

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2015

課題番号：24684021

研究課題名(和文) 抵抗検出型核磁気共鳴によるメソスコピック系のスピン計測

研究課題名(英文) Measuring spins in mesoscopic systems by means of resistively-detected nuclear magnetic resonance

研究代表者

川村 稔 (Kawamura, Minoru)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・専任研究員

研究者番号：60391926

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 16,800,000円

研究成果の概要(和文)：半導体量子ドットおよび量子ポイントコンタクトというメソスコピック系の基本素子である2つのナノスケールの量子デバイスにおいて、デバイスを構成する元素の核磁気共鳴信号を電気伝導度の変化として検出できることを実証した。この抵抗検出型核磁気共鳴を用いて、これまで測定することが困難だった量子ドットのスピンダイナミクスや、量子ポイントコンタクトの磁化といったナノスケールデバイス中での電子スピンの振る舞いに関する知見を得た。

研究成果の概要(英文)：We have demonstrated that nuclear magnetic resonance signals from semiconductor nano-scale devices can be detected through changes in the conductance of the devices. A quantum dot and a quantum point contact, which are basic components of the mesoscopic systems, were chosen as prototypical nano-scale quantum devices. Using the resistively-detected nuclear magnetic resonance technique, we have studied electron spin dynamics in a quantum dot and magnetization of a quantum point contact which has not been measured otherwise.

研究分野：半導体物理学

キーワード：核磁気共鳴 超微細相互作用 量子ドット 量子ポイントコンタクト 近藤効果 電子相関

1. 研究開始当初の背景

半導体量子ドットにおける近藤効果の研究では、量子ドットの優れた制御性を活かし、非平衡状態下の近藤効果、整数スピン近藤効果、2チャンネル近藤効果などの新しいタイプの近藤効果が観測され注目されている。しかし、電子スピンのどの程度遮蔽されているのか、コヒーレンスが保持されているのか等、多くの基本的な疑問が残されている。近藤効果は、量子ドット中の局在電子スピンとフェルミ面の遍歴電子スピンの交換相互作用によって引き起こされる多体効果であり、電子スピンの重要な役割を果たす。従って、スピンを直接計測できれば、これらの新しい近藤効果の解明へつながると期待できる。過去の実験研究では、電気伝導測定により量子ドットの電子透過率を測定しており、直接近藤効果状態の電子スピンを測定した研究例はなかった。抵抗検出型核磁気共鳴を量子ドットに適用し、量子ドット中のスピンドYNAMICSを解明することを目指して本研究を開始した。

2. 研究の目的

半導体量子ドットの研究では、関与するスピンの数が少ないため核磁気共鳴・中性子散乱といった通常のバルク物質のスピン計測手法を用いることができず、これまでは主として電気伝導度測定によるエネルギー分光測定に基づいた研究がおこなわれてきた。本研究提案は、量子ドットの電子スピン状態を測定するために、核磁気共鳴法に基づいた新しい測定法を確立するのが目的である。新しい測定法を用いて、電子スピン磁化率および電子スピンゆらぎを直接測定することで、非平衡近藤状態のスピンドYNAMICSを明らかにすることが本研究の主たる課題である。

3. 研究の方法

(1) 磁場中におかれた量子ドットに帯電エネルギーよりも十分大きな電圧を印加して電流を流すと、核スピンの動的に偏極する。これらの超偏極状態にある核スピン系にラジオ波を照射すると、核磁気共鳴周波数において電気伝導度が減少し、核磁気共鳴スペクトルを得ることができる。この抵抗検出型核磁気共鳴法を応用して、近藤状態にある量子ドットの縦緩和時間を測定する。核スピンを十分に偏極した後で、ゲート電極を用いて一定時間だけ電子系を排除する。その後ゲート電圧を元の値に戻し、核スピンの動的に緩和したかを電気伝導度測定によって読み出す。電子系を排除する時間をいくつか変えてデータを取ることで、電子系を排除した場合の核スピン縦緩和時間が得られる。電子系を排除する代わりに、電子系を一定時間だけ近藤状態に設定し同様の測定をおこなうことで、近藤状態における核スピン縦緩和時間が

