

令和元年6月17日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K13612

研究課題名（和文）半導体ドット中の単一スピンの制御と応用

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

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） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：ドット当たりCr原子1個を含むCdTe自己形成ドットを作製し、ドット中の単一Crスピンの振舞いを調べた。顕微分光測定により個々のドットからの励起子発光を観測することで、励起子と相互作用とする単一Crスピンの種々の特性を明らかにした。格子歪によるCrスピン準位の分裂、Crスピンと正孔との相互作用、Crスピンの緩和過程、光シュタルク効果などの新たな知見が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果により、CdTe自己形成ドット中の単一Crスピンの種々の特性を明らかにすることができた。特に、ドット中のCrスピンの暗状態で比較的長いコヒーレンスを保つこと、また格子歪と強く結合していることが明らかになった。この成果は、単一スピンを用いたメモリや量子情報処理などへの応用の可能性を示したという点で学術的、社会的意義を有すると考えられ、今後の研究の発展に期待が持たれる。

研究成果の概要（英文）：We fabricated self-assembled dots of CdTe containing a single atom of Cr and investigated the behaviors of single magnetic spin of Cr inside the dot. By observing the excitonic emission from an individual dot in the micro-photoluminescence measurement, we clarified various properties of the single Cr spin interaction with the exciton. We obtained new findings such as the splitting of the Cr spin state due to the lattice strain, the interaction with a hole, the relaxation process, the optical Stark effect.

研究分野：半導体物理

キーワード：量子ドット 単一スピン スピントロニクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

量子情報処理などへの応用の期待から、固体中の単一スピンの振舞いが注目を集め、種々の系を舞台にした研究が精力的に行われている[1]。その中で、半導体ドット中に遷移元素の原子1個を含む系において単一の磁性スピンの振舞いを明らかにし、制御する方法を開発し、メモリーや量子情報への応用を目指した研究も報告されている。これまで、CdTe 自己形成ドット中に遷移元素の Mn[2], Co[3], Fe[4]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測定により単一の磁性スピンの振舞いが調べられている。そうした中、我々は3d 遷移元素のうち Cr に着目し、Cr 原子1個を含む CdTe 自己形成ドットの作製に成功した。Cr は天然に存在する約9割の同位体で核スピンを持たないため超微細相互作用によるCrスピンの緩和が抑制され、かつ軌道角運動量が有限であることから格子歪と強く結合し、他の遷移元素には見られない特性を示すことが期待される。本研究では、Cr 原子1個を含む CdTe ドット試料を対象に種々の光学測定を行い、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いを明らかにすることを旨とした。

### 2. 研究の目的

本研究では、上記のような背景を踏まえ、CdTe 自己形成ドット中に Cr 原子1個を含む系を対象に種々の光学特性を行うことにより、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いを様々な側面から明らかにすることを目的として研究を行った。さらにその成果に基づき、単一スピンを制御する手法を開発し、量子情報処理などへの応用の可能性を探索することを旨とした。

### 3. 研究の方法

ドット試料は固体の分子線源を有する分子線エピタキシー(MBE)を用いて作製した。ZnTe 層の表面に厚さ数原子層の CdTe を積層し、格子歪による島状成長を利用して自己形成ドットを作製した。CdTe 層の積層は、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[5]を用いた。CdTe 層の積層中に Cr の分子線量を少量添加し、ドットあたり Cr 原子がちょうど1個含まれるよう調節した。高屈折率の固浸レンズおよび高倍率の対物レンズを用いた顕微フオルミネッセンス(PL)測定を行い、単一ドットからの励起子発光を観測し、励起子と相互作用する Cr スピンの振舞いを調べた。

### 4. 研究成果

上記の手法により、ドットあたり Cr 原子1個を含む CdTe 自己形成ドットの試料を作製し、顕微 PL 測定により単一ドットからの発光測定を行った。時間分解 PL 測定も含む種々の光学測定により、ドット中の単一 Cr スピンについて、以下のような振舞いを明らかにした。

