

研 究 報 告 書

「IV 族元素を用いた固体量子光源エンジニアリング」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 岩崎 孝之

1. 研究のねらい

次世代の情報ネットワーク技術として光の量子性を利用した量子ネットワークの構築が推進されており、本研究はその構成要素として有望なダイヤモンド固体中の新しい量子光源について研究を実施する。量子ネットワークは、完全に安全な通信の実現など、これまでの古典ネットワークと異なる性質を有している。量子通信技術の確立には、安定した単一光子源や長距離伝送へ向けた量子中継など様々なデバイスが必要となる。その量子光源として、固体中の量子光源、特にダイヤモンド中のカラーセンターが注目されている。固体中の発光源の利用によって、将来的な量子光源デバイスの集積化や電氣的制御が期待できる。しかしながら、これまで最もよく研究されている窒素-空孔(NV)センターは、全発光強度の内、量子光源として利用できるゼロフォノン線(ZPL)の割合が 4%のみで発光強度が小さく、外部ノイズの影響で発光波長が不安定になるという問題があった。量子光-物質インターフェース応用に必要な優れた光学特性とスピン特性を両立する量子光源はいまだ見出されておらず、本研究はこの問題を解決するためにダイヤモンド中の新しい量子光源を創出することを目的とする。

ダイヤモンドは大きなバンドギャップ(5.5 eV)を有しており、そのギャップ中に多数の発光に寄与する不純物レベルを形成することができる。しかし、これまでに数百種類の発光構造が報告されているが、量子ネットワーク応用に必要な再現良く量子光源を形成できるのは数種類のみであった。量子光源として機能するシリコン-空孔(SiV)センターは高い ZPL の割合を有しているが、スピンコヒーレンス時間が 2～5 K において 1 μ s 以下に制限されている。これは、基底状態分裂幅が小さいために、準位間でのスピンフリップが原因となりスピン状態を保てないためである。したがって、本研究では大きな ZPL および優れたスピン特性が期待できるより重い IV 族元素を用いた新しい量子光源に着目し研究を推進する。新しいダイヤモンド量子光源の高品質形成手法を通し、量子光源の光学特性を明らかにする。さらに、量子光源のエネルギーレベルの観測から重い元素を用いた量子光源のスピン特性について研究を実施する。

2. 研究成果

(1)概要

本研究では、シリコンよりも重いIV族元素であるゲルマニウムおよびスズに着目することでダイヤモンド中の優れた量子光源系の研究を推進した。特に、スズ空孔(SnV)センターは本研究で発見した新しい量子光源である(論文成果1)。スズはシリコンおよびゲルマニウムと同じIV族元素であり、周期律表において下に位置する重い元素である。重い元素ほど大きなスピン軌道相互作用を有しているため、カラーセンターにおいても大きな基底状態分裂につながることが期待できる。

スズ原子をダイヤモンド中に導入し量子光源として機能させた例はこれまでになく、本研究で初めて行われたものである。スズはダイヤモンドを構成する炭素原子よりも圧倒的に大きいために、SnVセンターの創出にあたり、まず新しい量子光源形成方法を開発した。ダイヤモンド中のNVセンターやSiVセンターの形成では、イオン注入後に800-1000℃の高温アニールをすることで量子光源を形成することができる。しかしながら、重いスズ原子に対してはこの温度領域では不十分であることが判明し、本研究では2000℃以上での高温高圧アニール手法を用いることで高品質なSnV量子光源を創出することに成功した。

第一原理計算から、ダイヤモンド中に取り込まれたスズ原子は格子間位置に存在し、2つの空孔に挟まれた構造をしていることがわかった。この原子配置は外部電界ノイズの影響を受けにくく、安定した発光波長が期待できる。光学特性評価から、SnVセンターは室温において波長619nmに鋭いZPLをもって発光し、ZPLの割合が数十%に及ぶことがわかった。単一発光源として機能させることにも成功し、その発光強度が従来のカラーセンター(NV, SiV)よりも大きいことを確かめた。

冷却下での計測から、SnVセンターのZPLは4つに分裂し、基底状態分裂がSiV、GeVセンターよりも大きな約850GHzを有することがわかった。この基底状態分裂はSiVの48GHzよりも桁違いに大きいため、スピンコヒーレンス時間を制限するフォノンの影響を大幅に減少させることができる。それにより、2K程度で長いスピンコヒーレンス時間の達成が期待できる。SiVで不可欠な希釈冷凍機を必要とせず、量子ネットワークへの利用が期待でき、この発見は優れた光学特性および長いスピンコヒーレンス時間を有する光-物質量子インターフェースの確立へのブレイクスルーとなる可能性を有している。

