

## 32. 色中心量子センサを用いた精密物性計測技術の基盤開発

東京大学大学院理学系研究科 教授 小林 研介

### 概要

物質の磁氣的性質の解明は物性物理学の中心的な研究テーマである。多彩な磁氣的現象の全貌を解明する出発点となるのが定量的な計測である。本研究は、今後の磁性研究の発展に資する新手法として、ダイヤモンドなどに存在する色中心量子センサを用いた量子スピン顕微鏡を開発し、高精度磁場イメージングを行うことを目的とした。

本研究遂行によって、六方晶窒化ホウ素におけるホウ素空孔欠陥量子センサの作製技術が進展したほか、スピン波の定量的イメージング、磁壁の観測、量子温度センシングなどの成果を上げることができた。また単原子層強磁性体における磁気相転移や高圧下超伝導転移などを定量的に計測できる見通しが開かれた。さらに測定技術の要となるマイクロ波アンテナの開発により文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ令和6年度「秀でた利用成果」優秀賞を受賞した（2024年10月）。

三菱財団の助成は、光学定盤・レンズ等の光学部品、低温顕微分光用試料ステージ、マイクロ波アンプ、ダイヤモンド基板の購入と加工費用など、量子スピン顕微鏡開発に必須となる種々の用途に充当した。上記の成果および今後につながる計測基盤の強化は本助成によって初めて可能になったものである。ここに三菱財団に心から御礼申し上げる。

### 背景および目的

物質の磁氣的性質の解明は物性物理学の中心的な研究テーマである。電子のスピンは種々の磁性・相転移・素励起（マグノンなど）などの様々な現象を引き起こす。電子の電荷も、多様な軌道磁性・反磁性（超伝導の完全反磁性も含む）をもたらす。このように多彩な磁氣的現象の全貌を捉えるためには、通常の磁化測定だけでは不十分である。これまでに磁気光学カー効果・磁気力顕微鏡・ローレンツ顕微鏡・ブリルアン光散乱・中性子散乱・ミュオンスピン回転など、多くの測定手法が開発されてきた。対象とする現象・対象に対して最適な測定手法を選択することは実験家の腕の見せ所である。また、様々な手法が存在していることは、万能な測定手法が今なお存在しないことを意味する。

本研究は、磁場感度・空間分解能・測定（周波数）帯域という多方面において優れた潜在能力を持つ新技術として、色中心量子センサを用いた量子スピン顕微鏡を開発し、高精度磁場イメージングを行うことを目的とした。色中心量子センサの代表例がダイヤモンド窒素空孔中心（NV中心）である。NV中心を磁場センサとして用いることは2008年に提案された<sup>[1]-[4]</sup>（※以下[ ]内の数字は「引用文献」の番号を参照する）。NV中心を物性計測に適用するためには、NV中心の作製・レーザーとマイクロ波を組み合わせる量子操作・顕微測定・微細加工・大規模なスペクトルデータの解析などの高難度な複合技術が必要となる。このような研究手法は世界的に黎明期にあり、物性研究における色中心量子センサの真価が発揮されるのはこれからである。

本研究は、量子スピン顕微鏡を用いた広視野超高精度磁場イメージング技術を確立し、磁性研究、特にメゾスケールの磁気構造の研究に新展開をもたらすことを目指して行った。

## 方法

最初に量子スピン顕微鏡の基本的なアイデアを述べる。ダイヤモンド結晶中の色中心の一つである NV 中心は、電子 2 個からなるスピン 1 の系である。NV 中心は光励起後（緑色レーザー）の赤色蛍光発光過程に電子スピンの依存する独特の経路を持つ。そのため、マイクロ波を照射しながら、NV 中心から発せられる赤色蛍光の強度を測定することによって、単一の NV 中心のスピン状態を光学的に読み出すことができる（光検出磁気共鳴：ODMR）。NV 中心のエネルギー準位は周囲の磁場（ゼーマン効果）を反映するので、多数の NV 中心を同時に測定すれば、ダイヤモンドに密着させた測定対象からの漏れ磁場を広視野でイメージングできる<sup>[1][4]</sup>。さらに、様々なマイクロ波パルスによって NV 中心を量子操作すれば、DC-GHz の幅広い測定帯域でダイナミクス測定ができる。2020 年、hBN のホウ素空孔欠陥においても同様の状況を作りだせることが報告された<sup>[5]</sup>。

