

「ダイヤモンドの同位体エンジニアリングによる量子コンピューティング」

平成21年度および平成22年度 実施報告書

研究代表者 磯谷順一

筑波大学・図書館情報メディア研究科・教授

1. 研究実施の概要

ダイヤモンドのNVセンター(カラーセンターの1種で、炭素を置換した窒素と隣接の位置に原子空孔を伴い、スピン $S=1$ をもつ)は、室温で初期化・単一スピンの読み出しが可能で、コヒーレンス時間が長いという特長がある。本課題では、同位体濃縮・高純度・高品質ダイヤモンド結晶を合成し、そこにNVセンターのナノスケール(間隔 $\sim 50\text{nm}$)の鎖状配列を作成する。本研究では3 \sim 5キュービットの室温で動作する量子プロセッサの実現をめざすが、量子ビット数が拡張可能な量子論理の実証において、多量子ビット化の基盤技術を確立するものである。

日本側では、固体・室温で特異的に長いNVセンターのコヒーレンス時間を、同位体濃縮により桁違いに長くするとともに、単一の欠陥を望みの位置に高収率に作成して並べる技術の確立をめざす。これをドイツ側の量子情報処理の最先端技術と組み合わせることにより、固体量子情報処理において大きなブレークスルーが達成できると考えられる。

NVセンターを並べることができても、コヒーレンス時間が短ければ、多量子ビット化はもとより、スケーラビリティのある量子論理ゲートの実証も不可能である。そのため同位体濃縮と高純度化とを極めて、いわば“量子グレード・ダイヤモンド”として全く新しいクラスの結晶を合成する必要がある。窒素を不純物として含む出発物質(^{12}C 濃縮メタン)を用いながら、同位体高濃縮に見合った高純度・高品質結晶の合成に挑戦する。HPHT法では同位体濃縮メタンを固体炭素源に変換する際に、合成原料に適しかつ固体化の収率を高める条件、それを原料に不純物窒素とインクルージョンとともに低減する結晶育成条件の探索を開始した。CVD法では $^{12}\text{C}99.999\%$ 濃縮した単結晶膜を合成した。その評価から高品質化を進める指針が得られた。不純物窒素を高感度($\sim 0.01\text{ppb}$)に定量する手法を開発し、天然存在比のHPHT法の結晶のなかには $[\text{N}]=0.4\text{ppb}$ のものがあることが明らかになった。H22年度では高純度HPHT結晶における窒素不純物の分布が不均一であり、合成条件によって分布の状態を制御できることがESR Imagingから明らかになった。イオン注入用の基板、CVD合成基板を切り出すのに重要な知見が得られた。

単一のNVセンターを鎖状の配列として並べるには、位置を制御した窒素イオン注入を用いる。イオン注入によるNVセンター作成には、収率が低いことと作成したNVセンターのコヒーレンス時間が短い(\sim 数十 μs)ということが難題であった。我々は、窒素イオン注入において、窒素イオンの存在状態、残存する欠陥の種類や濃度が、注入エネルギー・注入量・照射温度・熱処理温度にどのように依存するかを体系的にみる実験をH21年度から継続してきている。この結果から得られた熱処理条件(コヒーレンス時間を短くする要因となる余分な欠陥の残留を抑える)を用いて、イオン注入で作成したNVセンターについて収率 $\sim 100\%$ 、 $\sim 1\text{ms}$ を超えるコヒーレンス時間を達した。双極子双極子相互作用を用いたスケーラブルな量子論理ゲートを実証することを目的に、単一イオン入射マイクロビーム技術を用いてNVセンターのペアないし3個並んだものの探索を開始した。

NVセンターでは電子スピンのコヒーレンスを核スピんに転写し、再び読み出してくることを用いる数キュービットの量子プロセッサの実用化が有望である。H22年度にはパルスENDORを用いて、NVセンターのfrozen-core内にある多数の炭素サイトの ^{13}C 超微細相互作用を決定し、利用できる核スピンのサイトを決定した。

2. 研究実施内容

I. 結晶合成

本プロジェクトにおいては、NVセンターのコヒーレンス時間を長くするために、 ^{12}C 同位体を濃縮した高純度・高品質(sp^2 不対電子欠陥をもつ転位の低密度化)結晶を合成する。天然存在比のメタンのような高い化学純度のものが得られず不純物窒素を含んでいる ^{12}C 同位体濃縮(99.999%)メタンを用いながら、同位体濃縮の効果を得るには、結晶中の窒素不純物(炭素を置換し、電荷 0、 $S=1/2$ をもつP1 センターとして存在)の濃度を大幅に下げることが必要とされる。

