Title	ダイヤモンド量子センサーを用いたハイゼンベルグ限界感度における核スピン検出
Sub Title	Detection of nuclear spins using diamond quantum sensors with the Heisenberg limit sensitivity
Author	伊藤, 公平(Itoh, Kohei)
Publisher	
Publication year	2022
Jtitle	科学研究費補助金研究成果報告書 (2021.)
JaLC DOI	
Abstract	ダイヤモンド中の窒素-空孔中心に局在する単一電子スピンを量子センサーとして利用する核磁気共鳴測定の感度を高める基盤技術を開発、実証した。核磁気共鳴が可能なテーブルトップ型測定装置の実装、単一陽子スピンの検出と量子制御、物理モデルに基づくスピン読み出しの最適化方法の実証などに成功し、それぞれ学術論文として発表した。感度スケールを高める方法として、ベイズ推定やFPGAを用いた装置制御方法も開発した。 We developed and demonstrated a fundamental technology to increase the sensitivity of nuclear magnetic resonance measurements using a single electron spin localized at a nitrogen-vacancy center in diamond as a quantum sensor. We successed implementation of a table-top measurement device capable of nuclear magnetic resonance, detection and quantum-control of single proton spins, and demonstration of an optimization method for spin readout based on a physical model published. As a method to increase the sensitivity scale, Bayesian estimation and FPGA-based instrument control methods were also developed.
Notes	研究種目 : 基盤研究 (B) (一般) 研究期間 : 2019～2021 課題番号 : 19H02547 研究分野 : 量子情報
Genre	Research Paper
URL	https://koara.lib.keio.ac.jp/xoonips/modules/xoonips/detail.php?koara_id=KAKEN_19H02547seika

様　式　C－19、F－19－1、Z－19　（共通）

科研費 KAKENHI

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　４年　６月　７日現在

機関番号：３２６１２
研究種目：基盤研究(B)（一般）
研究期間：2019～2021
課題番号：１９Ｈ０２５４７

研究課題名（和文）ダイヤモンド量子センサーを用いたハイゼンベルグ限界感度における核スピン検出

研究課題名（英文）Detection of nuclear spins using diamond quantum sensors with the Heisenberg limit sensitivity

研究代表者
伊藤　公平（Itoh, Kohei）

慶應義塾大学・理工学部（矢上）・教授

研究者番号：３０２７６４１４

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　13,500,000円

研究成果の概要（和文）：ダイヤモンド中の窒素-空孔中心に局在する単一電子スピンを量子センサーとして利用する核磁気共鳴測定の感度を高める基盤技術を開発、実証した。核磁気共鳴が可能なテーブルトップ型測定装置の実装、単一陽子スピンの検出と量子制御、物理モデルに基づくスピン読み出しの最適化方法の実証などに成功し、それぞれ学術論文として発表した。感度スケールを高める方法として、ベイズ推定やFPGAを用いた装置制御方法も開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
　単一陽子の検出/制御や、解析方法の工夫による感度向上などは、発光欠陥による量子センサーのポテンシャルを実証し、さらに引き上げる成果として意義がある。様々な分野の基礎研究で日常的に利用される現在のプロトン核磁気共鳴(NMR)や磁気共鳴イメージング(MRI)手法を、量子センサーによって従来法では達成不可能な単一分子/スピンレベルまで拡張できることをサポートする研究成果は学術的および社会的に意義深い。

研究成果の概要（英文）：We developed and demonstrated a fundamental technology to increase the sensitivity of nuclear magnetic resonance measurements using a single electron spin localized at a nitrogen-vacancy center in diamond as a quantum sensor. We successed implementation of a table-top measurement device capable of nuclear magnetic resonance, detection and quantum-control of single proton spins, and demonstration of an optimization method for spin readout based on a physical model published. As a method to increase the sensitivity scale, Bayesian estimation and FPGA-based instrument control methods were also developed.

