

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21116

研究課題名(和文)半導体ドット中の単一磁性スピンの弾性波によるコヒーレント制御と応用

研究課題名(英文) Coherent control of single magnetic spin in semiconductor dots using elastic wave 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) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：我々は、Cr原子1個を含むCdTe自己形成ドット(SAD)を対象に、ドット中の単一Crスピンの様々な特性を詳細に調べ、量子情報処理への応用、とりわけ格子歪によるCrスピンの変調の実現を目指して研究を行っている。本研究では、Crを含まないCdTe SADにおいて表面弾性波(SAW)を発生させる試料構造を作製し、ドットの励起子発光スペクトルがSAW発生に伴う格子歪により変調されることを検証した。またCrがこれまでとは異なる荷電状態の1価のイオン(Cr⁺)にあるドットからの発光を観測し、その振舞いをダイナミクスも含めて詳細に調べ、Cr⁺状態のスピンは20 μ sという長い緩和時間を有することを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体中の単一スピンは量子情報処理への応用の観点より注目を集め、種々の系を対象とした研究が行われている。本研究対象の半導体ドット中の遷移元素の原子1個のスピンは、これまでの我々の研究により、比較的長いコヒーレンスを保ち、また格子歪と強く結合することが明らかとなっており、量子ビットとして有望な系である。本研究では、格子歪によるCrスピンの変調の前段階として、Crを含まないドットを対象に表面弾性波による励起子発光の変調を実験的に検証し、またCrの異なる荷電状態におけるスピンの振舞いを明らかにした。これらの成果は遷移元素の単一スピンの量子情報処理への応用の観点から意義を有し、今後の進展が期待される。

研究成果の概要(英文)：We have been studying CdTe self-assembled dots (SADs) containing a single Cr atom in order to investigate various properties of single Cr spins in the dots in detail and to realize their application to quantum information processing, especially modulation of Cr spins by lattice distortion. In this study, we fabricated a sample structure that generates surface acoustic waves (SAWs) for CdTe SADs without Cr and verified that the exciton emission spectrum from the dots is modulated by the lattice distortion associated with the SAW generation. We also observed the emission from dots in which Cr is in a different charged state (Cr⁺) from previous experiments. We investigated their detailed behaviors including dynamics, and found that the spin states of Cr⁺ have a long relaxation time of 20 μ s.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：単一スピン 量子ドット 量子ビット 表面弾性波

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調べ、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の測定が行われ、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(SAD)を作製し、ドット中の単一 Cr スピンの振舞いを調べてきた[5-7]。これまでの研究で、ドットに束縛された励起子発光スペクトルは単一 Cr スピンとの相互作用により分裂し[5]、この分裂した個々の発光線の観測および発光線のエネルギーに合わせた光励起(共鳴励起)により単一 Cr スピン状態を検出し、また制御できることを実証した[6,7]。また Cr スピンはドット中の格子歪の影響を強く受け、Cr スピンの各状態が大きく分裂していることを明らかにした[5]。さらに共鳴励起下の時間分解発光測定により、ドット中の Cr スピンのダイナミクスを調べた[6,7]。その結果、励起子の存在しない暗状態では、Cr スピンは $2\mu\text{s}$ 程度と比較的長いコヒーレンスを保ち、量子ビットとしての応用可能であることを実証した[6]。本研究では、以上のこれまでの成果を背景として、ドット中の単一 Cr スピンの格子歪との強い結合を利用して、格子歪による Cr スピン状態の変調の実現を目指し、その前段階として、Cr 原子を含まないドットにおいて表面弾性波に励起子発光の変調を実験的な検証を試みた。また Cr 原子を含むドットにおいて観測される多様な発光スペクトルに着目し、その振舞いを詳細に調べると共に発光の起源を考察した。

2. 研究の目的

本研究では、格子歪による Cr スピン状態の変調の実現を目指し、その前段階として、Cr 原子を含まない CdTe SAD 試料を対象に、表面弾性波(SAW)を発生させる試料構造を作製し、SAW に伴う格子歪によるドットからの発光スペクトルの変調を検証することを目指した。また Cr 原子を含むドットからの多様な発光スペクトルに着目し、その振舞いをダイナミクスを含めて詳細に調べ、それに基づき発光の起源について考察を行った。

3. 研究の方法

CdTe SAD 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[8]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