I-1. HPHT 法

^{12}C 同位体濃縮メタンを ^{12}C 同位体濃縮固体炭素源に変換する方法を検討した。

^{12}C 同位体濃縮メタンを高圧合成法における原料とする上で、その固体化が必要である。本研究では熱フィラメントCVD法により、メタンを原料としてダイヤモンド薄膜及びスス状炭素膜を作製し、これを原料とした高圧下結晶成長を行った。課題は高価な高純度メタンからの原料への転換効率の向上とこれによる良質単結晶の高圧合成である。

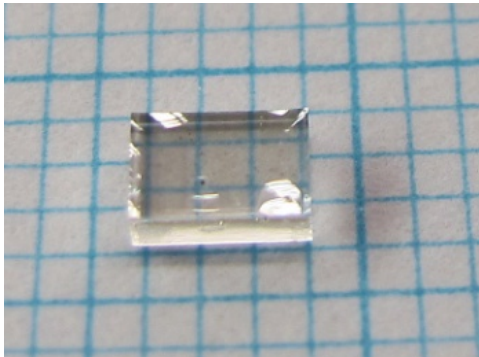
育成溶媒には窒素ゲッターとしてTiを含むFe、Co及びこれらの合金を用い、金属包有物が少なく、かつ窒素不純物濃度が少ないダイヤモンド単結晶を得るための溶媒組成の最適化を試みた。以下に得られた結果を記す。

1. メタンからの収率はスス状炭素膜で 50%以上であるが、これを原料としては良質なダイヤモンド単結晶が得られず、黒鉛の再結晶化が生じた。固体炭素室内に含まれる残留水素による悪影響と推察される。
2. ダイヤモンド薄膜を原料として、2mm程度のダイヤモンド単結晶を合成し、その性状(金属溶媒、TiC微粒子の包有状況)と溶媒組成の相関を明らかにした。Fe>Fe-Co合金>Co合金の順に成長速度が大きく、これは溶媒中の炭素溶解度の差に起因すると考えられる。包有物の低減の観点では、Fe溶媒の利用は難しく、Co溶媒は育成温度が高いために長時間に渡り育成条件を保持して大型の良質単結晶を得ることが難しい。そこでFe-Co組成の最適化が必要であり、現在その途上である。窒素不純物の低減の為にTiの添加は5wt%以上では阻害要因となるが、その限界付近で低窒素濃度結晶が得られる可能性がある。一方、TiC不純物の混入抑制に効果のあるCuの添加量の最適化が課題であるが、その量はTiの添加量以上であることを示唆する結果が得られた。
3. ^{12}C 同位体を99.9%まで濃縮したメタンから得られたCVDダイヤモンド薄膜を原料として育成したダイヤモンド単結晶をSIMS分析により評価した。その結果、 ^{12}C 同位体濃縮度は99.96%程度、窒素不純物濃度1ppm以下(SIMS検出限界以下)であることが示された。

I-2. CVD 法

^{12}C 濃縮度99.999%のメタンを用いて、CVD単結晶膜を合成した。特にH22年度は、研磨に起因する結晶欠陥を低減する薄膜合成プロセスの確立を目指し、 ^{12}C 同位体濃縮されたダイヤモンド薄膜の高品質化に取り組んだ。基板表面のエッチングを適宜導入することで、研磨欠陥に多く依存しない成長条件を見出し、高品質な40 μm 以上の厚膜結晶として成長することに成功した(図1)。高品質化によりコヒーレンス時間が長くなったが、同位体濃縮度から予測される値より短く、結晶中に混入している窒素が原因であると考えられる。

^{12}C 濃縮メタンガスには 14ppm程度の窒素が混入しており、これが主たる不純物起源と考えられることから、H23年度ではメタンガスからの窒素除去を実施し、コヒーレンス時間を長くすることをめざす。



(図1) ^{12}C 99.999%濃縮したCVDダイヤモンド(IIa型HPHT基板上に厚さ 40 μm 成膜) 天然存在比では $^{12}\text{C}(I=0)$ 98.89%, $^{13}\text{C}(I=1/2)$ 1.11%であり、 ^{13}C 核スピンのフリップ・フロップによる局所場の変動によりコヒーレンス時間は高純度化を極めても 0.65msとなる。

