

新しい核磁気共鳴を用いた核スピンの量子状態制御 Controlled quantum states of nuclear spins by novel nuclear magnetic resonance

遊佐剛

Go Yusa

東北大学大学院理学研究科

Tohoku University

概要: 分析技術として世の中で広く使われている核磁気共鳴(NMR)は原子核の持つ核スピンという量子力学的な性質をうまく制御、検出することで、発展してきた。本研究では、従来広く行われている NMR 法とは異なる新しい NMR 手法を用いて、ナノ領域の少数核スピンを操り、電子や光と融合させることで、核スピンを用いた新たな計測技術の確立と量子機能デバイスの実現に向けた研究を推進した。特にナノ領域の核スピンの空間情報に関するイメージングに関する研究と、光検出 NMR に向けた基礎実験について報告する。

【研究のねらい】 物質は原子で構成されている。原子の中心には原子核があり、原子核には核スピンという量子力学的な自由度がある。この核スピンの状態を検出する手法が、核磁気共鳴法(NMR)であり、現在、元素分析や、分子の構造解析、医療用の MRI として知られている磁気イメージ法など、自然科学のあらゆる分野で利用されている。このように分析、計測技術として広く応用できる理由の一つとして、核スピンは電子など他の量子系に比べて、外界との相互作用が少なく、量子力学的な状態を保持出来る時間(コヒーレンス時間)が、圧倒的に長い。そのため、外界の擾乱にかき消されることなく、物質内部の核スピンの情報を高分解能に外部に取り出すことが出来ること、高分解能であるため、わずかな相互作用を高精度に検出出来ることに大きく起因している[1]。

通常の NMR は、パルス NMR、多次元 NMR など非常に高度な発展を遂げているが、物質内部から得られる核スピンの情報(核磁気誘導信号)が微弱で、感度が低いという欠点があ

り、溶液中の分子構造などは特殊な場合は別にして、マイクロなスケールの物質の検出には適していなかった。また、固体を測定対象とする場合、固体試料を機械的に高速で回転させるマジックアングルスピンニング(MAS)という手法を用いなければ、固体の NMR そのものの検出も容易ではない。静磁場を印可する方向を z 軸としたとき、通常の NMR は、静磁場と直交する xy 面内の磁化(M_{xy})を核磁気誘導という方法で検出しているが、本研究では、固体に存在する電子と核スピンの結合によって、静磁場と平行の磁化成分(M_z)を検出する NMR 法について注目し、半導体ナノ構造中に存在し、通常の NMR では検出出来ない程度の少数核スピンの量子状態の制御および検出に向けた研究を行った。

【研究方法】 本研究では固体中の伝導電子のもつ電子スピンと核スピンの間に現れる接触超微細相互作用を利用し、核スピンの情報を電子スピンの検出する手法について注目した。じつは NMR の開発黎明期である 1950-60 年

代ごころからすでに半導体を流れる伝導電子によって、核スピンの偏極されることが知られていたが[2]、通常は核スピンと電子スピンの相互作用は非常に弱いため、核スピンの電子物性に影響を及ぼすことはまれであった。しかし、近年の半導体作製、加工技術の発展により、低次元系、量子ホール系、量子ドットなどの低温の半導体物性において、核スピンの相互作用が顕著に現れる現象が見られるようになってきた[3-9]。そこで本研究では、NMRの測定対象を半導体ナノ構造とし、理想的な電子-核スピン結合が現れる低温領域において研究を進めた。通常のものとは異なるNMR法には、核スピンの電気抵抗に及ぼす影響、つまり核スピン偏極による抵抗変化を検出する「抵抗検出NMR」と、電子スピンを介した光の偏光の変化を検出する「光検出NMR」という大きく分けて二つの手法がある。それらの手法を用いて、ナノ領域の核スピンの量子力学的情報を検出できる新たなNMRと、それを用いたナノスケールの磁気イメージング法への応用について研究を行った。

