

室温下で SiC 中の単一スピン情報の電氣的読み出しを実現 ～ 高効率な電氣的読み出しを実証し、量子デバイスの集積化に道拓く ～

ポイント

- ✧ 室温下にて SiC 結晶中の単一スピン情報の電氣的読み出しに成功。
- ✧ 従来の光学的手法を越える高効率なスピン情報読み出しを実現。
- ✧ 室温動作可能な集積量子デバイスの実現につながると期待。

概要

西川哲理 京都大学化学研究所助教、森岡直也 同准教授、水落憲和 同教授、大島武 QST 高崎量子技術基盤研究所量子機能創製研究センター長/東北大学大学院工学研究科特任教授、土田秀一 電力中央研究所エネルギー変換・変電・送電研究本部研究参事らの共同研究グループは、4H 型炭化ケイ素 (SiC) 結晶中の原子の抜け穴に存在する一つの電子スピンの情報を、光照射により発生する光電流の計測 (PDMR 法) によって、室温下で電氣的に読み出すことに成功しました。

私たちの生活をより快適・安全・安心にするための様々な次世代技術、例えば、半導体微細化技術の限界や電力消費の増大から従来のスーパーコンピュータに代わるコンピュータ、情報セキュリティ強化から盗聴不可能な暗号通信技術が、生命科学や新材料の探求から高精度・高感度なセンシング技術が要求されています。これらの技術を実現する量子デバイスの開発に向け、SiC 結晶中のシリコン原子の抜け穴であるシリコン空孔が持つ電子スピンは、室温で状態の初期化・操作・読み出しが可能であることから注目を集めています。また、SiC は半導体材料としても優れているため、半導体集積回路と親和性の高い電氣的なスピン読み出し技術を用いることで量子デバイスの小型化・集積化が期待されています。しかし、既存のシリコン空孔の電氣的スピン読み出し技術は効率が低く、量子情報応用や高空間分解能な量子センサへの応用に不可欠な単一スピンの検出が困難でした。

本研究では電流検出素子の構造と動作条件を工夫してほぼ理想的な電荷検出効率を実現し、且つリーク電流を抑制することにより、単一シリコン空孔からの微弱なスピン信号の高効率な検出に成功しました。また、電流生成のための光照射パターンの制御により、光電流検出が既存の蛍光による検出 (ODMR 法) よりも優れた信号対雑音比を持つことを実証しました。これにより、室温動作が可能な集積 SiC 量子デバイスの実現が期待されます。

本研究成果は、2025 年 4 月 15 日に国際学術誌「*Nature Communications*」にオンライン掲載されました。

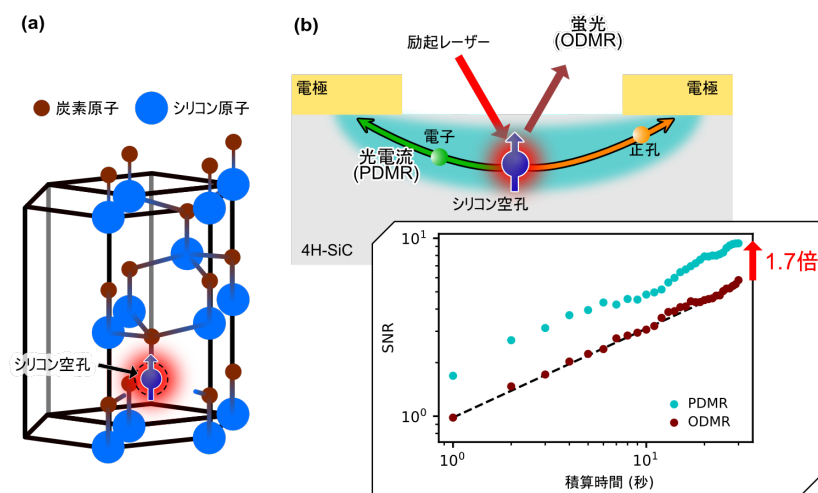


図 (a) 4H-SiC 結晶中のシリコン空孔。(b) 本研究概要。4H-SiC 中のシリコン空孔にレーザーを照射し、蛍光・光電流からスピン状態を読み出す。PDMR では ODMR の約 1.7 倍の SNR を記録し、スピン状態読み出しにおける優位性を示した。

