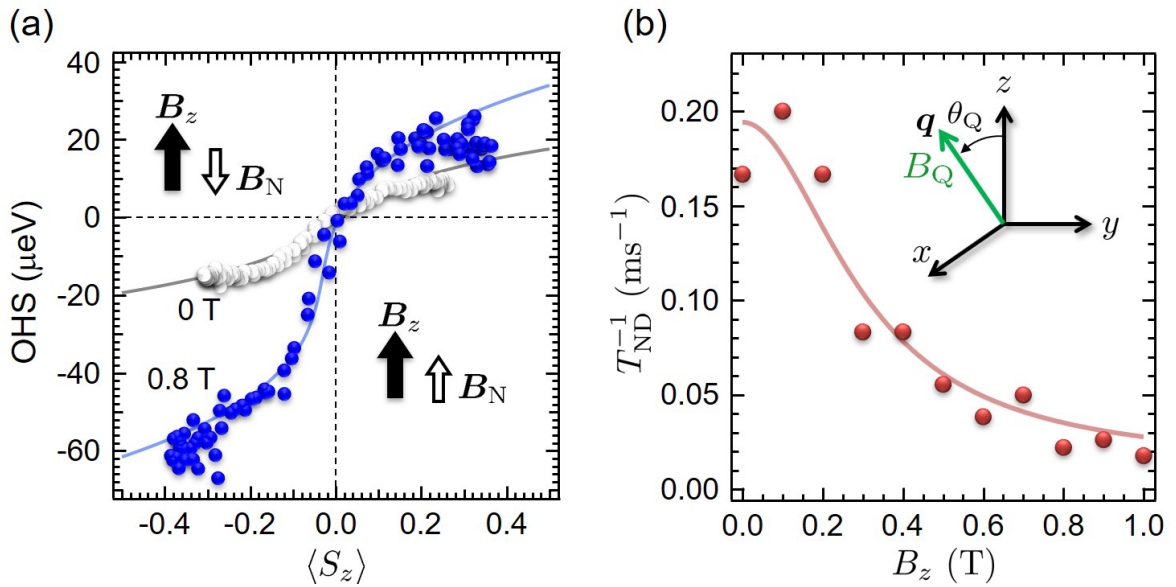


図 5.4: (a) OHS の $\langle S_z \rangle$ 依存性 (○ : $B_z = 0$ T, ● : $B_z = 0.8$ T). $\langle S_z \rangle$ は X^+ 発光の DCP から評価した。実線は計算曲線を示す。 (b) 核スピン緩和レート T_{ND}^{-1} の B_z 依存性。実線は式 (5.6) から得た計算曲線であり、フィッティングに用いたパラメータは $T_{\text{ND}\infty} = 100$ ms, $T_{\text{ND}0} = 5$ ms, $B_Q = 280$ mT。

この節では前節までの議論を踏まえ、 B_z の増加に伴って観測された核スピン緩和時間 T_{ND} の変化から、核四極子効果による有効磁場 B_Q の評価を行う。

図 5.4(a) は、 $B_z = 0, 0.8$ T で行った OHS の励起偏光依存性を表している。励起光強度は $100 \mu\text{W}$ とし、 X^+ 発光の DCP から横軸の $\langle S_z \rangle$ を評価した。まずは、 $B_z = 0$ T での結果 (図中○) を議論する。OHS は原点に対して反対称に振舞い、その絶対値は約 $10 \mu\text{eV}$ で飽和する。零磁場下でも B_K によって核磁場 B_N が形成されることは、4.4 節で述べたとおりである。光注入される $\langle S_z \rangle$ の符号によって B_N の方向が決まるが、零磁場下では B_N の方向による核スピン分極形成レート (T_{NF}^{-1}) の違いは生じないため、実験データに観られるように、 $\langle S_z \rangle$ に依らず形成される $|\text{OHS}|$ は等しくなる。この実験結果に対して、式 2.46 を使ってフィッティング曲線を重ねると、核スピン緩和レートとして $T_{\text{ND}}^{-1} = 0.17 \text{ ms}^{-1}$ が得られた。

次に、 $B_z = 0.8$ T での結果 (図中●) を議論する。 $\langle S_z \rangle > 0$ の領域では OHS が $\sim 20 \mu\text{eV}$ で飽和するのに対して、 $\langle S_z \rangle < 0$ の領域では $60 \mu\text{eV}$ にも及ぶ OHS が観測された。これは、 T_{NF}^{-1} が $\langle S_z \rangle$ の

符号によって異なるためである． $\langle S_z \rangle > 0$ の領域では $\mathbf{B}_z \cdot \mathbf{B}_N > 0$ となるため，電子・核同時スピン反転にかかるエネルギー不整合は増大し T_{NF}^{-1} が小さくなるが， $\langle S_z \rangle < 0$ の領域では $\mathbf{B}_z \cdot \mathbf{B}_N < 0$ となるため T_{NF}^{-1} は大きくなる．

ここまでの議論は 4.1 節の範疇であるが，この実験結果で注目すべきは $\langle S_z \rangle > 0$ での OHS が $B_z > 0$ を加えることで増加している点である．電子・核同時スピン反転でのエネルギーコストの点から考えると，0.8 T での T_{NF}^{-1} は零磁場でのレートより小さくなるため， $B_z=0$ での OHS を超えることは考えにくい．実際， $B_z=0$ でのフィッティングに使ったパラメータのうち B_z のみを変えても， $\langle S_z \rangle > 0$ での OHS の増加を説明することはできない．ここで T_{ND}^{-1} をフィッティングパラメータとして実験結果を再現する曲線を描いたところ， $T_{\text{ND}}^{-1} = 0.018 \text{ ms}^{-1}$ と見積もられた．これは， $B_z = 0$ での核スピン緩和レートに比べて，一桁小さい値である．

B_z による T_{ND}^{-1} の変化を調べるために， $0 \leq B_z \leq 1 \text{ T}$ の範囲で 0.5 T 毎に同様の測定を行った．繰り返しになるが， B_z と T_{ND}^{-1} 以外のパラメータは， $B_z = 0$ でのフィッティングから見積もられた値を採用している．この方法で得られた T_{ND}^{-1} の B_z 依存性を図 5.4(b) に示す． B_z の増加に伴って T_{ND}^{-1} は減少し，最終的には零磁場の値と比べて 1/10 程度になった．

ここで考察のため，第 2 章で述べた相互作用から考えられる NSP の緩和メカニズムをまとめておく．

① 核スピン間に働く双極子相互作用による緩和 (2.6.4 節)

- 系のスピン角運動量を保存しない速い NSP 緩和 ($\sim 0.1 \text{ ms}$ ，式 2.51 の C - F 項)： $B < B_L$ で有効
- 核スピン拡散 (式 2.51 の B 項による核スピン間 FF)：磁場依存性がなく，大きな磁場でも有効．

これらは前節で述べた核四極子分裂の効果により，強く抑制され则认为られる．

② 超微細相互作用を介した電子スピン揺らぎによる緩和 (2.6.1 節)

電子の波動関数が広がる領域に含まれる全ての核スピンに対して有効．QD に不対電子がある場合には支配的な緩和メカニズムとなる．

図 5.4(b) の挿入図に示すように，歪みによる NQI の有効磁場 B_Q が z 軸から角度 θ_Q だけ傾いている状況を考える² [14]．核スピンの量子化軸は，核に作用する有効磁場 (B_z , B_K , B_L , B_Q) によって決まるが，このうち B_L と B_K は B_z や B_Q と比べて小さいため無視することができる³． $B_z = B_Q$ の場合，核スピンの量子化軸は $\mathbf{q}$ 軸 (B_Q に沿った軸，歪みテンソルの主軸から決定) に一致するが，この時 $\theta_Q \neq 0$ ならば z 軸方向への射影 $|I_z\rangle$ が良い量子状態ではなくなる．これは $|I_z\rangle$ と $|I_z \pm 1\rangle$ の間に状態混合 $|I_q\rangle \propto (\alpha|I_z\rangle + \beta|I_z \pm 1\rangle)$ をもたすため，動的核偏極で形成された $\langle I_z \rangle$ の緩和に寄与することとなる．

ここで更に，HFI による影響を考えてみよう．(上の②で記述した) HFI による $\langle I_z \rangle$ の減衰は， $\langle S_x \rangle$, $\langle S_y \rangle$ の揺らぎが $\langle I_z \rangle$ に対して横磁場の揺らぎとして作用するために生じた効果であった．但し， $\theta_Q = 0$ (つまり $|I_z\rangle$ が良い量子状態) の時は， $\langle S_z \rangle$ の揺らぎが $\langle I_z \rangle$ の減衰に寄与しない点は注意すべきである．これは $\langle S_z \rangle$ の揺らぎが，縦磁場の揺らぎとして作用するものの，状態間の混合を誘起しないためである⁴．しかし， $\theta_Q \neq 0$ の場合， $\langle S_x \rangle$, $\langle S_y \rangle$ に加えて， $\langle S_z \rangle$ の揺らぎも HFI の $S_z I_z$ 項を介して $\langle I_q \rangle$ に対する横磁場の揺らぎとして働くため， $\theta_Q = 0$ の場合に比べて NSP の緩和が促進されることになる．

²単一 QD での NMR から NQI の主軸は，ほぼ結晶成長方向 (z) を向いていることが報告されている [12, 13]．

³ $B_z, B_Q \gtrsim$ 数 100 mT に対して， $B_K \lesssim 10 \text{ mT}$ ， $B_L \sim 0.15 \text{ mT}$ 程度．

⁴一方 $\langle S_z \rangle$ の揺らぎは， $\langle I_x \rangle$, $\langle I_y \rangle$ の減衰には寄与する．

このように、 q 軸が z 軸に一致しない場合は、NQI は HFI を介した NSP 緩和を助長する作用を持つ。しかし、 $B_Q \lesssim B_z$ の外部磁場を加えると、核スピンの量子化軸が z 軸方向に漸近し、 $|I_q\rangle$ ではなく $|I_z\rangle$ が良い量子状態に戻る。その結果、 $\langle S_z \rangle$ の揺らぎによる NSP 緩和が抑えられ、零磁場の時よりも長い T_{ND} (つまり、小さい T_{ND}^{-1}) が得られるようになる。

以上を考慮すると、 T_{ND}^{-1} は以下のように表せる [15, 16].

$$T_{\text{ND}}^{-1} = T_{\text{ND}\infty}^{-1} + T_{\text{ND}0}^{-1} \left[1 + \left(\frac{B_z}{B_Q} \right)^2 \right]^{-1}. \quad (5.6)$$

ここで、 $T_{\text{ND}\infty}^{-1}$ は $B_z \rightarrow \infty$ での NSP 緩和レートであり、 $T_{\text{ND}0}^{-1}$ はローレンツ項のピーク値を示す。この理論式で実験結果をフィッティングしたところ (図 5.4(b) の実線)、 $T_{\text{ND}\infty}^{-1} = 0.01 \text{ ms}^{-1}$ 、 $T_{\text{ND}0}^{-1} = 0.2 \text{ ms}^{-1}$ 、 $B_Q = 280 \text{ mT}$ を得た。

最後にこれまでに報告があったナノ構造半導体および bulk GaAs での有効磁場の一覧を表 5.1 にまとめた。

表 5.1: 観測されている QDs での有効磁場. bulk GaAs 以外の QD での結果はすべて単一 QD での測定結果. B_K は式 (2.49) から分かるように $f_e(\propto \text{励起強度})$ に依存する. ND: not deduced yet

	InGaAs & InP SK-QDs [12, 18, 19]	Donor bound ele. in bulk GaAs [9, 20, 21]	GaAs droplet QD [17]	InAlAs SK-QD [22]	InAs SK-QR [23]
B_Q (mT)	250	~ 0	≤ 1	280	200
B_K (mT)	1	0.05	15	0.7	ND
B_L (mT)		0.15			

核スピン分極の緩和レートは、電子・核スピン結合系のダイナミクスを決める重要なパラメータであるが、これが NQI による変調を受けていることを実証した例は今回が初めてである。また、本測定手法で得られた B_Q の値は、他のナノ構造半導体での報告例と同程度である。既に述べたように、NQI が核スピン系にもたらす影響は複雑である。特に自己集合 QD (QR) の場合、残留歪みが QD 毎 (QR 毎) に異なることから更なるデータの蓄積が必要ではあるが、今回得られた知見は、本研究が目指す外部歪みによる NQI チューニングを実証する上で有益な情報となる。

5.3 歪印加による核スピン分極制御

この節では、現在進行中の歪み印加デバイスとその展望について述べる。歪み印加デバイスは、外部歪みによる核四極子相互作用の制御を実証する上で有望と考えられる。歪印加デバイスの作製は、H30 年度に修士課程を修了した石田太郎氏、および北海道大学電子科学研究所 (RIES) 所属の小田島聡博士と協力して行った⁵。

⁵石田氏との研究では、歪みによる価電子帯混合を介した正孔 g 因子制御 (図 1.1 参照) を試みた。この目的において、重い正孔と軽い正孔のエネルギー分裂が小さい無歪 (strain-free) の QD 試料は、SK-QD よりも容易に価電子帯混合の度合いを制御できると期待される。

5.3.1 歪印加デバイスの作製と歪印加によるエネルギーシフトの観測

図 5.5(a) は本研究で作製した歪み印加構造の模式図である．外部歪みのソースとして，電界印加

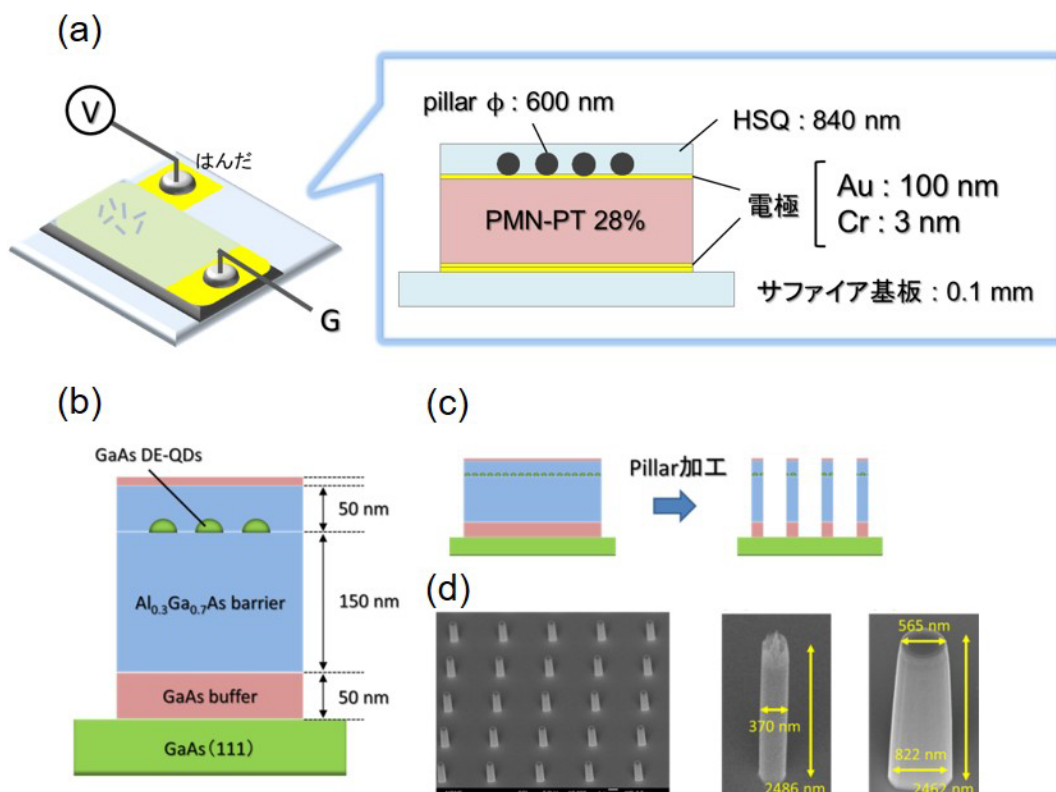


図 5.5: (a) 歪み印加デバイスの概略図，(b) GaAs/ $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 液滴 QD の試料構造，(c) ピラー加工概略図，(d) ピラー加工後 QD 試料の SEM 画像．左：GaAs バルクピラー SEM 画像（直径 370 nm，高さ 2,486 nm），右：GaAs/ AlGaAs 液滴-QD を含むピラー SEM 画像（最上部直径 565 nm，最下部直径 822 nm，高さ 2,462 nm）．

方向に対して垂直方向の変化が大きいと見込まれる $(1-x)[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]-x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT) 単結晶 (TRS Technologies 社製， $x=0.28$) を使用した．試料寸法は $5 \times 10 \text{ mm}^2$ ，厚さ 0.5 mm，面方位は (001) で試料面内に 2 軸歪みを発生させる．また，両面に電極として Cr:3 nm，Au:100 nm をヘリコンスパッタ装置を使用して蒸着した．ナノピラー加工 (図 5.5(c), (d) 参照) を施した量子ドット試料を Au 電極に熱圧着 (300°C ，30 min，100 N) することで，圧電素子との接着を狙った．その後，HSQ をスピコートすることで，ピラー側面からの歪みの伝播を促している．歪み印加構造作製手順の詳細は石田氏の修士論文 [24] に譲る．

