

## 正確な量子計測を目指して —ダイヤモンド量子センサの意外な光学特性—

### [1] 要旨

ダイヤモンド中の窒素空孔 (NV) 中心を用いた磁場・温度測定は代表的な量子計測 (量子センシング) であり、物性物理計測への応用も始まっている。一方で、NV 中心ならではの測定手法を確立するには、感度だけでなく正確さ (確度) の向上も重要である。NV 中心の最も基本的な測定手法である光検出磁気共鳴 (ODMR) では、ODMR スペクトルから磁気共鳴周波数を見積もることで磁場や温度を決定する。今回、ODMR スペクトルが励起光強度によって変化するという意外な現象に対して系統的な調査が行われた。得られた結果は、より確度の高い磁場測定への有用な指針を与えるものである。

### [2] 本文

量子力学の原理に基づいて物理量を精密に測定することを量子計測と呼ぶ。その好例が NV 中心を測定器 (量子センサ) として用いる磁場測定である。NV 中心とは、ダイヤモンド結晶中で隣り合う 2 個の炭素原子が窒素 (nitrogen) と原子空孔 (vacancy) のペアに置き換わった構造を持つ格子欠陥の一種である (図左)。数ある格子欠陥のなかでも NV 中心は特殊な性質をもつため量子センサとして利用できる。

原理を簡単に紹介する。図左に、ダイヤモンドのギャップ内に形成される NV 中心のエネルギー準位を示す (NV 中心には複数の電荷状態があるが、本稿では最も一般的な NV<sup>-</sup>について議論する)。NV 中心には 2 個の電子が収容されており、その基底状態はスピン三重項状態 ( $S = 1$ ) である。基底状態から 1.945 eV (637 nm) 離れたところに、スピン三重項を持つ励起状態があり、両者の間で光学遷移が可能である。NV 中心は遷移後の緩和過程に特徴がある。波長 520 nm 程度 (緑色) のレーザーによって励起した場合、励起された  $m_s = 0$  状態は赤色蛍光を伴って基底  $m_s = 0$  状態へと緩和する。これは通常の過程である。ところが、基底  $m_s = \pm 1$  状態から励起  $m_s = \pm 1$  状態に遷移した場合は、基底  $m_s = \pm 1$  状態への赤色発光を伴う緩和に加え、中間状態を経て基底  $m_s = 0$  状態に至る無輻射の (発光を伴わない) 遅い緩和も起こる。

このような特殊な電子スピン依存光学遷移を持つため、NV 中心は励起、発光においてユニークな振る舞いを示す。まず、光励起過程が繰り返されることによって、基底  $m_s = \pm 1$  状態の占有率が指数関数的に減少し、基底  $m_s = 0$  状態に状態が偏極していく。また、中間状態を介した遷移は無輻射であるため、赤色の蛍光強度の差から、もとの状態が  $m_s = 0$  状態であったか、 $m_s = \pm 1$  状態であったかを区別できる。すなわち、NV 中心のスピン状態を検出できる。さらに、基底状態において  $m_s = 0$  状態と  $m_s = \pm 1$  状態の間にはゼロ磁場分裂 ( $D \sim 2.87$  GHz) が存在しており、マイクロ波印加による電子スピン (ESR) 共鳴によって引き起こされた NV 中心の電子スピン状態の変化を、蛍光強度の変化として測定できる。これを光検出磁気共鳴 (Optically Detected Magnetic Resonance, ODMR) と呼ぶ。磁場  $B$  を印加すると  $m_s = +1$  状態と  $m_s = -1$  状態の間でゼーマン分裂が生じ、ODMR の共鳴周波数が  $D \pm \gamma B$  のように 2 つに分裂する (磁気回転比  $\gamma = 28$  MHz/mT) (図左)。したがって ODMR スペクトルを解析すれば NV 中心が感じている磁場を精密に (例えば地磁気の百分の一程度であれば容易に) 求めることができる。NV 中心はいわば原子サイズの超精密な方位磁針となるのである。

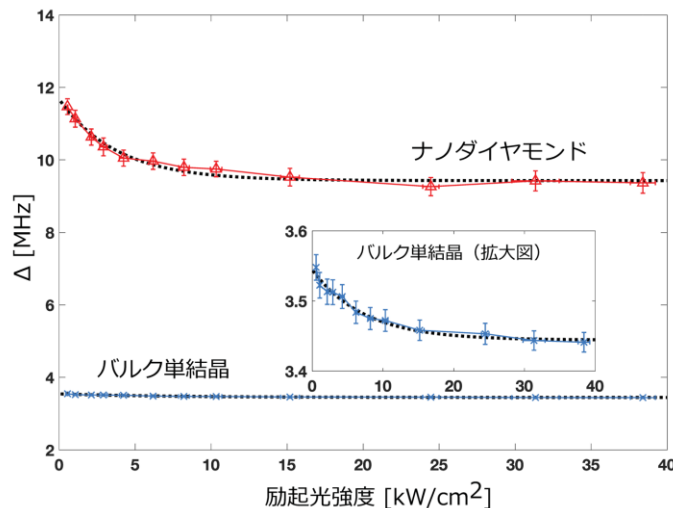
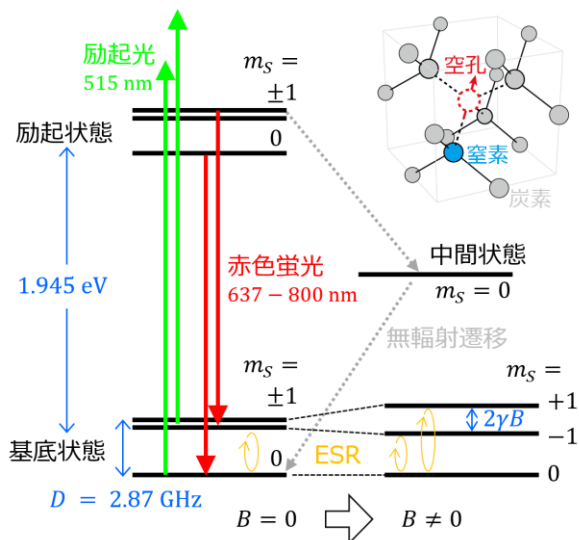
最近、NV 中心の ODMR スペクトルが励起光強度に依存して変化するという意外な現

