

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23681017

研究課題名(和文)量子ネットワーク構築のための固体における単一発光中心の研究

研究課題名(英文)Research on single color center in solid toward quantum network

研究代表者

水落 憲和 (Mizuochi, Norikazu)

大阪大学・基礎工学研究科・准教授

研究者番号：00323311

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,500,000円、(間接経費) 6,450,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では量子ネットワーク構築のための量子情報固体素子実現に向けた基盤研究を、主にダイヤモンド中のNV中心を用いて行った。量子ネットワーク構築には伝送、計算、記録にそれぞれ優位性を持ち、量子性が顕在化してくる単一レベルでの光、スピン、電荷の操作が重要となる。我々は固体において室温で初めて電氣的に単一光子を生成することに成功した。また単一NV<sup>-</sup>(-1価の電荷状態のNV中心)の電荷状態を初めて電氣的に制御することに成功した。またNV中心のスピンと超伝導量子ビットの量子的な結合の成功に大きく貢献した。これらの成果は学術的意義が高く、かつ基盤技術の確立という観点からも重要な成果と考えられる。

研究成果の概要(英文)：By using the NV centre in diamond, we demonstrated strong coupling between a solid-state quantum processing unit (a flux-qubit) and a dedicated quantum memory (NV centers). Furthermore, we reported the realization of electrically driven single photon source at room temperature by using the NV centre by making p-i-n diode structure. In addition, we demonstrated the electrical manipulation of the negative charge state of single nitrogen-vacancy defect centers (NV<sup>-</sup>) in diamond for the first time. We consider that our achievement is a crucial step towards elaborated diamond-based quantum information devices which is operated by single spin, single photon, and single charge.

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 ダイヤモンド NV中心

## 1. 研究開始当初の背景

通信の安全性確保や環境負荷削減は社会にとって根本的な課題である。量子暗号通信の実現と発展は、これらを解決する新たな通信手段となることが期待される。その量子ネットワーク構築には伝送、計算、記録にそれぞれ優位性を持ち、量子性が顕在化してくる単一レベルでの光、スピン、電荷の操作が重要となる。

近年では 100km, 200km レベルでの距離間での量子暗号通信が実験的に実証されてきた。しかし、普及のためには現実的な通信速度への高速化と通信距離の更なる長距離化が必須である。そのためには単一光子レベルの光を効率的に生成できる単一光子源や、送られてきた量子情報を中継する量子ノードが必須となる。単一的光子を電氣的に発生させることに関し、当時の開発されていた単一光子源は、ヘリウム温度でしか動作しない固体素子によるものであった。また量子中継器は実験室レベルでもまだ実現していない。

## 2. 研究の目的

スケーラビリティという観点から量子ビットを持った多くの量子レジスタを量子もつれ状態にして量子ネットワークを形成し、量子計算・量子暗号通信を実現しようという理論提案がある。NV 中心はこのアーキテクチャで要求している数量子ビットの量子レジスタとして期待できる。実現には伝送、計算、記録にそれぞれ優位性を持ち、量子性が顕在化してくる単一レベルでの光、スピン、電荷の操作が重要となる。本研究課題ではそれらを学術的観点、及び基盤技術の確立という観点から重要と考え、研究を行う。

## 3. 研究の方法

単一発光中心の観測、及び単一スピン操作を行える、共焦点レーザーシステムを新たに立ち上げる。スピン操作に関しては、磁気共鳴のシステムを共焦点レーザー顕微鏡に組み込むことにより行う。照射するマイクロ波をパルス化した測定を行えるようにすることにより、スピンの量子操作を行えるようにする。

デバイスに関しては、産業技術総合研究所エネルギー部門のグループに依頼し作製してもらう。

## 4. 研究成果

我々は研究期間中に、固体において室温で初めて電氣的に単一光子を生成することに成功した。成果は Nature Photonics 誌 (6, 299, 2012) に発表した。それまで量子ドットや分子系で電氣的に単一光子発生を実証した例はあったが室温においては今回の成果が初

