

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月 20日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22540328

研究課題名（和文） 光子・電子・核スピン結合系の量子状態制御の理論的研究

研究課題名（英文） Theory of quantum state control in photon-electron-nucleus coupled system

研究代表者

高河原 俊秀 (TAKAGAHARA TOSHIHIDE)

京都工芸繊維大学・工芸科学研究科・教授

研究者番号：00111469

研究成果の概要（和文）：Si:Pやダイヤモンド中のNVセンターでは、光励起による核スピンの初期化が実現されているが、100%の完全偏極には到っていない。ここでは一般的な固体中の中性ドナー原子を考え、ドナー束縛励起子を中間状態とする高速でかつ完全な核スピン偏極をもたらす光学的方法を考案した。ドナー束縛励起子には三重項と一重項状態がある。まず基底状態である一重項状態を経由する光学過程により、ドナー電子のスピンの初期化が可能であることを示した。次に三重項基底状態を光励起すると、それがエネルギー的に近い一重項状態の励起状態に遷移する時に、超微細相互作用によりドナー原子の核スピンをフリップさせる機構が有効であることを明らかにした。スピン偏極したドナー電子から三重項基底状態励起子への光励起を繰り返し行えば、核スピンの完全偏極を実現できる。

研究成果の概要（英文）：The nuclear spin polarization is realized optically in the system of Si:P and NV center in diamond but the perfect spin polarization is not yet achieved. Here we proposed an optical method to realize the perfect spin polarization of the nucleus in the general neutral donor system. First of all, the spin polarization of the donor electron can be realized optically through the spin-singlet donor-bound exciton state. Then the spin-triplet exciton state is optically excited and this state makes a transition to the spin-singlet exciton state thereby flipping the spin of the donor nucleus through the hyperfine interaction. This process is not based on the detailed balance and can achieve the perfect spin polarization of the nucleus by repetitive optical excitation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性I

 キーワード：(1) スピンエレクトロニクス (2) 量子エレクトロニクス (3) 量子コンピュータ
(4) 量子ドット

1. 研究開始当初の背景

固体素子を用いて量子情報処理を行う場合、最も有望な動作単位(以下量子ビット、qubit と呼ぶ)の一つとして電子スピンの存在がある。量子情報処理を実現するためには、qubit の“状態の初期化”、“演算(時間発展)”、“状態の測定”の三要素が不可欠である。単一電子スピンについては、最近これら三要素が実現された。そこで次の目標は、空間的に離れた電子スピン qubit 間の gate 操作或いはエンタングルメント生成、更には電子スピンと光子によるスケーラブルな(多 qubit への拡張可能な)量子ネットワークを形成することである。これまで二 qubit 間のゲート操作を行うために結合量子ドットが提案されていたが、このような近接電子間のクーロン/交換相互作用のみでは、空間的に離れた qubit 間の量子相関を生成するのは難しいし、多 qubit 系で任意の qubit 対をダイナミックに相関させる操作は殆ど不可能である。そこで、スケーラブルな量子ネットワークを形成するには、光子を媒介として電子スピン間の量子相関を生成する方法がベストと考えられるが、具体的なシステムの構成が課題となっていた。

2. 研究の目的

このようなシステムとしては、qubit としての単一電子とその量子状態を記憶するメモリとしての原子核スピンとを単位とし、これらの多数の単位がフォトニックネットワークで結ばれた系を考えることができる。この研究では、半導体素子を用いた量子ネットワークを形成するための物理的素過程、最適な素子材料、素子構造、及び量子情報アルゴリズムの探索を行う。我々は最近、二重量子ドットにおける電子対の singlet-triplet 間遷移のダイナミクスを研究し、電子・原子核スピン結合系の新しい側面を解明した(O. Cakir and T. Takagahara, Phys. Rev. B 77, 115304 (2008))。更にこれらの結果を踏まえて、電子・原子核スピンのインターフェースを用いた量子メモリーが実現されることを提案した(O. Cakir and T. Takagahara, Phys. Rev. B 80, 155323 (2009))。これらの要素技術を組み合わせて、光子・電子・原子核結合系に基づいた量子情報処理システムが構築される。このシステム構築に要請される新しいアルゴリズム、最適な半導体構造や最適な光波長等を探索、研究するのが主要な目的である。

