

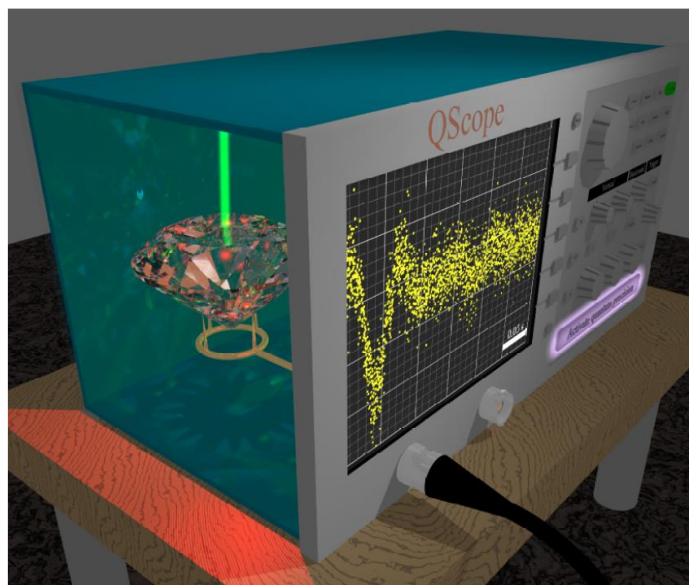
# 低周波信号の新規高感度量子センシング手法を開発 —NV 量子センサを用いた核磁気共鳴 (NMR) 世界最小線幅を実証—

## 概要

京都大学化学研究所 水落憲和 教授、E. D. Herbschleb 同特定助教、大木出 同研究員、スミダ電機株式会社 芳井義治 Vice President、国立研究開発法人 産業技術総合研究所 加藤宙光 上級主任研究員、牧野俊晴 研究チーム長らの研究グループは、低周波数の交流磁場を高感度に、且つ高周波数分解で計測できる新たな量子センシング手法を考案しました。

ダイヤモンド中の NV 中心を用いた量子センサ (NV 量子センサ) は、室温で動作し、高感度、高空間分解能を有することから注目されています。幅広い分野での応用が期待されていますが、核磁気共鳴 (NMR) 計測への応用の期待から、これまで NMR 線幅の先鋭化を実現する量子ヘテロダイン (Qdyne) 法などが開発され [1]、その実証研究が注目されていました。しかし、Qdyne 法での交流磁場計測では、数十 kHz 程度の周波数で最大感度を有し、周波数が変わると著しく感度が落ちるといった性質がありました。今回、新たな量子センシング手法を開発し、周波数にほぼ依存せず、高感度を維持することを実証しました。また、この手法を NV 量子センサに適用して、水分子の水素を低周波数 (数 Hz) で計測し、これまで NV 量子センサを用いて計測した NMR 信号の線幅としては世界最小線幅 (1.6 Hz) を実証しました。今回開発した手法は NMR 以外にも、低周波領域など幅広い周波数領域での応用研究で用いられることが期待されます。

本成果は、2022 年 9 月 22 日 (現地時刻) に米国の国際学術誌「Physical Review Applied」にオンライン掲載され、更に、Editors' Suggestion に選ばれました。



量子ヘテロダイン法を用いた NV 量子センサ内臓装置のイメージ

## 1. 背景

近年、超高感度センサや量子情報素子応用の観点からダイヤモンド中の NV 中心が注目されています。NV 中心について特筆すべき点としては、室温で 1 個 (単一) の NV 中心が有するスピンを観測でき、さらに他材料に比べ、室温でも際立って長いスピンコヒーレンス時間 ( $T_2$ ) を有する点があげられます。量子センサの観点では  $T_2$  が長いほど感度が良くなります。NV 中心では磁場、電場、温度、圧力などの高感度センサとしての応用が期待され、また 1 個 1 個を観測できる点から、ナノメートルレベルでの高空間分解能も実現できます。そのため、NV 中心による量子センサは高空間分解能、且つ高感度を要求される細胞内計測、タンパク質物質の構造解析などの生命科学分野や、微細なデバイス評価装置用センサなどへの応用も期待されています。また、センサ感度は一度に計測する NV 中心の数を増やすことにより、空間分解能が悪くはなりますが、さらに感度を飛躍的に高めることができます。原理的には、液体ヘリウムを用いないと動作できない超伝導量子干渉計の感度 (フェムトテスラ) レベルや、気相中のガスを用いた光ポンピング磁力計の感度 (フェムトテスラ) レベルに、固体でありながら室温でも到達することが期待できます。このため、心磁計、脳磁計などの医療機器を含め、極めて高い感度が要求される分野においても、幅広い応用が期待されます。

