

ESR/NMR Development of double resonance system for observation of ^{31}P nuclear spin state in low concentration Si:P and ESR measurement of dynamic nuclear polarizatio

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2012-11-21 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 藤井, 裕, 光藤, 誠太郎, 水崎, 隆雄, 田中, 俊大, 青山, 大志, 菊池, 彦光, 千葉, 明朗, 上野, 智弘, 松原, 明, 福田, 昭, LEE, Soonchil, LEE, Sangap, FUJII, Yutaka, MITSUDO, Seitaro, MIZUSAKI, Takao, TANAKA, Toshihiro, AOYAMA, Hiroshi, KIKUCHI, Hitomitsu, CHIBA, Meiro, UENO, Tomohiro, MATSUBARA, Akira, FUKUDA, Akira, LEE, Soonchil, LEE, Sanggap メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10098/6902

希薄ドーピング Si:P の ^{31}P 核スピン状態観測のための ESR/NMR
二重共鳴システムの開発と ESR による動的核偏極効果の測定

**ESR/NMR Development of double resonance system for observation of
 ^{31}P nuclear spin state in low concentration Si:P and ESR measurement of
dynamic nuclear polarization**

藤井裕¹, 光藤誠太郎¹, 水崎隆雄¹, 田中俊大¹, 青山大志², 菊池彦光², 千葉明朗³,
上野智弘⁴, 松原明⁵, 福田昭⁶, Soonchil Lee⁷ and SangGap Lee⁸

Yutaka Fujii¹, Seitaro Mitsudo¹, Takao Mizusaki¹, Toshihiro Tanaka¹, Hiroshi Aoyama²,
Hikomitsu Kikuchi², Meiro Chiba³, Tomohiro Ueno⁴, Akira Matsubara⁵, Akira Fukuda⁶,
Soonchil Lee⁷ and SangGap Lee⁸

¹ 福井大学遠赤外領域開発研究センター

¹ *Research Center for Development of Far-Infrared Region, University of Fukui,
Fukui 910-8507, Japan*

² 福井大学大学院工学研究科

² *Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, University of Fukui,
Fukui 910-8507, Japan*

³ 近畿大学理工学研究科

³ *Interdisciplinary Graduate School of Science and Technology, Kinki University, Higashi-Osaka
577-8502, Japan*

⁴ 京都大学大学院医学研究科

⁴ *Graduate School of Medicine, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan*

⁵ 京都大学低温物質科学研究センター

⁵*Research Center for Low Temp. and Materials Sciences, Kyoto Univ., Kyoto 606-8502, Japan*

⁶兵庫医科大学物理学教室

⁶*Department of Physics, Hyogo College of Medicine, Nishinomiya, Hyogo 663-8501, Japan*

⁷韓国科学技術研究院

⁷*Department of Physics, KAIST, Daejeon, 305-701, Republic of Korea*

⁸韓国基礎科学研究所

⁸*Korea Basic Science Institute, Daejeon, 305-333, Republic of Korea*

#

#

#

Abstract

We constructed an ESR/NMR double-resonance system for liquid-⁴He temperatures in order to detect a ³¹P-DNP-NMR signal from lightly doped (insulator) Si:P samples. We measured steady-state ESR of insulator samples of Si:P with the newly made system. DNP effect on ESR spectrum was found at 1.5 K. We also found that the magnitude of the nuclear spin polarization was changed by applying NMR pulses.

1. はじめに

現在提案されている量子コンピュータの中で、最も現実性の高いものはB. Kaneの提唱したものである[1]。これは、シリコン(Si)の中にリン(P)原子をドーピングしたSi:P試料において、ドナー電子と ^{31}P 原子核の超微細相互作用、およびドナー電子を介した ^{31}P 原子核同士におけるRKKY型の相互作用を電場により制御し、量子演算を行うというものである。このとき、 ^{31}P 核スピンの状態がキュビット(量子ビット)となる。希薄にドーピングされたSi:P中では、P原子の周りにドナー電子がトラップされた状態になる。この孤立ドナーにおいては低温で核スピン-格子緩和時間や核スピンコヒーレント時間が非常に長いために量子演算時間を長くとることが可能で、また、固体デバイスはキュビット数を容易に増やすことができるという利点がある。このモデルでは、計算の初期化のために、数テスラの高磁場および100 mK程度の超低温で電子スピンを完全に偏極させる必要がある。しかし、量子コンピュータへの応用が想定されるドナー濃度が臨界濃度($n_c = 3.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)より薄い絶縁体領域のSi:Pにおける実験的デモンストレーションは未だなされていない。

