

高感度ダイヤモンド量子センサ創製のための 近接場光表面平滑化技術の開発

東京大学 大学院工学系研究科 八井 崇

Development of Ultra-Flat Surface of Diamond Quantum Sensor
using an Optical Near-Field Etching

Takashi Yatsui

School of Engineering, The University of Tokyo

近年、量子物理等の観点から注目を集めているのがダイヤモンド NV センターである。NV センターとは、ダイヤモンド格子中の炭素原子の置換位置に入った窒素原子とこれに隣接する空孔から成る不純物欠陥のことである。NV センターはダイヤモンドのバンドギャップ中に不純物準位として存在し欠陥の構造毎に固有の発光波長を持つ。またナノダイヤモンドと呼ばれる数十～数百 nm の微結晶はバイオマーカーとしての利用が期待されている。

しかし、このナノダイヤモンドは基板表面の凹凸や格子欠陥によって、これらが非発光準位となり発光強度を減少させていると考えられる。そこで、本研究では近接場光エッチングという手法を用いてナノスケールでの表面平滑化を行い、量子センサに向けたスピン特性向上を実現させることに成功した。

In recent years, the nitrogen–vacancy (NV) center in diamond has received great interest because of its various features, especially in the field of nanophotonics. Within the diamond bandgap, an NV center creates a defect level determined by the structure and has its own luminescent wavelength. Using this luminescence, NV center works as an electrically driven single-photon source at room temperature, or a magnetic sensor. In addition, the NV centers in nanodiamonds (NDs) have been applied to biomarkers in live cells.

However, an ND has a very large surface-to-volume ratio; therefore, it is thought that the lattice irregularities of the particle surface decrease the NV luminescence because they are nonluminescent defects. In this research, NDs were etched by a near-field etching, and I successfully realized an improvement of the spin properties of diamond NV in NDs for quantum sensor.

1. はじめに

【研究背景】

近年、ダイヤモンド中の格子欠陥のうち、様々な特性を示すものとして NV (Nitrogen Vacancy) センターが注目されている。NV センターとは、ダイヤモンド格子中の炭素原子の置換位置に入った窒素原子と、それに隣接する炭素原子が抜けてできた空孔から成る不純物欠陥である。この NV センターはナノフォトンクス分野での様々な応用が期待されて

いる。例えば、室温動作の単一光子発生源としての量子暗号通信分野への応用や^[1]、優れたスピッコヒーレンス特性を持つので磁気センサーへの応用が挙げられる^[2]。また、ナノダイヤモンドと呼ばれる、直径が数十～数百 nm のダイヤモンドの微結晶は、細胞内で用いられるバイオマーカーとしての利用が注目されている^[3]。以上のように NV センターの応用は多岐にわたるが、その全てにおいて情報を発光として取り出しているという点で共通している。しかし、ダイヤモンド基板においては、表面の凹凸や研磨傷が NV センターからの発光取り出し効率を大きく劣化させている。

【研究目的】

八井の予備研究によって光子と電子・正孔対の結合状態である近接場光を用いた近接場光エッチングを利用して、非接触かつ原子オーダーでの表面平滑化を実現している。これにより、ダイヤモンド単結晶平面基板に対して、従来の機械研磨では到達が困難な表面粗さ R_a 値 0.1 nm を実現した^[4]。従ってまた、この手法によって従来は不可能であったナノダイヤモンドの表面平滑化も可能であり、その NV センターの発光特性改善も期待される。

一般にナノ粒子は体積に対する表面積の割合が基板に比べて非常に大きいので、粒子の表面状態が発光に大きく影響する。具体的には、官能基の付加^[5]や表面の格子配列の乱れなどである^[6-7]。そこで本研究では、これまでは加工することのできなかったナノダイヤモンドについてレーザを照射して近接場光エッチング^[8]を施すことで発光強度を制御することを目的とする。レーザの波長や照射時間等のエッチング条件に因り発光強度がどのように変化するかを調べ、ナノ領域でのエッチングがどのように進行するかについて検討を行った。

2. 実験方法

ダイヤモンド NV を用いて磁気感度を向上させるためには、NV のスピン特性改善が必要となる。

2.1 近接場光エッチングによるダイヤモンドNVのスピン特性改善 1

近接場光エッチングによるスピン特性の評価を行った。NV 含有のナノダイヤモンドに対して、He-Cd レーザ(波長 325nm)の光を用いてエッチングを行った(図 1 (a))。エッチング前後でのスピン特性を評価するために光検出磁気共鳴(Optically detected magnetic

