

ダイヤモンドを用いた次世代量子暗号用素子の基盤技術開発研究 (131307006)

Research on next generation quantum cryptography device based on diamond

研究代表者

水落 憲和 大阪大学 (現職: 京都大学化学研究所)
Norikazu MIZUOCHI Institute for Chemical Research, Kyoto University

研究分担者

山崎 聡[†]
[†]産業技術総合研究所

研究期間 平成 25 年度～平成 27 年度

概要

本研究課題では目標として「(I) ダイヤモンド中の NV 中心における単一スピンの電場による電氣的量子制御と電氣的制御による量子メモリ時間の長時間化の実証」、「(II) ダイヤモンド中の NV 中心におけるスピンの電氣的検出」、「(III) 電氣的制御による単一光子発生の高効率化」を掲げていた。(I)に関する成果としては「電場印可による量子メモリ時間の長時間化の実証の成功」、及び「高周波電界を用いた核スピンの高速量子ゲート操作」実現を理論的に示した。(II)の成果としては「NV 中心のスピン状態の電氣的検出の成功」が挙げられる。(III)に関する成果については「ソリッドエマージェンレンズ作製」、「ダイヤモンド中の SiV 中心におけるエレクトロルミネッセンスの観測の成功」、「NV⁻電荷状態の安定化に成功」が挙げられる。

1. まえがき

量子暗号ネットワークの実現は、安全で持続的発展を希求する社会にパラダイムシフトをもたらすと考えられる。試験運用がされつつある第一世代に続く、次世代の量子暗号ネットワークにおいては更なる長距離化と高速化が期待される。それには革新的技術が必要とする単一光子素子や量子ノードが必要である。本研究ではダイヤモンド中の発光中心に注目し、それらの実用化に必要な基盤技術開発研究を行う。具体的には、単一光子素子や量子ノード等の将来の実用化を見据えた際、要求される重要な技術要素として、室温動作できる点、電氣的動作ができる点、実効的な効率化が挙げられるが技術的な課題が多く、実現されていない。本研究では、室温動作する高効率な単一発光素子実現に向けた基盤研究、及び量子ノード素子の将来の実用化に必要な、スピンの電氣的操作及びスピン状態の電氣的検出に関する基盤技術の創成を目指す。

2. 研究開発内容及び成果

(I-1) 電場印可による量子メモリ時間の長時間化の成功

電場印可による量子メモリ時間の長時間化に成功した。量子メモリ時間 (コヒーレンス時間) である T_2^* が電場をかけることにより 8 倍になることを示すことができ、最終目標である「2 倍」を著しく大きく上回る成果を得た。

これまで電圧によるスピン状態への影響については、電子スピン状態のみを考慮した結果が報告されていた。しかし実際には核スピンが存在するため、磁気共鳴スペクトルは核スピンと電子スピン間の相互作用である超微細相互作用により分裂し、複雑なものとなる。解析では核スピンの項を含めた以下のハミルトニアンを考慮した。今回、核スピン磁気量子数 $M_I=0$ の特性を持つ遷移の高周波数側を励起して、コヒーレンス時間 (量子メモリー時間) の測定 (自由誘導減衰測定による T_2^* の見積り) を行った。結果を図 1 に示した。 T_2^* が電場をかけることにより 8 倍長くなった。目標を著しく大きく上回る成果であった。またエコー法により測定される T_2 も 65% 程度長くなった。

(I-2) 高周波電界を用いた核スピンの高速量子ゲート操

作の理論的実証

単一スピンの電場による電氣的量子制御の研究は最終目標の一つであるが、今回、幾何位相を用いた新たな原理により、高周波電界を用いた核スピンの高速量子ゲート操作が実現できることを理論的に示すことに成功し、目標を達成した。

(II) NV 中心のスピン状態の電氣的検出の成功

これまで NV 中心のスピン状態は光により検出されてきた。一方で、電氣的な検出は応用上非常に重要で、最近、光照射中に電氣的検出を行った、光電導性の検出について報告がなされた。本プロジェクトでは電氣検出磁気共鳴法により、光励起による検出を必要としない暗状態での電氣的検出を目指した。今回、我々は応用上重要な、NV 中心の信号と考えられる暗状態での信号観測に成功した。単一スピン系でも本手法は適用でき、目標をほぼ達成したと考えている。

