

ダイヤモンド窒素-空孔欠陥 (NV) を用いた コンパクトでポータブルな量子センサモジュール

Compact and Portable Quantum Sensor Module Using Diamond Nitrogen-Vacancy Centers



寺本 三記 Minori Teramoto

水落 憲和 Norikazu Mizuochi 林司 Tsukasa Hayashi

藤原 正規 Masanori Fujiwara

辰巳 夏生



森下 弘樹 Hiroki Morishita

USB3.0電源で3Wの低消費電力で動作するダイヤモンドNVセンターを用いたコンパクトでポータブルな量子センサモジュールを 開発した。NVセンサは、住友電気工業㈱の独自の超高圧合成技術により製作された高品質な汎用のダイヤモンドを用い、㈱NHVコー ポレーションにて電子線照射の処理を行うことで高感度のものを製作した。また、ダイヤ基板をコーナーキューブにすることにより、 光電流を直方体の形状に比べて2.1倍に高めることに成功した。加えて、λ/4オープンスタブとλ/4変成器を用いたマイクロ波共 振器によりNVセンターを強力に磁気駆動させ、マイクロ波の電力を20dB低減した。これら光学系とマイクロ波系の効率向上により、 5×10×20mmの小さなセンサヘッドで磁界と温度を計測できるコンパクトでポータブルな量子センサモジュールを実現した。本 稿では、ダイヤモンドセンサの社会実装に資するべく、これらの技術成果を報告する。

We have developed a portable measuring instrument that uses diamond nitrogen-vacancy (NV) centers. It operates on the USB 3.0 power supply of a laptop computer, consuming only 3 W of power. We use high-quality diamonds produced by Sumitomo Electric Industries, Ltd. and NHV Corporation's electron beam processing to create a sensitive NV sensor. The device's portability is achieved through low power consumption in both the optics and the microwave source. This is made possible by a diamond corner cube that increases the photocurrent by 2.1 times compared to planar diamonds and a microwave resonator using a $\lambda/4$ transformer and $\lambda/4$ open stub that reduces the power consumption by 20 dB. The sensor head is compact (5 × 10 × 20 mm), and allows for magnetic field and temperature measurements. The successful implementation of these features contributes to the use of diamond sensors in various applications.

本稿は「Applied Physics Express 16, 62004 (2023)」に掲載の論文に、一部加筆したものである。

キーワード:ダイヤモンド、NVセンター、量子センサー、磁場、温度

1. 緒 言

量子コンピュータや量子暗号通信など、活発に研究されて いる量子アプリケーションの中で、近い将来に社会実装が 期待できる具体的な用途が多数提案されている量子センサ のうち、特にダイヤNVセンターが着目されている。NVセ ンターとは、図1のようにダイヤモンド中の炭素原子(C) が窒素原子(N)と空孔(Vacancy)のペアに置き換わっ たものである。



写真1 単結晶ダイヤモンド 図1 NVセンターの結晶構造

日新電機㈱では、住友電気工業㈱(以下、住友電工)に て高温高圧法^{*1}で合成したダイヤモンドに日新電機グルー プ企業である㈱NHVコーポレーション(以下、NHVC)の 電子線照射^{*2}、もしくは日新イオン機器㈱のイオン注入^{*3} を用いて空孔を作り出し、アニール処理を行ってNVセン ターを形成している。

その基本特性は光学的手法や電子スピン共鳴法で測定され^{(1)、(2)}、電子状態が研究されてきた^{(3)~(5)}。NVセンターは緑色の励起光を当てると赤色に蛍光を発し、その蛍光の強さは磁界やマイクロ波共鳴によって変化する光検出磁気共鳴(Optically Detected Magnetic Resonance, ODMR) という特性を持っている。NVセンターはスピン三重項と呼ばれる基底状態を持ち、m_s = ±1の準位は磁界によってゼーマン分裂を起こす(図2)。光で励起すると電子は元の準位によらず最も低いm_s = 0に落ち着くが、ここでm_s = ±1に一致した周波数のマイクロ波を照射すると、NVセンターは非発光の状態となる。この共鳴周波数を測定することで、NVセンターは周囲の磁界・電界・温度を敏感に読み

