

令和元年6月27日現在

機関番号：92704

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H04130

研究課題名(和文)希土類元素を添加したノンスピンバス量子光学結晶の創成

研究課題名(英文)Creation of rare earth doped non-magnetic crystals for quantum applications

研究代表者

尾身 博雄(Omi, Hiroo)

日本電信電話株式会社NTT物性科学基礎研究所・量子光物性研究部・主任研究員

研究者番号：50257218

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：通信波長帯での量子通信ネットワークの実現を目指し、量子ビットとして大きな可能性をもつエルビウムイオンを内包する量子光学用酸化物結晶の材料探索研究を行った。その結果、添加するエルビウムイオンの同位体純化およびホスト結晶の完全な非磁性化がエルビウムイオンの量子光学特性を大幅に改善することが明らかになった。この結果はエルビウムイオンが量子通信の量子ビットとして大きな可能性もつことを示す重要な成果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

情報通信社会に変革をもたらす長距離量子情報通信を実現するためには、量子情報の中継する中継器の開発が急務である。我々は、通信波長帯の光を用いて量子中継器を開発することを目的として、通信波長帯の光と相互作用する希土類イオンの一種である3価のエルビウムイオンに着目し、このエルビウムイオンが添加された良質な単結晶を作製すること、エルビウムイオンの量子光学応用に適したホスト結晶の材料探索を行った。

研究成果の概要(英文)：Toward realization of quantum network at the telecommunications wavelength, we have studied quantum materials for Er doping. We have clarified that isotopical purification of not only in dopants, but also in host materials themselves is essential for achieving long life times of Er luminescence. We believe that the innovative knowledge is important for the realization of quantum networks using Er quantum bits.

研究分野：無機材料

キーワード：酸化物 量子光学 希土類 結晶成長

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

1000 km以上の長距離量子光インターネットを実現するためには、量子中継技術の確立、特に光子と電子との間で量子情報を変換してその記録・書き出しを可能とする量子メモリの開発が急務である。一般に、量子メモリでは量子ビット(物質中の電子)の量子情報が1秒以上保持していることが必要であり、最近の急速な研究の進展により既に数秒オーダーでコヒーレント状態を保持する長寿命な量子ビットが得られている。しかし、それらの量子ビットは光ファイバーに対して透明な光との相互作用が弱いため量子光通信に直接利用することは難しい。したがって、光ファイバーを透過する通信波長帯(波長 $1.5\mu\text{m}$)の光子と強く相互作用し、1秒以上コヒーレント状態を保持する長寿命な量子ビットの開発が未来の量子光ネットワーク実現のブレイクスルーとなる。

2. 研究の目的

高品質な単結晶中に添加された希土類イオンは未来の量子光ネットワーク社会を実現するための量子ビットとして大きな可能性をもつ。本研究では通信波長帯での長距離量子光情報通信を実現することを目標に、希土類イオンを添加するためのノンスピバス(non-spin-bath)結晶(構成元素の磁気モーメントおよび核磁気モーメントがゼロ)の材料探索、核スピンを制御した Er^{3+} イオンの添加技術の確立、発光・吸収スペクトルの測定と解析、超伝導磁束量子ビット回路による電子スピンのコヒーレント操作に取り組み、希土類元素添加結晶の材料探索を通して量子光学応用分野に大きなブレイクスルーとなるとともに、既存の結晶を超えたスピン揺らぎの極めて少ないノンスピバス結晶の創出に繋がる新しい結晶成長技術の開発、同位体制御新結晶による新奇量子物性の創発、核スピンエンジニアリングの確立、超伝導磁束量子ビット技術との融合による新しい学術分野の創出に貢献する。