#### (1) Cr スピンとの相互作用によるドットの発光スペクトルの分裂 [6]

ドットに束縛された励起子再結合に伴う発光スペクトルは、ドット中の単一 Cr スピンとの交換相互作用により複数の発光線に分裂する(Fig.1)。分裂の様子はドットごとに異なり、スペクトルは4ないし5本の発光線から成る。CdTe 結晶中の Cd の置換サイトに位置する Cr は  $Cr^{2+}$  ( $d^4$ )の状態ですピン  $S=2$  となり  $z$  成分に応じて  $S_z=0, \pm 1, \pm 2$  の5つの状態を取り得る。しかしながらドット内部の面内の格子歪が  $|S_z|$  に応じた準位の分裂を引き起こし、低温ではエネルギーの低い  $S_z=0, \pm 1$  の準位のみが占有され、その結果、発光スペクトルは基本的には  $S_z=0, \pm 1$  の状態に応じた3本の発光線からなる。実際のスペクトルでは、それに加えて暗励起子からの発光線が低エネルギー側に現れ、さらに中央の  $S_z=0$  に発光線はドットの形状によって、さらに2つに分裂する。以上のように、単一 Cr スピンとの相互作用によりドットの発光スペクトルは複雑な様相を見せることが明らかにされた。

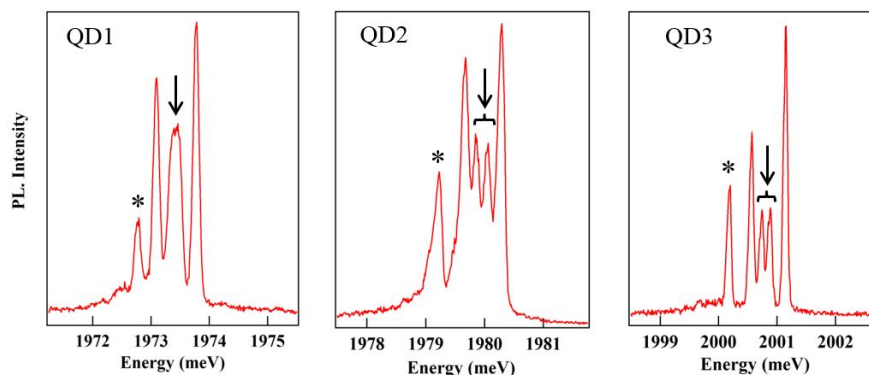


Figure 1: Typical examples of the emission spectra from single-Cr dots. The central emission line is split into two lines due to the anti-crossing behavior (denote by arrows in QD2, 3), and an additional line from the dark exciton state appears (denoted by \*) [6].

(2) 磁場印加による発光スペクトルの変化 [6,7]

磁場を試料面に垂直に印加した Faraday 配置において、円偏光 PL 測定を行った。Fig.2 に見るように、励起子準位のゼーマン分裂による発光線のシフトに加えて、発光線が途中で途切れたり、互いに反発して避け合うような振舞いが見られた。これは反対の円偏光状態や異なる準位との反交差現象にするものである。計算との比較から、励起子中の電子・正孔間の交換相互作用により準位間で波動関数の混成(mixing)が生じ、これにより反交差現象が生じることが明らかとなった。さらに磁場印加に伴う発光強度の変化を解析すると、正孔と Cr スピン間の交換相互作用は反強磁性的であるという結論が導かれた。これまでのバルク結晶における光学測定では、II-VI 族半導体中においては正孔と Cr スピン間の交換相互作用は強磁性的であるとされており、今回はそれとは逆の結果である。この不一致の原因としては、Cr の d 電子準位と価電子帯とのエネルギー位置が格子歪の影響で逆転している可能性が考えられ、現在解析中である。

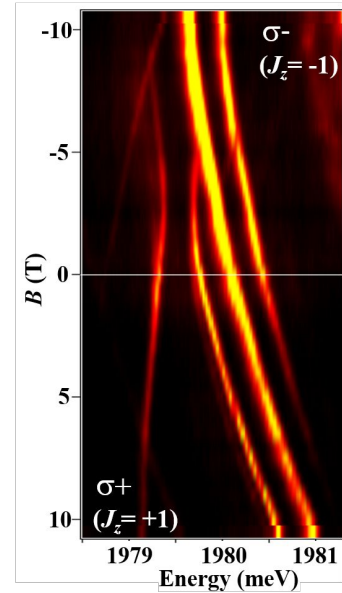


Figure 2: Circular-polarized ( $\sigma^+/\sigma^-$ ) PL spectrum of a single-Cr dot under magnetic fields applied perpendicular to the sample plane (Faraday configuration) [7].