本研究では量子スピン顕微鏡の有用性の確立を目指してダイヤモンドや hBN 量子センサを用いた磁場イメージング手法の基盤技術開発に取り組んだ。具体的には (A) hBN 量子センサの作製の最適化、(B) 量子スピン顕微鏡の収差問題、(C) スピン波の定量的観測、(D) 反強磁性体における磁壁の観測、(E) 機械学習を用いた量子温度センシング、(F) その他、である。以下に順に述べる。

## 結果および考察

### (A) hBN 量子センサの作製の最適化

六方晶窒化ホウ素（hBN）中のナノサイズのホウ素空孔欠陥は、局所的な磁場量子センサとして有望視されている。利点のひとつは、我々が先行研究<sup>[6]</sup>で実証したように、ヘリウムイオン顕微鏡によって hBN フレークの任意の場所にナノメートルの精度でスポットを形成できることである。本研究では、ヘリウムイオン照射量、フレークの厚さ、フレークが接着されている基板の 3 つの条件を系統的に変化させ、作製したナノサイズの hBN 量子センサの特性を調査した（**図 1**）。得られた知見から、感度や位置特定に関する量子センサとしての性能を最大限に引き出すための最適な生成条件の指針を得た<sup>[7]</sup>。※以下、()内の数字は「発表論文等」の番号を参照する。

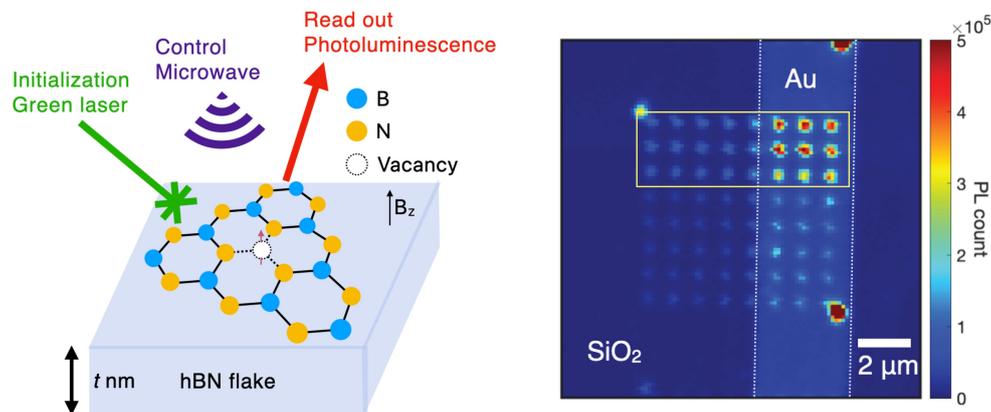


図 1. hBN 量子センサ

左) hBN 量子センサにおける光検出磁気共鳴 (ODMR) の概念図。右) hBN 量子センサのナノ配列。各スポットは 100nm 四方の大きさだが、光学分解能のため実際のサイズよりも大きく見えている。

### (B) 量子スピン顕微鏡の収差問題

NV 中心アンサンブルを用いる量子スピン顕微鏡は、回折限界に迫る高解像度と広い視野の両方で磁場を定量的に画像化する有望なアプローチである。通常のセットアップでは、透過ダイヤモンドを通してフォトルミネッセンスを捉えるが、これは収差（光学解像度と取得画像のコントラストを低下させる光学エラー）を必然的に伴

う。本研究では、光学収差の影響について、ダイヤモンドの厚さに対する依存性に焦点を当てて詳しく検討し、量子スピン顕微鏡の性能向上への指針を示した<sup>(2)</sup>。

#### (C) スピン波の定量的観測

磁性材料におけるスピン波伝播を広い周波数範囲でイメージングすることは、スピンドYNAMIXの理解と応用に不可欠である。NV 中心は、コヒーレントなスピン波の振幅と位相を定量的に測定できるセンサであるが、従来のプロトコルでは、NV スピンの共鳴周波数と一致する周波数におけるイメージングに限られていた。我々は交流ゼーマン効果を利用するアイデア<sup>(7)</sup>を発展させ、外部磁場を変化させることなく、イットリウム鉄ガーネット (YIG) 薄膜中を伝播するスピン波を広範囲の周波数でイメージングできることを実証した。本結果は、NV 中心のスピン波センシングへの適用性を拡大し、金属強磁性体や極薄のファン・デル・ワールス磁性体などのさまざまな磁性材料における動的挙動の定量的な調査への道を開く<sup>(3)</sup>。

