



平成 26 年 8 月 22 日

報道関係者各位

国立大学法人 筑波大学
独立行政法人 物質・材料研究機構
独立行政法人 科学技術振興機構

同一の光子^{*1}を放出する単一光子源^{*2}を固体中に多数作製することに成功
～ダイヤモンドの極限成長技術により量子情報処理のブレークスルーを実現～

研究成果のポイント

1. ダイヤモンド化学気相成長(CVD)の歴史の初期から知られていたカラーセンターであるSiV-センター^{*3}を、高純度・高結晶性を極めたダイヤモンド中に、極微量の濃度(素原子 1 千億～1 兆個に 1 個)に制御して作製することに成功
2. 結晶内の不均一性によるばらつきが極めて少ない固有の線幅・周波数をもち、しかも安定に持続して発光する単一光子源を作製
3. 異なる位置の単一光子源から放出された 2 光子において、その発光スペクトル重なりが最大 91%と大きな値を実現。固体中の複数の位置から識別できない光子を発生する技術は、量子情報処理のブレークスルーをもたらす

国立大学法人筑波大学(以下「筑波大学」という)磯谷順一名誉教授(筑波大学知的コミュニティ基盤研究センター・前主幹研究員)、独立行政法人物質・材料研究機構(以下「NIMS」という)光・電子材料ユニット寺地徳之主幹研究員らは、ダイヤモンド中のカラーセンターの一つであるSiV-センターを高純度・高結晶性ダイヤモンド薄膜成長時に、極微量の濃度に制御して導入し、単一光子源として作製することに世界で初めて成功しました。

このダイヤモンド薄膜の極限成長技術によって、結晶内に明るく安定な単一光子源を、結晶中の離れた位置に多数作製することに成功しました。さらに、結晶中の離れた位置に作製された単一光子源からは、2光子間で最大91%の大きな発光スペクトル重なりを実現しました。これらの結果は、量子干渉を用いる量子光学、量子コンピューティング、量子情報ネットワークといった応用へ、固体中の単一光子源を用いるための重要な一歩として期待されます。

本研究はウルム大学(ドイツ)Fedor Jelezko 教授との共同研究であり、科学技術振興機構(JST)国際科学技術共同研究推進事業(戦略的国際共同研究プログラム)日独共同研究(ナノエレクトロニクス)「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」の一環として行われました。^{*4}

本研究成果は 2014 年 8 月 22 日付「Nature Communications」(日本時間 22 日午後 6 時)で公開される予定です。

研究の背景

波長の決まった光子を一度に1個のみ発生する単一光子源は、量子暗号通信・量子情報処理に欠かせない基本デバイスです。単一の原子・分子をレーザーで励起すると光子を放出しますが、再び励起して次の光子を放出するまでには時間がかかります。つまり同時に2個の光子を発生させることはできません。したがって単一の原子・分子を取り出せれば、単一光子源になります。実用的な単一光子源であるためには、原子・分子を固体中に閉じ込めた形の固体素子が望まれます。しかし、必要なときにいつでも光子を発生させるために、励起・放出を繰り返して1秒間に百万個以上の光子を放出できるだけの明るさを持ち、しかも安定という単一光子源はきわめて限られます。たとえば、有機分子を用いた単一光子源は安定性に問題があります。半導体結晶中の人工原子と言える量子ドットの単一光子源にはプリンキング^{*5}の問題があります。

ダイヤモンド中のカラーセンターは、光安定性において優れた単一光子源として期待されています。量子コンピューティングをはじめとする量子情報処理では、離れた場所の固体量子ビット(情報の最小単位)間でエンタングルメント^{*6}を生成する上で、単一光子源が一つの候補です。この場合に、離れた単一光子源から放出される光子が、識別できない光子であることが必要になります。しかし固体の単一光子源においては、周りの環境が少しずつ異なるため、離れた位置の単一光子源のどちらからやってきたかを識別できない光子を発生させるのは至難のことでした。更に、応用上の観点からは、明るく、光安定性に優れているだけでなく、単一光子源の発光波長を長波長化する事が求められていました。

