

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 23 日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22241024

研究課題名(和文)シリコン中のエンタングルメント及び量子ホログラフィックメモリー動作に関する研究

研究課題名(英文)Quantum entanglements and holographic memory operation in silicon

研究代表者

伊藤 公平 (Itoh, Kohei)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：30276414

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,400,000円、(間接経費) 10,620,000円

研究成果の概要(和文)：シリコン半導体量子計算の実現に向けた基礎研究として、電子および核スピンドコヒーレンスの機構解明と抑制方法の開発を達成し、電子・核スピンの高純度エンタングルメント生成も実現し、スピン集合体に位相情報を読み込ませる量子ホログラフィックメモリーも完成させ、超伝導量子ビットとシリコン量子ビット間のエンタングルメント生成に関する方法の開発も達成した。以上は当初から計画された内容であるが、さらに当初の計画には含まれていない、シリコン中のSi-29核スピンメモリー動作の実証、量子情報処理を意識したシリコン中の様々なスピン三重項状態の評価などの成果を挙げた。

研究成果の概要(英文)：In order to realize silicon-based quantum computers, we have investigated the mechanisms and suppression of decoherence of electron and nuclear spin qubits, generated and detected highly pure quantum entanglements between phosphorus-donor electron and nuclear spins, developed a multi-state-storage systems known as quantum holographic memories, and explored the possibilities of bismuth donors as quantum memories to connect directly superconducting qubits. While above mentioned topics were listed in the originally proposed plan, we have further developed a way to utilize Si-29 nuclear spins as quantum memories and investigated a variety of spin triplet systems in silicon for application to quantum information processing.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・ナノ構造科学

キーワード：量子情報

1. 研究開始当初の背景

量子スピントロニクス分野の物理学の発展への寄与と産業分野への進出の成否は、1) コヒーレンス (量子情報) の長時間維持と、2) エンタングルメント生成の高純度化の実現にかかっている。この二つの物理的な限界を実験的に追求することが量子物理学の様々な理論の検証となり、理論の予想しない新発見にもつながると期待される。また、十分に長いコヒーレンスと高純度のエンタングルメントを有するスピン集合体が得られる場合には、その集合体にスピン波を共有させる量子ホログラフィックメモリーが実現できる。量子ホログラフィックメモリーは、個々の量子ビットに量子情報を蓄える従来の提案と比較して、はるかに高密度の情報を蓄え、外部からの摂動の影響も受けにくい (robust) という特徴を有する [例えば Nature Nanotech. 4, 167 (2008) 参照]。個々の量子ビットに情報を蓄える場合には、複数の量子ビット間の相互作用を on/off しながら量子エラー修正動作 (すなわち量子コンピューティング) を実施する必要がある、これには最低7つの量子ビットを一つの量子ビットとしてみなしてエンコーディングを行う作業が伴う。必然的に量子ビット数と演算ステップ数が急増し、その結果として限られたコヒーレンス時間内にエラー修正さえも達成できない状況に直面することが懸念される。相互作用を保ちながらスピンアンサンブルの集団的時間発展を制御する量子ホログラフィックメモリーではこれらの問題が解決できることが知られている。その量子ホログラフィックメモリーの実現に最も適した固体系が本研究で扱うシリコンである。メモリーで蓄えた量子情報を用いて演算を行う場合には、量子ホログラフィックメモリーから量子演算素子 (CPU) に量子情報を転送する (正確にはメモリーと CPU をエンタングルさせる) 必要がある。固体量子 CPU として相応しいのは演算処理速度という観点から超伝導量子ビットであるため、シリコン量子ビットと超伝導量子ビットのエンタングルメント生成が必要となる。この点において、シリコン中のビスマス不純物は接触超微細相互作用 (contact hyperfine interaction) が大きく、低磁場 (数 10~100G) においてもビスマスに束縛された電子スピンの上向きと下向き状態のエネルギー差が、超伝導量子ビットのエネルギー差に合致することを我々は最近見出した。そこで空間的に離れたビスマス核スピン量子メモリーと超伝導量子ビットを導波路でつなぎ、単一マイクロ波 (光子) を用いてエンタングルさせる方法を検討する。

研究代表者の伊藤は 2002 年にシリコン量子コンピュータの新しい形態を提案し [Phys. Rev. Lett. 89, 017901 (2002)], それ以来、シリコン量子情報処理に関する基礎研究を一貫して進めてきた。最近では通常は3種類

