

令和元年 6 月 13 日
国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構
国立大学法人 群馬大学
国立大学法人 筑波大学

ダイヤモンド中に室温で動作する NV センターの 3 量子ビット化を実現 —有機化合物イオンビームにより量子コンピュータに不可欠な多量子ビット形成技術を開発—

【発表のポイント】

- 室温で使える超並列計算可能な量子コンピュータや超高感度な量子センサの実現には、室温で動作する NV センター同士の相互作用を用いる多量子ビットが不可欠です。
- NV センター同士の相互作用を用いる多量子ビットは、10 年近く 2 量子ビットに留まっていたが、3 量子ビットを世界で初めて実現しました。
- 長年の課題となっていた、ダイヤモンド表面の 1 点に 3 個以上の窒素を注入するために、1 つの分子に複数の窒素を含む有機化合物のイオンビームを開発することで、NV センターの多量子ビット化のブレークスルーに成功しました。

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構（理事長 平野俊夫、以下「量研」）量子ビーム科学部門高崎量子応用研究所の春山盛善大学院課程研究員（群馬大学大学院理工学府博士後期課程学生）（研究当時）・小野田忍主幹研究員・大島武プロジェクトリーダーらは、国立大学法人群馬大学（学長 平塚浩士）大学院理工学府の花泉修教授・加田渉助教ら、早稲田大学（総長 田中愛治）理工学術院の川原田洋教授、谷井孝至教授、国立大学法人筑波大学（学長 永田恭介）磯谷順一名誉教授、国立研究開発法人物質・材料研究機構（理事長 橋本和仁）機能性材料研究拠点の寺地徳之主席研究員らとの共同研究により、室温で動作する量子ビット¹⁾として注目されている窒素・空孔（NV）センター²⁾を集積し、世界で初めて NV センターの電子スピン³⁾のみから成る 3 量子ビット化に成功しました。

量子コンピュータや量子センサ等の量子技術において重要な開発項目の一つに量子ビットがあります。ダイヤモンド中の NV センターは代表的な量子ビットの一つです。NV センターの数を増やせば、室温で使える超並列計算可能な量子コンピュータや超高感度な量子センサの実現に近づきます。今までに 2 つの NV センターによる 2 量子ビットが報告されていました。しかし、10 年弱にも渡り NV センターのみによる 3 量子ビットへの進展がなく、新しい多量子ビットの形成技術が求められていました。全く同じ場所に 3 つ以上の窒素を注入できれば 3 量子ビット以上を実現できます。これを達成するため、複数の窒素を含む有機化合物イオンビーム注入法を開発しました。これまでは窒素原子や窒素分子を注入する技術でした。今回、窒素だけにこだわらず、窒素を含む有機化合物イオンに着目した点が 3 量子ビットへの進展を生みました。本研究成果は、さらなる多量子ビット化の可能性を秘めており、室温で使える超並列計算可能な量子コンピュータや量子センサの高感度化などの量子技術の進展に貢献することが期待されます。本研究成果は、Nature Communications 誌のオンライン版に 2019 年 6 月 13 日（木）18:00 に掲載されます。

補足説明資料

1 研究の背景と目的

量子コンピュータ、量子通信、量子センサ等の量子技術は、重ね合わせや量子もつれ⁴⁾ (エンタングルメント) など、私達の直感では理解できないような量子力学特有の現象を用います。通常のコンピュータで用いられるビットが 0 か 1 のどちらの状態しかとれないのに対して、量子ビットは $|0\rangle$ と $|1\rangle$ の任意の重ね合わせ状態 $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ ($|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$, α, β は複素数) をとることができます。量子コンピュータの特殊な計算能力は量子もつれの賜物と言われています。量子コンピュータや量子通信の中継器に不可欠な量子エラー訂正⁵⁾ にも量子もつれが不可欠です。量子もつれは、2 個以上の量子ビットの重ね合わせ状態のうちの特別な場合です。量子もつれの生成には量子ビット間の相互作用が必要になります。

