

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：12608

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22480

研究課題名(和文)ダイヤモンド中の窒素欠陥ノイズの分布解明によるコヒーレンス時間の2ケタ伸長

研究課題名(英文) Extension of nitrogen-vacancy center spin coherence time by controlling P1 center spin bath in diamond

研究代表者

荒井 慧悟 (Arai, Keigo)

東京工業大学・工学院・准教授

研究者番号：10786792

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,700,000円

研究成果の概要(和文)：ダイヤモンド中の窒素・空孔欠陥(NVセンター)は、次世代センサとしての活躍が期待される。ところが、センサとしての重要な性能指標である感度は、窒素欠陥(P1センター)のノイズにより律速されている。本研究では、スピンロック法、スピン・エコー法、動的減結合法などのパルスシーケンスをP1センターに印加し、ノイズ除去の有効性を比較した。その結果、強いRF下では、スピンロック法がノイズ除去に最も有効で、NVセンターのコヒーレンス時間を延ばせることがわかった。また、これまでに構築してきたOrnstein-Uhlenbeck過程に従うノイズ・スペクトロスコピー理論により上記を説明することに取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、コヒーレンス時間を決めるP1センターのノイズ分布の解明、およびそれによるNVセンターのコヒーレンス時間の伸長を目的としていた。先行研究は、P1センターへのスピンロック法やスピン・エコー法の適用、またはNVセンターへの動的減結合法の適用に留まっていた。一方で本成果は、より一般的なパルスシーケンスについてノイズ除去の影響を明らかにし、さらにノイズ・スペクトロスコピー理論からの包括的な理解に取り組んだ点に学術的意義がある。また、より応用範囲の広いDC磁場センシングに活用するため、NVセンターにはラムジ一法を適用した点で社会的意義があると言える。

研究成果の概要(英文)：The nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond are expected to play an essential role as next-generation sensors. However, the sensitivity, a key performance indicator as a sensor, is fundamentally limited by the noise of nitrogen (P1) centers. In this study, we applied pulse sequences such as spin-locking, spin-echo, and dynamic decoupling methods to the P1 center and compared the effectiveness of noise reduction. As a result, we found that the spin-lock method is the most effective for noise removal under strong RF and can extend the coherence time of NV centers. We also tried to explain the above by the noise spectroscopy theory following the Ornstein-Uhlenbeck process we have constructed so far.

研究分野：量子センシング

キーワード：ダイヤモンド 窒素・空孔欠陥 量子センシング 量子制御 電子スピン

## 1. 研究開始当初の背景

次世代量子システムのひとつであるダイヤモンド中の窒素・空孔欠陥(NV センター)は、高感度・高空間分解能の磁場センサーや、常温で動作可能な量子ビットとして機能する。将来的にはヒトの脳活動モニタリングや極限環境でのセンシングといった社会実装が期待されている。ところが、磁場感度や量子ビットの忠実度がともにコヒーレンス時間に依存するため、NV センターのコヒーレンス時間をいかに長く伸ばすかがこれらの応用実現のカギを握るといえる。

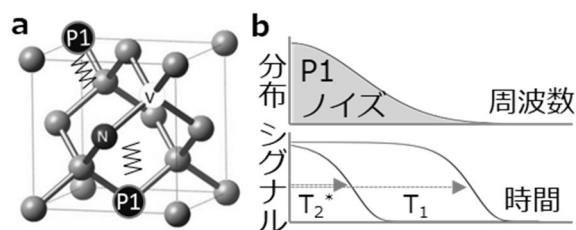


図1: a, NVセンターの結晶構造。b, P1センターのノイズ分布とコヒーレンス伸長の概念図。

NV センターのコヒーレンス時間は、本質的にはダイヤモンド格子振動との相互作用で決まる縦緩和時間  $T_1$  (~数百 $\mu$ s) によって与えられるはずである。しかし、現状ではダイヤモンド中に存在する窒素欠陥 (P1 センター) 由来のノイズによって不均一横緩和時間  $T_2^*$  (~数 $\mu$ s) で限界を迎えている (図 1a)。これは、P1 センターのノイズ分布が解明されておらず、コヒーレンス時間伸長の汎用的な手段がいまだ確立されていないためといえる。そこで本研究では、図 1b に示すように、P1 センターのノイズ分布をいかにして測定し、それをどのようにコヒーレンス時間の伸長につなげるかを研究開始当初の問いとして掲げた。