取ることができる。このような動作原理のため、センサー としての性能を上げるには、励起光とµ波強度の向上と、 蛍光の高効率収集の技術が必要である。



図2 NVセンターの電子状態

さらにNVセンター中のスピンは室温においてもコヒー レント時間が非常に長いことが示され⁽⁶⁾、さまざまな量子 センサの可能性が提案されてきた^{(7)~(10)}。現在ではNMR や^{(11)~(13)}、心磁・脳磁センサ⁽¹⁴⁾、車載バッテリーセン サ⁽¹⁵⁾、細胞/生体センサ^{(16)、(17)}、素粒子物理センサ^{(18)、(19)} など、さまざまなセンサ応用が熱心に研究されている。

従来は光学ベンチ上でNVセンターの基本特性が研究されていたが、現在はこれら実際の応用に向けての検討が進んでいる。Stürnerらは、コインサイズのダイヤモンドセンサを研究し⁽²⁰⁾課題として、励起光による発熱と、測定対象の磁界に対する電子部品によって生成される磁界の影響を挙げている。また、Herbschlebらは広いダイナミックレンジのパルスNVセンシング法を示し⁽²¹⁾、波多野らはCWセンシング法で電気自動車のバッテリーの充放電電流を広いダイナミックレンジで計測できることを示した⁽¹⁵⁾。これらはマイクロ波発生器とセンサ制御を光学台の上で行っていたため、自動車用途には小型化が期待されている。Marianiらは、科学教育のための卓上システムを構築し、量子操作を身近なものとした⁽²²⁾。しかし、これは顕微鏡に類似した光学システムを使用しており、さまざまな外磁場のセンシングシステムとして使用するためのものではなかった。

社会実装に向けて、センサヘッドと励起光の光源、さら にマイクロ波の発生とセンサの制御も含めてコンパクトで ポータブルなセンサシステムが求められている。今回の量 子センサモジュールでは、励起光源とマイクロ波源および センサの制御をノートパソコンのUSB 3.0電源で動作する まで低消費電力に抑え、消費電流0.6A、3Wで駆動でき るようにした。ダイヤモンドセンサをシンプルなコーナー キューブにカットすることにより、励起光や蛍光の、吸収 や密度や集光の効率を大幅に向上させた。また λ/4オープ ンスタブと λ/4変成器を用いたマイクロ波共振器により、 マイクロ波源の電力を低減することも示す⁽²³⁾。

2. 低消費電力化の技術

2-1 励起光源の低消費電力化

ダイヤモンド磁気センサの感度の理論式⁽⁷⁾は、比例記号 を使用して簡略化すると、

$$\eta \propto \frac{1}{qC\sqrt{N_{NV}T_2^*}}$$
 (1)

(ここでqは量子効率・集光効率、Cは蛍光コントラスト、 N_{NV}はNVセンター数、T2*はスピンのコヒーレント時間) で表されるため、量子効率・集光効率qが良くなると感度 が比例して良くなる。さらに励起光の吸収効率に比例して 励起されるNVセンターの数N_{NV}が増えるため、その数が 多いほど、感度が良くなる。これらを向上させるコーナー キューブカット(**写真2**)について説明する。



写真2 コーナーキューブダイヤの外観写真

(1) 蛍光の集光効率の向上の効果

ダイヤモンドは宝石としてブリリアントカットされた場 合は輝いて見えるが、単純な平面やウェハ状ではNVセン ターの励起や蛍光検出には不利となる特徴がある。平面の ダイヤ基板では、屈折率が2.4と周辺の空気より大幅に高 いため、蛍光のうち集光できるのは、前方の±12.0°以内 に放射される1.1%のみに留まり、残りの光は反射されて ダイヤの外に取り出すことができない(図3 (a))。