めてである。ここで単一光子の生成の実証とはアンチバンチングの観測による非古典光の実証がなされることを指す。1つのNV中心のみを観測するためには、不純物のない極めて高品質なダイヤモンドにNV中心が埋め込まれていることが必要だが、ダイヤモンドは不純物(ドーパント)がないと絶縁体であるため電気が流れない。今回、高品質ダイヤモンド(i層)を、リンをドーブしたn層とホウ素をドーブしたp層で挟んでpin構造の素子を作製することにより(図1c)、i層に電気を流せるようにしたところが重要である。試料は産業技術総合研究所エネルギー部門のグループに依頼し作製してもらった。単一のNV中心は自作の共焦点顕微鏡装置を用いることにより、一つ一つを光学検出できる。写真及び図1bは電流注入による単一NV中心からのエレクトロルミネッセンスをモニターした蛍光像である。ピエゾステージにより光の焦点位置を微細に掃引しながら発光強度をモニターすることにより、空間分解された写真のような蛍光像が得られる。

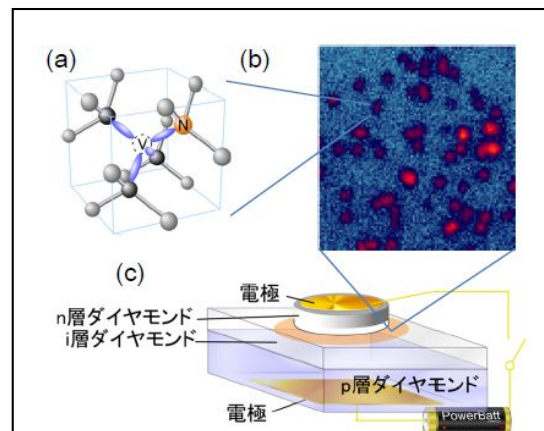


図1 (a)ダイヤモンド中の窒素-空孔複合欠陥(NV中心)の構造。(b)ダイヤモンド試料における共焦点レーザー蛍光顕微鏡像。蛍光波長が650-750nm付近の発光を表示している。赤で示されている輝点が単一NV中心で、位置を制御することにより単一NV中心のスピン情報を選択的に光検出できる。単一であることはアンチバンチングの測定から決定。(c)電流注入型単一光子発生素子の概略図。高品質ダイヤモンド(i層)を、リンをドーブしたn層とホウ素をドーブしたp層で挟んだp-i-n形ダイオード構造を用いた。i層の単一NV中心からの発光を共焦点顕微鏡により観測している。

光子相関法によるアンチバンチングの観測から、単一のNV中心からの発光であることが証明され、単一光子源として動作していることが示された。光子相関法とは光子数の時

間的ばらつきを測定する技術で、1つの光子を観測した後に別の光子を観測するまでの時間を計測することにより、相関 ( $g^2(\tau)$ ) を見積もることができる。 $\tau = 0$  における値 ( $g^2(0)$ ) が 0.5 未満であることから、単一の NV 中心からの発光であることが証明される。

我々は単一 NV<sup>-</sup> の電荷状態を電氣的に初めて制御することに成功した。成果は Phys. Rev. X 誌 (4, 01107, 2014) に発表した。実験には p-i-n ダイアモンド半導体を用い、i 層に形成された単一 NV 中心に電圧を印可して電流を注入し電荷状態を変化させる (図 2 a)。単一 NV 中心での観測により、蛍光の時間分解測定では図 2 b に示したように蛍光強度のジャンピングを観測できたが、これは電荷状態の変化 (ジャンピング) に対応しており、電荷状態のシングルショット測定を行うことができたといえる。この手法を用い、電荷状態がほぼ 100% の確率で、NV<sup>-</sup> から NV<sup>0</sup> に制御したことを定量的に示すことができた (図 2 c, d)。本成果は単一 NV<sup>-</sup> の電荷状態を電氣的に初めて制御した例である。また、これまで光照射と電氣的操作を同時に行いながら電荷を制御したという報告例はあったが、純粋に電氣的効果のみでの操作、及び定量的に電荷の変化量を明らかにした点も初めてで、また、deterministic に純粋状態への生成を電氣的に制御できた点も重要と考えている。電荷変化速度は  $0.72 \pm 0.10 \mu\text{s}^{-1}$  と見積もられ、遠い <sup>13</sup>C の核スピンの電氣的でカップリングの観点からは十分速い変化が達成できたと考えられる。一方、暗状態では 0.45 秒以上安定であることが示された。今回の成果は、将来の量子ビットの速い電氣的制御、長い T<sub>2</sub> を持つ量子メモリ、センサー、単電子デバイス等にとって、重要な結果と考えている。

