

低温でも安定な負に帯電したダイヤモンド中 NV センタの研究

埼玉大学 清水麻希

Study of Negatively Charged NV Centers in Diamond at Low Temperatures

Maki Shimizu
Saitama University

ダイヤモンド中の窒素空孔センタ(NV センタ)は室温、大気中で磁気や温度を計測する量子センサとして注目されている。NV センタには、電荷としては中性な状態(NV^0 状態)と、負に帯電した NV^- 状態が存在するが、応用上重要となるのは、負に帯電 NV^- 状態である。 NV^0 状態がまざってしまうと感度の低下につながるということがわかっており、NV センタの応用のためにはこれらの電荷状態を電氣的に制御する必要がある。本研究では低温における NV センタの安定化を目指した。いまのところ、室温でのみの観測となっているが、低蛍光強度の ITO 膜を用いて NV^- 状態を増加させることに成功した。

Nitrogen-vacancy (NV) centers in diamond have attracted attention as quantum sensors capable of measuring magnetic fields and temperature at room temperature and in air. NV centers exist in two states: a neutral state (NV^0) and a negatively charged state (NV^-); the negatively charged NV^- state is particularly important for practical applications. It is known that the presence of the NV^0 state reduces sensitivity; therefore, electrical control of these charge states is required for practical use. In this study, we aimed to stabilize NV centers at low temperatures. Although observations have so far been limited to room temperature, we succeeded in increasing the NV^- state by using an ITO film with low fluorescence intensity.

1. はじめに

ダイヤモンド中の窒素空孔中心 (NV センタ) は、室温において単一の電子スピンの観測と制御が可能、室温におけるスピンのコヒーレンス時間が他の材料に比べ非常に長い等の重要な特性を持っており、量子情報処理、磁気・電界・温度等の各種高感度量子センサー、バイオ応用等の様々な応用が期待されており、量子技術を担う材料である。

NV センタには、電荷としては中性な状態(NV^0 状態)と、負に帯電した NV^- 状態が存在するが、応用上重要となるのは NV^- 状態であり、 NV^0 の割合の増加により感度の低下につながるということがわかっている。NV センタの電荷制御については様々な研究がされており^{1),2)}、ダイヤモンドとアルミニウム電極のショットキー接合を利用した方法¹⁾などが報告されている。この報告例は電極先端の NV センタの電荷制御を実証したが、磁気イメージングなどのセンサ応用には2次元的な電荷制御が求められる。2次元的に制御するにあ

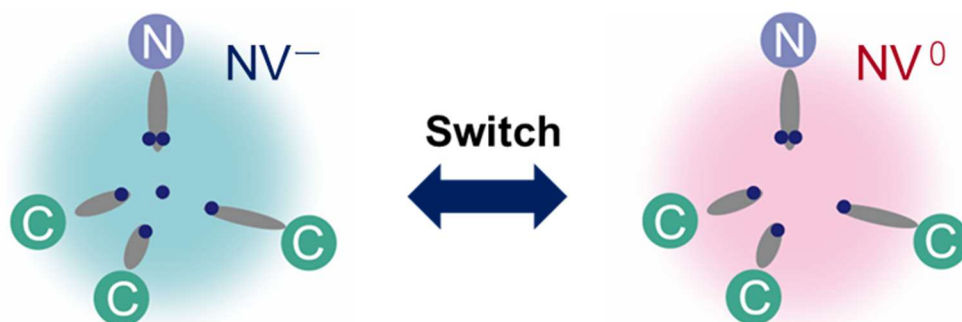


図1 ダイヤモンド NV センタの電荷状態

たっては、先行研究の通りショットキー電極がアルミであると光が透過しない。また、そのまま光を透過する ITO 電極を成膜してしまうと、ITO 自体が蛍光するため、測定に問題が生じる。申請者の研究室では低蛍光強度の透明導電膜の開発に成功しており³⁾、これを用いることによって、2 次元的な制御を実現する。

