

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K18988

研究課題名（和文）半導体ドット中の単一磁性スピンの制御と応用

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

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） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：CdTe自己形成ドット中のCr原子1個の単一スピンの振舞いを明らかにした。ドット中の単一Crスピンの交換相互作用による励起子発光スペクトルの分裂を観測し、分裂した発光線への共鳴励起によりCrスピンの各状態の分布を制御できることを示した。共鳴励起下で生成した特定のCrスピン状態の分布の減衰を観測し（光学ポンピング現象）、減衰の起源となるCrスピン状態間の遷移の過程を明らかにした。加えてCrスピンの交換分裂と似た形状のスペクトルを示すが直線偏光特性などで異なる特徴を示す発光スペクトルを見出し、ドット近傍に位置するCrイオンの価数揺動による分裂に起因することを明らかにした。

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、共鳴励起の手法により特定のCrスピンの分布が制御できることを示した。この成果は、ドット中の単一Crスピンを量子ビットとして用いた量子情報処理への応用の可能性の探索という点で学術的、社会的意義を有すると考えられる。

研究成果の概要（英文）：We have clarified various aspects of the behavior of a single Cr atom in a CdTe self-assembled dot. We observed the splitting of the exciton emission spectrum due to the exchange interaction with a single Cr spin in the dot, and showed that the distribution of each Cr spin state can be controlled by resonant excitation to the split emission lines. We observed the decay of the distribution of specific Cr spin states generated under resonant excitation (optical pumping) and clarified the transition process between Cr spin states as the origin of the decay. In addition, we found an emission spectrum with a similar shape to that of the exchange splitting of Cr spins, but with different characteristics such as linear polarization properties, which is attributed to the valence fluctuation splitting of Cr ions located near the dots.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：量子ドット 単一スピン 交換相互作用 光学ポンピング

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 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]。単一スピンの系として、半導体ドット中に含まれる遷移元素の原子 1 個の単一の磁性スピンを対象とした研究が報告されている[2-4]。そうした中、我々は 3d 遷移元素の Cr に着目し、CdTe ドット中に単一 Cr スピンの研究を行ってきた。分子線エピタキシー(MBE)により CdTe 自己形成ドット(SAD)中に Cr 原子 1 個を含む試料を作製し、ドットに束縛された励起子の発光測定によりドット中の単一 Cr スピンの振舞いを調べてきた。これまでの研究で、励起子の発光線は単一 Cr スピンとの間の交換相互作用により分裂し、Cr スピン準位は SAD 内の格子歪によりエネルギーシフトしていることを明らかにした[5]。さらに Cr スピンは励起子のない暗状態で約 2 μ s と比較的長いコヒーレンスを保つことを示した。本研究課題では、以上のこれまでの研究成果を踏まえ、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いをさらに明らかにし、量子ビットとしての応用可能性を探索することを目的として研究を行った。

2. 研究の目的

本研究課題は、ドット中に Cr 原子 1 個を含む CdTe SAD 試料を対象にしたこれまでの研究の成果を踏まえ、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いをより詳しく調べることを目指した。これにより、ドット中の単一 Cr スピンを量子ビットとして利用して、量子情報処理への応用の可能性を探索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 MBE により、ZnTe(001)層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[6]。CdTe 層の積層中に Cr の分子線を少量添加し、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ォトルミネッセンス(PL)測定を行い、単一ドットからの励起子発光を観測し、ドットに束縛された励起子発光スペクトルを観測することにより、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 SAD 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。ポンプ・プローブ法による時間分解発光測定も含む種々の光学測定により、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いを以下のようなさまざまな側面から調べ、そのダイナミクスを支配するメカニズムを明らかにすることを目指した。

(1) Cr スピンのダイナミクス

これまでの研究で、Cr スピンとの交換相互作用により分裂した励起子発光線の一つに励起光エネルギーを共鳴させることにより(共鳴励起)、Cr スピン S_z 成分の異なる状態間の分布を制御できることを実験的に確認している[7]。例えば、高エネルギー側の発光線にエネルギーを一致させた σ -円偏光の光で励起し、低エネルギー側の発光線の σ -円偏光の発光を観測すると(Fig.

