

量子磁気センサのためのダイヤモンド結晶成長技術

Diamond crystal growth for quantum magnetic sensing

物材機構 ○寺地徳之

NIMS °Tokuyuki Teraji

E-mail: TERAJI.Tokuyuki@nims.go.jp

NV センタ (NV⁻) を用いた量子センサのデバイス性能はダイヤモンド結晶の特性に大きく左右されるため、量子センサに適したダイヤモンド結晶の成長は重要な研究課題である。求められる NV センタ濃度は応用先やデバイス構造によって異なる。0.1ppb 以下の単一光源もあれば、1~10ppm のアンサンブル状態がセンサに適している場合もある。センサ感度向上には、この広い濃度範囲を高い精度で制御する必要がある。更に検出感度の向上にはスピンコヒーレント時間 T_2 を長くする必要がある。ダイヤモンドを構成する炭素原子の ^{13}C はデコヒーレンス源となり、 ^{12}C 同位体濃度が有効であることが知られている。本講演では、量子磁気センサの感度向上を目指したダイヤモンド結晶成長に関して、物質・材料研究機構での実施状況を中心に紹介する[1-3]。

化学気相成長法 (CVD) によるダイヤモンド成長では、高温高压 (HPHT) 合成(001)単結晶を下地基板に用い、成長中に窒素を供給することで窒素ドーピングホモエピタキシャルダイヤモンド結晶を成長した。長時間成長することで窒素ドーピング結晶を厚膜化 (>500 μm) し、その後下地を除去することで自立結晶を得た。電子スピン共鳴 (ESR) 法で P1 センタ濃度を測定したところ、原料ガス中の N/C 比を変えることにより、ダイヤモンド膜中の窒素濃度を 5ppb~10 ppm の範囲で制御できることが分かった。成長直後の NV センタ濃度は置換位置窒素 (P1 センタ) 濃度の約 1% であった。NV センタ濃度を増加させるために、電子線照射 (2MeV、 $0.5\sim 1\times 10^{18} \text{ e}\cdot\text{cm}^{-2}$) とポストアニール (1000°C、h、真空) を行った。得られた結晶の T_2 は他機関で報告されている P1 濃度で律速されている値[4]と同程度であった。

HPHT 結晶に関しては、ベルト型高压発生装置を用い、温度勾配法でダイヤモンド結晶を合成した。金属溶媒には Co-Ti-Cu 合金系を用い、圧力、温度、成長時間は、それぞれ 5.5 GPa、1400°C、20~40 時間とした。(001) 種結晶で成長した単結晶を{111}方向に切断することにより、複数の{111}ダイヤモンドプレートが得られた。ESR 法で P1 センタ濃度を測定したところ、溶媒中の Ti 添加量を増加させると P1 濃度が減少し、P1 濃度を 0.4~20 ppm の範囲で再現性良く制御できることが分かった。さらに、電子線照射量を最適化することで、P1 センタの約 1/10 を NV-センタに変換することに成功した[5]。

本研究成果において、ダイヤモンド結晶の高压合成は NIMS の谷口尚氏と宮川仁氏によって、ESR 測定は真栄力氏によって、電子線照射と T_2 評価は量子科学技術研究開発機構の小野田忍氏、阿部浩之氏、増山雄太氏、大島武氏によって実施と協力をいただいたので、ここに感謝の意を表します。本研究の一部は、文部科学省 Q-LEAP (JPMXS0118068379)、科学技術振興機構 CREST (JPMJCR1773)、JST ムーンショット型研究開発事業 (JPMJMS2062)、総務省グローバル量子暗号通信網構築のための研究開発 (JP MI00316)、及び日本学術振興会科学研究費補助金 (20H02187、20H05661、19H02617) の助成を受けたものである。

[1] T. Teraji *et al.*, J. Appl. Phys. **118**, 115304 (2015).

[2] T. Teraji *et al.*, phys. stat. sol. (a) **212**, 2365 (2015).

[3] M. Miyakawa, in preparation.

[4] J. F. Barry *et al.*, Rev. Mod. Phys. **92**, 015004 (2020).

[5] C. Shinei *et al.*, Appl. Phys. Lett., **119**, 254001 (2021).