本研究はダイヤモンド基板表面に透明導電膜を成膜することにより蛍光スペクトルを測定して評価を行った。

2. 実験方法

サンプルの作製は図 2 に示す通りおこなった。

IIa (001)ダイヤモンド基板(図 2(a))に基板の表面付近には窒素を 6 keV, 600°C, 2×10^{-13} N/cm² の条件でイオン注入し、800°C で 120 分間の熱処理を行った。これによりアンサンブルの NV センタを形成した。SRIM を用いてダイヤモンドへの 6 keV の窒素イオン注入のシミュレーションを行った。ダイヤモンドは密度 3.51 g/cm³, 変位エネルギー 37.5 eV, 格子結合エネルギー 7.5 eV, 表面結合エネルギー 3.69 eV の炭素ターゲットとして入力した。深さ 100 Å (10 nm) 付近に存在する。(図 2(b))ここに、電圧印加のために金電極は蒸着、ITO 電極はスパッタリングによりフォトリソグラフィを用いて形成した。ITO 電極は低蛍光強度になる条件で製膜を行った。(図 2(c)) ITO 電極の膜厚は 80 nm 程度、金電極は 100 nm であった。

計測は共焦点顕微鏡を用いて行った。532 nm のレーザー 10 μW で励起したときのアンサンブルの NV センタのスペクトルを計測し、電荷状態の評価を行った。

3. 結果

ダイヤモンド NV センタでは 572 nm にダイヤモンドのラマン線が観測され 575 nm に NV⁰, 637 nm に NV⁻のゼロフォノン線のピークが観測される。また、500 nm から 800 nm にブロードに観測されるのがフォノンサイドバンドであるが、NV⁰ のフォノンサイドバンドのほうが波長が低いため、NV⁰ が増えると 600 nm から 650 nm の蛍光強度がたかくなり、NV⁻の割合が増えると 700 nm 以上の蛍光強度が高くなる。

図 3(a)に室温で測定した ITO 膜被膜部分と被膜されていない部分のスペクトルを示す。比較してわかるとおり、ITO 膜がない部分のほうが NV⁰ が微量に多くなっていることがわかる。これにより、電圧をかけずとも NV⁻の割合が増えることがわかった。図 3(b)(c)に電圧をかけたときの ITO 膜が被膜されていない部分とされている部分のスペクトルを示す。被膜されていない部分ではスペクトルは電圧印加前後で全く変化がないことがわかる。一方で被膜されている部分では、ITO 膜を GND に接続し金電極側の電圧を+に印加すると NV⁰ の割合が増加し、-に印加すると NV⁻が増加することがわかった。また、図 3(d)に示す通り、印加する電圧を増加するとさらに NV⁻の割合がふえている。このことより、電極直下でのみ、電荷状態が変化していることがわかる。以上の通り、電荷状態の 2 次元的な制御が可能となり、負の電荷状態に安定化できることがわかった。これらの現象の原

