

## 研究ノート

# 電子スピン磁壁振動の制御による核磁気共鳴現象の研究

東北大学大学院理学研究科, ERATO-NSEP 渡辺信嗣 (wshinji@ncspin.jst.go.jp)  
東北大学大学院理学研究科 五十嵐玄  
東北大学大学院理学研究科, ERATO-NSEP 平山祥郎

### 1. 研究の背景

核磁気共鳴分光法 (NMR) は電子スピンの静的および動的特性を超微細相互作用を通じてプローブすることが可能なため, ガリウムヒ素で構成された二次元電子量子ホール系の電子状態を研究するための有効な手段となっている. 量子ホール強磁性状態からの多重スピントリップ励起 (スカーミオン [1, 2, 3]) や, 二次元電子層間の相互作用による傾角スピン状態 [4, 5] 等の新奇な電子スピン物性が NMR により調べられている. これらの研究において, NMR 信号は二次元電子系の電気抵抗の変化として検出される (抵抗検出型核磁気共鳴法; RD-NMR). 核スピンの磁気信号を直接ピックアップコイルで検出する通常の NMR と比べて, RD-NMR は非常に核スピン感度が高いことが特徴である. この高い感度は, 分数量子ホール状態ランダウ準位充填率  $\nu=2/3$  における電流励起核スピン偏極現象 [6] を利用することで得られる.  $\nu=2/3$  スピン相転移点では, 電子スピン偏極状態と非偏極状態の二つの異なる電子状態に起因する電子スピン磁区構造が形成される [7, 8, 9]. このスピン相転移点で, 比較的大きな電流を試料に流すと, 磁壁付近の電子スピンと核スピン<sup>1</sup>によるフリップフロップ散乱により核スピン偏極が起こると考えられている. 偏極した磁壁付近の核スピンは超微細相互作用により, 電子系のゼーマンエネルギーを変化させるため, 磁壁の構造を変調し, 電子輸送特性に影響を与え, これが縦抵抗  $R_{xx}$  の増大という形で現れる. さらに, ラジオ波 (RF) の振動磁場を核スピン偏極後の試料に印加することにより, 核スピン偏極の変化に対

応する NMR 信号を  $R_{xx}$  の変化として検出することができる.

このような電流励起核スピン偏極を用いた RD-NMR は量子ホール状態の研究に広く利用されているが, 意外なことに  $R_{xx}$  の変化と関係する電子スピン磁区 (もしくは磁壁) 構造が空間的にどのように生じているのかわかっていない. そのため,  $R_{xx}$  の変化がほとんど核スピン偏極に比例する [11] ことが確認されているにもかかわらず, 何故このような定量的な関係が成り立つのか, 微視的な電子スピン磁区構造の変化から説明することができないのが現状である<sup>2</sup>. 我々は, 偏極した核スピンが電子スピン磁区構造をどのように変えるのか, という問題に興味を持ち研究を行っている. 本研究は, 核電界共鳴 (Nuclear Electric Resonance; NER) [12] という手法を用いて, 電子スピン磁壁構造と核スピン偏極の関係を調べる. NER とは, 電子スピン磁壁構造が電子密度に依存することを利用して, ゲート電極により振動電場を印加し, 磁壁が空間的に振動することにより誘起される核スピン共鳴現象である. 磁壁は有限の二次元面内方向の超微細磁場  $B_x^{HF}$  を有するので, 磁壁が偏極した核スピン位置に対して進んだり戻ったりするときに, NMR が引き起こされる; すなわち, NMR 周波数に相当する面内方向の振動磁場成分が核スピン位置に実効的に誘起される<sup>3</sup>. 実験では, ガリウムヒ素二次元電子系を用いて, 電流励起核スピン偏極の後, <sup>75</sup>As-NER スペクトルを調べた. 得られた NER スペ

<sup>1</sup> AlGaAs/GaAs の二次元電子系を考えた場合, 二次元電子系は GaAs 層に形成され, ここでは <sup>69</sup>Ga, <sup>71</sup>Ga, <sup>75</sup>As の 3 種類の核スピが存在する.

