

博士論文（要約）

縦型二重量子ドットにおける電子スピン－
核スピン相互作用に関する研究

近藤 裕佑

半導体の省電力化・高集積化によるデバイス性能の向上は、小型で高性能な電子デバイスと著しい微細加工技術の進展をもたらした。更に産業応用のみならず、基礎物性研究の世界にも大きな転換をもたらした。今や様々なナノスケールの試料を容易に作成し、様々な物性を実験によって確認することが出来るようになってきている。

旧来の、主に電子の電荷を利用してきたエレクトロニクスに比べ、電子や原子核の持つ量子的な性質である“スピン”を積極的に利用するスピントロニクスという分野は、このようなナノスケールの量子構造を積極的に応用するデバイスである。これまでに多くのデバイスが試作・研究されてきたが、中でも単一電子スピンの空間的な閉じ込めを可能とする量子ドットは微細加工技術の先端を行く構造の一つであり、物性研究の点からも、産業応用の点からも大きな注目を集めているデバイスであり、現在も世界中で精力的な研究が行われている。

量子ドットの産業応用として最も注目されているのがQIP (Quantum Information Processing: 量子情報処理) の分野である。既存の情報処理において情報の記憶・演算に用いられる“ビット”同士に相互に量子的な相関 (Entanglement) を持たせることで飛躍的に処理能力を向上させようとする試みがQIPの中心的なアイデアである。このアイデアは提案以降多くの研究者を惹き付け続けてきたが、未だ実用的なデバイス実現には至っていない。

このような中、量子ドットは、固体デバイスのロバストネスや微細化技術の粋とも言える高い集積性、更にビット操作時間 (処理速度に相当) の早さ、電気・磁気・光と様々な相互作用を利用可能という操作手段の多様性など他のビット候補に比べ多くの利点を有している。量子ドット利用によるQIPデバイス実現を阻む最も大きな課題は、ビットの情報保持時間に相当するコヒーレンス時間の短さである。量子ドットにおける電子スピンのデコヒーレンス (コヒーレンスの崩壊) の主要因は、電子スピンと環境系である核スピン集団との超微細相互作用である。一つのドット中に $10^5 \sim 10^6$ 個程度存在する原子核スピン集団は空間的・時間的に不均一な一定量の揺らぎを常に有しており、操作対象の電子スピがこの核スピン集団の揺らぎに晒され、電子スピンはそのコヒーレンスを保持し続けることが出来ない。QIP固体デバイスでは、格子スピンは常に環境系として存在するため、電子-核スピン間のデコヒーレンス問題は量子ドットに限った課題ではなく、普遍的な課題である。

このように電子スピンの量子ビット応用へ向けて不可避な課題である電子スピンと核スピン集団との相互作用の研究は、現在量子ドット研究の中心的課題の一つとなっている。しかしながら、量子ドットにおけるスピン間相互作用の影響を高精度に測定した実験は未だ少ない。本論文では、こうした現状を踏まえ、核スピン系の揺らぎ抑制に主眼を置きながら、定量的な相互作用の影響の測定を行う。更に未だ完全に統一的な見解の無い量子ドット特有の様々な非線形現象の定性的理解と数理モデル構築を目標として実験・理論両面から研究を実施しその内容を下記6章に渡りまとめた。

第一章では、研究の背景と目的について述べた。QIP応用に向け大きな課題のとなっているデコヒーレンス抑制と、電子スピン-核スピン相互作用の関係について述べ、縦型二重量子ドット (DQDと以下記載) の電子スピン-核スピン相互作用の研究の現状を紹介し、具体的にどのような手法が課題解決へ向けて必要かについて述べた。

第二章では、既存の量子ドット研究の紹介とこれらを利用したスピン測定手法の詳細について述べた。本研究で用いたDQD構造の紹介と、DQDにおけるPauli-Spin blockadeと呼ばれる電子スピンのドット間の移動が制限された領域 (以下P-SB領域と記載) で、核スピンとの角運動量授受によるflip-flop過程を介した電子の伝導が起きる。この際に核スピン系は電子一つに対して一つの核スピンがDNP (以下、DNP (Dynamical Nuclear Polarization 動的核DNP) と記載) されることで、P-SB領域を流れるリーク電流 (以下 I_{DOT} と記載) の急激な増加が見られる。このスピンDNP効率は電子スピンのSinglet (0, 2) 状態とTriplet (1, 1) 状態のエネルギー準位交差点の位置をピークとするローレンチアンでよく近似することが出来る。Singletは有効磁場のエネルギーの依存性を持たないのに対して、Tripletのエネルギー準位はZeeman分裂により T_+ , T_0 , T_- の3準位に分裂している。即ちエネルギー準位交差点位置は有効磁場 B の関数となる。即ち、DNP量を含む有効磁場の大きさは V_{SD} の掃引時の I_{DOT} の増加位置から見積もることが出来る。本測定手法は旧来のDNPの回復時間の測定などと比べより直接的かつ正確にDNPの値を定量測定出来る手法である。これに加えて、所謂pump and probe測定を導入しDNP過程とその測定を一連の V_{SD} 操作により行い、ポンプ条件を調整することによるDNP挙動の変化を非常に高精度に測定することを可能とした。これらの測定手法の詳細について第二章で細説している。

