

波多野 睦子

東京工業大学 大学院理工学研究科
教授

炭素系ナノエレクトロニクスに基づく革新的な生体磁気計測システムの創出

§ 1. 研究実施体制

(1)「東工大」グループ

- ① 研究代表者:波多野 睦子 (東京工業大学・大学院理工学研究科、教授)
- ② 研究項目
ダイヤモンドデバイス及びセンサ微弱信号検出技術
 - (1) 高感度センサアレイデバイス
 - (2) 高品質ダイヤモンド試料の作製
 - (3) センサ微弱信号検出技術

(2)「阪大」グループ

- ① 主たる共同研究者:水落 憲和 (京都大学・化学研究所、教授)
- ② 研究項目
NV センタ評価技術及び電気検出技術
 - (1) 高品質窒素ドーパダイヤモンド試料の評価
 - (2) スピン情報の電気検出に向けた要素技術

(3)「京大」グループ

- ① 主たる共同研究者:原田 慶恵 (京都大学・物質細胞統合システム拠点、教授)
- ② 研究項目
超高感度磁気センサナノアレイデバイスを使った生物試料への応用
 - (1) 細胞内磁性微粒子の測定

(4) 「産総研」グループ

① 主たる共同研究者: 牧野 俊晴

(産業技術総合研究所・先進パワーエレクトロニクス研究センター・上級主任研究員)

② 研究項目

センサデバイス性能向上及びプロセス基盤技術

(1) 電子スピン位相緩和時間の向上の理論的検討

(2) デバイス設計及び作製プロセスの構築

(5) 「ルネサス」グループ

① 主たる共同研究者: 波多野 雄治

(ルネサスエレクトロニクス株式会社・第一ソリューション事業本部 コア技術事業統括部・シニアスペシャリスト)

② 研究項目

NV センタを用いた計測システムの性能向上

(1) システム詳細設計・試作 1(高精度化)

§ 2. 研究実施の概要

ナノエレ技術を活用し、生物・医療などでニーズが高い、常温で動作し、高い感度と空間分解能を有するセンサモジュールを開発することが本研究の目標である。このようなセンサの実現に必要な NV センタの条件は、(1)NV の高密度形成(信号強度向上)、(2)原子レベルで NV 軸が高配向(検出コントラスト向上)、(3) ダイヤ表面の微細構造形成により光検出効率向上、(4) 負電荷付加による電子スピンをもつ NV の増大と安定化(信号強度向上)、(5)高品質ダイヤ膜(電子スピン緩和時間向上)、である。前年度までに(1)(2)を実現するため、NVC の方向制御のメカニズムを解明し、オフ方向を制御した(111)ダイヤ基板に、窒素ドーピング CVD 法による成長技術を確認した。

今年度は本 CVD 成長技術により、NV センタ密度 10^{16} cm^{-3} 以上において、NV センタの結晶軸を 100%に近い割合で一方向に制御することに成功した¹⁾。合成した膜断面の共焦点顕微鏡像における赤色発光強度を NV センタ密度に換算すると $3.7 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ となる。ODMR スペクトルから本 CVD 技術により(111) 面上に成長させたダイヤでは[111]軸方向のみに NV センタが配向していることを示すピークが得られていることを確認した。図 1 に配向率と NV センタ密度の従来技術との比較を示す。NV センタ密度が 4~5 桁高い高配向を実現し、感度にして 2 桁以上の向上させることができる。

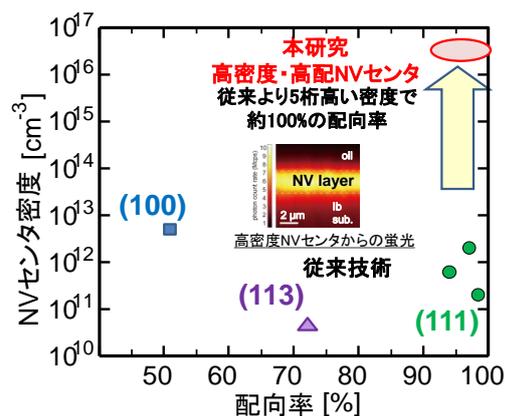


図1 NVセンタの密度と配向率の比較

(3)に関しては前年度までに、エッチング時のダメージによる電子スピン緩和時間の低下を回避可能なボトムアッププロセスとして、メタルマスク(Ti)を介したダイヤの選択成長による傘型構造で、バルク比約 4 倍の発光強度を得た。本年度はシミュレーションにより、メタルマスクが自己整合的に形成されたミラーの役割をし、集光率向上にも寄与していることを明らかにし、バルク比 9 倍の発光強度が期待できることを示した²⁾。