3. 研究の方法

本研究では、量子光通信ネットワークを実現するという高い目標を達成するために、これまでに構築してきた希土類酸化物の結晶成長、混晶化、構造評価に関するオリジナル技術、我々独自の材料設計の指針に基づいて、量子ビット情報を長時間保持できるEr添加ノンスピバス結晶をエピタキシャル成長と単結晶育成の2本立て材料探索する。また、量子ビットの特性を支配する光基礎物性(T_1 , T_2 など)を評価し、結晶成長条件、Er添加技術の最適化にフィードバックすることにより、 T_2 の飛躍的な長寿命化を図る。さらに、 Er^{3+} イオンのスピン集団と超伝導磁束量子ビットのコヒーレント結合を実現し、 Er^{3+} イオン量子ビットのメモリ、読み出し、書き込み機能を実証する。

4. 研究成果

(1) 同位体 Er 添加 $\text{Y}_2\text{SiO}_5(\text{YSO})$ 単結晶の育成

一般にErが添加されたYSO単結晶は市販されている。しかし、市販のEr添加YSO単結晶では添加Erの同位体が制御されていないため、すべての同位体ErがYSO単結晶中に含まれているため、市販のEr:YSO単結晶は理想的なノンスピバス結晶とは言えない。そこで我々はこの理想的なノンスピバス結晶を実現するための第一段階として、同位体が制御されたErが添加されたYSO単結晶を独自に育成した。今回育成した単結晶からのX線回折ピークの半値幅は市販されているEr添加YSOと同等であり、我々が育成したErの同位体制御YSO単結晶は市販の単結晶と比較して遜色なく高品質であることが分かった。また、単結晶を独自に育成したことによる利点を活かし、単結晶インゴットの中でも特に結晶性がよいインゴットの中心部から 167Er :YSO単結晶を切出し、それを量子光学実験に利用することにした。後述する通り、得られた実験結果の質の高さはこの単結晶が高品質であることと密接に関しており、本研究課題において本同位体制御単結晶の育成の成功は本質的に重要なマイルストーンの達成となった。

(2) ^{167}Er : YSO 単結晶の微細分光

図 1 は、温度 4K で測定した 0.001% の ^{167}Er : YSO および市販の Er: YSO 単結晶のフォトルミネッセンスエキサイテーション (PLE) マッピングである。すべてのピークは Er^{3+} イオンのエネルギーレベルだけでアサインすることができ、育成した単結晶中に確かに Er が添加されていることを分光学的に確かめることができた。図 2 は、0.001% の ^{167}Er : YSO および市販の 0.001% の Er: YSO 単結晶のスペクトルホールバーニング測定のプロファイルである。これらのプロファイルの比較から明らかなように、同位体制御 Er のピーク幅は市販の Er のピーク幅よりも大幅に狭くなっている。このことは、添加エルビウムの同位体制御により、T2 の値が $0.36\ \mu\text{s}$ から $1.5\ \mu\text{s}$ へと伸びたことを明瞭に示している。このように添加する Er の同位体を純化することにより、 ^{167}Er の発光を長寿命化することにはじめて成功した。

