

本記事は,文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ」秀でた利用成果について紹介するものです.

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

量子センシングのためのマイクロ波アンテナ作製

東京大学 小林 研介, 佐々木 健人, 小河 健介, 塚本 萌太, 西村 俊亮, 中村 祐貴, 顧 豪, 山本 航輝, 小林 拓, 須田 涼太郎, 原田 怜

東京大学 豊倉 敦, Eric Lebrasseur, 天谷 諭, 水島 彩子, 太田 悦子, 落合 幸徳, 三田 吉郎 ほか 武田先端知スーパークリーンルーム支援チーム



前列左から 落合,豊倉,天谷,後列左から 太田,小林,佐々木,三田,枠内水島(敬称略) 東京大学武田先端知スーパークリーンルーム UV プリント基板加工装置(ProtoLaser U4)の前にて(武田先端知ビル 204 号室)



物性物理学は、磁性や超伝導といった量子多体系が生み出す多彩な現象を理解し制御することを目指す学問である。これらの複雑な現象を解き明かすためには、物質の性質を精密に測定することも必須である。1980年代以降、微細加工技術の進展により、極めて小さな電気回路、いわゆるメゾスコピック系(ナノデバイス)が作製可能となり、微小スケールでの量子多体現象を精密に測定・理解・制御する研究が大きく発展してきた。メゾスコピック系の分野において中心的な手法となってきたのが電気伝導測定である。精密な測定に基づく定量的な理解の積み重ねは、現在急速に発展している量子コンピュータに代表される量子技術研究に直結している。

磁気的性質の探究に目を向けると、事情はやや異なる. メゾスコピック系の磁気的性質に関するこれまでの研究 の多くは、スピン依存伝導や異常ホール効果などを用い た電気測定に基づく.しかし、近年、スピントロニクス や二次元ファンデルワールス(vdW)材料研究の発展 [1] によって、磁気的性質を直接検出(可視化)する必要性がさらに高まっている.

代表的な可視化手法としては、磁気光学顕微鏡、磁気力顕微鏡、X線磁気円二色性顕微鏡、走査型 SQUID 顕微鏡などが挙げられる。それぞれに長所と短所が存在する。たとえば磁気光学顕微鏡は感度が高く高速測定が可能であるが、磁気光学カー効果を介した間接的な測定であり、磁化の絶対値を直接得ることはできない。磁気力顕微鏡は高い空間分解能を持つものの、磁性体プローブが測定対象に磁気的影響を与えるおそれがあり、また磁気力を測定するという特性上、磁化や磁場に関する定量的な情報の取得には限界がある。さらに、真空中や低温下での安定した測定も容易ではない。

このように、多様な手法が存在するにもかかわらず、 広い磁場・温度範囲にわたってメゾスコピック系の磁気 的性質を直接かつ定量的に可視化できる測定技術は、依 然として確立されていないのが現状である.

私たちはこの課題に対して, 色中心量子センサを用い

た広視野量子スピン顕微鏡(以下,量子スピン顕微鏡)の開発に取り組んでいる。色中心量子センサは,高い定量性と広い環境適応範囲(磁場・温度・圧力)を持ち,既存の可視化手法が抱えている制約を本質的に克服できる可能性を有する。後述するように,量子スピン顕微鏡はこれまで困難であった広範な条件下での精密な磁場マッピングを可能にし,精密物性物理学に新たな地平を開拓するツールとなりうる。

私たちは、量子スピン顕微鏡に不可欠な要素技術として、マイクロ波アンテナの開発を進めてきた。本研究にあたっては、ARIM(文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ)の一環である東京大学武田先端知スーパークリーンルームから温かいご支援を頂いている。幸い、私たちの取り組み「量子センシングのためのマイクロ波アンテナ作製」は令和6年度「秀でた利用成果」優秀賞を頂いた。受賞者は小林研究室一同(小河健介、塚本萌太、西村俊亮、中村祐貴、顧豪、山本航輝、小林拓、須田涼太郎、原田怜、佐々木健人、小林研介)である。光栄なことであり研究室にとって大きな励みになっている。

以下では、私たちの研究の概要と、マイクロ波アンテナ作製の内容について説明し、得られた研究成果の一端を紹介する.

2. 色中心量子センサと量子スピン顕微鏡

本研究で量子センサとして用いる色中心は、ダイヤモンド結晶中の窒素空孔欠陥 (NV 中心) および六方晶窒化

ホウ素(hBN)結晶中におけるホウ素空孔欠陥(V_B 欠陥)の 2 種類である(2 1).