(4) の電子スピンをもつ NV の増大と安定化に関しては、pin 接合の i 層中に NVC を形成し、接合電圧による NV の蛍光の変化を測定した結果、順方向に内蔵電位以下の電圧を印加すると NV の増加により蛍光強度が上がるが、さらに高い順方向電圧では、ホール電流により NV0 が増加して蛍光強度が低下することが観測された。すなわち、pn 接合を用いれば NVC の電荷制御が可能であることがわかった³⁾。

高感度な計測法として、スピネコー法における π パルスを繰り返すことで、スピンのコヒーレンスを保つダイナミカルデカップリング法を用いて交流磁場の検出を行う技術を構築した。

システムにおいては、将来のモジュール化検討のため、電気系・光学系を含めトランク程度の大きさの可搬な ODMR 及び磁場計測デモ機を試作した。また細胞計測応用の準備として、一定深さに NV センタが埋め込まれたダイヤモンド基板表面に分散させた直径数マイクロメートルの磁性微粒子の生成する磁場ベクトルの空間分布を可視化することに成功した。

なお関連特許は国内 6 件、海外 3 件(延べ 5 カ国)を出願済みである。

○代表的な論文

1. K. Tahara, H. Ozawa, T. Iwasaki, N. Mizuochi, M. Hatano, “Quantifying selective alignment of ensemble nitrogen-vacancy centers in (111) diamond”, *Appl. Phys. Lett.*, **107**, 193110, 2015 (doi: 10.1063/1.4935709)
2. S. Furuyama, K. Tahara, T. Iwasaki, M. Shimizu, J. Yaita, M. Kondo, T. Kodera, M. Hatano “Improvement of fluorescence intensity of nitrogen vacancy centers in self-formed diamond microstructures”, *Appl. Phys. Lett.*, **107**, 163012-1-4, 2015 (doi: org/10.1063/1.4933103)
3. M. Shimizu, T. Makino, T. Iwasaki, J. Hasegawa, K. Tahara, W. Naruki, H. Kato, S. Yamasaki, M. Hatano “Charge state modulation of nitrogen vacancy centers in diamond by applying a forward voltage across a p-i-n junction”, *Diamond Relat. Mater.*, Vol 63, p192-196, 2016 (doi: 10.1016/j.diamond.2015.10.022)
4. T. Iwasaki, F. Ishibashi, Y. Miyamoto, Y. Doi, S. Kobayashi, T. Miyazaki, K. Tahara, K. Jahnke, L. Rogers, B. Naydenov, F. Jelezko, S. Yamasaki, S. Nagamachi, T. Inubushi, N. Mizuochi, M. Hatano “Germanium-Vacancy Single Color Centers in Diamond” *Scientific Reports* **5**, 12882, 2015
5. Y. Doi, T. Fukui, H. Kato, T. Makino, S. Yamasaki, S. Miwa, F. Jelezko, Y. Suzuki, N. Mizuochi, “Pure negatively charged state of NV center in n-type diamond”, *Phys. Rev. B*, **93**, 081203 (R), 2016 (Rapid communication)
6. Y. Yoshinari, S. Mori, R. Igarashi, T. Sugi, H. Yokota, K. Ikeda, H. Sumiya, I. Mori, H. Tochio, Y. Harada and M. Shirakawa, “Optically Detected Magnetic Resonance of Nanodiamonds in Vivo: Implementation of Selective Imaging and Fast Sampling”, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology* **15**, 1014-1021, 2015