

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05352

研究課題名(和文)2次元材料窒化ホウ素への室温でスピン操作・読み出し可能な新規スピン欠陥の創製

研究課題名(英文)Creation of spin defects in the two-dimensional material boron nitride

研究代表者

山崎 雄一 (Yamazaki, Yuichi)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 量子機能創製研究センター・上席研究員

研究者番号：10595060

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：2次元材料窒化ホウ素中のスピン欠陥の一つであるボロン空孔(VB)について、熱安定性に着目した形成条件最適化および理論計算による新規スピン欠陥候補の抽出を行なった。高温イオン照射および室温照射+ポストアニールとの2つの形成方法を検証、光学・スピン特性およびセンサ感度に相当するODMR信号のS/N比について同程度の改善が認められた。結晶歪みに関係するパラメータであるゼロ磁場分裂E項については、600以上の高温イオン照射で明らかに減少した。高温イオン照射は導入される結晶損傷量の少ないVB形成方法と言える。理論検討によりCl(Nサイト)の置換型欠陥が抽出された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン欠陥は量子センサに応用可能であり、現在世界中で研究が行われている。スピン欠陥の特性は形成条件に大きく左右される。本研究によって、2次元材料窒化ホウ素中スピン欠陥についても、熱処理によって特性を改善可能であることが明らかとなった。量子センサを高性能化するために重要な知見である。新規スピン欠陥による高性能化も重要であり、欠陥候補を抽出できたことは、今後の探索研究に向けた有用な情報である。

研究成果の概要(英文)：We optimized the formation conditions of boron vacancies (VB), one of the spin defects in the two-dimensional material boron nitride, and investigated new candidate of spin defects by theoretical calculations.

Two formation methods, high-temperature ion irradiation and room-temperature irradiation followed by post-annealing, were verified. Similar improvements were observed in optical and spin properties, as well as in the signal-to-noise ratio of the ODMR signal, which corresponds to sensor sensitivity.

The zero-field splitting parameter E, which is a parameter related to crystal distortion, was clearly reduced by high-temperature ion irradiation at more than 600 °C. From the results, we concluded that high-temperature ion irradiation is a promising VB formation method with a low amount of crystal damage introduced. Substitutional defects of Cl (for N site) were extracted by theoretical calculations.

研究分野：量子技術

キーワード：スピン欠陥 窒化ホウ素 高温イオン照射 光検出磁気共鳴

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

量子技術は従来技術を凌駕する性能が期待される次世代基盤技術である。量子技術を担う物理的実体(Qubit)としては、超伝導素子、冷却原子、量子ドット、固体中原子欠陥などがある。これらの中で、ダイヤモンド窒素-空孔複合欠陥(NV センター)や SiC シリコン空孔(V_{Si})という固体中原子欠陥(スピン欠陥)は、室温でスピン操作・読み出し可能、デバイス作製技術との高い親和性という他にはない特長を有しており、量子センサから量子メモリ、量子通信まで幅広い応用が期待されている。

それまでのスピン欠陥は全て 3 次元のワイドバンドギャップ半導体を母体とするものに限られていた。量子センサの感度の観点からは、被測定物-センサ間距離をできるだけ小さくしたいが、スピン欠陥を母体表面近傍に作製すると、その電荷状態が変化してしまい、量子センサとして機能なくなってしまうという本質的な課題があった。本研究では、母材を 2 次元材料とすることでその課題を回避可能と考え、2 次元材料かつワイドバンドギャップである六方晶窒化ホウ素(hBN)中スピン欠陥を発見することを目的に掲げた。しかし、研究開始直前に hBN 中スピン欠陥発見の報告がなされてしまった。そこで、hBN 中スピン欠陥探索という目的に加えて、hBN 中スピン欠陥の熱的安定性に着目した形成条件最適化を追加した。

2. 研究の目的

- (1) hBN 中スピン欠陥の一つであるホウ素空孔(VB)の熱的安定性に着目した形成条件最適化
- (2) 理論計算による hBN 中新規スピン欠陥候補の抽出

3. 研究の方法

(1) hBN 中スピン欠陥の一つであるホウ素空孔(VB)の熱的安定性に着目した形成条件最適化
熱的安定性がスピン欠陥形成に与える影響を調べるために、高温イオン照射(欠陥生成と熱による構造変化が同時に進行)と室温照射+ポストアニール(欠陥形成 熱的構造変化)の二つの方法を比較検討した。処理温度は室温~最大 800 まで変化させた。イオン照射条件は、窒素分子(N₂)、40keV、1e15cm⁻²である。光学・スピン特性評価には、フォトルミネッセンス(PL)および光検出磁気共鳴(ODMR)をそれぞれ用いた。

(2) 理論計算による hBN 中新規スピン欠陥候補の抽出

第一計算を用いて置換型欠陥のスピン欠陥候補可否の検討を行なった。元素は第二~第三周期の全元素、スピン欠陥判定条件として、スピン数が 1 以上、電子準位ギャップが 1eV 以上、荷電状態=-1, 0, +1、の 3 つを課した。