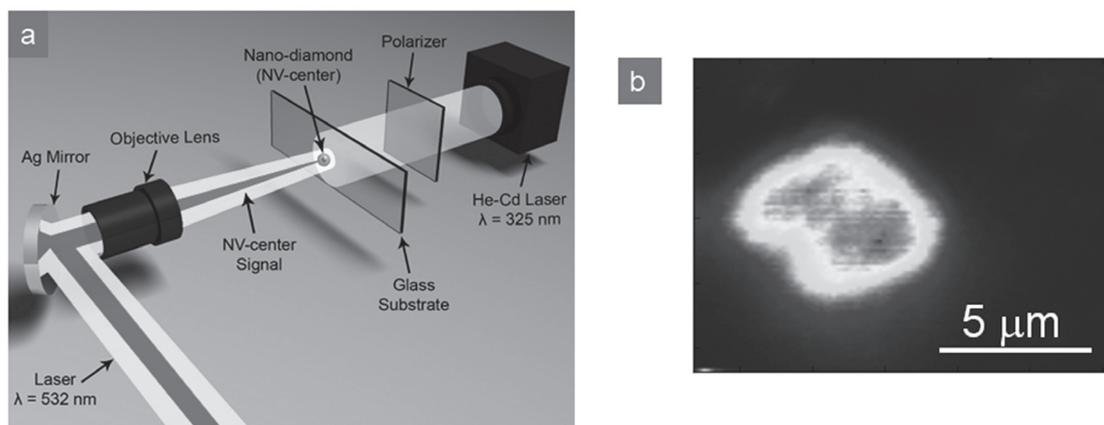


図 1 (a)実験系。(b)共焦点顕微鏡像。

resonance: ODMR)により NV からの発光を評価した。発光の励起にはグリーンレーザを使用した。実験では特定のナノダイヤモンドからの発光が見られた位置において、光照射前後においてスピン特性を評価することで、近接場光エッチングの効果を明らかにした(図 1(b))。

2.2 近接場光エッチングによるダイヤモンドNVのスピン特性改善2

ダイヤモンド NV を用いて磁気感度を向上させるためには、NV 中のスピン緩和時間の長寿命化が必要となる。本年は、近接場光エッチングによるスピン緩和時間の評価を行った。NV 含有のナノダイヤモンドに対して、He-Cd レーザ(波長 325nm)の光を用いてエッチングを行った。エッチング前後でのスピン特性を評価するためにスピンエコー法により NV 中のスピンの緩和時間 T_2 を評価した。

3. 結果と考察^[9]

3.1 近接場光エッチングによるダイヤモンドNVのスピン特性改善1

図 2 (a)に示すように、近接場光エッチングにおいてスペクトル幅が狭くなっていることがわかった。このことをより明らかにするために、エッチング時間とスペクトル幅の関係を図 2 (b)に示す。この結果が示すように、エッチングによってスペクトル幅が減少することがわかる。これは近接場光エッチングによってナノダイヤモンドの物理的欠陥を選択的に除去できた効果によるものと考えられ、近接場光エッチングの効果を確認することができた。

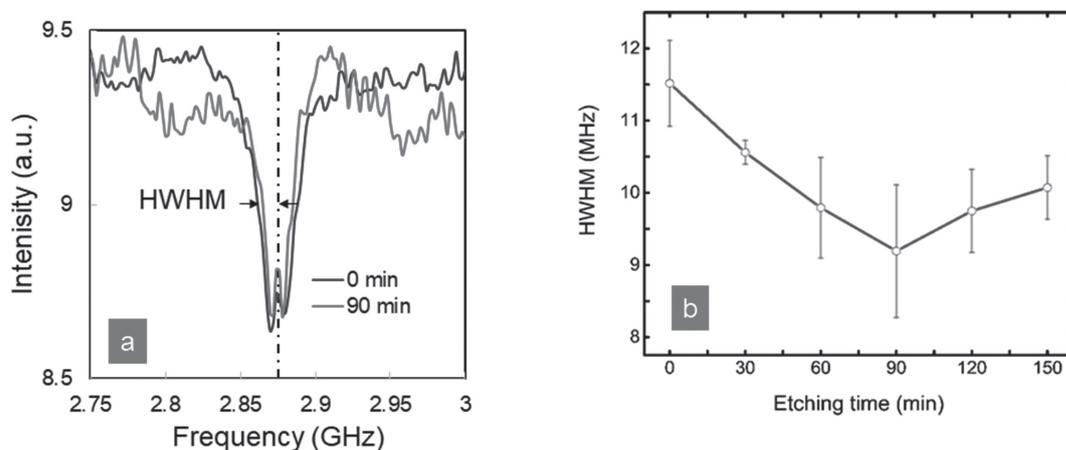


図2 近接場光エッチングによるダイヤモンド NV 発光特性評価。(a) ODMR スペクトル。(b) エッチング時間とスペクトル幅の関係。

3.2 近接場光エッチングによるダイヤモンドNVのスピン特性改善2

図 3 (a)に示すように、近接場光エッチングにおいて T_2 が長くなっていることがわかった。このことをより明らかにするために、エッチング時間と T_2 の関係を図 3 (b)に示す。この結果が示すように、エッチングによって T_2 が長寿命化することがわかる。これは近接場光エッチングによってナノダイヤモンドの物理的欠陥を選択的に除去できた効果によるものと考えられ、近接場光エッチングの効果を確認することができた。