(1) 表面弾性波(SAW)による CdTe SAD の発光スペクトルの変調

Cr 原子を含まない CdTe SAD において SAW の発生を可能とする試料構造を作製し、SAW 発生に伴う時間と共に変動する格子歪による CdTe ドット中の束縛量子準位の変調を観測した[9]。Fig. 1 に示すように、ZnTe/CdTe SAD/ZnTe サンドイッチ構造の表面に大きな圧電効果を持つ ZnO を積層し、その上に楕型電極(IDT)を装着して、高周波($\sim\text{GHz}$)の交流電圧の印加により、SAW を誘起した。SAW は試料内部に位置するドットに時間的に変動する格子歪を齎し、ドットに束縛された励起子準位に刃調を与える。従って、ドットからの励起子発光スペクトルの観測により、ドット層の位置での局所的な格子歪をプローブすることが出来る。

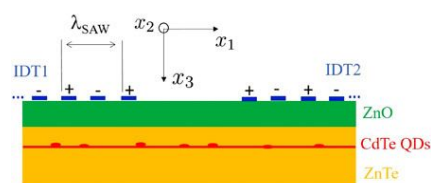


Fig.1: Sample structure for generation of SAW.

単一のドットからの発光スペクトルの SAW による変調の例を Fig.2 に示す。SAW の周波数を変化させると、ちょうど IDT の共振に対応する周波数($\sim 0.72\text{GHz}$)において発光スペクトルの変調が最大となる。共振周波数の付近では、Fig.2(b)の共振周波数付近の拡大図に見るように、 2MHz

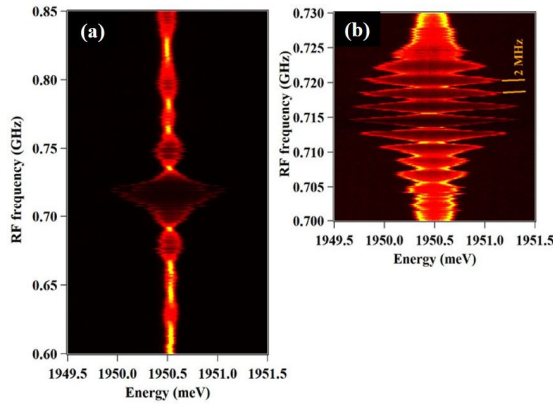


Fig.2: Modulation of PL spectrum from a single dot induced by the strain field of SAW.

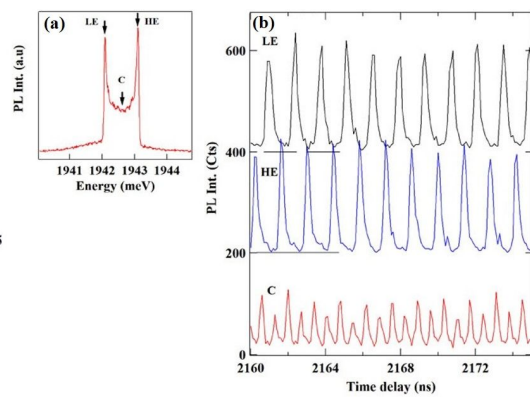


Fig.3: Time evolution of the PL intensity modulated by SAW on the respective energies indicated in (a).

の周期での変調が観測され、これは2つの相対する IDT 間での SAW の干渉に起因するものと考えられる(キャビティ効果)。共振状態においては、時間積分の発光スペクトルは Fig.3(a) に見るように広がった形となるが、これは格子歪の周期的変動に伴いドットの束縛エネルギーが正弦波状に振動し、それが重ね合わされた結果、エネルギーの最大と最小の点でピークとして現れたものである。発光の時間分解測定により、SAW に伴う励起子発光の変調を直接観測することが出来る。Fig.3(b) は SAW 発生により広がったスペクトル(Fig.3(a))の各エネルギー位置における発光強度の時間変化を示したものである。励起子発光エネルギーの周期的な変動に伴い、各エネルギーにおける発光強度が振動しており、特にエネルギーの最大・最小(図中の HE, LE)における強度はちょうど逆の位相で変化し、また中央のエネルギー(C)の強度は HE, LE の2倍の振動数で変化している。この時間変化においては、各エネルギー位置の発光線は 250ps 程度の時間間隔で切り替わっており、これは SAW を単一光子源の高速変調の手法として用いることが可能であることを示している。