ここでは，分子線エピタキシー (MBE) 法により液滴成長した GaAs/ AlGaAs 液滴 QD 試料を用いた．この QD 試料は，国立研究開発法人物質・材料研究機構 (NIMS) 所属の間野高明博士，黒田隆博士から提供されたものである．液滴成長法で作られる QD は，バリア材料との格子不整合を形成駆動力とする SK-QD とは異なり，結晶内部に残留歪みが生じにくいことが指摘されている．この特性は，外部歪みによる変化 (今回の場合，電場勾配の変調を介した NQI の変化) の有無を調べる上で有用である．

試料構造を図 5.5(b) に示す．GaAs(111)A 基板の上に GaAs 緩衝層 (50 nm) と障壁層 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ (150 nm) を積み，その上に GaAs 液滴 QD を成長させている．その後， $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 層 (50 nm)，GaAs 層 (10 nm)， $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 層 (2 ML) を積層させている．面内密度は $\sim 3 \times 10^9 \text{ QDs/cm}^2$ となっており，単一 QD 分光を行うためにドライエッチングによりナノピラー加工を施してある．加工

したピラーの寸法は図 5.5(d) に示すように、最上部直径 565 nm、最下部直径 822 nm、高さ 2,462 nm となっている (今回は比較のため、QD 層を含まない GaAs バルクでもピラー構造を作製した)。QD 試料はヘリウム循環型低振動クライオスタット内に保持し、30 K で測定を行った。励起光源には半導体レーザー ($\lambda=635$ nm) を使用し、対物レンズ (Mitsutoyo M Plan Apo SL, $\times 20$, NA=0.28) でピラーに集光し、単一ピラーからの発光をシングル回折格子分光器 (T64000 のシングル入射ポートを使用) と液体窒素冷却 Si-CCD 検出器で取得した。歪み印加構造に 0-16 kV/cm の範囲で電界を印加することで、試料に 2 軸の圧縮歪みを印加した。

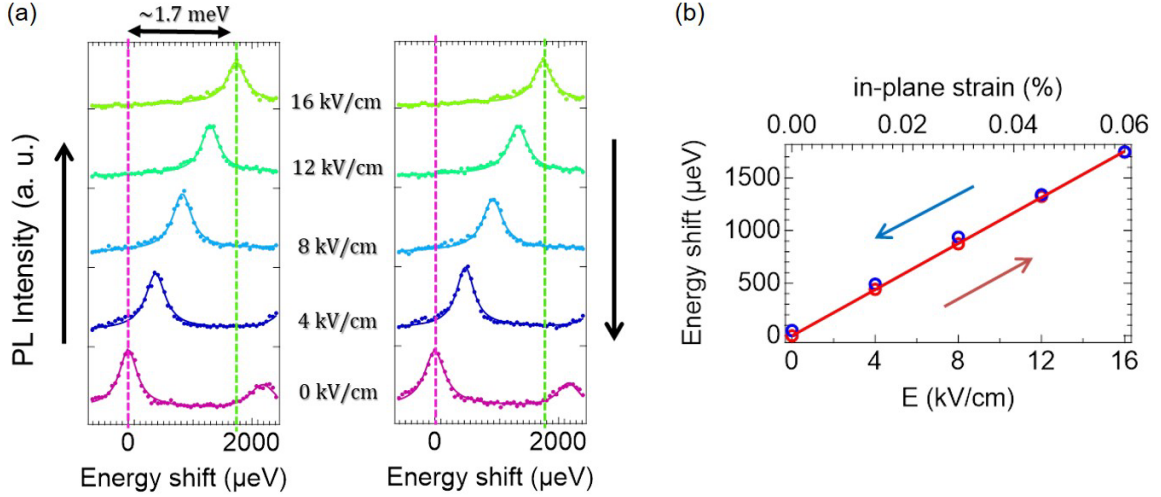


図 5.6: 歪み印加による QD の発光エネルギーシフト (@ 30 K). FWHM : 350 μeV .

単一ピラーに由来する発光シグナルを観察したところ、QD や荷電状態の違いを反映して複数の QD 発光スペクトルが確認された。これらの発光スペクトルはいずれも正の電界を加えるとブルーシフトを示すが、シフト量にはピーク毎に差異が見られた。図 5.6(a) に大きなエネルギーシフトを示した発光スペクトルの測定結果を示す。印加電界を 0 kV/cm $\rightarrow$ 16 kV/cm $\rightarrow$ 0 kV/cm の順に、4 kV/cm 毎にステップ掃引した。図 5.6(b) に印加電界とピークシフト量の関係を示す。QD 発光ピークは圧縮歪みに対して最大 1.7 meV のブルーシフトを示し、電界の大きさに対して線形にシフト量が変わることが分かった。更に、電界を 0 kV/cm に戻すと、発光エネルギーも元の値に戻ることから、QD 層に外部歪みが伝播していることが実証できた。比較用の GaAs バルクピラー (直径 : 370 nm, 高さ : 2,486 nm) で同様の実験を行ったところ、QD 入りピラーでの結果よりも大きいブルーシフトが確認された。シフト量の違いが、1) ナノピラー径の違いによるものか、2) QD 構造に伝播する前の歪み緩和の有無によるものかは、現段階では定かではない。

5.3.2 核四極相互作用の歪チューニング

これまで、現在作製中の歪み印加デバイスの概要と、動作確認を含む作業の進行状況について述べてきた。最後に、本デバイスの利用を想定した NQI の歪チューニングの見通しについて言及する。

核四極子場 B_Q が、NSP 緩和レートの変調 (5.2 節) を始めとして、核スピン分極のダイナミクスに多様な影響をもたらすことは既に述べた。外部歪みによる NQI のチューニングを目指すにあたり、まずは歪みと B_Q の関係について考える。NQI のソースである電場勾配 V_{zz} と B_Q の関係は、式 (??) と式 (??) から次のように表せる。

$$B_Q = \frac{3eV_{zz}Q}{2g_N\mu_N I(2I-1)} \quad (5.7)$$

すなわち、 B_Q は V_{zz} に対して線形に変化する．このことから、「外部歪みを介して V_{zz} をどれだけ制御できるか」が目的を実現する上で鍵となる．立方晶の場合、電場勾配テンソル V_i と歪テンソル ϵ_j の関係は Voigt notation を用いて以下のように表せる．

$$V_i = \sum_j S_{ij} \epsilon_j \quad (5.8)$$

ここで S_{ij} は電場勾配の結合定数である．ここでラプラス方程式 ($\sum_i V_{ii} = 0$) を適用すると、 $S_{11} = -2S_{12}$ が導かれる．この関係と式 (5.8) を用いると、電場勾配 V_{ij} は以下のように書ける．

$$V_{zz} = S_{11} \left[\epsilon_{zz} - \frac{1}{2} (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) \right] \quad (5.9)$$

$$V_{xy} = V_{yx} = 2S_{44}\epsilon_{xy} \quad (5.10)$$

ここで、1 軸歪みと 2 軸歪みのどちらが NQI の歪チューニングに適しているかを考える． x 軸方向に主軸を持つ 1 軸歪みの場合、 ϵ_{ij} と V_{zz} は弾性テンソル C_{ij} を用いて、

$$\epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = \frac{C_{12}}{C_{11} + C_{12}} \epsilon_{xx}, \quad \epsilon_{ij} = 0 \quad (i \neq j) \quad (5.11)$$

$$V_{zz} = \frac{1}{2} \frac{C_{11}}{C_{11} + C_{12}} S_{11} \epsilon_{xx}, \quad V_{ij} = 0 \quad (i \neq j) \quad (5.12)$$

と表せる．同様に xy 面内に等方的な 2 軸歪みの場合、

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = -\frac{C_{11}}{2C_{12}} \epsilon_{zz}, \quad \epsilon_{ij} = 0 \quad (i \neq j) \quad (5.13)$$

$$V_{zz} = -\left(1 + \frac{2C_{12}}{C_{11}}\right) S_{11} \epsilon_{xx}, \quad V_{ij} = 0 \quad (i \neq j) \quad (5.14)$$

と表すことができる．これらの式は、どちらの歪みも z 軸方向に電場勾配を発生させることを示している．両者を比較すると、歪みに対する V_{zz} の変化が 1 軸歪みよりも 2 軸歪みの方が大きいことが分かる．従って、本研究目的には 2 軸歪みの方が適していると言える．

5.1 節で述べた様に B_Q は核スピン拡散を抑制する．歪みを介した B_Q の制御によって緩和を大きく抑制すれば、高核スピン分極率を得ることが期待できる．また、5.2 節で述べた B_Q により発生する傾斜した量子化軸が、核スピン緩和に与える影響も無視できない．5.2 節で用いた自己集合 QD は、ほぼ結晶成長方向 (z 軸) に主軸を持つ残留歪みが生じるため、NQI による緩和の促進効果も発生した． B_z の印加より量子化軸を z 軸に回帰させると 1 桁近い緩和レートの変化が観測され、高い B_Q がある状態でも、主軸方向によって緩和を促進させることが示唆された．現状 xy 面内や z 軸上以外に歪みを印加することはできないが、歪みの方向制御が可能となれば B_Q の大きさを固定したまま、核スピン緩和を容易に大きく制御できる可能性がある．

QD の核スピン分極制御の研究例は電子スピンを介した間接的な分極形成や緩和が多く、核スピンを直接操作する例は少ない．NQI を通して核スピン緩和を操作することは、電子-核スピン結合系の制御に貢献できると考えている．

参考文献

- [1] C. P. Slichter (益田義賀訳) 磁気共鳴の原理 Chap.10 (シュプリンガー・フェアラーク東京, 1998).
- [2] C. Bulutay, “Quadrupolar spectra of nuclear spins in strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots”, Phys. Rev. B **85**, 115313/1-12 (2012). DOI: [10.1103/PhysRevB.85.115313](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.115313)
- [3] R. I. Dzhioev, and V. L. Korenev, “Stabilization of the electron-nuclear spin orientation in quantum dots by the nuclear quadrupole interaction”, Phys. Rev. Lett. **99**, 037401/1-4 (2007). DOI: [10.1103/PhysRevLett.99.037401](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.99.037401)
- [4] O. Krebs, P. Maletinsky, T. Amand, B. Urbaszek, A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie, and A. Imamoglu, “Anomalous Hanle effect due to optically created transverse Overhauser field in single InAs/GaAs quantum dots”, Phys. Rev. Lett. **104**, 056603/1-4 (2010). DOI: [10.1103/PhysRevLett.104.056603](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.056603)
- [5] S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, “In-plane nuclear field formation investigated in single self-assembled quantum dots”, Phys. Rev. B **97**, 075309/1-8 (2018). DOI: [10.1103/PhysRevB.97.075309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.075309)
- [6] S. Yamamoto, T. Arakawa, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, “Influence of a longitudinal field on the large in-plane nuclear field formation in single quantum dots”, Phys. Status Solidi B (published online, 2019). DOI: [10.1002/pssb.201900381](https://doi.org/10.1002/pssb.201900381)
- [7] R. Kaji, S. Yamamoto, R. Matsusaki, and S. Adachi, “Experimental studies on nuclear field generated orthogonal to electron spin in single self-assembled nanostructures”, Jpn. J. Appl. Phys. **58**, SBBH10/1-6 (2019). DOI: [10.7567/1347-4065/aafe66](https://doi.org/10.7567/1347-4065/aafe66)
- [8] S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, “Anomalous Hanle curves induced by in-plane nuclear field in single self-assembled InAlAs and InAs nanostructures”, J. Phys.: Conf. Ser. **1220**, 012047/1-4 (2019). DOI: [10.1088/1742-6596/1220/1/012047](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1220/1/012047)
- [9] F. Meier and B. Zakharchenya (ed.) *Optical Orientation* Modern Problems in Condensed Matter Sciences (North-Holland, New York, 1994) Vol. 8, Chaps. 2 and 5.
- [10] C. Latta, A. Högele, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, P. Maletinsky, M. Kroner, J. Dreiser, I. Carusotto, A. Badolato, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Atatüre, and A. Imamoglu, “Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization”, Nat. Phys. **5**, 758-763 (2009). DOI: [10.1038/nphys1363](https://doi.org/10.1038/nphys1363)
- [11] A. Bechtold, D. Rauch, F. Li, T. Simmet, P. Ardel, A. Regler, K. Müller, N. A. Sinitsyn, and J. J. Finley, “Three-stage decoherence dynamics of an electron spin qubit in an optically active quantum dot”, Nat. Phys. **11**, 1005-1008 (2015). DOI: [10.1038/nphys3470](https://doi.org/10.1038/nphys3470)
- [12] E. A. Chekhovich, K. V. Kavokin, J. Puebla, A. B. Krysa, M. Hopkinson, A. D. Andreev, A. M. Sanchez, R. Beanland, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii, “Structural analysis of

- strained quantum dots using nuclear magnetic resonance”, *Nat. Nanotech.* **7**, 646-650 (2012). DOI: [10.1038/nnano.2012.142](https://doi.org/10.1038/nnano.2012.142)
- [13] E. A. Chekhovich, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, and A. I. Tartakovskii, “Suppression of nuclear spin bath fluctuations in self-assembled quantum dots induced by inhomogeneous strain”, *Nat. Commun.* **6**, 6348/1-7 (2015). DOI: [10.1038/ncomms7348](https://doi.org/10.1038/ncomms7348)
- [14] C.-W. Huang, and X.g Hu, “Theoretical study of nuclear spin polarization and depolarization in self-assembled quantum dots”, *Phys. Rev. B* **81**, 205304/1-13 (2010). DOI: [10.1103/PhysRevB.81.205304](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.205304)
- [15] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky, A. Högele, and A. Imamoglu, “Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation”, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 79-133 (2013). DOI: [10.1103/RevModPhys.85.79](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.85.79)
- [16] O. Krebs, B. Eble, A. Lemaître, P. Voisin, B. Urbaszek, T. Amand, and X. Marie, “Hyperfine interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots: dynamical nuclear polarization versus spin relaxation (Interaction hyperfine dans des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs : polarisation dynamique des noyaux versus relaxation de spin)”, *C. R. Physique* **9**, 874-884 (2008). DOI: [10.1016/j.crhy.2008.10.001](https://doi.org/10.1016/j.crhy.2008.10.001)
- [17] G. Sallen, S. Kunz, T. Amand, L. Bouet, T. Kuroda, T. Mano, D. Paget, O. Krebs, X. Marie, K. Sakoda, and B. Urbaszek, “Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field”, *Nat. Commun.* **5**, 3268/1-7 (2013). DOI: [10.1038/ncomms4268](https://doi.org/10.1038/ncomms4268)
- [18] C. W. Lai, P. Maletinsky, A. Badolato, and A. Imamoglu, “Knight-field-enabled nuclear spin polarization in single quantum dots”, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 167403/1-4 (2006). DOI: [10.1103/PhysRevLett.96.167403](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.167403)
- [19] P. Maletinsky, M. Kroner, and A. Imamoglu, “Breakdown of the nuclear-spin temperature approach in quantum-dot demagnetization experiments” *Nat. Phys.* **5**, 407-411 (2009). DOI: [10.1038/nphys1273](https://doi.org/10.1038/nphys1273)
- [20] D. Paget, T. Amand, and J.-P. Korb, “Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semiconductors”, *Phys. Rev. B* **77**, 245201/1-12 (2008). DOI: [10.1103/PhysRevB.77.245201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.245201)
- [21] R. Giri, S. Cronenberger, M. Vladimirova, D. Scalbert, K. V. Kavokin, M. M. Glazov, M. Nawrocki, A. Lemaître, and J. Bloch, “Giant photoinduced faraday rotation due to the spin-polarized electron gas in an n-GaAs microcavity”, *Phys. Rev. B* **85**, 195313/1-11 (2012). DOI: [10.1103/PhysRevB.85.195313](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.85.195313)
- [22] R. Matsusaki, R. Kaji, S. Yamamoto, H. Sasakura, and S. Adachi, “Quadrupolar effect on nuclear spin depolarization in single self-assembled quantum dots”, *Applied Physics Express* **11**, 085201/1-5 (2018). DOI: [10.7567/APEX.11.085201](https://doi.org/10.7567/APEX.11.085201)
- [23] private communications from the recent similar measurements in InAs QR by S. Yamamoto.
- [24] 石田太郎, 平成 30 年度修士論文「液滴エピタキシャル単一 GaAs 量子ドットでの正孔 g 因子の歪チューニング (Stress tuning of hole g-factor in single GaAs droplet quantum dots)」

第6章 結論

6.1 総括

本研究では、自己集合単一 InAlAs/AlGaAs 量子ドットおよび InAs/GaAs 量子リングを用いて、核スピン分極形成・緩和メカニズムを零磁場および弱磁場 (<1 T) 領域で実験的・理論的に考察した。特に自己集合ナノ構造半導体で特有の歪が誘起する核四極子相互作用がもたらす効果に着目した。ハイブリット量子系としての量子ドット構造における電子・核スピン結合系のダイナミクスについて、これまでの強磁場下でのモデルには考慮されてこなかった核四極子相互作用がもたらす効果について知見を得て、従来の電子・核スピン結合系ダイナミクスモデルを見直すと共に、核スピンエンジニアリングの新領域として核スピン集団と電子スピンの量子インターフェースの実現に寄与することを目指した。本章では論文を総括し、今後の展望について述べる。