(2)詳細

高品質形成手法を用いたダイヤモンド中の新規SnV量子光源の創出

図1(a)に示すように、スズはダイヤモンドを構成する炭素よりも圧倒的に大きいために、ダイヤモンド中に安定して内包され、カラーセンターを形成することができるかが問題である。したがって、新しいSnVセンターの創出を目指し、本研究ではまずSnVセンターの高品質化を目的として研究を実施した。NV, SiV, GeVセンターはイオン注入後に800-1000℃の高温アニールをすることにより発光センターを形成することができる。しかしながら、SnVセンターはこの温度領域でのアニールでは発光線が明確に現れないことがわかった。よって、本研究ではさらに高い温度(最高2100℃)での熱処理を実施した。ただし、常圧下ではグラファイトが炭素の安定相であるため、ダイヤモンドが安定となる高圧下での高温アニールを用いた。図1(b)は

2100°C、7.7 GPa でアニールしたアンサンブル SnV センターからの室温発光スペクトルである（単一光子放出する単一状態に対して、ひとつの計測スポットに多数のカラーセンターがある状態をアンサンブルと呼ぶ）。SnV センターの ZPL として波長 619 nm に鋭いピークが観測された。熱処理温度を高めるほど ZPL の半値幅が小さくなっていった。これは、重いスズイオンの注入によって形成されたダイヤモンド中の結晶欠陥の回復およびスズ原子の安定化位置へのシフトが起こったためだと考えられる。したがって、高品質な SnV センターを形成するためにはこれまで使用されてきた温度以上でのアニールが有効であることを見出した。図 1(c)は第一原理計算により得られた SnV センターの原子構造モデルである。大きなスズ原子は炭素の間である格子間位置に存在し、両隣の炭素が空孔になっている構造を取っている。これは反転対称性を有する D_{3d} 対称性であり、SiV、GeV センターと同様の構造である。したがって、SnV センターは外部ノイズに強い安定した発光線を有する量子光源であることが期待できる。

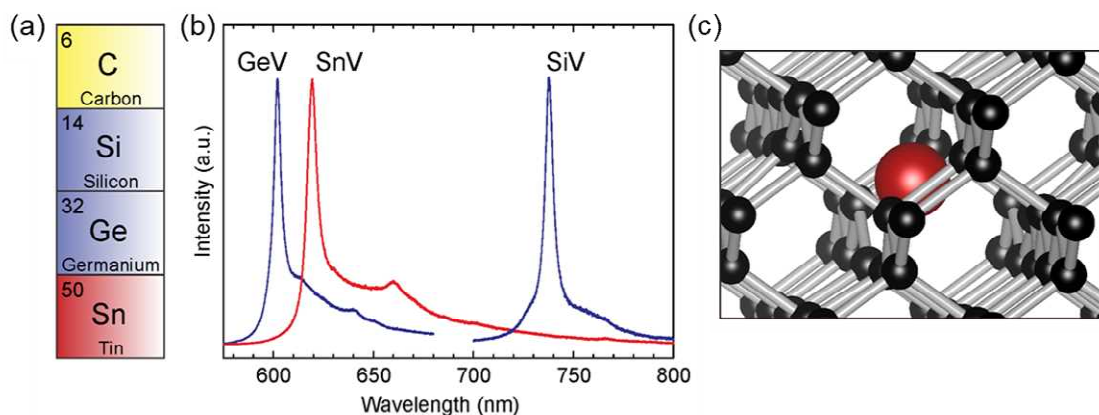


図 1 ダイヤモンド中の SnV センター。(a) IV 族元素の周期表。(b) 高温高圧加熱処理後のアンサンブル SnV センターからの室温発光スペクトル。(c) SnV センターの原子レベル構造。赤丸と黒丸はそれぞれスズ原子と炭素原子。