さらに磁場印加下では、励起子準位のゼーマン分裂と SAW による準位のシフトを組み合わせることで、同一エネルギーの発光線における偏光状態の高速スイッチングを実現することが出来る。SAD 試料の成長方向に平行な磁場を印加すると、発光スペクトルは励起子のスピン状態に応じて2本の発光線に分裂し(ゼーマン分裂)、それぞれ異なる円偏光 σ^+ , σ^- の発光を示す。この状態で SAW を印加し SAW による発光エネルギーのシフトがゼーマン分裂と等しくなるようにすると、Fig.4 のように広がったスペクトルの中心の位置で2つの円偏光の発光エネルギーが重なり、時間的には σ^+ , σ^- の円偏光の発光が交互に現れ、その周期は SAW の周波数の2倍となる。この手法は単一光子源において SAW による偏光状態の高速変調の実現に繋がると期待される。

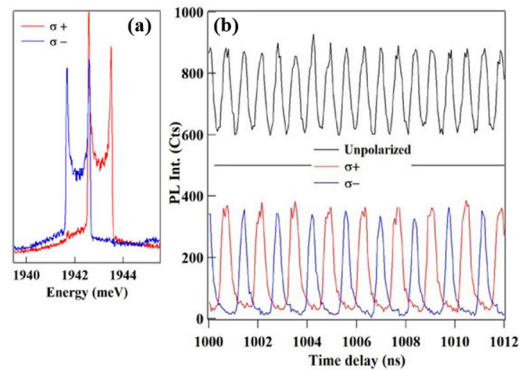


Fig.4: Modulation of PL under a longitudinal magnetic field of 6T.

(2) Cr の異なる荷電状態 Cr^+ からの発光とスピン緩和

Cr 原子 1 個を含む CdTe の SAD からの励起子発光においては、これまで Cr 原子が電気的に中性である 2 価のイオン(Cr^{2+})状態での発光が多く観測されているが、それと異なる特徴を有する多様な発光スペクトルも観測されている。その中で、今回はドット中で Cr が負に帯電した 1 価のイオン(Cr^+)状態の時の励起子発光と考えられる発光スペクトルに着目し、その振舞いを詳細に調べると共に、その起源ならびに Cr^+ 状態のスピン緩和について解析を行った[10,11]。この場合、発光はドット中で正に帯電した荷電励起子 X^+ の再結合によるもので、 X^+ のエネルギー準位は Cr^+ との相互作用により分裂し、発光スペクトルは 7 本以上の発光線から成る。今回、この $X^+-\text{Cr}^+$ 状態からの発光のスペクトルをそのダイナミクスも含め詳しく調べた。 $X^+-\text{Cr}^+$ 状態からの発光スペクトルの典型例を Fig. 5 に示す。スペクトルは 7 本またはそれ以上の発光線に分裂

し、これらの発光線の真ん中に大きなギャップがあるという特徴を有する。また磁場を印加すると、Fig. 5 下図のように発光線はゼーマン分裂によりシフトするだけではなく、随所で発光線間の反交差現象(anti-crossing)が生じ、複雑な様相を呈する。これらの発光スペクトルの振舞いは、ドット中で Cr は負に帯電したイオン状態 Cr^- となっており、それと相互作用する正に帯電した荷電励起子 X^+ の再結合による発光として説明できる。この場合の電子状態は Fig. 6 のように表わされ、ドットに Mn が添加された場合の $\text{Mn}^{2+}-\text{X}^+$ による発光の場合[12]と同様のエネルギー準位となる。すなわち励起状態は X^+-Cr^+ の複合状態から成り荷電励起子 X^+ のうち電子のみが Cr^+ と相互作用するのに対し、基底状態は正孔と Cr^+ から成る複合状態 $h-\text{Cr}^+$ となり、正孔と Cr^+ との間の相互作用により準位の分裂が生じる。

これらのスピンのダイナミクスを調べるため、パルスレーザーを用いた共鳴励起を行い、発光の時間分解測定を行った。Fig.7 に示す通り、励起光のエネルギーを発光スペクトルのうちの高エネルギー側の発光線に共鳴させ、低エネルギー側の発光線の発光強度の時間変化を測定した。その結果、励起と検出の直線偏光が互いに直交した cross-linear 配置では弱い発光しか観測されないのに対し、励起光として非共鳴のレーザー光を加えると、発光強度は著しく増大する。この非共鳴レーザー光による付加的な励起の効果は、 $h-\text{Cr}^+$ 状態の光ポンピング効果により説明できる。すなわち、共鳴励起の下では $h-\text{Cr}^+$ の特定のspin状態が空乏化されるのに対し