ダイヤモンド中の NV センターは室温動作の量子ビットとして注目されてきました。NV センターを短い距離で並べた配列は多量子ビット化の基本的な方式の一つです。この実現には、位置を制御して NV センターを形成することが求められます。窒素イオン注入は、位置を制御して NV センターを形成する代表的な方法として知られています。現在までに 2 つの NV センターを並べた 2 量子ビット化が報告されているのみです。例えば、2010 年に Neumann らが 18 MeV の窒素原子イオン注入を用いて 2 つの NV センターによる 2 量子ビット化を初めて報告しました[1]。また、2013 年に Dolde らは 1MeV の窒素原子イオンを 20nm の穴の開いたマイカ越しに注入することで、2 つの NV センターによる 2 量子ビット化を報告しました[2]。これらの成果は複数の窒素原子イオンを狭い領域に注入することで、近接した NV-NV を形成することに成功していますが、成功率は極めて低いという問題がありました。その原因の一つは、イオン注入法では避けて通れないストラッグリング⁶⁾ と呼ばれるランダムな現象にあります。例えば、窒素原子イオンのイオン注入エネルギーが 10MeV であれば、注入された窒素原子イオンは、ダイヤモンド単結晶中で約 1.2 マイクロメートルの範囲にランダムに分布します。このことは、複数の窒素原子イオンを狭い領域に注入することに加えて、ストラッグリングを抑えないと近接する NV-NV を形成することが困難であることを意味しています。以上の理由から、近年ではストラッグリングが小さい keV 程度の低エネルギーのイオン注入が利用されるようになりました。2016 年に Jakobi らは、30keV の窒素原子を 50nm の穴の開いた PMMA レジストマスク越しに注入し、2 つの NV センターによる 2 量子ビット化を成功させました[3]。この方法をナノホール注入法と呼びます。しかし、窒素「原子」イオン注入では 2 量子ビット化に留まっており、3 量子ビット化は達成することができずにいました。一方、窒素「原子」イオン注入とは別に低エネルギー (20keV) の窒素「分子」イオン注入による 2 量子ビット化が 2013 年に Yamamoto らから報告されました[4]。窒素分子はダイヤモンドに入射してから 2 つの窒素原子に分かれて進み、ストラッグリングによってランダムに分布します。窒素分子の場合、イオンがダイヤモンド表面に入射した時には全く同一箇所ですので、ナノホール注入法よりも近接した NV-NV を作りやすい利点があります。しかし、窒素「分子」イオン注入法を拡張した窒素「クラスター」イオンによる 3 量子ビット化は、窒素のみから成るクラスターの個数や電荷を制御してビームを形成することが困難であることから実現されてきませんでした。

2 研究の手法と成果

今回、研究チームは、NV センターによる多量ビット化を進めるために窒素を複数含むイオンビーム開発に取り組みました。注目した物質は「アデニン」と呼ばれる核酸の主要な塩基として知られる有機化合物です。アデニンは、炭素 (C) を 5 個、窒素 (N) を 5 個、水素 (H) を 5 個含んでいます。アデニンパウダーを圧縮固化したものをイオン源の原料として用いました。原料

にセシウムイオンを衝突させ、その衝撃で原料から放出した様々な負イオン（分子）を電場でイオン源から引き出しました。通常、こうしたイオンの生成法は、セシウムイオンとの衝突で分子が分解されてしまうため、構成原子数が3個以上の分子イオンの生成には用いません。今回の論文では、量研高崎が長年取り組んできた様々な分子・クラスターイオンの生成・加速に関する研究の知識と経験を活かし、アデニンをなるべく分解させずに4個以上の窒素原子を含む有機化合物イオンとしてイオン源から引き出す条件を見出すことに成功しました。さらに、セシウムイオンとの衝突を用いないイオン源も新たに開発し、より窒素数の多い有機化合物イオンビーム形成に取り組んでいます。図1に実験の概略図を示します。磁場型質量分析器を用いて、分子の種類を調べました。アデニンから分解したCやNに混じって、有機化合物イオンの存在が確認できました。本研究では、5個のC、4個のN、1~5個のHを含む有機化合物イオン ($C_5N_4H_n$) を使用しました。