象が報告された [M. Fujiwara *et al.*, Phys. Rev. Res. **2**, 043415 (2020)]. スペクトルの変化はごくわずかではあるとはいえ、この現象は磁場測定において確度を低下させる可能性がある。

今回、東京大学大学院理学系研究科のメンバーを中心とする研究グループは、系統的にこの現象を調べた。彼らは励起光強度が増えるに従って ODMR スペクトルの形状が徐々に変化するものの、ある強度以上では変化しなくなることを見出した。原因の特定には至っていないものの、可能なメカニズムについても議論している。本成果は NV 中心を用いた正確な磁場計測に有用な指針を与えるものであり、JPSJ の 2023 年 8 月号に掲載された。

実験で測定される NV 中心の ODMR スペクトルは、結晶の歪みや NV 中心近傍の核スピンの影響のため、(ゼロ磁場においても)  $m_s = \pm 1$  状態の縮退が解けており、ODMR スペクトルの共鳴周波数がわずかに分裂する。研究グループは、この分裂幅  $\Delta$  の励起光強度依存性を定量的に明らかにした。実験ではナノダイヤモンド (ND) とバルク単結晶という異なる 2 種類のダイヤモンド結晶における NV 中心アンサンブルが用いられた。図右に示すように、両者とも、励起光強度の増加とともに分裂幅  $\Delta$  が指数関数的に減衰し、あるところで飽和するという特徴的な挙動が見出された。励起光強度が小さいほど顕著であり、蛍光飽和とは異なる振る舞いである (今回の研究は蛍光飽和が起こる励起光強度よりもはるかに小さい領域で行われた)。種々の条件で測定を行った結果、減衰の大きさは試料に依存するのに対し、減衰が飽和する励起光強度はほとんど試料に依存しないこともわかった。また、一般に、図右に示すようにバルク単結晶よりも ND の方が  $\Delta$  の励起光強度依存性が大きいこともわかった。磁場計測に用いる共鳴周波数は、ゼーマン効果と  $\Delta$  の両方の寄与があるため  $D \pm \sqrt{\Delta^2 + (\gamma B)^2}$  となる。したがって、 $B \leq \Delta/\gamma$  という低磁場領域での測定において  $\Delta$  が正確に求まることは特に重要である。例えば、図左のデータに示したように観測された  $\Delta$  の変化の大きさは、ND の場合には数 MHz、バルク単結晶の場合には 0.1 MHz 程度である。これらはそれぞれ、数  $10 \mu\text{T}$  および数  $\mu\text{T}$  に相当する。この大きさは典型的な反強磁性体の磁壁直上の漏れ磁場程度であり、NV 中心を用いて精密な磁場計測を行う際に無視できない。また、CMOS カメラなどを用いて広視野で磁性体試料からの漏れ磁場をイメージングする場合には、レーザー光の干渉によって生じるスペckルに由来する視野内の励起光密度の不均一さによって磁場測定の確度を悪化させる可能性もある。

論文では、種々の系統的な測定を通じて、この現象が NV 中心に普遍的に起こることを明らかにすると同時に、結晶の歪みあるいは光励起による NV 中心近傍の電荷状態の変化が関わっている可能性が高いことが議論された。図左の実験結果は、ある程度以上強い励起光を入射することによって確度の劣化を抑制できることも示している。今回の成果は、長年研究されてきた NV 中心にも未解明な現象があるということを示すと同時に、ダイヤモンド量子センサを用いた精密磁場測定に有用な指針を与えるものである。



図左：ダイヤモンド結晶中の NV 中心とそのエネルギー準位の模式図。緑色の励起光によって赤色発光が起こること、基底  $m_s = \pm 1$  状態は励起後に中間状態を経由して  $m_s = 0$  状態に無輻射遷移する過程を持つこと、基底状態において ESR が可能であること、磁場中では ESR の共鳴周波数がゼーマン効果によって変化すること、などを概念的に示した。エネルギー間隔は模式的なものであり縮尺は正しくないことに注意。

図右：ゼロ磁場において測定された分裂幅  $\Delta$  の励起光強度依存性。ナノダイヤモンドとバルク単結晶ダイヤモンドの両方の場合を示す。

原論文 (2023 年 7 月 5 日公開済)

[Optical-power-dependent Splitting of Magnetic Resonance in Nitrogen-vacancy Centers in Diamond](#)

S. Ito, M. Tsukamoto, K. Ogawa, T. Teraji, K. Sasaki, and K. Kobayashi, J. Phys. Soc. Jpn. **92**, 084701 (2023).

<情報提供：小林 研介 (東京大学 大学院理学系研究科)

佐々木 健人 (東京大学 大学院理学系研究科) >