Si:Pを含む孤立ドナー半導体の研究は50年以上前から盛んになされているが、強磁場・超低温での研究はほとんどなく、上述のKaneモデルの発表後、再び注目を集めている。しかし、未だSi:P等におけるスピンドYNAMICS等を説明する物理には多くの謎が残されている。特に、キュビットとなる ^{31}P 核スピンの状態について調べることは、特に量子ビットのコヒーレンス時間を測定するために重要である。ESR測定から核スピン状態についてある程度の情報は得られるが、もっとも直接的にこれを測定する手段は核磁気共鳴(NMR)であることは明らかであろう。しかし、孤立ドナーを形成するPの濃度が低すぎる為、これまで ^{31}P -NMR 信号を直接観測することは困難であった。我々は、この量子コンピュータモデルの基礎研究として、十分に希薄にドーピングされたSi:P試料を用い、スピンの集合体の振る舞いを高磁場・極低温域で電子スピン共鳴(ESR)によって観測し、このモデルと同じ孤立ドナーのスピンの状態を調べてきた[2]。最近、我々はSi:P試料の強磁場ESR測定において、マイクロ波(~80 GHz)の照射による動的核偏極(Dynamic Nuclear Polarization, 略してDNP)効果によって、 ^{31}P 核スピンの偏極が熱平衡値の2から3桁増大することを見いだした。NMR信号は核スピン偏極の増大に応じて大きくなるので、DNPの助けを借りて低濃度Si:Pのサンプルから ^{31}P -NMR 信号を観測することが可能であると(ナイーブには)考えられる。さらには、DNPを利用することで、キュビットである核スピンの偏極をそろえ、量子コンピュータを初期化することができる。以上のような背景から、我々はDNPに関する孤立スピン系のダイナミクスを観測し、さらにDNPによる核偏極効果を利用して ^{31}P のNMR信号を直接観測することを目指し、ESRとNMRを同時に行う二重共鳴装置の開発を行っている。

本稿においては以下の2点を報告する。1) 導波管内の試料周りにNMRコイルを設置した液体 ^4He 温度域用のESR/NMR二重共鳴システムの構築。2) P濃度 $n = 6.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$

の絶縁体 Si:P 試料の ESR 測定と二重共鳴実験。特に後者については、核スピン偏極の大きさが NMR パルスによって変化することを見いだしたので最後に述べる。

2. 実験

本研究では、孤立ドナー電子スピン系は、磁場変調 cw-ESR 法を用いた。温度域は 20 K から 1.5 K、80 GHz 近傍（約 2.8 T の磁場下）で高周波数 ESR 測定を行った。実験装置の概要を図 1 に示す。サンプルの位置を除いて基本的に文献[2]と同じである。Si:P サンプルは円筒型導波管内部に設置する。サンプルの大きさは $3 \times 3 \times 0.3 \text{ mm}^3$ であった。システム自体の温度依存性を可能な限り減らすために、キャビティを使わないシンプルな導波管で構成した。準備の初期設定として、20 K で 80 GHz 付近のいくつかの異なるマイクロ波周波数で ESR スペクトルを測定し、最大信号の得られる周波数を選択した。磁場変調用のオーディオ周波数の位相は、 $T > 17 \text{ K}$ において、in-phase 信号のみが得られ、 90° out-of-phase 信号（以後、単に out-of-phase 信号）が無くなるように調整し、他の温度域でも同じ位相で固定した。なぜなら、この温度域では slow-passage condition が満たされ、ここでは out-of-phase 信号が観測できないことがよく知られているからである。

