

研究報告書

「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」

研究期間：平成21年1月～平成24年3月

研究者：水落 憲和

1. 研究のねらい

近年、量子暗号通信や量子コンピューティングにより、絶対に盗聴されない通信や、ある種の計算が既存のものより桁違いに速い計算の実現が期待されている。それらの実現や普及のためには効率の良い単一光子発生素子、量子レジスタ、量子中継器などのこれまでにない新たな素子の実現が必要となる。集積化等の観点から固体素子での基盤技術の発展が期待されるが、これまで固体系での研究では極低温のみでの動作、多量子ビット化への難点、短いコヒーレンス時間といった課題があった。本研究では、室温動作が期待でき、コヒーレンス時間の長いスピンをもつ発光中心（常磁性発光中心）を有するダイヤモンド等のワイドギャップ半導体に注目した。通信に用いられる“光”と計算や記録に用いられる“スピン”を量子ビットとして用い、室温動作、多量子ビット化、電氣的制御、量子もつれ状態の生成と操作の実現を本研究ではねらった。固体では実現されていない室温における単一光子発生の電氣的な制御や固体での最高量子ビット数の実現等の本研究の目標は挑戦的である。

2. 研究成果

（1）室温で初めての電流注入による単一光子発生

単一光子発生素子は量子暗号通信や光量子コンピューティングに欠かせない素子で、これまで量子ドット等において開発研究が行われていた。近年では素子構造の最適化や半導体特性を生かし、高効率な素子が実験室レベルで開発されてきていた。しかし、これまでの素子は液体ヘリウムを必要とするような非常に低い温度での動作であった。それは量子ドットにおいてはキャリアをドット内に捕獲しておくため低温にする必要があったためである。一方、ダイヤモンド中の窒素-空孔欠陥（NV 中心、図1）では、その周りに不対電子が局在し強く捕獲され、室温でも非常に安定である。単一 NV 中心を光学観測するには、光の分解能の制約からその濃度を $0.1 \text{ ppb} (10^{13} / \text{cm}^3)$ 以下にしないといけない。そのため不純物の混入による発光中心濃度を非常に抑えた試料での測定が必要であり、これまでの単一 NV 中心の研究は非常に高品質なアンダーブーム試料でのみ研究がなされ、半導体特性を有する試料での研究はなされていなかった。本研究では p 層と n 層の間に高品質な薄い i 層をはさんだダイヤモンド半導体素子を用いれば、電流注入による単一光子発生の実証ができるのではないかと着想し、産業

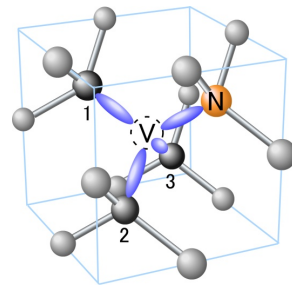


図1、ダイヤモンド中の NV 中心. N は窒素原子で V は炭素原子が抜けた空孔(V). 1-3 でラベルされた炭素原子が空孔からの最近接炭素原子.

技術総合研究所のグループに依頼して素子を作製した（図2）。試行錯誤の末、i 層から単一 NV 中心からエレクトロルミネッセンスを観測することができた（図3）。単一であることはアンチバンチングの測定から確かめられた。今回の結果は室温で初めての電流注入による単一光子発生の実証である。発光強度の電流注入量依存性や、アンチバンチング等の解析からは、再結合過程の機構に関する知見が得られ、素子構造の最適化等により更に高効率化が望めることも明らかにすることができた。また NV 中心のスピンは、量子重ね合わせ状態（コヒーレンス）を保持しておく時間が非常に長いという優れたスピンの特性を有する。その NV 中心での実現は、今後のスピン状態の電氣的制御への発展といった観点からも非常に重要である。本成果は Nature Photonics 誌に投稿し、特許も出願した。