これに対して、ダイヤ基板をコーナーキューブカットする と、蛍光取出面以外が傾斜していることにより蛍光が全反 射し、取出面に垂直に向かう光路を増やすことができる。 まずコーナーキューブの3面の側面のうちの1面に1回反射 して前方を向く方向が3通り(図4(C))ある。次に2面に1 回ずつ反射して前方を向く方向が3通り(図4(D))ある。 さらに取出面と逆方向に向かう蛍光は3面に1回ずつ反射し て前方を向く1通りがあり(図4(B))、合計で最大1+3+ 3+1=8通りの方向の±12.0°で放射される蛍光が集光で きるため最大8.8%まで蛍光収集効率が向上する。





図4 コーナーキューブダイヤ内の蛍光の光路

(2) 励起光の吸収効率の向上の効果

平面のダイヤ基板では、ダイヤ基板の平面に垂直に入射 した励起光はそのまま裏面から抜けてしまい、光路長は基 板の厚みdに留まる。これに対して、コーナーキューブカッ トのダイヤ基板は、底面に垂直に入射した励起光は、斜面 の3面に1回ずつ反射して入射方向に戻る全反射の機能を持 つ(図5(b))。これにより光路長が平面ダイヤの2倍に長 くなり、励起されるNVセンター数N_{NV}が2倍となること で、励起光の光吸収の効率が(途中の吸収が小さい場合に は)2倍に向上する。励起光の吸収効率の効果の比較を示 す(図5)。



図5 ダイヤ基盤の形状の違いによる励起光の光路長の変化

(3) 励起光のパワー密度の向上の効果

励起光のパワー密度を1とすると、平面のダイヤ基板では、正面からの励起光のみがNVセンターに到達するため、 パワー密度は1のままである。コーナーキューブカットの ダイヤ基板では図5の経路の逆をたどり、コーナーキュー ブの3面の側面の1面に1回反射して到達する経路が3通り (図4(C))、2面に1回ずつ反射して到達する経路が3通り (図4(D))、3面に1回ずつ反射して到達する経路が1通り あり(図4(B))、合計で1+3+3+1=8通りの経路の励起 光が照射されることになり(途中での吸収が小さくそれぞ れで全反射した場合、の最大で)NVセンターに照射され る励起光のパワー密度が8倍に向上する。

(4) コーナーキューブカットの感度向上の効果

これらの向上効果の合計値を計算すると、蛍光を集光す る光学系(光ファイバや対物レンズ)の開口数を0.5、ま た途中での吸収が小さく、光ファイバのコアまたは対物レ ンズはダイヤ基板より十分大きい場合を考えると、集光効 率qは8倍、また励起光の吸収効率N_{NV}を2倍として先述の 感度の理論式に当てはめると感度は最大で8×√2≈11倍の 向上が期待できる。

(5) 比較実験

平面とコーナーキューブカットで、ダイヤ基板から測定 される蛍光量を比較した。本稿での全ての試料は窒素を含 むlb型ダイヤモンドを用い、NHVCにて3MeV、1×10¹⁸ cm²の電子線照射を行い、真空中900℃で1時間アニール 処理を行った。コーナーキューブの寸法は斜辺1.3mm、 底辺1.7mmとし、両サンプルともコア径φ400µm、NA 0.5のマルチモード光ファイバを端に設置し、フォトダイ オードに接続した。励起光は波長515nm、ファイバ端で 強度3mWとした。蛍光の光電流で比較すると、平面のダ イヤ基板では610nA、コーナーキューブのダイヤ基板では 1300nAとなり、低消費電力のレーザーダイオードでもS/ N比の良いデータ取得が可能になった。

