

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月14日現在

機関番号：82401

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2017～2018

課題番号：17H07359

研究課題名(和文)カーボンナノチューブ電荷汲み上げ発光素子による単一光子発生

研究課題名(英文)Single photon generation using carbon nanotube charge-pumping devices

研究代表者

石井 晃博(Ishii, Akihiro)

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・特別研究員

研究者番号：90802687

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、将来の量子情報通信技術の実用化へ向けて求められている量子光源の実現へ向け、カーボンナノチューブの持つ励起子物性を利用した単一光子生成デバイスを目指した研究を実施した。時間分解光学測定によって架橋カーボンナノチューブにおける励起子の発光寿命および拡散特性に関する詳細な知見を得ることにより、理想的な発光特性を実現させるためのデバイス設計の指針を得ることができた。また、局所的な欠陥準位に閉じ込められた励起子からの発光をシリコン微小共振器と結合させる手法を試み、室温中で高輝度かつ狭線幅で純度の高い単一光子生成が可能であることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実用的な量子情報通信技術の普及へ向け、室温中で動作可能であり、かつ通信波長帯の発光波長を持つ単一光子発生源の開発が求められている。本研究で得られたカーボンナノチューブ中の励起子物性に関する知見は、室温中での励起子拡散を利用した単一光子生成メカニズムの本質的な理解につながり、それによって単一光子発生デバイスの開発に適したナノチューブの種類や架橋長さなどといった情報を得ることが可能となった。また、シリコン微小共振器と結合させることによって得られた高輝度かつ高純度な単一光子生成は、既存のシリコンフォトニクス技術とのさらなる融合により集積化・高機能化させた量子光源の実現につながることを期待される。

研究成果の概要(英文)：Toward future quantum information and communication technologies, practical single photon emitters with room-temperature operation and telecommunication emission wavelength are strongly desired. In this work, we have utilized unique properties of excitons in carbon nanotubes for developing such ideal quantum light sources. We have performed time-resolved optical measurements on air-suspended carbon nanotubes and obtained emission lifetimes and diffusion properties of excitons in detail, which lead to optimized device design for ideal single photon emitters. In addition, we have demonstrated integration of dopant state emitters in carbon nanotubes and silicon photonics. Emission from excitons localized at defects are coupled to photonic crystal microcavities, which results in bright and narrow linewidth single photon emission at room temperature.

研究分野：ナノ物理

キーワード：ナノチューブ・フラーレン 量子エレクトロニクス 光物性 励起子物理

## 1. 研究開始当初の背景

量子コンピューティングや量子暗号通信といった将来の量子情報技術の実用化へ向け、量子ビットを担う単一光子発生源の確立が必要不可欠であるが、これまで主に研究されてきた半導体量子ドットやダイヤモンド窒素-空孔中心(NV センター)といった材料では、室温動作と通信波長帯での発光という2つの条件を両立することができない。そこで、カーボンナノチューブの持つ特徴的な性質を利用した単一光子源の開発が注目を集めている。カーボンナノチューブは直径が約1 nmしかない一次元材料であり、その構造に由来して励起子準位が非常に大きな束縛エネルギーを持つことが知られている。近年、そのような安定した励起子準位を利用した単一光子発生が報告されており、室温動作かつ通信波長帯での発光という優れた特性が実現できることが示されている。

カーボンナノチューブを用いた単一光子源の開発は、量子通信機器の小型化・低価格化を可能とし、実用的なデバイス開発へ向けてのブレイクスルーとなる可能性を秘めている。また、カーボンナノチューブはシリコン基板上で直接合成することが可能であるため既存の集積回路技術やシリコンフォトリソ技術と非常に相性が良く、将来的にはカーボンナノチューブを用いたオンチップ量子計算デバイスの実現などが期待される。