#### (D) 反強磁性体における磁壁の観測

反強磁性体のスピンカイラリティは、スピントロニクスに新たな可能性をもたらす。カゴメ格子反強磁性体  $Mn_3Sn$  は、反強磁性秩序変数が電気的手段で検出および制御できる典型的な物質である。本研究では、走査型量子スピン顕微鏡を用いて  $Mn_3Sn$  の漏洩磁場を観測することで、この問題に取り組んだ。我々は、 $Mn_3Sn$  に内在する磁気八極子の振る舞い、磁壁中の局所磁化、磁壁の幅とカイラル性を明らかにした。本物質のナノスケールでの調査は、巨視的測定を補完する強力な手段であり、カイラル反強磁性とスピントロニクス応用の可能性を広げる<sup>(4)</sup>。

#### (E) 機械学習を用いた量子温度センシング

NV 中心を含むナノダイヤモンドは、非常に小さなサイズ (直径 100nm 程度) であるため、局所的な温度測定が可能な量子センサとなる。例えば、ナノダイヤモンドを細胞や微生物に導入して内部の温度変化を観察したり、材料表面に散布して熱拡散を測定したりする応用が進んでいる。我々は、ナノダイヤモンドにおける ODMR スペクトルと機械学習の一種であるガウス過程回帰 (GPR) を組み合わせた温度測定に取り組み、従来手法と比較した。その結果、GPR を用いた方が少ないデータ点でも安定して信頼性の高い結果を得られることを実証した (図 2)<sup>(5)</sup>。

#### (F) その他

上記以外にも、今後につながる展開として、低温顕微分光装置を立ち上げた。その結果、磁束量子の振る舞いや単原子層強磁性体における磁気相転移の観測が可能となってきた。さらに、ダイヤモンド試料表面に NV 中心を生成することにより高圧下超伝導転移を定量的に計測できる見通しが立ってきた。並行して、色中心量子センサ用のマイクロ波アンテナの開発にも精力的に取り組んだ。独自のアンテナ開発が評価され、文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ令和 6 年度「秀でた利用成果」優秀賞を受賞した (2024 年 10 月、「量子センシングのためのマイクロ波アンテナ作製」、<https://nanonet.mext.go.jp/page/page000820.html>)。

### 展望と謝辞

上記の成果は量子スピン顕微鏡による物性研究のさらなる発展において必要不可欠な基盤技術になるものである。特に、単原子層物質の磁性の直接観測や超高圧下での磁気物性の定量化など、これまで不可能であったような状況への適用が可能となってきたことには大きな意義がある。

三菱財団の助成は、光学定盤・レンズ等の光学部品の導入、低温顕微分光用試料ステージの導入、種々のマイクロ波アンテナ購入、ダイヤモンド基板の購入と加工費用 (研磨やカットなど) など、量子スピン顕微鏡開発に必須となる種々の用途に充当した。上記の成果および今後につながる計測基盤の強化は本助成によって初めて可能になったものである。ここに三菱財団に心から御礼申し上げる。