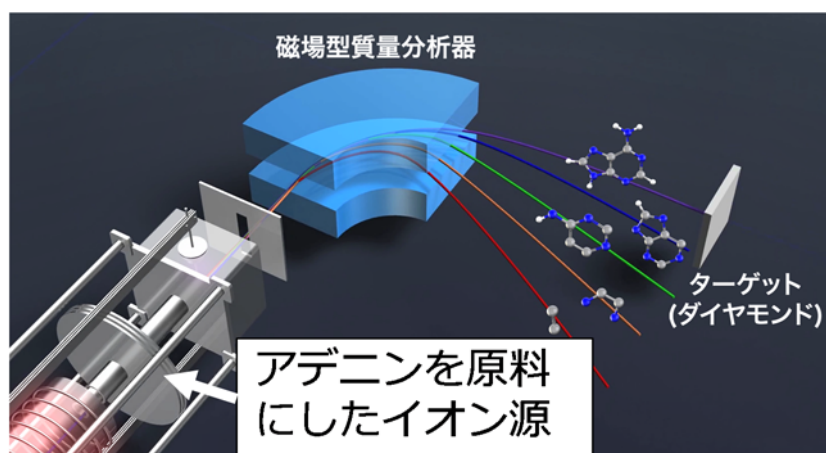


図1 イオン注入実験の模式図

アデニンをイオン源として有機化合物イオンを65keVに加速します。磁場型質量分析器により $C_5N_4H_n$ イオンのみをダイヤモンドに注入します。

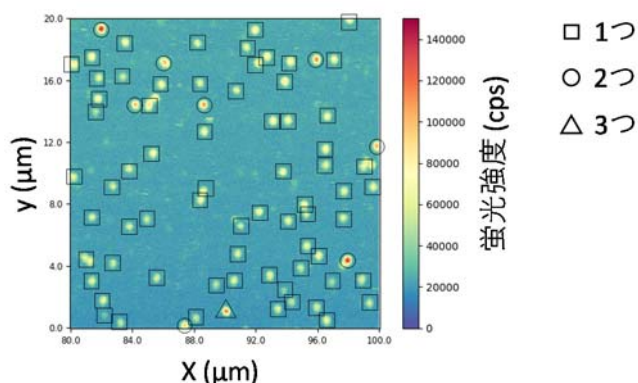


図2 共焦点顕微鏡像

□はスポットに1つのNVセンター、○はスポットに2つのNVセンター、△はスポットに3つのNVセンターが含まれていることを意味します。スポット中のNVセンターの数はODMR法にて明らかにしました。

65keV に加速した $C_5N_4H_n$ イオンを $10^8/cm^2$ の面密度でダイヤモンドに注入し、1000°C で 2 時間の熱処理を行いました。熱処理後に共焦点レーザー走査型蛍光顕微鏡 (Confocal Microscopy: CFM) を用いて蛍光像を観察しました (図 2)。各スポットが NV センターを示しています。□ はスポットに 1 つの NV センター、○ はスポットに 2 つの NV センター、△ はスポットに 3 つの NV センターが含まれていることを意味します。○、△、□ で示したスポット中の NV センターの数は光検出磁気共鳴 (Optically Detected Magnetic Resonance: ODMR) 法⁷⁾にて決定しました。蛍光スポットは光の回折限界で決められた大きさ (凡そ $300nm\phi$) です。NV-NV-NV の 3 量子ビットであるためには、3 組の NV ペアー (3 つの NV センターをそれぞれ NV_A 、 NV_B 、 NV_C と名付た時に、 NV_A-NV_C 、 NV_C-NV_B 、 NV_A-NV_B の 3 組の NV ペアーができます。) の内、少なくとも 2 つの NV ペアーで NV センター同士の距離が数~十数 nm 以内でなければなりません。研究チームは、3 つの NV センター間の相互作用の強さと距離を電子電子二重共鳴 (Double Electron Electron Resonance: DEER) 法⁸⁾で調べました (図 3)。