## 2. 研究の目的

カーボンナノチューブ(図1)は、長さ方向には数 $\mu\text{m}$ ~数十 $\mu\text{m}$ という長さを持つが直径はおよそ1 nmほどしかない一次元材料であるため、二つの励起子が衝突して片方が消滅する励起子-励起子消滅が他の材料と比べて圧倒的に高効率に起こることが知られており、この性質を利用することで室温中での単一光子生成が可能となる(図2)。このような単一光子生成メカニズムは架橋カーボンナノチューブを用いた通常のデバイス構造にそのまま適用することが可能であり、ゲート電圧の印加による発光タイミングの制御や、PN接合を形成することによる電気駆動の単一光子発生につながることを期待される。

本研究では、カーボンナノチューブにおける励起子拡散を利用した単一光子生成メカニズムの理解とそれを利用したデバイス設計の指針を得ることを目的に、励起子ダイナミクスの調査を行う。様々な種類のナノチューブについて、発光寿命の架橋長さ依存性を調べることで、励起子の真の寿命および拡散係数を求めることで、これによって励起子-励起子消滅による単一光子生成の効率を高めつつ電気制御のためのデバイス構造を取り入れるための条件を導くことが可能となる。

同時に、カーボンナノチューブ単一光子源とシリコンフォトリソとの融合の試みとして、欠陥準位に局在化した励起子からの発光と、シリコン基板上に作製したフォトリソ結晶微小共振器との光結合を行い、単一光子発生レートの増強を実証する。

## 3. 研究の方法

本研究では、カーボンナノチューブ中の励起子を用いた室温単一光子発生を実現させる手法として、二つのアプローチから研究を実施した。

### (1) 架橋カーボンナノチューブにおける励起子物性の解明

近赤外領域において高い検出感度・時間分解能を持つ超電導ナノワイヤ単一光子検出器を用いて、架橋カーボンナノチューブからの発光に対して共焦点顕微分光測定および時間分解光学測定を可能とする測定システムを構築する。測定サンプルとしては、シリコン基板上に作製した様々な幅を持つ溝(トレンチ)の上に橋渡しするように合成されたカーボンナノチューブを用いる。一本一本のナノチューブに対して顕微分光測定によりナノチューブの構造(カイラリティ)や架橋長さを決定したうえで、時間分解測定を行い発光の減衰曲線を得る。発光寿命の架橋長さ依存性を解析することにより、カイラリティごとに励起子の真の寿命と拡散係数を求める。また、サンプルをアルゴン雰囲気下で加熱することによってナノチューブの表面に吸着していた空気分子を脱離させ、その状態での励起子ダイナミクスを測定することにより、表面状態が励起子の拡散に及ぼす影響を調べる。

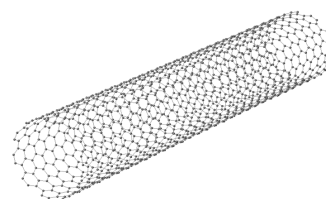


図1. 単層カーボンナノチューブの模式図。

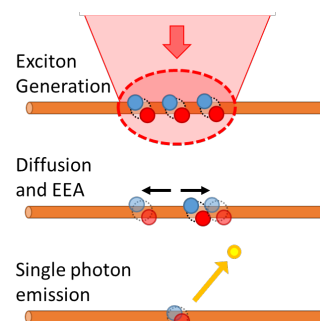


図2. 高効率な励起子-励起子消滅(EEA)を利用した室温中での単一光子生成。

## (2) 欠陥準位に局在化した励起子とシリコン微小共振器との結合

SOI (silicon on insulator) 基板上に二次元フォトニック結晶微小共振器を作製し、その上にジアゾニウム塩によって欠陥準位を導入したカーボンナノチューブを分散させた溶液を塗布する(図 3)。共振器の中心からの発光を共焦点顕微分光測定によって評価することにより、共振器モードとの結合による発光増強の効果を確認する。その後、時間分解測定によって発光寿命測定と自己相関関数の評価を行い、単一光子源としての性能の向上を確かめる。