実験値(2.1倍)と(4)で示した理論値(11倍)との乖離に ついては、実験で用いた光ファイバのコア径(φ400µm) に対して、ダイヤの底辺1.7mmが大きく、光ファイバのコ アはダイヤの底面の約1/10を覆うに留まるため、ダイヤの 側面で反射した光が光ファイバに入らず外に漏れてしまっ たためと考えている。この実験により、光ファイバのコア 径とダイヤのサイズの最適化や、一辺が1mmを下回るダ イヤの加工や取り扱いが課題であることがわかった。

2-2 マイクロ波源の低消費電力化

(1) マイクロ波の電流を大きくする効果

NVセンターを強く磁気共鳴させるにはマイクロ波の磁 界を強くする必要がある。そのためにはマイクロ波の電流 を大きくする必要があり、出力がP(W)で特性インピー ダンスがZ(Ω)の高周波回路の電流は

$$I = 2 \times \sqrt{P/Z} \,\mathcal{A}_{\rm rms} \qquad (2)$$

であるため、負荷のインピーダンスが0Ωの時に最大値が 得られる。そのためには負荷インピーダンスを0Ωに近づ けつつ、負荷から電源側を見た際の線路の特性インピーダ ンスと電源の短絡抵抗を下げることになる。

 $\lambda/4$ オープンスタブの付け根を基準面とすると、基準面 から先端を見た負荷インピーダンスを0(Ω)に近づけて直 列共振させるため、 $\lambda/4$ オープンスタブを用いた。また、 基準面から電源側を見た際の線路の特性インピーダンスと 電源の短絡抵抗とを下げるため、インピーダンス変換に λ/4変成器を用いた。

(2) マイクロ波の磁界を強くする効果

次にマイクロ波の磁界を強くするための λ/4オープンス タブの線路の形状と特性インピーダンスについて説明する。 線路の特性インピーダンスは

 $Z_0 = \sqrt{L/C} (\Omega) \tag{3}$

であり、Lは単位長当たりのインダクタンス(H/m)、Cは 単位長当たりのキャパシタンス(F/m)である。単位長 当たりのインダクタンスは単位長当たりの磁束量であり、 λ/4オープンスタブの線路の幅が同じであれば、磁束密度 に比例する。

このことから、λ/4オープンスタブで磁界を強くするため、単位長あたりのインダクタンスの大きい、つまり特性 インピーダンスの大きい線路形状を採用する必要がある。 また、導体配置の対称な線路形状では、導体間に均一なマ イクロ波磁界が発生する。線路の特性インピーダンスが大 きいことと、導体配置が対称なことにより、平行2線の線 路形状を採用した。

このような考察から、インピーダンス変換を λ/4変成器 とし、直列共振を λ/4オープンスタブとすることで、マイ クロ波を強くする共鳴器を構成した(図6)。

λ/4変成器の線路は特性インピーダンスはZo=20Ωのマ イクロストリップラインとし、銅箔テープとポリイミドシー トで試作した。λ/4オープンスタブの線路は特性インピーダ ンスはZo=200Ωの平行2線とし、銅ワイヤで試作した。



(3) 比較実験

この共鳴器を50Ω終端のマイクロストリップラインや、 50Ω終端のコプレーナ線路⁽²⁴⁾と比較した。また、電気回路 の双対性から、電流と電圧、開放と短絡、直列共振と並列 共振を入れ替えて構成したλ/4ショートスタブの共鳴器と も比較した。共鳴器の性能はNVセンターの磁気共鳴した時 の蛍光の減光量で評価し、励起光は波長515nm、15mW、 スポットサイズ60×120µmとした。光学系は市販の顕微 鏡を改造し、照明の位置にLDを、接眼レンズの位置にPD を置いた。マイクロ波の磁界の方向は(100)基板に対し て〈100〉方向または〈010〉方向とした。直流バイアス 磁界は印加せず、磁気遮蔽は行わなかった。共鳴器の特性 の評価はベクトルネットワークアナライザ(NanoVNA) で行った。本比較実験の結果を図7と写真3に示す。



