

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02546

研究課題名(和文) NV中心を利用したコヒーレントな電子スピン流の生成とスピン情報輸送

研究課題名(英文) Generation and Transport of Coherent Electron Spin Current Using NV Center

研究代表者

森下 弘樹 (Morishita, Hiroki)

京都大学・化学研究所・助教

研究者番号：20701600

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、量子情報処理デバイスや量子センサの高性能化や集積化に向けたコヒーレントなスピン流の生成に向けた基盤研究として、核スピンコヒーレンスの電氣的検出や電氣的検出技術を利用した量子センサの原理実証を行った。その結果、他の材料を含め初めて、核スピンのラビ振動やT2測定を室温で電氣的に観測することに成功した。さらに、NV量子センサを用いたAC磁場測定の電氣的検出にも初めて成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン状態の電氣的検出技術の確立は、スピンと電荷の相互作用を明らかにすることができる。特に、量子メモリとしての動作が期待されている核スピンの電氣的検出は、電氣的に動作する古典デバイスとのハイブリット化による高度化に向けた基盤研究となる。加えて、量子センサの電氣的検出技術の確立は、この後のナノスケールNMRや生体情報の取得に向けた量子センサの高感度化や集積化に大いに役立つ基盤研究となる。

研究成果の概要(英文)：This project performs the electrical detections of nuclear-spin coherence and AC magnetic field sensing toward the fundamental studies of the generation of coherent spin current for developing and integrating quantum devices, e.g., quantum-information processing devices and quantum sensors. The electrical detection of Rabi oscillation and nuclear spin coherence with the electrical detection at room temperature is first demonstrated in diamond and other materials. In addition, the electrical detection of AC magnetic field sensing using a diamond quantum sensor using spin coherence is also the first demonstration.

研究分野：応用物理

キーワード：ダイヤモンドNV中心 EDMR スピン流

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

近年世界中で量子力学を基盤とした、量子コンピュータ、量子シミュレータ、量子センサなどの量子デバイスの開発が急速に進んでおり、日本国内においても文科省内に量子科学技術委員会が設置され、Q-leap プロジェクトが開始されるなど、学術的重要性が高まっている。その報告書や戦略目標の中で、ダイヤモンド窒素空孔(NV)中心が室温動作可能な固体量子デバイスとして優れた特徴を有していることが注目されている。ダイヤモンド NV 中心の電子スピンは、一個一個を初期化、検出、そしてコヒーレントな操作が室温で実現できるだけでなく、長いコヒーレンス時間(> 1 ms)を室温で有しているなど、単一量子ビットとしては、優れた特性を持っているが、量子デバイス実現の要件となる多量子ビット化が実現できていない。多量ビット化を実現するためには、NV 中心一個一個を孤立させることによる単一 NV 中心として特性を保ちつつ、NV 中心間の情報輸送を実現する必要がある。

2. 研究の目的

ダイヤモンド NV 中心は、優れたスピン特性等を有するだけでなく、下記の3つの特性がある：
i) ダイヤモンドは絶縁体であるため、光電流以外の電流が殆ど流れない。ii) ダイヤモンドはスピン軌道相互作用が小さいため室温でも数 μm 以上のスピン拡散長を持つ。iii) NV 電子・核スピンコヒーレンスを室温で電氣的に検出できる。そのため本申請は、ダイヤモンド NV 中心を用いた量子デバイスの多量子ビット化に向けた数 10nm ~ 数 100nm 間隔に配置した NV 中心間の情報輸送実証することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) ダイヤモンド NV 中心の窒素核スピンコヒーレンスの制御と電氣的検出

ダイヤモンド中の核スピンは、室温下においても電子スピンよりも長いコヒーレンス時間を有している。そのため核スピンは、ダイヤモンド量子デバイスにおいて、量子メモリとしての役割を担うことが期待されている。本研究課題にもいっても核スピンの電氣的検出は、量子デバイスの実現に向けた要素技術となりうる一方、未だダイヤモンド中の核スピンの電氣的検出の結果発表されていなかった。そこで本研究課題では、まず核スピンの電氣的検出ならびにコヒーレンス時間(T_2)測定を行った。核スピンコヒーレンスは、Davies ENDORのパルスシーケンスを応用することで電子スピンを介して電氣的に測定した。そのためにまず、パルス型電氣的電子・核二重共鳴(EDENDOR)装置の構築を行った。この自作の装置を用いて、核スピンのラビ振動測定と T_2 測定の電氣的検出を行った。