1. 背景

固体結晶の原子配列における不純物や抜け穴・位置ずれなどの原子レベルの欠陥は、その構造に応じて様々な特性を発現します。その中でも、室温で操作可能な電子スピンを有し、電子スピン状態の初期化・読み出しが可能な欠陥は、量子情報・量子通信・量子センサなどの量子技術分野への応用が期待されています。このような欠陥は、蛍光の強さを計測する手法（ODMR 法(※1)）によってスピン情報の読み出しが行われてきましたが、大規模な光検出系を必要とせず小型・集積化が可能なスピン読み出し技術として、電気的な読み出し技術が重要です。ダイヤモンド中の窒素空孔（NV）中心^[3,4]や SiC 中のシリコン空孔(※2)^[1,2]は、光照射によって発生する光電流の計測を用いたスピン状態の検出（PDMR 法(※3)）が実証され、量子素子候補として注目されていました。理論的には、PDMR 法では従来の ODMR 法と比べてスピン状態の読み出しにおける信号対雑音比（SNR）(※4)が高くなると予想されていました^[5]。しかし、実験的には PDMR 法の SNR は ODMR 法には及んでおらず、単一レベルでのシリコン空孔電子スピンの読み出しが困難となっていました。

2. 研究手法・成果

本研究では、電力中央研究所が作製した高純度な SiC 結晶に、QST にて高度な条件制御下での電子線照射を実施、その後熱処理を施すことで、一個一個の識別可能なシリコン空孔を作製した試料を用いました。この試料上に PDMR 検出のための電流捕集用電極と、シリコン空孔のスピン状態操作のためのラジオ波印加用アンテナを有した PDMR デバイスを作製しました(図 1(a))。SiC は優れた半導体であるゆえに電流が流れやすく、1 個のスピンからの微小な信号を計測するためにはリーク電流の低減が鍵となります。このデバイスでは、先行して単一スピンの PDMR 検出が実現しているダイヤモンドでの研究^[3,4]とは異なり、ショットキー電極を用いることで、電極からデバイス内部へのリーク電流を抑制可能であり、且つ電極間距離と電圧印加条件の適切な設計により、ほぼ 100 % の電流捕集効率を実現可能です^[6]。また本研究では、単一シリコン空孔からの光電流計測に基づいて、これまで正確に理解されていなかったシリコン空孔における光電流生成のダイナミクスを明らかにし、この結果に基づいて、スピン信号を高効率に観測するためのレーザー照射パターンの改良を行い

ました。

まず、作製したデバイスの評価を行いました。図 1(b)に蛍光検出と光電流検出によるデバイス内部のイメージング結果を示します。蛍光検出において、図の中心 A に単一シリコン空孔が観察され、対応する位置に明瞭なスポット状の光電流像が観測できています。また光電流検出像では、蛍光検出では見られないスポット像(X)も観測されました。この欠陥の起源は未知ですが、蛍光検出像では観測されない SiC 中の単一欠陥についても高感度な光電流検出が可能であることを示唆しています。

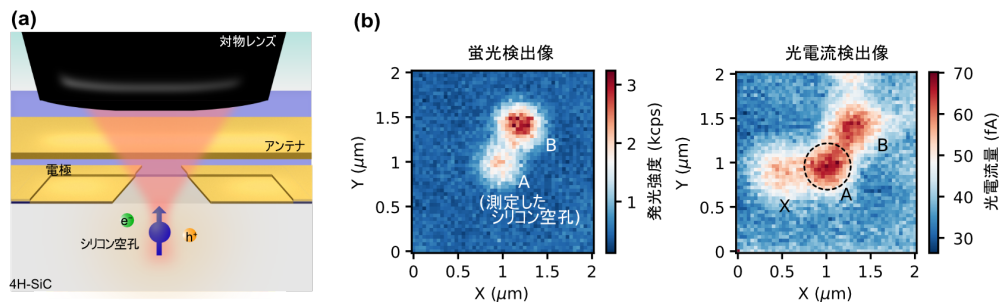


図 1 (a)作製したデバイス概略図。対物レンズは励起レーザーの照射とシリコン空孔からの蛍光捕集に用いた。(b) 蛍光検出(左)と光電流検出(右)によるデバイス内部のイメージ像。同一箇所測定されたイメージ像で、同じ位置にスポットが観測された。

