

平成 30 年 5 月 10 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17484

研究課題名(和文)ダイヤモンドNV電子スピンの電気的コヒーレンス検出

研究課題名(英文)Electrical detection of Electron Spin Coherence in NV centers in Diamond

研究代表者

森下 弘樹 (Morishita, Hiroki)

京都大学・化学研究所・助教

研究者番号：20701600

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題の成果の1つ目は、電子スピンのコヒーレンスの電気的検出を発展させた、ダイヤモンド中の核スピンコヒーレンスの制御と電気的検出である。電気的電子核二重共鳴検出(EDENDOR)装置の構築を行い、集団核スピンのラビ振動とコヒーレンス時間測定に成功した。2つ目は、ダイヤモンドNV中心を利用したハイブリッドセンサーの実現を目指し、Autler-Townes Splittingを利用した単一NV中心のマイクロ波ドレスト状態の生成に成功した。さらに、コヒーレンス時間の二桁の増加を実験的に示し、1桁の感度向上を理論予測した。

研究成果の概要(英文)：The first study is to perform electrical detection of the nuclear spin coherence in diamond based on a technique of electrical detection of NV electron spin coherence in the diamond. We measured Rabi oscillations and coherence time of ensemble nuclear spins in diamond using home-made electrically detected electron-nuclear double resonance (EDENDOR) spectrometer. The second study is to perform generation of microwave dressed states in a single NV center in diamond based on the Autler-Townes Splitting to realize hybrid quantum sensors. We showed the coherence time of the dressed states is more than two orders of magnitude longer than that of the undressed states. Also, we theoretically estimate the enhancement of sensitivity by more than an order of magnitude compared with that without dressed states.

研究分野：ナノ構造物理

キーワード：ダイヤモンド NV中心 電気的検出 EDENDOR

1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンド中の窒素 空孔(NV)中心を利用した磁気センサーの研究が、現在世界中で活発に行われている。負に帯電したNV 中心(NV-)は、室温で単一の電子・核スピンの検出を行うことができるため、ダイヤモンド上の有機物質のプロトン核スピンをNV-を利用して検出に成功している[Nature **496**, 486 (2013) etc]。これらの測定は光学測定によるものである一方、応用上重要な電気検出には成功していない。ダイヤモンド中を流れる電流によってNV-の磁気共鳴信号を測定することは、大きな課題であり、デバイスへの応用において重要な研究になる。

2. 研究の目的

本申請では、ダイヤモンド中の NV 中心の電氣的磁気共鳴検出(EDMR)法によって電子スピンの電氣的コヒーレント検出を目指す。そのために、現在 NV 中心の量子情報処理や超高感度な量子デバイスの実現に向けた研究で使用されている焦点レーザー顕微鏡に EDMR 測定系を組み合わせる。そして、光学的磁気共鳴検出(ODMR)法と EDMR 法の同時測定を行うことで、NV 中心と光もしくは電荷との相互作用であるキャリアダイナミクスを明らかにすることができる。その結果を用いて、これらの3つの特性を生かした量子情報処理や、新規量子デバイス(電気検出型磁気センサーなど)の基盤研究になる。さらに、本課題で得られる知見は、今後の単一 NV 中心の電氣的検出の要素技術になる。

3. 研究の方法

(1) ダイヤモンド NV 中心の窒素核スピニコヒーレンスの制御と電氣的検出

本研究課題の申請当時は、ダイヤモンドNV 中心の電子スピニコヒーレンスの電氣的検出を行うことを計画していたが、初年度で電子スピニコヒーレンスの電氣的検出に成功した。しかし、競合グループも同様の研究を我々に先駆けて成功した。そこで本申請では、核スピニコヒーレンスの電氣的検出に着手した。

ダイヤモンド中の核スピン(炭素や窒素)は、室温下においても長いコヒーレンス時間(T_2)を有することから、高感度な量子センサー、量子リピーター、量子レジスタが室温下で実現している。これらの研究において、核スピニコヒーレンス制御と検出が重要な要素技術となる。そこで本課題は、核スピニコヒーレンスをDavies ENDORのパルスシーケンスを応用することで電子スピンを介して電氣的に測定した。そのためにまず、パルス型電氣的電子・核二重共鳴(EDENDOR)装置の構築を行った。この自作の装置を用いて、核スピンのラビ振動測定と T_2 測定の電氣的検出を行った。