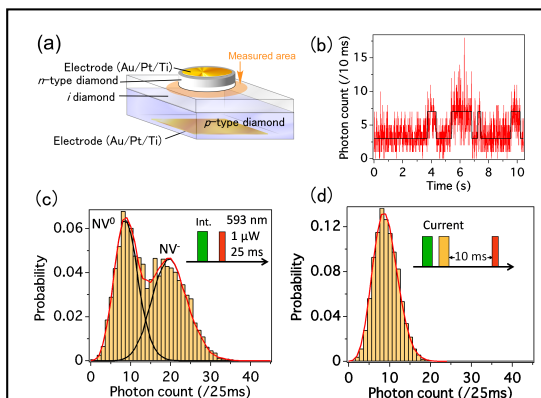


図 2 (a) p-i-n の構造図。(b) 蛍光の時間トレース。蛍光強度の変化が電荷状態の変化に対応している。強度の高い方が NV<sup>-</sup> で低い方が NV<sup>0</sup>。(c) 蛍光の時間トレースを検出した光子数でヒストグラム表示した結果。532nm の励起では NV<sup>-</sup> と NV<sup>0</sup> の比はほぼ 5 : 5。(d) 電流注入後のヒストグラム表示した結果。電荷状態がほぼ 100% NV<sup>0</sup> になっていることが分かる。

NV 中心のスピンと超伝導量子ビットの量子的な結合に成功した。NTT 基礎物性研究所、国立情報研究所との共同研究成果である。成果は Nature 誌に掲載された。これは、超伝導量子ビットの重ね合わせ状態をダイヤモンド結晶中の NV スピン集団へ保存した後に再び読み出せることを意味しており、量子通信や量子情報処理に欠く事のできない、任意の量子状態を保存可能な量子メモリーの実現にとって、ダイヤモンドが極めて有望な候補であることを実証したものである。本成果は学術的意義が高く、かつ基盤技術の確立という観点からも重要な成果と考えられる。

## 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 6 件)

N. Mizuochi, J. Wrachtrup, S. Yamasaki, et.al. (12人中1番目), Electrically driven single photon source at room temperature in diamond, **Nature Photonics**, 査読有, 6, 2012, 299-303, DOI:

10.1038/nphoton.2012.75

Y. Doi, N. Mizuochi et.al. (13人中13番目), Deterministic electrical charge state

initialization of single nitrogen-vacancy center in diamond, **Phys. Rev. X**, 4, 01107 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevX.4.011057

X. Zhu, N. Mizuochi, K. Semba, et.al. (13人中12番目), Coherent coupling of a superconducting flux-qubit to an electron spin ensemble in diamond, **Nature**, 査読有, 478, 2011, 221-224, DOI:

10.1038/nature10462

T. Fukui, N. Mizuochi, et.al. (17人中17番目), Perfect selective alignment of

nitrogen-vacancy center in diamond, **Appl. Phys. Express**, 7, 055201 (2014).

doi:10.7567/APEX.7.055201

N. Mizuochi, N. Tokuda, M. Ogura, S. Yamasaki, Isotope Effect of Deuterium

Microwave Plasmas on the Formation of Atomically Flat (111) Diamond Surfaces,

**Jpn. J. Appl. Phys.**, 査読有, 51, 2012, 090106, DOI:10.1143/JJAP.51.090106

水落憲和、「ダイヤモンド中のNV中心を用いた量子情報素子の研究」固体物理 (特集号 量子コンピューターへの道), 査読有, Vol. 48, No. 11, p. 121-131 (2013). (2013年11月号)

[学会発表](計 27 件)

[Invited] N. Mizuochi, “Electrically driven single photon source at room temperature by NV center in diamond”, Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2013, 9-14th June, 2013, San Jose, CA, USA.