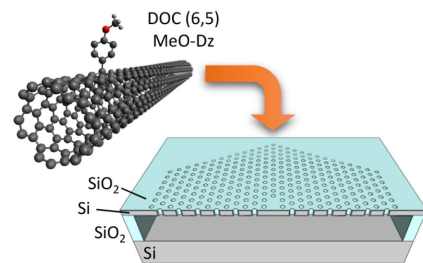


図 3. ドープされたカーボンナノチューブとシリコン微小共振器の模式図(発表論文リスト)。

## 4. 研究成果

### (1) 架橋カーボンナノチューブにおける励起子物性の解明

カイラリティと架橋長さを決定したカーボンナノチューブに対して時間分解光学測定によって発光減衰曲線を測定することにより、減衰に二つの成分があること、およびそれぞれの成分の寿命は架橋長さが長くなるにつれて長くなっていくことが確認された(図 4)。このような特性は、パリティの偶奇によって生じる励起子状態の違い(光学遷移が可能な明るい励起子と、光学禁制な暗い励起子)に基づく三準位モデルによって解析することができ、その結果、明るい励起子の真の寿命はおよそ 80 ps であるのに対し、暗い励起子はこの実験では決定できないほど長い真の寿命を持つことが明らかとなった。また、この解析から暗い励起子から明るい励起子への状態遷移のレートについても求めることができ、その値について大きなカイラリティ依存性があること、および架橋長さの長いナノチューブにおいて暗い励起子から明るい励起子への変換効率が最大で 50%を超える値を持つことが分かった。さらに、表面分子の脱離によって励起子状態の遷移レートが大幅に低下することが確認され、表面吸着分子に由来する散乱プロセスが励起子状態の遷移に大きな影響を与えることが明らかとなった。

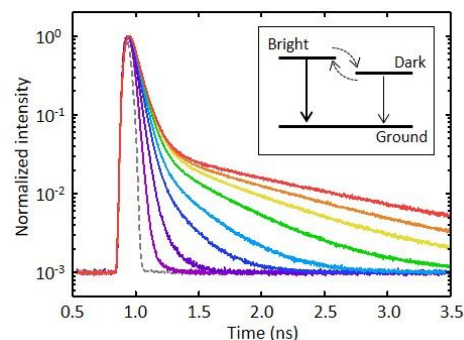


図 4. 発光減衰曲線の架橋長さ依存性、および励起子状態の遷移を表す三準位モデル。

この研究で明らかとなった励起子の拡散特性のカイラリティ依存性および励起子状態の違いによる影響は、励起子-励起子消滅を利用した単一光子生成をより効率化させるために大きな意義を持つ。特に、暗い励起子が非常に長い寿命を持つことから、それを利用した非常に高品質な単一光子生成が実現できる可能性が示唆された。また、光子放出の電気的な制御を実現するためにデバイス構造を取り入れる場合においても、励起子-励起子消滅の効率を高めるためにナノチューブの架橋長さは 3  $\mu\text{m}$  以上とすることが望ましいことがわかった。

### (2) 欠陥準位に局在化した励起子とシリコン微小共振器との結合

シリコン微小共振器との結合により、ナノチューブの欠陥準位からの発光がおよそ 50 倍も強くなることが確認された。このような大きな発光増強は、パーセル効果による発光レートの増強と同時に、励起レーザーの波長に対する共振器の共鳴による吸収効率の向上、および共振器の存在によって光放出パターンが変化することによる検出効率の向上などの結果であると考えられる。時間分解測定による発光レートの直接測定では、共振器外に置かれた状態と比べて共振器と結合した時の発光寿命は 30%ほど速くなり、これはパーセルファクター 18、および共振器とのカップリングファクター 0.95 に相当する。このように共振器との結合によって増強された欠陥準位からの発光に対して、HBT (Hanbury Brown Twiss) セットアップを用いた自己相関関数の測定を行い、単一光子としての特性を評価した。その結果、共振器によって発光が増強された状態においても、純度の高い( $g^{(2)}(0)=0.1$ )単一光子生成が維持されていることが確認された。また、励起レーザーの強度を上げても単一光子生成の品質が大きく低下しないことが分かり、最大で 17 MHz という高繰り返し頻度での単一光子生成を観測することができた。

本研究ではシリコンプラットフォーム上に集積可能な形で室温中での高輝度な単一光子源が達成された。この手法は、使用するナノチューブの種類と共振器の設計を変更することで発光波長を光子の長距離伝送に最適な 1550 nm にすることが可能であり、また、同じシリコン基板上に導波路を形成して光子の伝搬も制御することにより、チップ上に集積化した量子情報デバイスの実現につながることを期待される。

## 5 . 主な発表論文等

### [雑誌論文](計 5 件)

S. Tanaka, K. Otsuka, K. Kimura, A. Ishii, H. Imada, Y. Kim, Y. K. Kato, “Organic molecular tuning of many-body interaction energies in air-suspended carbon nanotubes”, *J. Phys. Chem. C* 123, 5776 (2019), reviewed.