図 3(a)にあるように、DEER 法では、1 つの NV センターをセンサとして利用し、相手の NV センターからの磁場を測定することにより、2 つの NV センター間の相互作用の強さを測定することができます。図 3(b)では NV_A をセンサとして NV_A-NV_C 間の相互作用の強さを測定した結果です。同様に、図 3(c)では NV_C-NV_B 、図 3(d)では NV_A-NV_B 間の相互作用の強さを測定した結果を示しています。振動数が大きいほど相互作用が強く、 NV_A-NV_C 、 NV_C-NV_B 、 NV_A-NV_B 間の相互作用の強さは 53.0kHz、24.1kHz、4.6kHz であることが観測されました。相互作用の強さから NV センター間の距離を求めることができます。計算の結果、 NV_A-NV_C 、 NV_C-NV_B 、 NV_A-NV_B 間の距離 (中央値) は 8.8nm、11.5nm、19.9nm でした。以上のように、NV センター同士は凡そ 20nm 以下の範囲に形成され、量子もつれ状態を作り出し得る条件を満たしていることが分かりました。

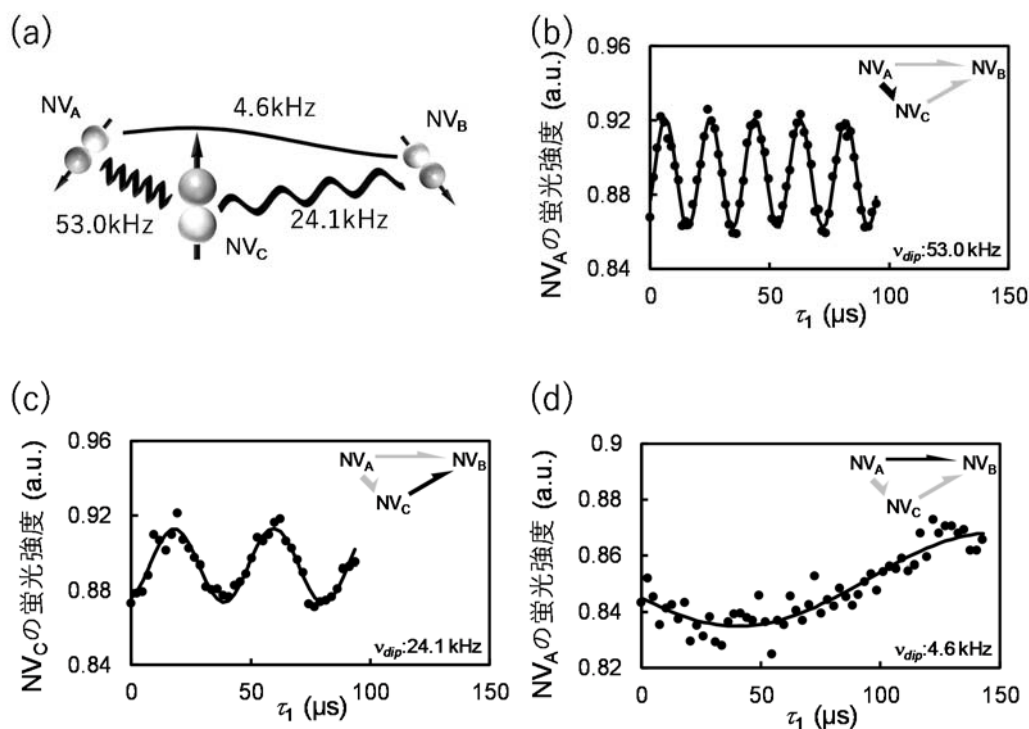


図 3 電子電子二重共鳴 (DEER) スペクトル

NV_A-NV_C 、 NV_C-NV_B 、 NV_A-NV_B 間相互作用の強さはそれぞれ、53.0kHz、24.1kHz、4.6kHz でした。

3 今後の展開

本研究にて、従来手法では達成することのできなかった NV センターの電子スピンを並べた 3 量子ビット化を達成しました。量子情報処理の進展のためには 3 量子ビット・量子レジスタ⁹⁾に留まらず、更なる多量子ビット化が求められます。今回開発したのは 4 つの窒素を含む有機化合物イオンビームでしたが、更に多くの窒素を含むイオンビームを開発することで、更なる多量子ビット化を目指します。