の安定同位体の混合物として存在するシリコンをほぼ単一の同位体 ^{28}Si で作製することに成功した (純度 99.999%)。この結晶の背景不純物濃度を 10^{12}cm^{-3} 未満に抑えたうえで微量のリン不純物を添加したところ、様々な量子物性的な発見に成功した。その中で特に重要なのが、 ^{28}Si 単結晶中に添加された不純物のフォトルミネッセンスが極めてシャープになり多くの新しいピーク (遷移) が出現することを見出したことである。これは一般的な直観に反して、空間的なシリコン質量の揺らぎ (同位体質量の揺らぎ) さえも発光ピークの不均一拡がりに大きく寄与することを示している。そしてこの不均一拡がりの除去によりシリコン中に添加されたリン不純物からの束縛励起子発光エネルギーがリン核スピン状態により分裂すること (すなわち発光により核スピン状態が読みだせること) [Phys. Rev. Lett. 97, 227401 (2006)], 特定の核スピン状態に一本のレーザー光を固定してホールバーニングを実施すると超高速 (ms) ・超高効率 (75%以上) で核スピン分極が得られることを示すことに成功した [Phys. Rev. Lett. 102, 257401 (2009)]。本申請に関する予備実験では、 ^{28}Si 同位体純度を高めることにより、リン (P) ドナーの電子スピニコヒーレンス約 1 秒、 ^{31}P 核スピニコヒーレンス約 3 秒という極めて長い位相緩和時間を $T=6\text{K}$ で得ている。このような固体中の世界最長の電子・核スピニコヒーレンス時間を得るためには ^{28}Si という核スピンをもたない単一質量の格子で結晶全体を統一することが不可欠であった。すなわち産業界の努力により高純度 (低不純物濃度) ・高結晶性化が深化したシリコン単結晶において「同位体揺らぎ」を排除すれば、そこに添加された微量の不純物があたかも真空中の原子のように振舞うことを我々が明らかにした。この「疑似真空状態」を利用してシリコン中の様々な原子の atomic physics 研究を実現し、それを量子情報処理につなげるのが本研究の学術的な特色である。同位体純化されたシリコンが唯一の「固体疑似真空」である。この新概念を提案したのが本研究代表者である。

2. 研究の目的

シリコン量子情報処理に関する物性・量子物理学研究を実施する。まず、安定同位体純度を 99.999%以上に高めた ^{28}Si 単結晶を作製し、同位体起因の質量・核スピンの空間的不均一分布が徹底的に排除された疑似真空状態を実現する。そこにリンまたはビスマス不純物を系統的に添加し、1) 電子および核スピンドコヒーレンスの機構解明と抑制方法の開発、2) 電子・核スピンの高純度エンタングルメント生成、3) スピン集合体に位相情報を読み込ませる量子ホログラフィックメモリーの開発、4) 超伝導量子ビットとシリコン不純物量子ビット間のエンタングルメント生成に関

する実験を行う。主要実験手法はパルス電子磁気共鳴、パルス電子磁気二重共鳴(ENDOR)、フォトルミネッセンス励起分光(PLE)である。

3. 研究の方法

1) 電子および核スピンドコヒーレンス機構の解明：リン濃度を系統的に制御した²⁸Si単結晶を準備し、電子および核スピンのコヒーレンスが不純物間の距離(相互作用)にどのように依存するかを、パルス ENDOR を用いて調べた。電子スピン状態を用意し、それを核スピんに移動した上で、核スピンエコーを行い、最後に核スピン状態を電子スピんに戻して電子スピン共鳴による測定を行った。

2) シリコン中での純エンタングルメント生成：Wバンドのパルス ENDOR を用いて²⁸Si結晶中のリン不純物電子と核スピン間の純エンタングルメント生成と検知を実施した。特に a) 純粋な量子初期状態を準備し、b) 対象とする複数のスピンを高い信頼性をもって量子操作し、c) この間、量子状態を失わないようにコヒーレンスを保つ。通常の Xバンド ENDOR では磁場が 0.33T と低く、温度が 5K と高いことが問題となっている。これが例えば高磁場(5T)低温(0.3K)においては電子スピンの分極率は 0.999999999 (9 nines) となり純エンタングルメント生成のために必要な初期状態を得ることができる。そこで高磁場でリン電子の共鳴を得るために高い周波数を有する Wバンド(94GHz) ENDOR を利用した。また、低温、高磁場の実験においてはいくつもの実験的な工夫が必要となる。5K以下の低温においてはリンに束縛された電子の緩和時間が極めて長くなるため実験時間が非現実的に長時間になってしまう。そこで低温においてリン電子スピんに光を照射することにより緩和時間を短くする手法を開発した。