図7 各形状の共鳴器のスピン検出コントラスト比と マイクロ波パワーの関係





本図のように、λ/4変成器とλ/4オープンスタブで構成されたマイクロ波共鳴器により、他の線路に比べ約20dB低いマイクロ波出力で同等のコントラスト比を得ることができ、2dBm未満でCW-ODMRが計測可能になった。これにより、マイクロ波を発振するICの出力(例えばADF4351、出力-4~5dBm)を増幅せずに使用できるため、消費電力も低減を実現した。

また、ベクトルネットワークアナライザでこの共鳴器性 能を測定すると、50Ω終端のコプレーナ線路では100MHz ~3GHzの広い範囲で透過S21パラメータが1に近く、スミ スチャートで50Ω付近に留まる特性が得られた。λ/4変成 器とλ/4オープンスタブのマイクロ波共鳴器では反射S11 パラメータが1に近く、スミスチャートで50Ω付近に近づ かない特性が得られた。

3. ダイヤモンドNVセンサモジュール

3-1 センサヘッドの構成

図8と写真4にセンサヘッドの構成を示す。マイクロ波の 伝送は同軸ケーブルで行い、励起光と蛍光の伝送は1本の 光ファイバで行った。先述のコーナーキューブカットのダ イヤ基板と、λ/4変成器とλ/4オープンスタブで構成した マイクロ波共鳴器を使用した。

センサヘッドは5mm×10mm×20mmの直方体形状と し、マイクロ波共鳴器は $\lambda/4$ 変成器と $\lambda/4$ オープンスタブ の接続部と、 $\lambda/4$ オープンスタブの中央の、計2か所で折 り曲げてセンサヘッドをコンパクトにした。



図8 センサヘッドの構造



写真4 センサヘッドの外観

3-2 制御モジュールの構成と計測機能

制御モジュールは、①励起光の発生、②マイクロ波の発

生、③蛍光の受光、④センサの制御を行う。表1に、制御 モジュールの主要な部品構成と計測機能を示す。

表1 制御モジュールの主要な部品構成と測定機能

主要部品	
マイコン	Arduino Due
励起光源 レーザーダイオード	Thorlabs L515A1, wavelength 515 nm, 10 mW
フォトダイオード	Hamamatsu Photonics S6967 (Si series)
光ケーブル	Thorlabs M126L01, core diameter 400 μ m ϕ , NA 0.5
マイクロ波 シンセサイザー	Analog Devices ADF4351 (Kit Board)
受光回路オペアンプ	TI OPA627
直流電源 DCDCコンバータ	TDK-Lambda CC1R5-0512DF-E (±12 V output)
計測機能	
CW-ODMR	-1 dBm、2.77~2.97 GHz (100kHz間隔) 230秒
温度測定 (ゼロ磁場下)	-10~70℃ (1.4℃刻み) 0.7秒
蛍光強度測定 (マイクロ波周波数固定)	-1 dBm, 2.88 GHz 0.015秒
温度測定 (商用AC磁界下)	-40~200℃ (1.4℃刻み) 15秒

3-3 センサモジュールによる測定例

センサモジュールに搭載した測定機能のうち、 CW-ODMRによる測定例を示す(写真5)。測定では0~ 1mTでダイヤモンド結晶(100)方向のDC磁界を印加 してセンサーモジュールの感度を測定した。蛍光強度は 500nAで蛍光ノイズは50pArmsであった。図9より、半値 幅は8MHz、コントラスト比は1.3%であった。(100)方 向の磁界はN-Vの結合方向の(111)から54.7°傾いてい るため、磁気回転比は28MHz/mT×cos 54.7°=16MHz/ mTとなる。この時の蛍光のS/N比は50pA/500nA= 0.0001、また蛍光の測定は1秒間に9回行っているので、

8MHz/ 16 / (0.013/0.0001)/ $\sqrt{9}$ = 1.34 µT/ \sqrt{Hz}

相当と見積もった。現状の感度に対しては、光ファイバの コア径とダイヤのサイズの最適化や、一辺が1mmを下回 るダイヤの取り扱いの改善や、NVセンター濃度の選択の 最適化により、向上できると考えている。