## 2. 研究手法・成果

近年、量子ヘテロダイン (Qdyne) 法[1]とよばれる、原理的にはスペクトル線幅を任意に先鋭化可能な手法が提案されました[1]。この手法により、NV 中心による核磁気共鳴 (NMR) 計測において、構造解析を行えるようなスピン間結合が観測できるほどのレベルのスペクトル線幅が得られることが実証されました[2]。しかし、Qdyne 法では、感度が数十 kHz 程度で最も良くなりますが、それ以外の周波数では著しく感度が落ちるといった課題がありました。我々はこの課題を解決すべく、検出信号の特に更なる低周波領域でも高感度を維持しつつ、スペクトル線幅を任意に先鋭化可能な計測を可能とする手法を考案しました。その新規手法による計測アルゴリズムの概略を図 1 に示しました。

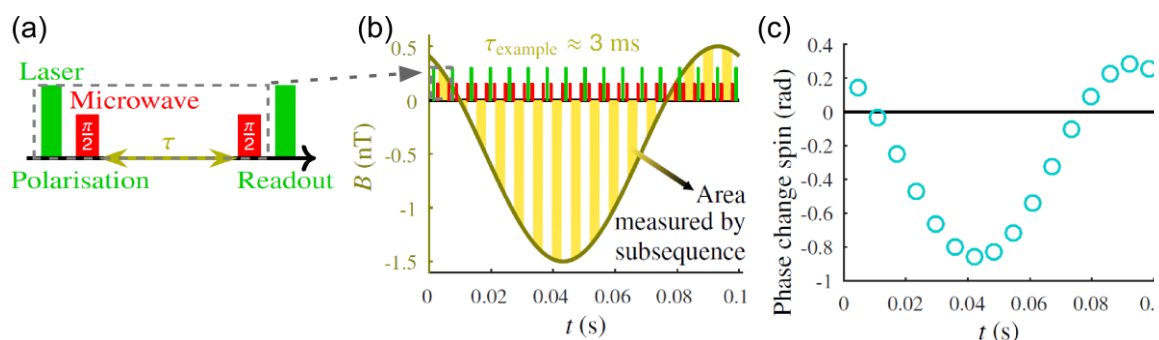


図1 新規手法による計測アルゴリズムの概略. (a) 自由誘導減衰信号の計測パルスシーケンス. 光励起(532 nm)照射によりスピンを初期化し、90 度マイクロ波パルスによりスピンコヒーレンスを生成し、 $\tau$  秒後の 90 度マイクロ波パルスによりコヒーレンスを分極に移し、その後、光読み出しを行う. (b) (a)の自由誘導減衰信号計測を繰り返し、黄色部での信号を計測する. (c) (b)の各黄色領域での信号 (磁場) 強度に応じてスピンコヒーレンスの位相の変化が計測され、信号 (磁場) 強度を計測される. このように信号 (磁場) をオシロスコープで観測するように計測できる.