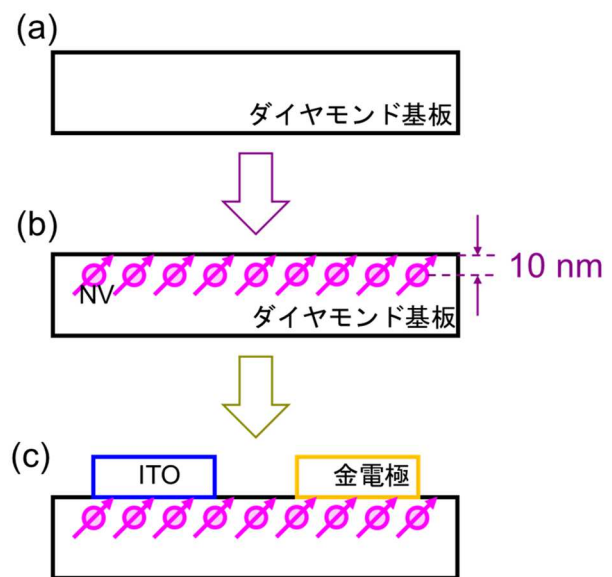


図 2 サンプルの作製方法 (a) IIa 基板 (b) ダイヤモンドをイオン注入により形成 (c) 電極形成

図については今後詳しく解析を行って調査し、発表していく予定である。

4. 低温での計測の試み

また、電圧印加は行っていないものの、低温における測定を試みた。低温チャンバにダイヤモンド基板を設置し、スペクトルの計測を行った。図4(a)に示す通り、真空チャンバに図2に示したダイヤモンド基板をいれて、液体窒素をホルダに導入し、窓から励起光をサンプルに照射し、蛍光を測定した。

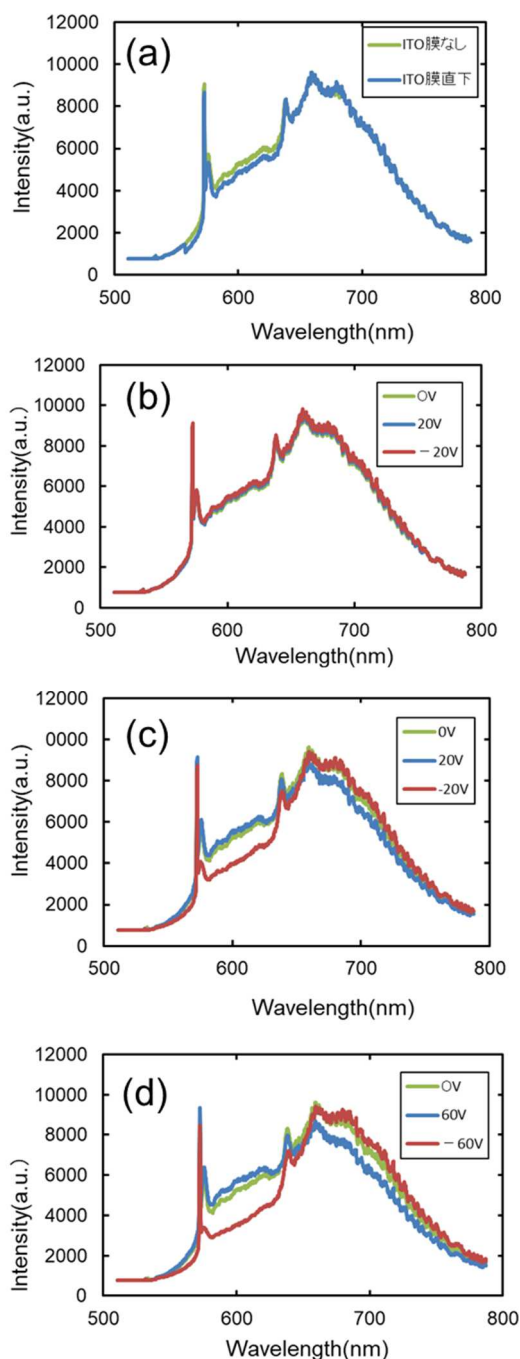


図3 ダイヤモンドNVセンタのフォトルミネッセンススペクトル (a) ITO被膜部分と被膜していない部分 (b) ITOを被膜していない部分に電圧印加 (c)被膜部分に20V電圧印加 (d) 60V印加