本研究では、ダイヤモンド薄膜のCVD合成において高純度化と高結晶性化とを極めることに加えて、カラーセンターの一つであるSiV-センターを、極微量の濃度に制御して導入することを組み合わせたダイヤモンド結晶の極限成長技術を開発しました。それによって、識別することが困難な光子を発生する単一光子源を結晶中に多数作製することに成功しました。このとを、近赤外線に近い赤色という長波長の発光波長で実現しました。

研究内容と成果

1. SiV-センターの単一光子源を世界で初めて結晶成長時に単結晶中に作製

本研究では、シリコン原子1個が炭素原子2個を置換しているSiV-センター(図1)に着目し、ダイヤモンド結晶中にSiV-センターの単一光子源を結晶成長中に作製することを試みました。ダイヤモンド薄膜は水素希釈したメタンを用い、マイクロ波を熱源とするプラズマCVD法で成長するのが一般的です。石英反応管などCVD装置や基板にシリコンが用いられる場合、プロセス中にプラズマによってエッチングされ、ダイヤモンド薄膜からSiV-センターが観測されることが知られています。このような意図しない混入によるSiV-センターでは、単一光子源として観測するには濃度が高すぎました。単一光子源として観測されるには、0.01 ppb以下(炭素原子1千億個に1個以下)の低濃度が必要になります。したがって、SiV-センターの単一光子源を得るにはナノダイヤモンドやイオン注入が用いられてきましたが、均一な特性を得るのは困難でした。

本研究では、プラズマによるシリコンのエッチングが極力起こらない成長装置と成長条件を構築し、CVDダイヤモンド単結晶の高純度化・高結晶性化に取り組みました。その上でシリコン源として、プラズマによるエッチング速度が遅い炭化ケイ素をダイヤモンド基板とともに反応容器内の試料ホルダー上に置いてCVD合成しました。この手法により、CVDダイヤモンド単結晶成長中にSiV-センターを単一光子源の濃度で導入することに成功し

ました。この手法では、0.001ppb~0.01ppbという極微量の濃度を制御することが可能です。図2は、高純度のIIa型高圧高温合成基板の上に、炭素 ^{12}C を99.998%までに同位体濃縮させた、膜厚が20 μm の高純度・高結晶性CVDダイヤモンド単結晶の一例です。

共焦点顕微鏡イメージから、CVDダイヤモンド単結晶薄膜中に、多数のSiV-センターが観測されました(図3)。光子相関測定のアнтиバンチング(2個の光子を同時に発生しない)現象を観測することにより、単一光子源作製が確かめられました。また、NV-センター^{*7}と比べて長波長の発光であり、且つ発光の線幅が狭いという点で期待されていたSiV-センターが、単一光子源としてNV-センターと同程度に明るいことが確かめられました。

2. 識別することが困難な光子を発生する単一光子源を多数作製

固体結晶中では、多くの場合、周囲の環境が微妙に異なることにより、個々の単一光子源ごとに発光周波数(発光波長)が変化します。この発光波長の「不均一なひろがり」が、固体結晶中に識別できない光子を放出する単一光子源を作製する際の難題となっていました(図4)。本研究では、高純度・高結晶性という点でほぼ完璧なダイヤモンド結晶格子中に作りこめたことから、SiV-センター固有の発光周波数、線幅をもつ、即ち識別することが困難な光子を発生する単一光子源を多数作製することに成功しました。

本研究の成果のポイントは、以下のように量子情報処理への応用上優れた特性を持つSiV-センターの作製です(測定は4K)。

- ・ 発光周波数 4.068188×10^5 GHz(波長 736.9118 nm) に対して、長時間にわたって、 ± 4 MHz という安定性を示し、ブリンキングも観測されなかった(測定は7時間)。この結果は一つのSiV-センターから、識別できない光子を長時間にわたって発生できることを示している。
- ・ 単一光子源の発光の線幅として、励起状態の寿命(4Kで1.72 ns)で決まる線幅である94 MHzに近い値(4Kで120 MHz)を達成した。発光の線幅がほぼ励起状態の寿命だけで決まり、余計な広がりをもたないことから、良質の量子干渉が得られることが期待される。
- ・ 発光の波長と線幅、偏光が同一で識別することが困難な光子を発生する単一光子源を、結晶中の異なる多くの位置に作製することに成功した。発光波長の違いが、励起状態の寿命から決まる線幅94 MHzの30%以下であるという点で、識別することが困難な二つの光子を発生するSiV-ペアーを容易に見いだせることが示された(7 μm ×7 μm という狭い範囲に絞っても、20個のSiV-から識別することが困難な光子を発生する4ペアーを選び出すことができた)。