量子ネットワークの形成という大きな目標からすると脇役になるが、決してないがし

るにはいけないものとして、上述した核スピンによる量子メモリーがある。ドナー原子の場合、実際には核スピンを持つ母体原子も近傍に存在するので、これらを偏極させる必要がある。核スピン偏極のダイナミクスについては、興味深い側面が次々に明らかになっている。なかでも、単一電子を含む量子ドットをモードロックレーザーのパルス列または CW レーザーを用いて励起することにより、nuclear field locking という現象が見出されている(Greilich et al., Science, 317, 1896 (2007); Xu et al., Nature 459, 1105 (2009))。これは、原子核の集団が外界からの刺激に応じてある種の秩序状態に移行する現象である。これにより、原子核が電子に及ぼす実効的な磁場(Overhauser field)の揺らぎが抑えられ、電子スピンの本来のコヒーレンス時間が実現される。しかし、この状態に移行させるには秒以上の時間がかかる。そこで本研究では、これらの実験がなされた III-V 族半導体ではなく、IV 族または II-VI 族半導体の単一電子・少数原子核結合系において、ナノ秒程度の短い時間で秩序状態に移行させる手法を考案する。これにより、qubit としての電子スピンのコヒーレンス時間が延伸し、同時に原子核スピンの量子メモリーとしての機能も向上する。

3. 研究の方法

電子スピンと光子によるスケーラブルな量子ネットワークを形成する際のノードとなる単位として、同位体制御した IV 族元素半導体または II-VI 族半導体量子ドットにおけるドナー原子を考える。ここでは、ドナーの電子スピンの qubit として、一方ドナー原子の核スピンが量子メモリーとしての役割を担う。空間的に離れた場所にある電子スピン間の量子相関を生成するには、電子から光子への量子状態転写、転写を受けた光子間の相関測定が基本的な操作になる。前者ではドナー束縛励起子からの発光の偏光特性、後者では相関測定用の別の半導体量子ドットにおける励起子分子からの発光の偏光特性を生かしたアルゴリズムを考案する。電子・原子核スピン結合系については、新奇な秩序状態の形成機構の解明、少数原子核スピン系を完全偏極させるアルゴリズムの提案、更には正孔との異方的超微細相互作用による新しい現象の探索を行う。

上述したように、単一電子を含む量子ドットにおいては nuclear field locking という現象が見出されている。しかし、この時の原子核スピンの量子状態は定性的にしか理解されていない。この状態を解明するため、平均場的な扱いしかできない多数原子核スピ

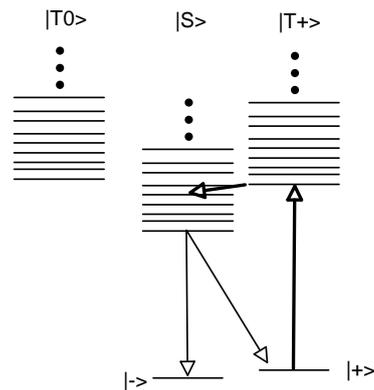
ン系ではなく、同位体制御した IV 族または II-VI 族半導体ナノ構造における単一電子・少数原子核スピン結合系を取り上げる。光励起されていない時は核スピンは電子と相互作用し、光励起されている時は trion 状態を構成する正孔と相互作用するため、確率論的な取り扱いが必須となる。この系は少数原子核系であるため、時間的振舞いを含めて秩序状態への成長過程を厳密に議論できる点がメリットである。ここでは、単一ドナー原子と周辺の少数不純物核スピンを取り入れたモデルを扱い、核スピン系の量子状態の時間的发展とその不純物核スピンの個数への依存性を調べる。個数の大きい極限が、III-V 族半導体量子ドットでの実験に対応するはずである。これらの結果に基づいて、最終的に到達する原子核のスピン状態を解明する。同時に、少数原子核スピン系を完全に偏極するにはどのような手段があるかを考察する。

我々が考えているドナー原子系では、ドナー原子核のみが核スピンを持っているので、単一電子・単一原子核スピン結合系になっている。この系では、原子核スピンは熱浴ではなく、電子とともに一つの量子系となっている。我々は最近、同位体制御した IV 族または II-VI 族半導体について、少数電子・単一原子核スピン結合系のダイナミクスを調べ、量子メモリーとしての機能を考察した (Phys. Rev. B 80, 155323 (2009))。その結果、ドナー原子のような局在電子系が量子メモリーとして最適であること、電子・原子核スピン間の量子状態転写が 10ns 程度の高速で実現できることを明らかにした。しかし、実際には核スピンを持つ母体原子も近傍には存在する。これらの不純物核スピンの存在が、ドナーの電子スピンのデコヒーレンスを引き起こす。このデコヒーレンスを抑えるには、不純物核スピンの偏極が必要になる。ここでは問題を一般化して、核スピンの初期化のアルゴリズムを考案する。Si:P やダイヤモンド中の NV センターでは、光励起による核スピンの初期化が試みられているが、100%の完全偏極には到っていない。核スピンを偏極させる過程においては、電子と原子核スピンのゼーマンエネルギーの大きな差を如何にして克服するかが鍵となる。しかし、偏極過程の中間状態においてはエネルギー保存の制約がないので、適切な遷移を組み合わせることにより高速でかつ完全な偏極をもたらす光学的方法が可能ではある。その方法を見出すために、ドナー原子と周辺の不純物核スピンを含めた系のエネルギー準位と偏光特性を計算し、最適な光学遷移を探索する。