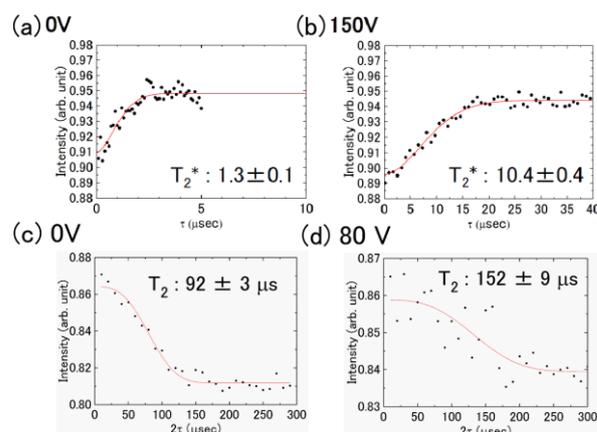


図 1、コヒーレンス時間 (T_2^* , T_2) の電場印可依存性。印可電場が (a) 0 V の時の T_2^* , (b) 150 V の時の T_2^* , (c) 0 V の時の T_2 , (d) 80 V の時の T_2 。

(III-1) ソリッドエマージェンレンズ作製

我々は FIB を用いて、1 マイクロメートル以下の分解能での加工を実現し、単一の NV 中心が存在する位置においてソリッドエマージェンレンズを作製する技術を習得

した。金蒸着により作製された線の目印をもとに、ソリッドエマージョンレンズを作製し、単一の NV 中心が存在する位置においてソリッドエマージョンレンズを作製できた。

(III-2)ダイヤモンド中のSiV中心におけるエレクトロルミネッセンスの観測に成功

ダイヤモンド中の発光中心の中では、これまでNV中心が注目されているが、光学特性の面ではSiV中心（シリコン-空孔複合欠陥中心）が注目されている。単一中心における発光強度の強さ、2光子干渉性（識別不可能性）の点で、NV中心よりも非常に優れ、量子情報素子に用いる単一光子源として注目される。応用の面からは電氣的な制御は重要で、本プロジェクトにおける阪大グループと産業技術総合研究所グループは、これまでNV中心において世界で初めて単一NV中心からのエレクトロルミネッセンスの観測に成功し、電流注入型の単一光子発生素子の実現に成功していた（Nature Photonics 2012）。一方で、SiVにおいては、その優れた光学特性にもかかわらず、エレクトロルミネッセンスの観測はまだなされていなかった。そこで今回その観測に挑戦し、結果として世界で初めてエレクトロルミネッセンスの観測に成功した。目標の電流注入型素子の効率化へ大きな前進と言える。

(III-3) NV⁻電荷状態の安定化に成功: NV⁻の EL 観測、及びその電流注入型素子を用いた電氣的制御に道を開く

NV 中心には保有する電子数に応じて異なる電荷状態がある。そのなかで負に帯電した NV⁻では光励起による電子スピンの初期化と読み取りが可能である。しかしNV⁻は光励起によって中性の NV⁰ などに变化する。NV⁰ ではスピンの初期化とスピンの読み取りができない。そのためスピンを用いる量子情報等への応用では、NV⁰ への変化を抑え、電荷状態を NV⁻ に安定化させることが課題であった。電荷状態安定化は、本研究の目標である電流注入型素子を用いたスピン状態の制御に関しても重要となる。その解決方法の一つとしてドナーによる NV 中心への電子供給が考えられ、ドーピングの容易さから窒素が候補に挙げられる。しかし窒素濃度を増加させる必要があり、その際単一 NV 中心の生成、観察と位置制御が困難になってしまう。本研究ではリンに着目し、n 型ダイヤモンド（リン濃度： $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ）中に単一 NV 中心を形成した。そしてレーザー光で単一 NV 中心を励起し、発光強度の変化から、光励起による電荷状態の変化を調べた。NV 中心の光励起で広く用いられる 532 nm 波長では、電荷状態の変化が速いため測定出来ない。そこで波長 593 nm、強度 1 μW の光を用いた。測定の結果、n 型ダイヤモンドでは NV⁰ への変化が見られず、常に NV⁻ を維持する NV 中心が確認された。対してノンドープダイヤモンドでは、NV⁻ と NV⁰ の間で電荷状態が変化し、発光強度の変化がみられた。ノンドープダイヤモンドでは全測定時間の 12% のみ NV⁻ になっている。以上の結果から、n 型ダイヤモンドでは光励起下において、NV⁰ への変化を抑制し、全測定時間の 99% 以上を NV⁻ にすることに成功したことが示された。これは NV⁻ の EL 観測、及びその電流注入型素子を用いたスピンの電氣的制御及び EL 強度の増大に資する成果と言える。

