半導体量子ドット中での多電子状態の読み出しとスピン緩和現象の解析

物質設計評価施設　吉見 一慶
物性理論研究部門　加藤 岳生

本研究の経緯は少し変わっている。本研究は東北大・大阪大・物性研・分子研の四機関による計算物質科学育成コンソーシアム(PCoMS)[1]というプロジェクトをきっかけに行われた。PCoMS では“ハイパフォーマンスコンピューティング技術”と“計算物質科学の複数分野の専門性”を合わせ持つ次世代研究者の育成を目指し、各機関 2 名ずつ次世代研究者候補を雇用する。次世代研究者候補は、自分の異なる機関に一年で一ヶ月以上滞在し、専門分野以外の技術・知識を獲得するという義務が課される。執筆者の一人である吉見も PCoMS の次世代研究者候補の一人であった。一方で、吉見の物性研での業務はソフトウェア開発・高度化プロジェクト(PASUMS)[2]のプロジェクトマネジメント・開発であり、こちらも疎かにはできない。そこで、PASUMS で開発したソフトウェアを活用した応用研究を長期滞在型研究で実施する、という一石二鳥の研究計画立案に挑んだ。研究計画立案では、ソフトウェア・手法の活用ができるような研究テーマ探しが肝となる。そこで、最初のステップとして 3 機関に所属する教員およびその専門分野を必死に調査した。その結果、本研究の共同執筆者であり、かつ受け入れ先でもある大阪大学大岩顕教授にたどり着いた。大岩教授はメゾスコピック物理について精力的に実験・研究をされており、PCoMS のコーディネータかつ本研究の共同研究者でもある加藤所員も交流がある。そこで、加藤所員に依頼し大岩教授へ取り次ぎを行ってもらい、日本物理学会での議論を行う運びとなった。

話し合いでは、量子ドット系での多電子状態の読み出しに関する研究に焦点が当たった。量子ドットでは電子 1 個を微小な半導体に閉じ込め、そのスピンを情報処理に利用することが可能である[3]。その性質を応用し、スピンの向きの制御や量子ドットの集積化といった基盤技術の開発が精力的に行われている。さて、電子 1 個の場合は取り扱えるスピン状態はアップとダウンの 2 状態に過ぎない。しかしながら、取り扱う電子の個数が増えていくと、とりうるスピンの状態量は指数関数的に増加する(電子 N 個では 2^N 状態)。そのため、多電子状態を取り扱うことができれば、スピンで表せる情報量の増加や、計算ステップ数の削減などが期待される。さて、スピンを情報処理に利用するためには、スピン情報の読み出しは必須な技術となる。これまで、電子 1 個や 2 個のスピン情報の読み出しは達成されてきたが、3 個以上の多電子の場合において、全てのスピンが揃った「高スピン状態」か、それともスピンが互いに逆を向いた「低スピン状態」かの読み出しはまだ実現されていなかった。大岩研木山助教は東京大学樽茶研究室で博士課程時代に本研究に取り組んでいた。実験結果は得られていたものの、その解釈は単純ではなく、論文出版に向け理論的なサポートが必要な状況にあった。複数の電子かつ緩和現象を取り扱う場合には、より多くの励起状態が現象に絡む。一方で複数電子状態とはいえ、本実験で取り扱う電子数は数個であるため、電子状態を厳密に取り扱うことができる厳密対角化という手法が力を発揮する。当時、PASUMS では厳密対角化向けのソルバーHΦ[4]を開発していたこともあり、まさしく最適なテーマ、ということで共同研究の開始が決定した。