研究分野：量子情報

キーワード：量子センシング　ダイヤモンド中窒素空孔欠陥　核磁気共鳴

１．研究開始当初の背景

本研究開始当初の 2019 年、ダイヤモンド中の発光欠陥である窒素空孔(NV)中心の有する電子スピン量子ビットを、高感度・高空間分解能のセンサーとして利用する核スピン検出、すなわち核磁気共鳴の性能は飛躍的に向上しつつあった。有力研究機関である Stuttgart 大、Ulm 大、Harvard 大、ETH を筆頭に、化学シフトや J 結合の観測、ミリヘルツを超える高い周波数分解能の達成などが報告されていたが、日本国内機関からの報告は申請者らを除けばほとんどない状況であった。

申請者は、研究代表者として 2014 年から 2019 年までに行った基盤研究(S)「ダイヤモンド量子センシング」において、①申請者らが独自開発した三次元的な核スピンの位置決定技術の実証 [Phys. Rev. B **98**, 121405 (R) (2018)]、②ETH の Prof. Degen(研究協力者)とともに高空間分解能な核スピンの検出[Nat. Commun. **9**, 4678 (2018)]、③化学気相成長法法を利用するセンサーチップを作成[MRS Commun. **4**, 143 (2014), IEEE Trans. Nanotechnol. **15**, 614 (2016)]などの成果を挙げた。これらの研究を通して、我々は量子センサーのポテンシャルを更に引き出すために以下の目的を掲げた。

２．研究の目的

ダイヤモンド表面に接着した単一分子中の核スピン三次元分布を表面近傍の NV 中心を用いて検出する分析技術の確立に向け、従来よりも高次の信号ノイズ比のスケーリングであるハイゼンベルグ限界を達成することを目的とした。

量子センシングは、NV 中心スピンの量子操作を行った後の状態を発光強度から推定することで行われる。従来、センシング感度は中心極限定理によって決まるため、測定時間の二乗根でスケールする。しかし、量子センサーの持つ情報量は単位時間あたりに線形で増加させることができるため、測定時間に対して線形の感度スケーリングをもたせることができる。これはハイゼンベルグ限界と呼ばれ、量子センサーとして真に期待される感度スケーリングである。

３．研究の方法

核スピン測定において量子センサで真に期待される感度スケールを得るには、<u>1)高い忠実度のスピン読み出し</u>と <u>2)高速なベイズ推定と装置制御による測定パラメータの逐次最適化</u>が必要である。1)に関しては、NV 中心の核スピンを量子メモリとして利用することで、電子スピンセンサーを高い忠実度で読み出しする技術を実装した。また、NV 中心の発光プロセスの物理モデルに基づいた発光データ解析を開発し、従来手法よりも高速に高い信号ノイズ比を得ることに成功した。2)に関しては、直流磁場計測においてハイゼンベルグ限界を達成するベイズ推定技術を、交流磁場測定で高い感度を有するヘテロダイン技術に拡張する開発を行った。数値シミュレーションにおいて交流磁場の振幅、周波数、位相の決定に成功した。また、高速演算処理が可能な FPGA による量子センサー測定装置の開発も行い、基本的な磁場計測実験に成功した。その他、これらの研究開発を行うなかで、<u>3)核スピン検出が可能なテーブルトップ型測定装置の開発</u>や、<u>4)単一陽子スピンの検出と量子操作</u>に成功した。

４．研究成果

以上に挙げた主な内容について、それぞれ研究成果を説明する。当初目標として掲げていたハイゼンベルグ限界の達成はできなかったものの、核スピンの高感度な計測に有用な研究成果を学術論文 3 本にまとめることができた。