(3) Cr スピンのダイナミクス [8,9]

単一のドットからの励起子発光の自己相関測定を行い、Cr スピンの時間的揺らぎを見積もった。自己相関関数の半値幅より Cr スピンの揺らぎは 20 ns 程度と見積もられた。さらに 2 波長のパルスレーザーを用いたポンププローブ PL 測定を行い、Cr スピンの特定の準位を励起し、別の準位の発光の時間変化を観測することで、Cr スピンの緩和過程を調べた。その結果、励起子が存在する明状態では Cr スピンの緩和時間は 50 ns 程度であるのに対し、励起子が存在しない暗状態では緩和時間は約 2  $\mu$ s と長くなることを見出された(Fig.3)。

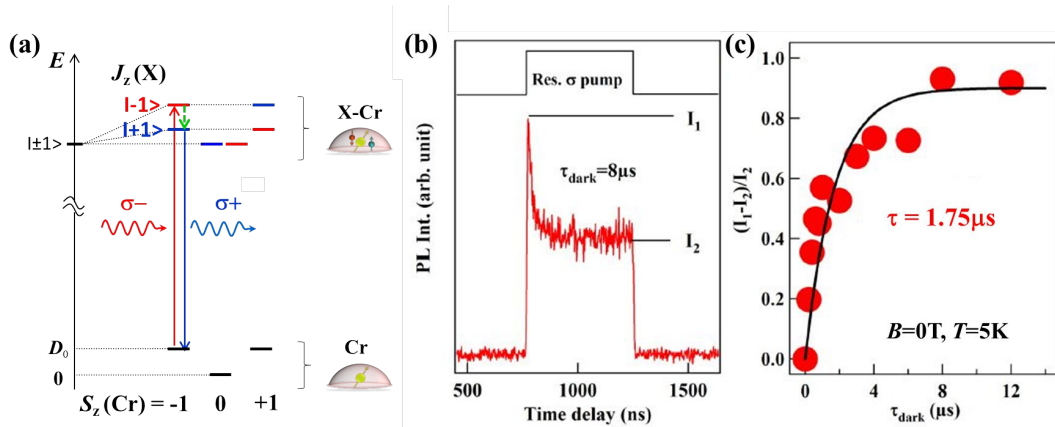


Figure 3: (a) Energy diagram of the single Cr spin state and the optical transition for the excitation/detection under resonant optical pumping. (b) Time evolution of PL intensity of the lower-energy line under the resonant excitation of  $S_z = -1$  state with  $\sigma$  polarization at the higher-energy line. (c) The amplitude of the pumping decay  $(I_1-I_2)/I_2$  as a function of the dark time between the successive pump pulses [9].

(4) 光シュタルク効果の観測 [9]

特定の Cr スピン準位に対する共鳴励起のもとでの PL 測定を行い、励起光強度を増加させたところ、単一の発光線が 2 つに分裂することを見出した(Fig. 4)。これは光シュタルク効果による Cr スピン準位の分裂によるもので、光電場との共鳴で Cr 準位が光の衣を纏った状態(optically dressed)となって準位の分裂が生じたと考えられる。この結果より、光励起による Cr スピン状態の制御が可能であることが示された。

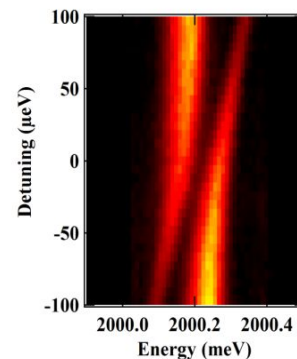


Figure 4: Splitting of the emission line due to the optical Stark effect [9]

(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. Smoleński, M. Goryca, M. Papaj, K. Gietka, A. Bogucki, M. Koperski, J.-G. Rousset, J. Suffczyński, E. Janik, Nawrocki, A. Golnik, P. Kossacki, and W. Pacuski, Nat. Commun. **5**, 3191 (2014).
- [4] T. Smoleński, T. Kazimierczuk, J. Kobak, M. Goryca, A. Golnik, P. Kossacki, W. Pacuski, Nat. Commun. **7**, 10484 (2016).
- [5] J. M. Hartmann, G. Feuillet, M. Charleux, H. Mariette, J. Appl. Phys. **79**, 3035 (1996).
- [6] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **93**, 161301 (2016).
- [7] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **97**, 155301 (2018).
- [8] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Appl. Phys. Lett. **109**, 053103 (2016).
- [9] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **95**, 035303 (2017).

