ダイヤモンドオプトメカニカル共振器を用いたスピン制御技術の研究

研究代表者 車 一宏 東京大学 先端科学技術研究センター 特別研究員 PD

1研究背景

近年、ダイヤモンド中の不純物欠陥からなる空孔中心(カラーセンター)が、量子メモリ[1]や量子光源[2]、 高感度センサ[3]などへの応用の観点から注目を浴びている。特に、従来から研究されてきた窒素空孔 (Nitrogen Vacancy: NV)中心における電子スピンは、長いコヒーレンス時間[4]を持つことや室温での量子情 報操作[5]が可能であることなどから、将来の固体量子ビットを実現するプラットフォームとして期待されて いる。一方で、NV中心は、ゼロフォノン線での発光効率が低いことや、表面の電場揺らぎにより発光特性が 安定しない[6]ことなどが、量子情報への応用を進める上で大きな問題となっている。

最近では、ダイヤモンド中の他のカラーセンターとして、シリコンを用いた空孔中心であるシリコン空孔 (Silicon Vacancy: SiV)中心が、発光効率が高く、電場揺らぎの影響を受けにくい結晶構造によりナノスケ ールの構造中においても安定した発光特性が得られる[7]など、光学特性の面から多くの利点を持つことから、 ダイヤモンド基板上に光学的・機械的特性を有するナノスケールの共振器構造等を作製し、SiV 中心と結合 させることで、高効率な量子発光素子や電子スピン制御デバイスの実現が期待できる。一方で、SiV 中心と おける電子スピンのコヒーレンス時間は、熱 (フォノン)の影響により大きく制限されることが知られており (~100ns@4K)[8,9]、これまでに極低温(~100mK)で実験を行うこと[10]や、ダイヤモンドにひずみをかける こと[11]で、フォノンによるスピン緩和を抑える取り組みが報告されている。しかし、デバイス応用の観点 からより高い温度で長いコヒーレンス時間が必要であることや、ひずみによる制御ではフォノンの影響を完 全に排除できないなどの問題から、フォノンによるスピン緩和抑制のための新たな手法が望まれている。

上記問題を解決する手法の一つとして、オプトメカニカル結晶[12]とよばれるナノスケールの周期構造からなる人工結晶を用いる方法が提案されている。オプトメカニカル結晶中では特定の周波数帯域のフォノンが存在できないフォノニックバンドギャップが形成できることから、SiV 中心の周囲にオプトメカニカル結晶を作製することで、フォノニックバンドギャップ効果により特定の周波数のフォノンの存在を抑制し、電子スピンのコヒーレンス時間の増加が期待できる。また、オプトメカニカル結晶に欠陥や周期構造のシフトを導入することで、結晶中に共振器構造を作ることが可能であり、共振器のオプトメカニカルモードとカラーセンターの電子スピンの強い結合系が実現できれば、スピンを介したレーザークーリング[13]などのスピン制御に重要な実験が可能になると期待される。

一方で、ダイヤモンドのナノ加工技術はシリコンなど他の一般的な半導体と比べると未発達であり、ナノ 構造の作製は容易ではない。本研究では、まずナノスケールのオプトメカニカル結晶構造をダイヤモンド上 に作製するための作製手法を確立することに取り組み、さらに開発した作製手法を用いて実際に高品質な単 結晶ダイヤモンド基板上にオプトメカニカル結晶構造を作製することを目的とした。



図1 ダイヤモンドSiV 中心の電子スピンとフォノンによるスピン緩和

2 実験方法および結果

2-1 デバイス作製手法

本研究で目指すオプトメカニカル結晶は構造が宙に浮いたエアブリッジ構造を持つことから、ダイヤモン ド基板上でスラブ構造を作製する必要がある。しかし、スラブ構造を作製する問題として、現状では高品質 な単結晶ダイヤモンドは単結晶基板上でのみ成長が可能であり、シリコンや silicon on insulator ウェーハ 上での単結晶ダイヤモンド成長は困難であることから、スラブ構造の作製が難しく、単結晶基板を直接加工 する手法が一般的である。単結晶ダイヤモンド基板上にスラブ構造を作製する手法として、これまでに集束 イオンビームを用いたアングルエッチング[14]やイオンスライス[15]、反応性イオンエッチング(Reactive Ion Etching: RIE)によりダイヤモンド基板を1µm以下程度まで薄くする手法[16,17]など、さまざまな手法 が提案されてきた。実際、ナノスケールのオプトメカニカル結晶共振器がダイヤモンド上でアングルエッチ ングにより作製されたが[18]、原理的に2次元構造の作製が難しいという問題がある。イオンスライスでは イオン注入の際に基板へのダメージが避けられず、RIE による基板を薄膜化する方法では、キャリア基板で あるシリコンや SOI 基板が SiV 中心のための高温アニールに耐えられないことや、元のダイヤモンド基板に 厚さばらつきがあることから、大面積での薄膜化が難しいことなどの問題点があった。