<u>(1)「高い忠実度のスピン読み出し」</u>

感度スケーリングを高めるにはセンサー読み出しの忠実度を向上することが重要である。本研究では、読み出し忠実度を高めるために、NV 中心の窒素核スピンを量子メモリとして利用する繰り返し読み出しを実装した。これは本研究遂行費用で購入した電磁石を用いて可能となった技術である。さらに、申請者らが独自に考案した物理モデルに基づく発光データ解析手法により、その読み出し精度を更に向上することに成功した。我々は、本解析手法が短時間の発光データから僅かな計算コストと時間で最尤推定と同等の高い精度を示す最適な手法であることを実験的に明らかにした(図 1)。本手法の汎用性は高く、NV 中心によるセンシング技術の殆どに利用できるため有用である。本内容は米国 AIP Advances に掲載された[AIP Adv.**12**, 055215(2022)]。

<u>(2)「高速なベイズ推定と装置制御による測定パラメータの逐次最適化」</u>

核スピン検出は核スピンが歳差する様子を交流磁場として捉える。直流磁場の検出においてハイゼンベルグ限界を達成するツールとして、高速なベイズ推定と装置制御による測定パラメータの逐次最適化が行われている。

申請者は、ベイズ推定と測定パラメータのフィードバックが交流磁場測定においても機能するかを理論・数値的に検証した。交流磁場測定として、現在でも最も感度と周波数分解能の高いヘテロダイン検出法に注目した。その結果、ベイズ解析を利用することで交流磁場の振幅、周波数、位相を推定することに成功し、逐次制御によって感度 2 倍まで高められることがわかった。ただし、もとから高感度なヘテロダイン検出法では感度スケールをさらに向上することは困難であった。また、ベイズ解析は測定ノイズが入ると真の値に正確な推定ができないことが数値解析によって明らかになった。ベイズ推定を実用するためには測定感度と正確性を両立することが今後の課題である。

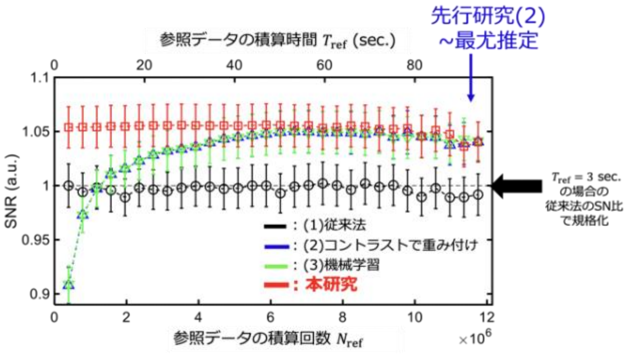

図 1

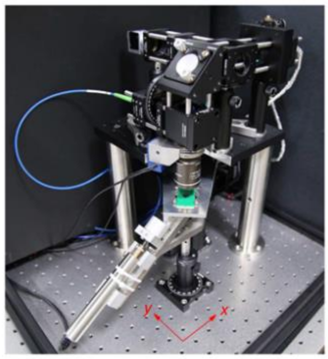

図 2

<u>(3)「核スピン検出が可能なテーブルトップ型測定装置の開発」</u>

センサーである単一 NV 中心と標的である核スピン/分子が近接している状況を得るには、分子を散布したダイヤモンド表面の近傍に位置する NV 中心を複数測定して探索することになる。また、同じダイヤモンド試料であっても単一 NV 中心のバラツキは大きいため、感度の高いセンサーを探すことも重要である。その設計、プログラム、測定データを学術論文として発表した [AIP Adv. **10**, 025206 (2020)]。

<u>(4)「単一陽子スピンの検出と量子操作」</u>

従来の核磁気共鳴における検出対象は水素の核スピン、すなわち陽子スピンである。しかし、高い感度を持つ NV 中心による核磁気共鳴であっても、陽子スピンを単一で検出するという実験 報告は殆ど無い状態であった。また、NV 中心で従来用いられてきた周波数ドメインの交流磁場 測定では他の核種の信号ハーモニクスがアーティファクトになってしまうことも報告されていた。

