

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600008

研究課題名(和文)半導体ドット中の単一スピンの制御とメモリーへの応用

研究課題名(英文)Control of a single spin in a semiconductor dot and application for a memory

研究代表者

黒田 眞司 (KURODA, Shinji)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：40221949

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：CdTe自己形成ドット中にCr原子1個を添加した系を作製し、Cr 3d電子による単一磁性スピンのドット中での振舞いを調べた。顕微分光測定の結果、ドット1個からの発光はドット中のCr 3d電子スピンのz方向成分の0, ± 1 に応じた3本の発光線への分裂が観測され、面内の格子歪に起因する大きな磁気異方性の影響下にあることが明らかとなった。また試料面に垂直方向に磁場下での発光測定では、励起子のゼーマンシフトと異なる量子準位の発光線との間の反交差現象による複雑な振舞いが観測された。

研究成果の概要(英文)：We fabricated the system consisting of a single Cr atom embedded in a self-assembled CdTe dot and investigated the behaviors of single magnetic spin of Cr 3d electrons in the dot. As a result of micro-photoluminescence measurement, we observed that the luminescence from a single dot is split into three lines corresponding the z-component 0, ± 1 of Cr 3d, indicating the effect of a large magnetic anisotropy induced by an in-plane strain. In the magneto-photoluminescence measurement with a magnetic field perpendicular to the plane, we observed complicated behaviors due to the Zeeman shift of the exciton and the anticrossing between the different quantum states.

研究分野：半導体物理

キーワード：量子ドット 磁性スピン スピントロニクス

1. 研究開始当初の背景

最近、半導体デバイス微細化の究極の目標として、半導体中の単一の不純物原子あるいは欠陥を利用したデバイス実現を目指す "Solotronics" (Solitary +electronics の造語) という概念が提唱されている[1]。非磁性半導体の量子ドットにおいて顕となる電子のスピンに起因する特徴的な振舞いが盛んに研究される一方で、半導体ドット中に単一の磁性スピンを含む系における単一の磁性スピンの振舞いを調べ、それを制御することにより、メモリーなどへの応用を目指した研究が行われている。これまで、CdTe 自己形成ドット中に 3d 遷移元素の Mn[2], Co[3]の原子 1 個を添加した試料が作製され、単一のドットからの発光スペクトルの測定が行われ、ドット中に閉じ込められた励起子と単一の磁性スピンの相互作用による準位の分裂、および磁性スピンの緩和をはじめとしたダイナミクスが調べられている。遷移元素のうち、Mn や Co は核スピンを有し、d 電子の磁性スピンの間の超微細相互作用がスピン緩和の一因となることがこれまでの研究で明らかにされている。本研究では、天然に存在する約 9 割の同位体が核スピンを持たない Cr に着目し、超微細相互作用の影響が少なく、より長いスピン緩和時間が期待できる系における励起子と磁性スピンの振舞いを解明することを目指した。

2. 研究の目的

本研究では、上述のような背景を踏まえ、Cd 自己形成ドット中に Cr 原子 1 個を含むドットを作製し、ドットに閉じ込められた Cr 3d 電子の単一磁性スピンの振舞いを調べ、特にスピンに対する格子歪および核スピンとの超微細相互作用の影響を明らかにする。その成果に基づき、ドット中の単一磁性スピンを用いたメモリーの実現の可能性を検証することを目的とした。

3. 研究の方法

ドット試料の作製は固体ソースの分子線エピタキシー(MBE)により、ZnTe(格子不整合率 5.8%)層の表面に CdTe を積層し、歪による島状成長を利用して CdTe 自己形成ドットを作製した。MBE により、ZnTe(001)基板の上に ZnTe 層を成長した後、CdTe を 5~7 原子層 (ML)積層した。CdTe 層の積層は、膜厚を精密に制御するために、Cd と Te の分子線の交互照射により 1 原子層ずつ結晶成長を行う原子層エピタキシー法[4]を用いた。CdTe 層の積層中に Cr の分子線量を少量添加し、Cr セル温度を 900~975°C の範囲で変化させることで添加量を調節した。さらに、ドットの自己形成促進のため CdTe 層表面への Te の着脱処理を行った[5]。Cr 添加に伴う磁気光学特性の変化を観測するために、磁場中でマクロ領域のフォトルミネセンス (PL) 測定 (測定温度 4.2K) を行った。また、単一ドットからの発光を観測するために、高屈折率の固浸レンズを試料表面に載せ、顕微 PL 測定 (測定温度 5K) を行った。

