

一つの超短レーザーパルスでダイヤモンド量子センサ源を広領域で作製

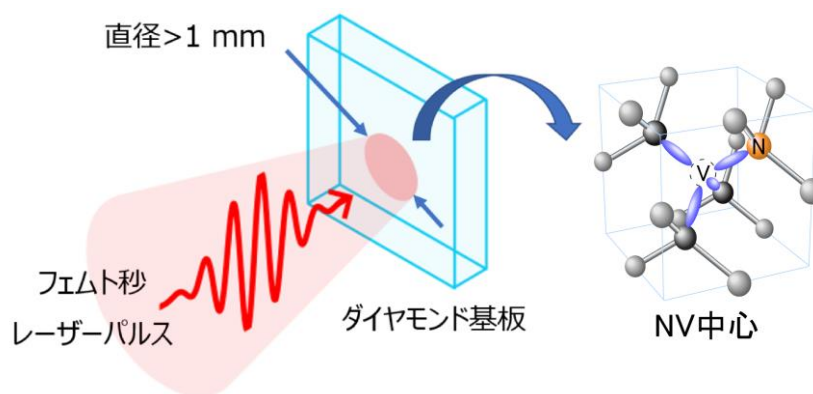
—超短時間でダイヤモンドを超高感度量子センサに—

概要

京都大学化学研究所 水落憲和 教授、東海大学 橋田昌樹 教授、京都大学化学研究所 時田茂樹 教授、藤原正規 同特定研究員、升野振一郎 同研究員らの研究グループは、一つの超短レーザーパルス^{※1}をダイヤモンドに照射し、窒素-空孔（NV）中心^{※2}をミリメートルレベルの広域で形成することに成功しました。

ダイヤモンド中の NV 中心を用いた量子センサは、高感度、高空間分解能を有することから注目されています。センサとして用いる NV 中心の数を増やすほど感度が上がり、室温で超伝導量子干渉計並みの高感度を実現することが期待されています。これまでフェムト秒^{※3}レベルの超短パルスレーザーを用いて NV 中心を作製したという報告はありましたが、ダイヤモンドはグラファイト化^{※4}しやすいため、フルエンス^{※5}を抑えて多数のパルスを照射し、且つ NV 作製領域はマイクロメートル程度が最大でした。今回、最適な条件を見出し、一つのパルスでミリメートルレベルという従来の 100 倍以上の広域で形成することに成功しました。今回、一つのレーザーパルスのみで、高温アニール処理を施すことなく作製できた点は、レーザー光照射による NV 中心の生成機構を解明する点で学術的に重要です。また、応用の観点では、高感度量子センサを作製する簡便、高速な技術として注目されます。

本成果は、2023 年 3月14日に米国物理学協会（AIP）の国際学術誌「*APL Photonics*」にオンライン掲載され、更に論文は Featured Article に選ばれました。



図：ダイヤモンド基板にフェムト秒レーザーパルスを1回照射するだけで、NV中心をミリメートルサイズで形成することを実現。

1. 背景

近年、超高感度センサや量子情報素子応用の観点からダイヤモンド中の NV 中心が注目されています。センサの観点からは磁場、電場、温度、圧力などの高感度センサとしての応用が期待され、NV 中心による量子センサは高空間分解能、且つ高感度を要求される細胞内計測、タンパク質物質の構造解析などの生命科学分野や、微細なデバイス評価装置用センサなどへの応用も期待されています。

センサの感度は一度に計測する NV 中心の数を増やすことにより、空間分解能は悪くなってしまいますが、さらに感度を飛躍的に高めることができます。原理的には、液体ヘリウムを用いないと動作できない超伝導量子干渉計の感度（フェムトテスラ^{※6}）レベルや、気相中のガスを用いた光ポンピング磁力計の感度（フェムトテスラ）レベルに、固体でありながら室温でも到達することが期待できます。このため、心磁計、脳磁計などの医療機器を含め、極めて高い感度が要求される分野においても、幅広い応用が期待されます。

現在、多量の NV 中心作製には、高エネルギーの電子線を照射して空孔欠陥を生成し、その後に高温アニール処理を行って NV 中心を作製する技術があります。しかしこの方法では、メガエレクトロンボルト^{※7}レベルの高いエネルギーを持つ電子線照射のための加速器や、照射に伴う X 線などの放射線を防ぐ、大規模な施設が必要で、実施できる施設が世界でも限られています。他の NV 中心作製技術としては、窒素イオン注入による技術もありますが、広い領域での NV 中心作製には限界があります。一方で、これまで超短パルスレーザーを用いて NV 中心を作製する報告はありましたが、ダイヤモンドはグラファイト化しやすいためフルーエンスを抑えて多数のパルス照射しており、NV 中心が作製された領域はマイクロメートル程度が最大でした。