研究開始時の本分野の先行研究では、 $^{13}\text{C}$  核スピン等の様々なノイズ源が混在していたり、ノイズ測定帯域が狭かったため、P1 センターのノイズ分布の包括的な理解には至っていなかった (表 1)。2006 年にハーバード大学が NV センターにスピン・エコー法を適用し、全スピンに由来するノイズを狭帯域で測定した [Childress *et al.*, *Science*, **314**, 281 (2006)]。この研究では NV センターのコヒーレンス時間を  $T_2^*$  から  $T_2$  まで改善したものの、本手法は AC 測定にしか適用できないという課題があった。本手法が AC 計測に限られるのは、NV センターにスピン・エコー法を適用すると、そのスピン状態がシークエンスの途中で反転し、AC ノイズに感度を得てしまうためである。続く 2012 年には同大が NV センターに動的減結合法を適用し、全スピンに由来するノイズの分布を広帯域で解明した [Bar-Gill *et al.*, *Nat. Commun.*, **3**, 858 (2012)]。この研究は、 $T_2$  時間を  $T_1$  まで漸近させた点で革新的であったが、その応用は已然として AC 測定に限定されていた。その後 2018 年には、同大が P1 センターにスピン・エコー法を適用し、P1 センターのみ由来するノイズを狭帯域で測定した [Bauch *et al.*, *Phys. Rev. X*, **8**, 031025 (2018)]。この手法は、NV センターをラムジー法で制御しているため DC 測定に適用できる利点がある。しかし、N センターのコヒーレンス時間は  $T_2^*$  から  $T_2$  への改善に留まっている。

## 2. 研究の目的

本研究は、P1 センターのノイズ分布を広帯域で測定することを可能にし、様々な P1/NV 濃度を持つダイヤモンド試料に対して、コヒーレンス時間を  $T_2^*$  から  $T_1$  限界まで押し上げることを当初の最終目標とした。特に、コヒーレンス時間を決める P1 センターのノイズ分布の解明、及び縦緩和時間  $T_1$  へ到達するためのノイズ抑圧手法の理論的・実験的な確立に向けた第一歩として、実験装置をイチから構築するところから研究を開始した。また、応用範囲が広い DC 計測を可能とするため、これまで NV センターに適用することが通例だった動的減結合法やスピンロック法を、発想を変えてノイズ側 (P1 センター) に適用する点に独創性を見出して研究を立ち上げた。研究にあたっては、これらの P1 センターの制御手法が NV センターのコヒーレンス時間にどれだけ影響を与えるか、を調べることを目的とした。

表1: 国内外の研究動向と本研究の位置づけ

	適用パルス		測定試料	学術的意義	コヒーレンス			応用先
	NV	P1			$T_2^*$	$T_2$	$T_1$	
Childress	スピンエコー	N/A	1つのみ	全ノイズ源をまとめて狭帯域で測定	→			• AC磁場測定 • AC量子ビット操作
Bar-Gill	動的減結合	N/A	3つ	全ノイズ源をまとめて広帯域で解明		→		
Bauch	ラムジー	スピンエコー	3つ	P1センターのノイズを狭帯域で測定	→			• DC磁場測定 • DC量子ビット操作
本提案	ラムジー	動的減結合	多数	P1センターのノイズ分布を広帯域で包括的に解明	→	→	→	

### 3. 研究の方法

本研究では、NV センターを P1 センターの固定プローブとして用い、さらに P1 センターを RF を用いて能動的に制御することで、P1 センターのノイズおよび NV センターのコヒーレンス時間への影響を観察した。図 2a に NV センターのエネルギー準位を示す。NV センターは基底状態がスピン 1 を持つ 3 準位系である。基底状態は緑光によって励起状態へ遷移する。励起状態にある NV センターは、スピンを保存して赤色蛍光を放出する。ところが、その放出確率はスピン状態に依存しており、 $m_s = \pm 1$  の状態から励起を開始した場合は、一部非放射遷移を伴い、蛍光が弱くなる。NV センターの基底状態は、マイクロ波を印加するとコヒーレントに制御できる。図 2b に実験で使用したパルスシーケンスの概略を示す。NV センターには、2 つの  $\pi/2$  パルスからなるラムジープルス列を照射する。一方で、P1 センターには RF を連続波として印加するスピロック法、RF の  $\pi$  パルスを一度だけ印加するスピン・エコー法、RF の  $\pi$  パルスを等間隔で多数印加する動的減結合法を適用する。

得られた実験結果は、P1 パルス列を周波数空間でのフィルタ関数として見立て、そこに P1 センターのノイズ分布が畳み込むことでコヒーレンスを計算する、ノイズ・スペクトロスコピーの描像で考察した。その際、スペクトル空間でのフィルタ関数・ノイズの周波数掃引や幅の調整は、NV や P1 センターに印加するパルス間隔やパルス数を変化させることで可能となる。さらには、実験結果を今後 Ornstein-Uhlenbeck 過程に従うモデルとも比較できるようにするため、量子多体系の数値計算ツールの基盤も構築した。