NV センターを用いる量子レジスタの多量子ビット化には、NV センターを並べる方式に加えて、単一の NV センターと結合した近傍の複数の核スピンをを用いるハイブリッド型の方式があります。核スピン同士の直接的な相互作用は非常に弱いのですが、電子スピんと核スピんととの相互作用を利用して核スピンの初期化・読み出し・核スピン 2 量子ビットゲートの高速化ができます。Waldherr らは単一の NV センターの窒素核スピンと 2 個の ¹³C 核スピンと電子スピんととのハイブリッド量子レジスタを用いて核スピン 3 量子ビットの量子もつれの生成、量子エラー訂正アルゴリズムの実証を報告しています[5]。本研究の NV センターの多量子ビット化技術を用いれば、ハイブリッド量子レジスタの規模拡大に寄与できますし、量子センサの高感度化にもつながります。さらに、光子を用いて量子レジスタを結合する拡張方式と本研究の NV センターの多量子ビット化技術を融合させれば、将来の量子ネットワークのノードとしての役割が期待されます。

本成果は、JSPS 科研費基盤 (B) 17H03526 (研究代表者：小野田忍)、基盤 (S) 26220903 (研究代表者：川原田洋)、基盤 (B) 15H03980 (研究代表者：寺地徳之) などの援助により得られました。また、「ダイヤモンド単結晶およびその製造方法」の特許を出願しました (特願特願 2018-155987)。

4 用語解説

1) 量子ビット

一般のコンピュータで用いられる古典的なビットは、「0 (電圧が低い状態)」か「1 (電圧の高い状態)」かの 2 つの状態のどちらかの情報を保持しています。一方、量子ビットは、 $|0\rangle$ と $|1\rangle$ に加えて、 $|0\rangle$ と $|1\rangle$ の任意の重ね合わせ状態 $\alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$ ($|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$, α, β は複素数)をとることができます。この重ね合わせ状態を測定すると、 $|\alpha|^2$ の確率で 0、 $|\beta|^2$ の確率で 1 の測定結果が得られます。

2) NV センター

ダイヤモンド中の NV センターは、隣接する 2 個の炭素原子を窒素と原子空孔のペアが置き換えた構造で、電荷 -1、電子スピン $S=1$ を持ちます。共焦点蛍光顕微鏡を用いれば、単一分子に相当する単一の欠陥を室温で検出でき、さらに光検出磁気共鳴を組み合わせて単一電子スピンの電子スピン共鳴スペクトルを室温で観測できます。単一 NV センターの単一電子スピンは、室温で、光による初期化、光によるスピンを読み出し、マイクロ波パルスによるコヒーレント操作ができ、長いコヒーレンス時間をもつなど、「室温量子スピン」と呼ばれるのにふさわしい特性を持っています。

3) 電子スピン

電子はスピン ($S=1/2$) という特性 (角運動量) に由来する磁気モーメント (ミクロな磁石) が、磁場に対して上向き ($M_s = -1/2$)、下向き ($M_s = +1/2$) の 2 つの異なるエネルギー状態をとります。スピン副準位間の遷移やスピン操作に対する応答を観測するのが電子スピン共鳴です。

この2準位系は量子ビットとして用いることができます。

4) 量子もつれ

量子もつれは複数の粒子の重ね合わせ状態の特別の場合であり、量子力学的な相関をもつことから、量子コンピューティングや量子テレポーテーションなどにおいて中核的な役割を担います。2つの粒子A, Bの2量子ビット・量子もつれ状態のひとつである ($|0\rangle_A|0\rangle_B + |1\rangle_A|1\rangle_B$) / $\sqrt{2}$ を例にすると、一方の粒子を測定して測定結果1が得られれば、他方は1と決まってしまう。一方の粒子を測定して0が得られれば、他方は測定しなくても0と確定します。一方の量子ビットの値は測定して初めて確定しますが、その測定をした瞬間に、他方の値も確定し、この性質は2つの粒子がどんなに離れていても成り立ちます (量子非局所性といいます)。

5) 量子エラー訂正

量子もつれという量子力学特有の現象を利用し、量子ビットの中身を知ることなしに、エラーに関する情報を訂正する手法のことです。

6) ストラッグリング

イオンが物質中に入射すると、イオンはランダムな衝突を繰り返してエネルギーを失っていき、最終的に物質中で停止します。最終的な停止位置がまちまちになるという「停止位置の揺らぎ (ストラッグリング)」を持つことが知られています。