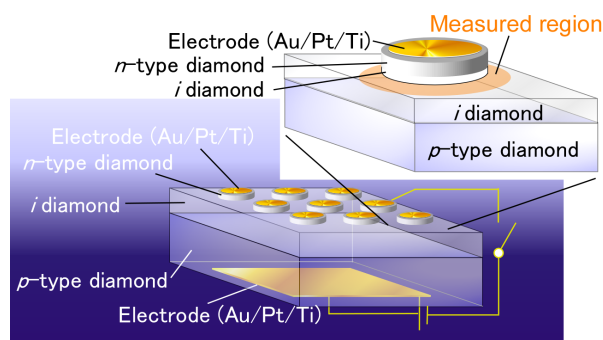


図2 ダイヤモンド $p-i-n$ 素子構造 .ホウ素ドーピング p 型、リンドーピング n 型、高品質アンドーピング (i-層) からなる . 上下の電極間に電圧をかけ電流を注入する。右上は拡大図 .

（2）ダイヤモンド中の単一スピン多量子ビット系における量子情報処理研究

これまで ^{13}C 核スピンを用いることにより量子ビット数を増やせると着想し、多量子ビット化研究を行った。本研究では核スピン 3 つと電子スピン 1 つの 4 量子ビットからなる系における量子もつれ状態の生成に成功した。固体系における量子もつれを生成した量子ビット数としては最高数であり、室温で実現した点は特筆すべき点である。これらの成果は平成 24 年 1 月末の段階では論文等の外部発表を行っていないが、今後実験条件の最適化、結果の評価や解析を行い、まとめる予定である。

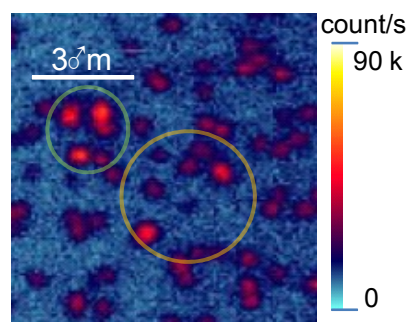


図3 単一 NV 中心の EL 像 .いくつかの単一の NV 中心が電流注入により発光している様子が観測されている .

（3）ダイヤモンド・超伝導量子ビットハイブリッド系の量子状態制御の研究

これまで量子計算の実現に向けて超伝導量子ビットによる研究が盛んに行われていた。量子ビットが巨視的であり、素子の作製が比較的容易なことからスケラブルな素子として期待がされていたが、量子計算で必要となる量子重ね合わせ状態（コヒーレンス）を保持しておく時間が非常に短いという欠点があった。そこで量子計算を超伝導素子で行い、その情報を一時的に記録する量子メモリとしてダイヤモンド NV 中心のスピンをすることにより、欠点を補うことができるのではないかという考えをもとに、NTT 物性科学基礎研究所と共同研究を行った。結果として超伝導量子ビットと NV 中心のスピン

間との相互作用及び状態間の振動を観測した。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、量子状態を保存可能な量子メモリの実現にとって、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。超伝導素子の計測は NTT 物性科学基礎研究所で行われたが、ダイヤモンド試料中の NV 中心の濃度やスピン特性の評価はさががけで導入した自作設備（単一の NV 中心の発光を観測できる装置）を用いて行い、これにより世界に先駆けた研究成果を実現した。

（４）SiC における常磁性発光中心に関する研究

本研究では固体材料の中でも、室温動作、広範囲な発光波長、長いスピンコヒーレンス時間等の観点から、ダイヤモンド以外のワイドギャップ半導体にも注目して研究を行った。特に SiC に注目し、単結晶及びナノ粒子での研究を行った。本研究では SiC 単結晶及びナノ粒子で、室温で光検出磁気共鳴を観測することができた。最近 SiC では単結晶での観測が報告されたが（Koehl et al, 479, 84, 2011）、我々が観測した発光中心はそれらとは別のもので、更にダイヤモンド以外で室温でナノ粒子でのスピン観測は初めてである。光検出磁気共鳴の成功はスピン状態の操作と光学観測ができたことを意味する。本研究の大きな目的は単一中心の観測であるが、数十ナノ径レベルでの粒子を分散して個々の粒子からの発光を観測することはできたが、研究期間中には単一発光中心の観測には至っていない。ナノ粒子での研究のもう一つの目的はバイオマーカーとしての応用や磁気センサーとしての応用が挙げられる。バイオマーカーとしては 800 nm 付近での励起と発光が要求されるが、その領域での室温での発光中心の観測に成功し、量子情報分野以外でも幅広い分野での応用が期待される。