4. 研究成果

上述の Cr を添加した CdTe 自己形成ドットの作製において、Cr セル温度を 900~975°C の範囲で変化させ Cr 添加量を調節することにより、1 つのドット中に Cr 原子がちょうど 1 個添加されたドットの作製を試みた。その結果、Cr セル温度 925°C で作製した試料において、Cr 原子を 1 個含むドットからの発光を検出することが出来た。Fig.1 は顕微分光測定による単一のドットからの発光スペクトルを示す[6]。図に見る通り、ドットに束縛された中性励起子 X、正負に帯電した荷電励起子 X^+ , X^- 、および励起子分子 X^2 からの発光が観測され、それぞれの発光スペクトルは、ドット中の Cr^{2+} スピンとの sp-d 交換相互作用によるエネルギー準位の分裂を反映し、複数の発光線から成っている。中性励起子 X の発光スペクトルは 3 本に分裂した発光線から成つ

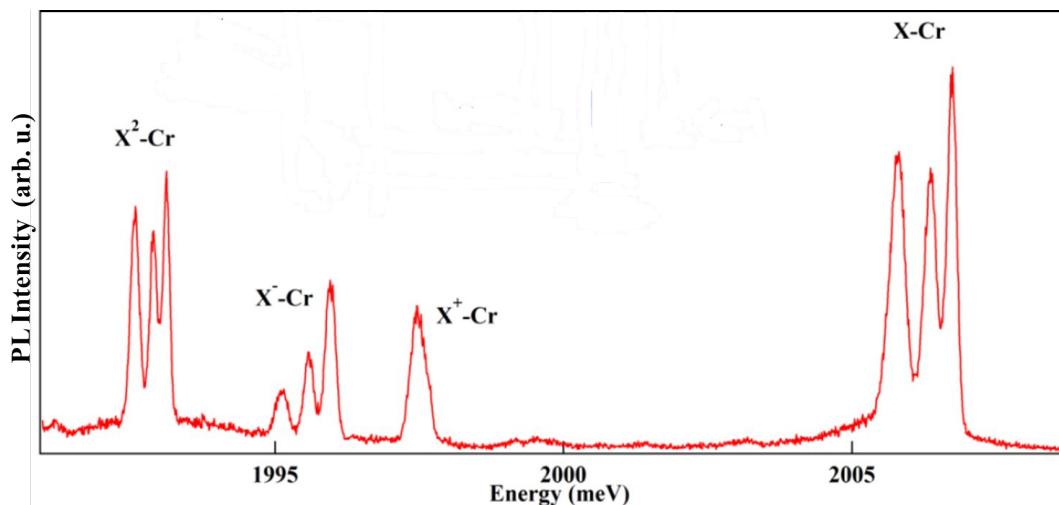


Fig.1 Micro-PL spectrum from a single CdTe containing a single Cr atom at 5K [6].

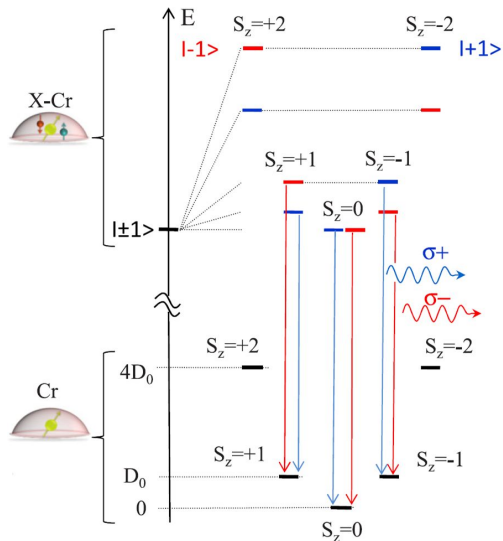


Fig. 2 Energy diagram of the ground state of a single Cr spin $S = 2$ and the neutral exciton X coupled to the Cr spin.