### 4. 研究成果

まず初めに、動的減結合パルス等を P1 プローブとして用い、P1 センターのノイズ分布を高分解能で明らかにするための実験・解析系の構築に取り組んだ。計測環境としては、NV スピンおよび P1 スピンのパルス制御が可能な装置を立ち上げた。図 3 に装置の概略図を示す。NV センターは 2 周波のマイクロ波により上下の基底状態の遷移を同時制御することができる。また、この装置では NV センターの状態を光で読み出す際に、共焦点顕微鏡を介しての定点測定や CCD カメラによる並列イメージングの両手法から選択することが可能である。また、P1 センターや NV センターの精密な時間制御を可能とするための、RF・MW パルス制御装置の実装も進めた。実験に用いるダイヤモンド試料は、ダイヤモンド合成の研究室と連携し、高い P1 センター濃度のものを入手した。

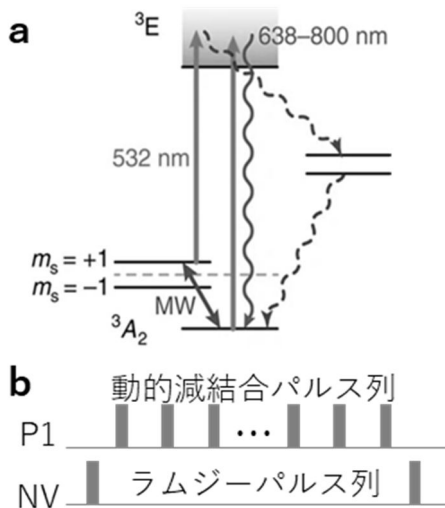


図 2. NV と P1 の制御方法。a, NV センターのエネルギー準位。緑光で励起し、スピン状態に依存する赤色蛍光で読み出す。基底状態間はマイクロ波で制御する。b, パルスシーケンスの例。DC 磁場センシング応用を見据えて、NV センターはラムジープルス列を利用。P1 センターは、スピン・ロック、スピン・エコー、動的減結合を比較。

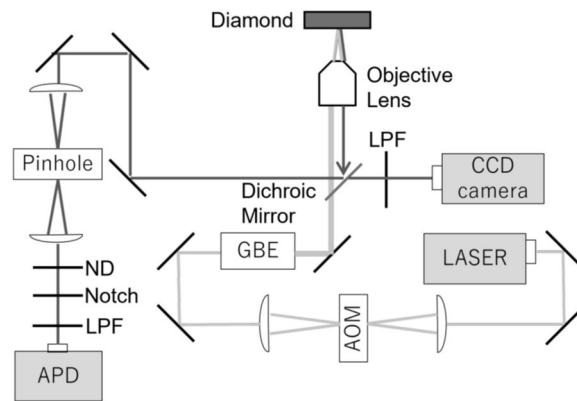


図 3. 光学系模式図。AOM は音響光学素子、GBE はビームエキスパンダー、LPF はロングパスフィルター、ND は光量を減らすための中性濃度フィルター、Notch はノッチフィルター、APD はアバランシェフォトダイオードである。ピンホールは共焦点顕微鏡のために用いている。また、図中で補足のない黒斜線はミラーを、半月上の物体はレンズを表す。薄い灰色線は励起用のレーザー光を、濃い灰色線は NV センターの蛍光を示している。なお、両線について、直線はコリメートしていることを、三角になっているところはレンズによって光が収束していることを、太い線はビーム径が拡大されたことを表している。

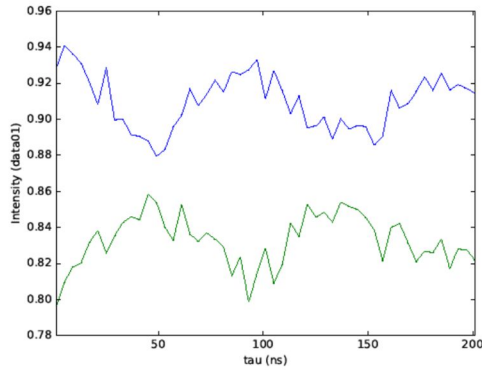


図 4. NV センターの蛍光強度で計測した P1 センターのラビ振動の結果。青線、緑線はそれぞれ NV センターの  $m_s = 0, +1$  状態からの蛍光強度の計測データを表す。NV センターにはスピン・エコーパルス列を、P1 センターには長さ  $\tau$  の RF パルスを加える。P1 センターが  $\pi$  回転する  $\tau = 50$  ns, 150 ns では、P1 センターが AC 磁場ノイズとして振る舞い、NV センターのコヒーレンス時間を短縮する。そのため蛍光強度が低下する。