(2) ダイヤモンド NV 中心におけるドレスト状態の生成とドレスト状態を用いたハイブリットセンシング

本課題では、高感度な磁気センサーを実現するためには、マイクロ波ドレスト状態を利用することを考えた。 T_2 の長時間化は、量子センシングの感度向上に繋がることから研究が盛んに行われている[Nat. Mater. **8**, 383 (2009)]。特に、核スピン量子メモリを用いたハイブリットセンサが最近注目されている[Nat. Commun. **7**, 12279 (2016); Phys. Rev. A **94**, 052330 (2016).]。このハイブリットセンサの高感度化のためには、量子メモリ等を利用しながら、 T_2 の長時間化が要求される。我々は、シリコン中のリンにおいてATS法によるドレスト状態の T_2 が長時間化すると報告されていることに着目し[Nat. Nanotech. **12**, 61 (2017).]、Aulter-Towns Splitting(ATS)法 [Phys. Rev. **100**, 703 (1955).]によるドレスト状態選生成に着目した。NV 中心におけるドレスト状態は、NV 中心の共鳴周波数付近の周波数をもつ強マイクロ波を照射することによって、NV 中心とマイクロ波モードが相互作用することによって生成されることが期待される。そこで、本課題では、単一の NV 中心を用いてその生成原理の解明をまず行った。

次に、生成されたドレスト状態を用いたセンシングへの応用を考察する。そのために、まずドレスト状態を生成することによるコヒーレンス時間の増減を調べた。そして、このドレスト状態を利用することで感度の向上が示唆された。

4. 研究成果

(1) ダイヤモンド NV 中心の窒素核スピニコヒーレンスの制御と電氣的検出

本研究課題は、ダイヤモンド NV 中心の窒素核スピニコヒーレンスの制御と電氣的検出を目指し、パルス型電氣的電子・核二重共鳴装置(EDENDOR)の構築を行なった。その概略図を図1に示す。本測定系は、共焦点レーザー顕微鏡に磁気共鳴用の電磁波照射系と電気信号検出系を組み合わせた。

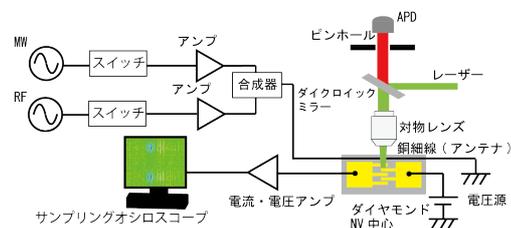


図1 EDENDOR 測定系の概略図

この測定装置を用いて EDENDOR 法による ^{14}N 核スピニコヒーレンスの制御と電氣的検出を行った。

まず、 ^{14}N 核スピニコヒーレンスの制御を行

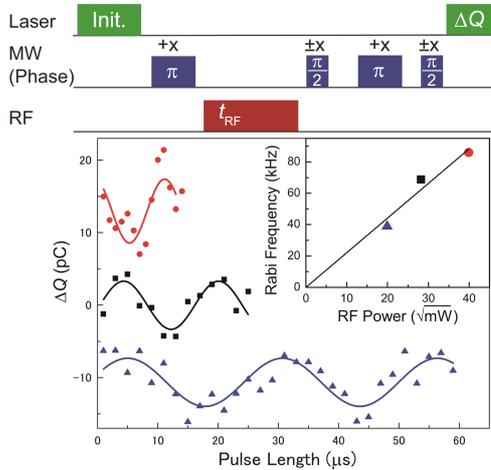


図 2. 核スピンラビ振動の電気的検出のためのパルスシーケンス(上) とその結果. (下). 振動周波数の RF パワーの平方根依存性(挿入).

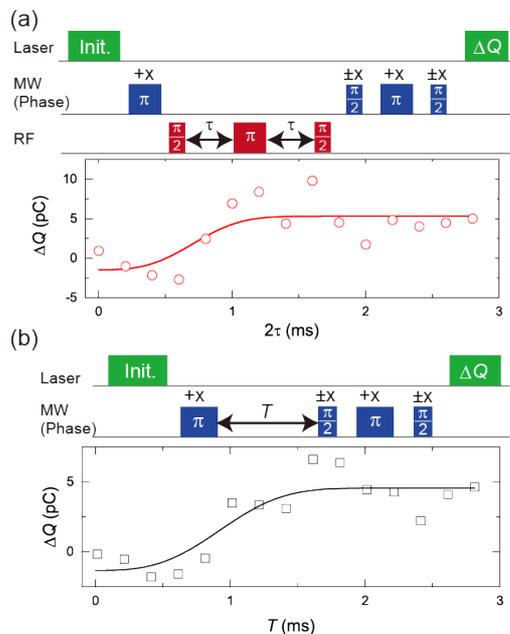


図 3. (a) NV 中心の ^{14}N 核スピンの緩和時間測定のためのパルスシーケンス(上) と測定結果(下) (b) NV 電子スピンの緩和時間測定のためのパルスシーケンス(上) と測定結果(下)