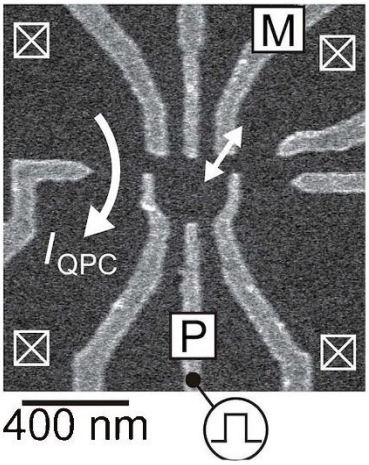

図 1　実験で用いた量子ドット。

本研究の成果は、スピンが揃ったまま多電子を電子 2 個に変換する方法を着想し、変換後の 2 電子スピン情報から類推することで、多電子の高スピン状態の読み出しに成功したというものである。ガリウム砒素(GaAs)をベースとした二次元電子上に量子ドットを作製し、量子ホール効果によって量子ドット近傍に形成されるエッジ状態を用いて、

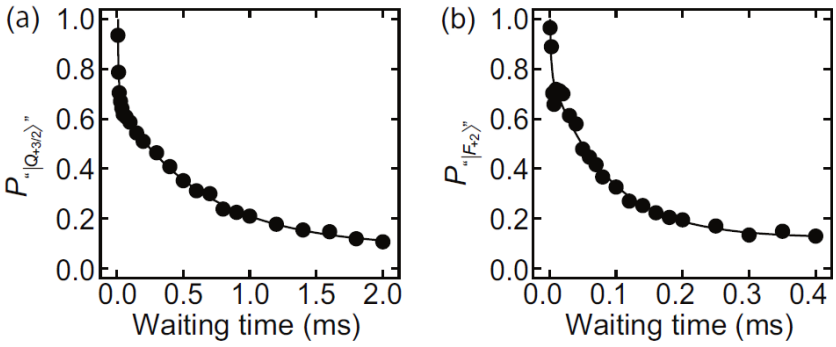

図 2　(a)3 電子状態のスピン緩和の測定例。(b)4 電子状態のスピン緩和の測定例。

上向きスピンを持った電子だけを高精度でドットから取り除く手法を確立した(図 1)。これにより、スピンが揃ったまま多電子を電子 2 個に変換することができる。この電子 2 個のスピンを測ることによって、元の多電子の高スピン状態の読み出しを行った。さらに、この読み出し方法を利用して高スピン状態の時間変動を観測したところ、低スピン状態に比べて、10 倍ほど速く変動することが判明した。この速い変動の起源は何に起因するのか。少数電子系では角運動量の選択則に基づいた議論がよく行われているが、それでは現象を説明することができなかった。一般的に、電子数が増えるとクーロン相互作用が働き電子同士の絡み合いが重要となる。そこで、電子相関効果に着目し、その効果を厳密に取り扱うことができる厳密対角化を用いた解析を行った。具体的には、エネルギー準位・状態の計算を行った上でフェルミの黄金律に従い遷移確率を計算し、電子相関効果が与える緩和率への影響を検証した。

実際の実験では、量子ドット内の状態がどの程度の時間まで保持されるかを測定することで、スピン緩和時間を評価することができる。図 2 に測定されたスピン緩和の様子を示す。図 2(a)に、はじめに量子ドット内に 3 電子状態を用意したときに、その状態が保持されている確率を時間の関数として示す。この図の例ではおよそ 0.65 ms の緩和時間で状態が変化しており、これがスピン緩和時間を与える。図 2(b)は、はじめに量子ドット内に 4 電子状態を用意したときの測定例となるが、この場合はおよそ 0.08 ms の緩和時間でスピンが緩和していることがわかる。このように量子ドット内の電子の数に依存して、スピン緩和時間は大きく変化していることがわかる。

図 3 (a)にスピン緩和時間の測定値を、磁場を変えながら測定した結果を示す。横軸は量子ドット内の磁場の変化に対応するが、励起エネルギーに換算してある。量子ドット内の電子数が 2, 3, 4 と大きくなるにつれて、スピン緩和レートが急速に大きくなっていくことがみてとれる。このスピン緩和時間を、電子格子作用と半導体中の Dresselhaus スピン軌道相互作用を考慮して、厳密対角化法によって評価した結果を図 3(b)に示す。理論計算では量子ドット内の電子数が増加するに従ってスピン緩和レートが急速に大きくなるという特徴が再現されていることがわかる。理論計算では量子ドットは等方的であるとしており、量子ドットのパラメータは実験から完全に決めることができないため、理論と実験の比較は定性的なものにとどまるが、おおまかな特徴は捉えているものと考えられる。誌面