得られ、電子スピンゆらぎを決定できる。緩和時間測定を様々なバイアス電圧、磁場、温度でおこなうことで、非平衡近藤状態近傍における電子スピン状態の相図を得る。これらの相図を元に非平衡近藤効果のスピンドYNAMICSを解明する。

(2) 上述(1)の実験手法を量子ポイントコンタクトに応用する。電流印加によって核スピンを偏極させた後、ポイントコンタクトの電気伝導度を0.7近傍に調整し、核磁気共鳴周波数のナイトシフトおよび核スピン縦緩和時間の測定をおこなう。量子ポイントコンタクトの0.7問題は、近藤効果によって説明できるという提案がある。本研究では量子ポイントコンタクトで得られるナイトシフト、縦緩和時間の特徴と量子ドット近藤状態におけるナイトシフト、縦緩和時間の特徴を比較することで、量子ポイントコンタクト0.7問題の近藤効果説の是非を検証する。

(3) 量子ドットや量子ポイントコンタクトにおける核スピン偏極・検出のメカニズムはまだ理解されていない。検出メカニズムには、近藤効果状態が磁場に対して敏感であるという性質が関与していると考えられるが、この点に関しても詳細に検討する。核磁気共鳴信号を抵抗測定によって検出する手法は、本研究を支える基盤技術であり、そのメカニズム解明に取り組む。具体的には、核スピン偏極を引き起こすバイアス電圧条件、ゲート電圧条件を調べ、電気伝導度測定で得られるエネルギーダイアグラムと比較する。核スピン検出条件についても同様に調べる。様々な温度・磁場の条件下で実験することで、核スピンの偏極および検出機構を解明する。

4. 研究成果

(1) 半導体量子ドットにおける抵抗検出型核磁気共鳴

本研究では、半導体量子ドットにおける抵抗検出型核磁気共鳴法の開発と、それを利用した量子ドット近藤効果状態における電子スピン計測を目的としている。単一量子ドットのような微小体積の試料からの核磁気共鳴信号を得るには、量子ドット中の核スピンの動的に偏極する必要がある。量子ドットにおける核スピン偏極メカニズムに関する理解を深めるために実験をおこない、リードとの結合の強い半導体量子ドットの磁場中非平衡状態において核スピンの動的に偏極することを明らかにした。リードとの結合が強い量子ドットでは、微分コンダクタンスのバイアス電圧依存性に近藤効果にともなうピークがあらわれ、このピークは磁場を印加すると2つに分裂することが知られている。ピーク間電圧は磁場の大きさに敏感であるため、量子ドット中の核スピンが作る有効磁場をピーク間電圧の変化として検出することができる。この効果を利用して、核スピン偏

極が生じる電圧および電子数を調べた結果、ゼーマンエネルギーよりも大きなバイアス電圧を印加したときに、核スピンの偏極することが明らかになった。さらに、核スピンを十分に偏極させた後、量子ドットにラジオ波を照射することで、量子ドットの構成元素である砒素およびガリウムの核磁気共鳴信号を微分コンダクタンス測定によって得ることに成功した。これらの成果は、単一量子ドットにおける核スピン制御技術を確立し、核磁気共鳴法による量子ドット中のスピン状態の研究を可能にするものである。

量子ドットに電流を流すことで核スピンを偏極し、それが緩和するまでにかかる核スピン緩和時間を測定した。ゲート電圧を変えながら、量子ドットが平衡状態にあるときの核スピン緩和時間を測定すると、緩和時間がゲート電圧によって変化することが分かった。リードと量子ドットの間で電荷が出入りできるゲート電圧では、緩和時間が短くなり、逆に量子ドットとリードが切り離されるゲート電圧では、緩和時間が長くなる。このことから、量子ドットにおける核スピン緩和は、核スピン 電子スピン緩和の過程が支配的であり、量子ドットの状態によって、核スピン 電子スピン緩和時間がおおきく変調を受けることが分かった。この成果は、抵抗検出核磁気共鳴が量子ドットのようなナノスケールの電子デバイス中のスピンドYNAMICSを調べるうえで有効な実験手法であることを示している。