II. 量子ビット数拡張可能な量子論理ゲートを実証する NV ペアリーの探索

単一欠陥の単一スピンをキュービットとして、それを並べることによって多量子ビット化を実現するには、ひとつでも配列を作成できればよい。したがって、確率が小さくても配列ができるような作成法があれば、確率に見合ったたくさんの試料を作成して、その中から探し出すというアプローチが有効になる。

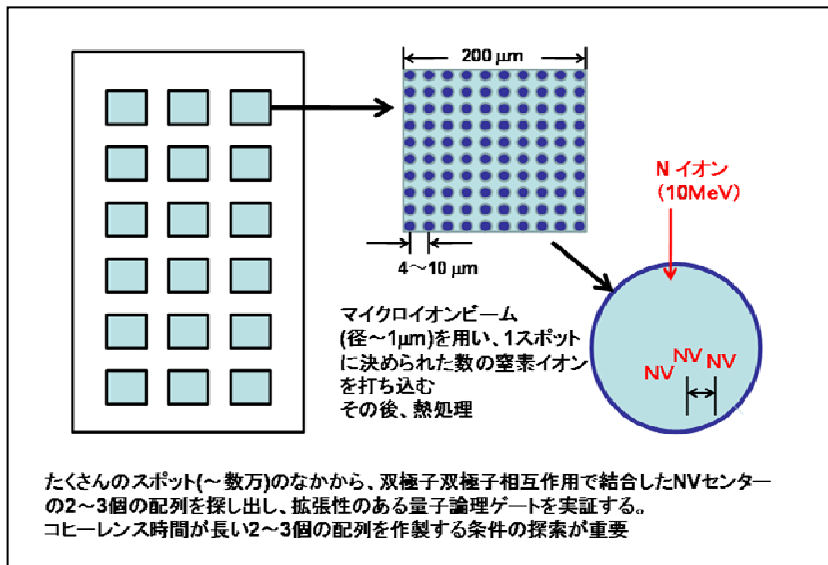
NVセンターの配列作成には、イオン注入を用いる。イオン注入の位置制御精度から、本プロジェクトでは距離 $\sim 50\text{nm}$ の配列の作成をめざしている⁽¹⁾。距離 50nmの双極子双極子相互作用($\sim 0.42\text{kHz}$)を用いる 2 キュービットCNOTゲートには $\sim 20\text{ms}$ を超えるコヒーレンス時間を必要とする。この長いコヒーレンス時間の達成には ^{12}C 99.999%濃縮が必須の条件となる。

合成結晶(イオン注入に用いる基板)は、成長時導入欠陥としての“ネイティブNV”について、コヒーレンス時間を測定することによって評価される⁽²⁾。我々は ^{12}C 99.999%濃縮ダイヤモンド結晶の合成に成功したが、同位体濃縮度に見合ったコヒーレンス時間には達していない。 ^{12}C 99.999%濃縮ダイヤモンド結晶の高純度化、低転位密度化を進めている段階である。また、基板のもつ長いコヒーレンス時間をイオン注入によって作成したNVセンターでも再現できることが重要である⁽³⁾。

鎖状の配列を用いた多量子ビット化のキーポイントは、ユニバーサルゲートとしての隣接するNVセンターの双極子双極子相互作用を用いた 2 キュービットCNOTゲートである。そこで、NVセンターのペアリーを用いた 2 キュービット・エンタングルメントの実証、2 キュービットCNOTゲートの実証をターゲットとして、イオン注入で作成するNVのコヒーレンス時間を長くすることに取り組んだ。イオン注入で作成したNVセンターについては、今まで数十 μs という短い値しか得られていなかったが、高エネルギー(10MeV)マイクロイオンビーム照射を用い、熱処理条件を欠陥制御の点で工夫することにより、1msを超える値を達成するとともに $\sim 100\%$ の収率を達成した⁽⁴⁾。