まず測定試料の基本構造図を図1に示す。n+GaAs基板上に分子線エピタキシー法(MBE)により厚さ20nmのGaAs量子井戸を

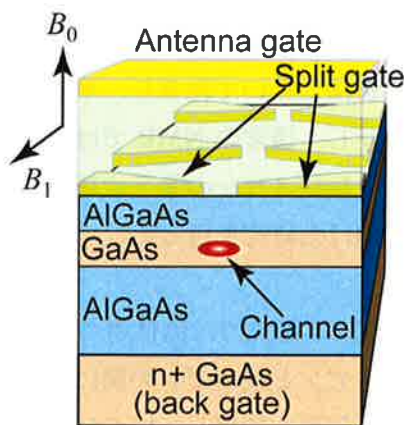


図1. ポイントコンタクトを3つ並べたNMRデバイスの構造図。

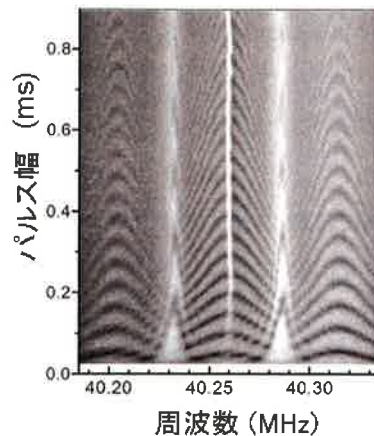


図2. ポイントコンタクト1つのデバイスで得られた抵抗検出NMRスペクトルの時間発展。

結晶成長し、電子線ビームリソグラフィ法、フォトグラフィ法などにより、核スピンを局所的に偏極させるための一対のスプリットゲート(ポイントコンタクト構造)を半導体表面に作製する。さらにその上に絶縁層で隔てられたRF電磁波照射用のアンテナゲートを積層する。なおn+GaAs基板がバックゲートとして機能し、量子井戸中の二次元電子密度を増減させることができる構造になっている。希釈冷凍機を用い、このデバイスを低温(>30mK)に冷やし、6T程度の垂直静磁場(B_0)を印可する。アンテナゲートにNMR用のRF電磁波を印可すると、振動磁場成分(B_1)が B_0 と直交するように印可されるため、RFパルス照射の前後の電気抵抗変化を測定すると、抵抗検出のNMR信号が得られる。ポイントコンタクトが1個存在するとき得られる抵抗の変化をRF周波数とRF電磁波のパルス時間幅でプロットしたものが図2である。測定温度は0.1K、磁場は5.5T。白い領域がNMR信号強度(=抵抗変化)が大きいことを示

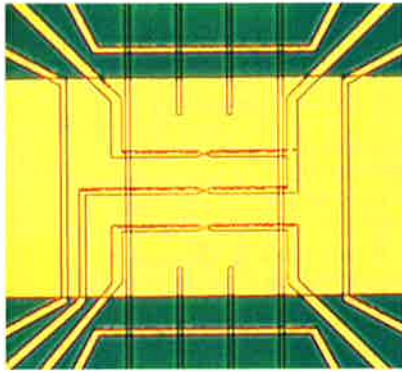


図3. ポイントコンタクトを3つ直列に並べた NMR デバイスの顕微鏡写真。

す。パルス幅に対して NMR 信号がコヒーレントに振動している様子が分かる[9]。

【研究成果】 本研究では、核スピンの z 方向の磁化を観測する手法として、抵抗検出、光学検出という二つの手法を用いたので、それぞれについて説明する。

(1) 抵抗検出 NMR による核磁気イメージングに関する研究

図1のような構造のデバイスに、さらに局所領域の核磁気イメージングを行うための磁場ゲートを配置させた試料の顕微鏡写真を図3に示す。金色に見える部分が金属性のゲートである。上下左右2対の磁場ゲート(電極の幅は $1\mu\text{m}$ 程度)により、磁場勾配、及びオフセット磁場をパルス的に印可させ、広い領域を覆うアンテナゲートにより、RF 電磁場を印可することができる構造となっている[10,11]。なお緑色に見える部分は絶縁層である。