2. 研究手法・成果

今回用いたフェムト秒レーザーは化学研究所先端ビームナノ科学センターで独自に開発された高強度短パルスレーザーです。パルスの時間幅は 35 フェムト秒、パルス 1 発のエネルギーは最大 500 mJ に達するため、十分なフルーエンスを維持しながら、従来よりも格段に大きなビームスポットが実現できます。

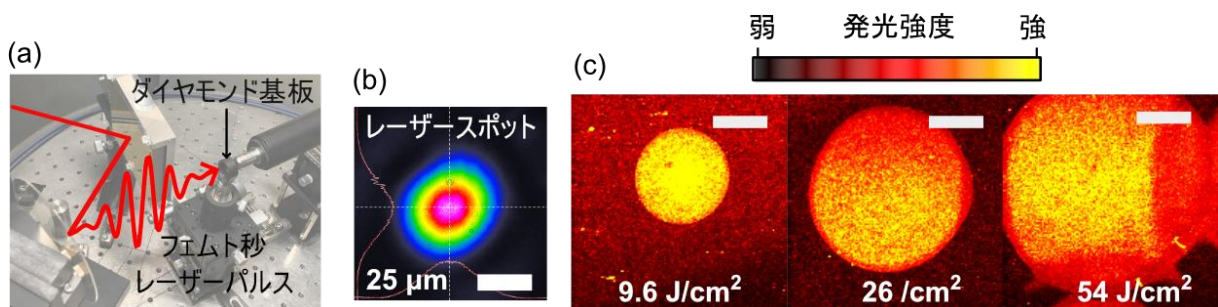


図 1 (a) フェムト秒レーザーパルスのパルス照射回数、フルーエンスを変えてダイヤモンド基板に照射するための測定系。(b) 照射位置でのビームスポットの画像。(c) ダイヤモンド基板上にフルーエンスを変えながら照射した後に観察した発光画像。各画像ともパルス数は 1 回ずつ照射した。

最初に、我々は直径 41 μm のスポット径を持つレーザーパルスを、ダイヤモンド試料に照射しました（図 1(a, b)）。直径 41 μm であっても、従来の研究例よりも 10 倍以上大きいスポットです。様々な照射回数、フルーエンスのパルスをダイヤモンド基板に照射した結果、グラファイト化閾値^{※8}を超える高いフルーエンスで照射する場合、照射領域で、パルス 1 回照射で照射領域に NV 中心が形成できたことを確認しました。次に、パルス照射回数を 1 回に固定して、フルーエンスを増やしながらダイヤモンド基板に照射すると、フルーエンスが 1.8 J/cm² 以上で NV 中心の形成が確認でき、10 J/cm² 程度でビームスポット径と同じ大きさまで NV 中

心が形成されました(図 1(c))。更にフルーエンスを上げていくと NV 中心の形成領域が拡大し、測定した限りフルーエンス 54 J/cm^2 のときに形成領域が $100 \text{ }\mu\text{m}$ まで拡大することを確認しました。

ここまでの測定で用いたパルスエネルギーは従来の研究例よりも遥かに高いものですが、それでも 1 mJ 以下であり、我々のレーザーのポテンシャルを十分に引き出せていません。そこで、今度はエネルギー 100 mJ 台のパルスを用いて、十分なフルーエンスを維持しながらミリメートルサイズのレーザースポット径を照射することを考えました。これほど高いエネルギーですと、空気中を通過するだけで空気の分子と反応を起こしたり、途中の光学部品にもダメージを与える可能性がありますので、パルスが通過する領域は全て真空にしたり、集光直前までは十分大きなビーム径にしてダメージを抑制する等の調整を行いました。最終的にパルスエネルギー 166 mJ 、フルーエンス 33 J/cm^2 、スポット径 1.13 mm のパルス光をダイヤモンド基板に照射しました。図 2 はパルス照射後に表面を洗浄してから顕微鏡で観察した発光画像です。ここで 我々の顕微鏡で一回に測定可能な範囲は 0.1 mm 四方のため、ダイヤモンド基板の位置をずらしながらパルス照射領域内外を複数箇所測定しています。照射領域の複数箇所で発光スペクトル測定を行った結果、NV 中心に由来するスペクトル形状が得られ、パルス 1 回の照射によってミリメートルサイズの領域に NV 中心が形成されたことを確認しました。

レーザー光照射による NV 中心の生成機構は、まだ十分に解明されていません。今回、グラファイト化閾値とされる値を超える高いフルーエンス条件で、一つのレーザーパルス照射後に、高温アニール処理を施すことなく NV 中心を作製できた点は、レーザー光照射による生成機構を解明する点で学術的に重要です。