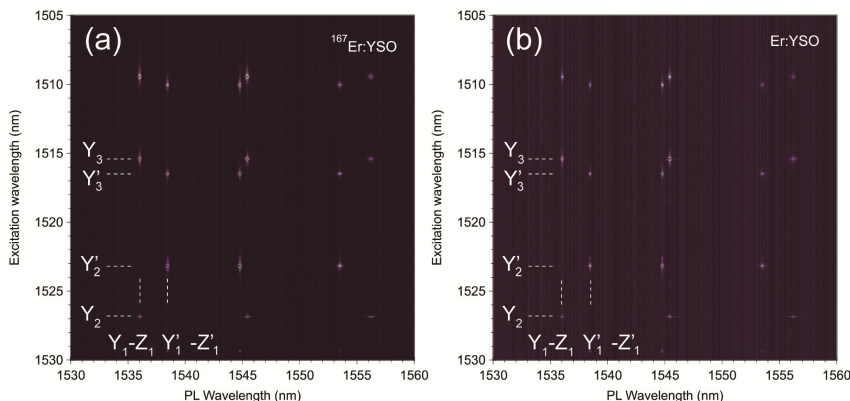


図 1 (a) ^{167}Er : YSO および (b) 市販の Er: YSO の PLE プロット

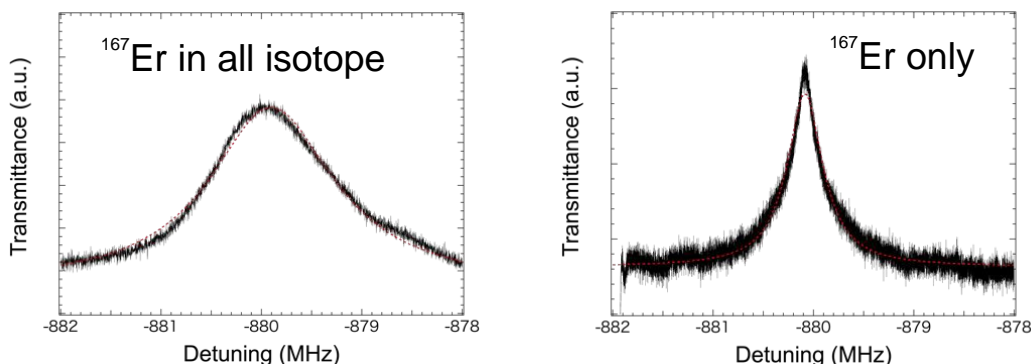


図 2 スペクトルホールバーニングスペクトル (a) 市販結晶、(b) 同位体制御結晶

(3) 理想的なノンスピバス結晶 CeO_2 の結晶成長

先に述べた YSO 単結晶中の構成元素である Y, Si, O はすべて核スピンを保有している。したがって、YSO の核スピンの密度は小さいものの完全にゼロではないため、理想的なノンスピバス結晶とは言えない。一方、Ce は核スピンを持たない唯一の元素であり、 Ce^{4+} イオンは電子スピンももたない。また、酸素の核スピンはほぼ零である。したがって、 Ce^{4+} および O^{2-} に構成される酸化セリウムは理想的なノンスピバス結晶と言える。そこで我々は、理想的なノンスピバス結晶を作製するための第 2 段階として、Er を添加するためのホスト結晶としてこの CeO_2 に注目し、高純度の CeO_2 のエピタキシャル成長、および、この成長膜中への Er 添加を試みた。その結果、我々は Si (111) 上に良質な CeO_2 膜を MBE 成長させることに成功した。膜と成長膜の界面にはアモルファス層が形成されるものの、良質な $\text{Er}:\text{CeO}_2$ エピタキシャル膜を得ることができた。

(4) Er:CeO₂ 薄膜の各光学評価

このようにして得られた Er 添加 CeO_2 膜のノンスピバス結晶としての可能性を評価するために、Er 発光のフォトルミネッセンスおよび PLE 測定を行った。成長膜からは Er 発光が観測され、その強度は Er 濃度が小さくなるほど大きくなることが明らかになった (図 3)。今回の実験では Er 濃度が 1% の特に最大となり、この時の発光寿命は約 11 ms であることが分かった。この値はこの成長膜が量子光学応用に対して大きな可能性を持つことを示している。