このデバイスに対して、位相が 90 度ずつ異なる4種のパルスが6つ連続した RF パルス列(図4参照)および電流パルス列を印可することによって、ある特定の領域のみの核磁気共鳴を行うことができ、電流を掃引すると、イメージングすることができる[10・12]。この

場合、観測出来る領域の大きさは磁場ゲートに印可される電流値によって決定される。また、これら一連のパルス操作は核スピンのコヒーレント時間内に終了させなければならない。またデコヒーレンスを抑制するためのパルスエコーなどの技術もパルス列の中に組み込まれている[11-13]。

RF パルスの位相の精度やパルスのスイッチングとタイミングの精度によって、分解能が大きく左右されるため、まず、RF パルスのタイミングと立ち上がり時間についての検討を行った。図4に RF パルス列の例を示す。測定の都合上、図4では、1パルスの幅は $1\mu\text{s}$ に設定しているが、実際のパルス列はこれ

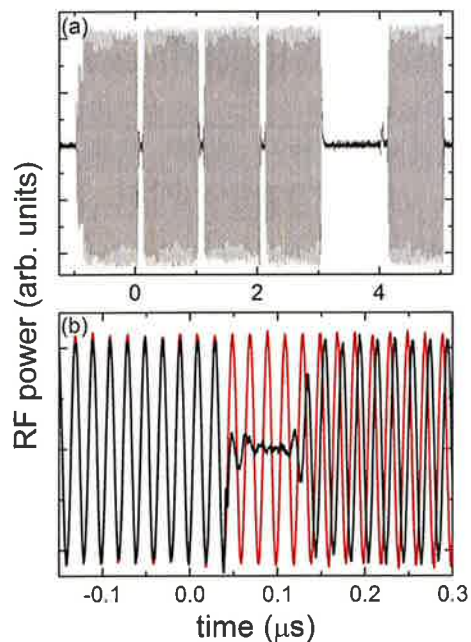


図4. (a) RF パルス列の測定データ。(b) 0 度と 90 度位相パルスの連結部分の拡大図。

よりも長く、 $10\sim 100\mu\text{s}$ 程度である。(b)は 0 度と 90 度位相パルスの連結部分の拡大図を示している。黒線が RF パルスで赤線は位相 0 度の参照用 RF 信号である。パルスの切り

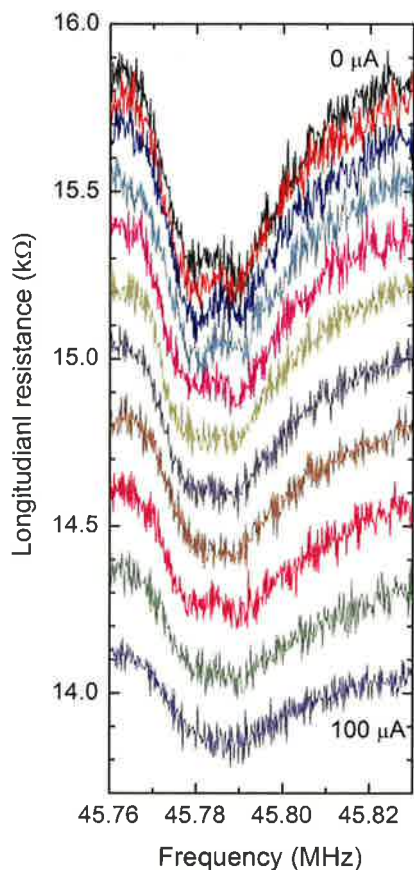


図5. 磁場ゲートに電流 $I_B=0$ から $100 \mu\text{A}$ まで $10 \mu\text{A}$ 刻みで変化させ、印可した RF 電磁波の周波数を掃引した際に得られる縦抵抗の変化。

替え時間は約 80ns 程度で、およそパルス全体の 1% 以下の精度となっていることを確認した。

次に磁場ゲートに電流 I_B を印可し、NMR の共鳴スペクトルがどのように変化するか測定するために、実際のデバイスを低温強磁場下 ($T < 0.1 \text{ K}$, $B_0 = 6.3 \text{ T}$) に置き、核スピンと電子スピンの結合が顕著に現れる分数量子ホール状態 (ランダウレベル占有率 $\nu = 2/3$) において、電気伝導測定を行った。なお測定は連続発振 (CW) の RF 電磁波を外巻きコイルに導入