<sup>2</sup> 電子スピン磁壁のサイズは  $\sim 3 \times$  磁気長であることが理論的に予想され [10] (本研究の条件ではおよそ 30nm に相当), 磁区のサイズは最小で  $\sim 100$ nm であることが実験的に調べられている [14]. しかし, これらの報告では核スピン偏極が電子スピン磁壁および磁区構造に及ぼす影響を取り扱っていない.

<sup>3</sup> ここでは外部磁場を二次元面に垂直に印加する状況を考えており, 核スピン系は外部磁場の方向に対してゼーマン分離している.

クトルの強度と磁壁振動磁場が磁壁付近の偏極核スピ  
ン位置に誘起する高調波磁場振動成分の関係を考察し、  
磁壁の形とその周りの偏極核スピンの空間分布につい  
て議論する。

## 2. 試料と実験方法

実験で使用した試料は 20nm のガリウムヒ素量子井  
戸を  $50\mu\text{m}$  幅のホールバーに成形したもので、量子井  
戸の電子密度はシリコンドープしたガリウムヒ素  $n^+$ -  
GaAs の基板をバックゲートとすることで制御可能であ  
る。低温での移動度は電子密度が  $1.6 \times 10^{15} \text{m}^{-2}$  におい  
て  $1.8 \times 10^6 \text{cm}^2/\text{Vs}$  である。  $R_{xx}$  はロックインアンプを  
用いた低周波測定により得た。実験を通して、外部磁場  
 $B_0 \sim 7.66\text{T}$  を二次元面に垂直に印加することにより、  
二次元電子系を  $\nu=2/3$  スピン相転移点に保ち、また、  
全ての測定は希釈冷凍機を用いて 150mK で行った。

図 1 (a) に NER の実験セットアップを示す。核スピ  
ン偏極を 100nA のソースドレイン電流を用いて、300  
秒行った後、正弦波 RF 電圧をバイアスティーにより、  
直流バイアスに重畳しバックゲートに 0.5 秒間印加す  
る<sup>4</sup>。RF 電圧を印加する前と後の  $R_{xx}$  の差  $\Delta R_{xx}$  を印  
加する RF 電圧の周波数に関してプロットすることによ  
り、図 1 (b-e) に示すような NER スペクトルを得た。  
また、参照のために RD-NMR スペクトルも測定した  
[図 2(b-e)]。RD-NMR では、試料の周りに巻かれたコ  
イルに RF 電流を流すことにより、二次元面内に RF 振  
動磁場が発生し NMR が引き起こされる [図 2(a)]。

## 3. 実験結果と議論

図 1 (b) に  $^{75}\text{As}$  のラーモア周波数 ( $f_L$ ) 付近の NER  
スペクトルを示す。ここで  $f_L$  は  $B_0 \sim 7.66\text{T}$  において  
 $56.037\text{MHz}$  となる。このスペクトルは  $56.03\text{MHz}$  に単  
一ピークを持つ。また、NER 信号は、図 1 (c-e) に示す  
ように、 $f_L$  のみならず、 $f_L/2$ ,  $f_L/3$ ,  $f_L/4$  付近の周波  
数範囲においても観測される。これらの NER スペクト  
ルはすべて単一ピークを持つが、信号強度は  $f_L$ ,  $f_L/2$ ,  
 $f_L/3$ ,  $f_L/4$  の順にそれぞれ  $\sim 300 \Omega$ ,  $\sim 152 \Omega$ ,  $\sim 65$   
 $\Omega$ ,  $\sim 32 \Omega$  と減少していく。これに対して、RD-NMR