(2) 半導体量子ポイントコンタクトにおける核磁気共鳴

量子ポイントコンタクトは、半導体の電子回路に設けられた電子の波長程度の幅の微細な「くびれ」であり、もっとも基本的なメゾスコピック系の量子素子の一つである。チャネル幅を狭くする従い、電気伝導度は階段状に減少していき、電気伝導度がゼロになる直前の最後の段差においては「階段になりかけの構造」が現れる。この構造は「0.7 異常」と呼ばれ、なぜこの現象が起こるのか、その原因について過去 20 年間にわたって論争が続いてきた。いくつかの理論モデルでは、量子ポイントコンタクトにおいて電子スピンの揃うことで出現する磁化の関与が指摘されている。しかし、ナノスケールのデバイスである量子ポイントコンタクトでは、磁化は小さすぎるため測定できず、この理論モデルを実験的に証明することができなかった。

本研究では、半導体量子ポイントコンタクト素子における核スピン偏極手法を用いて、量子ポイントコンタクト素子からの核磁気共鳴信号の検出に成功した。量子ドットの場合と同様に、量子ポイントコンタクトにバイアス電流を流すと、ある限られた条件のもとで、電子スピンから核スピンへスピン角運動量が転写され、その結果、核スピンの動的に

偏極する。偏極された核スピンを標的としてラジオ波を照射し、核磁気共鳴を引き起こすと、量子ポイントコンタクト素子の構成元素である砒素およびガリウムの核磁気共鳴信号を量子ポイントコンタクトの微分コンダクタンス測定によって得られることが分かった。

量子ポイントコンタクトに磁化が出現するのであれば、磁化の変化により量子ポイントコンタクトからの核磁気共鳴周波数も変化すると考えられる。したがって、量子ポイントコンタクトにおける磁化の出現を、共鳴周波数の変化(ナイトシフト)によって調べることが可能となる。核磁気共鳴スペクトルのナイトシフト量から量子ポイントコンタクト内部で生じているスピン磁化を決定し、量子ポイントコンタクト内部に電子スピン数個分のスピン磁化が生じていることを明らかにした。モデル計算と実験結果の比較をおこない、このスピン磁化が電子相関に由来することを明らかにした。さらに、核磁気共鳴スペクトルの形状、磁化のゲート電圧依存性、磁化の大きさから量子ポイントコンタクト内部に束縛状態が生じていないことが示唆された。この結果は、量子ポイントコンタクトで生じるコンダクタンス異常の起源を論ずるモデルに強い制限を与えるものであり、量子ポイントコンタクトの電気伝導を理解するうえで重要な成果である。

(3) トポロジカル絶縁体におけるランダウ準位波導関数の空間分布

トポロジカル絶縁体は、物質内部が絶縁体である一方で物質表面は金属的であり、その表面状態を担う電子には質量が無いという新しい物質群である。表面の質量のない電子はディラック電子と呼ばれ、その運動は2つの成分を持つ波動関数で表現できる。トポロジカル絶縁体表面のディラック電子の場合、この2つの成分は電子の持つスピンに関係する。従って、電子スピン 核スピン相互作用によって、電気伝導度に核磁気共鳴信号が現れる可能性がある。そこで、トポロジカル絶縁体に抵抗検出型核磁気共鳴を適用できるかどうか検討をおこなってきた。その過程で、2成分波動関数で記述されるモデルが、走査型トンネル顕微鏡で観測されたランダウ準位波動関数の空間分布をよく説明することが分かった。

トポロジカル絶縁体表面のディラック電子をナノスケールの空間に閉じ込め、走査型トンネル顕微鏡法/分光法を用いてディラック電子の空間分布を直接観測した。その結果、ディラック電子の空間分布は通常の質量を持つ電子の分布と異なっていることが分かった。この結果を2成分波動関数のモデルを用いて解析したところ、ディラック電子の2つの成分がそれぞれ異なる空間分布を持つことが特異な空間分布の原因であることが