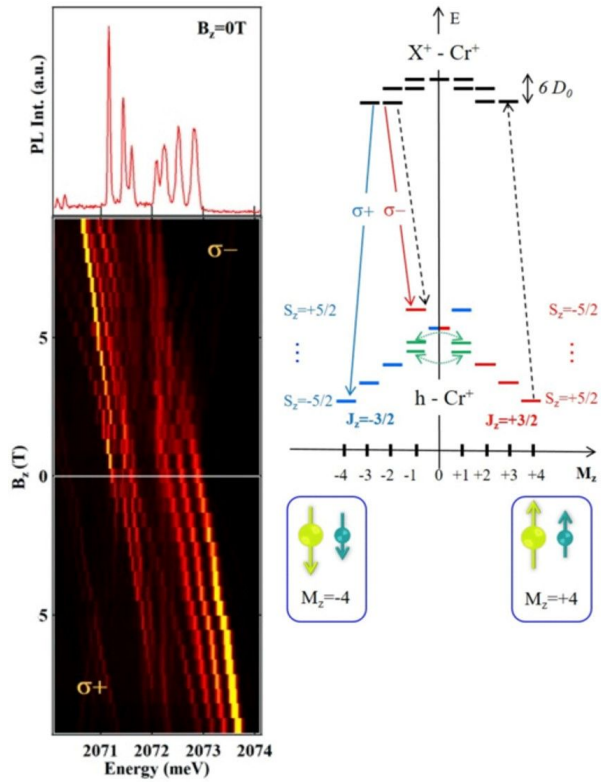


Fig.5 (left): PL spectrum from a dot containing a Cr^+ and its magnetic-field dependence.

Fig.6 (right): Energy levels of the excited (X^+-Cr^+) and ground ($h-\text{Cr}^+$) states in a Cr^+ -doped QD.

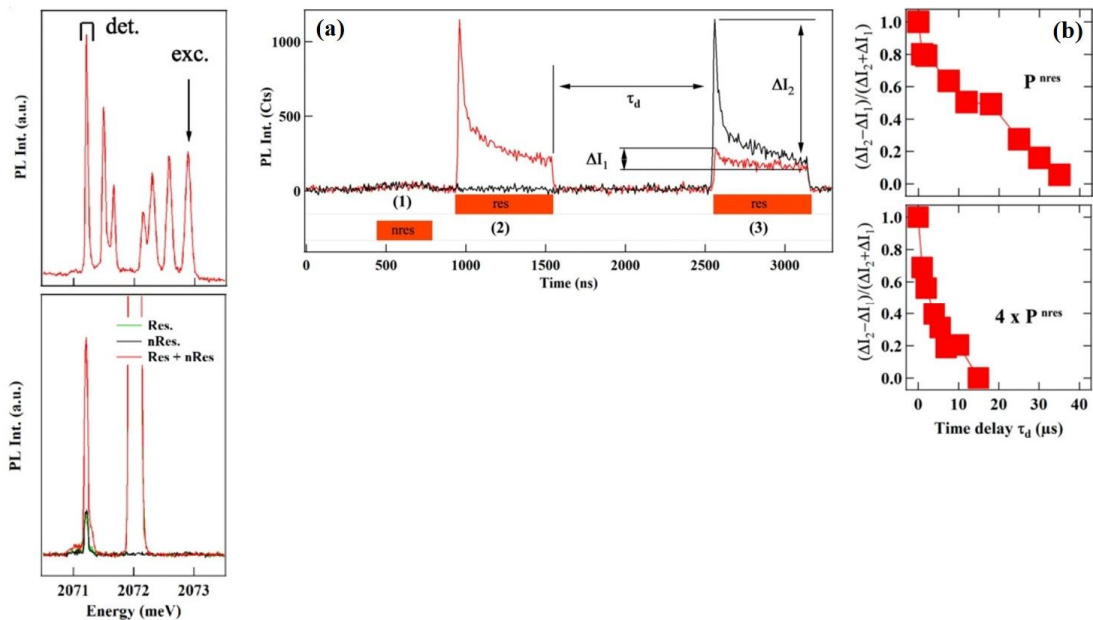


Fig.7 (left): Resonant PL spectrum observed on the low-energy line for an excitation on the high-energy line.

Fig.8 (right): (a) Three-pulse resonant PL experiment in co-circular excitation/detection configuration. (b) Estimate of the spin relaxation time from the transient of the PL intensity.