3. 今後の研究開発成果の展開及び波及効果創出への取り組み

試験運用がされつつある第一世代に続く、次世代の量子暗号ネットワークにおいては更なる長距離化と高速化が期待される。それには革新的技術を必要とする単一光子発生素子や量子ノードが必要である。本研究ではダイヤモンド

中の発光中心に注目し、それらの実用化に必要な基盤技術開発研究を行った。単一光子発生素子や量子ノード等の将来の実用化を見据えた際、要求される重要な技術要素として、室温動作できる点、電氣的動作ができる点、実効的な効率化が挙げられるが技術的な課題が多く、実現されていなかったが、本研究開発成果による基盤技術の発展は、次世代の量子暗号ネットワークの構築の実現へ大きく貢献したものと考えられる。特に、室温でのスピンの電氣的操作及びスピン状態の電氣的検出に関する基盤技術は、量子暗号ネットワークのみならず、センサ技術などの他の研究へ及ぼす波及効果やその成果による社会経済への波及効果も大きく、今後も取り組んでいくべき研究課題と考えている。

4. むすび

本研究課題で目標として掲げていた「(I) ダイヤモンド中の NV 中心における単一スピンの電場による電氣的量子制御と電氣的制御による量子メモリ時間の長時間化の実証」、「(II) ダイヤモンド中の NV 中心におけるスピンの電氣的検出」、「(III) 電氣的制御による単一光子発生の高効率化」に対し、一定の成果を上げることができた。今後の更なる発展に向けた研究に結びつく基盤研究成果と考えられる。

【誌上发表リスト】

- [1] Y. Doi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, H. Morishita, T. Tashima, S. Miwa, S. Yamasaki, J. Wrachtrup, Y. Suzuki, N. Mizuochi, "Deterministic electrical charge state initialization of single nitrogen-vacancy center in diamond", Physical Review X, 4, 011057 (2014). (発表年月日 2014 年 3 月 31 日)
- [2] T. Shimo-Oka, H. Kato, S. Yamasaki, S. Miwa, Y. Suzuki, N. Mizuochi, "Control of coherence among the spins of a single electron and the three nearest neighbor C-13 nuclei of a nitrogen-vacancy center in diamond", Applied Physics Letters, 106, 153103 (2015). (発表年月日 2015 年 4 月 13 日)
- [3] Y. Doi, T. Fukui, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, T. Tashima, H. Morishita, S. Miwa, F. Jelezko, Y. Suzuki, N. Mizuochi, "Pure negatively charged state of NV center in n-type diamond" Physical Review B, 93, 081203 (R), 2016. (Rapid communication) (発表年月日 2016 年 2 月 3 日)

【受賞リスト】

- [1] 水落憲和、平成 27 年度大阪大学総長奨励賞(研究部門)、2015 年 7 月 1 日
- [2] Yuki Doi (博士後期課程 2 年次学生), Gold Young Scholar Award at 25th International Conference on Diamond and Carbon Materials, "Deterministic charge state control of single nitrogen vacancy center in diamond".
- [3] 小林悟士、第 29 回ダイヤモンドシンポジウム「最優秀講演賞」、「ダイヤモンド NV 中心における電界によるスピンコヒーレンス時間の増大」、2016 年 5 月 17 日

【本研究開発課題を掲載したホームページ】

<http://mizuochilab.kuier.kyoto-u.ac.jp/>