本研究では、RIE をベースとした準等方性エッチング[19]を用いて、オプトメカニカル結晶の作製を試みた。準等方性エッチングでは、RIE において RF バイアスの無い状態でエッチングを行うことで、準等方的に ダイヤモンドをエッチングすることが可能である。さらに、高品質な単結晶バルク基板上に、2次元構造の 作製が可能であり、実際にこの手法を用いて厚さが数 100nm ほどの2次元のフォトニック結晶ナノ共振器(光 ナノ共振器)が報告されている[20]。

図2は準等方性エッチングを用いた構造作製の手順を示している。まず単結晶ダイヤモンド基板の上にハードマスクとして窒化シリコン(Silicon nitride:SiN)を化学気相成長法により堆積し、その上に電子線 描画用のレジストとして ZEP-520A(日本ゼオン社)をスピンコートする(図2(a))。電子線描画装置によっ て設計したパターンをレジストに描画し(図2(b))、現像液によってレジストを現像する(図2(c))。その後、 SiNを RIE によってエッチングし(図2(d))、レジストをレジスト剥離液である Remover PG (KAYAKU Advanced Material 社)によって剥離する(図2(e))。RIE によりパターンをダイヤモンド上に転写した後(図2(f))、ス ラブ構造を作製するために、原子層堆積法(Atomic layer deposition:ALD)により、Al₂0₃を堆積する(図 2(g))。その後、エッチングの底とサンプル表面のAl₂0₃を除去するために、Ar と Cl₂ガスによる RIE エッチ ングを行う(図2(h))。そして、RIE にて準等方エッチングを行う(図2(i))。RF のバイアスをゼロにするこ とで、02 ガスを用いた準等方的なエッチングが可能になる。エッチング時間を調整することで、スラブ厚を 調整することが可能である。所望のスラブ厚までエッチングした後、最後にフッ酸(Hydrogen fluoride:HF) により、SiN ハードマスクと Al₂0₃を除去することでデバイスを完成させる(図2(j))。

上記で説明した準等方性エッチング手法によってナノスケールの構造が作製できるかどうかを確認するた め、試験として1次元の周期的な空孔からなるフォトニック結晶ナノ共振器の作製を試みた。この光共振器 は、SiV 中心のゼロフォノン線~737nm 付近に光学的な共振器モード持つように設計した。図 3(a)は、本研 究で開発した準等方性エッチング手法によって作製したエアブリッジ構造を持つ1次元フォトニック結晶ナ ノ共振器の走査型電子線顕微鏡 (Scanning electron microscope: SEM) 像である。周期的な空孔が導波路上 に並んでおり、導波路の中心に共振器が作製されている。作製した共振器の光学特性を評価するために micro-photoluminescence(μPL)による光学実験を行った。図3(b)は室温にて得られたPLスペクトルを示し ている。700nm~780nm にかけて鋭いピークが観測された。一番短波側に見られるのが基底モードであり、長 波側に見えるピークは光共振器のもつ高次の共振器モードである。さらに、異なる格子定数 A(空孔の間隔) 依存性を調べた結果、格子定数が大きくなるにつれて、共振器波長が長波化し、ピークの間隔は計算による 値と近いものであった。このことから、観測されたピークは共振器モード起因したものであると考えられる。 基底モードのスペクトルの線幅から推定された共振器 Q値は~13000 であり、これはこれまでに報告されて いる同じ波長帯の1次元フォトニック結晶共振器の値と同程度[21]であり、今回開発した準等方性エッチン グを用いることで、エアブリッジ構造を持つナノデバイスを高い品質で作製できることが分かった。これま で報告されているダイヤモンドのオプトメカニカル結晶共振器はアングルエッチングで作製する都合上、導 波路の断面が三角形であったが、導波路断面が長方形の場合においても共振器設計が可能であり[22]、本作 製手法を用いてもオプトメカニカル共振器が実現できると期待している。