以下に第 2 章、第 4 章、第 5 章の簡単なまとめを記述する。

第 2 章「半導体量子ドットのスピン物性の基礎」では、ナノ構造半導体、特に対象とする量子ドットについて、バンド構造、荷電状態、光学遷移の偏光選択則、異方性交換相互作用による状態混合、エネルギー分裂、および発光の偏光変化など本研究に必要な基礎的事項と、磁気発光特性を解析するために磁場中の励起子（複合体）の振る舞いについて述べた。交換相互作用、ゼーマン相互作用のハミルトニアンを導出し、理論的に単一量子ドットからの発光スペクトルが示すエネルギー分裂、偏光変化等を論じた。また本論文での電子、正孔のスピンの g 因子を定義した。更に、ハイブリット量子系としての量子ドットの電子・核スピン結合系を理解するために不可欠な種々の有効磁場について記述し、結合系に働く相互作用についてハミルトニアンを導出するとともに、先行研究で報告されている核スピン分極形成・緩和モデルについて記述した。

第 4 章「電子・核スピン結合系のダイナミクス」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た。核スピン分極の励起強度、励起偏光、印加磁場強度に対する依存性を測定し、核スピン分極の双安定特性について、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した。

また、核スピン分極の双安定現象（核スピンスイッチング）を利用した電子・正孔の g 因子の個別評価方法を開発した。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、大きさだけでなくその符号も含めて評価することが可能となることを示した。更に、核磁場揺らぎが電子スピン分極に与える影響を議論し、核磁場揺らぎを簡便に測定できる手法を開発し、評価した。

スピン結合系のダイナミクスにおいて、電子スピン反転時間の実測と核スピン分極の影響を考察することは重要な知見を与える。このために、新しい試み単一量子ドットからの発光の光子相関計測を電子・核スピン結合系ダイナミクス探索に応用し、核スピン分極が電子スピン反転時間に及ぼす効果を検証した。

最後に、零磁場下での大きな核スピン分極の形成を実証し、核スピン分極形成における Knight field について議論した。

第 5 章「核四極子相互作用と核スピン分極ダイナミクス」では、まず核四極子相互作用 (NQI) と

核準位のゼーマン効果への影響を記述した。また、NQI による有効磁場 B_Q を導入し、動的核スピン分極に与える影響を論じた。

実験では、 B_Q の傾斜が核スピン分極緩和に及ぼす効果を検証した。実験では、零磁場から 1 T の縦磁場印加で核スピン緩和レートが 1 桁以上抑制される。1 T 程度の縦磁場を加えると核スピン緩和レートが 1 桁小さくなる様子が確認された。この実験結果と、傾斜 B_Q の効果を組み込んだ理論とを比較すると、自己集合 InAlAs QD において $B_Q=280$ mT を得ることに成功した。これは光学的手法で NQI の効果を観測した初めての実験報告である。

更に、現在進行中の歪印加デバイスの作製とそれを利用した NQI チューニングについての展望を記述した。外部歪みによる電場勾配の変化を利用することで、核スピン系に多大な影響力を持つ NQI の変調を目指した。歪み印加デバイスのプロトタイプを作製し、基礎的な動作確認までは完了したが、目的とする NQI チューニングを実証するには、より大きい外部歪みを QD に加えるための改良を施す必要がある。

6.2 本研究の位置付けと今後の展望

量子情報の量子情報の通信・演算・ストレージの全てのプラットフォームとなり得る半導体量子ドットにおいて、未だ実現していない核スピン集団への量子情報の保存（量子メモリ）のためには、核スピン集団の量子状態制御が必要であり、電子・核スピン結合系のダイナミクスを詳細に把握することが必須である。量子状態制御には位相情報も含めた制御が不可欠で、これまでの核スピン分極率や方向制御とは一線を画した核スピンエンジニアリングの領域となる。この実現のためには、その効果や影響、解釈が不明瞭ではあるが、自己集合量子ドットで種々の特異な振る舞いの起源とされる NQI がスピン結合系に与える影響の全容解明が必要と考え、本論文では零磁場および弱磁場 (<1 T) 領域で核スピン分極の形成と緩和に及ぼす影響について実験を行った。

高い外部磁場下で行われる実験が多い中、零磁場や弱磁場で行う実験は弱い有効磁場である Knight field や quadrupolar field の探査を行うために有効である。零磁場下で行った実験では電子スピンと核スピンが互いの分極形成を助長し、高核スピン分極を形成することが分かった。これは外部磁場がない状態でも電子スピンを介した核スピン分極形成の可能性を示し、磁場を必要としないスピン応用デバイスの実現の上で有用と言える。また、電子スピンの速い緩和が、発生した核磁場により抑制されることを確認した。QD の電子スピンにおける速い緩和は核磁場揺らぎが原因であり、この効果を抑制できれば QD の電子スピンが持つ長いスピンコヒーレンスを引き出せる。電子スピンコヒーレンスは、量子通信、量子演算等において重要であるため、零磁場でも核磁場揺らぎによる速い緩和を抑制可能であることは有用な知見となるだろう。

更に、核スピン分極形成に影響を与える NQI の効果を直接観測し、緩和レートの抑制だけでなく、促進にも作用することが分かった。NQI の起源の一つである電場勾配は歪みにより発生させることが可能である。従って、圧電素子等を通して歪印加により、外部から電氣的に核スピン緩和レートのコントロールが期待できる。核スピンは現在まで磁場や電子スピンを介した制御が多く考えられていた。電氣的な制御はそれらの一助となる可能性があり、核スピン分極率や方向制御に有効であると言える。

QD における核スピン分極形成の課題としては、大きな NQI チューニングが可能な歪印加デバイスの作製が挙げられる。InGaAs QD で行われた歪印加による励起子発光エネルギー変化の報告例 [1] では 0.1 % の歪みを印加した場合に ~ 4.5 meV のエネルギーシフトを生じることが観測された。InGaAs QD と同程度のエネルギーシフトが他 QD で生じると想定すると、1 % の歪みでは ~ 45 meV のエネルギーシフトが確認される筈である。現在、我々の研究室では ~ 1.7 meV ($\epsilon \sim 0.03\%$) までしか確認されていない。従って、より大きな歪印加を実現し、核スピン緩和へ影響を持つ NQI を発生させる必要がある。

参考文献

- [1] H. M. G. A. Tholen, J. S. Wildmann, A. Rastelli, R. Trotta, C. E. Pryor, E. Zallo, O. G. Schmidt, P. M. Koenraad, and A. Yu. Silov “Strain-induced g-factor tuning in single InGaAs/GaAs quantum dots”, Phys. Rev. B **94**, 245301/1-12 (2016). DOI: [10.1103/PhysRevB.94.245301](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.245301)

付 録 A 角運動量演算子

ここでは、電子のスピン角運動量、正孔の全角運動量及びスピン角運動量を表す演算子の行列形式をまとめておく。

電子のスピン角運動量を表す行列 $\mathbf{S}$ は、基底を電子スピンのアップ $|+1/2\rangle$ 、ダウン $|-1/2\rangle$ にとると以下のように表される。パウリ行列 $\boldsymbol{\sigma}^e$ を使って、 $\mathbf{S} = \boldsymbol{\sigma}^e/2$ である。

$$S_x = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad S_y = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad S_z = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

正孔の全角運動量を表す行列 $\mathbf{J}$ は、基底を次の 4 状態にとると以下のような行列形式で表される。

基底： $\{|J, J_z\rangle = |3/2, +3/2\rangle, |3/2, -1/2\rangle, |3/2, +1/2\rangle, |3/2, -3/2\rangle\}$

$$J_x = \begin{pmatrix} & \sqrt{3}/2 & 0 \\ & 1 & \sqrt{3}/2 \\ \sqrt{3}/2 & 1 & \\ 0 & \sqrt{3}/2 & \end{pmatrix}, \quad J_y = \begin{pmatrix} & -i\sqrt{3}/2 & 0 \\ & i & -i\sqrt{3}/2 \\ i\sqrt{3}/2 & -i & \\ 0 & i\sqrt{3}/2 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.2})$$

$$J_z = \begin{pmatrix} 3/2 & & & \\ & -1/2 & & \\ & & 1/2 & \\ & & & -3/2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

以降の計算で使用する $\mathbf{J}$ の積を書下しておく。

$$J_x^2 = \begin{pmatrix} 3/4 & \sqrt{3}/2 & & \\ \sqrt{3}/2 & 7/4 & & \\ & & 7/4 & \sqrt{3}/2 \\ & & \sqrt{3}/2 & 3/4 \end{pmatrix}, \quad J_y^2 = \begin{pmatrix} 3/4 & -\sqrt{3}/2 & & \\ -\sqrt{3}/2 & 7/4 & & \\ & & 7/4 & -\sqrt{3}/2 \\ & & -\sqrt{3}/2 & 3/4 \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

$$J_z^2 = \begin{pmatrix} 9/4 & & & \\ & 1/4 & & \\ & & 1/4 & \\ & & & 9/4 \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

$$J_x^3 = \begin{pmatrix} & 7\sqrt{3}/8 & 3/4 \\ & 5/2 & 7\sqrt{3}/8 \\ 7\sqrt{3}/8 & 5/2 & \\ 3/4 & 7\sqrt{3}/8 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.6})$$

$$J_y^3 = \begin{pmatrix} & -i7\sqrt{3}/8 & i3/4 \\ & i5/2 & -i7\sqrt{3}/8 \\ i7\sqrt{3}/8 & -i5/2 & \\ -i3/4 & i7\sqrt{3}/8 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.7})$$

$$J_z^3 = \begin{pmatrix} 27/8 & & & \\ & -1/8 & & \\ & & 1/8 & \\ & & & -27/8 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.8})$$

$$J_x J_y = \begin{pmatrix} i3/4 & -i\sqrt{3}/2 & & \\ i\sqrt{3}/2 & -i/4 & & \\ & & i/4 & -i\sqrt{3}/2 \\ & & i\sqrt{3}/2 & -i3/4 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.9})$$

$$J_y J_x = \begin{pmatrix} -i3/4 & -i\sqrt{3}/2 & & \\ i\sqrt{3}/2 & i/4 & & \\ & & -i/4 & -i\sqrt{3}/2 \\ & & i\sqrt{3}/2 & i3/4 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.10})$$

$$J_y J_z = \begin{pmatrix} & -i\sqrt{3}/4 & 0 \\ & i/2 & i3\sqrt{3}/4 \\ i3\sqrt{3}/4 & i/2 & \\ 0 & -i\sqrt{3}/4 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.11})$$

$$J_z J_y = \begin{pmatrix} & -i3\sqrt{3}/4 & 0 \\ & -i/2 & i\sqrt{3}/4 \\ i\sqrt{3}/4 & -i/2 & \\ 0 & -i3\sqrt{3}/4 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.12})$$

$$J_z J_x = \begin{pmatrix} & 3\sqrt{3}/4 & 0 \\ & -1/2 & -\sqrt{3}/4 \\ \sqrt{3}/4 & 1/2 & \\ 0 & -3\sqrt{3}/4 & \end{pmatrix}, \quad (\text{A.13})$$

$$J_x J_z = \begin{pmatrix} & \sqrt{3}/4 & 0 \\ & 1/2 & -3\sqrt{3}/4 \\ 3\sqrt{3}/4 & -1/2 & \\ 0 & -\sqrt{3}/4 & \end{pmatrix}. \quad (\text{A.14})$$

付 録 B 交換相互作用

電子－正孔間交換相互作用ハミルトニアンは一般に次式のように記述される．

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}} = \sum_{i=x,y,z} (a_i J_i S_i + b_i J_i^3 S_i) \quad (\text{B.1})$$

各成分を計算すると、以下ようになる．ここで下線部は計算して 0 になる項である．

基底： $\{|J_z, S_z\rangle = | +3/2, -1/2\rangle, | -1/2, -1/2\rangle, | +1/2, -1/2\rangle, | -3/2, -1/2\rangle,$
 $| +3/2, +1/2\rangle, | -1/2, +1/2\rangle, | +1/2, +1/2\rangle, | -3/2, +1/2\rangle\}$

・ (1,1) 成分

$$\begin{aligned} \langle +3/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +3/2, -1/2 \rangle &= \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +3/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +3/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +3/2, -1/2 \rangle}} \\ &= \langle +3/2, -1/2 | \left(\frac{3}{2} a_z + \frac{27}{8} b_z \right) \left(-\frac{1}{2} \right) | +3/2, -1/2 \rangle \\ &= -\frac{3}{4} \left(a_z + \frac{9}{4} b_z \right) = \frac{\delta_0^{\text{hh}}}{2} \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

* (8,8) 成分と同じ

・ (2,2) 成分

$$\begin{aligned} \langle -1/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | -1/2, -1/2 \rangle &= \frac{\langle -1/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | -1/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle -1/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | -1/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle -1/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | -1/2, -1/2 \rangle}} \\ &= \langle -1/2, -1/2 | \left(-\frac{1}{2} a_z - \frac{1}{8} b_z \right) \left(-\frac{1}{2} \right) | -1/2, -1/2 \rangle \\ &= \frac{1}{4} \left(a_z + \frac{1}{4} b_z \right) = -\frac{\delta_0^{\text{lh}}}{2} \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

* (7,7) 成分と同じ

・ (3,3) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +1/2, -1/2 \rangle &= \frac{\langle +1/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +1/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +1/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +1/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +1/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +1/2, -1/2 \rangle}} \\
 &= \langle +1/2, -1/2 | \left(-\frac{1}{2} a_z - \frac{1}{8} b_z \right) \frac{1}{2} | +1/2, -1/2 \rangle \\
 &= -\frac{1}{4} \left(a_z + \frac{1}{4} b_z \right) = \frac{\delta_0^{\text{lh}}}{2}
 \end{aligned} \tag{B.4}$$

* (6,6) 成分と同じ

・ (4,4) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle -3/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | -3/2, -1/2 \rangle &= \frac{\langle -3/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | -3/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle -3/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | -3/2, -1/2 \rangle}{+ \frac{\langle -3/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | -3/2, -1/2 \rangle}} \\
 &= \langle -3/2, -1/2 | \left(\frac{3}{2} a_z + \frac{27}{8} b_z \right) \frac{1}{2} | -3/2, -1/2 \rangle \\
 &= \frac{3}{4} \left(a_z + \frac{9}{4} b_z \right) = -\frac{\delta_0^{\text{hh}}}{2}
 \end{aligned} \tag{B.5}$$

* (5,5) 成分と同じ

・ (1,7) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +3/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +1/2, +1/2 \rangle &= \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +1/2, +1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +1/2, +1/2 \rangle}{+ \frac{\langle +3/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +1/2, +1/2 \rangle}} \\
 &= \left(\frac{\sqrt{3}}{2} a_x + \frac{7\sqrt{3}}{8} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(-i \frac{\sqrt{3}}{2} a_y - i \frac{7\sqrt{3}}{8} b_y \right) \frac{i}{2} \\
 &= \frac{\sqrt{3}}{4} \left[(a_x + a_y) + \frac{7}{4} (b_x + b_y) \right] \\
 &= \frac{\sqrt{3}}{4} (\delta_d^{\text{lh}} - \delta_d^{\text{hh}}) = \frac{\Delta_d}{2}
 \end{aligned} \tag{B.6}$$

* (2,8) 成分, (7,1) 成分, (8,2) 成分と同じ

・ (1,8) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +3/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | -3/2, +1/2 \rangle &= \langle +3/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | -3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +3/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | -3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +3/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | -3/2, +1/2 \rangle \\
 &= \left(0 + \frac{3}{4} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(0 + i \frac{3}{4} b_y \right) \frac{i}{2} \\
 &= \frac{3}{8} (b_x - b_y) = \frac{\delta_b^{\text{hh}}}{2}
 \end{aligned} \tag{B.7}$$

* (8,1) 成分と同じ

・ (2,7) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle -1/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +1/2, +1/2 \rangle &= \langle -1/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +1/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle -1/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +1/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle -1/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +1/2, +1/2 \rangle \\
 &= \left(a_x + \frac{5}{2} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(i a_y + i \frac{5}{2} b_y \right) \frac{i}{2} \\
 &= \frac{1}{2} \left[(a_x - a_y) + \frac{5}{2} (b_x - b_y) \right] = \frac{\delta_b^{\text{lh}}}{2}
 \end{aligned} \tag{B.8}$$

* (7,2) 成分と同じ

・ (3,5) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +3/2, +1/2 \rangle &= \langle +1/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +1/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +1/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &= \left(\frac{\sqrt{3}}{2} a_x + \frac{7\sqrt{3}}{8} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(-i \frac{\sqrt{3}}{2} a_y - i \frac{7\sqrt{3}}{8} b_y \right) \left(-\frac{i}{2} \right) \\
 &= \frac{\sqrt{3}}{4} \left[(a_x - a_y) + \frac{7}{4} (b_x - b_y) \right] \\
 &= \frac{\sqrt{3}}{4} (\delta_b^{\text{lh}} - \delta_b^{\text{hh}}) = \frac{\Delta_b}{2}
 \end{aligned} \tag{B.9}$$