3、今後の展開

NV 中心のスピンは、量子重ね合わせ状態（コヒーレンス）を保持しておく時間が非常に長いという優れたスピンの特性を有する。今回、電氣的な単一光子発生に成功したが、次の展開としてはスピンの電氣的制御と考えている。核スピンを用いた多量子ビット系における量子情報処理研究の今後の展開としては、4 量子ビット及び次の 5 量子ビットにおける処理の高度化が展開として挙げられる。5 量子ビットの分散処理できる量子レジスタができ、その量子レジスタを光等により量子もつれ状態にすることができればスケラブルな量子コンピュータ（量子ネットワーク）の構築ができるという理論提案もあり、そのような量子レジスタ間の量子もつれ生成も今後の展開として非常に関心がもたれる。また量子もつれ状態を用いると磁気センサーの高感度化につながると原理的に期待でき、量子情報以外の新たな方向への展開も期待できる。SiC など他の材料への展開は、量子情報分野以外でも磁気センサーやバイオマーカーなどの幅広い分野での応用が期待される。単一への展開は高品質材料が必要であり、長期的な観点から研究を進めていくことを考えている。

4、自己評価

個別には電流注入による単一光子発生は試行錯誤の末に目標を達成でき論文投稿に至

ることができた。多量子ビット化と量子情報処理では目標である 4 量子ビットでの量子もつれ生成を行うことができた。さきがけ研究期間内に論文発表には至っていないが目標は概ね達成できたと考えている。ダイヤモンド以外のワイドバンドギャップ材料への展開では、単一発光中心の観測という部分については研究期間内に達成していなかったが、SiC で室温においてスピン状態を操作及び光検出でき、大きな一歩を進めることができたと考えている。(サンタバーバラ校の Awschalom 教授グループが 2011 年に SiC 中の発光中心のスピン状態を操作及び光検出したという論文が Nature 誌 (Koehl et al., 479, 84, 2011) に発表されたが、このように単一ではなくても本研究での成果は高く評価されることと考えている。) 超伝導に関しては当初の目標に明示していないテーマであったが、さきがけにより導入した自作装置による成果であり、NV 中心の研究を先駆けて進めていくうちに得られたもので、当初の想定(目標)以上の成果が得られた事例と考えている。

総合的な評価としては、論文の数は少ないかもしれないが、非常に評価の高い学術誌に掲載され、高い評価をいただけたと考えている。まだこれからまとめられるテーマもあり、今後 1, 2 年で更なる成果が発表できるものと考えている。研究環境としては全く自前の装置も実験室もなく、他機関のグループと共同研究を行いながら研究を続けていた状況から、さきがけの支援によりゼロからスタートして自作装置を立ち上げ、また大阪大学への異動もあった状況下、研究期間終盤で徐々に研究も軌道に乗せることができた。かがけた挑戦的な目標の多くを達成し、一部では想定以上の成果もあった。研究期間内で端緒をつかみ今後の研究でまとめられるテーマもあり、真にさきがけ研究の評価がなされるのは少し先になると考えている。

5, 研究総括の見解

水落研究者は、量子暗号通信や量子コンピューティングのための、室温で動作する単一光子発生素子、量子レジスタ、量子中継器などの素子の実現を目指し、ダイヤモンド等のワイドギャップ半導体を光源や中継器に使う研究に取り組みました。とくに固体では実現されていない室温における単一光子発生の電氣的な制御や固体での最高量子ビット数の実現等挑戦的な目標を掲げました。