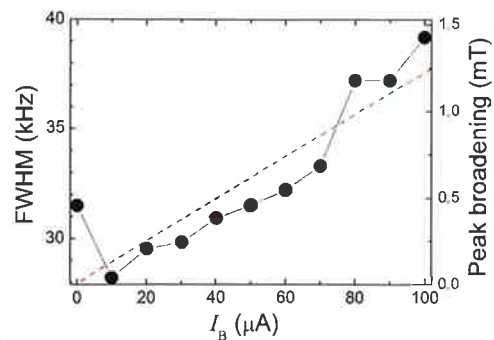


図6. 磁場ゲート印可電流 I_B に対する共鳴ピークの半値幅の変化。

し、 I_B も CW の条件下で ^{75}As の核スピンに共鳴するように、RF 周波数を設定して測定した。また、4つある磁場ゲートの中の一つ (下磁場ゲート) に I_B を流している。図5は、横軸が RF 電磁波の周波数、縦軸はデバイスの電気抵抗を示しており、 $45.78 \sim 45.79 \text{ MHz}$ 近傍で、共鳴が観測された。図5に示すように、 I_B を印可することで共鳴ピークがブロードになっていくことが確認された。このデータを元に、共鳴スペクトルの半値幅をプロットしたものが図6である。 I_B の電流量にほぼ比例して半値幅が増大していく様子が分かる。また、 $I_B = 0$ の時に比べて、 I_B を印可したとき、共鳴の半値幅がどの程度変化するか、幅の広がりの変化量 (周波数) を、 ^{75}As の磁気回転比 γ で換算した値 (磁場) を右 y 軸に表示した。現在のところ核スピン偏極の空間的な制御が十分でなく、場所が特定出来ないため、詳細については不明であるが、この測定では、磁場ゲートに $I_B = 80 \mu\text{A}$ を印可したときに、共鳴スペクトルの広がりはおおよそ 1 mT 程度の磁場が印可されたことに相当していると推測される。

(2) 光検出 NMR に関する研究

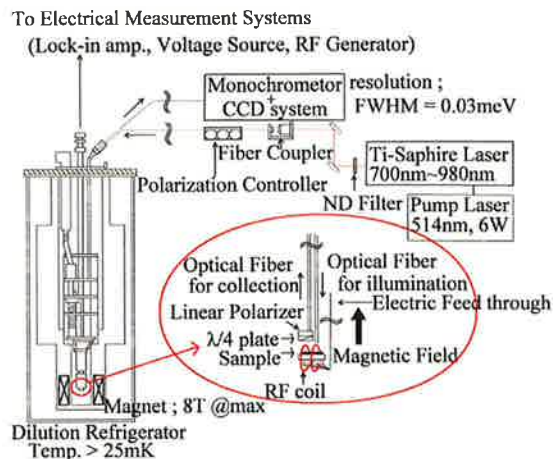


図 7. 光学測定装置の構成図

先に述べたように、抵抗検出以外にも、核磁化の z 成分を検出する手法として光検出 NMR の手法がある。半導体からのフォトルミネッセンス(PL)のピークエネルギーが核磁化によって変化することを利用した NMR 法 [4]や、パルスレーザーを使った NMR の手法などが研究されている [6,14]。本研究では抵抗測定と光検出を組み合わせた同時測定を行うとともに、量子ホール状態の電子物性についての研究も行った。光検出 NMR で用いた測定試料は、抵抗検出 NMR で用いた試料と同じ基板であるが、簡単のため、スプリットゲートなどのナノ加工する前の状態のものを用いた。

光検出 NMR に用いた光学測定装置の構成図を図 7 に示す。希釈冷凍機に励起光導入用と集光用に別々の光ファイバーを導入し、試料近傍に波長板などの偏光器を設置している。試料からの発光は集光用ファイバーから高分解能分光器に導入され、冷却 CCD により、偏光依存の PL スペクトルが測定できる仕組みになっている。なお、励起用レーザーは波長可変で、励起光の偏光も制御可能になっている。