分かった。さらに、2つの成分の空間分布の違いが、ユニークな磁気構造をもたらすことが示唆された。トポロジカル絶縁体に抵抗検出型核磁気共鳴を適用することができれば、このユニークな磁気構造を実証できる可能性がある。

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) Electronic magnetization of a quantum point contact measured by nuclear magnetic resonance, M. Kawamura, K. Ono, P. Stano, K. Kono, and T. Aono, Physical Review Letters 115, 36601 (2015).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.036601 査読有

2) Imaging two-component nature of Dirac-Landau levels in the topological surface state of Bi_2Se_3 , Y. S. Fu, M. Kawamura, K. Igarashi, H. Takagi, T. Hanaguri, and T. Sasagawa, Nature Physics 10, 815-819 (2014).

DOI: 10.1038/nphys3084 査読有

3) Resistive detection of nuclear spins in a single quantum dot under Kondo effect regime, M. Kawamura, D. Gottwald, K. Ono, t. Machida, and K. Kono, Physical Review B 87, 081303 (2013).

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.081303 査読有

[学会発表](計 18件)

1) M. Kawamura, K. Ono, P. Stano, K. Kono, and T. Aono, Magnetization of a quantum point contact measured by resistively-detected nuclear magnetic resonance, International symposium on nanoscale transport and technology 2015, 2015-11-18, NTT Atsugi R&D Center (Kanagawa, Atsugi).

2) M. Kawamura, K. Ono, P. Stano, K. Kono, and T. Aono, Magnetization measurement of a quantum point contact by means of nuclear magnetic resonance, The 21th international conference on electronic properties of two-dimensional systems, 2015-07-28, Sendai International Center (Miyagi, Sendai).

3) M. Kawamura, Electron spin magnetization of a quantum point contact studied by means of nuclear magnetic resonance, International symposium on quantum system and nuclear spin-related phenomena, 2015-2-19, Miyagi Zao Royal Hotel (Miyagi, Zao-cho), Invited talk.

4) 川村稔、トンネル分光による量子ドットの核磁気共鳴測定、理研シンポジウム「表面

界面におけるエネルギーの異動と変換」、2014-11-21、理化学研究所(埼玉県、和光市)招待講演。

5) M. Kawamura, D. Gottwald, K. Ono, T. Machida, and K. Kono, Resistive read-out of nuclear spin signals from a single quantum dot under the Kondo effect regime, The 20th international conference on electronic properties of two-dimensional systems, 2013-7-4, Wroclaw (Poland).

6) M. Kawamura, Y. S. Fu, K. Igarashi, H. Takagi, T. Hanaguri, and T. Sasagawa, Landau level spectroscopy-imaging on the surface of topological insulator under potential variation, The international symposium on nanoscale transport and technology 2013, 2013-11-27, NTT Atsugi R&D Center (Kanagawa, Atsugi).

7) M. Kawamura, Detection of nuclear spin signals from a quantum dot under Kondo effect regime, 2012 International conference on solid state devices and materials, 2012-09-26, (Kyoto, Kyoto), Invited talk.

8) M. Kawamura, D. Gottwald, K. Ono, T. Machida, and K. Kono, Nuclear magnetic resonance study of Kondo effect in a quantum dot, The 20th international conference on high magnetic fields in semiconductor physics, 2012-07-24, Chamonix Mont-Blanc (France).

他 10件

[その他]

プレスリリース

電子回路の「くびれ」に生じる微小な磁化を測定

http://www.riken.jp/pr/press/2015/20150706_2/

Characterizing electrons in the smallest devices

<http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/8118>

質量のないディラック電子の空間分布の観測に成功

http://www.riken.jp/pr/press/2014/20140915_1/

Electrons move in different circles

<http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/7900/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

川村 稔 (KAWAMURA Minoru)

国立研究開発法人理化学研究所・

創発物性科学研究センター・専任研究員

研究者番号：60391926