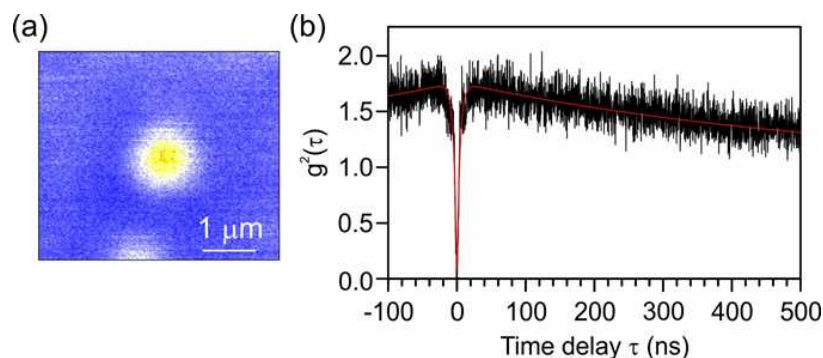


図 2 単一 SnV センターの形成。(a) 共焦点顕微鏡像。(b) 2 次自己相関関数 $g^2(\tau)$ 。

次に、単一光子放出源として機能する単一 SnV 量子光源の形成を実施した。単一状態は、原子レベルでただ一つの SnV センターからなるものである。図 2(a)は単一 SnV センターの共焦点顕微鏡像である。Hanbury Brown–Twiss (HBT) 干渉により 2 次自己相関関数 $g^2(\tau)$ を計測した結果を図 2(b)に示す。検出光をビームスプリッターで分割し、2つの光検出器を用いて計測している。2つの検出器に入射する光子のタイミング（遅延時間）を計測することで単一

状態を確認することができる。図 2(b)に示すように、遅延時間 0 ns において $g^2(\tau)$ が 0.5 以下となっており、これは図 2(a)の SnV センターが単一状態であることの証明である。 $g^2(\tau)$ の 3 準位モデルへのフィッティングから SnV センターの励起状態寿命として 5 ns が得られた。重要なことに、SnV センターの ZPL の飽和発光強度は 280 kcps であり、SiV センターに対して 5 倍高いことがわかった。また、異なる単一 SnV センターの発光励起分光の測定において線幅 20 MHz が得られ、これはフーリエ限界線幅に対応している。よって、本研究で開発した高温高压アニールによる活性化手法により、高品質な量子光源を形成できることが明らかとなった。

SnV センターの微細構造の決定と期待されるスピン特性

SnV センターの基底状態分裂を観察するために、低温状態において PL スペクトルによる微細構造計測を行った。室温ではひとつに見えるスペクトルが、温度を下げることによって 4 本に分裂することを確認した。これは、それぞれ 2 つに分裂した基底状態と励起状態間での遷移に対応する(図 3(a))。ピークの分裂から基底状態分裂を求めることができ、SnV センターは 850 GHz の分裂幅を有していることがわかった。この値は SiV センターおよび GeV センターの基底状態分裂よりも 17 倍および 5 倍大きな値である。これは、大きな元素ほどスピン-軌道相互作用が大きくなるために分裂幅も大きくなるため、重いスズ元素を用いた効果である(図 3(b))。

得られた基底状態分裂幅から SnV に期待されるスピン特性を検討した。図 3(c)はフォノンによる電子スピンの遷移レート(γ^+)を基底状態分裂および温度の関数としてマッピングしたものである。遷移レートが小さいほど長いスピンコヒーレンス時間が期待できる。従来の SiV, GeV に関する研究における数 K の温度領域での測定ではスピンコヒーレンス時間は 1 μ s 以下に留まっていた。SiV に関して希釈冷凍機を用いて温度を 400 mK 以下にすることで 10 ms を超える長いスピンコヒーレンス時間が達成されている(D. D. Sukachev, PRL 119, 223602, 2017)。これに対し、基底状態分裂が大きい SnV センターは 2 K で同じ遷移レート、つまり長いスピンコヒーレンス時間が期待できる領域に入ることがわかる。

以上より、SnV センターはこれまでの量子光源が抱えていた優れた光学特性とスピン特性の両立という問題を解決できる可能性を有しており、将来の量子ネットワークにおける光-物質量子インターフェースへの応用が期待できる。

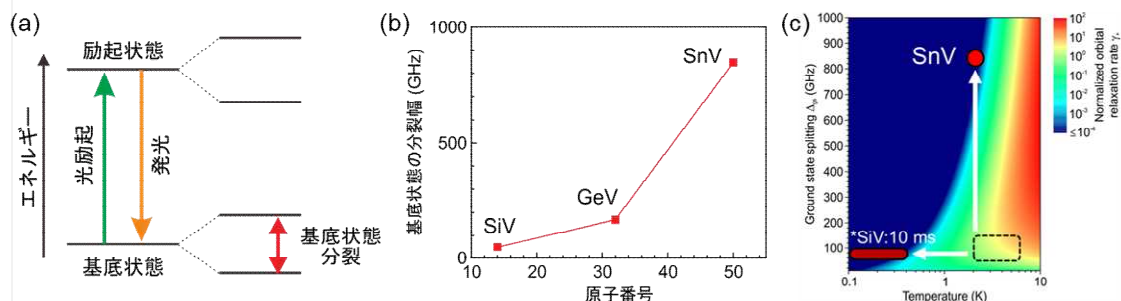


図 3 SnV センターのエネルギーレベルおよびスピン特性。(a) エネルギーレベル。基底状態および励起状態はスピン-軌道相互作用により分裂する。(b) 基底状態分裂幅の比較。(c) 期待されるスピン特性。[*SiV] D. D. Sukachev, PRL 119, 223602, 2017.