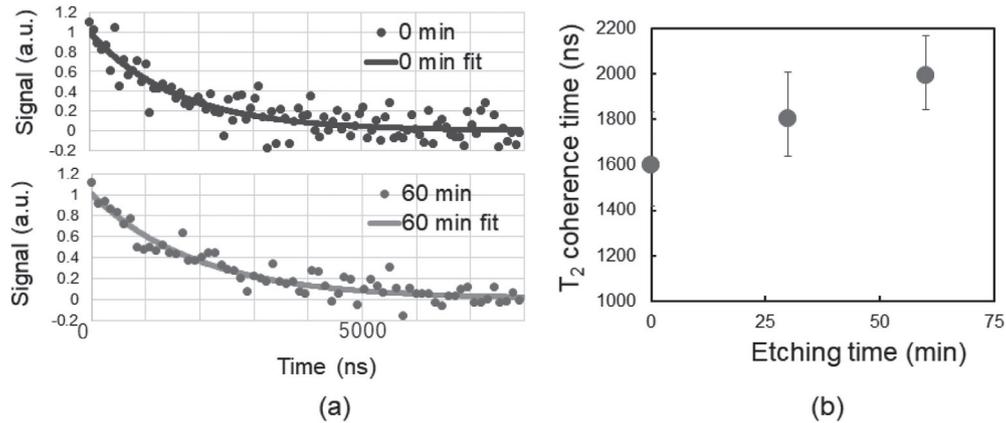


図3 (a) 近接場光エッチングによるスピン緩和時間 T_2 測定結果。(b) エッチング時間とスピン緩和時間 T_2 の関係。

4. 結論

上記に述べたように、本研究では近接場光エッチングという手法を用いてナノスケールでの表面平滑化を行い、ダイヤモンド NV のスピン特性向上の観測に成功した。この結果を利用し、現在 ODMR を用いた量子センサの高感度化に向けた展開を進めている^[10]。

5. 謝辞

本研究は平成 29 年度日本板硝子材料工学助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

6. 参考文献

- [1] N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, . Ogura, . Okushi, . Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and S. Yamasaki, “Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond,” *Nature Photonics* **6**, 299 (2012)
- [2] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski, “Scanning confocal optical microscopy and magnetic resonance on single defect centers,” *Science* **276**, 2012 (1997)
- [3] Chi-Cheng Fu, Hsu-Yang Lee, Kowa Chen, Tsong-Shin Lim, Hsiao-Yun Wu, Po-Keng Lin, Pei-Kuen Wei, Pei-Hsi Tsao, Huan-Cheng Chang, and Wunshain Fann, “Characterization and application of single fluorescent nanodiamonds as cellular biomarkers,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **104**, 727 (2007)
- [4] T. Yatsui, “*Nanophotonic Fabrication*”, Springer, Berlin, April (2012)
- [5] Michael J. Sailor and Eric J. Lee, “Surface chemistry of luminescent silicon nanocrystallites,” *Adv. Mater.* **9**, 783 (1997)
- [6] F. Koch, V. Petrove-Koch, T. Muschik, “The luminescence of porous Si : the case for the surface state mechanism,” *Journal of Luminescence* **57**, 271 (1993)
- [7] Nick S. Norberg and Daniel R. Gamelin, “Influence of Surface Modification on the Luminescence of Colloidal ZnO Nanocrystals,” *J. Phys. Chem. B* **109**, 20810 (2005)

- [8] Ryosuke Nagumo, Felix Brandenburg, Anna Ermakova, Fedor Jelezko, and Takashi Yatsui, “Spectral control of nanodiamond using dressed photon-phonon etching,” *Applied Physics A*, **121**, pp.1335-1339 (2015)
- [9] Felix Brandenburg, Ryosuke Nagumo, Kota Saichi, Kosuke Tahara, Takayuki Iwasaki, Mutsuko Hatano, Fedor Jelezko, Ryuji Igarashi, and Takashi Yatsui, “Improving the electron spin properties of nitrogen-vacancy centres in nanodiamonds by near-field etching,” *Scientific Reports*, **8**, 15847 (2018)
- [10] Akihiro Kuwahata, Takahiro Kitaizumi, Kota Saichi, Takumi Sato, Ryuji Igarashi, Takeshi Ohshima, Yuta Masuyama, Takayuki Iwasaki, Mutsuko Hatano, Fedor Jelezko, Moriaki Kusakabe, Takashi Yatsui, and Masaki Sekino, “Magnetometer with nitrogen-vacancy center in a bulk diamond for detecting magnetic nanoparticles in biomedical applications,” *Scientific Reports*, **10**, 2483 (2020)