第三章では双方向のDNPに関する実験結果をまとめた。双方向DNPはスピン揺動を抑制できる手法の一つであり、単一方向へのDNPに比べ、より高い揺動抑制効果を持つという特徴がある。電子スピンのデコヒーレンス問題の一解決手法として非常に有用な手法である。

量子ドットのP-SB領域では、互いに逆方向にDNPされる2つのピークが観測された。(これらを以下NPP: Negative Pumping Point, PPP: Positive Pumping Pointと記載) これらの互いに逆方向のスピンDNPを引き起こす2点をパルス状の V_{SD} 印加により交互に強制的に移動させることで、現れる競合による非常に急峻な領域の遷移現象を観測し、それを数理モデルによる計算結果と比較した。更に引加パルスの周波数に対する依存性や、デューティー比に関する依存性なども測定し、その特徴的な挙動を観測した。最後に急峻な遷移が起こる領域で初期値に対して確率的に遷移する状況が観測した。

一方でこうしたDNPの競合時に起こりうるダイナミクスは各パルスにより時間発展が離散化されることから、離散力学系の時間発展を記述する所謂Logistic modelで非常に良く記述することが出来る。これによりカオス的な挙動が同時に示唆され、実験的に設定が可

能な単純なパラメータの調整で双安定状態や多安定状態、カオスといった様々なダイナミクスが現れることを指摘し、スピンDNP現象の背後に複雑な多値安定状態やカオスなどの領域が存在することを示唆した。最後に、双方向偏極がもたらすスピン揺動の抑制効果をまとめた。

第四章では、DNPの時間発展について実験を行い、その結果をまとめた。測定の手法や原理は第三章と同様のpump-probe法によるスピンDNPと測定である。共鳴位置を観測し、その点におけるパルスの印加回数に関する依存性を測定し、更に掃加回数を固定してパルス幅を徐々に増加させながら核スピンの時間発展を測定した。結果は、パルス印加回数に対して閾值的な増加を見せた。これは第三章で行った数理モデルによって良く再現され、また、パルス幅に関する依存性は数 μ 秒のDNP振動が現れた後に複雑な非周期の振動が見られた。このような核スピンDNPの微少時間の時間発展ダイナミクスの直接定量測定は世界初のものであり、実験データとして非常に貴重なものである。第四章では、これらの実験条件・結果を細説した。

第五章では、第四章のスピンDNPの時間発展に関する実験結果を再現可能な数理モデルの構築を行った。過去の実験で示されているように、核スピンDNPは周期的な時間発展を持つ。しかしながら第二章で用いたLogisticモデルでは、離散力学による強制的な振動系の時間発展の挙動を記述することは可能であるが、外部からの強制振動力がない系の周期的なDNP挙動の実験結果を記述することは出来ない。さらに、第三章で見られた微少時間の振動現象がこうしたDNPの周期振動の微少時間のものであると考えると、二つの実験結果は同一のモデルで説明されなければならない。これを解決するモデルとして遅延微分方程式を導入した。遅延微分方程式は系へのフィードバックが一定の遅延時間の後に反映されるシステムのこと、量子ドットの場合には、核スピンと電子スピンの相互作用時間や、ドットに新しい電子がロードされる時間などがこれに相当するものとして考えられる。これは量子ドットにおけるDNPに特有の事情である。遅延微分方程式における遅延時間と解周期（スピンDNP周期や I_{DNP} に対応する量）の関係性については数学的に未解明な問題であるため、数値計算を行い遅延時間と解周期の関係性について数値計算による検証を行った。その結果、周期振動の磁場強度依存性や共鳴ピーク近傍に現れる複雑な振動現象などいくつかの説明できることが分かった。現在迄に振動を表すモデルとして様々なモデルが提案されているがどのモデルもこうした長周期の振動と我々の短周期の振動を同時に定量的に説明できるモデルの提案は無い。本数理モデルの妥当性、特に遅延のメカニズムに関しては物理的妥当性の検証が残されているが、本数理モデルは自励振動の挙動を容易に説明できるモデルとして提案に値するものである。これらの数理モデルの構築とそれをもちいた数値計算による実験結果の再現について第五章で細説した。

第六章では、第一章から第五章までの研究内容のまとめを細説した。