3. 今後の展開

本研究では、新しい量子光源であるダイヤモンド中の SnV センターを発見し、優れた光学特性およびスピン特性を両立できる可能性を示した。量子ネットワークへ応用するためには、長スピンコヒーレンス時間の実証、共振器やデバイスによる制御など精密な評価および制御を実施する必要がある。それらを通して単一光子発光源、光-物質インターフェースなど様々な量子光学素子としての応用展開が期待できる。

4. 自己評価

本研究では、究極の量子光源となる可能性を有するダイヤモンド中の新規 SnV センターを発見した。基礎的な光学特性を明らかにし、さらに長いスピンコヒーレンス時間を有する可能性を理論的考察から示した。優れた光学特性およびスピン特性を両立し得る量子光源の発見であり、将来的な長距離量子ネットワーク実現へ向けた大きな成果である。発表した論文(論文成果 1)はすでに被引用回数が 75 回(Google Scholar より)に達しており、世界的にも注目を集めている。SnV 量子光源の研究を通して国内外の多くの研究者との連携が生まれ、本研究で得られた成果をもとに、量子技術領域において今後さらに世界的に発展していくことが期待できる。

参画領域である「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」は研究者自ら設定した極限を追い求めることを期待されている領域である。本研究は、新しい量子光源形成技術を通して究極の量子光源となり得る SnV 量子光源の発見を行い、さらにその特性を限界まで高めることを目標に研究を推進した。完璧な高品質形成手法の確立にはさらなる研究が必要であるが、基盤技術となる新しい量子光源の形成手法の開発など、量子光源の極限性能を追求する研究を推進することができた。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

1.	T. Iwasaki, Y. Miyamoto, T. Taniguchi, P. Siyushev, M. H. Metsch, F. Jelezko, M. Hatano, Tin-Vacancy Quantum Emitters in Diamond, Phys. Rev. Lett. 2017, 119, 253601.
2.	S. Haeussler, G. Thiering, A. Dietrich, N. Waasem, T. Teraji, J. Isoya, T. Iwasaki, M. Hatano, F. Jelezko, A. Gali, A. Kubanek, Photoluminescence excitation spectroscopy of SiV ⁻ and GeV ⁻ color center in diamond, New. J. Phys. 2017, 19, 063036.
3.	J. Yaita, T. Suto, M. Natal, S. E. Sadow, M. Hatano, T. Iwasaki, In situ bias current monitoring of nucleation for epitaxial diamonds on 3C-SiC/Si substrates, Diam. Rel. Mater. 2018, 88, 158-162.
4.	E. A. Ekimov, M. V. Kondrin, V. S. Krivobok, A. A. Khomich, I. I. Vlasov, R. A. Khmelnitskiy, T. Iwasaki, M. Hatano, Effect of Si, Ge and Sn dopant elements on structure and photoluminescence of nano- and microdiamonds synthesized from organic compounds, Diam. Rel. Mater. 2019, 93, 75-83.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 【受賞】文部科学大臣表彰若手科学者賞、「ワイドバンドギャップ半導体中の固体量子光源に関する研究」 2019 年 4 月 17 日.
2. 【プレスリリース】“高温で安定化する新しいダイヤモンド量子発光体の作製に成功 ~ 量子ネットワークへの応用に期待~” 2017 年 12 月 26 日.
3. 【招待講演】 T. Iwasaki, “Diamond Spin Defects for Quantum Technologies” Frontiers in Quantum Materials & Devices Workshop, Tokyo, 27th May, 2019.
4. 【招待講演】 岩崎孝之, “ダイヤモンドの IV 族-空孔色中心の新展開” 一般社団法人ニューダイヤモンドフォーラム 平成 30 年度第 1 回研究会、東京、2018 年 6 月 27 日.
5. 【招待講演】 T. Iwasaki, “Quantum technologies using diamond color centers” Impurity Spins for Quantum Information and Technologies 2017, Okinawa, Japan, September 13th, 2017.