3) シリコン量子ホログラフィックメモリーの開発：Xバンドのパルス ESR を用いて、外部からの弱いマイクロ波励起に対して磁場勾配中におかれた⁸Si結晶中のリン電子スピンのそれぞれ異なる位相を有する量子状態をとり、物質中にスピン波が励起した。これが協調的な量子情報であり、ここで複数のマイクロ波によるスピン波の重ね合わせ状態を保持することが、量子力学的なマルチモードメモリーの実現に相当した。

4) ビスマス核スピン量子メモリーと、超伝導量子ビットの結合手法の開発：超伝導量子ビットからのマイクロ波と同じ程度の超微細相互作用エネルギーを有するシリコン中のビスマス(Bi)ドナー電子スピンを用い、その低磁場における ESR 実行と検知をスピン依存再結合に基づく手法により達成した。

4. 研究成果

1) 電子および核スピンドコヒーレンスの機構解明と抑制手法の開発を達成し Nature Materials **11**, 143-147 (2012)と Phys. Rev.

B **82**, 121201(R) (2010)に論文として発表、2) 電子・核スピンの高純度エンタングルメント生成も実現し、Nature **470**, 69 (2011)に論文として発表、3) スピン集合体に位相情報を読み込ませる量子ホログラフィックメモリーも完成させ、Phys. Rev. Lett. **105**, 14053 (2010)に発表、4) 超伝導量子ビットとシリコン量子ビット間のエンタングルメント生成に関する方法の開発も達成し Appl. Phys. Lett. **101**, 082409 (2012)と Phys. Rev. B **89**, 155202 (2014) に発表した。さらに当初計画にはない、シリコン中の²⁹Si核スピンメモリー動作の実証[Phys. Rev. Lett. **108**, 097601 (2012)]、量子情報処理を意識したシリコン中の様々なスピン三重項状態の評価[Phys. Rev. B **84**, 115204 (2011)、Phys. Rev. B **84**, 045204 (2011)]などの成果を挙げ、予定した研究項目はすべて終了した。具体的には

1) 電子および核スピンドコヒーレンス機構の解明：ドナーの電子スピンおよび核スピンのコヒーレンス時間を充分長くするためには、シリコン結晶中の²⁹Si同位体濃度を下げることが必要である。コヒーレンス時間を短くしている原因、つまりデコヒーレンスの原因としては、²⁹Si核スピンの作る磁場の揺らぎのほか、ドナー電子間の双極子相互作用によるものが考えられる。実際、7 K以下の低温ではドナー濃度の影響が非常に大きいことを明らかにした。そこで静磁場に空間的勾配を加えて(マイクロ波パルスに共鳴する)実効的なドナー濃度を下げることにより、電子のコヒーレンス時間を 10 秒にまで伸ばすことに成功した。核スピンに関しても同様の方法で 3 秒程度まで伸ばすことに成功した。

2) シリコン中での純エンタングルメント生成：Wバンド(94GHz) ENDOR を用いて、5K以下の低温においてはリンに束縛された電子の緩和時間が極めて長くなることを利用して、電子スピンと核スピンを初期化し、量子操作(計算)を実行することにより、電子スピンと核スピン間の 2 量子ビットエンタングルメント生成に成功し、さらに量子トモグラフィを実行することから、純エンタングルメント生成に成功したことを確認した。

3) シリコン量子ホログラフィックメモリーの開発：Xバンドのパルス ESR を用いて、100個のマイクロ波パルスの異なる情報を、シリコン中のリン不純物電子スピンスアンブルに励起されるスピン波として記録し読みだすこと成功した。

4) ビスマス核スピン量子メモリーと、超伝導量子ビットの結合手法の開発：超伝導量子ビットからのマイクロ波と同じ程度の超微細相互作用エネルギーを有するシリコン中のビスマス(Bi)ドナー電子スピンを用い、将来のハイブリッド量子コンピュータ構想(超伝導がプロセッサ、ビスマスがメモリー)に沿った素子構造の提案を行った。また、超伝