* (4,6) 成分, (5,3) 成分, (6,4) 成分と同じ

・ (3,6) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | -1/2, +1/2 \rangle &= \langle +1/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | -1/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +1/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | -1/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle +1/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | -1/2, +1/2 \rangle \\
 &= \left(a_x + \frac{5}{2} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(i a_y + i \frac{5}{2} b_y \right) \left(-\frac{i}{2} \right) \\
 &= \frac{1}{2} \left[(a_x + a_y) + \frac{5}{2} (b_x + b_y) \right] = \frac{\delta_d^{\text{lh}}}{2} \tag{B.10}
 \end{aligned}$$

* (6,3) 成分と同じ

・ (4,5) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle -3/2, -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Ex}} | +3/2, +1/2 \rangle &= \langle -3/2, -1/2 | (a_x J_x + b_x J_x^3) S_x | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle -3/2, -1/2 | (a_y J_y + b_y J_y^3) S_y | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &\quad + \langle -3/2, -1/2 | (a_z J_z + b_z J_z^3) S_z | +3/2, +1/2 \rangle \\
 &= \left(0 + \frac{3}{4} b_x \right) \frac{1}{2} + \left(0 + i \frac{3}{4} b_y \right) \left(-\frac{i}{2} \right) \\
 &= \frac{3}{8} (b_x + b_y) = \frac{\delta_d^{\text{hh}}}{2} \tag{B.11}
 \end{aligned}$$

* (5,4) 成分と同じ

この他の成分は全て 0 になる．ここで、 δ_0^{hh} , δ_b^{hh} , δ_d^{hh} , δ_0^{lh} , δ_b^{lh} , δ_d^{lh} , Δ_b, Δ_d はそれぞれ以下のように定義した．

$$\delta_0^{\text{hh}} \equiv -\frac{3}{2} \left(a_z + \frac{9}{4} b_z \right) \tag{B.12}$$

$$\delta_b^{\text{hh}} \equiv \frac{3}{4} (b_x - b_y) \tag{B.13}$$

$$\delta_d^{\text{hh}} \equiv \frac{3}{4} (b_x + b_y) \tag{B.14}$$

$$\delta_0^{\text{lh}} \equiv -\frac{1}{2} \left(a_z + \frac{1}{4} b_z \right) \tag{B.15}$$

$$\delta_b^{\text{lh}} \equiv (a_x - a_y) + \frac{5}{2} (b_x - b_y) \tag{B.16}$$

$$\delta_d^{\text{lh}} \equiv (a_x + a_y) + \frac{5}{2} (b_x + b_y) \tag{B.17}$$

$$\Delta_b \equiv \frac{\sqrt{3}}{2} (\delta_b^{\text{lh}} - \delta_b^{\text{hh}}) \tag{B.18}$$

$$\Delta_d \equiv \frac{\sqrt{3}}{2} (\delta_d^{\text{lh}} - \delta_d^{\text{hh}}) \tag{B.19}$$

以上をまとめ、重い正孔と軽い正孔のエネルギー差を考慮すると、交換相互作用ハミルトニアンは次式のようになる．

基底： $\{|J_z, S_z\rangle = | +3/2, -1/2\rangle, | -1/2, -1/2\rangle, | +1/2, -1/2\rangle, | -3/2, -1/2\rangle,$

$$\begin{aligned}
 & | + 3/2, +1/2 \rangle, | - 1/2, +1/2 \rangle, | + 1/2, +1/2 \rangle, | - 3/2, +1/2 \rangle \} \\
 \mathcal{H}_{\text{Ex}} = \frac{1}{2} & \begin{pmatrix} \delta_0^{\text{hh}} & 0 & & \Delta_d & \delta_b^{\text{hh}} \\ 0 & -\delta_0^{\text{lh}} + \Delta_{\text{lh}} & & \delta_b^{\text{lh}} & \Delta_d \\ \hline & \delta_0^{\text{lh}} + \Delta_{\text{lh}} & 0 & \Delta_b & \delta_d^{\text{lh}} \\ & 0 & -\delta_0^{\text{hh}} & \delta_d^{\text{hh}} & \Delta_b \\ \hline & \Delta_b & \delta_d^{\text{hh}} & -\delta_0^{\text{hh}} & 0 \\ & \delta_d^{\text{lh}} & \Delta_b & 0 & \delta_0^{\text{lh}} + \Delta_{\text{lh}} \\ \hline \Delta_d & \delta_b^{\text{lh}} & & -\delta_0^{\text{lh}} + \Delta_{\text{lh}} & 0 \\ \delta_b^{\text{hh}} & \Delta_d & & 0 & \delta_0^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (\text{B.20})
 \end{aligned}$$

ハミルトニアンから、状態混合は bright exciton 間、dark exciton 間でのみ起こることがわかる。したがって交換相互作用ハミルトニアンは bright exciton 部分と dark exciton 部分に分けることができ、それぞれ以下ようになる。

基底 : $\{|J_z, S_z\rangle = | + 3/2, -1/2 \rangle, | - 1/2, -1/2 \rangle, | + 1/2, +1/2 \rangle, | - 3/2, +1/2 \rangle\}$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{bright}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0^{\text{hh}} & 0 & \Delta_d & \delta_b^{\text{hh}} \\ 0 & -\delta_0^{\text{lh}} + 2\Delta_{\text{lh}} & \delta_b^{\text{lh}} & \Delta_d \\ \Delta_d & \delta_b^{\text{lh}} & -\delta_0^{\text{lh}} + 2\Delta_{\text{lh}} & 0 \\ \delta_b^{\text{hh}} & \Delta_d & 0 & \delta_0^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (\text{B.21})$$

基底 : $\{|J_z, S_z\rangle = | + 3/2, +1/2 \rangle, | - 1/2, +1/2 \rangle, | + 1/2, -1/2 \rangle, | - 3/2, -1/2 \rangle\}$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{dark}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0^{\text{hh}} & 0 & \Delta_b & \delta_d^{\text{hh}} \\ 0 & \delta_0^{\text{lh}} + 2\Delta_{\text{lh}} & \delta_d^{\text{lh}} & \Delta_b \\ \Delta_b & \delta_d^{\text{lh}} & \delta_0^{\text{lh}} + 2\Delta_{\text{lh}} & 0 \\ \delta_d^{\text{hh}} & \Delta_b & 0 & -\delta_0^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (\text{B.22})$$

重い正孔のみを基底にとると、ハミルトニアンは次式のようになる。

基底 : $\{|J_z, S_z\rangle = | + 3/2, -1/2 \rangle, | - 3/2, +1/2 \rangle, | + 3/2, +1/2 \rangle, | - 3/2, -1/2 \rangle\}$

$$\mathcal{H}_{\text{Ex}}^{\text{hh}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0^{\text{hh}} & \delta_b^{\text{hh}} & & \\ \delta_b^{\text{hh}} & \delta_0^{\text{hh}} & & \\ & & -\delta_0^{\text{hh}} & \delta_d^{\text{hh}} \\ & & \delta_d^{\text{hh}} & -\delta_0^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (\text{B.23})$$

付 録 C ゼーマン相互作用

電子スピンに対する Zeeman ハミルトニアン $\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^e$ は次式のようにになる.

基底 : $\{|S_z\rangle = | + 1/2\rangle, | - 1/2\rangle\}$

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^e &= \mu_B \sum_{i=x,y,z} g_i^e S_i B_i \\ &= \frac{\mu_B B_x}{2} \begin{pmatrix} 0 & g_x^e \\ g_x^e & 0 \end{pmatrix} + \frac{i\mu_B B_y}{2} \begin{pmatrix} 0 & -g_y^e \\ g_y^e & 0 \end{pmatrix} + \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} g_z^e & 0 \\ 0 & -g_z^e \end{pmatrix}\end{aligned}\quad (\text{C.1})$$

一方, 正孔の角運動量に対する Zeeman ハミルトニアン $\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^h$ は次式のように書ける.

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^h = -2\mu_B \sum_{i=x,y,z} (\kappa_i J_i + q_i J_i^3) B_i \quad (\text{C.2})$$

$$= -\frac{1}{2}\mu_B \left[3q_x \sigma_x^h B_x + 3q_y \sigma_y^h B_y - \left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right) \sigma_z^h B_z \right] \quad (\text{C.3})$$

$$= -\frac{1}{2}\mu_B (g_x^h \sigma_x^h B_x + g_y^h \sigma_y^h B_y + g_z^h \sigma_z^h B_z) \quad (\text{C.4})$$

ここで $g_{x(y)}^{\text{hh}}, g_{x(y)}^{\text{lh}}, \Delta g_{x(y)}^h, g_z^{\text{hh}}, g_z^{\text{lh}}$ はそれぞれ以下のように定義する.

$$g_{x(y)}^{\text{hh}} \equiv 3q_{x(y)} \quad (\text{C.5})$$

$$g_{x(y)}^{\text{lh}} \equiv 4\kappa_{x(y)} + 10q_{x(y)} \quad (\text{C.6})$$

$$\Delta g_{x(y)}^h \equiv \frac{\sqrt{3}}{2} (g_{x(y)}^{\text{lh}} - g_{x(y)}^{\text{hh}}) \quad (\text{C.7})$$

$$g_z^{\text{hh}} \equiv -6 \left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right) \quad (\text{C.8})$$

$$g_z^{\text{lh}} \equiv -2 \left(\kappa_z + \frac{1}{2}q_z \right) \quad (\text{C.9})$$

各成分を計算すると以下のようにになる.

基底 : $\{|J_z\rangle = | + 3/2\rangle, | - 1/2\rangle, | + 1/2\rangle, | - 3/2\rangle\}$

・ (1,1) 成分

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^h | +3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.10})$$

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^h | +3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.11})$$

$$\begin{aligned}\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^h | +3/2 \rangle &= -2\mu_B B_z \left(\frac{3}{2}\kappa_z + \frac{27}{8}q_z \right) \\ &= \frac{\mu_B B_z}{2} \left(-6\kappa_z - \frac{27}{2}q_z \right) \equiv +\frac{g_z^{\text{hh}} \mu_B B_z}{2}\end{aligned}\quad (\text{C.12})$$

・ (2,2) 成分

$$\langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | -1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.13})$$

$$\langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | -1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.14})$$

$$\begin{aligned} \langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | -1/2 \rangle &= -2\mu_{\text{B}} B_z \left(-\frac{1}{2}\kappa_z - \frac{1}{8}q_z \right) \\ &= \frac{\mu_{\text{B}} B_z}{2} \left(2\kappa_z + \frac{1}{2}q_z \right) \equiv -\frac{g_z^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_z}{2} \end{aligned} \quad (\text{C.15})$$

・ (3,3) 成分

$$\langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | +1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.16})$$

$$\langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | +1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.17})$$

$$\begin{aligned} \langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | +1/2 \rangle &= -2\mu_{\text{B}} B_z \left(\frac{1}{2}\kappa_z + \frac{1}{8}q_z \right) \\ &= \frac{\mu_{\text{B}} B_z}{2} \left(-2\kappa_z - \frac{1}{2}q_z \right) \equiv +\frac{g_z^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_z}{2} \end{aligned} \quad (\text{C.18})$$

・ (4,4) 成分

$$\langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | -3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.19})$$

$$\langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | -3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.20})$$

$$\begin{aligned} \langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | -3/2 \rangle &= -2\mu_{\text{B}} B_z \left(-\frac{3}{2}\kappa_z - \frac{27}{8}q_z \right) \\ &= \frac{\mu_{\text{B}} B_z}{2} \left(6\kappa_z + \frac{27}{2}q_z \right) \equiv -\frac{g_z^{\text{hh}} \mu_{\text{B}} B_z}{2} \end{aligned} \quad (\text{C.21})$$

・ (1,4) 成分

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | -3/2 \rangle = -2\mu_{\text{B}} B_x \cdot \frac{3}{4}q_x = \frac{\mu_{\text{B}} B_x}{2} \cdot (-3q_x) \equiv -\frac{g_x^{\text{hh}} \mu_{\text{B}} B_x}{2} \quad (\text{C.22})$$

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | -3/2 \rangle = -2i\mu_{\text{B}} B_y \cdot \frac{3}{4}q_y = \frac{\mu_{\text{B}} B_y}{2} \cdot (-3q_y) \equiv -\frac{g_y^{\text{hh}} \mu_{\text{B}} B_y}{2} \quad (\text{C.23})$$

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | -3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.24})$$

・ (2,3) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | +1/2 \rangle &= -2\mu_{\text{B}} B_x \left(\kappa_x + \frac{5}{2} q_x \right) \\
 &= \frac{\mu_{\text{B}} B_x}{2} (-4\kappa_x - 10q_x) \equiv -\frac{g_x^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_x}{2} \quad (\text{C.25})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | +1/2 \rangle &= -2i\mu_{\text{B}} B_y \left(\kappa_y + \frac{5}{2} q_y \right) \\
 &= \frac{i\mu_{\text{B}} B_y}{2} (-4\kappa_y - 10q_y) \equiv -\frac{ig_y^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_y}{2} \quad (\text{C.26})
 \end{aligned}$$

$$\langle -1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | +1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.27})$$

・ (3,2) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | -1/2 \rangle &= -2\mu_{\text{B}} B_x \left(\kappa_x + \frac{5}{2} q_x \right) \\
 &= \frac{\mu_{\text{B}} B_x}{2} (-4\kappa_x - 10q_x) \equiv -\frac{g_x^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_x}{2} \quad (\text{C.28})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | -1/2 \rangle &= -2i\mu_{\text{B}} B_y \left(-\kappa_y - \frac{5}{2} q_y \right) \\
 &= \frac{i\mu_{\text{B}} B_y}{2} (4\kappa_y + 10q_y) \equiv \frac{ig_y^{\text{lh}} \mu_{\text{B}} B_y}{2} \quad (\text{C.29})
 \end{aligned}$$

$$\langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | -1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.30})$$

・ (4,1) 成分

$$\langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^{\text{h}} | +3/2 \rangle = -2\mu_{\text{B}} B_x \cdot \frac{3}{4} q_x = \frac{\mu_{\text{B}} B_x}{2} \cdot (-3q_x) \equiv -\frac{g_x^{\text{hh}} \mu_{\text{B}} B_x}{2} \quad (\text{C.31})$$

$$\langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^{\text{h}} | +3/2 \rangle = -2i\mu_{\text{B}} B_y \cdot \left(-\frac{3}{4} q_y \right) = \frac{\mu_{\text{B}} B_y}{2} \cdot 3q_y \equiv \frac{g_y^{\text{hh}} \mu_{\text{B}} B_y}{2} \quad (\text{C.32})$$

$$\langle -3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^{\text{h}} | +3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.33})$$

・ (1,3) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^h | +1/2 \rangle &= -2\mu_B B_x \left(\frac{\sqrt{3}}{2} \kappa_x + \frac{7\sqrt{3}}{8} q_x \right) \\
 &= \frac{\mu_B B_x}{2} \left(-2\sqrt{3} \kappa_x - \frac{7\sqrt{3}}{2} q_x \right) \equiv -\frac{\Delta g_x^h \mu_B B_x}{2} \quad (\text{C.34})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^h | +1/2 \rangle &= -2i\mu_B B_y \left(-\frac{\sqrt{3}}{2} \kappa_y - \frac{7\sqrt{3}}{8} q_y \right) \\
 &= \frac{i\mu_B B_y}{2} \left(2\sqrt{3} \kappa_y + \frac{7\sqrt{3}}{2} q_y \right) \equiv \frac{i\Delta g_y^h \mu_B B_y}{2} \quad (\text{C.35})
 \end{aligned}$$

$$\langle +3/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^h | +1/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.36})$$

* (2,4) 成分と同じ

・ (3,1) 成分

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},x}^h | +3/2 \rangle &= -2\mu_B B_x \left(\frac{\sqrt{3}}{2} \kappa_x + \frac{7\sqrt{3}}{8} q_x \right) \\
 &= \frac{\mu_B B_x}{2} \left(-2\sqrt{3} \kappa_x - \frac{7\sqrt{3}}{2} q_x \right) \equiv -\frac{\Delta g_x^h \mu_B B_x}{2} \quad (\text{C.37})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},y}^h | +3/2 \rangle &= -2i\mu_B B_y \left(\frac{\sqrt{3}}{2} \kappa_y + \frac{7\sqrt{3}}{8} q_y \right) \\
 &= \frac{i\mu_B B_y}{2} \left(-2\sqrt{3} \kappa_y - \frac{7\sqrt{3}}{2} q_y \right) \equiv -\frac{i\Delta g_y^h \mu_B B_y}{2} \quad (\text{C.38})
 \end{aligned}$$

$$\langle +1/2 | \mathcal{H}_{\text{Zeeman},z}^h | +3/2 \rangle = 0 \quad (\text{C.39})$$