3. ESR/NMR 二重共鳴用プローブの開発#

ESR システムへの NMR システムを追加する為、我々は NMR/ESR 二重共鳴実験用に新しいプローブを作った。我々は磁場に垂直な軸に NMR 用の導波管の内側にコイルを配置した。外部から調整可能な可変コンデンサを入れており、NMR の共鳴周波数は外部から調整可能である。また、NMR コイルを設置するために試料位置を変更した。以前のシステムでは、試料部における磁場とマイクロ波進行方向は平行で、ともに試料面（面は約 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$ ）に対して垂直になっていた。それに対して今回開発を行った装置では、同じ透過型ではあるが、NMR

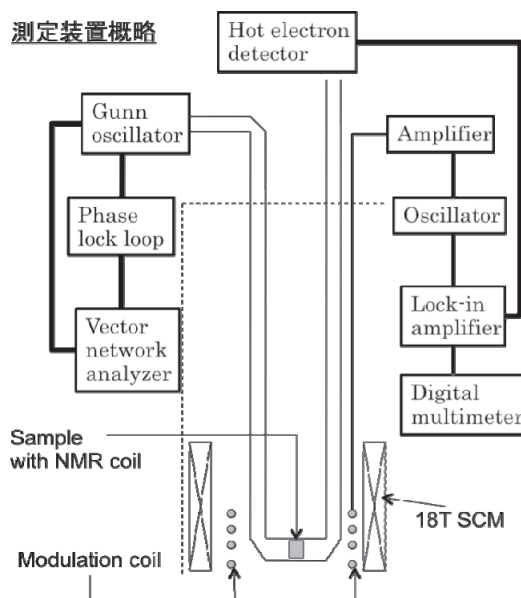


図 1: 高周波数 ESR 装置の概略図。マイクロ波源は Gunn 発振器で、ミリ波ベクトルネットワークアナライザ(MVNA: ABmm)によって位相ロックされる。マイクロ波信号は 4.2 K に冷却された InSb ホットエレクトロンディテクターによって測定される。変調磁場コイルはプラスチックホルダーに巻かれ、試料ホルダーに固定されている。

を行うためのコイルを磁場に対して垂直に巻く必要があることから、試料部において磁場とマイクロ波進行方向が垂直になる配置をとった。また、磁場が試料面に垂直になるようにした。その比較を図 2 に示す。

まず開発した装置の評価を行うため、標準試料として DPPH の ESR を行い、次に Si:P を用いた ESR を行った。測定に用いた試料は文献[2]と同じものである。すなわち、ドナー濃度が n_c より薄い $n=6.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ で、P 原子配列は制御されていない。

#

4. 実験結果・解析#

4-1. cw-ESR スペクトルの温度変化

よく知られているように、Si:P の孤立ドナー電子スピン \mathbf{S} と核スピン \mathbf{I} は超微細相互作用 A によって結合される。 z 軸に沿った印加磁場 B_0 の下で、この 2 スピン系のハミルトニアンは次式で与えられる。

$$\mathcal{H} = -\gamma_s \hbar S^z B_0 + A \mathbf{S} \cdot \mathbf{I} - \gamma_I \hbar I^z B_0, \quad (1)$$

ここで γ_s と γ_I はそれぞれ電子と核のスピンの磁場回転比で、 $A/h = 117.5 \text{ MHz}$ である。低温での ESR スペクトルは約 4 mT 分裂した 2 つの共鳴線から構成されている。以下、低磁場（高磁場）側において現れる共鳴線を L-line（H-line）と呼ぶ。図 3 は、前節で述べた新しいプローブを用いて測定した、78.45 GHz のマイクロ波周波数における cw-ESR スペクトルの温度依存性を示している。これらの測定では $\omega_m/2\pi = 544 \text{ Hz}$ で振幅 0.3 G の変調磁場を使用した。信号強度の温度依存性を図 4 に示す。文献[2]で報告されたものと定性的にほぼ同じ温度依存性を示した。以前我々が文献[2]において、Bloch 方程式の数値的計算による分析から passage condition を基にした議論を行ったように、サンプル位置でのマイクロ波磁場強度 B_1 を見積もることが可能である。同様の解析を行った結果、文献[2]で得た B_1 のおよそ半分の強度であることがわかった。なお、L-line よりも低い磁場において広幅なバックグラウンド信号が現れている。この信号は低温で大きくなったが、変調磁場振幅を小さくすると劇的に減少した。これは試料ホルダーとして用いた真ちゅうの伝導

