

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：12401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2021

課題番号：18K13485

研究課題名（和文）ダイヤモンドNVセンタと構造制御CNTのエネルギー移動に関する研究

研究課題名（英文）A Study on energy transfer of diamond NV center and structure controlled CNT

研究代表者

清水 麻希 (Shimizu, Maki)

埼玉大学・理工学研究科・助教

研究者番号：80748690

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：ダイヤモンド中の窒素空孔センタ(NVセンタ)は量子情報素子や磁気センサの有望な候補となっている。NVセンタのスピンの読み出しは光によるものがほとんどであるが電流検出等に向けてNVセンタのもつ情報をカーボンナノチューブ(CNT)に移すエネルギー移動が起こるのかどうかの検証を行った。石英基板上と石英基板上に形成したCNT薄膜上でNVセンタを含むナノダイヤモンド石英基板上での単一ダイヤモンドNVセンタの蛍光強度は10-18 kcps, 蛍光寿命は8-10ns程度となった。CNT薄膜上ではCNTの発光のため値を見積もることができていない。また、CNTの物性計測をNVセンタで行う実験にも取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の当初の目的は達成されていないが、フィルター等を用い、計測の障害になっているCNTの発光を取り除くことにより再度計測を行いエネルギー移動の実証を行いたい。また、NVセンタによるCNTの物性計測に関しては順調に要素技術が達成されているため、引き続き計測を行って物性を明らかにしたい。

研究成果の概要（英文）：Nitrogen vacancy centers (NV centers) in diamond are promising candidates for quantum information devices and magnetic sensors. In this study, we investigate the energy transfer of NV centers to carbon nanotubes (CNTs). If energy transfer is achieved, it may be possible to read out NV center spins by current detection.

The fluorescence intensity of a single diamond NV center on a quartz substrate and was 10-18 kcps, and the fluorescence lifetime was about 8-10 ns. In the case of NV centers on the CNT thin film, the values have not been estimated due to the luminescence of CNTs on the CNT thin film.

研究分野：デバイス物理

キーワード：ナノチューブ NVセンタ 量子

### 1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンド中の窒素空孔センタ(NV センタ)は室温においてスピンの読み出しと初期化ができるため量子情報素子や磁気センサの有望な候補となっている。しかし、現在報告されている NV センタのspin状態の読み出しは光によるものがほとんどである。NV のspin状態の電流による計測は近年実現が報告されているが、コントラスト等は光計測に比べて劣っていた。先行研究ではダイヤモンドの NV センタからグラフェンへのエネルギー移動と、それによる電流検出について研究が行われている。カーボンナノチューブ (CNT) はグラフェンを丸めた構造となっており、全波長帯を吸収するグラフェンとは違い構造や半導体金属によって吸収する波長帯が異なる性質を持っているためカーボンナノチューブに CNT 行うことにより、高効率に測定できる可能性がある。しかし、NV センタと CNT の相互作用に関しては全く調べられていない。

### 2. 研究の目的

ダイヤモンド NV センタから有機分子やグラフェンへのエネルギー移動は観測されているがダイヤモンド NV センタから CNT へのエネルギー移動はまだ観測されていない。CNT の吸収波長の選択性があることからグラフェンと比較してエネルギー移動の効率が低いと考えられることなどをふまえて、励起レーザーで励起した時の単一ダイヤモンド NV センタの蛍光寿命と蛍光強度を統計的に比較することでエネルギー移動が起きているかを観測することを目的とした。一方、本研究を行う系を作製するにあたり、NV センタを用いて CNT のナノ物性計測を行うことも可能になると考え、実験を行った。

### 3. 研究の方法

エネルギー移動が起こる分子からの蛍光はエネルギー移動が起こっていない場合に対して蛍光となるべきエネルギーが別の分子 (この場合 CNT) に吸収されるため減少する。また、蛍光寿命が短くなる

NV の励起エネルギーが CNT 移動する際に、蛍光と吸収を伴う過程と直接移動する過程が考えられる。CNT と NV の距離を近づけて NV の蛍光の寿命の測定を行うことにより、その過程を明らかにし、エネルギー移動を実証する。図 1 のように 2 つの光検出器を用意し、単一発光体からの発光を測定すると励起状態から基底状態までに有限の寿命を持つためアンチバンチングと呼ばれる現象が観測される。このアンチバンチングの立ち上がりが単一の NV センタの光励起状態の寿命である。本研究では石英上に分散した NV センタと

単一の NV センタの蛍光強度と寿命について検討を行った。

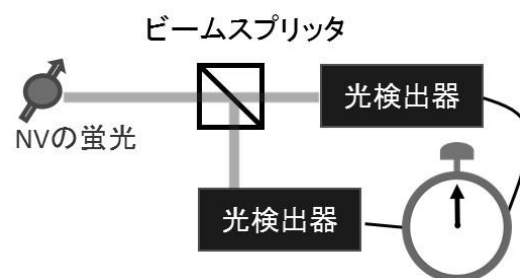


図 1: NV の光励起寿命の測定：単一 NV について 2 つの光検出器の光子の間隔測定を行うと時間差 0 のところで相関が弱まる。このアンチバンチングの立ち上がりの時間が寿命となる。CNT を接触させたときの NV の寿命測定を行う

### 4. 研究成果

(1) ナノダイヤモンドは、大気中 500 度でアニールすることにより表面上のグラファイトを取り除いた。ナノダイヤモンドを石英基板上に孤立して分散する条件をだした。CNT 薄膜は石英基板を自己組織化膜で修飾し、CNT 溶液を滴下することにより作製した。