本手法では、まず図 1 (a)に示す自由誘導減衰信号計測を行います。光励起(532 nm)照射によりスピンを初

期化し、次に 90 度マイクロ波パルスによりスピコヒーレンスを生成し、 $\tau$  秒後の 90 度マイクロ波パルスによりコヒーレンスを分極に移し、その後、光読み出しを行います。次に図 1 (b)に示しますように、図 1 (a)の自由誘導減衰信号計測を繰り返し、黄色部での信号を計測します。次に図 1 (c)に示しますように図 1 (b)の各黄色領域での信号（磁場）強度に応じてスピコヒーレンスの位相の変化が計測され、信号（磁場）強度を計測します。このように信号（磁場）をオシロスコープで観測するように計測できます。

我々は、考案した手法の感度の周波数依存性を実験、及び理論的に見積もりました。その結果を図 2 に示します。図 2 には単一 NV 中心を用いた場合の実証実験結果を、従来技術であるハーンエコー法による感度の周波数依存性（ピンク色点線）とパルス光検出磁気共鳴法（オレンジ色点線）との比較も含めて示しました。新規手法の実証実験結果を青色の点で示しています。ピンク色の点で示した従来技術での結果（シミュレーション結果）は、低周波数側では数百 Hz の領域において感度が著しく悪くなります。一方で、青色で示した本手法の実証実験結果では、1 Hz レベルの低周波数から実証実験を行い、低周波領域でも感度を維持できていることが示されています。図 2 に示した実証では 1 個の NV 中心を用いた際の結果で、感度としては約  $10 \text{ nT}/(\text{Hz})^{1/2}$  が実現することを示しています。多数の NV 中心を含むアンサンブル系での測定により、更なる桁違いの高感度化が期待できます。

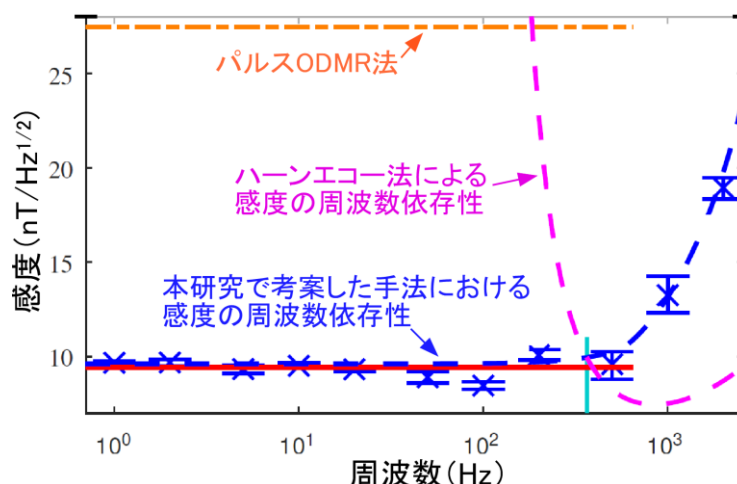


図 2 新規低周波交流磁場の測定法による感度の周波数依存性. 青色で示した点線がシミュレーション結果で青色の×点が実験結果. 従来技術であるハーンエコー法による感度の周波数依存性（ピンク色点線）とパルス光検出磁気共鳴法（オレンジ色点線）との比較（シミュレーション）も含めて示している.

我々は更に、この手法により、水分子の NMR を NV 中心により計測しました。その結果を図 3 に示します。この測定における試料は既存の NMR 装置の磁場中におかれ、ダイヤモンド試料に誘導された NMR 信号を NV 中心により計測しています。図 3 (b)に示しますように、最小で 1.6 Hz の線幅が計測され、これはこれまでの最小値 (>10 Hz) に比べ細く、NV 中心を用いて計測した NMR 信号の線幅としては、世界最小線幅を実証しました。