* (4,2) 成分と同じ

以上をまとめると、正孔の角運動量に対する Zeeman ハミルトニアンは次式のようにになる。

基底： $\{|J_z\rangle = | +3/2\rangle, | -1/2\rangle, | +1/2\rangle, | -3/2\rangle\}$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^h &= \frac{\mu_B B_x}{2} \begin{pmatrix} & & -\Delta g_x^h & -g_x^{\text{hh}} \\ & & -g_x^{\text{lh}} & -\Delta g_x^h \\ -\Delta g_x^h & -g_x^{\text{lh}} & & \\ -g_x^{\text{hh}} & -\Delta g_x^h & & \end{pmatrix} \\
 &+ \frac{i\mu_B B_y}{2} \begin{pmatrix} & & \Delta g_y^h & -g_y^{\text{hh}} \\ & & -g_y^{\text{lh}} & \Delta g_y^h \\ -\Delta g_y^h & g_y^{\text{lh}} & & \\ g_y^{\text{hh}} & -\Delta g_y^h & & \end{pmatrix} \\
 &+ \frac{\mu_B B_z}{2} \begin{pmatrix} & & +g_z^{\text{hh}} & \\ & & -g_z^{\text{lh}} & \\ & & +g_z^{\text{lh}} & \\ & & & -g_z^{\text{hh}} \end{pmatrix} \quad (\text{C.40})
 \end{aligned}$$

したがって、以下の励起子状態を基底にとると Zeeman ハミルトニアンは次式のようになる。

基底： $\{|J_z, S_z\rangle = |3/2, -1/2\rangle, |-1/2, -1/2\rangle, |1/2, -1/2\rangle, |-3/2, -1/2\rangle,$
 $|3/2, +1/2\rangle, |-1/2, +1/2\rangle, |1/2, +1/2\rangle, |-3/2, +1/2\rangle\}$

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_{\text{Zeeman}} = & \frac{\mu_B B_x}{2} \left(\begin{array}{c|cc|cc|cc} & -\Delta g_x^h & -g_x^{hh} & g_x^e & 0 & & \\ & -g_x^{lh} & -\Delta g_x^h & 0 & g_x^e & & \\ \hline -\Delta g_x^h & -g_x^{lh} & & & & g_x^e & 0 \\ -g_x^{hh} & -\Delta g_x^h & & & & 0 & g_x^e \\ \hline g_x^e & 0 & & & & -\Delta g_x^h & -g_x^{hh} \\ 0 & g_x^e & & & & -g_x^{lh} & -\Delta g_x^h \\ \hline & g_x^e & 0 & -\Delta g_x^h & -g_x^{lh} & & \\ & 0 & g_x^e & -g_x^{hh} & -\Delta g_x^h & & \end{array} \right) \begin{array}{l} |3/2, -1/2\rangle \\ |-1/2, -1/2\rangle \\ |1/2, -1/2\rangle \\ |-3/2, -1/2\rangle \\ |3/2, +1/2\rangle \\ |-1/2, +1/2\rangle \\ |1/2, +1/2\rangle \\ |-3/2, +1/2\rangle \end{array} \\
 & + \frac{i\mu_B B_y}{2} \left(\begin{array}{c|cc|cc|cc} & \Delta g_y^h & -g_y^{hh} & g_y^e & 0 & & \\ & -g_y^{lh} & \Delta g_y^h & 0 & g_y^e & & \\ \hline -\Delta g_y^h & g_y^{lh} & & & & g_y^e & 0 \\ g_y^{hh} & -\Delta g_y^h & & & & 0 & g_y^e \\ \hline -g_y^e & 0 & & & & \Delta g_y^h & -g_y^{hh} \\ 0 & -g_y^e & & & & -g_y^{lh} & \Delta g_y^h \\ \hline & -g_y^e & 0 & -\Delta g_y^h & g_y^{lh} & & \\ & 0 & -g_y^e & g_y^{hh} & -\Delta g_y^h & & \end{array} \right) \\
 & + \frac{\mu_B B_z}{2} \left(\begin{array}{cccccccc} +g_z^{hh} - g_z^e & & & & & & & \\ & -g_z^{lh} - g_z^e & & & & & & \\ & & +g_z^{lh} - g_z^e & & & & & \\ & & & -g_z^{hh} - g_z^e & & & & \\ & & & & +g_z^{hh} + g_z^e & & & \\ & & & & & -g_z^{lh} + g_z^e & & \\ & & & & & & +g_z^{lh} + g_z^e & \\ & & & & & & & -g_z^{hh} + g_z^e \end{array} \right) \quad (\text{C.41})
 \end{aligned}$$

付 録 D 核四極子相互作用とゼーマン効果

D.1 核四極子相互作用ハミルトニアン

古典的な電荷密度分布 $\rho(\mathbf{r})$ を持つ核と、核の外にソースを持つ静電ポテンシャル $V(\mathbf{r})$ の相互作用エネルギー E は、電磁気学から以下の式で与えられる：

$$E = \int \rho(\mathbf{r}) V(\mathbf{r}) d\mathbf{r} . \quad (\text{D.1})$$

上の積分は、核の全体積にわたって行われる。また核の体積が十分に小さく、核内での静電ポテンシャルの空間変化が無視できるとすると、核の中心 ($r = 0$) の近傍で $V(\mathbf{r})$ を展開することができる：

$$V(\mathbf{r}) = V(0) + \sum_i x_i \left. \frac{\partial V}{\partial x_i} \right|_{r=0} + \frac{1}{2!} \sum_{i,j} x_i x_j \left. \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{r=0} + \cdots . \quad (\text{D.2})$$

ここで、 x_i ($i = 1, 2, 3$) は x, y, z を表す。(D.1), (D.2) 式を用いると、静電エネルギーは

$$\begin{aligned} E &= V(0) \int \rho d\mathbf{r} + \sum_i \left. \frac{\partial V}{\partial x_i} \right|_{r=0} \int \rho x_i d\mathbf{r} + \frac{1}{2!} \sum_{i,j} \left. \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{r=0} \int x_i x_j \rho d\mathbf{r} + \cdots \\ &\cong V(0) \int \rho d\mathbf{r} + \sum_i V_i \int \rho x_i d\mathbf{r} + \frac{1}{2!} \sum_{i,j} V_{ij} \int x_i x_j \rho d\mathbf{r} \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

と書くことができる。但し、静電ポテンシャルの一次、二次微分 (つまり電場と電場勾配) をそれぞれ

$$V_i \equiv \left. \frac{\partial V}{\partial x_i} \right|_{r=0}, \quad V_{ij} \equiv \left. \frac{\partial^2 V}{\partial x_i \partial x_j} \right|_{r=0} \quad (\text{D.4})$$

と定義した。核の重心をエネルギー原点に選ぶと、式 D.3 の第 1 項は核を点電荷としたときの静電エネルギー、第 2 項は核の電気双極子と電場の相互作用エネルギー、第 3 項が電気四極子相互作用に対応する。核の場合、重心と電荷の中心が一致¹するため、電気双極子の効果を記述する第 2 項はゼロとなる。

四極子相互作用を説明するために、次の物理量 Q_{ij} を導入する：

$$Q_{ij} = \int (3x_i x_j - \delta_{ij} r^2) \rho d\mathbf{r} . \quad (\text{D.5})$$

この式を変形すると、次の関係が得られる：

$$\int x_i x_j \rho d\mathbf{r} = \frac{1}{3} \left(Q_{ij} + \delta_{ij} \int r^2 \rho d\mathbf{r} \right) . \quad (\text{D.6})$$

¹このことは核が一定のパリティを持つ場合に正しい。核のパリティに関しては既に実験的に確認されている

Q_{ij} を導入すると, (D.6) 式の左辺を, 核の方向に依存しない形に置き換えることができる. 以上から, 電気四極子効果によるエネルギー E_Q は次のように書ける:

$$\begin{aligned} E_Q &= \frac{1}{2} \sum_{i,j} V_{ij} \int x_i x_j \rho dr \\ &= \frac{1}{6} \sum_{i,j} \left(V_{ij} Q_{ij} + V_{ij} \delta_{ij} \int r^2 \rho dr \right) \Rightarrow \frac{1}{6} \sum_{i,j} V_{ij} Q_{ij} . \end{aligned} \quad (D.7)$$

上の式変形で, ラプラス方程式 ($\sum_i V_{ii} = 0$) を適用した. この項がゼロでない場合においても, 核の方向に依存しない性質が保持される点に注意しよう.²

ここまでは連続体として近似できる古典的な電荷密度分布 $\rho(\mathbf{r})$ を用いて議論を進めてきた. これを量子力学的に扱うには, 核の電荷分布が離散的な電荷で構成されることを表す以下の演算子に書き換えればよい:

$$\rho(\mathbf{r}) \rightarrow \hat{\rho}(\mathbf{r}) \equiv \sum_k q_k \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_k) . \quad (D.8)$$

ここで q_k は k 番目の核子の電荷を表す. 中性子は電荷を持たないため, この和は N 個の陽子 (電荷量: $+e$) について取ればよい. 上の演算子を用いると, 四極子演算子 $\hat{Q}_{ij}$ は次のように書ける:

$$\begin{aligned} \hat{Q}_{ij} &= \int (3x_i x_j - \delta_{ij} r^2) \hat{\rho}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \\ &= e \sum_{k=1}^N \int (3x_i x_j - \delta_{ij} r^2) \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_k) d\mathbf{r} \\ &= e \sum_{k=1}^N \int (3x_{ik} x_{jk} - \delta_{ij} r_k^2) d\mathbf{r} . \end{aligned} \quad (D.9)$$

(但し, $r_k^2 = \sum_i x_i^2$). 従って, 四極子相互作用ハミルトニアンは

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{1}{6} \sum_{i,j} V_{ij} \hat{Q}_{ij} \quad (D.10)$$

と書くことができる. (D.9), (D.10) 式は, 全ての核子についての和を含む. そのため, 核を多体系として扱うことを示唆しており, このままでは扱いにくい.

NMR の物理を始め通常, 我々が注目するのは核の基底状態のみ (もしくは十分に寿命が長ければ, 第 1 励起状態まで) である. 核スピン系の固有状態を記述する物理量は, 全角運動量 I と, 量子化軸方向の射影成分 m ($m = +I, I-1, \dots, -I$) が主となる. 場合に依じて, 他のパラメータの組 η が加わることがあるが, これらを 1 セットとして状態 $|Im\eta\rangle$ に対する四極子演算子 $\hat{Q}_{ij}$ の行列要素を考える. ここでは, あるエネルギーにおける核の空間的な再配向による影響を考えれば良いので, I と η は遷移の前後で不変で, m だけが変化する行列要素 $\langle Im\eta | \hat{Q}_{ij} | Im'\eta \rangle$ を考えればよい.

² V のソースが核の内部にある場合は, 以下のポアソン方程式を解かなければならない:

$$\sum_i V_{ii} = -4\pi e |\psi(0)|^2 .$$

ここで $|\psi(0)|^2$ は核の位置での電子の確率密度である. (D.7) 式の方向に依存しない項 ΔE は

$$\Delta E = \frac{1}{6} \sum_i V_{ii} \int r^2 \rho dr = -\frac{4\pi e}{6} |\psi(0)|^2 \int r^2 \rho dr .$$

$s-p$ 状態間の電子遷移において, ΔE は一般に同位体 (isotope: 同じ電荷を持つが, 電荷分布が異なる) や異性体 (isomer: 同じ電荷と質量数を持つが, 核の状態が異なる) 間で異なる影響を持つ.

ウィグナー・エッカルトの定理から，ここで注目する系の行列要素は次のような関係を満足する：

$$\langle Im\eta | \hat{Q}_{ij} | Im'\eta \rangle = C \langle Im | \frac{3}{2} (\hat{I}_i \hat{I}_j + \hat{I}_j \hat{I}_i) - \delta_{ij} \hat{I}^2 | Im' \rangle . \quad (\text{D.11})$$

ここで， C は **Clebch-Gordan (CG) 係数** と呼ばれる定数であり，各量子数の組 $|I\eta\rangle$ 毎に異なる。補足 D.1.1 に示す計算を行うと，CG 係数は

$$C = \frac{eQ}{I(2I-1)} \quad (\text{D.12})$$

と書くことができる。ここで Q は四極子モーメントである。従って，実効的な四極子相互作用ハミルトニアンは次のように与えられる [この式が 5.1 節での式 5.1 である]：

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \sum_{i,j} V_{ij} \left[\frac{3}{2} (\hat{I}_i \hat{I}_j + \hat{I}_j \hat{I}_i) - \delta_{ij} \hat{I}^2 \right] . \quad (\text{D.13})$$

四極子モーメントの古典的な理解

9つの要素を持つ演算子 $\hat{Q}_{ij}$ が一つの量 eQ で記述できる点は興味深い。その理由は次の通り：核がある決まった角運動量の状態にあることは，古典的には電荷が円筒対称性を有することと等価である。対称軸を z とすると，再配向に係るエネルギー変化は， z 軸と沿った方向と垂直な方向の電荷分布の違いのみに依存する：

$$\begin{aligned} \int (z^2 - x^2) \rho d\tau &= \frac{1}{2} \int (2z^2 - x^2 - y^2) \rho dr \\ &= \frac{1}{2} \int (3z^2 - r^2) \rho dr . \end{aligned}$$

最後の積分が， eQ に対する古典的な表式である。

有効四極子相互作用 (D.13) 式は，任意のデカルト座標 $i = x, y, z$ に対して適用できるが， (x, y, z) に関する) 対称テンソル V_{ij} について $i \neq j$ で $V_{ij} = 0$ となるように一組の主軸 (x, y, z) を定めると，テンソル結合は簡単になる。このように主軸を選ぶと，

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{eQ}{6I(2I-1)} \left[V_{xx} (3\hat{I}_x^2 - \hat{I}^2) + V_{yy} (3\hat{I}_y^2 - \hat{I}^2) + V_{zz} (3\hat{I}_z^2 - \hat{I}^2) \right] \quad (\text{D.14})$$

と書くことができる。更にラプラス方程式 $\sum_i V_{ii} = 0$ を用いると，式 (D.14) は

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{eQ}{4I(2I-1)} \left[V_{zz} (3\hat{I}_z^2 - \hat{I}^2) + (V_{xx} - V_{yy}) (\hat{I}_x^2 - \hat{I}_y^2) \right] \quad (\text{D.15})$$

と書き換えることができる。(D.15) 式から，ポテンシャルの2次導関数 (V_{zz} および $V_{xx} - V_{yy}$) を特徴づける二つのパラメータが必要なことが分かる。電場勾配と非対称パラメータと呼ばれる二つの量 q, η を次のように定義する：

$$eq = V_{zz} \quad , \quad \eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}} \quad (0 \leq |\eta| \leq 1). \quad (\text{D.16})$$

すると式 D.15 は以下のように変形できる。

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{NQI}} &= \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} \left[(3\hat{I}_z^2 - \hat{I}^2) + \eta (\hat{I}_x^2 - \hat{I}_y^2) \right] \\ &= \frac{e^2 q Q}{4I(2I-1)} \left[3\hat{I}_z^2 - I(I+1) + \frac{1}{2}\eta (\hat{I}_+^2 + \hat{I}_-^2) \right] \end{aligned} \quad (\text{D.17})$$

軸対称は良い近似である場合が多いが、この場合には、 $\eta = 0$ となるように z 方向を選べばよい。

任意の (すなわち、非主軸) 座標軸に対しては、昇降演算子を用いて (D.13) 式を書く と便利である：

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{eQ}{4I(2I-1)} & \left[V_0 \left(3\hat{I}_z^2 - \hat{I}^2 \right) + V_{+1} \left(\hat{I}^- \hat{I}_z + \hat{I}_z \hat{I}^- \right) + V_{-1} \left(\hat{I}^+ \hat{I}_z + \hat{I}_z \hat{I}^+ \right) \right. \\ & \left. + V_{+2} (\hat{I}^-)^2 + V_{-2} (\hat{I}^+)^2 \right] . \end{aligned} \quad (\text{D.18})$$

但し、係数は以下の通り：

$$V_0 = V_{zz} \quad , \quad V_{\pm 1} = V_{zx} \pm V_{zy} \quad , \quad V_{\pm 2} = \frac{1}{2} (V_{xx} - V_{yy}) \pm iV_{xy} . \quad (\text{D.19})$$

(D.18) 式は主軸が空間に固定されず時間変化する場合、特に有用な形で四極子結合を記述する。^a

^a絶縁体結晶の場合、四極子結合が室温において非常に重要な核スピン緩和機構となることが多い。

D.1.1 (補足) CG 係数と既約テンソル演算子, Wigner-Eckart の定理

Wigner-Eckart の定理は、量子力学において最も有用な定理の一つである。このことを述べるために、**Clebsh-Gordan** 係数 $C(L'J'J; MM_J' M_J)$ と既約テンソル演算子 T_{LM} を導入しなければならない。ここではまず、Wigner-Eckart の定理について述べ、CG 係数を定義する。次に既約テンソル演算子について議論した後、最後に Wigner-Eckart の定理を導出する。

全角運動量 (J, J') に加え、角運動量の z 成分 $(M_J, M_{J'})$ 、その他の量子数 (η, η') の組で記述される波動関数を考え、これらを基底関数として演算子 T_{LM} の行列要素を計算する。Wigner-Eckart の定理は、これらの行列要素が $\langle J\eta || T_L || J'\eta' \rangle$ を通して適切な CG 係数と関係付けられることを述べている：

$$\langle JM_J\eta || T_{LM} || J'M_{J'}\eta' \rangle = C(J' L J; M_{J'} M M_J) \langle J\eta || T_L || J'\eta' \rangle . \quad (\text{D.20})$$

$\langle J\eta || T_L || J'\eta' \rangle$ は (J, J', η, η', L) に依存し、 $(M_J, M_{J'}, M)$ には依らない量である。

ここで、Clebsh-Gordan (CG) 係数を定義しよう。全角運動量 J とその z 成分 M_J によって記述される系 Ψ_{JM_J} が、2つの系 ψ_{LM} (全角運動量 L とその z 成分 M) と $\phi_{J'M_{J'}}$ (全角運動量 J' とその z 成分 $M_{J'}$) から構成されるとしよう。 ψ_{LM} と $\phi_{J'M_{J'}}$ の積は完全系をなすので、 Ψ_{JM_J} は $\psi_{LM}\phi_{J'M_{J'}}$ の線形和で記述される：

$$\Psi_{JM_J} = \sum_{J'M_{J'}; LM} C(J' L J; M_{J'} M M_J) \phi_{J'M_{J'}} \psi_{LM} . \quad (\text{D.21})$$

ここで $C(J' L J; M_{J'} M M_J)$ が CG 係数である。CG 係数は原子物理の分野において、角運動量の合成を議論する際によく現れ、幾つかの特性が良く知られている。例えば

- 1) $C(J' L J; M_{J'} M M_J) = 0$ if $M_J \neq M + M_{J'}$
- 2) $C(J' L J; M_{J'} M M_J) = 0$ if $J = J' + L, J' + L - 1, \dots, |J' - L|$ (“the triangle rule”).