申請者は、化学気相成長法で作製されたダイヤモンド中の単一 NV 中心で単一陽子スピンを検出することに成功した。この信号強度をダイヤモンド表面に付着させた油中の水素スピン集団の信号強度と比較することで、単一陽子スピンがダイヤモンド内部にあることも突き止めた。ETH で検証されたアーティファクトフリーな核磁気共鳴の相関分光を用いることで、単一陽子スピンであることも曖昧さ無く確かめた。これまでの数少ない先行報告では単一陽子スピンの位置はダイヤモンド表面であると考えられており、ダイヤモンド中に存在する陽子スピンが検出されうることは本研究で初めて示された事実である。それだけでなく、単一陽子スピンを動的核磁気分極によって初期化してラジオ波パルスによって量子制御することに世界で始めて成功した。これは単一陽子スピンを量子メモリ等に応用できることを示すため、量子センシングの性能を更に引き上げる可能性を秘める。これらの内容をまとめた論文は米国 Applied Physics Letters に掲載された[Appl. Phys. Lett. **117**, 114002 (2020)]。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計3件（うち査読付論文　3件／うち国際共著　0件／うちオープンアクセス　1件）

１．著者名 K. Sasaki, H. Watanabe, H. Sumiya, K. M. Itoh, and E. Abe	４．巻 117
２．論文標題 Detection and Control of Single Proton Spins in a Thin Layer of Diamond Grown by Chemical Vapor Deposition	５．発行年 2020年
３．雑誌名 Appl. Phys. Lett.	６．最初と最後の頁 114002-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0016196	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 D. Misonou, K. Sasaki, S. Ishizu, Y. Monnai, K. M. Itoh, and E. Abe	４．巻 10
２．論文標題 Construction and Operation of a Tabletop System for Nanoscale Magnetometry with Single Nitrogen-Vacancy Centers in Diamond	５．発行年 2020年
３．雑誌名 AIP Advances	６．最初と最後の頁 025206-1-21
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5128716	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 －

１．著者名 Y. Nakamura, H. Watanabe, H. Sumiya, K. M. Itoh, K. Sasaki, J. Ishi-Hayase, and K. Kobayashi	４．巻 12
２．論文標題 Optimization of Optical Spin Readout of the Nitrogen-Vacancy Center in Diamond Based on Spin Relaxation Model	５．発行年 2022年
３．雑誌名 AIP Advances	６．最初と最後の頁 055215-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0090450	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

〔学会発表〕　計4件（うち招待講演　0件／うち国際学会　1件）

１．発表者名 佐々木健人、伊藤公平、阿部英介
２．発表標題 ダイヤモンド量子センサーによる単一核スピンの三次元位置決定法の開発
３．学会等名 Spin-RNJ若手オンライン研究発表会
４．発表年 2020年

1．発表者名
K. Sasaki, H. Watanabe, H. Sumiya, K. M. Itoh, and E. Abe
2．発表標題
Detectionand control of Single Proton Spins in a Diamond
3．学会等名
10th Workshop on Semiconductor/SuperconductorQuantum Coherence Effect and Quantum Information (Spin camp 10)（国際学会）
4．発表年
2020年

1．発表者名
佐々木健人、渡邊幸志、角谷均、伊藤公平、阿部英介
2．発表標題
ダイヤモンド中の窒素空孔中心を用いた単一プロトンスピンの検出と制御
3．学会等名
スピントロニクス連携ネットワーク年次報告会
4．発表年
2021年

1．発表者名
佐々木健人、渡邊幸志、角谷均、伊藤公平、阿部英介
2．発表標題
ダイヤモンド中量子センサによる単一プロトンスピンの検出と制御
3．学会等名
日本物理学会 第76年次大会
4．発表年
2021年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

慶應義塾大学伊藤研究室ホームページ http://www.appi.keio.ac.jp/Itoh_group/

６．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考

７．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

８．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関