

| | |
|------|-------------|
| 報告番号 | 甲 第 13606 号 |
|------|-------------|

主 論 文 の 要 旨

論文題目 **ダイヤモンド窒素空孔中心-カーボンナノチューブハイブリッド構造の創製と量子状態の電氣的制御に関する研究**
(Study on fabrication of diamond nitrogen-vacancy center-carbon nanotube hybrid structure and electrical control of quantum state)

氏 名 **内山 晴貴**

論 文 内 容 の 要 旨

本研究では、ダイヤモンド窒素空孔中心(NV 中心 : Nitrogen-vacancy center)の量子状態を、カーボンナノチューブ(CNT : Carbon nanotube)を用いて電氣的に制御することを目的とし、NV 中心の量子状態の測定・制御のためのシステムの構築や NV 中心-CNT ハイブリッド構造の作製プロセスを確立し、NV 中心のエネルギーの CNT 電流による制御を行った。

第 1 章では、現在の量子科学技術と NV 中心を用いた量子計算について現状と課題について述べ、CNT を用いた NV 中心の電氣的量子制御を提案した。これまで積み上げられてきた古典力学や電磁気学、情報科学などの多くの知見や技術に、量子科学技術が加わることで、絶対に安全な通信や、超高感度・高分解能のセンシング、超高速計算が可能となり、これまで困難とされてきたエネルギー問題などの社会・経済的課題の解決や、新たな産業の創出が可能となると考えられる。量子計算の分野においては、ジョセフソン接合を含む超伝導リングやイオントラップ中の冷却イオンを用いた量子ビットで構成された量子プロセッサの開発が進められており、複数の量子アルゴリズムの実証や量子超越性が示されている。上記の量子ビットでは極低温環境や高真空環境が必要であるのに対して、NV 中心を用いた量子ビットは室温、大気圧下で量子計算を行うことが可能であるため、小型化や集積化が可能であると考えられる。2 量子ゲート操作を行う際に必要となる 2 個の NV 中心間の量子エンタングルメントは、電子スピンのダイポール相互作用を用いて形成することができる。2 つの NV 中心間の量子エンタングルメントを観測できる最大距離は数十 nm であ

るが、量子状態の初期化・操作・読み出しを行うために必要なレーザーや共鳴マイクロ波の波長はそれぞれ 532 nm, 10 cm であるため、2つの NV 中心を独立して制御することは困難である。本研究では、ダイヤモンド表面近傍に形成した NV 中心の直上に配置した CNT を用いて磁場やマイクロ波を局所的に照射することで、量子状態を局所的に制御する方法を提案する。他の材料では実現することのできない直径 1 nm の大きさと 10^9 A/cm² を超える電流密度を有する CNT を用いることで、NV 中心に対して局所的に強い磁場やマイクロ波を印加することが可能となる。加えて、エネルギー移動を利用した量子情報の読み出しや電界制御によるコヒーレンス時間の延伸が可能であると考えられる。

第 2 章では、NV 中心の物性や量子状態制御手法に関する解説を行った。NV 中心はダイヤモンド構造中において置換された窒素原子と空孔が隣接した発光中心であり、レーザー照射による初期化や共鳴マイクロ波照射による量子状態の操作、発光強度からの量子状態の読み出しが可能である。NV 中心の量子状態を光学的に検出する方法として、光検出磁気共鳴(ODMR: Optically detected magnetic resonance)測定があり、この測定手法により NV 中心の共鳴周波数を得ることで外部磁場や温度の計測が可能であることを、測定シーケンスや ODMR スペクトルとともに示した。

第 3 章では、NV 中心の作製方法に関する解説を行った。NV 中心は、ダイヤモンド中に空孔と窒素を導入し、活性化アニールを行うことで形成することができる。低加速エネルギーでイオン注入を行うことによって、窒素の位置制御が可能であることをシミュレーションから示した。そして、活性化アニールによる格子間原子や空孔、窒素の拡散について理論計算を行い、1200 °C 以下の活性化アニールでは、格子間原子や空孔が拡散することで NV 中心が形成されることを示した。また、NV 中心の電荷状態(NV⁺, NV⁰, NV⁻)はフェルミ準位と電荷遷移準位との位置関係によって決定されるため、不純物ドーピングやダイヤモンドの表面終端、電界印加による電荷状態制御が可能であることを示した。