図2 デバイス作製の流れ



図3(a)1次元フォトニック結晶ナノ共振器のSEM像、(b)作製したデバイスのPLスペクトル

2-2 オプトメカニカル結晶の作製

次に、本研究の目的であるダイヤモンド基板上へのオプトメカニカル結晶の作製を行った。図4(a)に本研 究で使用した2次元オプトメカニカル結晶のイメージ図を示す。ひし形構造と四つの結合部分からなる単一 セルが周期的にならんだ構造となっている。ひし形の大きさ、結合部分の幅はそれぞれ約100nm、20nm であ る。ダイヤモンド以外の部分はすべて空気であり、全体が宙に浮いたエアブリッジ構造となっている。また 本構造は、電子スピンの緩和を引き起こすフォノンの周波数~50 GHz 付近に大きなバンドギャップ(~25GHz) を持っていることが数値計算から分かっている。設計上、1次元のオプトメカニカル結晶を用いても同様な 広いバンドギャップを持つことが分かっているが、今回の構造は全体的に非常に小さいことから、実際に作 製できるかどうかの観点から2次元構造を選択した。図4(b)は、準等方性エッチングにより作製した2次元 のオプトメカニカル結晶のSEM 像である。構造が数10nmと非常に小さいながらも、おおむね所望の構造が単 結晶ダイヤモンド上に作製できていることが分かる。この結果から本研究では、これまでに報告のない高い 周波数帯(~50GHz)の2次元オプトメカニカル結晶を単結晶ダイヤモンド基板上に作製できた。一方で、作製 プロセスの不完全性や構造にひずみがかかることでひし形構造のゆがみなどが生じていることがわかった。 今後さらなる作製プロセスの最適化と構造のゆがみがバンドギャップに与える影響を数値計算で推定する必 要があると考えている。



図4(a)2次元オプトメカニカル結晶のイメージ図、(b)作製したオプトメカニカル結晶の SEM 像

3 まとめと今後の展望

本研究では、ダイヤモンド中の不純物空孔中心における電子スピンとその発光を制御する技術として、人 工結晶であるオプトメカニカル結晶やフォトニック結晶を用いたダイヤモンドナノデバイスを開発し、将来 の量子情報処理技術のプラットフォームを開拓することを目指した。特に、高品質な単結晶ダイヤモンド基 板上にナノスケールのスラブ構造を作製する技術として準等方性エッチング技術を開発し、SiV 中心の発光 波長付近で動作する1次元のフォトニック結晶ナノ共振器を作製した。PL 測定にて高い共振器Q値得られた ことから、開発した手法においても単結晶ダイヤモンド基板上にスラブ構造が作製可能であることが分かっ た。さらに、SiV 中心における電子スピンの長いコヒーレンス時間を実現するために必要な2次元オプトメ カニカル結晶を検討し、開発した手法を用いてその作製にも成功した。今後は、SiV 中心が含まれている基 板上でオプトメカニカル結晶を作製することで、ダイヤモンド中のSiV 中心における電子スピンのコヒーレ ンス時間増大の実証などの電子スピン制御に関する実験が可能になると期待される。

また、作製したオプトメカニカル結晶に欠陥を導入することで、オプトメカニカルナノ共振器への応用も 可能である。すでにアングルエッチングによる手法により高い品質の光共振器とオプトメカニカルモードを 持つ1次元ダイヤモンドナノ共振器が実現されているが、従来の手法では原理的に2次元構造の作製が困難 である。そのため、将来カラーセンターを含むダイヤモンドナノ共振器を用いた大規模な量子回路[23]の実 現するためには、今回用いた準等方性エッチングや大面積で均一な厚さのダイヤモンド基板上でナノスケー ルデバイスを作製する手法[24]の開発が重要になってくると考えられる。本研究で得られえた成果は、今後の単結晶ダイヤモンド上での不純物空孔中心を含む、様々なダイヤモンドナノデバイスの開発に役立つものだと期待される。

【参考文献】

[1] G. Balasubramanian, P. Neumann, D. Twitchen, M. Markham, R. Kolesov, N. Mizuochi, J. Isoya, J. Achard, J. Beck, J. Tissler, V. Jacques, P.R. Hemmer, F. Jelezko, and J. Wrachtrup, Nat. Mater. 8, 383 (2009).

[2] N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and S. Yamasaki, Nat. Photonics **6**, 299 (2012).

[3] J.M. Taylor, P. Cappellaro, L. Childress, L. Jiang, D. Budker, P.R. Hemmer, A. Yacoby, R. Walsworth, and M.D. Lukin, Nat. Phys. 4, 810 (2008).

[4] E.D. Herbschleb, H. Kato, Y. Maruyama, T. Danjo, T. Makino, S. Yamasaki, I. Ohki, K. Hayashi, H. Morishita, M. Fujiwara, and N. Mizuochi, Nat. Commun. **10**, 3766 (2019).

[5] T. Gaebel, M. Domhan, I. Popa, C. Wittmann, P. Neumann, F. Jelezko, J.R. Rabeau, N. Stavrias, A.D. Greentree, S. Prawer, J. Meijer, J. Twamley, P.R. Hemmer, and J. Wrachtrup, Nat. Phys. **2**, 408 (2006).