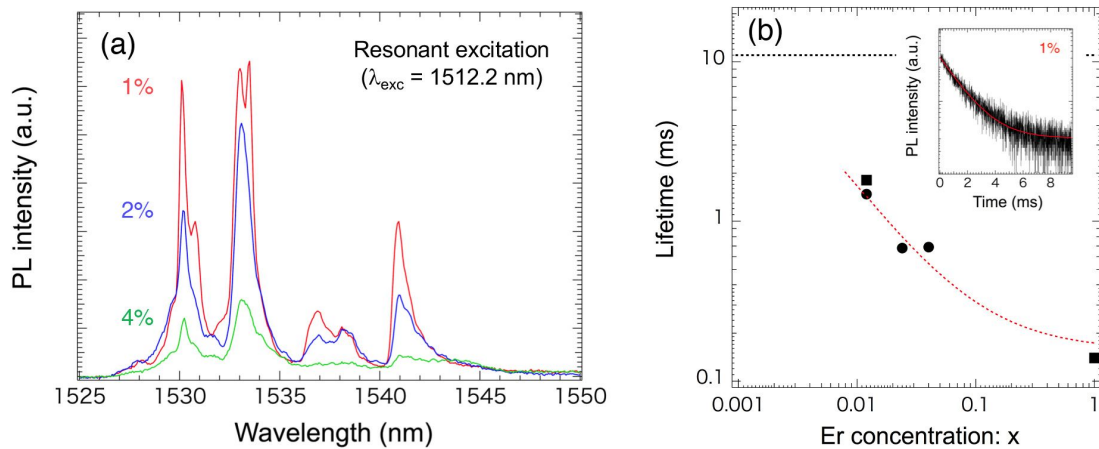


図3 (a) Si(111)上 Er:CeO₂ 膜からの PL スペクトル (共鳴励起) Er 濃度を関数とした Er 発光寿命

(5) まとめ

将来の通信波長帯での量子通信ネットワーク実現にむけて、Er³⁺イオン量子ビットを内包するホスト結晶の完全非磁性化(ノンスピバス化)により、Er³⁺イオンの発光寿命の長寿命化に、マテリアルサイエンス特に無機材料科学の観点から取り組んだ。本課題の主目的である核スピン寿命の長寿命化の直接観測および超伝導磁束量子ビット回路による電子スピンのコヒーレント操作までには至らなかったが、得られた知見は今後の Er 発光のさらなる長寿命化に対して大きな可能性を感じさせるものであり、量子光学分野では核スピンエンジニアリングが本質的かつ重要であることを示している。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

1. “Epitaxial growth and optical properties of Er-doped CeO₂ on Si(111)”, T. Inaba, T. Tawara, H. Omi, H. Yamamoto, H. Gotoh, Optical Materials Express 8 (2018) 2843. (査読有) DOI:10.1364/OME.8.002843
2. “Mechanism of concentration quenching in epitaxial (Er_xSc_{1-x})₂O₃ thin layers”, T. Tawara, Y. Kawakami, H. Omi, R. Kaji, S. Adachi, H. Gotoh, Opt. Mater. Express 7 (2017) 1097. (査読有) DOI:10.1364/OME.7.001097
3. “Effect of isotopic purification on spectral hole narrowing in ¹⁶⁷Er³⁺ hyperfine transition”, T. Tawara, G. Mariani, K. Shjimizu, H. Omi, S. Adachi, and H Gotoh, Appl. Phys. Express 10 (2017) 042801 1-4. (査読有) DOI:10.7567/APEX.10.42801.

〔学会発表〕(計 15 件)

1. “ Population relaxation and coherent times of ¹⁶⁷Er³⁺ diluted to 10 ppm in Y₂SiO₅ at zero magnetic field”, M. Hiraishi, M. IJspeert, T. Tawara, H. Omi, H. Goth, Conference on Lasers and Electro-Optics 2019 (CLEO:2019), (JW2A30 5-10 May, San Jose, USA).
2. “Suppressing interdiffusion of Si in Er-doped CeO₂/Si(111)”, T. Inaba, X. Xu, T. Tawara, H. Omi, H. Yamamoto, H. Gotoh, Compound Semiconductor Week (CSW:2019), (ThC1-8 23 May, Nara, Jpn).
3. “Evaluation of Rabi frequency and coherent time in the hyperfine structure of ¹⁶⁷Er³⁺ in Y₂SiO₅ through coherent transients”, M. Hiraishi, M. IJspeert, T. Tawara, H. Omi, H.

Yamamoto, Compound Semiconductor Week (CSW:2019), (WeD1-5 22 May, Nara, Jpn).

4. “167Er³⁺:Y₂SiO₅ における超微細構造準位間でのラビ振動の測定”、平石真也、M. IJspeert、俵毅彦、尾身博雄、山本秀樹、後藤秀樹、応用物理学会 (2019 春 早稲田大学)。

5. (*Invited*) “Material engineering in rare earth doped oxides for quantum optics application in telecommunications wavelength” H. Omi and T. Tawara, Photoluminescence in rare earths: photonic materials and devices (PRE’17), (A5, 1 Dec. Roma, Italy).