7) 光検出磁気共鳴 (ODMR) 法

電子スピン共鳴法では、2つのスピン副準位のエネルギー差に相当する周波数 (共鳴周波数) のマイクロ波 (連続波またはパルス) を加えて、2つの準位の間の変移やスピン操作に対する応答をマイクロ波領域で検出します。NV センターに緑 (532nm) レーザーを照射すると赤い蛍光を発します。スピン副準位によって蛍光強度が異なるので、マイクロ波によって引き起こされる電子スピン共鳴シグナルを蛍光強度変化として検出できることから、高感度が得られます。

8) 電子電子二重共鳴 (DEER) 法

NV センターは結晶中の向きによって共鳴周波数が異なるので、ペアを構成する2つのNV センター (NV_A , NV_B) を個別に操作する二重共鳴法を用いて、 NV_A , NV_B の距離を求めることができます。 NV_A をスピン操作しスピンエコー生成の過程の間に、 NV_B の電子スピンの向きを変えるパルスを加え、その時間 (図3の τ_1) を変化させると、 NV_A のエコー強度の周期的な変動が現れ、その周波数から相互作用の強さが求められます。 NV_A をセンサとして NV_B からの磁場を検出していることになりませんが、 NV_A のコヒーレンスを用いることにより、線幅に隠れてしまうような弱い相互作用も引き出すことができます。

9) 量子レジスタ

複数の量子ビットの配列からなり、一連のゲート操作によって量子アルゴリズムを実行できるものを量子レジスタといいます。少数量子ビットの量子レジスタは量子エラー訂正などの実験的実証として、量子コンピューティング開発へのステップとなることに加えて、量子センシングや量子中継器に活用することができます。NV センターの量子レジスタで

は、初期化や一連のゲート操作は、外部から加えるレーザーパルス、マイクロ波パルス、ラジオ波パルスで構成することができます。

5 論文について

Triple nitrogen-vacancy centre fabrication by $C_5N_4H_n$ ion implantation

Moriyoshi Haruyama^{1,2}, Shinobu Onoda^{2,3}, Taisei Higuchi^{1,2}, Wataru Kada¹, Atsuya Chiba², Yoshimi Hirano², Tokuyuki Teraji⁴, Ryuji Igarashi^{3,5}, Sora Kawai⁶, Hiroshi Kawarada⁶, Yu Ishii^{2,6}, Ryosuke Fukuda^{2,6}, Takashi Tanii⁶, Junichi Isoya⁷, Takeshi Ohshima^{2,3}, Osamu Hanaizumi¹

1 Graduate School of Science and Technology Gunma University 1-5-1 Tenjin, Kiryu Gunma 376-8515 Japan

2 Takasaki Advanced Radiation Research Institute National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology 1233 Watanuki, Takasaki Gunma 370-1292 Japan

3 Institute for Quantum Life Science National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology 4-9-1 Anagawa, Inage-ku Chiba Chiba 263-8555 Japan

4 National Institute for Materials Science 1-1 Namiki Tsukuba, Ibaraki 305-0044 Japan

5 National Institute of Radiological Sciences National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology 4-9-1 Anagawa, Inage-ku Chiba Chiba 263-8555 Japan

6 Faculty of Science and Engineering Waseda University 3-4-1 Ohkubo, Shinjuku Tokyo 169-8555 Japan

7 Faculty of Pure and Applied Sciences University of Tsukuba 1-1-1 Tennodai, Tsukuba Ibaraki 305-8573 Japan

6 参考論文

- [1] P. Neumann et al., “Quantum register based on coupled electron spins in a room-temperature solid,” *Nat. Phys.*, 6, 249 (2010).
- [2] F. Dolde et al., “Room-temperature entanglement between single defect spins in diamond,” *Nat. Phys.*, 9, 139 (2013).
- [3] I. Jakobi et al., “Efficient creation of dipolar coupled nitrogen-vacancy spin qubits in diamond,” *J. Phys.*, 752, 012001 (2016).
- [4] T. Yamamoto et al., “Strongly coupled diamond spin qubits by molecular nitrogen implantation,” *Phys. Rev. B*, 88, 201201 (2013).
- [5] G. Waldherr et al., “Quantum error correction in a solid-state hybrid spin register,” *Nature*, 506, 7487, 204 (2014).