[6] A. Faraon, C. Santori, Z. Huang, V.M. Acosta, and R.G. Beausoleil, Phys. Rev. Lett. 109, 2 (2012).
[7] R.E. Evans, A. Sipahigil, D.D. Sukachev, A.S. Zibrov, and M.D. Lukin, Phys. Rev. Appl. 5, 044010 (2016).

[8] L.J. Rogers, K.D. Jahnke, M.H. Metsch, A. Sipahigil, J.M. Binder, T. Teraji, H. Sumiya, J. Isoya, M.D. Lukin, P. Hemmer, and F. Jelezko, Phys. Rev. Lett. **113**, 1 (2014).

[9] B. Pingault, J.N. Becker, C.H.H. Schulte, C. Arend, C. Hepp, T. Godde, A.I. Tartakovskii, M. Markham, C. Becher, and M. Atatüre, Phys. Rev. Lett. **113**, (2014).

[10] D.D. Sukachev, A. Sipahigil, C.T. Nguyen, M.K. Bhaskar, R.E. Evans, F. Jelezko, and M.D. Lukin, Phys. Rev. Lett. **119**, 1 (2017).

[11] Y.-I. Sohn, S. Meesala, B. Pingault, H.A. Atikian, J. Holzgrafe, M. Gündoğan, C. Stavrakas, M.J. Stanley, A. Sipahigil, J. Choi, M. Zhang, J.L. Pacheco, J. Abraham, E. Bielejec, M.D. Lukin, M. Atatüre, and M. Lončar, Nat. Commun. 9, 2012 (2018).

[12] M. Eichenfield, J. Chan, R.M. Camacho, K.J. Vahala, and O. Painter, Nature 462, 78 (2009).

[13] J. Chan, T.P.M. Alegre, A.H. Safavi-Naeini, J.T. Hill, A. Krause, S. Gröblacher, M. Aspelmeyer, and O. Painter, Nature **478**, 89 (2011).

[14] M.J. Burek, N.P. de Leon, B.J. Shields, B.J.M. Hausmann, Y. Chu, Q. Quan, A.S. Zibrov, H. Park, M.D. Lukin, and M. Lončar, Nano Lett. **12**, 6084 (2012).

[15] J.C. Lee, A.P. Magyar, D.O. Bracher, I. Aharonovich, and E.L. Hu, Diam. Relat. Mater. **33**, 45 (2013).

[16] B.J.M. Hausmann, B.J. Shields, Q. Quan, Y. Chu, N.P. de Leon, R. Evans, M.J. Burek, A.S.

Zibrov, M. Markham, D.J. Twitchen, H. Park, M.D. Lukin, and M. Loncăr, Nano Lett. 13, 5791 (2013).

[17] T. Jung, L. Kreiner, C. Pauly, F. Mücklich, A.M. Edmonds, M. Markham, and C. Becher, Phys. Status Solidi **213**, 3254 (2016).

[18] M.J. Burek, J.D. Cohen, S.M. Meenehan, N. El-Sawah, C. Chia, T. Ruelle, S. Meesala, J. Rochman, H.A. Atikian, M. Markham, D.J. Twitchen, M.D. Lukin, O. Painter, and M. Lončar, Optica **3**, 1404 (2016).

[19] B. Khanaliloo, M. Mitchell, A.C. Hryciw, and P.E. Barclay, Nano Lett. 15, 5131 (2015).

[20] N.H. Wan, S. Mouradian, and D. Englund, Appl. Phys. Lett. 112, 141102 (2018).

[21] S. Mouradian, N.H. Wan, T. Schröder, and D. Englund, Appl. Phys. Lett. 111, 021103 (2017).

[22] M. Davanço, S. Ates, Y. Liu, and K. Srinivasan, Appl. Phys. Lett. 104, 041101 (2014).

[23] N.H. Wan, T.-J. Lu, K.C. Chen, M.P. Walsh, M.E. Trusheim, L. De Santis, E.A. Bersin, I.B. Harris, S.L. Mouradian, I.R. Christen, E.S. Bielejec, and D. Englund, Nature **583**, 226 (2020).

[24] A.H. Piracha, K. Ganesan, D.W.M. Lau, A. Stacey, L.P. McGuinness, S. Tomljenovic-Hanic, and S. Prawer, Nanoscale **8**, 6860 (2016).

題名		掲載誌・学会名等		発表年月
Diamond quantum nanophotonics optomechanics	and	Diamond for Applications Par 104, 1st Edition	Quantum t 2, Volume	October 2020

〈発表資料〉