

レーザー照射によるダイヤモンド内部の欠陥構造形成

Defect formation in diamond induced by ultrashort pulse laser

下間 靖彦¹⁾

Yasuhiko SHIMOTSUMA

遠藤 友随²⁾

Tomoyuki ENDO

板倉 隆二²⁾

Ryuji ITAKURA

¹⁾ 京都大学 ²⁾ 量研

(概要)

ダイヤモンド中の窒素と空孔からなる NV 中心は、その室温下における電子スピン状態の安定性から量子センサへの応用が期待されている。C_{3v} 対称性を持つ NV 中心の NV 軸を完全に 1 方向に配向できれば、センサ感度は 4 倍向上する。本研究では、極めて短いパルス幅のレーザーを照射し、ダイヤモンド中での光と電子との相互作用の時間スケールを短かくすることによって、偏光依存性を顕現させ、NV 軸の配向率と偏光状態との関係を明らかにすることを目的とする。

キーワード：ダイヤモンド、NV 中心、配向制御

(1 行あける)

1. 目的

ダイヤモンド中の窒素と空孔からなる NV 中心は、その室温下における電子スピン状態の安定性から量子センサへの応用が期待されている。C_{3v} 対称性を持つ NV 中心の NV 軸には<111>の等価な 4 方向があり、スピン・光学的特性はこの配向性に依存する。フェムト秒レーザー照射による NV 中心形成において、NV 軸配向性に偏光状態が関与するのではないかと仮説に基づき、時間依存密度汎関数理論によるシミュレーションと ODMR 測定および顕微蛍光偏光測定によって、レーザー照射後の NV 軸の配向率を評価したところ、レーザー未照射のランダム配向 (25%) から最大 55% まで [111] 方向への配向率が増加することを確認した。一般に、レーザーによる電子励起後の原子移動における偏光依存性は小さいと想定されるが、極めて短いパルス幅のレーザーを照射し、ダイヤモンド中での光と電子との相互作用の時間スケールを短かくすることができれば、偏光依存性が顕在化する可能性がある。本研究では、パルス幅がサブフェムトレベルのレーザーパルスダイヤモンド内部に集光照射し、NV 軸の配向率と偏光状態との関係を明らかにすることを目的とする。

2. 方法

HPHT 合成 Ib 型ダイヤモンド基板 (N < 200 ppm) を試料として、光量子科学研究所で開発されたパルス幅約 10 fs のレーザー光源から発振したレーザーパルスを反射対物レンズ (Beck optronic solutions 製 5006, NA0.65, 焦点距離 3.5 mm, 瞳径 4.5 mm) を用いて基板内部に集光照射した。照射前後の NV 中心由来の蛍光強度変化は、顕微蛍光顕微鏡により観察した。

3. 結果及び考察

反射対物レンズ後の照射レーザーのパルス幅は、11~14 fs であることを確認した。反射対物レンズ直前のビームスプリッター (ThorLabs, BSS11R) の反射率を考慮して求めたパルスエネルギー 0.7 μJ~12.5 μJ, 照射パルス数 1×10⁵~3×10⁵ pulse, 表面からの集光深さ 50~100 μm とし、種々のレーザー照射条件で実験した。レーザー照射前後のダイヤモンド試料の光学顕微鏡像を Fig. 1 に示す。照射条件によって、表面アブレーションが起きるものの、今回の条件では、内部のみを黒鉛化することはできなかった。NV 中心形成が示唆される黒鉛化していないレーザー照射部前後の蛍光スペクトルを Fig. 2 に示す。今回の実験では、レーザー照射後に明確な NV 中心の増加は観察されなかった。これまでのパルス幅 40 fs までの実験では、パルス幅が短くなるにしたがって、NV 中心形成効率が増加、黒鉛化率が減少する傾向が観察されていることから、パルス幅 40 fs 以下になると、格子温度が十分に上がらず、NV 中心形成が抑制されたと考えられるが、①パルス幅を 40 fs から 10 fs まで段階的に調節した超短パルスレーザー照射実験、②パルス幅 10 fs のダブルパルス列の光学遅延時間を変えた照射実験等により、詳細を今後明らかにしたい。

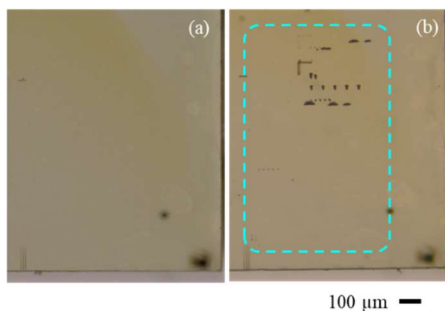


Fig. 1 (111)1b型ダイヤモンド基板の光学顕微鏡写真
(a) レーザー照射前、(b) レーザー照射後（水色点線で示した領域内に様々な条件でレーザー照射した）

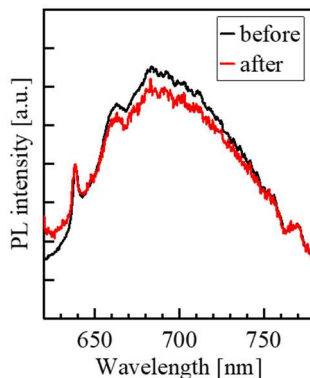


Fig. 2 レーザー照射前後のNV中心
由来の発光スペクトル変化

4. 引用(参照)文献等

- [1] K. Kinouchi, Y. Shimotsuma, M. Uemoto, M. Fujiwara, N. Mizuochi, M. Shimizu, K. Miura, “Laser writing of preferentially orientated nitrogen-vacancy centers in diamond,” *Carbon Trends*, 13, 100318 (2023).
- [2] Y. Shimotsuma, K. Kinouchi, R. Yanoshita, M. Fujiwara, N. Mizuochi, M. Uemoto, M. Shimizu, K. Miura, “Formation of NV centers in diamond by a femtosecond laser single pulse,” *Opt. Express*, 31, 1594 (2023).
- [3] T. Kurita, Y. Shimotsuma, M. Fujiwara, M. Fujie, N. Mizuochi, M. Shimizu, K. Miura, “Direct writing of high-density nitrogen-vacancy centers inside diamond by femtosecond laser irradiation,” *Appl. Phys. Lett.*, 118, 214001 (2021).
- [4] T. Kurita, N. Mineyuki, Y. Shimotsuma, M. Fujiwara, N. Mizuochi, M. Shimizu, K. Miura, “Efficient generation of nitrogen-vacancy center inside diamond with shortening of laser pulse duration,” *Appl. Phys. Lett.*, 113, 211102 (2018).