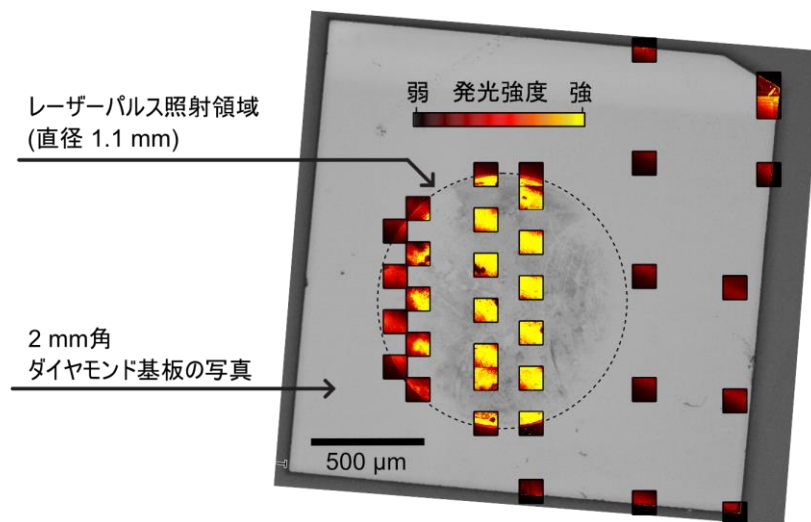


図 2 ダイヤモンド基板に直径 1.1 mm のスポット径を持つレーザーパルスを 1 回照射した試料の表面観察結果. 位置を確認しやすくするため、基板の写真を表示.

3. 波及効果、今後の予定

今回は大面積領域における NV 中心の作成を実証しましたが、今後は 3 次元的に広い領域での作製実証を目指す予定です。更にそれを用いた量子センサの高感度化も実証していきたいと考えています。

ダイヤモンドを用いた高感度量子センサは、極めて高い感度が要求される分野、例えば医療機器、化学分析や、素粒子探索研究への応用など、幅広い分野での適用が期待されます。今後は、これらの実証実験への展開も行っていきたいと考えています。

4. 研究プロジェクトについて

●文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP)「先端ビームによる微差構造形成のためのオペランド計測」(代表者：橋田昌樹 京都大学化学研究所研究員/東海大学教授、JPMXS0118070187)、「固体量子センサの高度制御による革新的センサシステムの創出」(代表者：波多野睦子 東京工業大学教授、JPMXS0118067395) の支援を受けて行われました。

<用語解説>

※1 **超短レーザーパルス**: レーザーパルスのパルス時間幅が特に短いもの。一般的には時間幅がピコ秒(1 兆分の 1 秒)からフェムト秒(1000 兆分の 1 秒)程度の時間幅を指す。

※2 **窒素-空孔 (NV) 中心**: ダイヤモンド結晶を構成する炭素原子の代わりに不純物として窒素原子(Nitrogen)が配置され、その隣に炭素原子の抜け穴(空孔, Vacancy)が配置された、窒素と空孔のペアを窒素-空孔(Nitrogen-Vacancy, NV)中心と呼ぶ。

※3 **フェムト秒**: 時間を表す単位。1000 兆分の 1 秒に相当する。

※4 **グラファイト**: 炭素原子が層状的な 2 次元結晶構造をとった時の物質名のこと。ダイヤモンドとグラファイトは共に炭素原子から構成された物質ではあるが、結晶構造が大きく異なるため、物質の性質(硬さ、色など)は大きく異なる。

※5 **フルーエンス**: エネルギー密度、すなわち単位面積(1 cm²)あたりのパルスエネルギーのこと。パルスエネルギーをビームスポットの面積で割り算することで求められる。

※6 **フェムトテスラ**: 磁場の強度を表す単位。1000 兆分の 1 テスラに相当する。

※7 **メガエレクトロンボルト**: エネルギーを表す単位。100 万エレクトロンボルトに相当する。

※8 **グラファイト閾値**: あるフルーエンス以上のレーザーパルスをダイヤモンドに照射し続けると、結晶構造が変化してグラファイトに変化する。この特定のフルーエンスのことをグラファイト閾値と呼ぶ。この値は、ダイヤモンド結晶の特性(単結晶か多結晶か)、パルスの時間幅、レーザー波長など様々なパラメータに依存するが、おおよそ 1 ~ 4 J/cm² であることが報告されている。

<研究者のコメント>

最初にこの研究を進めるとき、従来の研究では用いられない高強度パルスをダイヤモンド基板に照射するため、NV 中心が形成されるのかどうか全く不明でした。そのため、実験を繰り返して NV 中心が増加した領域が見つかった時は驚きを覚えました。今後、形成メカニズムの詳細や、生成効率の向上、3 次元作成などの課題の解決を進めたいと思います。(藤原 正規)

<論文タイトルと著者>

タイトル: Creation of NV centers over a millimeter-sized region by intense single-shot ultrashort laser irradiation (超短パルスレーザー単一照射によるダイヤモンド NV 中心の広域形成)

著 者：M. Fujiwara, S. Inoue, S. Masuno, H. Fu, S. Tokita, M. Hashida, N. Mizuochi

掲 載 誌：*APL Photonics* DOI：10.1063/5.0137093