(光ポンピング)、非共鳴レーザー光の励起はフォノンの生成を通じて Cr⁺スピンの温度を上昇させ、スピン反転を促進する。

h-Cr⁺状態のスピン緩和を直接調べるため、Fig. 8 に示すような 3 つの励起光パルスを用いた時間分解励起 / 発光測定を行った。最初の非共鳴励起パルス(pulse 1)は *h*-Cr⁺の異なるスピン状態を生成させ、2 番目の円偏光の共鳴励起パルス(pulse 2)は *h*-Cr⁺の特定のスピン状態を空乏化(光ポンピング)し、その後の時間遅れ τ_d を伴う 3 番目の共鳴励起パルス(pulse 3)により *h*-Cr⁺のスピン緩和を検知する。すなわち pulse 3 の励起直後の発光強度の時間変化(transient) ΔI により、pulse 2 により空乏化された *h*-Cr⁺の特定のスピン状態が暗時間 τ_d の間にどれだけ回復したかを評価できる。Pulse 2 の有無による pulse 3 励起時の transient の比 $(\Delta I_2 - \Delta I_1)/(\Delta I_2 + \Delta I_1)$ の τ_d 依存性によりスピンの緩和時間を見積もることができ、Fig. 8(b)に示す通り、20 μ s 程度と極めて長い緩和時間を有することが明らかとなった。ただ、スピン緩和時間は非共鳴励起パルスの強度により変化し、強度の増大により短くなることが示された。ここで得られたスピン緩和時間は *h*-Mn²⁺の場合[12]に比べて一桁以上大きい。この違いは正孔と Cr⁺のスピン間の相互作用は Mn²⁺の場合と違って強磁性的であるため、スピンのフリップフロップ過程が抑制されることによるものと考えられる。

(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, 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] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **95**, 035303 (2017).
- [7] A. Lafuente-Sampietro, H. Utsumi, M. Sunaga, K. Makita, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **97**, 155301 (2018).
- [8] J. M. Hartmann, G. Feuillet, M. Charleux, H. Mariette, J. Appl. Phys. **79**, 3035 (1996).
- [9] V. Tiwari, K. Makita, M. Arino, M. Morita, T. Crozes, E. Bellet-Amalric, S. Kuroda, H. Boukari, L. Besombes, J. Appl. Phys. **127**, 234303 (2020).
- [10] V. Tiwari, M. Arino, S. Gupta, M. Morita, T. Inoue, D. Caliste, P. Pochet, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **104**, L041301 (2021).
- [11] V. Tiwari, M. Arino, S. Gupta, M. Morita, T. Inoue, D. Caliste, P. Pochet, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes, Phys. Rev. B **106**, 045308 (2022).
- [12] A. Lafuente-Sampietro, H. Boukari, L. Besombes, Phys. Rev. B **95**, 245308 (2017).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 V. Tiwari, M. Arino, S. Gupta, M. Morita, T. Inoue, D. Caliste, P. Pochet, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes	4. 巻 106
2. 論文標題 Spin dynamics of positively charged excitons in Cr ⁺ -doped quantum dots probed by resonant photoluminescence	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 45308
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.045308	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, M. Arino, S. Gupta, M. Morita, T. Inoue, D. Caliste, P. Pochet, H. Boukari, S. Kuroda, L. Besombes	4. 巻 104
2. 論文標題 Hole-Cr ⁺ nanomagnet in a semiconductor quantum dot	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041301
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L041301	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, 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 35305
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
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

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 井上 智貴, 安藤 舜, 稲井 聡志, 塩川 凜人, 丸本 一弘, H. Boukari, L. Besombes, 黒田 眞司
2. 発表標題 CdTe 自己形成ドット中の Cr の荷電状態の ESR による検出
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井上 智貴, 安藤 舜, 稲井 聡志, 塩川 凜人, 丸本 一弘, ボウカリ エルベ, ビソンプ ルシアン, 黒田 眞司
2. 発表標題 Cr を添加した CdTe 自己形成ドットの ESR 測定
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井上 智貴, 森田 真衣, 安藤 舜, 黒田 眞司, ティワリ ビベカナンド, ブカリ エルベ, ベゾンプズ ルシアン
2. 発表標題 Cr原子を添加したCdTe/ZnTe量子井戸における零次元励起子の発光スペクトル
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 森田 真衣, 井上 智貴, 安藤 舜, 黒田 眞司, Vivekanand Tiwari, Herve Boukari, Lucien Besombes
2. 発表標題 Crを添加したCdTe量子井戸の作製と光学特性評価
3. 学会等名 第26回半導体スピン工学の基礎と応用
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森田 真衣、井上 智貴、安藤 舜、黒田 眞司、Vivekanand Tiwari、Herve Boukari、Lucien Besombes
2. 発表標題 Crを添加したCdTe量子井戸の作製と光学特性評価
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

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

〔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	ベソンプズ ルシアン (Besombes Lucien)	Institut Neel・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
---------	---------