導量子ビットが動作するために必要な十分な低磁場においてビスマス量子ビットの量子操作と電子スピン検知方法の開発に成功した。

さらに、 ^{29}Si 核スピン量子メモリの開発にも着手した。具体的には、シリコン中の酸素と空孔からなる 0V 欠陥がダイヤモンド中の NV 欠陥に似た電子スピン三重項状態を有することを利用し、スピン三重項の基底状態を光励起により三重項状態 (SL1) に移行させて、その電子スピンを初期化し、それを核スピんに移行させることから量子メモリ動作の実証に成功した。ESR スペクトルを測定するためには、光を照射し続けて三重項状態を生成し続けるか、パルス光を照射してから基底状態に緩和する前(緩和時間 0.2 ~ 2 ms のうち)に電子スピンエコーを測定する必要がある。一方、三重項状態のスピン副準位ごとに緩和時間が異なるため、光励起するだけで (0.3 T, 12 K でも) 80%以上の電子スピン偏極が得られる。 ^{nat}Si 結晶中で 0V センターの最近接サイト (空孔側) に位置する ^{29}Si 核スピンは、三重項状態との超微細相互作用が非常に大きく通常の ESR スペクトルでもサテライトピークとして観測できる。このサテライト共鳴磁場において、SL1 センターの電子スピンと隣接 ^{29}Si 核スピンの間で量子情報 (コヒーレンス) を転写する方法を開発した。すなわち、光励起によってスピン三重項のある状態に初期化した後、マイクロ波パルスを加えて電子スピンコヒーレンスを生成し、さらにラジオ波パルスおよびマイクロ波パルスによって核スピんに量子情報を転写すれば、核スピンコヒーレンスが生成できる。さらに、この状態における ^{29}Si 核スピンのコヒーレンス時間を測定するには、核スピンのコヒーレンスを電子スピんに戻して、電子スピンエコーとして測定するためのマイクロ波およびラジオ波パルスを付け加えればよいことを見出した。

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 23 件)

全て査読有り。

1. P. A. Mortemousque, S. Berger, T. Sekiguchi, C. Culan, R. G. Elliman, and K. M. Itoh, “*Hyperfine Clock Transitions of Bismuth Donors in Silicon Detected by Spin-Dependent Recombination*,” *Phys. Rev. B* **89**, 155202 (2014). DOI:10.1103/PhysRevB.89.155202
2. M. Otsuka, T. Matsuoka, L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, and K. M. Itoh, “*Identification of Photo-Induced Spin-Triplet Recombination Centers Situated at Si Surfaces and Si/SiO₂*

- Interfaces*,” *Appl. Phys. Lett.* **103**, 111601 (2013). DOI: 10.1063/1.4820824
3. T. Itahashi, H. Hayashi, M. R. Rahman, K. M. Itoh, L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, and D. S. Poloskin, “*Optical and Dynamic Nuclear Polarization of ^{29}Si Nuclei via Photoexcited Triplet States of Oxygen-Vacancy Complexes in Isotopically Controlled Silicon*,” *Phys. Rev. B* **87**, 075201 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.87.075201
4. W. Akhtar, T. Sekiguchi, T. Itahashi, V. Filidou, J. J. L. Morton, L. Vlasenko, and K. M. Itoh, “*Rabi Oscillation and Electron-Spin-Echo Envelope Modulation of the Photoexcited Triplet Spin System in Silicon*,” *Phys. Rev. B* **86**, 115206 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.86.115206
5. P. A. Mortemousque, T. Sekiguchi, C. Culan, M. P. Vlasenko, R. G. Elliman, L. S. Vlasenko, and K. M. Itoh, “*Spin Dependent Recombination Based Magnetic Resonance Spectroscopy of Bismuth Donor Spins in Silicon at Low Magnetic Fields*,” *Appl. Phys. Lett.* **101**, 082409 (2012).
6. T. Matsuoka, L. S. Vlasenko, M. P. Vlasenko, T. Sekiguchi, and K. M. Itoh, “*Identification of a Paramagnetic Recombination Center in Silicon/Silicon-Dioxide Interface*,” *Appl. Phys. Lett.* **100**, 152107 (2012). DOI: 10.1063/1.3702785
7. W. Akhtar, V. Filidou, T. Sekiguchi, E. Kawakami, T. Itahashi, L. Vlasenko, J. J. L. Morton, and K. M. Itoh, “*Coherent Storage of Photoexcited Triplet States Using ^{29}Si Nuclear Spins in Silicon*,” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 097601 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.097601
8. A. M. Tyryshkin, S. Tojo, J. J. L. Morton, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, T. Schenkel, M. L. W. Thewalt, K. M. Itoh, and S. A. Lyon, “*Electron Spin Coherence Exceeding Seconds in High Purity Silicon*”, *Nature Materials* **11**, 143-147 (2012). DOI: 10.1038/NMAT3182
9. T. Ishikawa, K. Koga, T. Itahashi, K. M. Itoh, and L. S. Vlasenko, “*Optical Properties of Triplet States of Excitons Bound to Interstitial-Carbon Interstitial-Oxygen Defects in Silicon*,” *Phys. Rev. B* **84**, 115204 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.115204
10. A. R. Stegner, H. Tezuka, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M. L. W. Thewalt, K. M. Itoh, and M. S.