なう為に、 ^{14}N 核スピンラビ振動を電気的に検出した。図 2 上に本 EDENDOR 法を用いた ^{14}N 核スピンのラビ振動測定のためのパルスシーケンスを示す。本測定では、Davies ENDOR のパルスシーケンス[A. Schweiger and G. Jeschke, Principles of pulse electron paramagnetic resonance (Oxford University Press, New York, 2001)]を応用し、NV 電子スピンのエコー強度の変化 (ΔQ) を

RF の長さ依存性を測定することで核スピンのラビ振動測定を行なった。RF の周波数を $|-1, 0\rangle$ と $|-1, +1\rangle$ 間の分裂幅の 3 MHz に固定して得られた結果を図 2(下) に示す。ここで、 $|m_s, m_l\rangle$ を電子スピン、 m_l を核スピンと定義する。赤、黒、青のプロット点がそれぞれ、RF の強度を、 $\sim 1.6, 0.8$, そして 0.4 W にしたときの結果である。この得られた実験データを正弦波で曲線近似し、振動周波数の RF 強度の平方根依存性を挿入に示す。原点固定で直線近似した結果、実験データとよく一致していることから、今回得られた振動が $|-1, 0\rangle$ と $|-1, +1\rangle$ 間の核スピンのラビ振動であることが分かった。

次に ^{14}N 核スピンコヒーレンスを電気的に検出した。図 3(a) の上に測定に用いたパルスシーケンスを示す。本測定においては、Davies ENDOR パルスシーケンスに核スピンの Hahn エコー測定を組み込むことで $T_2^{(n)}$ 測定を行なった。ここで、 τ が $3 \mu\text{s}$ になるように RF の強度を調整した。また、他の測定条件は、核スピンのラビ測定のとおり同様の条件で測定を行なった。その結果を図 3(a) 下に示す。図 3(a) 下は、電子スピンエコーの強度 ΔQ の RF の $\pi/2$ と $\pi/2$ の和である 2τ の依存性をプロットした。得られたプロット点を指数関数で曲線近似した結果、 $T_2^{(n)} \approx 0.8 \text{ ms}$ が得られた。

本研究で得られた $T_2^{(n)}$ は、NV 電子スピンのコヒーレンスを介して測定を行なっているため、電子スピンの縦緩和時間 ($T_1^{(e)}$) によって制限されている可能性がある。そこで、 $T_2^{(n)}$ の緩和時間を議論するために、図 3(b) の上に示すパルスシーケンスを用いて $T_1^{(e)}$ の測定を行い、その結果を、図 3(b) 下に示す。指数関数で曲線近似を行なった結果、 $T_1^{(e)} \approx 1 \text{ ms}$ が得られた。本結果は、これまでに報告されている $T_1^{(e)}$ より僅かに短いものであった [Science 320, 1326 (2008).] その原因としては、サンプル中のリンドナーによる影響やパルス操作中に流れる暗電流による影響が考えられる [Phys. Rev. Lett. 118, 197201 (2017). arXiv:1712.09209 (2017)]。次に $T_1^{(e)}$ と $T_2^{(n)}$ の比較した結果、 $T_2^{(n)}$ が室温で $T_1^{(e)}$ によって制限されるほど長い $T_2^{(n)}$ が得られたことが分かった。

本研究成果は、現在論文投稿中である [arXiv:1803.01161]

(2) ダイヤモンド NV 中心におけるドレスト状態の生成とドレスト状態を用いたハイブリッドセンシング

本研究課題において、まずダイヤモンド NV 中心におけるマイクロ波ドレスト状態の生成を行った。マイクロ波ドレスト状態は、強マイクロ波を NV 中心に照射することによって、マイクロ波モードと NV 中心が相互作用することによって生成される新たな状態ことである。

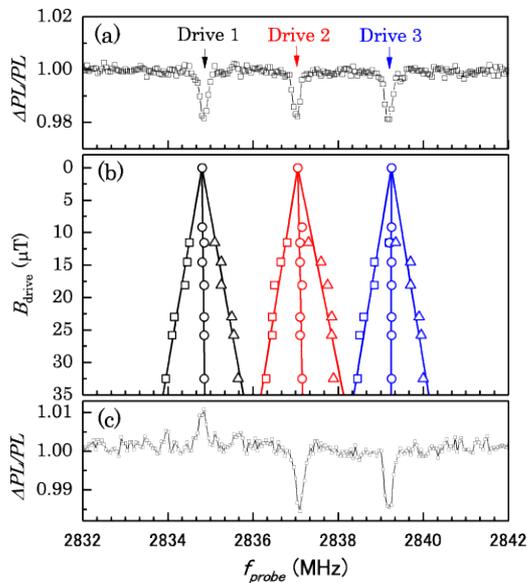


図4 (a)ドレスト状態を生成していない時のODMR スペクトル(b)ドレスト状態の位置の強マイクロ波強度の依存性 (c)ドレスト状態生成時のODMR スペクトル