図 2 に基板上に石英基板上 (a) と CNT 薄膜上 (b) に分散したナノダイヤモンドの SEM 像を示す。

1  $\mu\text{m}$  四方に数それぞれ個存在している。先行研究によりナノダイヤモンド 100 個に 1 個程度の割合で単一の NV センタが存在していることがわかっており、孤立した状況にある。

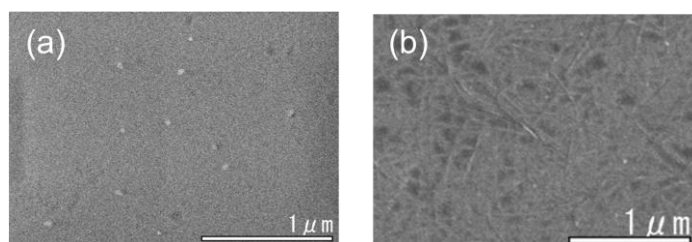


図 2 (a)石英基板上に分散した直径 20nm 程度のナノダイヤモンド

(b)CNT 薄膜上のナノダイヤモンド

石英基板上で HBT 計測を行い 532nm のレーザーを照射しパワーを 1 mW, 2 mW, 5 mW, 10 mW に変えたときの HBT 測定結果をフィッティングし、蛍光寿命を算出した。蛍光寿命を測定した結果を図 3 に示す。石英基板上での単一ダイヤモンド NV センタの蛍光強度は 10-18 kcps, 蛍光寿命は 8-10ns 程度となった。

次に CNT 薄膜上の NV センタについて計測を行った。しかし、CNT 薄膜自体に発光点がみられることがわかった。CNT の発光点の原因ははっきりしていないがスペクトル計測を行うと 640 nm と 690nm 近傍に鋭いピークがみられた。kataura-plot 等から見積もる蛍光スペクトルの位置からはずれておりラマンのピークである可能性もある。NV センタの計測を行うと CNT からの発光も含んでしまい単一の NV センタである判別ができなかった。フィルター等でこれらのピークの位置の蛍光を取り除いて蛍光強度、蛍光寿命を計測する必要があるが、行えていない。

(2) 本研究では NV センタの信号を CNT に移すことを考えたが、同時に NV センタを用いて CNT のナノ物性計測を行うことも検討し実験を行った。具体的には、優れた熱電特性が報告されている CNT 等ナノスケール材料の熱電特性を、ダイヤモンド中の窒素空孔欠陥 (NV センタ) による温度センサによって測定する技術の開発である。NV センタは非常に小さな欠陥であるため従来のシステムで不可能であったナノスケール計測が可能であることが報告されており、これを用いることにより、熱電の正確な評価ができると考えられる。

図 4 (a) に現在作製しているサンプル構造を示す。カーボンナノチューブ 1 本の両端に電極を形成し NV センタを含むナノダイヤモンドを電極上に配置することができた。図 4 (b) に示す通りマクロな温度を変化させると、それに比例してナノダイヤモンド中の NV センタの光検出磁気共鳴の信号のシフトが得られた。現在局所ヒーターにより加熱を行って熱電計測を行っている。

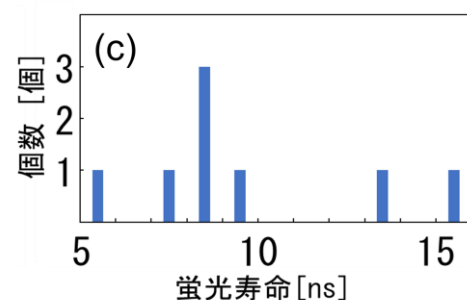
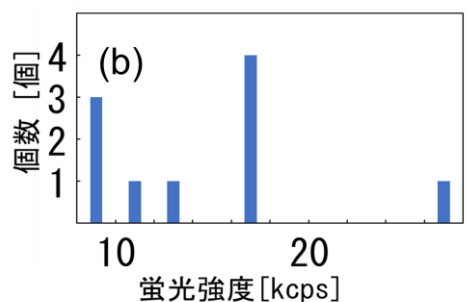
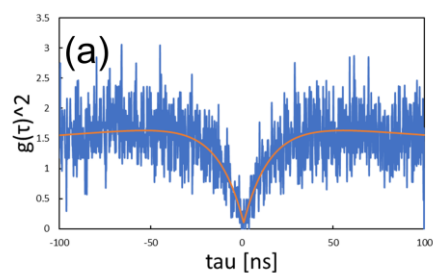


図 3 (a)HBT 測定とフィッティング (b) 石英基板上の単一 NV センタの蛍光強度 (c) 蛍光寿命

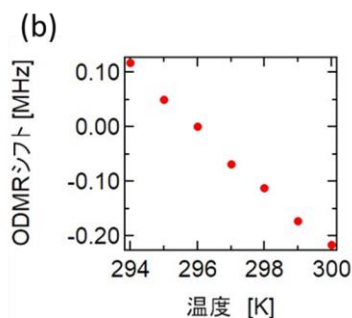
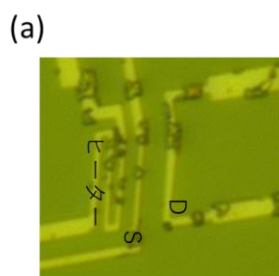


図 4 (a) 作製したデバイス構造 (b) マクロな温度を変化させたときのシフト量

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 守護 理高, 森 峻, 土方 泰斗, 相川 慎也, 清水 麻希
2. 発表標題 低蛍光強度の透明導電膜
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------