(2) 電氣的検出型ダイヤモンド量子センサの実証

本申請課題である、コヒーレントなスピン流の生成・検出を行うためには、単に起電力測定だけでなく、ダイヤモンド中の電場やキャリア輸送原理の更なる解明が必要であることが分かった。そこで、NV 中心を利用して AC 磁場感度の電氣的検出を通して、ダイヤモンド中の電場やキャリア輸送原理の解明を目指した。EDMR 測定は、NV 中心の測定で多く用いられている光学的な手法と異なり、電極間に電圧を印加しながら、磁気共鳴に光電流の変化を測定する。そのため、ダイヤモンド内部の電界印加やキャリア輸送原理の理解が必要となる。まず、キャリア輸送原理

解明のために、昨年度までに構築した系を利用して、対物レンズによる局所的なレーザー照射によるNV量子センサ磁気感度測定を行った。加えて、凸レンズを利用して、広い領域のより多数のNV中心を励起するアンサンプル型EDMR測定系を利用した磁気感度測定を行った。

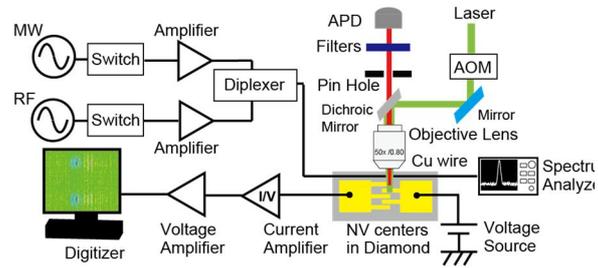


図1 EDENDOR 測定装置の概略図
[Sci. Rep.10, 792 より]

4. 研究成果

(1) ダイヤモンド NV 中心の窒素核スピンコヒーレンスの制御と電気的検出

本研究課題では、ダイヤモンド中の核スピンとして窒素核スピンコヒーレンスの制御と電気的検出を目指した。まず、パルス型電気的電子・核二重共鳴(EDENDOR)装置の構築を行った。その概略図を図1に示す。本装置では、微細加工で作製した電極間のNV中心にレーザーを照射し、NV中心から生成される光電流を測定する。NV中心の磁気共鳴が起こると、光電流値が変化する。本測定では、この光電流値の変化をデジタイザによって測定を行った。また、本測定系は共焦点レーザー顕微鏡と組み合わせて構築したため、NV中心の光磁気共鳴検出も行うことができる。

本装置を用いて、 ^{14}N 核スピンコヒーレンスの制御を行うために、 ^{14}N 核スピンの磁気共鳴信号の電気的検出とラビ振動を電気的に検出した。図2(a)にEDENDOR法のパルスシーケンスを示す。本シーケンスは、Davis ENDOR シーケンス[A. Schweiger and G. Jeschke, Principles of pulse electron paramagnetic resonance (Oxford Uni-verstiy Press, New York, 2001)]を応用し、NV電子スピネコ強度のRF照射周波数依存性を測定することで、 ^{14}N 核スピン共鳴を電気的に測定した。その結果を図2に示し、3.5 MHzの時に光電流量の変化を検出した。この周波数は、 $|+1, 0\rangle$ と $|+1, +1\rangle$ 間の ^{14}N 核スピン磁気共鳴周波数に一致した。ここで、 $|m_s, m_l\rangle$ の m_s を電子スピン、 m_l を核スピんと定義する。次に、RF周波数を ^{14}N 核スピンの共鳴周波数である3.5 MHzに固定し、エコー強度のRFの長さ依存性を測定した。その結果を図3に示す。そして、振動周波数のRF強度依存性(2.5、5、10、そして20 W)を測定した。得られた振動周波数のRF強度の平方根依存性をプロットした結果を図2の挿図に示す。

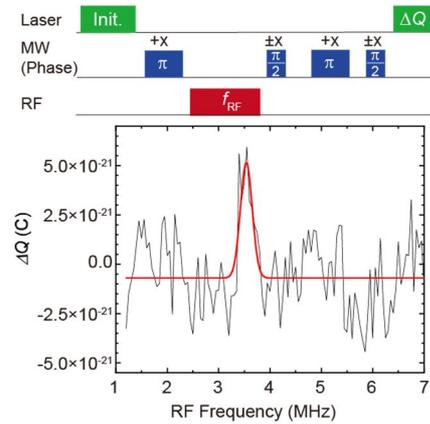


図2 ^{14}N 核スピンの電気的検出
[Sci. Rep.10, 792 より]

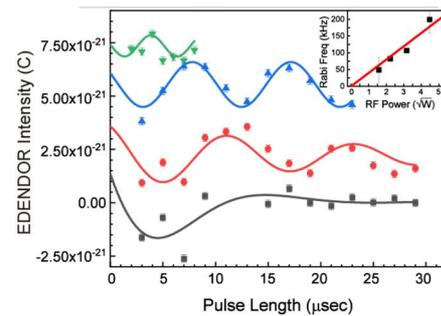


図3 ^{14}N 核スピンのラビ振動測定
[Sci. Rep.10, 792 より]