先に NV 中心について説明する。図1左に示す。NV 中心は光励起後の発光過程に電子スピンに依存する独特の経路を持つ。1997年,この性質を利用した光検出磁気共鳴(optically detected magnetic resonance, ODMR)によって単一の NV 中心のスピン状態を光学的に読み出し可能であることが示された[2]。さらに 2008 年には,ODMR を応用した局所磁場観察技術が提案され,広視野での磁場分布イメージングが可能となった[3][4][5][6]。

NV 中心のスピン準位は、外部磁場の印加によりゼーマン分裂する。このため、広視野(典型的には数 μm ~100μm 四方)にわたって多数の NV 中心を同時に測定すれば、ダイヤモンド表面に密着させた試料の磁場分布を直接可視化することができる。図2に模式図を示した。ダイヤモンドが可視光に対して透明であるという特性がこの測定を可能にしている。これが量子スピン顕微鏡の基本的なアイデアである。

単純な ODMR 測定によって磁場を推定するだけでなく、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、直流 (DC) からギガヘルツ (GHz) 帯域に至る幅広い周波数レンジでダイナミクスを検出することも可能である. さらに, NV 中心による計測は, ①ミリケルビン (mK) から 600 ケルビン (K) までの広い温度範囲, ②ゼロ磁場から 9 テスラ (T) までの広い磁場範囲, ③超高真空から超高圧に至る幅広い圧力環境に対応できる.

このように NV 中心は広い汎用性と定量的な磁場検出能力を持つ優れた量子センサである. 私たちは 2019 年以降,

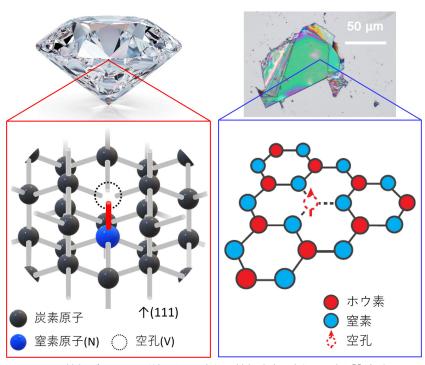


図 1 (左)ダイヤモンド結晶と NV 中心. (右)六方晶窒化ホウ素と V_B 欠陥.

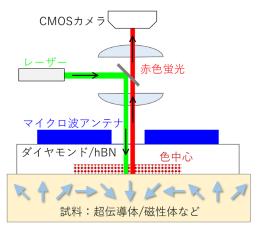


図 2 NV 中心を用いた量子スピン顕微鏡の概念図.

NV 中心を用いた量子スピン顕微鏡の技術開発を行ってきた. 図3 (a) に私たちが自作した量子スピン顕微鏡の例を示す. 図3 (b) はフロッピーディスクからの漏れ磁場をイメージングしたものである. 併せて ODMR スペクトルの例も示す. スペクトルに現れる二つのディップの周波数差がゼーマン分裂に対応している. この分裂幅を画像の各ピクセルで解析することによって, 磁場をイメージングできる.

2020年、hBN 結晶内の V_B 欠陥(図1右)においても同様の ODMR が可能であることが示された [7]. V_B 欠陥はダイヤモンド NV 中心に比べて研究の歴史が浅く、量子センサとして実用化するためには未解決の課題が多い、しかし、hBN は劈開性を持つ二次元材料であり、その極薄のシートを用いることで、 V_B 欠陥を容易にメゾスコピック系デバイスと一体化できる。この特性は、硬質で厚みを持つダイヤモンド基板にはない独自の優位性を提供する。したがって、私たちは NV 中心および V_B 欠陥の

それぞれの特性と利点を活かしながら、量子スピン顕微 鏡技術の開拓を進めている.

3.マイクロ波アンテナと ARIM 利用

NV 中心を用いる実験では、レーザーとマイクロ波を組み合わせて NV 中心内のスピン状態を制御し、読み出すことが基本である。この際、電子スピン共鳴に必要なマイクロ波印加用のアンテナが重要な役割を果たす。

通常の電子スピン共鳴では共鳴周波数付近において高いQ値(例:2万程度)を持つアンテナが用いられる.しかし,NV中心の場合は磁場によって共鳴周波数が変化するため,広帯域のアンテナが望ましい.また,磁場イメージングにおいては、マイクロ波を空間的に均一に照射することが重要である.

