

ナノダイヤモンド中の NV センター形成のための欠陥エンジニアリング

Defects Engineering for NV Center Formation in Nano-Diamonds

量研高崎研¹, 量研放医研², 京都大学³, 群馬大学⁴ ○阿部 浩之¹, 長田 健介², 武山 昭憲¹,
寺田 大紀³, 長谷川 伸¹, 吉村 公男¹, 小野田 忍¹, 樋口 泰成^{1,4}, 加田 渉⁴, 花泉 修⁴,
白川 昌宏³, 青木 伊知男², 大島 武¹

QST-QuBS¹, QST-NIRS², Kyoto Univ.³, Gunma Univ.⁴ ○Hiroshi Abe¹, Kensuke Osada²,
Akinori Takeyama¹, Daiki Terada³, Shin Hasegawa¹, Kimio Yoshimura¹, Shinobu Onoda¹,
Taisei Higuchi^{1,4}, Wataru Kada⁴, Osamu Hanaizumi⁴, Masahiro Shirakawa³, Ichio Aoki²,
Takeshi Ohshima¹

E-mail: abe.hiroshi2@qst.go.jp

【はじめに】ナノダイヤモンド中の NV (窒素—空孔) センターは、単一細胞レベルから動物レベルまでの幅広い生体に導入することができ、それらの生命現象により誘起される微小温度変化、細胞活性に伴う磁気・電気的変化の検出や MRI (磁気共鳴画像) 法を活用した体内のイメージング材料として期待されている。NV センターの量子性を利用した量子センシング・イメージングのためには、より効率的に NV センターを導入することに加え、量子性の優れたナノダイヤモンド NV センター形成技術が求められている。我々は今までにナノダイヤモンドに電子線照射と熱処理により高発光強度の NV センター形成技術の最適化を図ってきた[1]。そのようにして作製したナノダイヤモンドの表面に対して、生体導入に適した化学処理を施す必要がある。本研究では、電子線照射量と熱処理条件をさらに突き詰め、それら種々の条件や表面化学処理と NV センター形成への影響を調べた。

【実験】ナノダイヤモンドは平均粒径が 45 nm の試料を用いた。NV センター形成には原子空孔の導入とその後の熱処理が必要である。2 MeV 電子線照射 (量研高崎研電線照射施設) により、ナノダイヤモンド中に原子空孔の導入をした。室温照射にて、トータルフルエンスは 2E18, 3E18, 4E18, 5E18 [e⁻/cm²]とした。照射後 Ar ガス中にて 800, 900, 1100, 1200°C の温度において、それぞれ 2 時間の熱処理を行なった。多量に形成させた NV センターについては、フォトルミネッセンス (PL: Photo Luminescence) 法によるスペクトルおよび発光強度の測定を実施し (レーザー励起光: 532 nm を使用)、また残留窒素量を電子スピン共鳴 (ESR: Electron Spin Resonance) 法にて分析した。それら測定を通じて種々の NV 形成条件との相関を調べた。更に一部条件について、カルボキシル基 (-COOH) を表面化学修飾させ、表面化学修飾の有無による発光強度の変化を調べた。透過法によるフーリエ変換赤外分光分析 (FT-IR: Fourier Transform Infrared Spectrometer) 法と固体核磁気共鳴 (Solid-state NMR: Nuclear Magnetic Resonance) 法により COOH 基を確認した。

【結果と考察】図は種々条件によるナノダイヤモンドの発光強度と熱処理の関係を示す。各照射量において熱処理温度が 900°C 付近で最大を示した。よって、熱処理条件が 900°C が最適であることが分かる。また照射量が多いほどナノダイヤモンド中に原子空孔が多量に形成され、熱処理によって NV センターが多く形成されたためと考えられる。発光強度は、未照射と 3E18、900°C 熱処理を比べると、約 86 倍の発光強度が得られた。ESR による残留窒素量を測定したところ、照射後に残留窒素量が減少することを確認した。また、表面化学修飾されたナノダイヤモンドは未修飾のものに比べ、およそ 2 倍発光強度が向上することが分かった。カルボキシル基 (-COOH) の表面修飾によって、NV センターの電荷状態が負に安定化できたことによると考えられる。発表では、ESR による残留窒素量の変化や、FT-IR 及び Solid-state NMR による COOH 基の同定結果について報告する。

【参考文献】

[1] 阿部浩之 他、電子線照射によるダイヤモンドナノ粒子中の NV センター形成条件の最適化 (2)、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月 17~20 日、早稲田大学 (新宿・東京)。

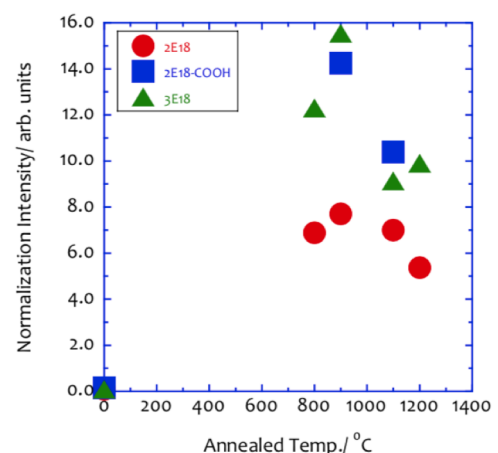


Fig. Correlation of the annealing temperature and PL emission intensity of the electron irradiated nano-diamond.