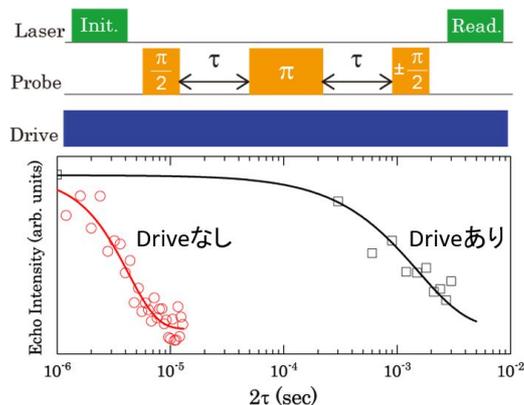


図5 Hahn Echo 法(上)によるドレスト状態の生成していない時の T_2 (赤)としているときの T_2 (黒) .

この相互作用を明らかにするためにまず、強マイクロ波を照射していない時の光学的磁気共鳴(ODMR)スペクトルを図4(a)示す.この得られた3本のディップは,NV中心の電子スピンとNV中心の窒素核スピンの超微細相互作用による分裂である.次に、強マイクロ波を $33\mu\text{T}$ 、周波数を一番左の低周波数側の共鳴周波数に固定し、Drive 1 で引加したときのODMR スペクトルを図4(c)に示す.その結果、信号が1本から3本に増加した.そして、ドレスト状態の共鳴周波数のこの強マイクロ波強度依存性をプロットしたのが図4(b)である.黒が Drive1,赤が Drive2,そして青が Drive3 の周波数を引加したときのドレスト状態の生成周波数を表している.これらを直線近似した結果が、実線である.そ

の結果、マイクロ波の強度に比例して信号が3つに分裂していることが分かった.この依存性が Aulter-Towns Splitting に基づくドレスト状態の生成が、単一 NV 中心を用いて室温下で成功した.

最後に、このマイクロ波ドレスト状態の T_2 を測定した.その結果を図5に示す.赤がドレスト状態を生成していない時の Hahn Echo による測定結果であり、黒がドレスト状態を生成しているときの T_2 の結果である、指数関数で曲線近似した結果、ドレスト状態を生成したことによって、 T_2 が2桁向上することが分かった.さらに、この T_2 の結果を元にハイブリットセンサの感度を見積もった結果、センサー感度が1桁向上することが分かった.

本研究成果は、現在論文投稿中である [arXiv:1707.04702].

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 0 件)

[学会発表](計 11 件)

H. Morishita and N. Mizuochi; "Diamond magnetometry based on an electrically detected magnetic resonance," International Symposium on Pure & Applied Chemistry 2016, Aug. 15 - Aug. 19, 2016, Kuching, Sarawak, Malaysia.

H. Morishita, T. Tashima, and N. Mizuochi: "Hybrid Sensing with Quantum Virtual Memories in Single NV center in Diamond," International Symposium on Hybrid Quantum Systems 2017, Sep. 10 - Sep. 13, 2017, Miyagi-Zao, Japan.

森下 弘樹,水落 憲和 他: "NV 中心の窒素核スピンコヒーレンスの制御と電氣的検出," 第31回ダイヤモンドシンポジウム, 2017年11月20日~22日, 関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス

H. Morishita, N. Mizuochi et al. "Electrical Detection and Control of ^{14}N Nuclear Spin Coherence in NV centers at Room Temperature," APC March Meeting, 2018 March 5 - 9, Los Angeles, USA.

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

Hiroki Morishita's publication list

[http://scholar.google.co.uk/citations?u](http://scholar.google.co.uk/citations?user=-3j4iHEAAAAJ&hl=en)

[ser=-3j4iHEAAAAJ&hl=en](http://scholar.google.co.uk/citations?user=-3j4iHEAAAAJ&hl=en)

京都大学化学研究所無機フォトンクス材料

研究領域水落研究室

<http://mizuochilab.kuicr.kyoto-u.ac.jp/>

[index.html](http://mizuochilab.kuicr.kyoto-u.ac.jp/)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森下 弘樹 (MORISHITA HIROKI)

京都大学 化学研究所 材料機能化学系

助教

研究者番号：20701600