[Invited] N. Mizuochi, “Single photon,

spin and charge manipulation in diamond at room temperature", Physical Sciences Symposia 2013 on 'Crystal & Graphene Science, Quantum Science & New Particle Physics', Sep. 4-5th, 2013, Boston, USA.

[Invited] N. Mizuochi, "Single photon, spin and charge manipulation of diamond register", QDiamond 2013: Workshop on Quantum Information using NV centers in Diamond, Oct. 12-17th, 2013, Huangshan, China.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrically driven single photon emission from diamond quantum register", 2013 JSAP-MRS Joint symposia, Sep. 16-20th, 2013, Kyoto, Japan.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrically driven single photon emission and electron dynamics at room temperature in diamond", The 18th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON) July 22-26th, 2013, Matsue, Japan.

[Invited] N. Mizuochi, "Single photon, spin and charge manipulation of diamond register", Workshop on Artificial Atoms: from Quantum Physics to Applications, 20-23rd May 2013, Budapest, Hungary.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrical control of Luminescence and Quantum register of NV center", Workshop on Diamond, - Spintronics, Photonics, Bio-applications, 27-29th April, 2013, Hong Kong.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrically driven single photon emission at room temperature in diamond", Hasselt Diamond Workshop 2013 - SBDD XVIII, Feb. 27 to Mar. 1st, 2013, Hasselt, Belgium.

[Invited] N. Mizuochi, "Quantum information device by NV center in diamond" 3rd International Conference on Quantum Information and Technology, 16-18th January, 2013, National Institute of Informatics, Tokyo, Japan.

[Invited] N. Mizuochi, "Single spin coherence of NV center in diamond at room temperature", The 72nd Okazaki Conference on Ultimate Control of Coherence, 8-10th January, 2013, Institute for Molecular Science (IMS), Okazaki, Japan.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrical control of single photon emission by NV center in diamond", QDIAMOND12: Workshop on Quantum Information using NV centers in diamond, 3-7th Dec. 2012, Hannah Lodge, South Africa.

[Invited] N. Mizuochi, "Electrically driven

single photon source at room temperature in diamond" International conference on Diamond and carbon materials, 3-6th, Sep. 2012, Granada, Spain.

[Invited] N. Mizuochi, "Quantum information device based on NV center in diamond" 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), 25-27th, Sep, 2012, Kyoto, Japan.

[Invited] N. Mizuochi, "Single photon source by single NV center in diamond semiconductor" Advances in Photonics of Quantum Computing, Memory, and Communication V at SPIE Photonics West, January 21-26, 2012, in San Francisco

[Invited] N. Mizuochi, "Quantum information processing by NV center in diamond" The 38th Special Meeting of Special Session for Spin electronics, Magnetic Society in Japan, Osaka. 20th Jan. 2012.

水落憲和, ワイドギャップ半導体中の単一常磁性発光中心による量子情報素子, 2012 年春季 第 59 回 応用物理学関係連合講演会 シンポジウム, 早稲田大学(東京), 2012/3/15

森周太, 加藤宙光, 山崎聡, Wrachtrup, 力武克彰, 三輪真嗣, 鈴木義茂, 小坂英男, 水落憲和, ダイヤモンド中の単一 NV 中心を用いた量子もつれ測定の実験研究, 2012 年春季 第 59 回 応用物理学関係連合講演会, 早稲田大学(東京), 2012/3/17