これまでの量子情報通信技術では、単一光子源として量子ドットや有機分子を用いており、極低温に冷却する必要がありました。ダイヤモンドには窒素と炭素空孔の複合欠陥である NV 中心と呼ばれる発光中心が含まれます。この束縛エネルギーは室温の熱エネルギーより十分大きいので、冷却の必要が無く、室温で単一光子源として動作します。しかし、これまでの研究では、励起にレーザー光を用いるため実用化が困難で、電流注入で動作する素子が望まれていました。水落研究者は、産総研の山崎氏のグループが作成したダイヤモンド LED(高品位の人工ダイヤモンド薄膜を、p 型および n 型の人工ダイヤモンドで挟んだ pin 接合 LED)において、電氣的に NV 中心を発光させることに成功し、相関法によって単一光子源として動作することを検証し、室温における単一光子発生の電氣的な制御に世界で初めて成功しました。これは、量子情報通信実現を加速すると期待される大きな成果です。海外の著名誌に掲載され、プレスレクも行われました。本研究成果をもとに、さらなる多量子ビット化へと発展し、さまざまな応用展開が期待できます。水落研究者は、このほか、ダイヤモンド中の単一スピン多量子ビット系におけ

る量子情報処理研究や、NTT 研究所の仙場研究員との共同で行ったダイヤモンド・超伝導量子ビットハイブリッド系の量子状態制御の研究などにも取り組み大きな成果を得ました。

このように水落研究者の研究結果は、量子情報通信、量子情報処理を大きく前進させるものであり、特に優れた成果であると高く評価します。

6, 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, S. Yamasaki, “Electrically driven single photon source at room temperature in diamond” *Nature Photonics*, *accepted*.
2. X. Zhu, S. Saito, A. Kemp, K. Kakuyanagi, S. Karimoto, H. Nakano, W. J. Munro, Y. Tokura, M. S. Everitt, K. Nemoto, M. Kasu, N. Mizuochi, K. Semba, “Coherent coupling of a superconducting flux-qubit to an electron spin ensemble in diamond” *Nature*, 478, 221-224 (2011).
3. N. Mizuochi, P. Neumann, F. Rempp, J. Beck, V. Jacques, P. Siyushev, K. Nakamura, D. Twitchen, H. Watanabe, S. Yamasaki, F. Jelezko, J. Wrachtrup, “Coherence of single spins coupled to a nuclear spin bath of varying density” *Physical Review B*, 80, 041201(R) (2009). (Editors’ suggestion)
4. G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, V. Jacques, F. Jelezko, J. Wrachtrup, “Ultralong spin coherence time in isotopically engineered diamond” *Nature materials*, v. 8, p. 383-387 (2009).

(2) 特許出願

研究期間累積件数：1 件（他に国際特許出願予定 1 件）

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

発明の名称：単一光子出力装置、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

出 願 人：大阪大学

出 願 日：2011/7/29

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物等)

主要な学会発表

国際会議の招待講演（下記含め 4 件）

- [1] [Invited] N. Mizuochi, Advances in Photonics of Quantum Computing, Memory, and Communication V at *SPIE Photonics West*, January 21-26, 2012, in San Francisco

国内学会・研究会の招待講演（下記含め 15 件）

- [1] [招待講演] 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”、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山、2011 年 9 月

受賞

- [1] 丸文研究奨励賞（平成 23 年度）「ダイヤモンドを用いた量子情報素子の研究」（2012 年 3 月）
- [2] 第 25 回ダイヤモンドシンポジウム優秀講演賞「ダイヤモンド半導体を用いた量子情報素子」、（2011 年 12 月）
- [3] 日本物理学会若手奨励賞（第 4 回、領域 4）「同位体制御したダイヤモンドにおけるスピンコヒーレンスの研究」（2010 年 3 月）
- [4] 電子スピンサイエンス学会奨励賞「ダイヤモンド中の単一 NV 中心における多量子ビット化と単一スピンコヒーレンス制御」（2009 年 11 月）

著作物

- [1] 水落憲和、「ダイヤモンド中の NV 中心の単一スピンコヒーレンス制御」、固体物理、2010 年 1 月号、vol. 45、p. 27-36
- [2] 水落憲和、「ダイヤモンド中の単一 NV 中心を用いた量子情報処理」日本物理学会誌、vol. 64, no. 12, 910-918, 2009.