

令和 5 年 5 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18867

研究課題名(和文)化学結合開裂による量子もつれの生成と検出

研究課題名(英文)Quantum entanglement by chemical bond cleavage

研究代表者

杉本 宜昭 (Sugimoto, Yoshiaki)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：00432518

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：化学結合の開裂による量子もつれの検出のために、固体表面の個々の原子が有する単一スピンにアクセスすることが必要である。表面に物理吸着した酸素分子のスピン状態を酸素分子の配列から明らかにする研究を行った。表面と相互作用が強い配列と弱い配列に分類することができることがわかり、酸素分子の最短距離から反強磁性的な秩序が示唆された。さらに、シリコン原子が持つ不対電子にも着目し、シリコン単結晶とは異なる結合角度を持つシリコン原子が安定に存在できることを確かめた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

シリコンは現在の半導体技術の中核を担う重要な物質である。ありふれた材料であるシリコンでも表面構造を工夫する余地があることがわかった。シリコンの単層膜を利用することによって、シリコンの単結晶とは異なる活性度を有するシリコン原子を表面に配列することができることが判明した。今後、シリコンの高次な表面構造や低次元性を活かしたデバイスへ展開できる可能性がある。原子間力顕微鏡による原子レベルの高分解能観察と化学状態分析の機能自体も様々な用途に波及していくと考えられる。

研究成果の概要(英文)：To detect quantum entanglement generated by the cleavage of chemical bonds, it is necessary to access the single spin of individual atoms adsorbed on solid substrates. We have studied the spin states of oxygen molecules physisorbed on metal surface from the arrangement of oxygen molecules. It was found that the arrangements can be classified into those that interact strongly with the surface and those that interact weakly, and the shortest distance of the oxygen molecules suggests an antiferromagnetic order. Furthermore, we investigated the unpaired electrons of silicon atoms and confirmed that silicon atoms with different bonding angles from those of silicon single crystals can be prepared.

研究分野：走査プローブ顕微鏡

キーワード：走査プローブ顕微鏡

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

量子もつれ状態とは、全体の量子状態が部分系の量子状態の積で表せない状態である。例えば、2つのスピンの1重項状態($|\uparrow\rangle|\downarrow\rangle - |\downarrow\rangle|\uparrow\rangle$)をとると、距離がどれだけ離れていたとしても、相関が保たれる。すなわち、1つ目のスピンを観測して \uparrow であれば、2つ目のスピンは観測せずとも \downarrow と確定している。1つ目が \downarrow であれば、2つ目は \uparrow と確定している。また、1つ目のスピンを観測しなければ、2つ目のスピンは、観測により \uparrow と \downarrow を得る確率がそれぞれ50%となる。どれだけ距離が離れていても、片方の観測の有無や結果がもう片方に影響を与える。そのような奇妙な非局所相関があることは、アスペの実験で検証されている。局所实在論が成り立たないという、量子力学の最も驚くべき帰結である。量子もつれは原理的に興味深いだけでなく、最近ではこのような量子もつれを制御することによって、量子通信、量子コンピューター、量子テレポーテーションへ積極的に応用する研究が活発化している。

2. 研究の目的

量子もつれ状態は、光子や量子ドット中の電子スピンの確認されてきた。一方、全く異なる系として、分子が解離して生成した原子対の量子もつれも、最近注目されている。例えば、水素分子を光によって解離した2つの水素原子の量子もつれ状態が報告された。しかしながら、最も単純な水素分子でさえ、量子もつれの有無については、論争が続いている。そこで本研究では、光を用いずに解離した原子対の量子もつれ状態の生成法を新しく提案する。固体に吸着した2つの原子の化学結合を開裂させて、量子もつれ状態を生成できることを検証する。