図 8 に典型的な PL と抵抗の同時測定を図を示す。(a)が試料からの PL スペクトルで、明るい色の部分が発光を示している。測定温度は 60 mK、励起光強度は 0.5 mW 程度、波長は 760 nm、試料に印可した電流は 100 nA である。磁場を印可していくと、低磁場側で高次のランダウレベルのスペクトルが磁場に比例して高エネルギー側にシフトしていき、さらに磁場を増加させると、徐々に高次の側からランダウレベルからの発光が消えて行く様子が明瞭に確認された。さらに磁場を増加させ、ランダウレベル占有率(ν)が 2 以下になると、基底準位である最低ランダウ準位からの発光が急激に強くなる。また、 $\nu=1$ と $\nu=2/3$ と思われる $B_0=5$ T 近傍では発光強度が弱くなっていることが分かる。また図(b)に示すように、励起光照射時でも、抵抗測定が可能で、縦抵抗に弱磁場での SdH 振動と、量子ホール効果が確認できる。なお、整数の量子ホール状態でも縦抵抗が完全に 0 にならないのは、励起光照射によって光励起されたキャリアによる伝導(photoconductivity)が存在するからであると考えられる。

次に、核スピンと電子スピンの結合が強く

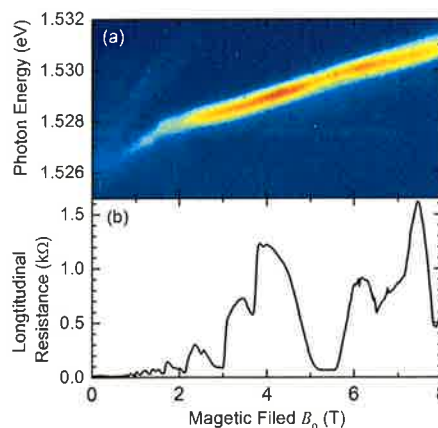


図 8. (a) PL スペクトルおよび(b)ホール測定による縦抵抗の磁場依存性。

なる $\nu=2/3$ 状態の測定を行った(図9)。測定には偏光子を用いて、二つの円偏光、 $\sigma-$ (青)と $\sigma+$ (赤)のスペクトルを分離して測定している。また、磁場 B_0 は、2.75 から 6 T まで変化させて、 $\nu=2/3$ が保たれるように、二次元電子密度をバックゲートによって制御している。

励起光によって、バンド間遷移がおき、伝導帯に電子、価電子帯にホールが光励起される。この状態にもともと存在する二次元電子が加わることで、プラス電荷を持った一つのホールに対し、電子が二つ束縛された荷電励起子状態が形成されるが、ここで観測されているピークは二つの電子が singlet 状態になっているものであると考えられる[15]。従って、ピークエネルギー差を詳細に測定することで、電子スピンの偏極度が解析できる。ま

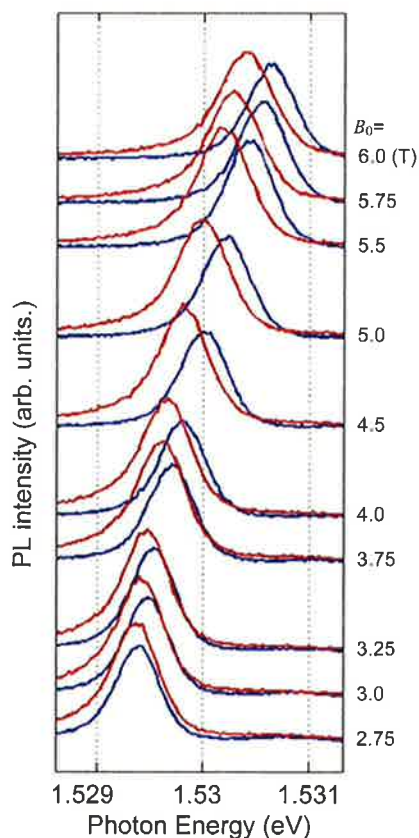


図9. $\nu=2/3$ における偏光 PL スペクトルの磁場依存性。青が $\sigma-$ 偏光、赤が $\sigma+$ 偏光のスペクトル。

た、この領域で NMR 共鳴周波数の電磁波を照射すると、発光強度に変化が起こるため、これを NMR 信号とすることで、光検出の NMR を観測することができる。

【今後の展開】 抵抗検出 NMR と磁気イメージングに関する研究、光検出 NMR に関する研究ともに測定装置の立ち上げや基礎実験が終了し、ようやく新しい成果に繋がる測定が始まった段階で、徐々に測定結果が出てきている状況である。