さて、次に既約テンソル演算子 T_{LM} を定義しよう。角運動量演算子の成分が J_x, J_y, J_z で与えられる系を考え、昇降演算子を $J^\pm \equiv J_x \pm iJ_y$ で定義する。 $2L+1$ 個の演算子 (L は整数) の一群 T_{LM} を定義し、それを整数 M ($M = L, L-1, \dots, -L$) で番号付けする。この T_{LM} が次の交換関係に従う場合、これを既約テンソル演算子と名付ける：

$$\begin{aligned} [J^\pm, T_{LM}] &= \sqrt{L(L+1) - M(M \pm 1)} T_{LM \pm 1} \\ [J_z, T_{LM}] &= M T_{LM} . \end{aligned} \quad (\text{D.22})$$

$L = 1$ の組の例としては、次のものが挙げられる：

$$T_{11} = \frac{-1}{\sqrt{2}}J^+ \quad , \quad T_{10} = J_z \quad , \quad T_{1-1} = \frac{1}{\sqrt{2}}J^- . \quad (\text{D.23})$$

同様の関係は、全角運動量演算子 $\mathbf{J}$ だけではなく、スピンおよび軌道角運動量演算子 $\mathbf{s}, \mathbf{l}$ についても作ることができる。

T_{LM} の行列要素を計算しよう。角運動量の行列要素は、その成分間の交換法則から求めることができるが、 T_{LM} の行列要素も同様に、(D.22) 式を用いて計算することができる。一組の交換可能な演算子 J^2, J_z を考え、その固有値を $J(J+1), M_J, \eta$ とする。ここで必要な他の全ての量子数を η で表した。

計算したいのは

$$\langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle$$

である。(D.22) 式 2 番目の交換関係を用いると、

$$\begin{aligned} \langle JM_J\eta | [J_z, T_{LM}] | J'M_{J'}\eta' \rangle &= \langle JM_J\eta | J_z T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle - \langle JM_J\eta | T_{LM} J_z | J'M_{J'}\eta' \rangle \\ &= (M_J - M_{J'}) \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle . \end{aligned} \quad (\text{D.24})$$

但し、最後の段階では、エルミート演算子 J_z を、第 1 項では左側の関数に、第 2 項では右側の関数に作用させて導いた。従って、交換関係から

$$(M_J - M_{J'}) \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle = M \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle . \quad (\text{D.25})$$

この関係式が常に成り立つには、 $M_J - M_{J'} \neq M$ において

$$\langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle = 0 \quad (\text{D.26})$$

が必要である。同様にして、(D.22) 式 1 番目の交換関係から、行列要素に関する別の条件が求められる：

$$\langle JM_J\eta | [J^\pm, T_{LM}] | J'M_{J'}\eta' \rangle = \sqrt{L(L+1) - M(M \pm 1)} \langle JM_J\eta | T_{LM \pm 1} | J'M_{J'}\eta' \rangle . \quad (\text{D.27})$$

一方、

$$\begin{aligned} \langle JM_J\eta | J^\pm T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle &= \langle JM_J\eta | J^\pm | JM_J \mp 1\eta \rangle \langle JM_J \mp 1\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle \\ &= \sqrt{J(J+1) - (M_J \mp 1)M_J} \langle JM_J \mp 1\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle , \\ \langle JM_J\eta | T_{LM} J^\pm | J'M_{J'}\eta' \rangle &= \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'} \pm 1\eta' \rangle \langle J'M_{J'} \pm 1\eta' | J^\pm | J'M_{J'}\eta' \rangle \\ &= \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'} \pm 1\eta' \rangle \sqrt{J'(J'+1) - (M_{J'} \pm 1)M_{J'}} \end{aligned} \quad (\text{D.28})$$

より、(D.27), (D.28) 式を組み合わせると、次の漸化式が得られる：

$$\begin{aligned} &\sqrt{J(J+1) - (M_J \mp 1)M_J} \langle JM_J \mp 1\eta | T_{LM} | J'M_{J'}\eta' \rangle \\ &- \langle JM_J\eta | T_{LM} | J'M_{J'} \pm 1\eta' \rangle \sqrt{J'(J'+1) - M_{J'}(M_{J'} \pm 1)} \\ &= \sqrt{L(L+1) - M(M \pm 1)} \langle JM_J\eta | T_{LM \pm 1} | J'M_{J'}\eta' \rangle . \end{aligned} \quad (\text{D.29})$$

0 でない行列要素に対してのみ (D.26) 式の関係を用いることができるということに注意しなければならない。しかし、(D.29) 式中の行列要素が一つでも (D.26) 式の関係を満たすならば、残りの行列要素もすべて満足する。(D.26) 式は T_{LM} に関する行列要素の関係、また (D.29) 式は T_{LM} に関する行列要素と $T_{LM'}$ に関するそれとの間の関係を示す漸化式である。これらの式を用いると、与えられた J, J', η, η' に対する T_{LM} 行列要素が全て任意の一つの行列要素を用いて得られる。

漸化式の意味を更に深く考えるには、クレブシュ・ゴールドン係数に立ち戻らなければならない。そのために、ウィグナー・エッカルトの定理の証明を概説しよう。演算子

$$J_z \equiv L_z + J'_z \quad (\text{D.30})$$

を考える。但し、各演算子は次の固有値方程式を満たす：

$$\begin{aligned} J_z \Psi_{JM_J} &= M_J \Psi_{JM_J}, \\ L_z \psi_{LM} &= M \psi_{LM}, \\ J'_z \phi_{J'M_{J'}} &= M_{J'} \phi_{J'M_{J'}}. \end{aligned} \quad (\text{D.31})$$

固有値 $M, M_J, M_{J'}$ に関する選択則を導く。まず、(D.21) 式を用いて演算子 J_z の行列要素を考える：

$$\begin{aligned} \langle \psi_{LM} \phi_{J'M_{J'}} | J_z \Psi_{JM_J} \rangle &= M_J \langle \psi_{LM} \phi_{J'M_{J'}} | \Psi_{JM_J} \rangle \\ &= M_J C(J' L J; M_{J'} M M_J). \end{aligned} \quad (\text{D.32})$$

但し、 J_z を右側に作用させた。しかし、 J_z を $L_z + J'_z$ と書き、左側の関数に作用させると、

$$\langle \psi_{LM} \phi_{J'M_{J'}} | J_z \Psi_{JM_J} \rangle = (M + M_{J'}) C(J' L J; M_{J'} M M_J). \quad (\text{D.33})$$

(D.32), (D.33) 式を等しいとおけば、

$$(M + M_{J'} - M_J) C(J' L J; M_{J'} M M_J) = 0. \quad (\text{D.34})$$

この式は

$$\langle J M_J \eta | T_{LM} | J' M_{J'} \eta' \rangle$$

を

$$C(J' L J; M_{J'} M M_J)$$

で置き換えれば、(D.25) 式と全く同じになる。昇降演算子の行列要素を計算するのと同様な方法を用いて、(D.29) 式と同様な式を求めよう。実際、 $C(J' L J; M_{J'} M M_J)$ は $\langle J M_J \eta | T_{LM} | J' M_{J'} \eta' \rangle$ と同じ漸化式に従っている。その結果、 C と T_{LM} の行列要素とは関係があると言える。この関係がウィグナー・エッカルトの定理と呼ばれる：

$$\langle J M_J \eta | T_{LM} | J' M_{J'} \eta' \rangle = C(J' L J; M_{J'} M M_J) \langle J \eta || T_L || J' \eta' \rangle \quad (\text{D.35})$$

但し、 $\langle J \eta || T_L || J' \eta' \rangle$ はある J, L, J', η, η' によって定められる量であり、 $M_J, M_{J'}, M$ に無関係な量であることを表している。

式(D.35)を見て分かるように、ある与えられた L, M に対して、それらの全てが T_{LM} である多くの関数が存在する。クレブシュ・ゴールドン係数は、ある与えられた L, M に対する全ての T_{LM} に関して同一である。しかし定数 $\langle J \eta || T_L || J' \eta' \rangle$ は T_{LM} を作るのに用いられた変数に依存するのである。

この点をもっとはっきりさせるために、スピン $\mathbf{s}$ 、軌道角運動量 $\mathbf{l}$ を持つ粒子が位置 $\mathbf{r}$ にあると考えよう。全角運動量 $\mathbf{J}$ は

$$\mathbf{J} = \mathbf{s} + \mathbf{l} \quad (\text{D.36})$$

によって与えられる。但し、

$$\begin{aligned} l_x &= -i \left(y \frac{\partial}{\partial z} - z \frac{\partial}{\partial y} \right) \\ l_y &= -i \left(z \frac{\partial}{\partial x} - x \frac{\partial}{\partial z} \right) \\ l_z &= -i \left(x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right). \end{aligned} \quad (\text{D.37})$$

表 D.1: 角運動量 $\mathbf{J}$ の関数.

	$T_{2L}(\mathbf{J})$	$T_{2L}(\mathbf{r})$
T_{22}	$(J^+)^2$	$(x + iy)^2$
T_{21}	$-(J_z J^+ + J^+ J_z)$	$-2z(x + iy)$
T_{20}	$\sqrt{\frac{2}{3}}(3J_z^2 - J^2)$	$\sqrt{\frac{2}{3}}(3z^2 - r^2)$
T_{2-1}	$J_z J^- + J^- J_z$	$2z(x - iy)$
T_{2-2}	$(J^-)^2$	$(x - iy)^2$

T_{2M} の二つの例を挙げる．一つは角運動量 $\mathbf{J}$ の関数であり，他の一つは座標 $\mathbf{r}$ の関数である．表 D.1.1 に挙げた関数は $T_{2L}(\mathbf{J}), T_{2L}(\mathbf{r})$ と呼ばれ，実際に J^+, J^-, J_z に関する (D.22) 式の交換則に従っている．

T_{2M} が $\mathbf{r}$ の成分 x, y, z から作られていることを簡単に記号 $T_{2M}(\mathbf{r})$ で表した． $T_{2M}(\mathbf{J})$ と $T_{2M}(\mathbf{r})$ との間には，明らかな類似点がある： J^+ を $(x - iy)$ ， J^- を $(x + iy)$ ， J_z を z で置き換えると， $T_{2M}(\mathbf{J})$ が $T_{2M}(\mathbf{r})$ に変換される．この類似性は， $\mathbf{J}$ および $\mathbf{r}$ の成分と， J_x, J_y, J_z との交換関係が類似性を持つということから来る：

$$\begin{aligned} [J_x, y] &= iz \\ [J_x, J_y] &= iJ_z \quad \dots \end{aligned} \quad (\text{D.38})$$

(D.38) 式は (D.36)，(D.37) 式によって証明できる． J_x, J_y, J_z の関数 $G(J_x, J_y, J_z)$ に J_x などの代わりに直接 x などを代入して， x, y, z の任意の関数 $G(x, y, z)$ を作ると，この関数は J_x, J_y, J_z についての交換則と同じ交換則に従うだろう．従って，もし J_x, J_y, J_z の関数が T_{LM} であることが分かれば， J_x, J_y, J_z をそれぞれ x, y, z で置き換えて作られた関数についても，同じことが言える．ただ，ある演算子の成分は，演算子それ自身とは交換可能でないということに注意しなければならない．従って，例えば $T_{21}(\mathbf{J})$ は $2J^+ J_z$ ではなくて， $J^+ J_z + J_z J^+$ と対称の形に書いておく．このような直接の置き換えは，(D.38) 式のような交換関係に従う限りは，他の変数についてもうまくいく．

(D.35) 式に立ち戻り，二つの T_{LM} を考えよう．その一つは変数 q の関数であり，他は変数 p の関数である．この場合には，(D.35) 式から

$$\langle JM_J \eta | T_{LM}(q) | J' M_{J'} \eta' \rangle = \langle JM_J \eta | T_{LM}(p) | J' M_{J'} \eta' \rangle \frac{\langle J \eta || T_L(q) || J' \eta' \rangle}{\langle J \eta || T_L(p) || J' \eta' \rangle} \quad (\text{D.39})$$

係数 $\langle J \eta || T_L(q) || J' \eta' \rangle / \langle J \eta || T_L(p) || J' \eta' \rangle$ は一定（すなわち， $M, M_J, M_{J'}$ に無関係）であるから，定数と行列要素 $\langle JM_J \eta | T_{LM}(p) | J' M_{J'} \eta' \rangle$ とが分かれば， J, J', η, η' を決めることにより， $T_{LM}(q)$ の行列要素が全て計算できる．

一言，注意を付け加えておこう．ある演算子 p に対して，たとえ行列要素 $\langle JM_J \eta | T_{LM}(q) | J' M_{J'} \eta' \rangle$ が 0 でない場合でも，行列要素 $\langle JM_J \eta | T_{LM}(p) | J' M_{J'} \eta' \rangle$ は 0 になるので，(D.39) 式は意味がなくなるかもしれない．この例は， $T_{LM}(p)$ が $\mathbf{J}$ の成分から作られている場合である．この場合には， $\mathbf{J}' \neq \mathbf{J}$ の全ての行列要素は 0 になる．もちろん， $\langle J' || T_2(\mathbf{J}) || J' \rangle$ もまた 0 になるので，(D.39) 式は決まらない．

$\hat{Q}_{ij}$ の行列要素を計算するために，ウイグナー・エッカルトの定理を適用する．さて，式 (D.9) から，

$$\hat{Q}_{ij} = e \sum_k (3x_{ik}x_{jk} - \delta_{ij}r_k^2) \quad (\text{D.40})$$

I_x, I_y, I_z は核の全角運動量の演算子であること，すなわち

$$I_x = \sum_k (l_{xk} + s_{xk}) \quad (\text{D.41})$$

を思い起こそう。但し, l_{xk}, s_{xk} は, k 番目の核子の軌道およびスピン角運動量の x 成分である。更に,

$$[l_{xk}, y_k] = iz_k \quad [s_{xk}, y_k] = 0 \cdots \quad (\text{D.42})$$

を用いると,

$$[I_x, y_k] = iz_k \cdots \quad (\text{D.43})$$

が得られる。 $3x_{ik}x_{jk} - \delta_{ij}r_k^2$ という項は表 D.1.1 の右の行に示したように, $T_{2M}(\mathbf{r}_k)$ の線形結合である。

(D.39) 式は, どちらかと言えばもっと一般的に, T_{LM} に対してばかりでなく, 全て同一の L を持つ T_{LM} の線形結合である関数にも適用される。従って, 演算子 p の関数である $F(p)$ という関数を考えよう:

$$F(p) = \sum_M a_M T_{LM}(p) . \quad (\text{D.44})$$

演算子 q の関数 $G(q)$ を, 同一の係数 a_M を用いて定義する:

$$G(q) \equiv \sum_M a_M T_{LM}(q) . \quad (\text{D.45})$$

(D.39), (D.44), (D.45) 式を用いると,

$$\langle JM_J \eta | G(q) | J' M_{J'} \eta' \rangle = \langle JM_J \eta | F(p) | J' M_{J'} \eta' \rangle \frac{\langle J \eta || T_L(q) || J' \eta' \rangle}{\langle J \eta || T_L(p) || J' \eta' \rangle} \quad (\text{D.46})$$

を容易に証明できる。この定理を用いて

$$\langle Im \eta | \sum_k (3x_{ik}x_{jk} - \delta_{ij}r_k^2) | Im' \eta \rangle = \langle Im \eta | \left[\frac{3(I_i I_j + I_j I_i)}{2} - \delta_{ij} I^2 \right] | Im' \eta \rangle C \quad (\text{D.47})$$

を証明できる。但し, C は全ての m, m', i, j に対して同一の定数である。³ C を $m = m' = I, i = j = z$ に対する行列要素によって次のように表わすことができる:

$$\begin{aligned} \langle II \eta | \sum_k (3z_k^2 - r_k^2) | II \eta \rangle &= C \langle II \eta | 3I_z^2 - I^2 | II \eta \rangle \\ &= CI(2I - 1) . \end{aligned} \quad (\text{D.48})$$

量子数 η は I^2, I_z と交換可能な変数に関係していると仮定されているから, (D.48) 式の右辺を計算するときには η を省略できる。記号 eQ を次のように定義する:

$$eQ = \langle II \eta | e \sum_k (3z_k^2 - r_k^2) | II \eta \rangle . \quad (\text{D.49})$$

Q は核四極子モーメントと呼ばれる。

D.1.2 電場勾配の計算

四極子結合は, ポテンシャルの二次導関数 V_{ij} に依存し, 主軸が x, y, z 軸の場合には, この V_{ij} は V_{zz} および $V_{xx} - V_{yy}$ となる。このポテンシャル V は, 他の核または電子のいずれかの外部電荷から生ずる。一点 x, y, z にある電荷 e が原点に作りだす電場勾配 V_{zz} は単純にそのポテンシャルの導関数によって与えられる。

$$V_{zz} = e \frac{(3z^2 - r^2)}{r^5} , \quad r^2 = x^2 + y^2 + z^2 \quad (\text{D.50})$$

³ この C を, クレブシュ・ゴールドン係数の記号と混同してはいけない。

球座標で表すと

$$V_{zz} = e \frac{(3 \cos^2 \theta - 1)}{r^3} \quad (\text{D.51})$$

一般に i あるいは j で x, y, z を表すと,

$$V_{ij} = \frac{e}{r^3} \frac{(3x_i x_j)}{r^2 - \delta_{ij}} \quad (\text{D.52})$$

(D.51), (D.52) 式は, $1/r^3$ 依存性によって, 核に近い電荷が V_{zz} に対して最も重要な影響をもつことを示している. 核に属している電子が, V_{zz} に大きな寄与をすると仮定してよい. 実際に, このような場合が存在している. しかし, もし閉殻の場合を取り扱えば, 電荷分布は球対称であり, 四極子結合は存在しない. 不完全殻の場合は, 軌道 $zf(r)$ 中の 1 個の p 電子の例を考えると明らかになる.