3. 研究の方法

2つの原子の間の化学結合を開裂して、量子もつれ状態にある原子対を生成して検出するのに、強磁場・極低温・超高真空環境の原子間力顕微鏡(AFM)を用いる。原子分解能を持つAFMにより、鋭い針先端の1つの原子を、表面の1つの原子に精密に近づけたり離したりすることで、化学結合を形成したり、破断したりすることができる。例えば、不対電子を持つ2つのSi原子を接近させると、共有結合が生じる。その時、結合軌道に2つの電子が収容されるが、この2つの電子は水素分子と同様にスピン1重項状態をとる。この状態で2つのSi原子を引き離すと、2つのスピンは量子もつれ状態になっていると考えられる。2原子の間に働く化学結合力は、2原子の相対的なスピンの向きに依存することが知られている。化学結合を開裂して、ある時間経過してから、再び原子対を接近させながら化学結合力を計測し、開裂時の化学結合力と比較することによって、量子もつれ状態の有無を確認する。

分子が開裂した後、真空中を飛行する原子対とは異なり、固体に吸着した原子は、量子状態の破壊(デコヒーレンス)がより深刻となると予想される。化学結合を開裂して再結合してスピンを検出するまでの時間スケールは現状1 us以上であるので、それよりも長いスピン緩和時間を持つ系を準備する必要がある。これまで申請者が共有結合力を計測してきたSi(111)表面のSi原子は、スピン1/2の不対電子を保持していることは知られているが、表面状態を形成しているために、緩和時間が10 nsと短いことが知られている。したがって、目的を達成するためには、表面状態と切り離された孤立スピンを準備することが重要である。例えば、局所酸化することによって、表面状態から切り離されたSi原子のスピンは長い緩和時間を持つことが知られている。Si基板に酸素分子や一酸化窒素分子を暴露した系から、適した試料を探索する。一方、表面に物理吸着した磁性分子も表面との相互作用が弱いのでスピンの緩和時間が長くなることが期待される。スピンを持つ磁性分子として物理吸着した酸素分子は適していると考えられる。

4. 研究成果

(1) 酸素分子の物理吸着系

銀基板上に超高真空中で酸素分子を低温吸着させることによって、酸素分子の単層膜を作製した。酸素分子がスピンを持つために、低次元スピン系として興味もたれるだけでなく、表面との相互作用が弱いことによる長いスピン緩和時間が期待できる。酸素分子の物理吸着系がスピンを有していることが、完全には理解されていないので、構造解析から行った。低温超高真空走査プローブ顕微鏡による高分解能観察によって、酸素分子の格子形状と基板との回転角度を精密に分析することができた。回転エピタキシーとなっているドメインにおいては、基板との相互作用

によって、格子が二等辺三角形から著しく歪んでいることが判明した。一方、不整合となっているドメインにおいては格子歪みが測定誤差の範囲で認められなかった。したがって、先行研究で指摘されていたスピンによる格子歪みが無視できることが判明した。しかしながら、酸素分子の最短距離がスピンを加味したダイマー距離と一致していることから、最密な方向においては反強磁性秩序があることが示唆された。酸素分子の物理吸着系が、スピンを有することが示唆されたので、磁性探針を用いたスピンの直接検出が次の課題である。

(2) 異なる化学状態を有するシリコン原子

シリコン単結晶表面のシリコン原子が持つ不対電子については、これまで原子間力顕微鏡による化学結合力計測によって、よく調べられてきた。シリコン原子の不対電子の状態は、それを支える下地のシリコン原子との結合角度によって大きく変わることが期待される。異なる電子状態を持つシリコン原子で化学結合力計測を行うことが本研究において重要である。そこで、シリコンの単原子層物質であるシリセンの上にシリコン原子を吸着した系について走査プローブ顕微鏡による実験と理論計算によって、詳細に調べた。シリセンはバックリング構造をとることが知られており、その構造が電子状態と結びついていることが知られている。今回、シリコン原子をシリセンの上に吸着させることによって、シリセンのバックリング構造が変調できることを見出した。具体的にはシリコン原子が周期的に配列しているアイランドにおいては、下地のシリセンが準安定な構造に変化していることを明らかにした。ここでいう準安定な構造とは、シリコン原子を導入する前のシリセンにとって、準安定であることを意味しており、シリコン原子が吸着することによって、その構造が安定化することが分かった。シリセンが面直方向に変位しやすい特徴が顕在化した結果といえる。そのような新しい系において電子状態を計算すると、吸着したシリコン原子に由来するバンドが確認でき、バンドエンジニアリングの観点でも全シリコンデバイスとしての示唆を与えることができた。吸着したシリコン原子に着目すると、シリコン単結晶表面とは異なる結合角度を有しており、化学結合論に従えば、不対電子に対応する波動関数の空間分布が大きく異なると期待される。