第 4 章では、NV 中心の信号を高感度に検出する手法を確立し、ナノダイヤモンド NV 中心を用いた電子デバイスのオペランド解析について述べた。単結晶ダイヤモンド基板中の NV 中心を使ったデバイスのオペランド解析は、高感度にデバイスの電流などを測定できるが、ダイヤモンド以外の基板に作製された電子デバイスを解析する場合に感度や空間分解能が劣化してしまう課題があった。本章では、様々な基板上の電子デバイスに形成することができるナノダイヤモンド薄膜を使ってデバイスのオペランド解析を試みた。まず、ドロップキャスト法によるナノダイヤモンド薄膜の簡便な形成手法を確立した。次に、NV 中心の発光ノイズ解析を行うことで、200 Hz 以上の周波数領域においては高信号対雑音比での ODMR 測定が可能であることを見出した。この知見をもとに、ロックインアンプを用いた高周波領域での測定方法を確立し、測定の信号対雑音比を 36 倍改善した。この高感度測定手法を用いた電子デバイスのオペランド解析の実証として、金属配線電流の形成する磁場と発熱の同時検出や磁場の空間分布計測を行った。

第 5 章では、金属電極近傍の NV 中心の量子状態測定について述べた。NV 中心は電子デ

バイスのオペランド解析を高感度に行うことができるが、電子デバイスの金属電極や配線による NV 中心への歪みの印加や金属電極へのマイクロ波集中が生じることで、NV 中心の量子・電荷状態が場所によって変化することが懸念される。本章では、金属電極による NV 中心の ODMR スペクトル測定への影響を調査した。NV 中心の ODMR 測定や発光強度測定を行った結果、金属電極近傍では ODMR コントラストが増加していた。その要因としては、(1)ダイヤモンド-金属接合におけるフェルミ準位の変化、(2)プラズモンの効果、(3)ダイヤモンド-金属接合における局所的な歪み、(4)金属電極の存在に起因するマイクロ波の集中が挙げられた。それぞれの要因を詳細に検討した結果、金属電極の存在に起因するマイクロ波の集中が、金属電極近傍での ODMR コントラスト増強の主な要因として考えられた。そして、ODMR コントラストのマイクロ波強度依存性の測定や、マイクロ波強度の実測と電界計算の結果から、金属電極端へのマイクロ波の集中により ODMR コントラストが増強したことを明らかにした。

第 6 章では、ダイヤモンド NV 中心-CNT ハイブリッド構造の創製と NV 中心の量子状態の電氣的制御について述べた。既報の光学的制御手法では NV 中心の独立操作が困難であるため、NV 中心の量子状態を局所的に制御できる新規手法が必要であることを指摘した。本章では、CNT を用いた NV 中心の量子状態の電氣的制御を考案した。NV 中心の直上に配置した CNT からマイクロ波や磁場を印加することで、数十 nm 離れた位置にある別の NV 中心から独立して操作することができると考えられる。このとき、NV 中心をダイヤモンド基板上の CNT の極近傍だけに作りこむ技術が必要となる。NV 中心の位置制御方法は多数報告されているが、CNT の直下に NV 中心を意図的に配置することはいまだに困難である。本章では、CNT 直上に自己整合的に形成した有機膜トレンチを用いることで、CNT の極近傍に NV 中心の形成された NV 中心-CNT ハイブリッド構造を作製した。有機膜トレンチの形状から NV 中心の空間分布を計算した結果、NV 中心の空間分布は最も狭い場所で CNT の近傍 ± 22.5 nm と推定された。作製した NV 中心-CNT ハイブリッド構造では、CNT に沿った位置で NV の発光スペクトルが観測された。そして、CNT 電流(12 μ A)の形成する磁場によって、NV 中心の共鳴周波数がゼーマン分裂により 0.9 MHz 変化した。また、第 5 章で観測したマイクロ波の集中が CNT においても生じていることを ODMR コントラストから観測した。これらの成果から、CNT 電流と局所的な電界集中を用いた NV 中心の量子状態の局所的制御の実現可能性が示された。

第 7 章では本論文の総括と今後の課題、展望について述べた。本論文では、NV 中心の量子状態の測定・制御のための光学・高周波・電気制御システムの構築や高信号対雑音比の測定手法の構築、NV 中心-CNT ハイブリッド構造の作製を行い、CNT 電流により形成された局所的な磁場を用いて NV 中心のエネルギーの制御を行った。NV 中心-CNT ハイブリッド構造の創製により、局所的な磁場や電場・マイクロ波集中効果を組み合わせた NV 中心の量子状態の局所的制御の実現可能性が示され、クロストークの減少やコヒーレンス時間の延伸による量子ゲート操作の数の増加や忠実度の向上を実現すると見込まれる。