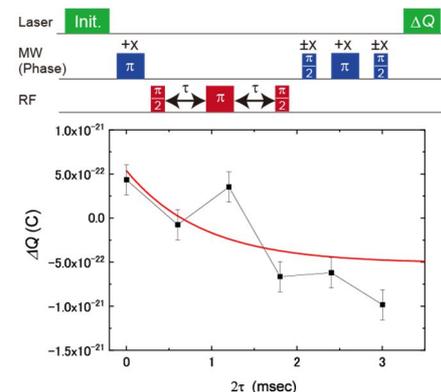


図4 ^{14}N 核スピンの T_2 測定
[Sci. Rep.10, 792 より]

その結果、原点固定の直線で近似でき、得られた振動が $|+1,0\rangle$ と $|+1,+1\rangle$ 間の核スピンのラビ振動である。

^{14}N 核スピンのラビ振動を電氣的に検出できたため、 ^{14}N 核スピンコヒーレンスの電氣的検出を行った。図 4 上に測定に用いたパルスシーケンスを示す。本シーケンスは、Davis ENDOR パルスシーケンスに核スピンの Hahn エコー測定を組み込むことで核スピン T_2 測定を可能にした。その結果を図 4 に示す。電子スピンの強度の 2 依存性を測定した。得られた実験データを指数曲線でフィッティングを行うことで、 $T_2 \sim 0.9 \text{ ms}$ という結果が得られた。

本課題で得られた核スピンのラビ振動や T_2 測定を室温で電氣的に観測した例は他材料における系を含めて初めてである。また本研究成果は、Scientific Report に発表し、2020 年の "One of the top 100 downloaded physics papers for Scientific Reports in 2020" に選ばれた。

(2) 電氣的検出型ダイヤモンド量子センサの実証

本課題では、ダイヤモンド NV 中心の磁気共鳴信号の検出に成功し、起電力の検出にも成功したが、その起電力がスピン特性を持っているか否かは議論の余地があることが分かった。そこで、まず NV 中心の特性をさらに評価するために、ダイヤモンド NV 中心の磁気センサ、特に電氣的検出技術を利用した磁気センサの実現を目指した。この電氣的磁気共鳴検出は、光学的磁気共鳴検出法とは異なり、電極間に電圧を印加した状態で、NV 中心の磁気共鳴による光電流量の変化を測定する。つまり、NV 中心にこのバイアス電圧による電界が NV 中心に印加されている可能性がある。この影響を調べることによって、NV 中心に印加されている磁場や電場の影響を磁気感度測定を通して行う。

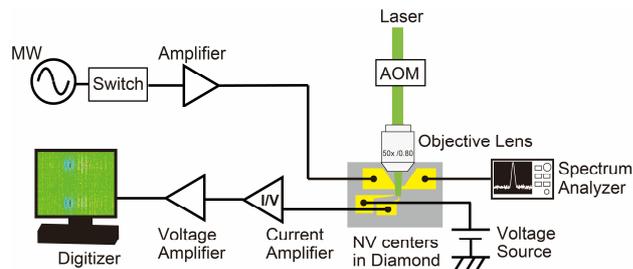


図 5 対物レンズ型 AC 磁場測定装置系

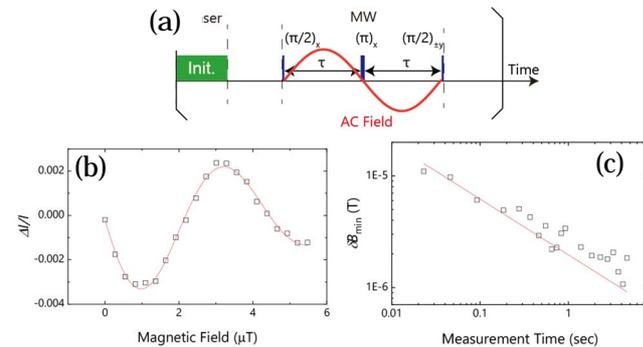


図 6 AC 磁場測定結果 (a)パルスシーケンス (b) AC 磁場強度依存性測定 (c)測定時間依存性

図 5 に本測定で利用した測定系の概略図を示す。図 5 は、前課題の核スピンの電氣的検出に利用した測定系に外部 AC 磁場測定を行えるシステムを追加した。AC 磁場は、図 6(a)に示すパルスシーケンスを用いて測定を行った。本シーケンスは、NV 電子スピンの Hahn エコー測定シーケンスに、測定対象の AC 磁場を同期させて測定を行う。その結果を図 6(b)に示し、磁場強度によって NV 電子スピンのエコー強度の変化が観測できた。本測定結果を利用して、エコー強度の分散、つまり最小検出磁場感度の時間依存性を測定することで、磁場感度 $\sim 2 \mu\text{T}/\sqrt{\text{Hz}}$ を得た(図 6(c))。