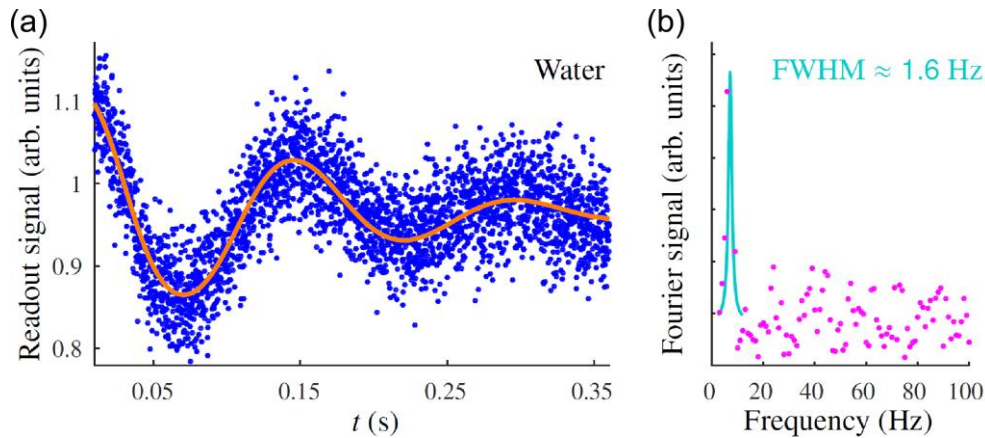


図3 新規手法により NV 中心によって計測された水分子の NMR 計測. (a) 水分子の水素核スピンの自由誘導減衰 NMR 信号、(b) (a)をフーリエ変換して得られた NMR スペクトル.

### 3. 波及効果、今後の予定

今回の実証実験では核スピンの磁場を計測しましたが、今回考案した手法は、磁場以外にも電場、温度、圧力などの物理量を計測することも可能です。また、NV 中心以外の他の量子センサでも適用できます。今回開発した手法は、低磁場 NMR で得られる低周波数の NMR 信号の計測にも用いることも期待されます。低磁場 NMR では、一般的な高磁場 NMR とは異なった情報を与えてくれることから応用が期待され、化学分析[3]や、素粒子研究への応用[4]など、幅広い分野での適用が期待されます。今後は、これらの実証実験への展開も行っていきたいと考えています。

### 4. 研究プロジェクトについて

本研究は、科学研究費・基盤 A 「ダイヤモンド NV 中心の量子状態高度制御による量子センシング顕微鏡計測研究」（代表者：水落憲和、21H04653）、科学技術振興機構 産学共創プラットフォーム共同研究推進プログラム（OPERA）（代表者：木本恒暢、No. JPMJOP1841）の支援を受けて行われました。

#### <用語解説>

**交流磁場**：周期的に変化する交流電流などにより発生する磁場。

**量子ヘテロダイン (Quantum heterodyne : Qdyne) 法**：パルス列で得られる信号の時間系列データをフーリエ変換してスペクトルを取得する手法[1]。原理的には周波数分解能がクロックの安定性のみ制限されるため、周波数の高分解能化が期待できる。核磁気共鳴 (NMR) 線幅の先鋭化を実証し、注目されている[2]。各パルス列ではデカップリング法により信号を計測するため、特定の周波数で高感度を実現できるが、それ以外の周波数では感度が落ちてしまうという性質を有する。

**スピンコヒーレンス時間 ( $T_2$ )**：スピンを用いて 0 と 1 の量子的な重ね合わせ状態を実現できるが、その重ね合わせ状態が  $1/e$  の大きさ（およそ 0.37,  $e$  は自然対数の底）に小さくなるまでの時間をスピンコヒーレンス時間  $T_2$  と呼ぶ。磁気共鳴スペクトルにおける均一線幅は  $T_2$  の逆数に依存し、 $T_2$  が長ければ均一線幅も狭くなる。これはセンサ感度が良くなることに対応。

## 参考文献

- [1] S. Schmitt, et al., Science, 356, 832-837 (2017). DOI: 10.1126/science.aam5532.
- [2] Glenn, D., Bucher, D., Lee, J. et al. Nature 555, 351–354 (2018). DOI: 10.1038/nature25781
- [3] Barskiy, D.A., et al., Nat. Commun. 10, 3002 (2019). <https://doi.org/10.1038/s41467-019-10787-9>
- [4] A. GARCON, et al., Science advances, 5 :eaax4539 (2019). DOI: 10.1126/sciadv.aax4539

## <論文タイトルと著者>

タイトル："Low-frequency quantum sensing" (低周波量子センシング)

著者：E. D. Herbschleb, Y. Ohki, K. Morita, Y. Yoshii, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, N. Mizuochi

掲載誌：Physical Review Applied, 18, 034058 (2022). DOI : 10.1103/PhysRevApplied.18.034058