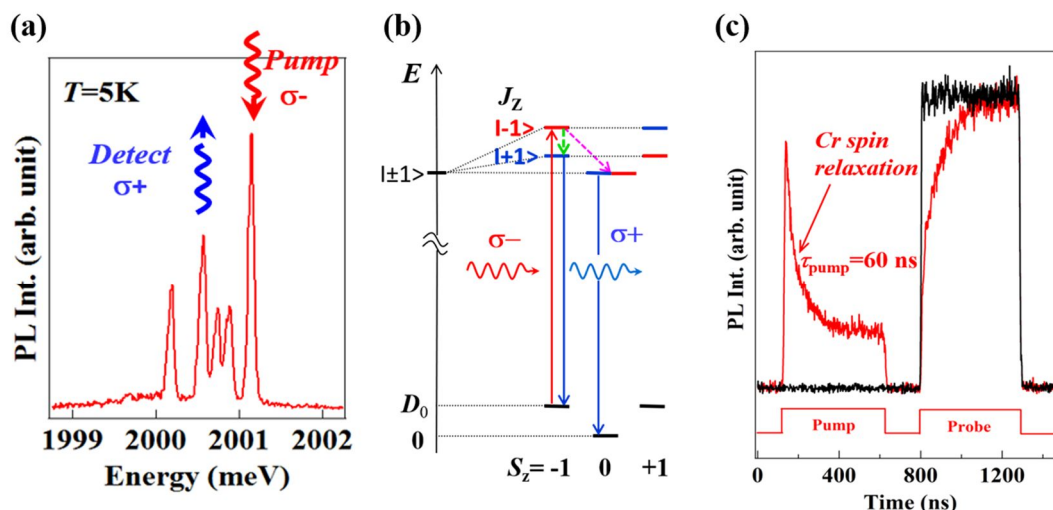


Fig. 1: Optical pumping of Cr spin states[7]. (a) The resonant excitation and detection on the excitonic emission lines split due to the exchange interaction with Cr spin. (b) Energy configuration of the Cr spin S_z states (ground state) and Cr-exciton complex states (optically-excited state). (c) Temporal variation of the PL intensity under the pulsed resonant excitation.

1(a)、Cr スピン成分 $S_z = -1$ の状態で励起子を生成し、同じ Cr スピン $S_z = -1$ で励起子スピンの反転した状態を観測することになる (Fig. 1(b))。パルス状の励起光下で発光の時間分解測定を行うと、Fig. 1(c) に示すように高エネルギー発光線に合わせた共鳴励起のパルス光を照射中に低エネルギー発光線の発光強度が顕著に減衰するという結果が得られている。これは共鳴励起下で Cr スピン $S_z = -1$ 状態の分布が急激に減少することを示しており、励起子との相互作用による Cr スピン状態の遷移に起因していると考えられる (光学ポンピング) [7]。詳しい解析の結果、この光学ポンピングによる Cr スピン状態遷移は以下に述べるようなプロセス (Fig. 2) によるものであることを見出した [8]。すなわち、Cr スピン-励起子の複合体 Cr-X においてまず正孔のスピンの反転し、さらに Cr と正孔のスピンの互いに反転する (flip flop) ことにより $S_z = 0$ の状態に遷移する。さらに Cr スピン遷移の励起光強度依存性の実験結果より、Cr スピンの遷移の主な要因は音響フォノンとの相互作用であり、高強度の光励起下での非平衡分布の音響フォノンの生成により顕著に促進されることが明らかとなった。

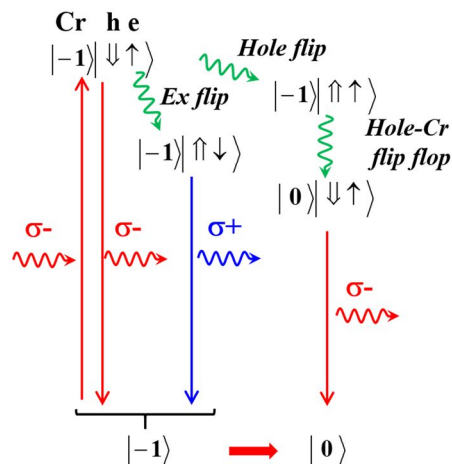


Fig. 2: Mechanism of optical pumping [7]. The Cr spin state $S_z = -1$ is transitioned into the state $S_z = 0$ through the processes of the hole spin flip and the hole-Cr flip flop process.

(2) Cr イオンの価数揺動の励起子発光への影響

Cr 原子を含む CdTe SAD 試料の顕微 PL 測定においては、多数のドットからの発光スペクトルを走査することにより、単一 Cr スピンとの相互作用により分裂した発光スペクトルを見出し、種々の測定を行っている。しかしながら、そうした探索の過程で、発光線の分裂の形状は似ているものの異なるタイプの発光スペクトルを見出した。すなわち中性励起子 X からの発光スペクトルは 3 本の発光線に分裂しているが、その偏光特性は Cr スピンとの交換分裂した発光スペクトルとは異なる特性を示す (Fig. 3(b)) [9]。3 本の発光線は互いに直交した方向の直線偏光性を有する 2 本の発光線 (doublet) から成っている。この直線偏光特性、および併せて行った磁場印加下でのスペクトルの振舞いより、この発光スペクトルは僅かにエネルギーの異なる 3 つの独立したドットからの発光のように見える。以上を含むスペクトルの特徴を詳細に解析した結果、観測された 3 本の発光線の起源は、ドットの近傍に位置する Cr イオンの価数の揺動であると考え、スペクトルの特徴の多くを説明できることがわかった [9]。すなわち、ZnTe 層内に存在する