- Brandt, “*Correlation of residual impurity concentration and acceptor electron paramagnetic resonance linewidth in isotopically engineered Si*,” Appl. Phys. Lett. **99**, 032101 (2011). DOI:10.1063/1.3606548
11. W. Akhtar, H. Morishita, K. Sawano, Y. Shiraki, L. S. Vlasenko, and K. M. Itoh, “*Electrical Detection of Cross Relaxation between Electron Spins of Phosphorus and Oxygen-Vacancy Centers in Silicon*,” Phys. Rev. B **84**, 045204 (2011).
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.045204
 12. S. Simmons, R. M. Brown, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M. L. W. Thewalt, K. M. Itoh, and J. J. L. Morton, “*Entanglement in a Solid-State Spin Ensemble*,” Nature **470**, 69-72 (2011).
DOI: 10.1038/nature09696
 13. H. Morishita, E. Abe, W. Akhtar, L. S. Vlasenko, A. Fujimoto, K. Sawano, Y. Shiraki, L. Dreher, H. Riemann, N. V. Abrosimov, P. Becker, H.-J. Pohl, M. L. W. Thewalt, M. S. Brandt, and K. M. Itoh, “*Linewidth of Low-Field Electrically Detected Magnetic Resonance of Phosphorus in Isotopically Controlled Silicon*,” Applied Physics Express, **4**, 021302 (2011).
DOI: 10.1143/APEX.4.021302
 14. E. Abe, A. M. Tyryshkin, S. Tojo, J. J. L. Morton, W. M. Witzel, A. Fujimoto, J. W. Ager, E. E. Haller, J. Isoya, S. A. Lyon, M. L. W. Thewalt, and K. M. Itoh, “*Electron spin coherence of phosphorus donors in silicon: Effect of environmental nuclei*,” Phys. Rev. B **82**, 121201(R) (2010).
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.121201
- M. Acosta, R. G. Beausoleil, S. Shikata, C. L. Degen, and K. M. Itoh, “*Growth and Characterization of Isotopically Enriched CVD ¹²C Films with Well-behaved Near Surface NVs*,” The Workshop on Diamond - Spintornics, Photonics, Bio-applications, April 27-29, 2013, Hong Kong. (招待講演)
4. K. M. Itoh, “*Group IV Isotope Spintronics*,” Sweden-Japan International Workshop on Quantum Nano-Physics and Electronics (QNANO2013), January 13-14, 2013, Tokyo, Japan. (招待講演)
 5. K. M. Itoh, “*Semiconductor Isotope Spintronics*,” 2012 Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems (WINDS), December 2-7, 2012, Hawaii. USA. (招待講演)
 6. K. M. Itoh, “*Quantum Computing Using Phosphorus Electron Spins, ³¹P Nuclear Spins, and ²⁹Si Nuclear Spins in Silicon*,” The 5th International Workshop on Solid-State Quantum Computing, December 11-13, 2011, Hong Kong. (招待講演)

[その他]

ホームページ等

http://www.appi.keio.ac.jp/Itoh_group/index.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

伊藤 公平 (Itoh, Kohei)

慶應義塾大学・理工学部・教授

研究者番号：30276414

[学会発表] (計 48 件)

1. K. M. Itoh and T. Sekiguchi, “*Silicon NMR Quantum Information Processing*,” NMR Quantum Information Processing in Rio, November 27-29, 2013, Rio de Janeiro, Brazil. (招待講演)
2. K. Ohashi, T. Rosskopf, I. Groß, H. Watanabe, S. Tomizawa, J. Iyshi-Haase, T. Ishikawa, K. M. Fu, C. Santori, V. M. Acosta, R. G. Beausoleil, S. Shikata, C. L. Degen, and K. M. Itoh, “*NV Centers in Isotopically Enriched Diamond for Quantum Sensor Application*,” JSAP-MRS Joint Symposia, September 16-20, 2013, Kyoto, Japan. (招待講演)
3. K. Ohashi, T. Rosskopf, I. Groß, H. Watanabe, S. Tomizawa, J. Ishi-Hayase, T. Ishikawa, K. M. Fu, C. Santori, V.