4. 研究成果

図 1 に PL 強度の処理温度依存性を示す。ポストアニールでは 600 で PL 信号が消失してしまうのに対して、高温イオン照射の場合、700 でも僅かながら PL 発光を確認することができた。VB の生成消滅過程(生成=照射、消滅=熱的構造変化)を考慮したレート方程式を用いて図 1 のデータを解析した結果、VB 消滅の活性化エネルギーが 1.2 ± 0.4 eV と求められた。この値でポストアニール(550)における PL 強度の処理時間依存性も説明できることを確認している。図 2 は ODMR 信号の信号/雑音比(S/N 比)(量子センサ感度を示す指標)の処理温度依存性である。両処理により、4 枚程度の S/N 比の改善が見られた。図 3 にゼロ磁場分裂(ZFS)E 項の処理温度依存性を示す。E 項は結晶歪みを反映していると考えられる値であり、E 項が大きいほど結晶歪みが大きいことを示唆している。両処理とも、600 までは E 項にほとんど変化が認められないが、650 以上の高温イオン照射で E 項の明らかな減少が観察された。これは、高温による熱的構造変化により不要な欠陥が除去される中、同時に VB が生成された結果、低結晶歪みの hBN 結晶中に VB が形成されたと考えられる。これは、高温イオン照射は低結晶損傷の VB 形成方法であることを意味している。量子センサ性能の観点からは、両処理にほとんど差はなく、熱的構造変化による不要欠陥除去によりセンサ性能の向上を図ることが可能であることがわかった。

表に理論計算による hBN 中新規スピン欠陥候補の抽出を示す。第二周期元素では、Be および Li(いずれも N サイト)が抽出できた。第三周期元素では、Na および P(以上 B サイト)と Al, S, Cl および Ar(以上 N サイト)が候補となった。イオン化エネルギーおよび電子親和力(陽/陰イオンのなりやすさ)を考慮すると、Cl がより置換されやすい元素になると予想される。従って、本研究の範囲内においては、Cl_N が hBN 中新規スピン欠陥の最有力候補である。

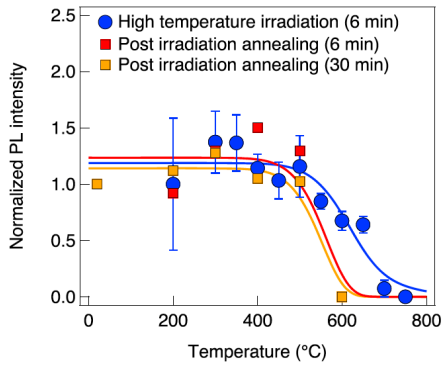


図1 両処理における
PL強度の処理温度依存性

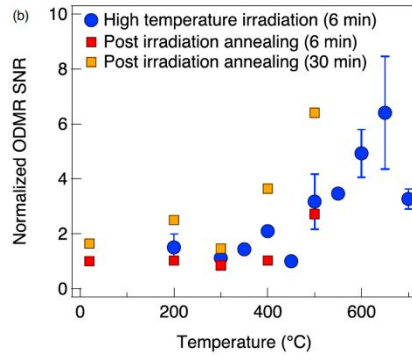


図2 両処理における
ODMR信号 S/N比の処理温度依存性

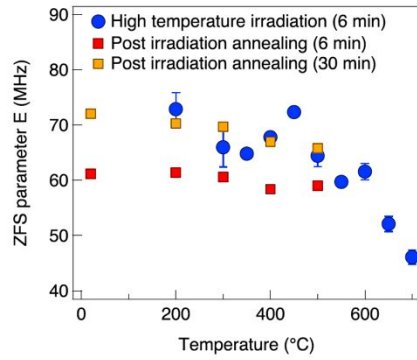


図3 両処理における
ゼロ磁場分裂(ZFS)E項の処理温度依存性

表 理論計算による hBN 中新規スピン欠陥候補。カッコ中の数字は荷電状態を示している。

点欠陥	B サイト	N サイト
第二周期	-	Be(1+), Li(0)
第三周期	Na(0) P(0)	Al(0) Cl(1-, 0) Ar(1-, 1+)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Suzuki Tetta, Yamazaki Yuichi, Taniguchi Takashi, Watanabe Kenji, Nishiya Yusuke, Matsushita Yu-ichiro, Harii Kazuya, Masuyama Yuta, Hijikata Yasuto, Ohshima Takeshi	4. 巻 16
2. 論文標題 Spin property improvement of boron vacancy defect in hexagonal boron nitride by thermal treatment	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 032006 ~ 032006
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/acc442	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 鈴木 哲太, 山崎 雄一, 谷口 尚, 渡邊 賢司, 松下 雄一郎, 針井 一哉, 圓谷 志郎, 増山 雄太, 土方 泰斗, 大島 武
2. 発表標題 2次元薄膜h-BNのスピントラップ形成及びその光学特性の測定
3. 学会等名 秋季応用物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木 哲太, 山崎 雄一, 谷口 尚, 渡邊 賢司, 松下 雄一郎, 増山 雄太, 土方 泰斗, 大島 武
2. 発表標題 高温イオン照射によるhBN中ホウ素空孔欠陥形成
3. 学会等名 春季応用物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tetta Suzuki, Yuichi Yamazaki, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Yusuke Nishiya, Yu-ichiro Matsushita, Kazuya Harii, Yuta Masuyama, Yasuto Hijikata, Takeshi Ohshima
2. 発表標題 Generation of boron vacancy defects in hexagonal boron nitride by high temperature ion irradiation
3. 学会等名 International conference on diamond and carbon materials (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuichi Yamazaki
2. 発表標題 Methods of spin defect formation in hBN and their optical and spin properties
3. 学会等名 International Workshop of Spin/Quantum Materials and Devices (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuichi Yamazaki
2. 発表標題 六方晶窒化ホウ素中のスピン欠陥の光検出磁気共鳴評価
3. 学会等名 第70回応用物理学会 春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023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
研究 分担者	松下 雄一郎 (Matsushita Yuichiro) (90762336)	東京工業大学・物質・情報卓越教育院・特任准教授 (12608)	

	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
研究 協力者	谷口 尚 (Taniguchi Takashi)		
研究 協力者	渡邊 賢司 (Watanabe Kenji)		

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
---------	---------