NV 中心の磁気センサ感度(η)は、

$$\eta \propto \frac{1}{\sqrt{NT_2}},$$

ここで、 N は NV 中心の数、 T_2 は NV 量子センサのコヒーレンス時間で表される。つまり、NV 中心の数を増やすことで、磁気センサ感度を向上させることができる。そこで図 5 で利用していた遺

物レンズを通常の凸レンズに変更し、センサと利用する NV 中心の数を増やした(図 7)。そして、同様の測定シーケンスを用いて測定を行った結果を図 8 に示す。図 8(a)用いたパルスシーケンスを示し、図 8(b)が電子スピンエコー強度の AC 磁場強度依存性を示す。次に、最小検出磁場の測手時間依存性を測定することで、磁場感度 $28 \text{ nT}/\sqrt{\text{Hz}}$ を得た(図 8(c))。さらに、磁場感度の印加電圧依存性を測定することで、電界による磁場感度依存性が測定でき、NV 中心に印加される電場の影響を調べ、キャリア輸送に関する知見を得た。

本課題で得られた NV 中心の磁場感度を電氣的磁気共鳴手法を用いて行った結果は初めての成果であり、現在論文を執筆している。

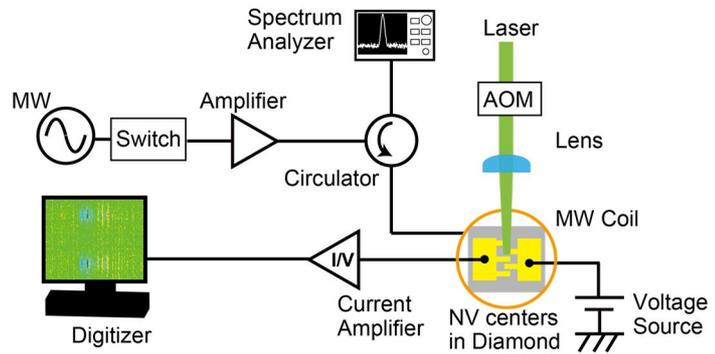


図 7 アンサンブル AC 磁場測定装置系

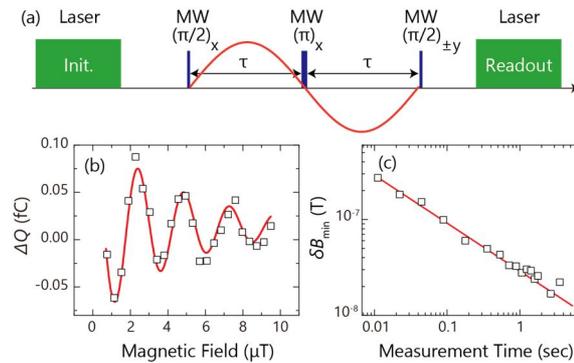


図 8 AC 磁場測定結果 (a)パルスシーケンス (b) AC 磁場強度依存性測定 (c)測定時間依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 H. Morishita, S. Kobayashi, M. Fujiwara, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki & N. Mizuochi	4. 巻 10
2. 論文標題 Room Temperature Electrically Detected Nuclear Spin Coherence of NV Centres in Diamond	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 792
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-57569-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 H. Morishita
2. 発表標題 Electrically Detected Magnetic Resonance Studies of NV centers in Diamond
3. 学会等名 The 13th International Conference on New Diamond and Nano Carbons（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Morishita, S. Kobayashi, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, and N. Mizuochi
2. 発表標題 Room-Temperature Electrical Detection of ¹⁴ N nuclear spin coherence of NV centers in Diamond
3. 学会等名 International Symposium on Hybrid Quantum Systems 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Morishita, S. Kobayashi, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, and N. Mizuochi
2. 発表標題 Room-Temperature Electrical Detection of ¹⁴ N nuclear spin coherence of NV centers in Diamond
3. 学会等名 The 2nd International Forum on Quantum Sensing（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森下 弘樹, 西川 哲理, 小野田 忍, 阿部 浩之, 大島 武, 水落 憲和
2. 発表標題 ゼロバイアス電圧下でのダイヤモンドNV 中心の電氣的磁氣共鳴検出
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

京都大学 教育研究活動データベース https://kyouindb.iimc.kyoto-u.ac.jp/j/uB9mS HirokiMorishita ' spublicationlist http://scholar.google.co.uk/citations?user=-3j4iHEAAAAJ&hl=en

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