研究の意義と今後の展開

1. 近赤外に近い波長の赤色で明るい単一光子源の作製

本研究では、SiV-センターを、安定で明るい単一光子源として固体結晶であるダイヤモンド中に作製することに成功しました。従来注目されてきたNV-センターは、励起レーザーの波長および発光の波長帯の一部が生体組織の光吸収の波長領域と重なってしまうという難点がありました。本研究で取り扱ったSiV-センターは、生体組織による吸収の少ない波長領域で発光する特徴と、発光の線幅が狭いという特徴を併せ持ちます。このこと

は、SiV-センターを有する蛍光ナノダイヤモンドナノ粒子が、バイオマーカーやドラッグデリバリーに応用できる蛍光物質としてきわめて優れていることを示すものです。

2. 識別することが困難な光子を放出する単一光子源の複数作製を固体で実現

本研究では、電場による発光の周波数調整を必要とすることなく、識別することが困難な光子を発生する単一光子源を、離れた位置に作製できました。これは、離れた位置における量子ビットのエンタングルメントの生成など、今後、識別できない光子を用いた量子情報処理への応用、量子通信の中継器、量子テレポーテーション、あるいは量子コンピューティングの新しい展開につながる研究成果と言えます。

SiV-センターは電子スピン ($S=1/2$) をもち、またシリコンや炭素には核スピンをもつ同位体が存在します (^{29}Si 、 $I=1/2$ 、天然存在比 4.7%、 ^{13}C 、 $I=1/2$ 、天然存在比 1.1%)。本研究により低温で単一光子技術にきわめて優れていることが示されたことは、電子スピンや核スピン、特に量子情報保持時間が長い核スピンを量子メモリに用いて、量子情報処理の新しい展開に通じることが期待されます。

用語・注

*1 同一の光子:ここでは、位置が異なる単一光子源から放出された 2 光子において、2 者間での発光周波数 (波長) と線幅の差が極めて小さく、また偏光が同じ単一光子を意味する。したがって、位置の異なる複数の本単一光子源から放出された場合、どちらの単一光子源からやってきたのか識別することが困難という特徴を持つ。

量子力学的に識別できない光子は量子情報処理の重要な役割を演ずる。通常、固体中では、結晶内の不均一性による周囲のばらつきに左右されるため、識別できない光子を放出する単一光子源を多数作製することは極めて困難であった。このような識別できない二つの光子では Hong Ou Mandel 量子干渉と呼ばれる量子の世界の不思議な現象が観測される。光ビームを二つのビームに分岐するのに用いるビームスプリッターは二つの入力ポート (入力 1、入力 2) と二つの出力ポート (出力 1、出力 2) をもつ。単一光子 2 個のそれぞれをビームスプリッターの入力 1 入力 2 に入力すると、二つの光子が識別できない場合に限って、二つの出力ポートのいずれか一つに両方の光子が出力される。二つの光子が識別できない場合には、二つの出力ポートの一つずつ別々に出力されることが全く起こらない。

*2 単一光子源:一度に 1 個の光子 (単一光子) のみを発生する光子源。単一光子に書き込んだ量子情報は、コピーできない (非クローン定理) 上に、読みだすとその量子情報が破壊されてしまうため、単一の光子を用いる光通信では盗聴を検出できる。その特性により、単一光子源は安全な量子暗号通信に欠かせないデバイスとなる。識別できない光子は異なる場所の量子ビットのエンタングルメント生成に不可欠である。光子を用いる量子ネットワークは拡張可能な量子コンピューティングとしても期待されており、単一光子源は量子情報処理においても重要なデバイスになると考えられている。