D.2 核四極子相互作用とゼーマン効果

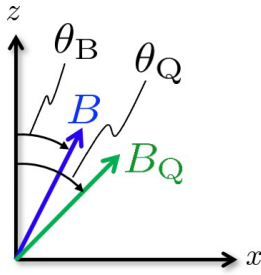


図 D.1: z 軸から θ_Q 傾いた主軸を持つ場合の NQI と θ_B に印加された外部磁場 B .

前節の式 D.17 を円筒座標系にし (i.e. $\eta=0$), QD の内部歪が $\mathbf{q}$ 方向に主軸をもつ一軸歪であると仮定すると, 核四極子相互作用 (Nuclear Quadrupole Interaction: NQI) のハミルトニアンは

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left(\hat{I}_q^2 - \frac{I(I+1)}{3} \right) \quad (\text{D.53})$$

で与えられる. ここで ω_Q は周波数単位で NQI の強さを表すパラメータで四極子分裂エネルギー

$$\hbar\omega_Q = \frac{3}{2} \frac{e^2 q Q}{I(2I-1)} \quad (\text{D.54})$$

である. $\mathbf{q}$ は

$$\mathbf{q} = \begin{bmatrix} \sin \theta_Q \cos \phi_Q \\ \sin \theta_Q \sin \phi_Q \\ \cos \theta_Q \end{bmatrix} \quad (\text{D.55})$$

で与えられる単位ベクトルである. θ_Q は z 軸からの極角, ϕ_Q は x 軸を基準にした方位角である. 自己集合 QD における $\mathbf{q}$ は z 軸に近い方向を向くと考えられる. $\hat{I}_q$ はベクトル $\mathbf{q}$ へのスピンの射影を表し,

$$\hat{I}_q = \hat{I}_x \sin \theta_Q \cos \phi_Q + \hat{I}_y \sin \theta_Q \sin \phi_Q + \hat{I}_z \cos \theta_Q \quad (\text{D.56})$$

で与えられる. $\phi_Q=0$ としても一般性を失わずに簡単化できる: $\hat{I}_q = \hat{I}_x \sin \theta_Q + \hat{I}_z \cos \theta_Q$.

このとき核四極子相互作用ハミルトニアン D.53 は

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \left[\hat{I}_z^2 \cos^2 \theta_Q - \frac{I(I+1)}{3} + (\hat{I}_z \hat{I}_x + \hat{I}_x \hat{I}_z) \sin \theta_Q \cos \theta_Q + \hat{I}_x^2 \sin^2 \theta_Q \right] \quad (\text{D.57})$$

と書ける. 昇降演算子を用いて $\hat{I}_x = (\hat{I}^+ + \hat{I}^-)/2$ を代入すると,

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} (A + B + C), \quad (\text{D.58})$$

但し,

$$\begin{aligned}
 A &= \hat{I}_z^2 \cos^2 \theta_Q - \frac{I(I+1)}{3} + \frac{1}{4}(\hat{I}^+ \hat{I}^- + \hat{I}^- \hat{I}^+) \sin^2 \theta_Q \\
 B &= \frac{1}{2}(\hat{I}_z \hat{I}^+ + \hat{I}_z \hat{I}^- + \hat{I}^+ \hat{I}_z + \hat{I}^- \hat{I}_z) \sin \theta_Q \cos \theta_Q \\
 C &= \frac{1}{4}[(\hat{I}^+)^2 + (\hat{I}^-)^2] \sin^2 \theta_Q.
 \end{aligned} \tag{D.59}$$

ここで A は対角項に寄与し, B は $\Delta m = \pm 1$ の遷移, C は $\Delta m = \pm 2$ の遷移に寄与する.

磁場と核との間には以下のハミルトニアンで記述される Zeeman 相互作用が働く.

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} = -g_n \mu_N \mathbf{B} \cdot \hat{\mathbf{I}} \tag{D.60}$$

従って, 磁場中における NQI 影響下の核のハミルトニアン $\mathcal{H}_n$ は

$$\mathcal{H}_n = \mathcal{H}_{\text{NQI}} + \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} \tag{D.61}$$

• $I = 3/2$ (例えば As 原子) の場合:

行列の基底 $\{|3/2, +3/2\rangle, |3/2, +1/2\rangle, |3/2, -1/2\rangle, |3/2, -3/2\rangle\}$

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \begin{pmatrix} A_{3/2} & B_{3/2} & C_{3/2} & 0 \\ B_{3/2} & D_{3/2} & 0 & C_{3/2} \\ C_{3/2} & 0 & D_{3/2} & -B_{3/2} \\ 0 & C_{3/2} & -B_{3/2} & A_{3/2} \end{pmatrix} \tag{D.62}$$

但し,

$$A_{3/2} = \frac{9}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{5}{4} + \frac{3}{4} \sin^2 \theta_Q \tag{D.63}$$

$$B_{3/2} = \sqrt{3} \sin \theta_Q \cos \theta_Q \tag{D.64}$$

$$C_{3/2} = \frac{\sqrt{3}}{2} \sin^2 \theta_Q \tag{D.65}$$

$$D_{3/2} = \frac{1}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{5}{4} + \frac{7}{4} \sin^2 \theta_Q \tag{D.66}$$

NQI だけを考えると, エネルギー固有値は角度 θ_Q に依らず, $\pm \hbar\omega_Q/2$ (それぞれ 2 重に縮退) となる.

同様に, 円筒対称性を有する系を考えると, ゼーマンハミルトニアンは

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} &= \frac{\hbar\omega_Z}{2} (\hat{I}_z \cos \theta_B + \hat{I}_x \sin \theta_B) \\
 &= \frac{\hbar\omega_Z}{2} \left[\hat{I}_z \cos \theta_B + (\hat{I}^+ + \hat{I}^-) \frac{\sin \theta_B}{2} \right]
 \end{aligned} \tag{D.67}$$

と書ける. これを使うと,

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} = \frac{\hbar\omega_Z}{2} \begin{pmatrix} a_{3/2} & b_{3/2} & 0 & 0 \\ b_{3/2} & c_{3/2} & d_{3/2} & 0 \\ 0 & d_{3/2} & -c_{3/2} & b_{3/2} \\ 0 & 0 & b_{3/2} & -a_{3/2} \end{pmatrix} \tag{D.68}$$

$$a_{3/2} = \frac{3}{2} \cos \theta_B \quad (D.69)$$

$$b_{3/2} = \frac{\sqrt{3}}{2} \sin \theta_B \quad (D.70)$$

$$c_{3/2} = \frac{1}{2} \cos \theta_B \quad (D.71)$$

$$d_{3/2} = \sin \theta_B \quad (D.72)$$

- $I = 5/2$ (例えば Al 原子) の場合 :

行列の基底 $\{|5/2, +5/2\rangle, |5/2, +3/2\rangle, |5/2, +1/2\rangle, |5/2, -1/2\rangle, |5/2, -3/2\rangle, |5/2, -5/2\rangle\}$

$$\mathcal{H}_{\text{NQi}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \begin{pmatrix} A_{5/2} & B_{5/2} & C_{5/2} & 0 & 0 & 0 \\ B_{5/2} & D_{5/2} & E_{5/2} & F_{5/2} & 0 & 0 \\ C_{5/2} & E_{5/2} & G_{5/2} & 0 & F_{5/2} & 0 \\ 0 & F_{5/2} & 0 & G_{5/2} & -E_{5/2} & C_{5/2} \\ 0 & 0 & F_{5/2} & -E_{5/2} & D_{5/2} & -B_{5/2} \\ 0 & 0 & 0 & C_{5/2} & -B_{5/2} & A_{5/2} \end{pmatrix} \quad (D.73)$$

$$A_{5/2} = \frac{25}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{35}{12} + \frac{5}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (D.74)$$

$$B_{5/2} = 2\sqrt{5} \sin \theta_Q \cos \theta_Q \quad (D.75)$$

$$C_{5/2} = \frac{\sqrt{10}}{2} \sin^2 \theta_Q \quad (D.76)$$

$$D_{5/2} = \frac{9}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{35}{12} + \frac{13}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (D.77)$$

$$E_{5/2} = 2\sqrt{2} \sin \theta_Q \cos \theta_Q \quad (D.78)$$

$$F_{5/2} = \frac{3}{2} \sqrt{2} \sin^2 \theta_Q \quad (D.79)$$

$$G_{5/2} = \frac{1}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{35}{12} + \frac{17}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (D.80)$$

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} = \frac{\hbar\omega_Z}{2} \begin{pmatrix} a_{5/2} & b_{5/2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ b_{5/2} & c_{5/2} & d_{5/2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & d_{5/2} & e_{5/2} & f_{5/2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & f_{5/2} & -e_{5/2} & d_{5/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{5/2} & -c_{5/2} & b_{5/2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & b_{5/2} & -a_{5/2} \end{pmatrix} \quad (D.81)$$

$$a_{5/2} = \frac{5}{2} \cos \theta_B \quad (D.82)$$

$$b_{5/2} = \frac{\sqrt{5}}{2} \sin \theta_B \quad (D.83)$$

$$c_{5/2} = \frac{3}{2} \cos \theta_B \quad (D.84)$$

$$d_{5/2} = \sqrt{2} \sin \theta_B \quad (D.85)$$

$$e_{5/2} = \frac{1}{2} \cos \theta_B \quad (D.86)$$

$$f_{5/2} = \frac{3}{2} \sin \theta_B \quad (D.87)$$

上のハミルトニアンを用いて計算した $I=5/2$ の場合の核準位のゼーマン分裂の様子を $\theta_B=0$, $\theta_Q=0-\pi/2$ として図 D.2 に表す.

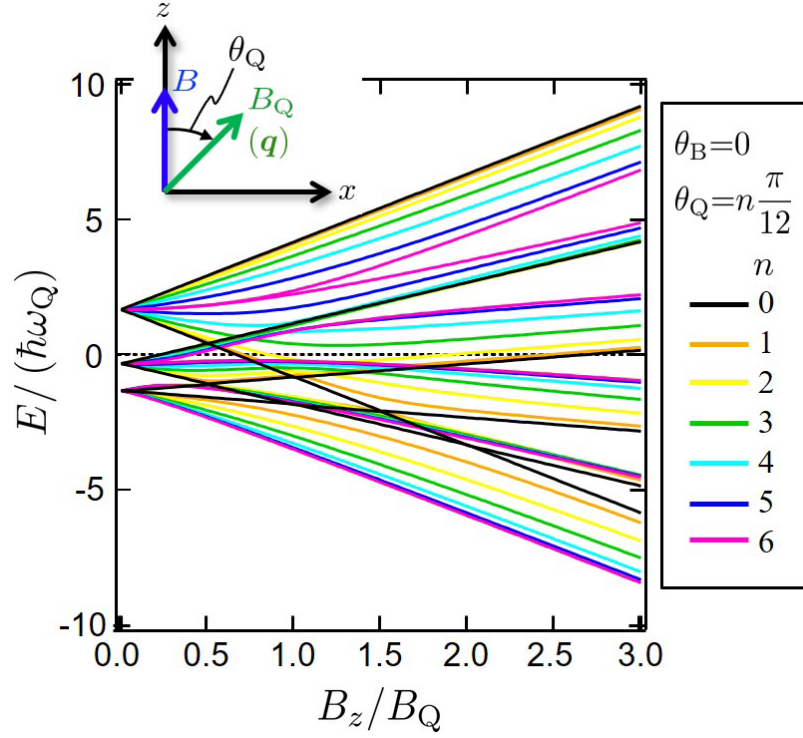


図 D.2: 挿入図の様に $\theta_B=0$ に固定し, $\theta_Q=0\sim\pi/2$ と NQI の主軸 $\mathbf{q}$ を磁場 $\mathbf{B}$ に対して傾斜している場合の核準位エネルギーの磁場依存性 ($I=5/2$ の場合). 縦軸, 横軸はそれぞれ $\hbar\omega_Q$, B_Q で規格化して表示している. $\theta_Q=0$, $\pi/2$ の場合の図 5.3 も参照.

- $I = 9/2$ (例えば In 原子) の場合 :
行列の基底

$$\begin{aligned} &\{|9/2, +9/2\rangle, |9/2, +7/2\rangle, |9/2, +5/2\rangle, |9/2, +3/2\rangle, |9/2, +1/2\rangle, \\ &|9/2, -1/2\rangle, |9/2, -3/2\rangle, |9/2, -5/2\rangle, |9/2, -7/2\rangle, |9/2, -9/2\rangle\} \end{aligned}$$

$$\mathcal{H}_{\text{NQI}} = \frac{\hbar\omega_Q}{2} \begin{pmatrix} A_{9/2} & B_{9/2} & C_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ B_{9/2} & D_{9/2} & B_{9/2} & E_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ C_{9/2} & B_{9/2} & F_{9/2} & G_{9/2} & H_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & E_{9/2} & G_{9/2} & I_{9/2} & J_{9/2} & K_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & H_{9/2} & J_{9/2} & L_{9/2} & 0 & K_{9/2} & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & K_{9/2} & 0 & L_{9/2} & -J_{9/2} & H_{9/2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & K_{9/2} & -J_{9/2} & I_{9/2} & -G_{9/2} & E_{9/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & H_{9/2} & -G_{9/2} & F_{9/2} & -B_{9/2} & C_{9/2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & E_{9/2} & -B_{9/2} & D_{9/2} & -B_{9/2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{9/2} & -B_{9/2} & A_{9/2} \end{pmatrix} \quad (\text{D.88})$$

$$A_{9/2} = \frac{81}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{33}{4} + \frac{9}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.89})$$

$$B_{9/2} = 12 \sin \theta_Q \cos \theta_Q \quad (\text{D.90})$$

$$C_{9/2} = 3 \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.91})$$

$$D_{9/2} = \frac{49}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{33}{4} + \frac{25}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.92})$$

$$E_{9/2} = \sqrt{21} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.93})$$

$$F_{9/2} = \frac{25}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{33}{4} + \frac{37}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.94})$$

$$G_{9/2} = 2\sqrt{21} \sin \theta_Q \cos \theta_Q \quad (\text{D.95})$$

$$H_{9/2} = \frac{3}{2} \sqrt{14} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.96})$$

$$I_{9/2} = \frac{9}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{33}{4} + \frac{45}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.97})$$

$$J_{9/2} = 2\sqrt{6} \sin \theta_Q \cos \theta_Q \quad (\text{D.98})$$

$$K_{9/2} = \frac{5}{2} \sqrt{6} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.99})$$

$$L_{9/2} = \frac{1}{4} \cos^2 \theta_Q - \frac{33}{4} + \frac{49}{4} \sin^2 \theta_Q \quad (\text{D.100})$$

$$\mathcal{H}_{\text{Zeeman}}^{\text{nuc}} = \frac{\hbar\omega_Z}{2} \begin{pmatrix} a_{9/2} & b_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ b_{9/2} & c_{9/2} & d_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & d_{9/2} & e_{9/2} & f_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & f_{9/2} & g_{9/2} & h_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & h_{9/2} & i_{9/2} & j_{9/2} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \hline 0 & 0 & 0 & 0 & j_{9/2} & -i_{9/2} & h_{9/2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & h_{9/2} & -g_{9/2} & f_{9/2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & f_{9/2} & -e_{9/2} & d_{9/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{9/2} & -c_{9/2} & b_{9/2} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & b_{9/2} & -a_{9/2} \end{pmatrix} \quad (\text{D.101})$$

$$a_{9/2} = \frac{9}{2} \cos \theta_B \quad (\text{D.102})$$

$$b_{9/2} = \frac{3}{2} \sin \theta_B \quad (\text{D.103})$$

$$c_{9/2} = \frac{7}{2} \cos \theta_B \quad (\text{D.104})$$

$$d_{9/2} = 2 \sin \theta_B \quad (\text{D.105})$$

$$e_{9/2} = \frac{5}{2} \cos \theta_B \quad (\text{D.106})$$

$$f_{9/2} = \frac{\sqrt{21}}{2} \sin \theta_B \quad (\text{D.107})$$

$$g_{9/2} = \frac{3}{2} \cos \theta_B \quad (\text{D.108})$$

$$h_{9/2} = \sqrt{6} \sin \theta_B \quad (\text{D.109})$$

$$i_{9/2} = \frac{1}{2} \cos \theta_B \quad (\text{D.110})$$

$$j_{9/2} = \frac{5}{2} \sin \theta_B \quad (\text{D.111})$$

- [1] C. P. Slichter (益田義賀訳) 磁気共鳴の原理 Chap.10 (シュプリンガー・フェアラーク東京, 1998)..
- [2] *The Principle of Nuclear Magnetism*, A. Abragam (Oxford University Press, Oxford, UK, 1961).
- [3] D. Paget, T. Amand, and J.-P. Korb, “Light-induced nuclear quadrupolar relaxation in semi-conductors”, Phys. Rev. B **77**, 245201/1-12 (2008). DOI: [10.1103/PhysRevB.77.245201](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.245201)