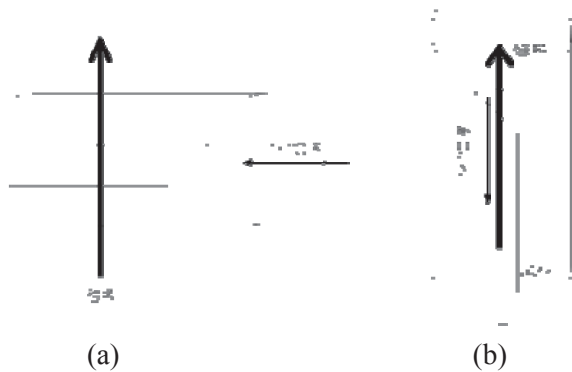


図 2：試料と導波管の位置関係

(a) 今回および (b)文献[2]の ESR 実験での試料位置における磁場方向とマイクロ波進行方向の関係

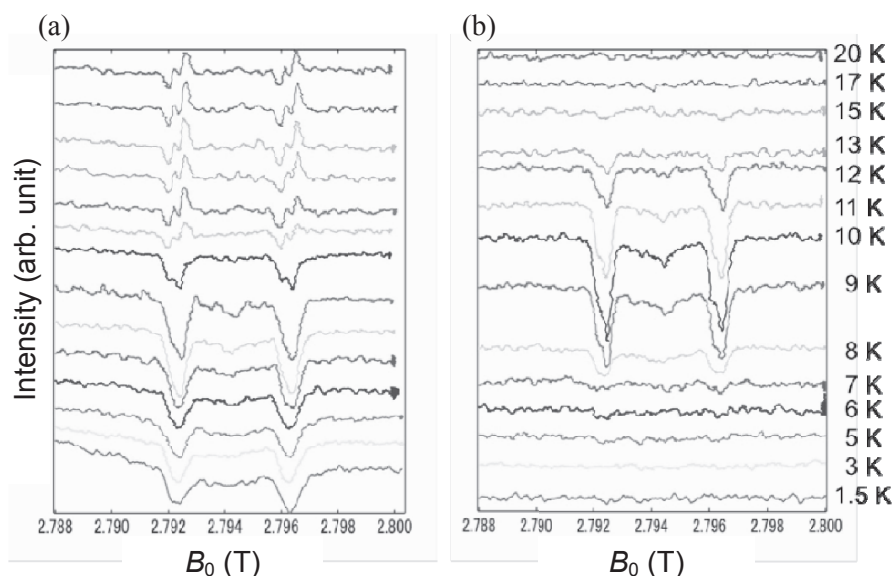


図 3 : cw-ESR スペクトルの温度依存性の測定結果。パネル (a) と (b) はそれぞれ in-phase および out-of-phase 信号を示している。

電子からの信号である可能性がある。

4-2. 動的核偏極効果の ESR による観測

式(1)から導かれるように、L-line と H-line の強度比は ^{31}P の up スピンと down スピン状態の数にほぼ比例する。もし、しばらくの間 H-line をマイクロ波で照射して DNP を引き起こしたならば、核スピンの偏極は DNP 効果により熱平衡値よりも正方向に増大 (up スピンが増加) し、L-line の強度は H-line よりも大きくなる非対称な ESR スペクトルが得られるであろう。我々

は、そのような非対称性が 6.9 K で観測されたことを報告した[2]。我々はより低温の 1.5 K で観測しようと試みた。予期したように、H-line 上で 20 分間マイクロ波を照射した後の ESR スペクトルはそのような非対称性を表した (図 5 参照)。しかし、核スピンの偏極は文献[2]に示されている 6.9 K のデータと比較して、あまり発達しなかった。この事実は、測定時間内 (およそ 30 分間) の核偏極の漏れ、またはマイクロ波のパワー不足を暗示し