<sup>4</sup>バックゲートに実効的に印加される電圧は  $\sim 50\text{mV}$  と見積もら  
れる。

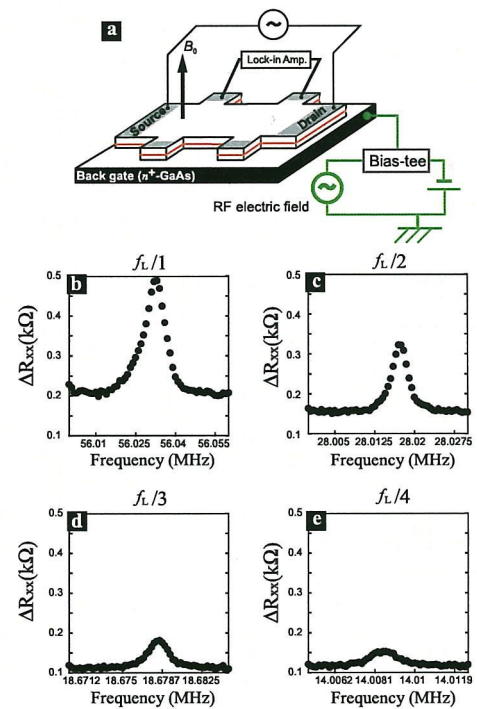


図 1. (a) NER の実験セットアップ。試料の電子密度は直流およ  
び RF 電圧により制御される。ラーモア周波数,  $f_L$  および  $f_L/2$ ,  
 $f_L/3$ ,  $f_L/4$  付近に観測される  $^{75}\text{As}$ -NER スペクトルをそれぞれ  
(b), (c), (d), (e) に示す。

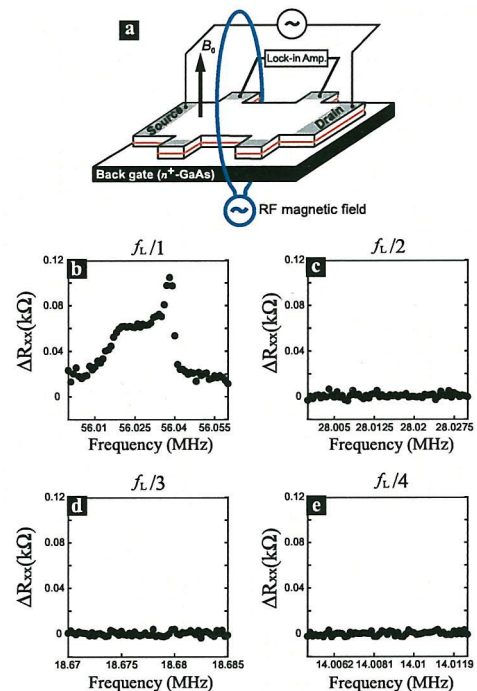


図 2. (a) RD-NMR の実験セットアップ。試料の周りに巻かれたコ  
イルにより RF 振動磁場が試料に印加される。ラーモア周波数,  $f_L$   
に観測される  $^{75}\text{As}$ -RD-NMR スペクトルおよび、その  $f_L/2$ ,  $f_L/3$ ,  
 $f_L/4$  付近の周波数における結果をそれぞれ (b), (c), (d), (e) に  
示す。

信号は  $f_L/2$ ,  $f_L/3$ ,  $f_L/4$  付近には観測されず,  $f_L$  付近のみに現れる<sup>5</sup>.

このような NER と RD-NMR における高調波信号の振舞いの違いは, 面内振動磁場の空間, 時間依存性により説明できる. RD-NMR の場合, 面内磁場成分の時間波形,  $B_x(t)$  は正弦波関数となる. これは図 2(a) に示すように,  $B_x(t)$  が試料周りに巻かれたコイルから発生するためである. RD-NMR の実験セットアップでは, コイルの大きさは直径 6mm であり, これはホールバーの大きさ ( $50\mu\text{m} \times 180\mu\text{m} \times 20\text{nm}$ ) より十分大きいので,  $B_x(t)$  をフーリエ変換したスペクトル密

度の空間不均一性は, ホールバー全体にわたって無視できる. 連続正弦波<sup>6</sup> はどんな高調波成分も含まないので, RD-NMR 信号は  $f_L/2$ ,  $f_L/3$ ,  $f_L/4$  付近には観測されない. 一方, NER の場合, 面内磁場振動成分のスペクトル密度は  $B_x^{HF}$  を持つ磁壁の振動により生じる. 磁壁振動下において,  $B_x^{HF}$  の時間波形は, あとで議論するように, 磁壁からの位置に依存し, 正弦波から大きく歪んでいる. 歪んだ正弦波は高調波成分を含むので,  $f_L/2$ ,  $f_L/3$ ,  $f_L/4$  の付近にも NER 信号が観測される.