*3 カラーセンター、SiV-センター:カラーセンターとは、ダイヤモンドなどの規則的な結晶格子中で、本来ならば

あるべき原子がない状態、不純物原子で置換された状態、格子位置にあるべき原子や不純物原子が格子間位置を占めた状態などの点欠陥のこと。本来なら透明な結晶がこの点欠陥によって着色させられることがあることから、カラーセンター（色中心）と呼ばれる。カラーセンターは結晶格子中に閉じ込められた分子と見なせる。ダイヤモンド中の SiV- (silicon vacancy)センターとは、炭素原子 2 個がシリコン原子 1 個で置き換えられたカラーセンター（図 1 参照）。隣接する二つの格子位置の原子空孔の間にシリコン原子が位置する構造で、 D_{3d} 対称、電荷-1、電子スピン $S=1/2$ をもつ。 D_{3d} 対称をもつことが、結晶格子中の不純物、欠陥による電場の影響を受けにくくしていると考えられる。SiV-センターの発光波長は近赤外線に近い赤色である。

*4 磯谷名誉教授が日本側代表を務めた日独共同研究は、ダイヤモンド合成、欠陥制御などダイヤモンド材料科学において大きな蓄積のある日本チーム（筑波大学・NIMS・JAEA）と、量子操作において最先端に立つドイツチーム（ウルム大学・シュツットガルト大学・ドルトムント工科大学ミュンヘン工科大学）が相補的に取り組むことで、量子コンピューティングのブレークスルーを目指しました。ダイヤモンド中の NV-センターを用いる量子レジスタの作製を目指しましたが、ホストとしての同位体濃縮（ $^{12}\text{C}99.998\%$ ）・高純度・高結晶性ダイヤモンド単結晶合成が、本研究における SiV-センターの成果にも通じました。

*5 量子ドット、プリンキング：半導体結晶中の数十ナノメートルの大きさの粒子に電子を閉じ込めたもの。そこに閉じ込められた電子は離散的なエネルギー準位をもつために人工的な原子と見なせる。量子ドットを励起させて発光させた際、時間経過に伴って発光が点滅する現象をプリンキングと呼ぶ。

*6 エンタングルメント：量子力学の用語で「量子もつれ」ともいう。二つの粒子がエンタングルメント状態にあるとき、一方の粒子の量子ビットが観測されて 0 か 1 に値が確定すると、もう一方の値もその瞬間に確定する。

*7 NV-センター：ダイヤモンドでは、炭素を置換した窒素（N）とその隣に原子空孔（V）が存在するカラーセンターを NV-センターと呼ぶ。発光波長は赤色である。NV-センターと光を組み合わせると、低温にしないとそろえられない向きにスピンの状態をそろえる初期化が室温でできる。また、NV-センターに光を照射すると返ってくる波長の異なる光の強度からスピンの状態を読み出すことが室温でできる。こうした性質から、量子コンピュータのプロセッサの一部となる量子レジスタへの有力な候補とされてきた。NV-センターは発光が広い波長領域に広がる点で、単一光子技術に最適とは言えません。