次に、図 2 (a)に矩形レーザーパルス照射によって測定した PDMR スペクトルを示します。光電流のピーク信号が、シリコン空孔の電子スピン信号であり、単一のシリコン空孔のスピンの PDMR 観測に成功しています。このスピン信号が正に出ていることは、スピン信号がレーザー照射のごく初期に集中して生じることを示唆しています^[1,7]。すなわち、高いレーザーパワーで長く照射した場合では、スピン状態の情報を含まない背景光電流を多く生成し、かつレーザーのノイズが光電流に現れるため、信号読み出し効率を悪化させています。この結果をもとに、レーザーパワー一定の矩形パルスではなく、高パワー・短時間パルスと低パワー・長時間パルスからなる、二段階のパルス構成^[5]を用いて、レーザーに含まれるノイズと、信号以外の不要な光電流成分の両方の低減を狙いました。二段構成レーザーパルスによって得られた PDMR スペクトルを図 2(b)に示します。背景電流がおおよそ 1/10 にまで減少していることに加えて、SNR がおおよそ 2.3 倍向上していることが分かりました。この改善によって、実際の量子技術応用において極めて重要となる、コヒーレントな量子重ね合わせ状態(コヒーレンス(※5))にあるスピン状態の電氣的読み出しを実証することができました。図 2(c)は、コヒーレント計測の一つである Ramsey 干渉(※6)の PDMR 信号であり、この信号の振動は、シリコン空孔の近傍に存在するシリコン 29 同位体の核スピン 2 個と強く結合している様子が明瞭に計測できていることを示しています。

二段レーザーパルスを用いた PDMR 法と従来の ODMR 法による状態読み出しの SNR の比較を図 2(d)に示します。ODMR 法による SNR は理論限界である光ショットノイズ(※7)に律速されている一方、PDMR 法はその約 1.7 倍高い SNR を達成しました。更に、本研究で得られた PDMR 法の SNR は、約 3 倍改善の余地があることがシミュレーションから示されました。

以上の実験結果から、高い電流捕集効率を有したデバイスと二段階レーザーパルスの組み合わせにより、SiC 中の単一電子スピン状態のコヒーレントな電氣的読み出しを実現し、PDMR 法が ODMR 法よりも高い効率でスピン状態読み出しを行えることを実証しました。また、起源が未知の欠陥(スポット X)が光電流像として観測できたことから、シリコン空孔に限らない SiC 中の様々な単一欠陥の高感度スピン状態検出が PDMR 法に