観測された高調波 NER 信号強度について, 次のようなモデルを用いて議論する. まず, 核スピンは実効的な共鳴周波数をもつ面内磁場振動成分により緩和されるので, NER 信号強度は, 核スピンの緩和されない限り, 局所的な核スピンの共鳴周波数における面内振動磁場成分スペクトル密度に比例すると仮定する. 面内振動磁場成分スペクトル密度は, 磁壁振動により生じるために, 磁壁からの距離に依存する位置の関数となることが予想される. ゆえに, 磁壁付近の核スピンの引き起こされる NER 信号の強度を議論するには, 面内振動磁場成分スペクトル密度の空間分布を求めることが必要となる. 以下では, 磁壁の形を仮定して (I), これを振動させた時, つまり, 磁壁振動下における磁壁からの距離に依存する面内磁場成分の時間波形を求めて (II), これをフーリエ変換することで磁壁付近のスペクトル密度の空間分布を得る (III), という手順で議論を進める. 手順 (I) を説明する. 磁壁は電子スピン偏極磁区と非偏極磁区の境界に生じ, そこでは電子スピンの (二次元面直方向の) 偏極率が偏極磁区から非偏極磁区に向かって滑らかに変化していると仮定する. すると, 偏極率の減少に伴い  $B_x^{HF}$  が生じ, これは磁壁の中心で最大値をとると考えられる. 磁壁の形, すなわち  $B_x^{HF}$ , がガウス関数で書けるとすると,  $|B_x^{HF}(x)| = \frac{1}{2} \exp(-4 \ln 2 \frac{x-x_0}{W})$ , となる. ここで  $x_0$ ,  $W$  はそれぞれ磁壁の中心, 磁壁の幅である. これより, 電子スピンの偏極率に対応する面直方向の超微細磁場  $B_z^{HF}(x)$  は,  $|B_z^{HF}(x)| = \alpha \times \frac{1}{2} \sqrt{1 - |\frac{B_x^{HF}(x)}{0.5}|^2} + \frac{1}{2}$  (