加えて、アンテナは 1mm 角程度のダイヤモンド結晶の 直近に置く必要がある. さらに、NV センタからの蛍光を 測定するために視野を遮らない工夫も求められる. その ため、目的に応じて、コプレーナ導波路とワイヤを組み 合わせたアンテナや、共振器型ループアンテナなど、複 数の種類を使い分ける必要がある.

以上のことから、実際には、ダイヤモンド結晶の形状・サイズ、測定対象、測定環境に応じて、適切なアンテナをその都度設計・作製しなければならない。このプロセスは非常に手間のかかる作業である。サブミリスケールの精度が要求されるため、従来はフォトリソグラフィ技術を用いていた。しかし、マスク作製のために業者とのやりとりが必要であり、多大な時間と費用がかかることが課題であった。

この問題を解決したのが, 武田クリーンルームに設置

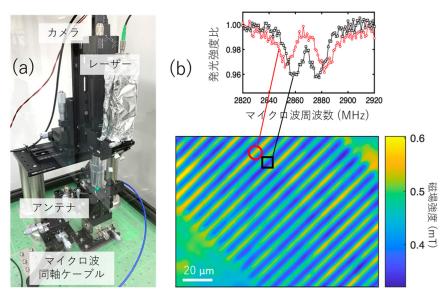


図3 (a) 自作の量子スピン顕微鏡. (b) フロッピーディスクからの漏れ磁場のイメージング(下段). ODMR スペクトルの例を上段に示す. スペクトルに現れる二つのディップの周波数差がゼーマン分裂に対応している.

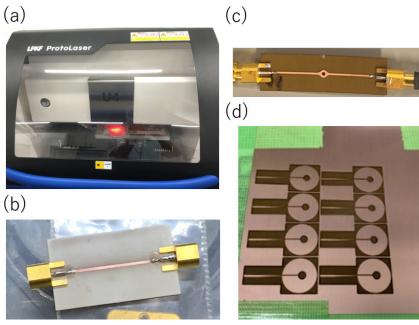


図4 (a) UV プリント基板加工装置 (ProtoLaser U4) でアンテナを作製している様子. (b) アルミナ基板上のマイクロストリップライン. 5mm 幅の SMP 端子を使用. (c) アンビルセル用ストリップライン. (d) 光学測定用開口付ループギャップ共振器. 正方形部分のサイズは 15mm 四方. (c) および (d) は厚み 0.3mm の両面銅箔 FR4 基板で作製.

されている UV プリント基板加工装置(ProtoLaser U4)である。汎用 CAD ファイルを入力すればプリント基板上に $20\mu m$ の精度でマイクロ波アンテナを加工できる。 さらに、設計パラメータを少しずつ変えた複数のアンテナ(例えば 10 個程度)を一括して作製し、その中から最適な性能を持つものを選択できるという大きな利点がある。作製したアンテナの例を図 4 に示す。レーザー直接描画装置(DWL66⁺)も種々のアンテナを試作するうえで欠かせない。

これらの装置群の活用により、これまで困難であった 高圧・低温環境下でのNV中心計測にも対応可能となった. 現在、私たちが使用しているアンテナのほとんどは、武田クリーンルームにおいて作製されたものである.

4. ARIM との関わり

ここで、私たちが ARIM を利用するようになった経緯について触れておきたい.

本稿の著者の一人である小林は,2019年に大阪大学大学院理学研究科から現所属の東京大学大学院理学系研究科に異動してきた.それ以前,小林は,約20年間にわたりメゾスコピック系における電気伝導現象の研究に従事してきた.たとえば,量子ドット中の単一電子に由来する近藤効果を実験的に研究してきた.

しかし、電気伝導測定では磁気的性質を直接的に検出することが難しく、もどかしく感じることもあった. 例えば、近藤効果の本質はスピン一重項(近藤シングレット)の形成に伴う磁性の消失である. しかし伝導度測定では

非磁性になったことを直接に知ることはできない. そこで,東京大学で新たに研究室を立ち上げるにあたり,色中心量子センサを用いてメゾスコピック系の磁性をより直接的に研究するという新たな分野へ挑戦することを決意した.