DOI: 10.1021/acs.jpcc.8b12496

A. Ishii, X. He, N. F. Hartmann, H. Machiya, H. Htoon, S. K. Doorn, and Y. K. Kato, “Enhanced single photon emission from carbon nanotube dopant states coupled to silicon microcavities”, *Nano Lett.* 18, 3873 (2018), reviewed.

DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b01170

T. Uda, A. Ishii, Y. K. Kato, “Single carbon nanotubes as ultrasmall all-optical memories”, *ACS Photonics* 5, 559 (2018), reviewed.

DOI: 10.1021/acsphotonics.7b01104

H. Machiya, T. Uda, A. Ishii, Y. K. Kato, “Spectral tuning of optical coupling between air-mode nanobeam cavities and individual carbon nanotubes”, *Appl. Phys. Lett.* 112, 021101 (2018), reviewed.

DOI: 10.1063/1.5008299

A. Ishii, T. Uda, and Y. K. Kato, “Room-Temperature Single-Photon Emission from Micrometer-Long Air-Suspended Carbon Nanotubes”, *Phys. Rev. Applied* 8, 054039 (2017), reviewed.

DOI: 10.1103/PhysRevApplied.8.054039

### [学会発表](計 7 件)

A. Ishii, H. Machiya, Y. K. Kato, “Decay dynamics and diffusion properties of bright and dark excitons in air-suspended carbon nanotubes”, International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT19), Wuerzburg, Germany (July 21-26, 2019, to be presented).

A. Ishii, H. Machiya, Y. K. Kato, “Decay Dynamics and Diffusion Lengths of Bright and Dark Excitons in Air-Suspended Carbon Nanotubes”, 235th Electrochemical Society Meeting, Dallas, Texas, USA (May 29, 2019).

A. Ishii, H. Machiya, Y. K. Kato, “Decay dynamics and diffusion lengths of bright and dark excitons in air-suspended carbon nanotubes”, The 56th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium, Tokyo, Japan (March 3, 2019).

A. Ishii, X. He, N. F. Hartmann, H. Machiya, H. Htoon, S. K. Doorn, Y. K. Kato, “Enhanced single photon emission from carbon nanotube dopant states coupled to silicon microcavities”, JSAP-OSA Joint Symposia, the 79th JSAP Autumn Meeting 2018, Nagoya, Japan (September 20, 2018).

A. Ishii, T. Uda, X. He, N. F. Hartmann, H. Machiya, H. Htoon, S. K. Doorn, Y. K. Kato, “Room-temperature single photon emission from carbon nanotubes”, 7th Workshop on Nanotube Optics and Nanospectroscopy (WONTON2018), Hakone, Japan (July 9, 2018).

A. Ishii, T. Uda, Y. K. Kato, “Room-temperature single photon emission from micron-long air-suspended carbon nanotubes”, JSAP-OSA Joint Symposia, the 78th JSAP Autumn Meeting 2017, Fukuoka, Japan (September 7, 2017).

A. Ishii, T. Uda, Y. K. Kato, “Room-temperature single photon emission from micron-long air-suspended carbon nanotubes”, Fundamental Optical Processes in Semiconductors (FOPS) 2017, Skamania Lodge, Washington, USA (August 31, 2017).

### [その他]

理化学研究所 加藤ナノ量子フォトニクス研究室

<http://katogroup.riken.jp/ja/>

RIKEN Research Highlights

[http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20180727\\_FY20180020/](http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/20180727_FY20180020/)

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。