土井悠生, 三輪真嗣, J. Wrachtrup, 鈴木義茂, 水落憲和, "SiC 単結晶および微粒子における光検出磁気共鳴", 2012 年春季第 59 回応用物理学関係連合講演会, 早稲田大学, 東京, 2012/3/16

水落憲和, "ダイヤモンドを用いた単一光子発生と単一スピン操作 ~室温での電流注入型単一光子発生~", 超高速時間分解光計測研究会, ホテルクラウンパレス浜松, 静岡, 2012/3/9

N. Mizuochi, "Quantum information processing by NV center in diamond", International Workshop for Group-IV Spintronics, Osaka University, Osaka (JAPAN), 2012/1/20

- 21 水落憲和, 土井悠生, 森周太, 牧野俊晴, 加藤宙光, 小倉政彦, 竹内大輔, 大串秀世, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, 山崎聡, "ダイヤモンド半導体を用いた量子情報素子", 第 25 回ダイヤモンドシンポジウム, (独)産業技術総合研究所, 茨城, 2011/12/8

- 22 水落憲和, "ダイヤモンド中の単一 NV 中心の量子情報処理・通信への応用", 日本磁気学会 181 回研究会, 中央大学, 東京, 2011/12/7

- 23 水落憲和, “単一NV中心における多量子ビット化へ向けた研究ダイヤモンドによる量子情報”, 学振147委員会, 第113回研究会, カーボン系材料の新しい展開, 東京弘済会館, 東京, 2011/11/4
- 24 水落憲和, 森周太, 加藤宙光, 山崎聡, J. Wrachtrup, 力武克彰, 小坂英男, “ダイヤモンド中の単一NV中心による室温でのベル測定の実証と評価”, 日本物理学会2011年秋季大会, 富山大学, 富山, 2011/9/21
- 25 N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, “Single spins, photons, and charges in diamond semiconductor”, SPINTECH6, Matsue Kunibiki Messe, Shimane (JAPAN), 2011/8/3
- 26 水落憲和, “ダイヤモンドNV中心と量子情報”, ニューダイヤモンドフォーラム平成23年度第1回研究会, 東京, 2011/6/23
- 27 N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, P. Neumann, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and S. Yamasaki, “Electrically driven single photon source by diamond”, Workshop of Diamond defects: Quantum spintronics, photonics and bio-applications, Physikzentrum Bad Honne, Bonn (Germany), 2011/4/4

〔図書〕(計 3件)

1. 水落憲和, ダイヤモンドNV中心と量子情報, ニューダイヤモンドフォーラム, 査読無, vol.27, No.4, 2011, 2-6
2. 水落憲和, “ダイヤモンドLEDを用いた単一光子発生”, 未来材料10月号, vol.12, no.10, p. 1-4, 2012 (2012年10月号)
3. 水落憲和, 牧野俊晴, 加藤宙光, 小倉政彦, 竹内大輔, 大串秀世, 山崎聡, 「固体初の室温動作する電流注入型単一光子発生素子」, ニューダイヤモンドフォーラム会誌, vol. 28, no.4, p. 17-19, 2012.

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

1. 名称: 一光子出力装置、単一光子出力方法、及び単一光子出力装置に用いる半導体の製造方法

発明者: 水落憲和、山崎聡、牧野俊晴、加藤宙光、竹内大輔、小倉政彦  
 権利者: 大阪大学  
 種類: 特願  
 番号: 2011-167423  
 出願年月日: 2011/7/29  
 国内外の別: 国内

取得状況(計 件)

名称:  
 発明者:  
 権利者:  
 種類:  
 番号:  
 取得年月日:  
 国内外の別:

〔その他〕  
 ホームページ等  
[http://www.suzukiylab.mp.es.osaka-u.ac.jp/web\\_mizuochi/indexMizu.html](http://www.suzukiylab.mp.es.osaka-u.ac.jp/web_mizuochi/indexMizu.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者  
 水落憲和 (MIZUOCHI Norikazu)  
 大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授  
 研究者番号: 00323311

(2) 研究分担者 なし  
 (3) 連携研究者 なし