固体試料の室温のコヒーレンス時間としては極めて長い $\sim 1\text{ms}$ でも、2つのNVセンターの双極子双極子相互

作用を用いた2キュービット・エンタングルメントの実証、2キュービットCNOTゲートの実証には～20nmという短い距離のペアが必要になる。マイクロビーム照射を用いて、ひとつのスポットに複数個の窒素イオンを打ち込むと、ビーム径～1μmのひろがりに加えて、10MeVのストラグリングにより、生成するNVセンターの位置にはばらつきを生じるが、距離20nm以内のペアの生成する確率は0.004%存在すると予測される。



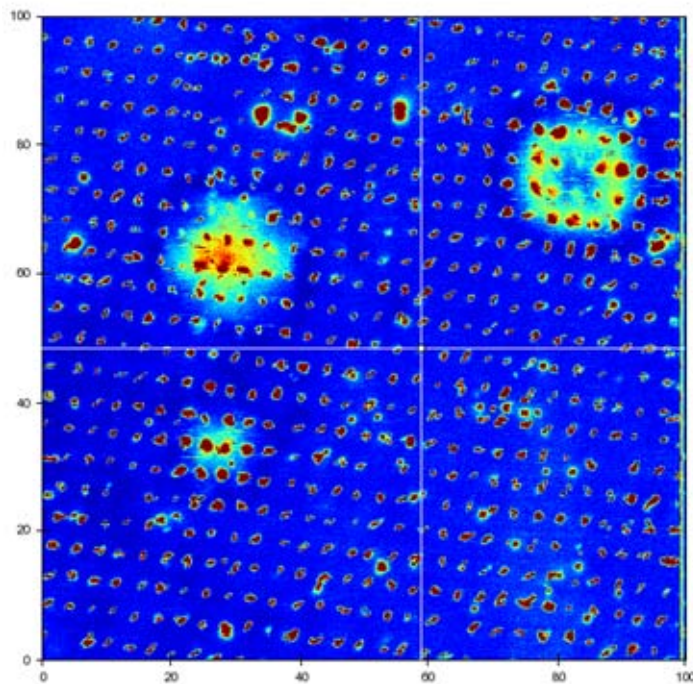
(図2) 単一イオン入射マイクロビーム照射を用いた短い距離のNVセンターのペアの作成

単一イオン入射マイクロビーム照射では、一定のステップ(4μm)ごとに、数を制御した窒素イオンを打ち込んだスポットを作成する(図2)。1試料で格子状にならんだ～数万のスポットを作成することができる。したがって、このように多くのスポットから短い距離のペアを探し出すには、効率良くNVセンター間の距離を判定できる高分解能の光学的手法を使えることが望ましい。共焦点顕微鏡の空間分解能(波長の～1/2、我々は532nmのレーザーを用いている)では、マイクロビーム照射の1スポット内に生成したいくつかのNVセンターの蛍光スポットを完全に分離することは困難である[図3(a)]。共焦点顕微鏡では、蛍光スポットが重なって1つの蛍光スポットとして観測される場合には、蛍光の光子の自己相関を測定することにより、NVセンターの個数を測定する方法がとられる。この方法では1スポット内に生成したNVセンターの数が得られる点で、収率の評価にはなるが、分解能を超えた距離の判定はできない。我々は～15nmの空間分解能をもつGSD(Ground State Depletion)顕微鏡を用いると、1スポット内に生成したNVセンターを分離して数えられ、収率の評価とともに、距離の測定を効率的にできることに注目した(GSDの分解能は励起レーザーのパワーに依存し、実際の測定では～30nmの分解能を用いた)[図3(b)]。共焦点顕微鏡、GSD顕微鏡の測定はドイツのグループとの共同研究としてシュツットガルト大学の装置を用いた。

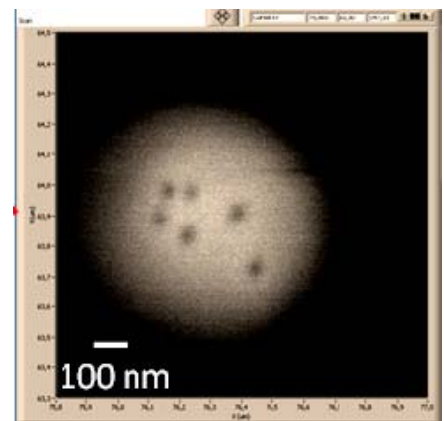
GSDを距離の遠いペアをもつスポットのスクリーニングに用い、GSDでも分離が不完全な距離の近いペアをもつスポットを探し出す。このようなGSDでも分離が不完全なペアにおけるNVセンター間の距離はDESRによって高精度で求めることができる。あらかじめ共焦点顕微鏡イメージから選