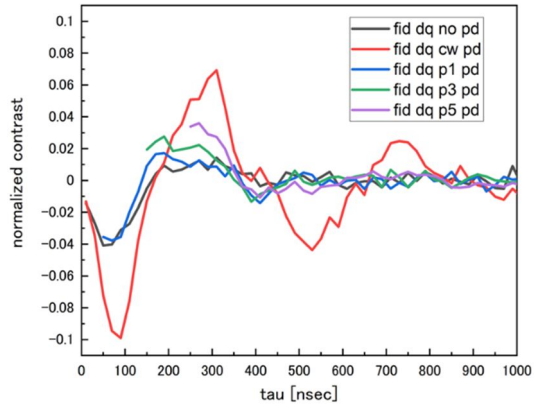


図 5. 高密度試料における NV センターのラムジー計測の結果。NV センターには  $\pi/2 - \tau - \pi/2$  のラムジーパルス列を、P1 センターにはパルス無し(黒)、スピンロック(赤)、スピン・エコー(青)、動的減結合(緑、紫)パルス列を加える。高強度の RF パルス下では、スピンロックが効果的に NV センターのコヒーレンス時間を伸長する。一方、低～中強度においては、動的減結合がより有効になると予想されるため、今後の調査課題となっている。

次に、P1 センターのパルス列の構築のための最初の一步として、P1 センターのラビ振動を観測した結果を図 4 に示す。本実験では、NV センターにスピン・エコー法を適用し、P1 センターにある長さ  $\tau$  の RF パルスを加える。この RF パルスの長さを掃引すると、P1 センターのスピンの回転度合いによって、NV センターのスピン・エコーで取り除けない AC 磁場ノイズが増減するため、蛍光強度が振動する。この振動周期は RF パルスの強度に依存し、振動振幅は P1 センターと NV センターの平均結合強度(つまり P1 センターの濃度)に依存する。この計測から、P1 センターに印加する RF の  $\pi$  パルスが決定される。

続いて、コヒーレンス時間を  $T_1$  限界に漸近させるための糸口をつかむため、P1 センターへパルス列を適用し、NV センターのコヒーレンス時間の伸長を調査した。NV センターに対してはラムジー・パルス列を印加して  $T_2^*$  コヒーレンス時間を計測できるようにした。一方で、P1 センターに対しては、RF を連続波として印加するスピンロック法、RF の  $\pi$  パルスを一度印加するスピン・エコー法、RF の  $\pi$  パルスを等間隔で多数印加する動的減結合法をそれぞれ適用し、NV センターの  $T_2^*$  コヒーレンス時間を解析した。図 5 に初期的な計測の結果を示す。特に高強度の RF パルス下では、スピンロック法が最も効果的に NV センターのコヒーレンス時間を伸長する様子が確認された。一方で、低～中強度においては、動的減結合がより有効になる様子がわかった。その後、様々な RF 強度においてコヒーレンス時間が最長となるようパルス数・間隔を最適化することに取り組んでいる。さらには、様々なパルス列によるコヒーレンス時間の伸長度合いについて、NV・P1 濃度の観点からも、より包括的に調査していくことが新たな課題となっている。

最後に、Ornstein-Uhlenbeck 過程に従う量子多体系モンテカルロ・シミュレーション基盤やノイズ・スペクトロスコピー理論を用いて上記の結果を説明することに取り組んだ。図 6 にその考え方および手法の概要を示す。

今後も引き続き、本研究で明らかとなった P1 センター由来のノイズの抑制と、その理論的・数値計算的ツールを駆使して、アンサンブル NV 系でのコヒーレンス時間の  $T_1$  への漸近を狙う。それにより、既存のセンサに見劣りしない感度でのダイヤモンド量子センシング技術の確立および応用の開拓を目指す。

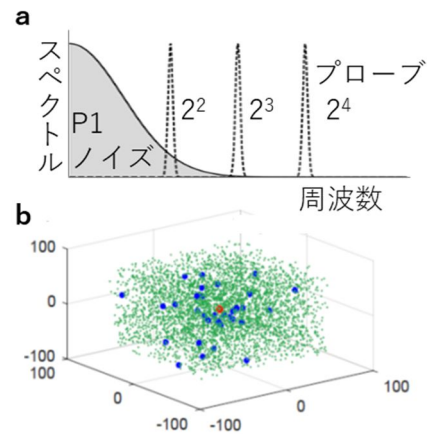


図 6. 解析の概要。a, スペクトル空間での P1 ノイズと NV プローブの関係。両者の重なりがコヒーレンスに影響する。b, モンテカルロ数値計算での NV(赤)と P1 センター(青)の配置の例。緑は  $^{13}\text{C}$  核スピンを表す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	石綿 整  (Ishiwata Hitoshi)  (30784897)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・量子生命科学研究所・主任研究員    (82502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関