ているが、これはドット中の Cr^{2+} スピンの z 成分 $S_z = 0, \pm 1$ のエネルギー準位に対応していると考えられる。 Cr^{2+} の 3d 電子の合成スピンは $S=2$ であることから、本来は $S_z = 0, \pm 1, \pm 2$ に応じた 5 つのエネルギー準位に分裂するはずである。しかしながら、CdTe ドットは面内に大きな格子歪を受け、結晶場の歪による変化とスピン軌道相互作用の結びつきにより、以下のハミルトニアンで表されるようなスピン成分に依存したエネルギー変化が生じる。

$$H_{\text{CF}} = D_0 S_z^2 + E(S_x^2 - S_y^2)$$

ここで特に第 1 項により $|S_z|$ の値に応じたエネルギー分裂が生じ (Fig. 2)、低温では $|S_z| = 0, 1$ の準位のみ励起子が生成され、3 本の発光線が観測されるに至ったと考えられる。

ドット中の単一 Cr スピンの振舞いをより詳しく調べるため、磁場中での顕微分光測定を行った。磁場は試料面に対して垂直に印加し、円偏光の発光測定を行った。Fig. 3 はその結果の一例で、中性励起子 X の発光線の磁場による推移を示したものである。図に見る通り、磁場の印加に伴い σ^- (σ^+) 円偏光の発光線のエネルギーは低(高)エネルギー側にシフトしており、 Cr^{2+} スピンとの交換相互作用による励起子エネルギーの分裂が、磁場印加に伴うゼーマンエネルギーによる「補償」を受けている様子が見えている。さらに図中の (1)~(4) の丸で囲んだ部分で、発光線がさらに分裂し、いわゆる反交差 (anti-crossing) の現象が観測されている。これは、 σ^- , σ^+ の双方の円偏光の準位間で交差が生じる磁場において、励起子中の電子・正孔間の交換相互作用により 2 つの準位間で波動関数の混成 (mixing) が生じた結果、反交差の現象が生じたものと考えられる。

以上の単一ドットからの励起子発光の観

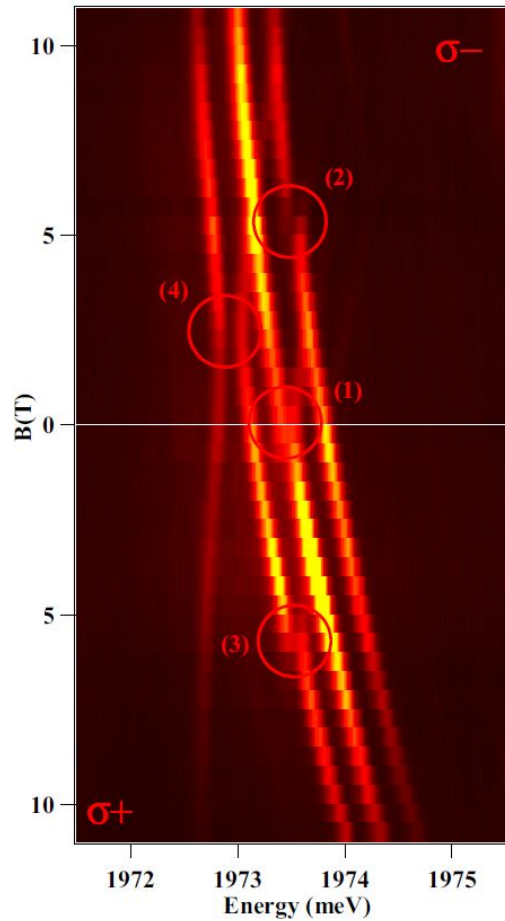


Fig. 3 Magneto-PL spectra for the σ^- (upper panel) and σ^+ (lower panel) polarizations from a single dot. Magnetic fields are applied perpendicular to the plane. The measurement temperature is 5K [6].