6. “State preparation and lifetime measurements through spectral hole burning in 167Er³⁺:Y₂SiO₅”, M. IJspeert, M. Hiraishi, T. Tawara, K. Shimizu, H. Omi, S. Adachi, H. Gotoh, International symposium on nanoscale transport and technology (ISNTT), (Atsugi, Jpn).

7. “Growth and optical characterization of erbium-doped cerium oxide as a magnetically purified host crystal”, T. Tawara, T. Inaba, H. Omi, S. Adachi, H. Yamamoto, H. Gotoh, Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim 2017 (CLEO:2017), (31 July-4 Aug. Singapore).

8. “Spectral hole narrowing in Er³⁺ 4f transitions by isotope separation”, T. Tawara, G. Mariani, K. Shimizu, H. Omi, S. Adachi, H. Gotoh, Conference on Lasers and Electro-Optics 2017 (CLEO:2017), (JTU5A.129, 14-19 May, San Jose, USA).

9. “Growth and characterization of 167Er in Y₂SiO₅ single crystal”, H. Omi, T. Tawara, K. Shimizu, S. Saito, International conference on solid state devices and materials (SSDM 2016), (26-29, Sep. Tsukuba, Jpn).

10. “Si 基板上における非磁性 Y-W-O 薄膜の MBE 成長”、尾身博雄、俵毅彦、山本秀樹、応用物理学会 (2017 春 筑波国際会議場)。

11. “母体結晶のノンスピバス化を目指したエルビウム添加酸化セリウムの MBE 成長”、稲葉智宏、俵毅彦、尾身博雄、山本秀樹、後藤秀樹、応用物理学会 (2017 春 筑波国際会議場)。

12. “希土類 4f 遷移における位相緩和時間と同位体制御効果”、俵毅彦、G. Mariani、清水薫、尾身博雄、足立智、後藤秀樹、電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (2017 年 1 月 18-19 日、伊勢)。

13. “Er 超微細構造準位における 型 3 準位の初期化”、M. IJspeert, G. Mariani, 俵毅彦、清水薫、尾身博雄、足立智、後藤秀樹、応用物理学会 (2017 春 筑波国際会議場)。

13. “Er³⁺超微細構造準位の観測”、俵毅彦、G. Mariani, 清水薫、尾身博雄、足立智、後藤秀樹、応用物理学会 (秋)(2016 年 9 月 13-17 日、朱鷺メッセ、新潟)。

14. “Er イオンにおける誘導ラマン断熱通過”、浜田裕紀、俵毅彦、足立智、アレスイエナス、尾身博雄、後藤秀樹、応用物理学会 (春)(2016 年 3 月 19-22 日、東工大)。

15. “Photonic crystal membrane with single crystal rare earth oxide using selective area growth by MBE”, T. Tawara, H. Omi, T. McManus, A. Llenas, E. Kuramochi, S. Adachi, H. Gotoh, Compound Semiconductor Week (CSW:2016), (26 Jun, Toyama, Jpn).

[その他]

ホームページ等

<http://www.brl.ntt.co.jp/pepole/homi>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

研究代表者氏名：尾身 博雄

ローマ字氏名：OMI Hiroo

所属研究機関名：NTT 物性科学基礎研究所
部局名：量子光物性部
職名：主任研究員
研究者番号（8桁）：40393798

(2)研究分担者

研究分担者氏名：俵 毅彦
ローマ字氏名：TAWARA Takehiko
所属研究機関名：NTT 物性科学基礎研究所
部局名：量子光物性部
職名：主幹研究員
研究者番号（8桁）：40393798

研究分担者氏名：清水 薫
ローマ字氏名：SHIMIZU Kaoru
所属研究機関名：NTT 物性科学基礎研究所
部局名：量子光物性部
職名：主幹研究員
研究者番号（8桁）：50426607

研究分担者氏名：齋藤 志郎
ローマ字氏名：SAITO Shiro
所属研究機関名：NTT 物性科学基礎研究所
部局名：量子電子物性研究部
職名：特別研究員
研究者番号（8桁）：90393777

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。