転出を機に新分野に挑戦することには、やはり相応のハードルがあった。まず、大阪と比べて東京では研究室面積の制約が大きく、異動の際に複数の装置を手放さざるを得なかった。さらに、小林自身が量子センシング分野では新参者であり、必要な研究設備を一から揃える資源にも限りがあった。

ちょうどそのタイミングで東京大学武田先端知スーパークリーンルームの存在を知り、2020年夏に責任者である三田 吉郎先生に連絡を取った。三田先生は快く私たちをユーザーとして受け入れてくださった。その際にお伺いした「武田クリーンルームは、昭和に遡る先人の思いのつまったクリーンルーム」という三田先生の熱い思いと「共有から共創へ」という武田クリーンルームの理念は、今なお印象深く心に刻まれている。

利用開始当初は、施設にどのような装置が揃っているかすら十分に把握できていなかった。しかし、ダイヤモンド基板表面のラフネス測定を試みた際、技術支援員の方から AFM 測定について極めて専門的な助言をいただくことができた。特に、ダイヤモンドは帯電しやすく、適切な除電処理を施さなければ AFM 測定が困難であること、さらに除電方法についても具体的な指導を受けられたことは非常に有益であった。

また、マイクロ波アンテナ作製に関しても、上に述べ たような最適な装置選定と使用法に関するきめ細かな支 援を受けた. 現在, 小林研究室の研究活動は, 武田クリーンルームなくしては成立し得ない状況にある.

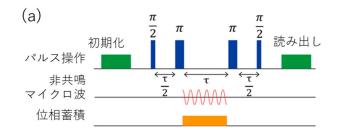
以下では、ARIM 利用によって得られた具体的成果として、「マイクロ波イメージング」と「超伝導量子渦の観測」について紹介する.

5. マイクロ波イメージング

私たちは NV 中心を用いたマイクロ波のイメージングを行った [8]. NV 中心は、その特性上、共鳴周波数 2.87GHz のマイクロ波に敏感であり、これを利用してマイクロ波デバイスの評価や磁性体中のマグノンの可視化などが可能である。しかし、この手法には共鳴周波数付近以外では測定が難しいという制約がある。磁場によって NV 中心の共鳴周波数を変化させることは可能であるが、その場合、磁場が測定対象の本来の性質を変化させてしまうおそれがある。

そこで新しいプロトコルとして提案されたのが AC ゼーマン効果を検出する方法である。AC ゼーマン効果とは、マイクロ波照射下で NV 中心の共鳴周波数がわずかにシフトすることを指す。この効果自体は実証されていたが、イメージング測定への適用例は無かった。

私たちは量子スピン顕微鏡を用いて、AC ゼーマン効果の検出に成功した。図5(a)と(b)にAC ゼーマン効果を測定するプロトコルと広視野顕微鏡の概念図を示す。用いたマイクロ波アンテナは武田クリーンルームで作製



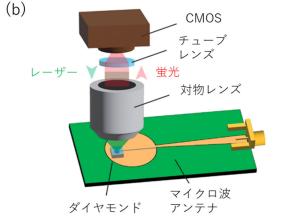


図 5 (a) AC ゼーマン効果を測定するプロトコル. (b) 武田クリーンルームで作製したマイクロ波アンテナを有する 広視野量子スピン顕微鏡の概念図 [8].

したものである.この手法を用いて、マイクロ波平面リングギャップアンテナの周波数応答やオメガ型アンテナ上のマイクロ波振幅の空間分布を広帯域で可視化できることを示した.さらに、ダイナミカルデカップリングと呼ばれる手法を導入することで感度を大幅に向上させることも実証した [8].

この成果は、NV中心を駆使した新しい広帯域・広視野マイクロ波センシングの基礎を築くものであり、微小領域における電磁波の振る舞いや磁気ダイナミクス探求に寄与する大切な一歩となる。本成果は Applied Physics Letters 誌の Editor's pick に選定された。また、最近この成果を発展させ広帯域でスピン波の実空間観測に成功した [9].

6. 超伝導量子渦の観測

超伝導体における量子渦は、巨視的な量子現象の現れであると同時に、超伝導体の特性を理解する上で重要な情報を与えてくれる。その可視化には様々な技術が応用されてきた。私たちは、2023年にダイヤモンド量子センサを用いて、超伝導薄膜内の量子渦から発生した磁場を広視野かつ高精度にイメージングすることに初めて成功した[10]。現在も様々な超伝導体に対して量子渦の研究を行っている。以下に例を示す。

NV 中心を表面に有するダイヤモンド基板を超伝導体 NdBa₂Cu₃O₇₋₈ 薄膜 (転移温度 93.9K) にワニスで貼り付け,光学クライオスタット中のステージ上に設置した. コイルを用いて磁場を印加しながら,ステージの温度を超伝導転移温度以上から以下に下げる「磁場中冷却」を行い,超伝導体に量子渦を生成した. 量子スピン顕微鏡を用いると量子渦からの漏れ磁場を精密に測定できる. 具体的には,CMOS カメラで顕微鏡の視野全体に対して ODMR 測定を行い,ピクセル毎に磁場を抽出することによって,量子渦を可視化する.