より可能になると期待されます。

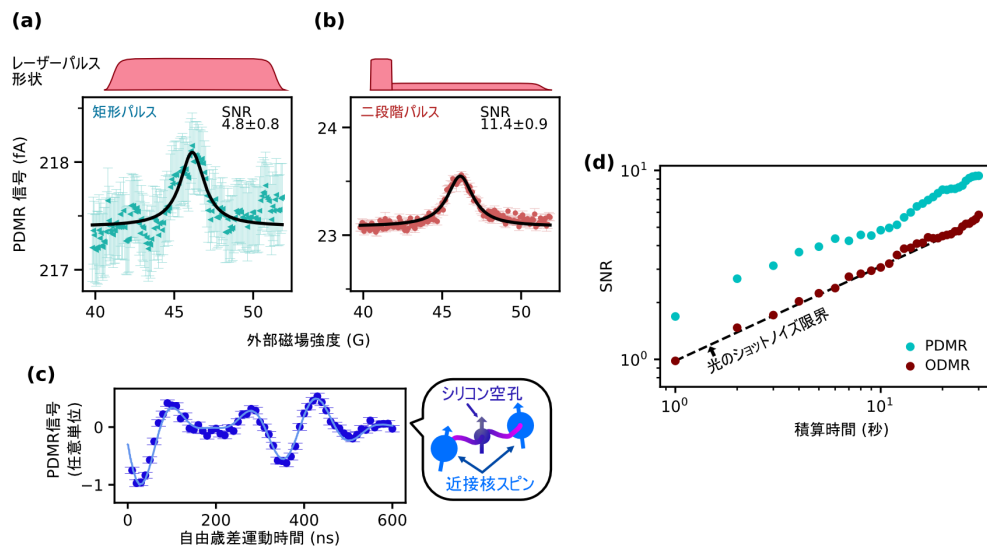


図2 異なるレーザーパルスを用いて測定された PDMR スペクトル: (a) 矩形パルス、(b) 二段階パルス。(c) PDMR 法で得た単一スピンの Ramsey 干渉によるスピンコヒーレンスの信号。シリコン空孔と結合した二つの近接核スピンによる振動が明瞭に観測された。(d) ODMR 法と PDMR 法によるスピン読み出し SNR。

3. 波及効果、今後の予定

点欠陥の電子スピン状態読み出しの効率化は、量子情報素子や量子センサ等の実デバイス応用に向けて盛んに研究されてきました。特に、電氣的読み出しは従来の光学的読み出しのような大規模な光検出系を必要としないことから、デバイスの集積化・小型化の観点から注目を集めています。今回、PDMR 法による電氣的読み出しが ODMR 法による光学的読み出しを越える読み出し効率を達成したことは、シリコン空孔に限らない、点欠陥を用いた室温動作可能な集積小型量子デバイスの実現に向けて重要な一歩です。今後の予定として、本研究で達成した PDMR 法での SNR は、周辺回路やレーザーパルスの最適化による改善が見込まれており、更なる高効率化を進めデバイス動作の実証に繋がり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、文科省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)(JPMXS0118067395)、日本学術振興会科学研究費(JP23K22796、JP21K20502、JP23K19120)、科学技術支援機構(JST) 戦略的創造研究推進事業 さきがけ(JPMJPR245C)、JST 次世代研究者挑戦的研究プログラム(JPMJSP2110)、公益財団法人 村田学術振興・教育財団 研究助成、スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク、京都大学研究連携基盤 次世代研究者支援事業、京都大学ナノテクノロジーハブ拠点(文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ事業)の支援を受けて行われました。

<用語解説>

※1. 光検出磁気共鳴 (ODMR)：点欠陥が発する蛍光強度が、電子スピン状態に応じて変化することを利用して、スピン状態を蛍光強度の変化から読み取る手法。シリコン空孔では、スピン状態 $m_s = \pm 3/2$ の時に蛍光強度が増加することを利用して磁気共鳴が観測される。

※2. **シリコン空孔**：シリコン(Si)と炭素(C)からなる化合物半導体の SiC 結晶中で、Si 原子が一つ抜けて出来た空孔欠陥。負電荷を帯びた状態で電子スピン $S = 3/2$ 、すなわちスピン四重項状態 ($m_s = -3/2, -1/2, +1/2, +3/2$) を取り、ゼロ磁場下においてもスピン状態 $m_s = \pm 1/2$ と $m_s = \pm 3/2$ でエネルギー準位が異なる(ゼロ磁場分裂)。また、静磁場を印加することで、 $m_s = \pm 1/2$ と $m_s = \pm 3/2$ のエネルギー準位に磁場強度に応じた分裂が生じる (ゼーマン分裂)。レーザー照射により、スピン状態は $m_s = \pm 1/2$ に初期化され、 $m_s = +1/2$ と $m_s = +3/2$ 、あるいは $m_s = -1/2$ と $m_s = -3/2$ のエネルギー差に相当する周波数のラジオ波を印加することで、スピン状態の操作が可能となる。

