

スピン発光欠陥におけるスピン依存項間交差速度の測定手法の提案

Advanced approach to spin-dependent intersystem crossings rates of color centers

京大化研¹, Stuttgart大², Booz Allen Hamilton³, 量研機構⁴, Linköping大⁵

○森岡 直也¹, Di Liu², Öney O. Soykal³, Izel Gediz², Charles Babin², Rainer Stöhr²,

大島 武⁴, Nguyen Tien Son⁵, Jawad Ul Hassan⁵, Florian Kaiser², Jörg Wrachtrup²

Kyoto Univ.¹, Univ. Stuttgart and IQST², Booz Allen Hamilton³, QST⁴, Linköping Univ.⁵,

○Naoya Morioka, D. Liu², Ö. O. Soykal³, I. Gediz², C. Babin², R. Stöhr²,

T. Ohshima⁴, N.T. Son⁵, J. Ul Hassan⁵, F. Kaiser², and J. Wrachtrup²

E-mail: morioka.naoya.8j@kyoto-u.ac.jp

スピンを有する固体中の発光点欠陥（色中心）は、量子情報処理や量子センシング等の応用に向け注目されている。色中心の応用には、図1の準位モデルに示すスピン・発光ダイナミクスにおける各遷移レートの理解が重要である。遷移レートの従来評価手法である自己相関関数の励起強度依存性は、低励起条件下でノイズの影響が大きく、また項間交差（ISC）のスピン依存性の評価も難しい。本研究では、図2に示す励起状態（ES）の寿命 $\tau_{e1,2}$ より十分短い励起レーザパルス列を用いて、ISCのスピン依存性を含めた各レートを評価する実験手法を考案・検討した。

準安定状態（MS）寿命 $\tau_{ms} = (\gamma_3 + \gamma_4)^{-1}$ より十分長い間隔 $t_p \gg \tau_{ms}$ の短パルスレーザ列で色中心を反復励起すると、GSのスピン状態1,2の分布が励起強度によらず内部レートのみで決まる特定の状態に至る。これを初期状態とし、励起パルスを2回、間隔 $\tau \gg \tau_{e1,2}$ で照射して各パルスによる発光光子数 N_1, N_2 の比を測定する。 p_e をパルスの励起確率とすると、レート方程式の解析解は

$$1 - \frac{N_2}{N_1} = \alpha \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_{ms}}\right), \quad \frac{\alpha}{p_e} = \frac{\gamma_3\tau_{e1} + \gamma_4\tau_{e2}}{\gamma_3/\gamma_1 + \gamma_4/\gamma_2} \frac{1 - (\gamma_3\tau_{e2} + \gamma_4\tau_{e1})}{(1 - \tau_{e1}/\tau_{ms})(1 - \tau_{e2}/\tau_{ms})} \quad (1)$$

となり、指数減衰の時定数が τ_{ms} となる。別測定で $\tau_{e1,2} = (\gamma_0 + \gamma_{1,2})^{-1}$ とMS→GS遷移のスピン分岐比 γ_3/γ_4 が既知ならば、指数減衰の定数因子 α/p_e から $\gamma_{0,1,2,3,4}$ が決定できる。本手法を、各レートが十分知られていない4H-SiC中の単一Si空孔（V1）に適用した結果を図3に示す。 p_e を変化させ5Kで測定を行った結果、 p_e によらず一定の $\tau_{ms} = 240 \pm 2$ nsが得られ（図3(a)）、 $\alpha/p_e = 0.35 \pm 0.01$ を得た（図3(b)）。講演当日は $\tau_{e1,2}$ と γ_3/γ_4 の議論を含め、V1のレート評価の詳細を報告する。

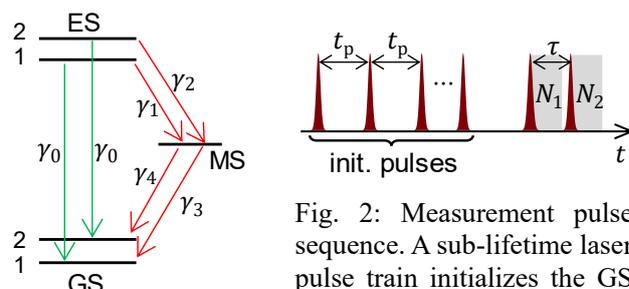


Fig. 1: General five-level model and relevant rates of color centers.

Fig. 2: Measurement pulse sequence. A sub-lifetime laser pulse train initializes the GS population, and the photon counts by two consecutive laser pulses (N_1, N_2) probe the spin dynamics.

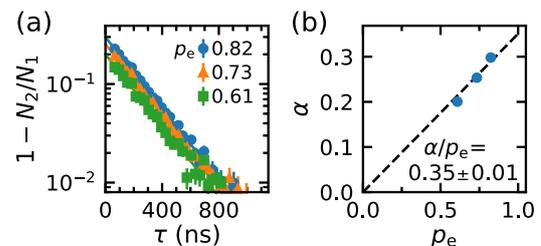


Fig. 3: Measurement results for single silicon vacancy center in 4H-SiC (V1 center) at 5 K. (a) Exponential decay observed at three different excitation probabilities p_e . (b) Linear dependence of the decay's prefactor α on p_e .