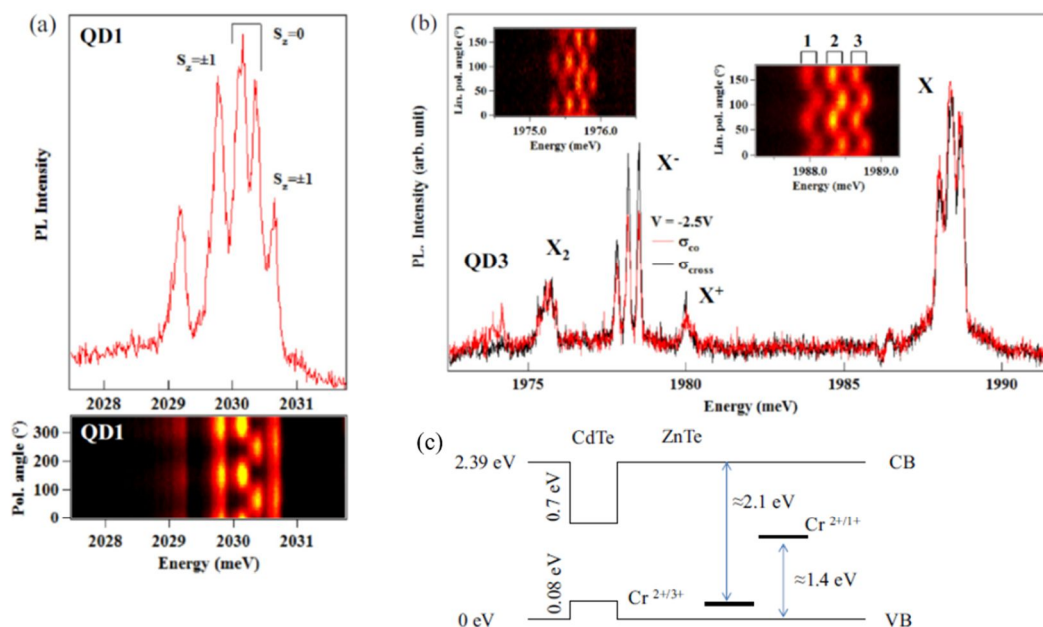


Fig. 3: The emission spectrum split due to charge fluctuation of Cr ion [9]. (a) “Normal” emission spectrum from a dot containing a Cr^{2+} ion inside the dot. The spectrum is exchange-split with single Cr spin. (b) Another type of emission spectrum from a dot with a Cr ion located in the vicinity of the dot. The spectrum is split due to the charge fluctuation of Cr ion between Cr^+ , Cr^{2+} and Cr^{3+} states. (c) Energy level of donor and acceptor states of Cr in ZnTe.

Cr 原子に対しては、Cr イオンの各価数の準位は ZnTe のバンドギャップ中に位置するため(Fig. 3(c))、光励起により生成された電荷はこれらの Cr イオンの準位に束縛され、Cr イオン状態は電氣的に中性である Cr^{2+} から Cr^+ または Cr^{3+} に変化する。Cr イオンがドットの近傍に存在すると、Cr イオンの価数変化が静電ポテンシャルを通じてドット内部に束縛された励起子のエネルギーの変化を齎す。実際に Cr 原子がドットから数 nm 離れた場所に位置するとしたモデルに基づいた計算を行い、観測されたスペクトルの特徴を説明できることを確認し、この解釈の妥当性を示した。