※3. **光電流検出磁気共鳴 (PDMR)**：点欠陥に高強度のレーザーを照射することで生じる光電流が、点欠陥の電子スピン状態に依存して変化することを利用し、スピン状態を光電流量の変化から読み取る手法。シリコン空孔では、スピン状態 $m_s = \pm 3/2$ の時に光電流量が増加することを本研究で明らかにした。印加するラジオ波周波数を変化させながら光電流量を測定することで磁気共鳴を電氣的に観測可能となる。ODMR よりも高効率なスピン状態読み出しが可能とされてきたが、実証には至っていなかった。

※4. **信号対雑音比 (SNR)**：信号読み出し効率を示す指標の一つで、信号の強度を信号の揺らぎの大きさ (雑音) で割った値。SNR が大きいほど高効率に信号を読み出すことが可能となる。

※5. **コヒーレンス**：2つの状態が重ね合わされたときに、それらの位相 (波のタイミング) が明確に定まっている状態のこと。量子現象を応用に用いる上で欠かせない状態であり、単純にスピンの有無だけを検出するのではなく、コヒーレントな状態を読み出すことは非常に重要である。

※6. **Ramsey 干渉**：二つの状態をコヒーレントに重ね合わされた状態に置き、その状態が時間経過する間に蓄積する位相のずれを、干渉という現象を用いて精密に測定する方法。この信号を調べることで、エネルギー準位差 (周波数) などの量子系の情報を正確に知ることができ、高感度な量子センシングなどに応用される。

※7. **ショットノイズ**：光や電気の信号強度が、その量子性によって揺らぐことで生じる雑音であり、検出粒子数の平方根に比例する。他の雑音源がない理想的な場合、SNR はショットノイズによって制限される。

<研究者のコメント>

「本研究は非常にやりがいのあるテーマで、こうして成果を発表することができて大変嬉しく思います。一方で、SiC 量子デバイスの実現に向けて、解決すべき課題はまだ多く残されています。更に研究を重ねることで、それらを一つずつ解決していきたいです。」(西川 哲理)

「欠陥スピン技術は光の研究で大きく発展してきましたが、今回半導体の電氣的性質を駆使することで、電氣的な検出手法の持つ高いポテンシャルを実験結果として示すことができました。これをスタート地点として、更なる高感度化とデバイス応用を目指します。」(森岡 直也)

<論文タイトルと著者>

タイトル：Coherent photoelectrical readout of single spins in silicon carbide at room temperature
(室温における炭化ケイ素中単一スピンのコヒーレントな光電気読み出し)

著者：Tetsuri Nishikawa*, Naoya Morioka*, Hiroshi Abe, Koichi Murata, Kazuki Okajima, Takeshi Ohshima, Hidekazu Tsuchida, and Norikazu Mizuochi. (*Equal contribution)

掲載誌：*Nature Communications* DOI : 10.1038/s41467-025-58629-1

参考文献

- [1] Niethammer, M. et al. Coherent electrical readout of defect spins in silicon carbide by photo-ionization at ambient conditions. *Nat. Commun.* **10**, 5569 (2019).
- [2] Nishikawa, T. et al. Electrical detection of nuclear spins via silicon vacancies in silicon carbide at room temperature. *Appl. Phys. Lett.* **121**, 184005 (2022).
- [3] Bourgeois, E. et al. Photoelectric detection of electron spin resonance of nitrogen-vacancy centres in diamond. *Nat. Commun.* **6**, 8577 (2015).
- [4] Siyushev, P. et al. Photoelectrical imaging and coherent spin-state readout of single nitrogen-vacancy centers in diamond. *Science* **363**, 728–731 (2019).
- [5] Hrubesch, F. M., Braunbeck, G., Stutzmann, M., Reinhard, F. & Brandt, M. S. Efficient Electrical Spin Readout of NV⁻ Centers in Diamond. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 037601 (2017).
- [6] Sze, S. M., Coleman, D. J. & Loya, A. Current transport in metal-semiconductor-metal (MSM) structures. *Solid State Electronics* **14**, 1209–1218 (1971).
- [7] Morishita H. et al. Spin-Dependent Dynamics of Photocarrier Generation in Electrically Detected Nitrogen-Vacancy-Based Quantum Sensing. *Physical Review Applied* **19**, 034061 (2023).