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計6件)(全て査読有)

1. L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, S. Kuroda, K. Makita, "Optical control of an individual Cr spin in a semiconductor quantum dot", Semicond. Sci. Technol. **34**, 063001 (2019).  
DOI: 10.1088/1361-6641/ab13f5
2. L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, and S. Kuroda, "Charge fluctuations of a Cr atom probed in the optical spectra of a quantum dot", Phys. Rev. B **99**, 035309 (2019).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.99.035309
3. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Dynamics of a Cr spin in a semiconductor quantum dot: Hole-Cr flip-flops and spin-phonon coupling", Phys. Rev. B **97**, 155301 (2018).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.155301
4. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Resonant optical control of the spin of a single Cr atom in a quantum dot", Phys. Rev. B **95**, 035303 (2017).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.035303
5. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, "Spin dynamics of an individual Cr atom in a semiconductor quantum dot under optical excitation", Appl. Phys. Lett. **109**, 053103 (2016).  
DOI: 10.1063/1.4959243
6. 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", Phys. Rev. B **93**, 161301(R) (2016).  
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.161301

〔学会発表〕(計11件)

【国際学会】

1. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, L. Besombes, S. Kuroda, "Optical detection and manipulation of a single Cr spin in a semiconductor quantum dot (*invited*)", Annual Workshop of Center for Spintronics Research Network (CSRN) Osaka (December 13-15, 2018, Osaka, Japan).
2. M. Sunaga, K. Makita, A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, and S. Kuroda, "Fabrication of CdTe dots containing single Cr atom and optical control of single spin", 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE 2018) (September 2-7, 2018, Shanghai, China).
3. A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, L. Besombes, S. Kuroda, "Optical control of the single Cr spin in a semiconductor quantum dot", 10th International School and Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solid (PASPS10) (August 5-9, 2018, Linz, Austria).
4. A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, H. Utsumi, S. Kuroda, "Resonant optical control of the spin of an individual Cr atom in a quantum dot", International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems (September 10-15, 2017, Bath, U.K.).
5. A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, L. Besombes, H. Boukari, S. Kuroda, "Optical probe of single Cr spin in a self-assembled CdTe dot", International Symposium on Hybrid Quantum Systems 2017 (HQS2017) (September 10-13, 2017, Miyagi-Zao, Japan).
6. 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, Japan).

7. 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, Japan).
8. A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, F. Nakazawa, H. Utsumi, S. Kuroda, "Individual Cr atom in a semiconductor quantum dot -optical addressability and spin-strain coupling", 33rd International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS2016) (July 31 - Aug 5, 2016, Beijing, China).
9. 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).

【国内学会】

10. 牧田 憲治, 有野 雅史, 須永 雅弘, 黒田 眞司, Alban Lafuente-Sampietro, Hervé Boukari, Lucien Besombes, 「CdTe 自己形成ドットにおける Cr の電荷揺らぎによる発光スペクトルの分裂」第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2019 年 3 月 9 日～12 日, 東京工業大学 大岡山キャンパス)
11. 内海 駿人, 須永 雅弘, Alban Lafuente-Sampietro, Lucien Besombes, Hervé Boukari, 黒田 眞司, 「Cr 原子 1 個を含む CdTe 量子ドットの作製と単一 Cr スピンの光学的制御」第 21 回半導体におけるスピン工学の基礎と応用 (PASPS-21) (2016 年 12 月 12 日-13 日, 北海道大学)

〔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](http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~kuroda_lab)

## 6 . 研究組織

(1) 研究分担者

なし。

(2) 研究協力者

研究協力者氏名 : L. Besombes, H. Boukari (Néel Insitute, Grenoble, France)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。