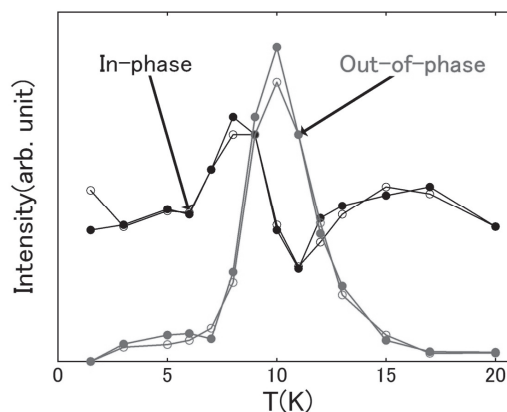


図 4 ESR スペクトル信号強度 (peak-to-peak) の温度変化。縦軸の値は電子スピン系の磁化の大きさと規格化されている。共鳴線形の変化に応じて強度の定義が変わるが、詳細は文献[2]を参照のこと。

ている。最近、van Tol らによって、3 K、8.58 Tにおける DNP 効果を示唆する良く似た ESR の結果が報告されていることは言及に値するであろう。

NMR によって核スピン偏極を制御する為に、H-line の照射後の核偏極が発達した状態を初期状態として、ESR スペクトルが NMR に相当する周波数の RF パルスによって変化するか調べた。ESR スペクトル測定中、3 – 5 μ s の RF パルスを 2 秒ごとに印加した。図 5 に示すように、107.1 MHz の RF パルスの有無によって ESR スペクトルが変化した。RF パルスを印加すると、2 つの共鳴線の強度はほぼ等しくなり、熱平衡状態に近い分布に戻ったことが示された。なお、107.1 MHz は 4 つのエネルギー準位のうち低エネルギーの 2 つの準位間の遷移に相当していると考えられ、L-line と H-line の分裂幅が 4.2 mT であるという観測事実とよく合致する周波数である。

5. まとめ#

上述のように、我々は希薄ドープ Si:P のための ESR/NMR 二重共鳴システムを開発した。 $n = 6.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3} < n_c$ の絶縁体領域 Si:P 試料中のドナー電子スピンについて、2.8 T の高磁場と外部磁場変調を用いた高周波 cw-ESR 実験を、1.5 K までの極低温域で行った。1.5 K では DNP 効果により 10 %程度の核スピン偏極度まで得られた。さらに、この核スピン偏極を NMR パルスによって変化させうることを実証した。今後、Si:P における DNP の機構やスピンドYNAMIKS の物理を理解するためには、より定量的な研究が必要である。より高い核スピン偏極度を得るため、マイクロ波強度を高めるための共振器を用いた ESR 測定や、より低温（希釈冷凍機温度）での測定が望まれる。

また、文献[3]のように強磁場・極低温領域での測定が最近報告されつつあるが、物理を議論するにはまだ磁場依存性などのデータが足りない状況である。電子スピンのダイナミクスはパルス ESR を用いるのが直接的ではあるが、cw-ESR は比較的容易に広い範囲の磁場（周波数）での測定が可能という利点がある。本報告や文献[2]で議論した手法は、電

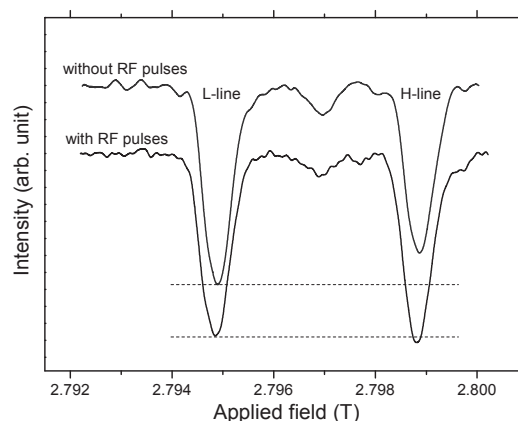


図 5 : 1.5 K において、H-line を 20 分間照射した後に測定された ESR スペクトル。In-phase 信号のみ示した。上側は RF パルス無しの通常のスペクトル。下側は 107.1 MHz の RF パルスを印加しながら測定したスペクトル。いずれもバックグラウンド信号は差し引かれている。H-line 強度と比較するために、L-line 強度を示す点線を引いた。

子スピンダイナミクスの知見が cw-ESR でも得られる部分があることを示しており、今後の cw-ESR を用いた研究の発展に寄与するものと考えている。

参考文献

- [1] B. E. Kane, *Nature* **393**, 133 (1998).
- [2] M. Song *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 206001 (2010).
- [3] J. van Tol *et al.*, *Appl. Magn. Reson.* **36** (2009) 259