測により、ドット中の単一 Cr スピンと励起子の交換相互作用に起因する多彩な現象とその起源を明らかにすることが出来た。

(参考文献)

- [1] P. M. Koenraad, M. E. Flatté, Nat. Mater. 10, 91 (2011).
- [2] L. Besombes, Y. Leger, L. Maingault, D. Ferrand, H. Mariette, J. Cibert, Phys. Rev. Lett. 93, 207403 (2004).
- [3] J. Kobak, T. Smolęński, M. Goryca, M. Papaj, K. Gietka, A. Bogucki, M. Koperski, J.-G. Rousset, J. Suffczyński, E. Janik, M. Nawrocki, A. Golnik, P. Kossacki, and W. Pacuski, Nat. Commun. 5, 3191 (2014).
- [4] J. M. Hartmann, G. Feuillet, M. Charleux, H. Mariette, J. Appl. Phys. 79, 3035 (1996).
- [5] F. Tinjod, S. Moehl, K. Kheng, B. Gilles, H. Mariette, J. Appl. Phys. 95, 102 (2004).
- [6] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B 93, 161301 (2016).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に

は下線)

〔雑誌論文〕(計1件)(査読有)

1. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Individual Cr atom in a semiconductor quantum dot: Optical addressability and spin-strain coupling", Physical Review B (Rapid Communications) 93, 161301 (2016). <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.93.161301>

〔学会発表〕(計9件)

【国際学会】

1. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Optical probing and dynamics of a Cr spin in a semiconductor quantum dot", 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS-9) (August 8-11, 2016, Kobe, Hyogo, Japan)
2. H. Utsumi, K. Sakamoto, S. Kuroda, A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, "Fabrication of CdTe dots containing a single Cr with and without strain", 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS-9) (August 8-11, 2016, Kobe, Hyogo, Japan)
3. A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, H. Utsumi, S. Kuroda, "Magnetic properties of an individual Cr atom in a semiconductor quantum dot", 9th International Conference on Quantum Dots (QD2016) (May 22-27, 2016, Jeju, Korea)
4. A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, F. Nakazawa, H. Utsumi, S. Kuroda, "Optical probing of the spin state of a single Cr²⁺ ion in a quantum dot", The 17th International Conference on II-VI Compounds and Related Materials (II-VI 2015), (13-18 September, 2015, Paris, France)

【国内学会】

5. 内海 駿人、中澤 文生、金澤 研、黒田 眞司、Lafuente-Sampietro Alban、Besombes Lucien、Boukari Herve、「量子井戸幅の揺らぎによるCdTe無歪ドットの作製およびPLスペクトル」第63回応用物理学会春季学術講演会(2016年3月19日~22日、東京工業大学大岡山キャンパス、東京都目黒区)
6. 内海 駿人、中澤 文生、金澤 研、黒田 眞司、Lafuente-Sampietro Alban、Besombes Lucien、Boukari Herve、「単一のCr原子を含むCdTe自己形成ドットの作製および単一ドット分光」第20回半導体におけるスピニ工学の基礎と応用(PASPS20)(2015

年12月3~4日、東北大学電気通信研究所、宮城県仙台市)

7. 内海 駿人、中澤 文生、金澤 研、黒田 眞司、Lafuente-Sampietro Alban、Besombes Lucien、Boukari Herve、「単一のCr原子を含むCdTe自己形成ドットの作製および発光スペクトル」第76回応用物理学会秋季学術講演会(2015年9月13日~16日、名古屋国際会議場、愛知県名古屋市)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kuroda_lab

6. 研究組織

(1) 研究代表者

黒田 眞司(KURODA Shinji)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号: 40221949

(2) 連携研究者

三留 正則(MITOME Masanori)

物質・材料研究機構 国際ナノアーキテク

トニクス研究拠点・研究員

研究者番号: 50354410