図 6 が測定結果である。磁場中冷却を行い、60K で測定した磁場の像である。図の左上から右下に向かって印加磁場を増やしている。それに伴い、明るいスポットの数が増えていく様子が分かる。これが量子渦である。どのスポットからも同程度の磁場(約 40μ T)が出ていることは、量子渦からの磁束が量子化していることの現れである。また、このことは減衰することのない電流(永久電流)がそれぞれの量子渦の周囲に流れ続けていることを物語る。

測定結果を詳しく解析することによって,超伝導薄膜の単位面積あたりに生じる量子渦の個数が,印加磁場の大きさに正確に比例していることが分かる。また,観測した多数の量子渦の磁場を統計的に解析することによって,磁束の量子化が起きていることを実証できる。

超伝導体の量子渦についてはこれまでに多くの研究が

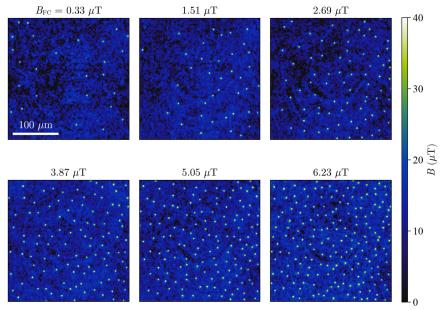


図 6 超伝導量子渦の実空間イメージング結果、超伝導体 $NdBa_2Cu_3O_{7.5}$ 薄膜を磁場中冷却し 60K で測定した磁場の像、明るいスポットが量子渦である、どのスポットからも同程度の磁場(約 $40\mu T$)が出ていることは量子渦からの磁束が量子化していることの現れである。

行われてきたが、本研究は初めて広視野で多数の量子渦を同時に精密観測するという新手法を実証したものである。今後は、発現機構が分かっていない超伝導メカニズムの解明や、新しい超伝導体の探索、高圧下での高温超伝導体の観測などへの展開が期待される.



本稿では、色中心量子センサを利用した広視野量子スピン顕微鏡の開発、特にその中核技術となるマイクロ波アンテナの作製について紹介した。さらに、この技術を活用した応用例として、広帯域マイクロ波センシングおよび超伝導量子渦の高精度イメージングの成果について述べた。私たちは、これらの取り組みを通じて、「量子センサによる直接・定量的な物性可視化」という新たな物性物理学の方向性を切り拓きつつある。上にご紹介した成果に加え、私たちは現在、さらなる技術発展と応用展開に向けた研究を進めている[11][12][13][14][15][16][17]。今後も、量子スピン顕微鏡の機能強化と様々なメゾスコピック系への適用を進め、量子センシングによる精密物性科学への貢献に取り組んでいきたい。



東京大学 武田先端知ビル スーパークリーンルームでは 最高の状態で装置が維持管理されています. 常日頃より 手厚くご支援下さる, 豊倉 敦, Eric Lebrasseur, 天谷 諭, 水島 彩子,太田 悦子,三田 吉郎,落合 幸徳(敬称略)ほか, 武田クリーンルーム支援チームの皆様に心より感謝申し上げます. さらに、このような全国規模で研究者をご支援くださる ARIM(文部科学省 マテリアル先端リサーチインフラ)と関係者の皆様に深く御礼を申し上げます.

また、本研究の一部は JST CREST (JPMJCR23I2) および科学研究費助成事業 (Nos. JP25H01248, JP24K21194, JP23K25800, JP25K00934, JP22K03524) の支援を受けています.



- [1] 例えば、B. Huang, G. Clark, E. Navarro-Moratalla, D.R. Klein, R. Cheng, K.L. Seyler, D. Zhong, E. Schmidgall, M.A. McGuire, D.H. Cobden, W. Yao, D. Xiao, P. Jarillo-Herrero, X. Xu, Layer-dependent ferromagnetism in a van der Waals crystal down to the monolayer limit, Nature **546**, 270 (2017).
- [2] A. Gruber, "Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers," Science **276**, 2012 (1997).
- [3] J.R. Maze, P.L. Stanwix, J.S. Hodges, S. Hong, J.M. Taylor, P. Cappellaro, L. Jiang, M.V.G. Dutt, E. Togan, A.S. Zibrov, A. Yacoby, R.L. Walsworth, M.D. Lukin, "Nanoscale magnetic sensing with an individual electronic spin in diamond," Nature 455, 644 (2008).
- [4] C.L. Degen, "Scanning magnetic field microscope with a diamond single-spin sensor," Appl. Phys. Lett., **92**, 243111 (2008).
- [5] J.M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D.