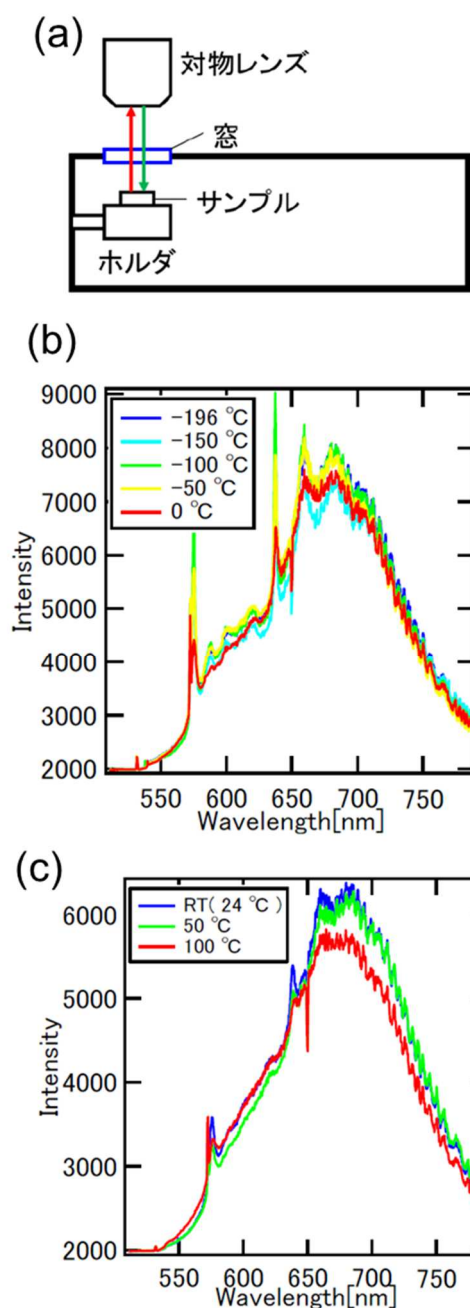


図4 (a) 低温用チャンバを使った計測 (b) 低温 (c) 高温 温度はホルダ部分の温度計でありサンプルの温度ではない

図 4(b), (c)に蛍光スペクトルを示す. 温度はダイヤモンド自体の温度ではなく, ホルダ部分の温度がしめされている. 低温になるにつれて, ゼロフォノン線の先行研究などで得られている. スペクトルより, 変化が少ないため, おそらくサンプル表面とホルダの温度がずれている可能性がある. 今後, 電極をチャンバ内導入し, 電圧印加測定を行い安定性についてしらべていく予定である.

5. 結論

アンサンプルの NV センタが形成されたダイヤモンド基板の表面に透明導電膜を成膜することにより, NV センタの 2 次元的な電荷制御を目的として実験を行った. 低蛍光強度の ITO を透明導電膜として用い, 膜直下の蛍光スペクトルを測定した結果, ITO の被膜により NV の割合が高くなることが分かった. また, ITO 膜に負の電圧を印加すると直下の NV センタの電荷状態は NV に, 正の電圧を印加すると NV⁰ の割合が増加する. 一方, ITO 膜に電圧を印加しても ITO 膜を被膜していない位置にある NV センタの電荷状態は変化しなかった. 以上により, ITO 被膜と電圧印加により負の電荷状態を増加することができる. 一方で低温の測定はこれから行う予定である.

6. 謝辞

本研究は, 令和 5 年度日本板硝子材料工学研究会の研究助成をう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.

7. 参考文献

- 1) C. Schreyvogel et al., "Active charge state control of single NV centers in diamond by in-plane Al-Schottky junctions", Sci. Rep. 5, 12160 (2015).
- 2) M. Shimizu, M. Shugo, S. Mori, Y. Hijikata, and S. Aikawa, et al. "The Influence of Oxygen-Related Defects on the Formation of In₂O₃-Based Low-Fluorescence Transparent Conducting Film." physica status solidi (a) 220, 2200896 (2023).
- 3) M. Shimizu, T. Makino, T. Iwasaki, K. Tahara, H. Kato, N. Mizuochi, S. Yamasaki and M. Hatano: Charge-state control of ensemble of nitrogen vacancy centers by n-i-n diamond junctions, Appl. Phys. Express, **11**, 033004 (2018).