【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. 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. Kazimierzczuk, J. Kobak, M. Goryca, A. Golnik, P. Kossacki, W. Pacuski, *Nat. Commun.* **7**, 10484 (2016).
- [5] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, *Phys. Rev. B* **93**, 161301 (2016).
- [6] F. Tinjod, S. Moehl, K. Kheng, B. Gilles, H. Mariette, *J. Appl. Phys.* **79**, 3035 (1996).
- [7] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, *Phys. Rev. B* **95**, 035303 (2017).
- [8] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, *Phys. Rev. B* **97**, 155301 (2018).
- [9] L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, S. Kuroda, *Phys. Rev. B* **99**, 035309 (2019).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 V. Tiwari, K. Makita, M. Arino, M. Morita, S. Kuroda, H. Boukari, L. Besombes | 4. 巻 101 |
| 2. 論文標題 Influence of nonequilibrium phonons on the spin dynamics of a single Cr atom | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 1-8 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.035305 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 V. Tiwari, K. Makita, M. Arino, M. Morita, T. Crozes, E. Bellet-Amalric, S. Kuroda, H. Boukari, L. Besombes | 4. 巻 127 |
| 2. 論文標題 Radio-frequency stress-induced modulation of CdTe/ZnTe quantum dots | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 234303 ~ 234303 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0011124 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes | 4. 巻 97 |
| 2. 論文標題 Dynamics of a Cr spin in a semiconductor quantum dot: Hole-Cr flip-flops and spin-phonon coupling | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 155301 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.97.155301 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, and S. Kuroda | 4. 巻 99 |
| 2. 論文標題 Charge fluctuations of a Cr atom probed in the optical spectra of a quantum dot | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 35309 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.035309 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|---------------------|
| 1. 著者名 L. Besombes, H. Boukari, V. Tiwari, A. Lafuente-Sampietro, S. Kuroda, K. Makita | 4. 巻 34 |
| 2. 論文標題 Optical control of an individual Cr spin in a semiconductor quantum dot | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Semiconductor Science and Technology | 6. 最初と最後の頁 63001 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6641/ab13f5 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計26件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 9件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 森田 真衣、有野 雅史、牧田 憲治、黒田 眞司、Vivekanand Tiwari、Herve Boukari、Lucien Besombes |
| 2. 発表標題 MBE法によるCr原子1個を含むCdTe 自己形成ドットの作製と光学特性評価 |
| 3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 有野 雅史、森田 真衣、牧田 憲治、黒田 眞司、Vivekanand Tiwari、Herve Boukari、Lucien Besombes |
| 2. 発表標題 表面弾性波を用いたCdTe量子ドットのPLスペクトルの変調 |
| 3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 牧田 憲治、有野 雅史、森田 真衣、黒田 眞司、ティワリ ビベカナンド、ボウカリ エルベ、ピソンプ ルシアン |
| 2. 発表標題 MBE法によるCrを含むCdTe自己形成ドットの作製と光学特性評価 |
| 3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 有野 雅史、森田 真衣、牧田 憲治、黒田 眞司、ティワリ ビベカナンド、ポウカリ エルベ、ピソンプ ルシアン |
| 2. 発表標題 単一のCr原子を含むCdTe自己形成ドットの作製と光学特性評価 |
| 3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 牧田 憲治、有野 雅史、森田 真衣、黒田 眞司、ピソンプ ルシアン、ポウカリ エルベ、ティワリ ビベカナンド |
| 2. 発表標題 ドット中の単一Crスピンの緩和に対する光励起フォノンの影響 |
| 3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 K. Makita, M. Arino, S. Kuroda, A. Lafuente-Sampietro, V. Tiwari, H. Boukari, L. Besombes |
| 2. 発表標題 Emission spectrum from self-assembled CdTe dots containing a single Cr atom |
| 3. 学会等名 10th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech X) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 L.Besombes, H.Boukari, V.Tiwari, K.Makita, M.Arino, M.Morita, S.Kuroda |
| 2. 発表標題 Dynamics and control of a Cr spin in a quantum dot |
| 3. 学会等名 19th International Conference on II-VI Compounds and Related Materials (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 K.Makita, M.Arino, M.Morita, S.Kuroda, L.Besombes, H.Boukari, V.Tiwari |
| 2. 発表標題 Fabrication of self-assembled dots of CdTe containing Cr by MBE and optical characterization |
| 3. 学会等名 19th International Conference on II-VI Compounds and Related Materials (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 牧田 憲治、有野 雅史、須永 雅弘、黒田 眞司、ラフアンテ-サンピエトロ アルバン、ボウカリ エルベ、ピソンプ ルシアン |
| 2. 発表標題 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 |
| 3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, L. Besombes, S. Kuroda |
| 2. 発表標題 Optical control of the single Cr spin in a semiconductor quantum dot |
| 3. 学会等名 10th International School and Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solid (PASPS10) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 M. Sunaga, K. Makita, A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, and S. Kuroda |
| 2. 発表標題 Fabrication of CdTe dots containing single Cr atom and optical control of single spin |
| 3. 学会等名 20th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (MBE2018) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 A. Lafuente-Sampietro, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, L. Besombes, S. Kuroda |
| 2. 発表標題 Optical detection and manipulation of a single Cr spin in a semiconductor quantum dot |
| 3. 学会等名 Annual Workshop of Center for Spintronics Research Network (CSRN) Osaka (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|-------|--------------------------------|----------------------------------|----|
| 研究協力者 | ベソンプ ルシアン (Besombes Lucien) | C N R S ネール研究所・Senior Researcher | |
| 研究協力者 | ブカリ エルベ (Boukari Herve) | C N R S ネール研究所・Senior Researcher | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | |
|---------|---------------------|--|--|
| フランス | CNRS, Neel Institut | | |