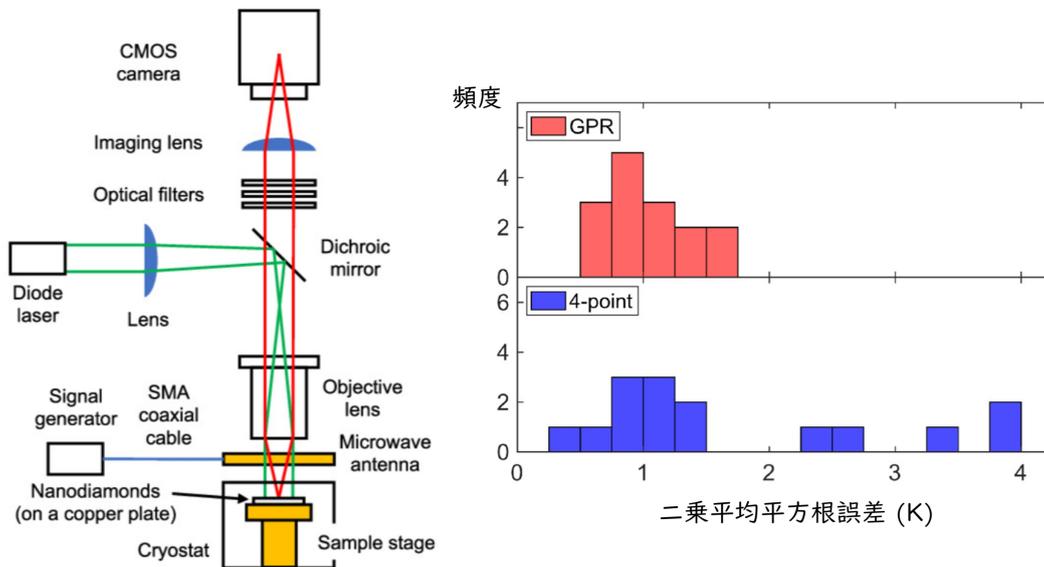


図 2. 機械学習を用いた量子温度センシング

(左図) 測定系の概念図。温度制御可能なステージにナノダイヤモンド量子センサをセットし ODMR スペクトルを高精度に取得。(右図) 従来手法である 4 点測定法 [下] と機械学習 GPR を用いた場合 [上] の二乗平均平方根誤差のヒストグラム。GPR を用いた解析手法の方が安定して信頼性の高い結果が得られることを示す。

(完)

## 発表論文

- 1) Hao Gu, Moeta Tsukamoto, Yuki Nakamura, Shu Nakaharai, Takuya Iwasaki, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Shinichi Ogawa, Yukinori Morita, Kento Sasaki, and [Kensuke Kobayashi](#), "Systematic characterization of nanoscale  $h$ -BN quantum sensor spots created by helium-ion microscopy," *Physical Review Applied* **22**, 054026 (2024).
- 2) Shunsuke Nishimura, Moeta Tsukamoto, Kento Sasaki, and [Kensuke Kobayashi](#), "Investigations of optical aberration on quantum diamond microscopy toward high spatial resolution and sensitivity," arXiv:2402.14422 (submitted).
- 3) Kensuke Ogawa, Moeta Tsukamoto, Yusuke Mori, Daigo Takafuji, Junichi Shiogai, Kohei Ueda, Jobu Matsuno, Kento Sasaki, and [Kensuke Kobayashi](#), "Wideband wide-field imaging of spin-wave propagation using diamond quantum sensors," arXiv:2411.17344 (submitted).
- 4) Moeta Tsukamoto, Zhewen Xu, Tomoya Higo, Kouta Kondou, Kento Sasaki, Mihiro Asakura, Shoya Sakamoto, Pietro Gambardella, Shinji Miwa, YoshiChika Otani, Satoru Nakatsuji, Christian L. Degen, and [Kensuke Kobayashi](#), "Observation of chiral domain walls in an octupole-ordered antiferromagnet," arXiv:2410.23607 (submitted).
- 5) Kouki Yamamoto, Kensuke Ogawa, Moeta Tsukamoto, Yuto Ashida, Kento Sasaki, and [Kensuke Kobayashi](#), "Nanodiamond quantum thermometry assisted with machine learning," *Applied Physics Express* **18**, 025001 (2025).

## 引用文献

- 1) J. R. Maze, P. L. Stanwix, J. S. Hodges, S. Hong, J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M. V. Gurudev Dutt, E. Togan, A. S. Zibrov, A. Yacoby, R. L. Walsworth, and M. D. Lukin, *Nature* **455**, 644 (2008).
- 2) C. L. Degen, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 243111 (2008).
- 3) J. M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P. R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, and M. D. Lukin, *Nature Phys.* **4**, 810 (2008).
- 4) Gopalakrishnan Balasubramanian, I. Y. Chan, Roman Kolesov, Mohannad Al-Hmoud, Julia Tisler, Chang Shin, Changdong Kim, Aleksander Wojcik, Philip R. Hemmer, Anke Krueger, Tobias Hanke, Alfred Leitenstorfer, Rudolf Bratschitsch, Fedor Jelezko, and Jörg Wrachtrup, *Nature* **455**, 648 (2008).
- 5) Andreas Gottscholl, Mehran Kianinia, Victor Soltamov, Sergei Orlinskii, Georgy Mamin, Carlo Bradac, Christian Kasper, Klaus Krambrock, Andreas Sperlich, Milos Toth, Igor Aharonovich, and Vladimir Dyakonov, *Nature Mat.* **19**, 540 (2020).
- 6) Kento Sasaki, Yuki Nakamura, Hao Gu, Moeta Tsukamoto, Shu Nakaharai, Takuya Iwasaki, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Shinichi Ogawa, Yukinori Morita, and Kensuke Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.* **122**, 244003 (2023).
- 7) Kensuke Ogawa, Shunsuke Nishimura, Kento Sasaki, and Kensuke Kobayashi, *Appl. Phys. Lett.* **123**, 214002 (2023).