(3) 高力感度を有する原子間力顕微鏡の開発

2つの原子の間の化学結合を開裂して、量子もつれ状態にある原子対を生成して検出することを目的としている。原子分解能を持つ原子間力顕微鏡により、鋭い針先端の1つの原子を、表面の1つの原子に精密に近づけたり離したりすることで、化学結合を形成したり、破断したりすることができる。原子間力顕微鏡を用いてスピンの向きが検出できるかどうかを確認するために、2つの鉄原子の間に働く力を測定した。測定の積算回数を増やすことで、スピンの向きに依存する力の測定が行えることがわかった。しかしながら、磁気抵抗効果によるスピンの検出の感度と比較すると力によるスピンの検出の感度が不十分であることが判明した。そこで、現状の装置と比較すると力感度が100倍以上である原子間力顕微鏡を設計して、組み立てを終了したところである。室温における初期テストを行い、十分な性能を有していることを確認した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Adachi Yuuki, Runnan Zhang, Xinbo Wang, Fukuda Masahiro, Ozaki Taisuke, Sugimoto Yoshiaki	4. 巻 630
2. 論文標題 Atomic arrangement of Si adatom on the Silicene/Ag(111) surface	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 157336 ~ 157336
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2023.157336	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kimura Mitsuo, Sugimoto Yoshiaki	4. 巻 106
2. 論文標題 Lattice distortion of oxygen monolayer on Ag(111) observed by scanning probe microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115432 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.115432	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件／うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Y. Sugimoto
2. 発表標題 High resolution imaging of individual molecules using atomic force microscopy
3. 学会等名 Pacifichem2021: A Creative Vision for the Future” (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 M. Kimura and Y. Sugimoto
2. 発表標題 Structure analysis of oxygen layer on Ag(111) by scanning probe microscopy
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS9) (国際学会)
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 L. Feng, T. Iizuka, Y. Yasui, and Y. Sugimoto
2. 発表標題 Manipulation of C60 molecules on Ag(111) by non-contact atomic force microscopy
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS9) (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 R. Zhang, M. Fukuda, T. Ozaki, and Y. Sugimoto
2. 発表標題 Characterization of nitric oxide molecules on copper nitride using scanning probe microscopy
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS9) (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 倉橋輝, 杉本宜昭
2. 発表標題 AFM力センサーの動的ばね定数における探針質量効果
3. 学会等名 2021年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 木村光男, 杉本宜昭
2. 発表標題 Ag(111)上の高密度O ₂ 単分子層の原子間力顕微鏡観察
3. 学会等名 2021年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 張潤楠, 福田将大, 尾崎泰助, 杉本宜昭
2. 発表標題 Manipulation of nitric oxide molecule by attractive force using scanning probe microscopy
3. 学会等名 2021年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 馮凌瑜, 藪押慶祐, 小野田穰, 塩足亮隼, 福田将大, 尾崎泰助, 杉本宜昭
2. 発表標題 Investigation of Low-dimensional Si Structures on Ag(111) by Scanning Probe Microscopy
3. 学会等名 2021年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 L. Feng, A. Shiotari, K. Yabuoshi, M. Fukuda, T. Ozaki, and Y. Sugimoto
2. 発表標題 New One-Dimensional Structure of Si Allotrope on Ag(111)
3. 学会等名 第82回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 小野田穰, 長谷川 剛, 杉本宜昭
2. 発表標題 電気化学反応による原子間力顕微鏡の探針再生
3. 学会等名 第82回応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室HP
<http://www.afm.k.u-tokyo.ac.jp/>

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------