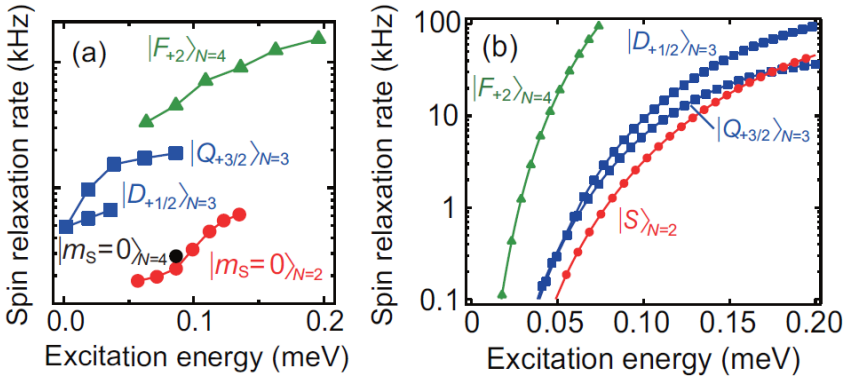

図 3 スピン緩和時間の磁場依存性。横軸は励起エネルギー。(a)実験で得られた緩和時間。(b)理論計算の結果。

の関係上、簡単に研究内容を紹介させていただいたが、より詳細について知りたい場合には本論文誌を参照されたい[5]。

本研究成果により、多電子の高スピン状態を使った演算やメモリ機能などの基盤研究が可能となる。また、量子ドットは様々な物質で作ることができ、例えばシリコンを使った量子ドットはスピン情報を長時間保持できるというメリットが存在する。本研究で開発した読み出し方法はシリコンを含めた様々な物質に適用できるため、多電子の高スピンを利用した超高速・大容量の量子情報処理が期待される。また、本研究は高スピン状態が高速に時間変動することを発見した。今後のより詳細な研究を行うことで、電子スピンの基礎的な性質に関する新たな知見を与えることも期待される。

謝辞

本研究は、大岩顕氏(大阪大学産業科学研究所)、木山治樹氏(大阪大学産業科学研究所)、樽茶清悟氏(理化学研究所創発物性科学研究センター)、中島峻氏(理化学研究所創発物性科学研究センター)との共同研究により行われました。また、文部科学省科学研究費補助金・基盤研究(S)(課題番号 17H06120)、基盤研究(B)(課題番号 18H01819)、基盤研究(C)(課題番号 20K03831)、若手研究(課題番号 18K14079)、科学技術人材育成のコンソーシアムの構築事業、科学技術振興機構(JST)の戦略的創造研究推進事業・CREST「電子フォトニクス融合によるポアンカレインターフェースの創製」、「スピン量子計算の基盤技術開発」の一環として行われました。なお、本研究の計算の一部は東京大学物性研究所スーパーコンピュータおよびソフトウェア開発・高度化プロジェクトで開発されたソフトウェアを利用し行われました。ここに感謝申し上げます。

参考文献

[1] http://pcoms.imr.tohoku.ac.jp.

[2] https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp.

[3] レビューとして、R. Hanson, L. P. Kouwen-hoven, J. R. Petta *et al.*, Rev. Mod. Phys. 79, 1217 (2007).

[4] M. Kawamura, K. Yoshimi, T. Misawa *et al.*, Comp. Phys. Comm. **217**, 180 (2017).

[5] H. Kiyama, K. Yoshimi, T. Kato *et al.*, Phys. Rev. Lett. **127**, 086802 (2021).