- Budker, P.R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, M.D. Lukin, "High-sensitivity diamond magnetometer with nanoscale resolution," Nature Physics 4, 810 (2008).
- [6] G. Balasubramanian, I.Y. Chan, R. Kolesov, M. Al-Hmoud, J. Tisler, C. Shin, C. Kim, A. Wojcik, P.R. Hemmer, A. Krueger, T. Hanke, A. Leitenstorfer, R. Bratschitsch, F. Jelezko, J. Wrachtrup, Nanoscale imaging magnetometry with diamond spins under ambient conditions, Nature 455, 648 (2008).
- [7] A. Gottscholl, M. Kianinia, V. Soltamov, S. Orlinskii, G. Mamin, C. Bradac, C. Kasper, K. Krambrock, A. Sperlich, M. Toth, I. Aharonovich, V. Dyakonov, "Initialization and read-out of intrinsic spin defects in a van der Waals crystal at room temperature," Nature Materials 19, 540 (2020).
- [8] K. Ogawa, S. Nishimura, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Demonstration of highly sensitive wideband microwave sensing using ensemble nitrogen-vacancy centers," Appl. Phys. Lett. 123, 214002 (2023).
- [9] K. Ogawa, M. Tsukamoto, Y. Mori, D. Takafuji, J. Shiogai, K.Ueda, J. Matsuno, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Wideband wide-field imaging of spin-wave propagation using diamond quantum sensors," Phys. Rev. Appl. 23, 054001 (2025).
- [10] S. Nishimura, T. Kobayashi, D. Sasaki, T. Tsuji, T. Iwasaki, M. Hatano, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Wide-field quantitative magnetic imaging of superconducting vortices using perfectly aligned quantum sensors," Appl. Phys. Lett. 123, 112603 (2023).
- [11] M. Tsukamoto, S. Ito, K. Ogawa, Y. Ashida, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Accurate magnetic field imaging using nanodiamond quantum sensors enhanced by machine

- learning," Scientific Reports 12, 13942 (2022).
- [12] K. Sasaki, Y. Nakamura, H. Gu, M. Tsukamoto, S. Nakaharai, T. Iwasaki, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Ogawa, Y. Morita, K. Kobayashi, "Magnetic field imaging by hBN quantum sensor nanoarray," Appl. Phys. Lett. 122, 244003 (2023).
- [13] K. Sasaki, Y. Nakamura, T. Teraji, T. Oka, K. Kobayashi, "Demonstration of geometric diabatic control of quantum states," Phys. Rev. A 107, 053113 (2023).
- [14] K. Sasaki, T. Taniguchi, K. Kobayashi, "Nitrogen isotope effects on boron vacancy quantum sensors in hexagonal boron nitride," Applied Physics Express 16, 095003 (2023).
- [15] H. Gu, M. Tsukamoto, Y. Nakamura, S. Nakaharai, T. Iwasaki, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Ogawa, Y. Morita, K. Sasaki, K. Kobayashi, Systematic characterization of nanoscale hBN quantum sensor spots created by helium-ion microscopy, Physical Review Applied 22, 054026 (2024).
- [16] K. Yamamoto, K. Ogawa, M. Tsukamoto, Y. Ashida, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Nanodiamond quantum thermometry assisted with machine learning," Applied Physics Express 18, 025001 (2025).
- [17] Y. Nakamura, S. Nishimura, T. Iwasaki, S. Nakaharai, S. Ogawa, Y. Morita, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Sasaki, K. Kobayashi, "Systematic investigation of dynamic nuclear polarization with boron vacancy in hexagonal boron nitride," Phys. Rev. B 111, 195404 (2025) [Editors' Suggestion].

(東京大学 大学院理学系研究科 物理学専攻 小林 研介, 佐々木 健人)



【お問い合わせ】

東京大学マテリアル先端リサーチインフラ・ データハブ拠点

☎ 微細構造解析部門:03-5841-6372

☎ 微細加工部門:03-5841-1506 E-mail info@arim.t.u-tokyo.ac.jp

ホームページ

https://arim.t.u-tokyo.ac.jp/