参考図

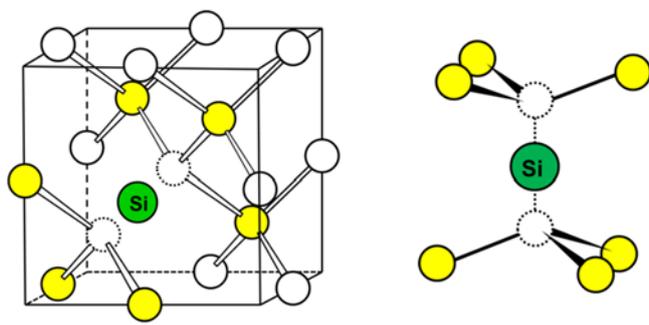


図 1 ダイヤモンド中の SiV-センターの構造。
黄色は最近接の 6 個の炭素原子を示す。

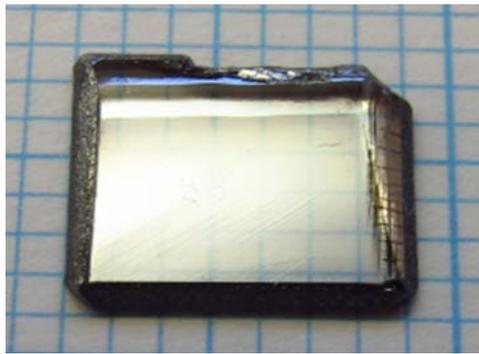


図 2 IIa 型 HPHT 基板の上に成長させた¹²C 99.998% 濃縮・高純度・高結晶性 CVD 単結晶。

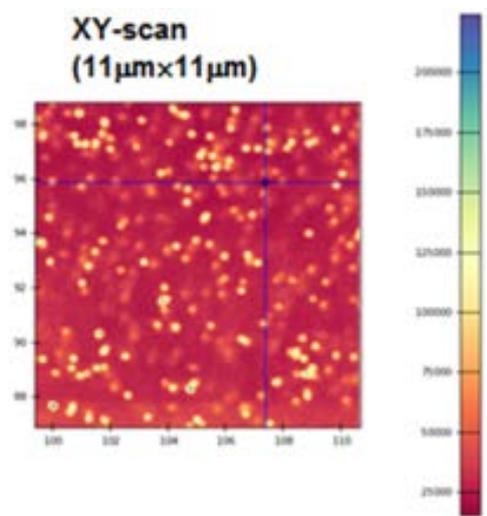
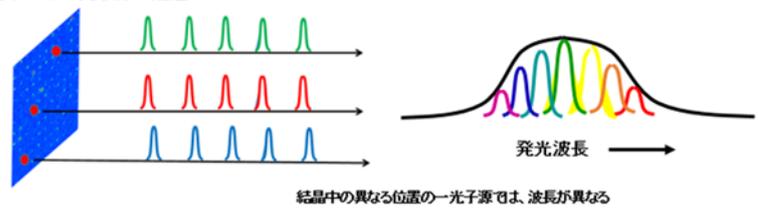


図 3 SiV-を単一光子源として観測される濃度に制御して結晶成長中に導入した CVD ダイヤモンド単結晶の共焦点顕微鏡イメージ。蛍光スポットのほとんどが単一の SiV-センターに由来する(光子のアンチバンチング測定により確認。共焦点顕微鏡の空間分解能では 2 個以上の SiV-センターが重なっているスポットも存在)。

固体結晶中の単一光子源の難題



高純度・高結晶性を極めたダイヤモンド中の SiV-センター

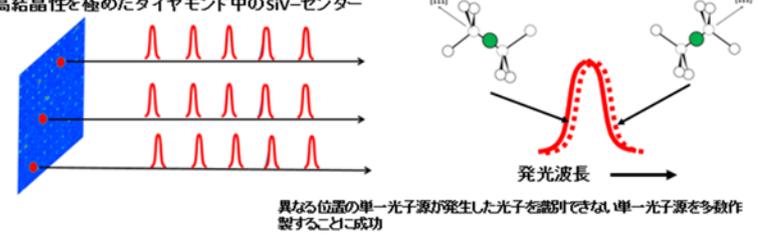


図 4 固体結晶にとって難題であった不均一なひろがり为解决し、識別することが困難な光子を発生する単一光子源を多数作製することに成功

掲載論文

題名 Multiple intrinsically identical single photon emitters in the solid state

「異なる位置での同一の単一光子放出を固体中で実現」

著者 L. J. Rogers¹, K. D. Jahnke¹, T. Teraji², L. Marseglia¹, C. Müller¹, B. Naydenov¹, H. Schauffert¹, C. Kranz³, J. Isoya⁴, P. McGuinness¹, and F. Jelezko¹

¹ウルム大学(ドイツ)量子光学研究室、²物質・材料研究機構、³ウルム大学(ドイツ)分析・生化学分析教室)、

⁴筑波大学

雑誌名 Nature Communications

発行日 2014年8月22日(日本時間22日午後6時)公開予定

問い合わせ先

<研究に関すること>

磯谷 順一(いそや じゅんいち)

筑波大学知的コミュニティ基盤研究センター前主幹研究員・名誉教授

寺地 徳之(てらじ とくゆき)

物質・材料研究機構、光・電子材料ユニット ワイドギャップ機能材料グループ主幹研究員

<JSTの事業に関すること>

中島 英夫(なかじま ひでお)

科学技術振興機構 国際科学技術部