写真5 ノートPCに接続された 図9 CW-ODMR測定結果 センサモジュール

4. 結 言

用途開発のデモ機として、卓上のUSB電源で測定できる 量子センサーを開発した。コンパクト化とポータブル化と 低消費電力化を実現するダイヤ基板のカットの技術(コー ナーキューブカット)とマイクロ波共鳴器の技術 (λ/4変 成器とλ/4オープンスタブ)を紹介した。ダイヤのこれら の技術がダイヤ磁気センサの社会実装に資することを願う。

5. 謝 辞

森下より東北大学先端スピントロニクス研究開発セン タースピントロニクス学術連携研究教育部門に謝意を申 し上げます。また本研究は部分的にMEXT Q-LEAP (No. JPMXS0118067395) とスピントロニクス学術連携研究 教育センター (Spin-RNJ) の支援を受けました。

用語集-

%1 高温高圧法

High Pressure High Temperature (HPHT): 超高圧発生 装置を用いて、天然ダイヤモンドの結晶が生まれる環境を 再現し、原料となる黒鉛をダイヤモンドへ変換させる方法 である。

※2 電子線照射

高エネルギーの電子線をサンプルに照射する技術で、ダイ ヤモンドなど樹脂・高分子製品の架橋処理等に用いられる。

ЖЗ イオン注入

高エネルギーのイオンをサンプルに照射する技術で、半導 体などのドーピング層形成に用いられる。

- (1) G. Davies et al., Proc. R. Soc. Lond. A. 348, 285 (1976)
- (2) J. H. N. Loubser et al., Diamond Research.. 11, 4 (1977)
- (3) A. Lenef, S. C. Rand et al., Phys. Rev. B 53, 13441 (1996) (4) L. J. Rogers et al., New J. Phys. 17, 013048 (2015)
- (5) M. W. Doherty et al., Phys. Rev. B 85, 205203 (2012)
- (6) E. D. Herbschleb et al., Nat. Commun. 10, 3766 (2019)
- (7) J. M. Taylor et al., Nat. Phys. 4, 810 (2008)
- (8) T. Wolf et al., Phys. Rev. X 5, 041001 (2015)
- (9) C. L. Degen et al., Rev. Mod. Phys. 89, 035002 (2017)
- (10) 左亦康他、住友電エテクニカルレビュー第198号、67 (2021)
- (11) S. Schmitt et al., Science 356, 832 (2017)
- (12) D. Glenn et al., Nature 555, 351 (2018)
- (13) E. D. Herbschleb et al., Phys. Rev. Applied 18, 034058 (2022)
- (14) K. Arai et al., Commun. Phys. 5, 200 (2022) (15) Y. Hatano et al., Sci Rep. 12, 13991 (2022)
- (16) R. Igarashi et al., Nano Lett. 12, 5726 (2012)
- (17) B. S. Miller et al., Nature 587, 588 (2020)
- (18) X. Rong et al., Nat. Commun. 9, 739 (2018)

- (19) S. Chigusa et al., arXiv2302.12756 (24 Feb 2023) (20) F. M. Stürner et al., Diam. Relat. Mater. 93, 59 (2019) (21) E. D. Herbschleb et al., Nat. Commun. 12, 306 (2021) (22) G. Mariani et al., AIP Adv. 12, 065321 (2022) (23) H. Deguchi et al., Appl. Phys. Express 16, 62004 (2023) (24) Y. Masuyama et al., Rev. Sci. Instrum. 89, 125007 (2018)
- -----



* 主執筆者

林

出典元

出口 洋成 他、「ダイヤモンドNV センターを用いたコンパクトでポータブルな 量子センサモジュール」、日新電機技報 Vol.68 No. 2、pp.63-70 (2023 年12月)

ダイヤモンド窒素-空孔欠陥 (NV) を用いたコンパクトでポータブルな量子センサモジュール