付 録 E $3nj$ 記号 ($n \leq 3$)

- Triangle relation

$$\Delta(abc) = \sqrt{\frac{(a+b-c)!(a-b+c)!(b+c-a)!}{(a+b+c+1)!}} \quad (\text{E.1})$$

- $3j$ symbols

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} a & b & c \\ \alpha & \beta & \gamma \end{pmatrix} &= (-1)^{a-b-\gamma} \delta(\alpha + \beta + \gamma, 0) \\ &\times \sum_k (-1)^k \frac{\sqrt{\Delta(abc)} \sqrt{(a+\alpha)!(a-\alpha)!(b+\beta)!(b-\beta)!(c+\gamma)!(c-\gamma)!}}{k!(c-b+k+\alpha)!(c-a+k-\beta)!(a+b-c-k)!(a-k-\alpha)!(b-k+\beta)!}, \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

- Relation to CG coefficients

$$\begin{pmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ m_1 & m_2 & m_3 \end{pmatrix} = \frac{(-1)^{j_1-j_2-m_3}}{\sqrt{2j_3+1}} \langle j_1 j_2 m_1 m_2 | j_1 j_2 j_3 - m_3 \rangle \quad (\text{E.3})$$

- $6j$ symbols

$$\begin{aligned} &\left\{ \begin{matrix} a & b & c \\ A & B & C \end{matrix} \right\} \\ &= \sum_k (-1)^k (k+1)! \frac{\sqrt{\Delta(abc)\Delta(aBC)\Delta(AbC)\Delta(ABc)}}{(k-a-b-c)!(k-a-B-C)!(k-A-b-C)!(z-A-B-c)!} \\ &\times \frac{1}{(a+b+A+B-k)!(b+c+B+C-k)!(c+a+C+A-k)!}, \end{aligned} \quad (\text{E.4})$$

- $9j$ symbols

$$\begin{bmatrix} j_1 & j_2 & j_3 \\ j_4 & j_5 & j_6 \\ j_7 & j_8 & j_9 \end{bmatrix} = \sum_k (-1)^{2k} (2k+1) \left\{ \begin{matrix} j_1 & j_4 & j_7 \\ j_8 & j_9 & k \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j_2 & j_5 & j_8 \\ j_4 & k & j_6 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j_3 & j_6 & j_9 \\ k & j_1 & j_2 \end{matrix} \right\} \quad (\text{E.5})$$

- [1] *Operator Techniques in Atomic Spectroscopy* in the Princeton Landmarks in Mathematics and Physics series, B. R. Judd (Princeton University Press, Princeton, New Jersey, 1998)
- [2] *Atomes and Molecules*, M. Weissbluth (Academic Press, New York, 1978).

研究業績目録

学術論文（査読有り 6 件，査読なし 1 件）

1. **“Quadrupolar effect on nuclear spin depolarization in single self-assembled quantum dots”**,
R. Matsusaki, R. Kaji, S. Yamamoto, H. Sasakura, and S. Adachi, Applied Physics Express **11**, 085201/1-5 (2018). DOI: [10.7567/APEX.11.085201](https://doi.org/10.7567/APEX.11.085201)
2. **“Direct evaluation of nuclear spin fluctuation by using nuclear spin switch in single quantum structures”**,
 R. Kaji, R. Matsusaki, S. Yamamoto, and S. Adachi, Japanese Journal of Applied Physics **58** SBBH05/1-5 (2019). DOI: [10.7567/1347-4065/aafd94](https://doi.org/10.7567/1347-4065/aafd94)
3. **“Sign identification of electron and hole out-of-plane g factors by utilizing nuclear spin switch in single quantum nanostructures”**,
R. Matsusaki, R. Kaji, S. Yamamoto, and S. Adachi, [arXiv:1807.01413](https://arxiv.org/abs/1807.01413).
4. **“Influence of a longitudinal field on the large in-plane nuclear field formation in single quantum dots”**,
 S. Yamamoto, T. Arakawa, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, Physica Status Solidi B (published online, 2019). DOI: [10.1002/pssb.201900381](https://doi.org/10.1002/pssb.201900381)
5. **“Experimental studies on nuclear field generated orthogonal to electron spin in single self-assembled nanostructures”**,
 R. Kaji, S. Yamamoto, R. Matsusaki, and S. Adachi, Japanese Journal of Applied Physics **58**, SBBH10/1-6 (2019). DOI: [10.7567/1347-4065/aafe66](https://doi.org/10.7567/1347-4065/aafe66)
6. **“In-plane nuclear field formation investigated in single self-assembled quantum dots”**,
 S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, Physical Review B **97**, 075309/1-8 (2018). DOI: [10.1103/PhysRevB.97.075309](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.075309)
7. **“Anomalous Hanle curves induced by in-plane nuclear field in single self-assembled InAlAs and InAs nanostructures”**,
 S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, Journal of Physics: Conference Series **1220**, 012047 (2019). DOI: [10.1088/1742-6596/1220/1/012047](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1220/1/012047)

講演（発表者）

国際会議

1. “Evaluations of the electron g-factor anisotropy and fluctuation of the Overhauser field in single quantum dots” (poster PWe36),
R. Matsusaki, S. Yamamoto, R. Kaji, and S. Adachi, International School and Symposium on Nanoscale Transport and photonics (ISNTT2017) (NTT Atsugi R&D Center, Atsugi, Kanagawa, Japan, 13-17 November, 2017).
2. “Quadrupolar effect in zero-field dynamic nuclear spin polarization of a single self-assembled InAlAs quantum dot” (poster B-130),
R. Matsusaki, S. Yamamoto, R. Kaji, and S. Adachi, The 9th International Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Fukuoka International Congress Center, Fukuoka, Japan, 4-8 June, 2017).

国内会議

1. 「単一量子ドットにおける電子・正孔 g 因子符号の判別」(17p-F314-11),
松崎 亮典, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 笹倉 弘理, 足立 智, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2018 年 3 月 17- 20 日, 早稲田大学西早稲田キャンパス, 東京).
2. 「単一量子ドットでの傾斜核四極子場による核スピン緩和」(6p-A405-13),
松崎 亮典, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 笹倉 弘理, 足立 智, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017 年 9 月 5- 8 日, 福岡国際会議場, 福岡).
3. 「InAlAs 量子ドットで観る零磁場動的核分極効果」(P-3),
松崎 亮典, 山本 壮太, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 21 回スピン工学の基礎と応用 (PASPS21) (2016 年 12 月 12- 13 日, 北大学術交流会館, 札幌).
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).
5. 「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).

講演（その他）

国際会議（*は発表者）

1. “Photon statics in a single quantum dot under bistable state of nuclear spin polarization” (oral),
R. Kaji*, R. Matsusaki, K. Omiya, S. Kamono, H. Sasakura, and S. Adachi, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (OECS2019) (Hotel Moscow, St. Petersburg, Russia, 16-20 September, 2019).

2. **“Large in-plane nuclear field formation in single quantum dots: Influence of a longitudinal field and role of nuclear quadrupolar interaction”** (poster),
S. Yamamoto, T. Arakawa, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi*, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (OECS2019) (Hotel Moscow, St. Petersburg, Russia, 16-20 September, 2019).
3. **“Modulation of nuclear quadrupole effect by a longitudinal magnetic field in transverse nuclear field formation”** (oral WeD2-3),
S. Yamamoto*, T. Arakawa, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, The 46th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS) (Kasugano International Forum, Nara, Japan, 19-23 May, 2019).
4. **“A novel method for direct evaluation of nuclear spin fluctuation by using nuclear spin switch in quantum nanostructures”** (poster PS-8-07),
R. Kaji*, R. Matsusaki, S. Yamamoto, and S. Adachi, The 50th International Conference on Solid State Devices and Materials: SSDM2018 (The University of Tokyo, Tokyo, Japan, 09-13 September, 2018).
5. **“Studies on anomalous Hanle effect observed in single self-assembled quantum dots”** (oral M-1-04),
R. Kaji*, S. Yamamoto, R. Matsusaki, and S. Adachi, The 50th International Conference on Solid State Devices and Materials: SSDM2018 (The University of Tokyo, Tokyo, Japan, 09-13 September, 2018).
6. **“Anomalous Hanle curves induced by in-plane nuclear field in single self-assembled InAlAs and InAs nanostructures”** (poster PO108),
S. Yamamoto*, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, The 12th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials: EXCON2018 (Kasugano International Forum, Nara, Japan, 08-13 July, 2018).
7. **“Formation of nuclear field orthogonal to electron spin and nuclear quadrupole effects in self-assembled single quantum dots”** (poster P119),
S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi*, 50 years of optical orientation in semiconductors: From the original discovery to new horizons (Ecole Normale Supérieure, Paris, France, 18-19 June, 2018).
8. **“In-plane nuclear field formation in individual InAlAs quantum dots: role of nuclear quadrupole effects”** (poster PWe35),
S. Yamamoto*, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi, International School and Symposium on Nanoscale Transport and photonics (ISNTT2017) (NTT Atsugi R&D Center, Atsugi, Kanagawa, Japan, 13-17 November, 2017).
9. **“Formation mechanism of in-plane Overhauser field in single self-assembled InAlAs quantum dots”** (poster P.02),
S. Yamamoto, R. Matsusaki, R. Kaji, and S. Adachi*, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (University of Bath, Bath, UK, 10-15 September, 2017).

10. **“Quadrupolar effect for nuclear spin depolarization in a single InAlAs quantum dot”** (poster P.01),
R. Kaji*, R. Matsusaki, S. Yamamoto, H. Sasakura, and S. Adachi, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (University of Bath, Bath, UK, 10-15 September, 2017).

国内会議 (*は発表者)

1. **“Asymmetrically antibunching behavior of photon correlation between Zeeman splitting states of positive trion in semiconductor quantum dots: Acceleration of electron spin flip process induced by nuclear field(半導体量子ドットにおける核スピン偏極による電子スピン反転時間の変調)”** (poster We1-13),
H. Sasakura, R. Kaji, R. Matsusaki, K. Oomiya, S. Kamono, S. Yamamoto, and S. Adachi, The 38th Electronic Materials Symposium (EMS38) (2019 年 10 月 9-11 日, Kashiwara)
2. 「**単一量子ドットでの正孔 g 因子の歪みチューニングに向けたデバイスの作製と評価**」(11p-M103-5),
石田 太郎*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 小田島 聡, 海住 英生, 西井 準治, 足立 智, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会 (2019 年 3 月 9-12 日, 東工大 大岡山キャンパス).
3. **“Modulation of Nuclear Quadrupole Effect by a Longitudinal Magnetic Field in Anomalous Hanle Curves(異常ハンルカーブで観る縦磁場による核四極子相互作用の変調効果)”** (11p-M101-13, 英語発表),
山本 壮太*, 荒川 拓也, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会 (2019 年 3 月 9-12 日, 東工大 大岡山キャンパス).
4. 「**半導体単一量子ドットの核スピン分極双安定状態下における光子統計性**」(10p-PA4-4),
大宮 寛太*, 松崎 亮典, 藤澤 秀樹, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 笹倉 弘理, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会 (2019 年 3 月 9-12 日, 東工大 大岡山キャンパス).
5. 「**単一量子ドット物性の歪みチューニングに向けたデバイスの作製と評価**」(C-7),
石田 太郎*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 小田島 聡, 足立 智, 第 54 回応用物理学会北海道支部/第 15 回日本光学会北海道支部 合同学術講演会 (2019 年 1 月 5- 6 日, 函館市勤労者福祉センター, 函館).
6. 「**液滴成長単一 GaAs(111) 量子ドットの磁気発光特性**」(C-6),
五十嵐 与樹*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 54 回応用物理学会北海道支部/第 15 回日本光学会北海道支部 合同学術講演会 (2019 年 1 月 5- 6 日, 函館市勤労者福祉センター, 函館).
7. 「**単一量子ドットにおける核四極子効果と面内核磁場形成 II**」(17p-F314-12),
山本 壮太*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2018 年 3 月 17- 20 日, 早稲田大学西早稲田キャンパス, 東京).
8. 「**単一量子ドット中の面内核磁場形成における非同軸超微細相互作用の効果**」(A-III A-17),
山本 壮太*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 53 回応用物理学会北海道支部/第 14 回日本光学会北海道支部 合同学術講演会 (2018 年 1 月 6- 7 日, 北海道大学学術交流会館, 札幌).

9. 「単一量子ドットにおける核四極子効果と面内核磁場形成」(6p-A405-14),
山本 壮太*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 (2017 年 9 月 5- 8 日, 福岡国際会議場, 福岡).
10. 「量子ドットにおける面内核磁場形成機構の研究」(15 p-E205-15),
山本 壮太*, 松崎 亮典, 鍛冶 怜奈, 足立 智, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (2017 年 3 月 14- 17 日, パシフィコ横浜, 神奈川).
11. 「**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).

謝辞

本研究を進めるにあたりお世話になった方々へこの場を借りてお礼申し上げます。

足立智教授には、学部4年生のテーマであったファブリペロー干渉計の作製から詳細な指導と手厚いサポートを受け、研究を進めることに尽力してくださりました。実験データから考察できる新たな知見や考え方などのアドバイスでは、私では考慮できなかったことを発見できたことで大きな達成感と満足感を得ることができました。研究を進めていくと同時にその楽しみ方も学ぶことができました。私が苦手としている学会発表や論文作成でも多くの面でご尽力いただきました。今に至らぬ私がここまで研究をやったのも先生のおかげです。深く感謝しております。

鍛冶怜奈助教には、研究方針のアドバイスや実験のサポートなど足立先生にも劣らず多くの面で尽力してくださりました。毎週の報告会や発表練習などで常に適切な指摘やアドバイスをいただき、物理を研究していく上で間違っていたことも多い私にも丁寧にご指導いただくことで物事の本質を知ることが学べたと考えています。また就職活動などの私事でも相談してくださりありがとうございました。何年後か成長した姿をお見せできる日を目指して頑張ります。

笹倉弘理准教授にも、所属研究室が異なるにも関わらず報告会を始め多くの場所でお世話になりました。あくまで量子ドットに触れることが多く、その他の試料や実験に対する知見が抜けていた私には、笹倉先生の視点は非常に新鮮でした。歪印加デバイスの作成でも相談に行くと親身に答えてくださり、研究の大きな助けとなりました。大変感謝しております。

関川太郎准教授はグループが違うことから特別な接点はありませんでしたが、私を気にかけてくれることもあり、機会があれば面白いお話をしてくださりました。良い気晴らしになったと思います。ありがとうございました。

北大ナノテク連携室の松尾保孝氏、小田島聡氏、大西広氏、中野和佳子氏にはオープンファシリティの利用に関する助言や装置講習をしていただき大変お世話になりました。

特に小田島さんには試料のピラー加工や基板研磨など多くの面で尽力いただきました。試料加工に関して素人な私が多くの試料と歪印加機構で実験できたのも小田島先生のおかげです。ご迷惑を掛けることもありましたが、歪み印加構造の作製にお力添えをいただきありがとうございました。

物材機構（国立研究開発法人物質・材料研究機構：NIMS）の間野高明博士、黒田隆博士にはQD試料をご提供いただき感謝いたします。

研究や実験室に関する多くの質問に答えてくださった先輩方や教えることも学ぶことも多かった後輩達にも感謝しております。今後の成長と成功をお祈り申し上げます。

2020年3月
松崎 亮典