抵抗検出 NMR とそれを用いた磁気イメージングについては、非常に近い将来に、実際に RF パルス及びパルス磁場を印可した測定を行い、サブマイクロスケールのイメージングを行う予定で、分数量子ホール状態で理論的に予想されている磁区構造の空間観察や、電子・核スピン偏極メカニズム解明に関して、新たな計測技術として効力を発揮することが期待される。光検出についても PL による核スピン偏極の様子は本稿執筆中にも結果が得られているところである。また、将来的には、透過や反射などによる核磁気共鳴も行う予定で、今後も核スピンの量子状態制御を基礎とした NMR に関する研究を継続していく予定である。

【結言】 ナノ構造など非常に微小な構造を調べるためには、走査型のプローブ顕微鏡や、電子顕微鏡などが威力を発揮するが、原理上、表面近傍の構造に限られている。また(顕微)ラマン分光分析も原子分析法として、最近非常に発達して来ている技術であるが、微小な構造内部を非破壊で計測したり、構造の動的な変化を計測したりする手法は確立されていない。本研究はそのような内部構造の探索を目指して研究を進めてきた。今のところ半導体の特殊な状況下の核スピンの観測に限られ

ているが、微小領域を観測する技術、あるいは微小構造物の動的な観測に関する研究は応用上非常に重要であり、今後も既成の手法にとらわれず研究を進めて行きたいと考えている。

本研究の機会を与えてくださり、研究遂行に格段のご配慮を頂いた科学技術振興機構

「量子と情報」研究領域総括の細谷先生、同領域アドバイザーの諸先生方に感謝いたします。また同領域事務所の皆様にはたびたびお手数をおかけいたしました。ご配慮いただき感謝いたします。

また本研究は NTT 物性科学基礎研究所、NTT(株)との共同研究であり、NTT 物性基礎研、村木康二氏、藤澤利正氏、太田剛氏、小野満恒二氏、佐々木智氏、NTT-AT、宮下宣氏に感謝いたします。また東北大学大学院物理学専攻、平山祥郎教授、早川純一郎氏、川村昂氏、本武陽一氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) たとえば R. R. Ernst and A. Wokaun, Oxford University Press.
- 2) たとえば G. Feher, Phys. Rev. Lett. **3**, 135 (1959).
- 3) K. Wald, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **73**, 1011 (1994).
- 4) D. Gammon *et al.*, Science **277**, 85 (1997).
- 5) S. Kronmuller *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 2526 (1998).
- 6) J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom Science **287**, 473 (2000), G. Salis *et al.*, Phys. Rev. B **64**, 195304 (2001).
- 7) T. Machida *et al.*, Appl. Phys. Lett. **82**, 409 (2003).
- 8) K. Ono, and S. Tarucha, Phys. Rev. Lett. **92**, 256803 (2004).
- 9) G. Yusa *et al.*, Nature **434**, 1001 (2005).
- 10) 遊佐 剛、「核磁気共鳴撮像素子、及びそれを用いた撮像システム、撮像方法」(特願 2006-324443)
- 11) G. Yusa, Patent number: WO2008066146-A1
- 12) 遊佐 剛、「核磁気共鳴撮像システム、及び撮像方法」(特願 2007-145488)
- 13) G. Yusa *et al.*, cond-mat/0510309 (2005). T. Ota *et al.*, Appl. Phys. Lett. **91**, 193101 (2007).
- 14) H. Sanada *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 67602 (2006).
- 15) G. Yusa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 216402 (2001).