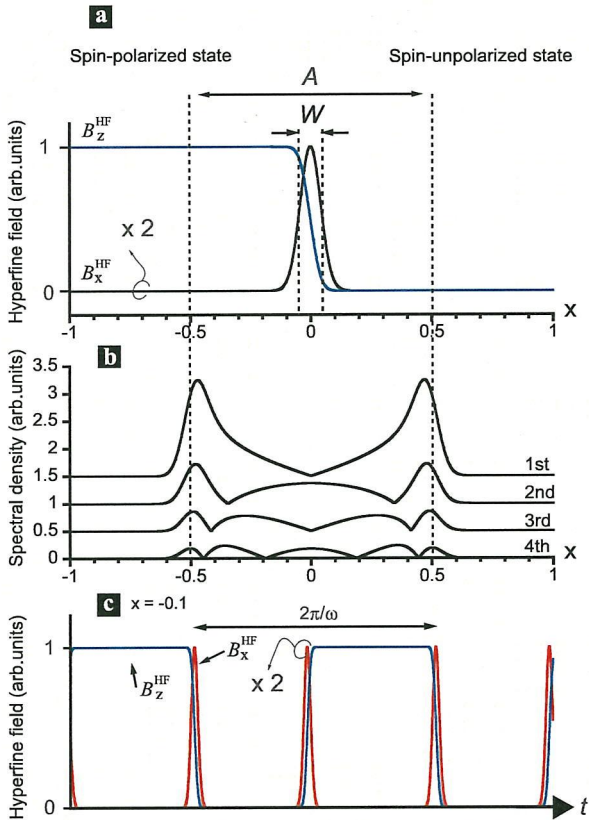


図 3. (a) 磁壁付近の面内および面直成分の超微細磁場 ( $B_x^{HF}$  および  $B_z^{HF}$ ) を位置  $x$  に対してプロットした. (b) 基本波および高調波成分の  $B_x^{HF}$  スペクトル密度を  $x$  に対してプロットした. それぞれの曲線は縦軸方向にオフセットしてある. (c)  $x = -0.1$  における  $B_x^{HF}$  および  $B_z^{HF}$  を時間  $t$  に対してプロットした. (a), (b) において, 横軸のスケールは振動下の磁壁の振幅  $A$  で規格化してある. また, (a), (c) において,  $B_x^{HF}$  の縦軸のスケールは 2 倍してある.

<sup>5</sup>観測される RD-NMR スペクトルは二つのピークを持つが, 高周波側および低周波側のピークはそれぞれ電子スピン非偏極および電子スピン偏極磁区に偏極している核スピンの寄与であることが知られている [13]. また, 図 1(b) において観測される NER 信号のピークは RD-NMR 信号の二つのピークの間中値をとるが, これは偏極磁区における超微細磁場の面直成分の効果であることが知られている [12].

<sup>6</sup>実験では正弦波 RF 電圧をコイルに 0.5 秒間印加した.

$x < 0$  の範囲において  $\alpha = 1$ ,  $x \geq 0$  の範囲において  $\alpha = -1$ ), のように計算できる [図 3(a)]. 次に手順 (II) に進む. 手順 (I) で求めた磁壁の形より, 磁壁が振幅  $A$  で振動する時,  $A$  で規格された位置  $x$  について,  $x = -0.1$  における  $B_x^{HF}(x)$ ,  $B_z^{HF}(x)$  の時間波形は図 3(c) のように計算できる. これは  $|x| \leq 0.5$  の範囲において,  $x_0(t) = A \sin \omega t$  (ここで  $A = 0.5$ ), のように正弦波の周期で磁壁が振動するとして求めた<sup>7</sup>. 図 3(c) を見てわかるように, 正弦波周期で磁壁が振動したとしても,  $x = -0.1$  における時間波形は正弦波から歪み, 矩形波パルス的になる. このような時間波形が大きな高調波成分を持つことは明らかであろう. 時間波形  $B_x^{HF}(x, t)$  を  $|x| \leq 1$  の範囲でフーリエ変換することで, 基本波, および高調波スペクトル密度の空間分布を図 3 (b) のように計算した [手順 (III)]. 図 3(b) が得られたので, 次に, 高調波 NER 信号強度と高調波スペクトル密度がどのような関係にあるか考察する. もし核スピンの空間的に均一に偏極しているとすれば, NER 信号強度はスペクトル密度の積分強度,  $I_{harm} = \int S(x)_{harm} dx$  ( $harm = 1st, 2nd, 3rd, 4th$ ) にほぼ比例すると考えられる. ここで,  $S(x)_{1st}$ ,  $S(x)_{2nd}$ ,  $S(x)_{3rd}$ , および  $S(x)_{4th}$  はそれぞれ, 基本波, 二次, 三次および四次高調波のスペクトル密度を意味する. これら高調波スペクトル密度の積分値を基本波のそれで規格化した値  $I_{harm}/I_{1st}$  は, 図 3(b) の場合,  $(I_{2nd}/I_{1st}, I_{3rd}/I_{1st}, I_{4th}/I_{1st}) = (0.49, 0.30, 0.20)$  と計算できる. この値は, これまで考えてきたモデルから導かれる, 磁壁を自分自身の幅の 10 倍の振幅で振動させた場合 ( $A/W=10$ ) に生じる高調波 NER 信号強度の比である.  $I_{harm}/I_{1st}$  は  $A/W$  に依存するので,  $A/W$  を変化させて実験結果を再現できるか調べた. その結果,  $A/W = 3.6$  における計算値 (0.40, 0.19, 0.10) が実験結果, つまり観測された高調波 NER 信号強度を基本波のそれで規格化した値 (0.51, 0.22, 0.11), を良く再現することがわかった.