4. 研究成果

(1) 新しい原子核スピン偏極方法の提案

少数電子・単一原子核スピン結合系のダイナミクスを調べた。具体的には、核スピンの初期化のアルゴリズムを考案した。Si:P やダイヤモンド中の NV センターでは、光励起による核スピンの初期化が試みられているが、100%の完全偏極には到っていない。核スピンの偏極過程においては、電子と原子核スピンのゼーマンエネルギーの大きな差を如何にして克服するかが鍵となる。ここでは、ドナー束縛励起子を中間状態とする高速でかつ完全な偏極をもたらす光学的方法を考案した。



原子核スピン偏極の原理：

$|+\rangle$, $|-\rangle$ はドナー電子のスピン状態を表す。スピン一重項励起子状態 $|S\rangle$ を経由する光学過程により電子スピンを $|+\rangle$ 状態に偏極する。次に $|+\rangle$ 状態からスピン三重項励起子状態 $|T+\rangle$ へ光学的に励起すると、そのエネルギーに近い $|S\rangle$ の励起状態へ遷移する際にドナー原子核スピンのフリップが起こる。矢印は状態の遷移を表す。

ドナー束縛励起子には三重項と一重項状態がある。まず基底状態である一重項状態を経由する光学過程により、ドナー電子のスピン偏極が可能であることを示した。次に三重項基底状態を光励起し、それがエネルギー的に近い一重項状態に遷移する時に、超微細相互作用によりドナーの核スピンをフリップさせる機構が有効であることがわかった。一重項状態に遷移した後の励起子の緩和にはフォノンの関与が必要だが、この緩和は極めて速く ($< 10^{-12}$ s)、三重項状態への逆戻りは無視できる。即ち、一方向性の非熱平衡型偏極過程になっている。従って、このスピン偏極したドナー電子から三重項基底状態励起子への光励起を繰り返し行えば、核スピンの完全偏極を実現できる。ドナー束縛励起子は電子 2 個、正孔 1 個、固定原子核からなる多粒子系であり、その励起状態も含めた固有状態

の全貌は実験的にも、理論的にも未開拓である。そこで、この全貌を明らかにすべく新しい計算方法を開発した。この過程においては、全角運動量が0の基底状態が主として寄与すると予想されるが、核スピン偏極においては、全角運動量が0でない状態も重要な寄与をする可能性がある。そこで、全角運動量が0でない状態を計算する方法を定式化し、一般化した計算プログラムを開発した。II-VI族半導体 ZnSe では、ドナー束縛エネルギー及び励起子束縛エネルギーが大きく、全角運動量が0でない状態はエネルギー的に高いのでフォノンの関与する緩和過程への寄与は大きくないことがわかった。

(2) 新しい計算手法の開発

ここでは、基底状態のみならず励起状態のエネルギー準位の計算が必要であった。一般に励起状態の計算は難しく、今回も計算方法の開発に多大の時間を要した。そのため発表論文数は少ないが、ここで開発した計算手法は汎用性があり、様々な分野に応用されることが予想される。ドナー束縛励起子は2個の電子、1個の正孔からなる3粒子問題であるが、そのクーロン・交換相互作用の計算には工夫を要した。量子化学で通常採用されるガウス型軌道では十分な精度が得られず、また波動関数が漸近的にドナー束縛電子と励起子の積の形に近づく様子が見て取れない。やはり、水素原子様(スレーター型)の波動関数を採用するのが最善であることがわかった。結局回転楕円体座標を採用し、更にクーロン積分に関する新しい公式を見出して、精度の良い計算を完成させた。実験的にもドナー束縛励起子の励起状態の知見は殆どなく、この分野のマイルストーン的な仕事になると思われる。

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 3 件)

- ① T. Takagahara, “A Proposed Scheme for the Electron and Nuclear Spin Initialization in General Localized Electron Systems,”
Proceedings of the CLEO/QELS 2011, Optical Society of America, JTuA6. (査読有)
- ② M. Kumagai and T. Takagahara, “Topological transition by dielectric control of exciton wavefunction in thin nanotube

structure,” Solid State Commun. 151, 663-666 (2011). (査読有)

- ③ T. Takagahara, “Theory of unitary spin rotation and spin-state tomography for a single electron and two electrons,” J. Opt. Soc. Am. B 27, A46-62 (2010). (査読有)

[学会発表] (計 1 件)

- ① T. Takagahara, “A Proposed Scheme for the Electron and Nuclear Spin Initialization in General Localized Electron Systems,”
CLEO/QELS 2011, Optical Society of America, May 5, 2011, Baltimore (米国).

[その他]

ホームページ等

<http://www.cis.kit.ac.jp/~takagha/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高河原 俊秀 (TAKAGAHARA TOSHIHIDE)
京都工芸繊維大学・工学科学研究科・教授
研究者番号：00111469

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：