

波多野 睦子

東京工業大学工学院  
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 (東京工業大学工学院 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

- ・高感度センサアレイデバイス
- ・高品質ダイヤモンド試料の作製
- ・センサ微弱信号検出技術

### (2)「京大」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

- ・高品質窒素ドーパダイヤモンド試料の評価
- ・スピン情報の電気検出に向けた要素技術

### (3)「阪大」グループ

① 主たる共同研究者:原田 慶恵 (大阪大学蛋白質研究所 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

- ・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ダイヤモンドデバイスチーム 研究チーム長)

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

- ・電子スピン位相緩和時間の向上の理論的検討
- ・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:安田 晋(ルネサスエレクトロニクス(株)オートモーティブソリューション事業本部 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

- ・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) 高度量子プロトコルの適用 (電子スピン位相コヒーレンス時間の向上)、(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)、である。センサ材料・デバイス・プロトコルの高性能化を図ると同時に、細胞計測システムの高感度化、センサモジュールの小型化、などをコンカレントに推進した。

インフラ、車載、医療用のセンサに関しては、高密度な NV センタを含むマイクロスケールの体積の有するダイヤモンドセンサを駆動する必要がある。これに適したマイクロ波・光学系を開発し、前年度までに構築したダイナミカルデカップリングシーケンスによる駆動による高感度化を実現した。ダイナミカルデカップリングを用いた位相コヒーレンス時間は、従来のスピンエコー法よりも 27 倍長い  $240 \mu\text{s}$  に向上し、交流地場の測定をより、 $10.8 \text{ pT} / \sqrt{\text{Hz}}$  の磁気感度を達成した。

細胞計測に関しては、前年度までに開発した高密度 ( $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ )・完全配向 (111) CVD ダイヤモンド基板上的  $1 \mu\text{m}$  超常磁性粒子を基板裏面からの蛍光観察により 19s の積算時間で検出可能とした。イメージセンサで検出される相対蛍光強度をマイクロ波周波数にフィードバックし、光磁気共鳴スペクトル上の最急斜面に動作点をロックすることにより、温度・環境磁場によるドリフトを補償、高解像度・高時間分解能を実現した。光障害の無い長時間動態観察技術として今後細胞計測に適用していく。

NV センタを含むダイヤモンド膜のさらなる高感度化には、スピンの位相コヒーレンス時間  $T_2$  を保ちつつ、NV 密度・生成率の向上、NV 軸の高配向化が重要である。前年度までに、(111)面上の完全配向 NV において、世界最高の NV 高密度化 ( $4 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ) を達成した。センサのさらなる高感度化には、約 0.3% の NV 生成率の向上が課題であった。理論チームが第一原理計算により、NV 生成率低下の要因は C-H 結合であり、製膜した後の処理による結合の切断は困難であることを予測した。そこで、CVD 製膜中に非平衡状態を導入し、生成率向上を試みた。具体的には、プラズマパワー密度を従来の約 8 倍に高め、ガスの分解を促進させる効果がある Ar を新たにキャリアガスとして導入した。この結果、NV 生成率は約 4% に向上し、膜の成長速度も従来比 16 倍の高速化を図ることができた。

NV センタは一価の負に帯電している状態 ( $\text{NV}^-$ ) をセンサとして利用できる。しかし、NV センタは光照射中に電荷状態を中性状態 ( $\text{NV}^0$ ) に変えてしまう点や、ナノレベルの深さに存在する表面付近の NV センタでは  $\text{NV}^-$  の電荷状態が不安定になってしまうという課題があった。本研究では、ダイヤモンドデバイスの  $\text{nin}$  構造を用いたダイヤモンド NV センタの電荷状態安定化を実現した。

センサシステムの小型化に有効な NV センタのスピン状態の電氣的な検出において、核スピンコヒーレンスの電氣的検出を行った。具体的には、アンサンブル NV センタの窒素 ( $^{14}\text{N}$ ) 核スピンの電子・核二重共鳴検出を行った。室温下において核スピンのラビ振動の電氣的検出に初めて成功した。また、この試料における  $^{14}\text{N}$  核スピンの位相コヒーレンス時間  $T_2$  測定を電氣的検出により行ない、核スピンの  $T_2$  が電子スピンのスピン-格子緩和時間によって制限されていることがわかった。

核スピンのラビ振動、及び  $T_2$  測定を室温で電氣的に観測した例は他材料における系を含めて初めてである。

センサシステムのモジュール化検討のため、前年度に手のひらサイズの小型デモ機を試作したが、光学系の支持構造の冗長部を削減し、更なる小型化および感度改善を目的としてスリム化版光学系であるペン型およびマウス型治具を試作した。

○代表的な論文

(1) H. Ishiwata, M. Nakajima, K. Tahara, H. Ozawa, T. Iwasaki, M. Hatano "Perfectly Aligned Shallow Ensemble Nitrogen-Vacancy Centers in (111) Diamond" Appl. Phys. Lett. 111, 043103, 2017.

(2) T. Murai, T. Makino, H. Kato, M. Shimizu, D. E. Herbschleb, Y. Doi, H. Morishita, M. Fujiwara, M. Hatano, S. Yamasaki, N. Mizuochi, "Engineering of Fermi level by n-in diamond junction for control of charge states of NV centers", Appl. Phys. Lett. 112, 111903, 2018

(3) M. Shimizu, T. Makino, T. Iwasaki, K. Tahara, H. Kato, N. Mizuochi, S. Yamasaki, M. Hatano, "Charge state control of ensemble nitrogen vacancy center by n-i-n diamond junction", Applied Physics Express, 11, 033004, 2018