びだした～700個のスポットに GSD 測定を行い、GSD でも分離が不完全な短い距離の NV センターのペアが見出されたが、その距離は～30nm であった。H23 年度には、さらに多くのスポットを対象にコヒーレンス時間が長い短い距離(～20nm)のペアの探索を続けるとともに、マイクロビーム照射した試料を新たに作成し、探索を続ける。

H22 年度の実験から以下の指針が得られた。コヒーレンス時間が十分に長ければ、マイクロビーム照射によって生成確率の高い長い距離のペアを CNOT ゲートの実証に用いることができる(距離～30nm 以内のペアの生成する確率は 0.009%、距離～50nm 以内のペアの生成する確率は 0.032% である)。したがって、H23 年度には、ネイティブ NV のコヒーレンス時間が長い基板を得るための $^{12}\text{C}99.999\%$ 濃縮結晶の合成法の改善 イオン注入で作成した NV センターのコヒーレンス時間を長くするための欠陥制御の改善を継続する。また、距離の短いペアの生成する確率を高めるような照射を試みることも重要である。



(a) 共焦点顕微鏡蛍光イメージ。各スポット(間隔 $4\mu\text{m}$)に生成している～5個の NV センターの分離には、分解能(レーザー光の波長 532nm の～1/2)は不十分である。



(b) 1スポットの GSD 顕微鏡イメージの例(ここでは分解能～30nm のレーザー出力を使用)

(図 3) 高エネルギー窒素イオンマイクロビーム照射 (10MeV 、 $4\mu\text{m}$ ステップの各スポットあたり 5 個の窒素イオンを注入) した高純度 CVD ダイヤモンド単結晶の(a) 共焦点レーザー顕微鏡蛍光イメージ(b)GSD(Ground State Depletion)顕微鏡イメージ

(注)

(1) 距離 50nm にはばらつきが許される。DESR による双極子双極子相互作用の測定から距離は高精度に求め

られ、それぞれの距離にあった周波数のマイクロ波パルスを用いることができる。

(2) 共焦点レーザー顕微鏡を用いた蛍光検出ESRでは単一の欠陥のコヒーレンス時間を測定するので、ネイティブNVの濃度は非常に低くても、試料から1個探し出せばよい。

(3) イオン注入によって作成イオンした NV センターにおいて、基板のもつ長いコヒーレンス時間が損なわれるのは、熱処理後に残留する余分な欠陥(特に空孔クラスターなど不対電子をもつもの)が主要因である。

(4) 試料はDr. Daniel J. Twitchenから提供を受けた $^{12}\text{C}99.99\%$ 濃縮・高純度CVD単結晶を用いた。

3. 研究実施体制

グループ名	研究代表者又は 主たる共同研究者氏名	所属機関・部署・役職名	研究題目
キャラクター化シ ョン・グループ	磯谷 順一	筑波大学大学院 図書館情報メディア研究科 研究主幹	ダイヤモンドの同位体 エンジニアリングによ る量子コンピューティ ング
欠陥制御グループ	大島 武	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 リーダー	イオンや電子線照射を 用いた欠陥エンジニア リング研究
欠陥制御グループ	小野田 忍	日本原子力研究開発機構量子 ビーム応用研究部門 研究員	イオン照射技術の開発 及び窒素導入、熱処理
結晶合成グループ	谷口 尚	物質・材料研究機構 ナノスケール物質萌芽ラボ 超高压グループリーダー	高純度ダイヤモンド単 結晶・薄膜の合成
結晶合成グループ	寺地 徳之	物質・材料研究機構 センサ材料センター 主任研究員	CVDダイヤモンド薄膜合 成

4. 主催したワークショップ等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2010年5月7日	ドイツチームミーティング	シュツットガルト大 学	日本からは磯谷が 参加 ドイツ側5人	ドイツチーム・キ ックオフミーティ ング
2010年 5月21日	日本チームミーティング	物・材機構	8人	日本チーム・キ ックオフミーティ ング
2010年 11月8-9日	日独チームミーティング	シュツットガルト大 学	日本側 6人 ドイツ側6人	日独両チーム合同 キックオフミーテ ィング
2011年 1月13日	日本チームミーティング	物・材機構	9人	H23年度計画の打 ち合わせ