実際には, 核スピン偏極は空間的に不均一に起こると

<sup>7</sup>バイアスティーには正弦波 RF 電圧を印加するので, 電子密度も正弦波の変調がかかり, 磁壁もそれに伴い, この変調の周期で振動することを想定している.

考えられおり [13], その場合, NER 信号強度は  $I_{harm}$  に比例する, という関係からずれることが予想される. 特に, もし核スピンの幅に対して非常に小さい領域に偏極していた場合, このずれは顕著になり, これまで述べてきた高調波 NER 信号強度と磁壁振動の関係を定量的に議論できなくなってしまう. しかし, 核スピン偏極はこのようになっていないことを (ここには示さないが), 我々は NER スペクトルにおける  $A$  の依存性を測定することによって確かめている. もし核スピンの幅が非常に局所的に偏極していた場合,  $A$  を増加させると, 核スピン偏極位置に対する単位時間当たりの  $B_x^{HF}$  スペクトル密度の減少により, NER 信号強度はある  $A$  値以上では顕著に減少することが予想される. しかし, このような振舞いは見られず,  $A$  と共に単調に増大していく. これは核スピン偏極が少なくとも  $W$  程度の幅で空間的に分布していることを示唆している. また, NER スペクトルの形は  $A$  に依存して変化することを確かめている. これは  $B_z^{HF}$  の効果によるもので, 高調波 NER スペクトルの  $A$  依存性を調べると, さらに詳細に磁壁の形や振動, 核スピン偏極の空間分布などを議論することが可能であると考えられるが, これは今後の課題である.

#### 4. まとめ

本研究では, AlGaAs/GaAs 量子井戸構造を用いて,  $\nu = 2/3$  における  $^{75}\text{As}$ -NER スペクトルを, 主に高調波成分に着目して調べた. 観測された高調波 NER 信号強度は, 空間的にガウス分布する磁壁が周期的に振動することで, 周囲の核スピンを緩和するというモデルで半定量的に説明することができた. これは  $\nu = 2/3$  における電流励起核スピン偏極により生成された偏極核スピンの幅程度から数倍程度の領域に空間的に分布していることを示唆している.

#### 謝辞

宮下宣氏には試料の結晶成長, 小林崇氏には試料作成で協力していただきました. ここに感謝申し上げます. また, 本研究は熊田倫雄氏 (NTT 物性科学基礎研究所) との共同研究であり, 独立行政法人科学技術振興

機構の戦略的国際科学技術協力推進事業および東北大学グローバル COE プログラムの援助を受けている。

#### 参考文献

- [1] K. Hashimoto, et al., Phys. Rev. Lett. 88, 176601 (2002).
- [2] J.H. Smet, et al., Nature 415, 281 (2002).
- [3] G. Gervais, et al., Phys. Rev. Lett. 94, 196803 (2005).
- [4] N. Kumada, et al., Science 313, 329 (2006).
- [5] N. Kumada, et al., Phys. Rev. Lett. 99, 076805 (2007).
- [6] S. Kronmüller, et al., Phys. Rev. Lett. 81, 2526 (1998).
- [7] J.G.S. Lok, et al., Physica E 22, 138 (2004).
- [8] K. Hashimoto, et al., Phys. Rev. B 69, 153306 (2004).
- [9] T. Chakraborty, et al, Adv. Phys. 49, 959 (2000).
- [10] N. Shibata and K. Nomura, J. Phys. Soc. Jpn. 76, 103711 (2007).
- [11] G. Yusa et, al., Nature 434, 1001 (2005).
- [12] N. Kumada, et al., Phys. Rev. Lett. 101, 137602 (2008).
- [13] O. Stern, et al., Phys. Rev. B. 70, 075318 (2004).
- [14] B. Verdene, et al., Nature Phys. 3, 392 (2007).