

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15199

研究課題名(和文)カーボンナノチューブ単一光子源の高効率光取り出し

研究課題名(英文)High extraction efficiency of single photon emission from individual carbon nanotubes

研究代表者

山下 大喜(Yamashita, Daiki)

国立研究開発法人理化学研究所・光量子工学研究センター・訪問研究員

研究者番号：40858099

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、カーボンナノチューブとシリコンフォトリクスを融合させたデバイスの最適化に取り組んだ。フォトリック結晶共振器の設計やQ値、共振器へのナノチューブの結合手法の影響を検討し、共振器と結合したナノチューブからの発光のみを導波路へ誘導して検出することに成功した。また、基板接触による非輻射再結合の低減を試みる手法を検討した。ナノチューブを高台に配置することで発光強度を維持し、共振器に結合したナノチューブからの単一光子生成を実証した。さらに、二次元材料をスペーサーとしてナノチューブと共振器の基板に挟むことで、ほとんど非輻射再結合の増加のないデバイス作製手法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カーボンナノチューブとシリコンフォトリクスを融合させたデバイスの作製に取り組み、共振器と結合して増強されたナノチューブからの発光を導波路に取り込むことに成功し、高効率光取り出しが可能なデバイスを実証できた。このような導波路結合光は、シリコン基板上に集積された様々な光部品や、光ファイバに容易に接続することができ、単一カーボンナノチューブ光デバイスの応用性を広げることができる。また、ナノチューブの基板集積時に問題になる基板接触による発光減少を回避する方法を提案し、ナノチューブ-シリコンフォトリクス集積デバイスにおける有用性を実証できた。

研究成果の概要(英文)：Hybrid devices between carbon nanotubes and silicon photonics were characterized. We investigated the effects of photonic crystal cavity design, Q-value, and nanotube coupling method to the cavity. The emission from the nanotubes enhanced by the cavity was successfully guided into the waveguide and detected. In addition, a method to reduce non-radiative recombination due to substrate contact was investigated. By placing the nanotubes on a high plateau, the photoluminescence intensity was maintained, and single-photon generation from the nanotubes coupled to the cavity was demonstrated. Furthermore, by sandwiching a two-dimensional material between the nanotubes and the cavity substrate as a spacer, a device with virtually no increase in non-radiative recombination was realized.

研究分野：シリコンフォトリクス

キーワード：カーボンナノチューブ フォトリック結晶 シリコンフォトリクス 微小共振器 単一光子源 光物性

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

半導体単層カーボンナノチューブ(CNT)は、量子情報通信、計測、計算といったさまざまな技術領域にとって重要な構成要素である単一光子源の候補として期待されている。このCNT単一光子源の応用性を高めるために、CNTから発生した単一光子を高効率に光集積回路へ取り込むことは重要である。

### 2. 研究の目的

本研究では、そのようなCNT単一光子源の高効率光取り出しが可能なデバイスの作製とその評価を行う。CNTが持つ、清純なCNTであれば全て単一光子源として利用できる点、シリコン基板上に成長可能で、シリコンフォトニクスとの親和性が高い点、これら2つの特徴を活かすことで、シリコンチップ上に集積された、室温で動作する通信波長帯の単一光子源の実現を目指す。

### 3. 研究の方法

(1) CNTから放出された光をPhC共振器に結合・増強し、単一光子を高効率に共振器内に取り込む手法を開発する。ここで、CNTは基板と接触すると非輻射緩和が大幅に増加することが分かっているため、それを避けるデバイスデザインが必要となる。本研究では、基板の上に設置した高台の上にCNTを合成する触媒を配置することで、CNTを基板に触れないように架橋させる手法と二次元材料を基板とCNTの間に挟む手法を検討する。

(2) 共振器から導波路へ的高効率結合するデバイスデザインとその作製を行う。有限差分時間領域シミュレーションを用いて共振器と導波路の設計を行い、空気モードフォトニック結晶ナノビーム共振器の片側の穴の数を減らして光閉じ込めを弱めることで、光が一方向に導波するようにする。

### 4. 研究成果

(1) CNT発光の高効率光取り出しが可能なデバイスの作製とその評価を行った。基板の上に設置した高台の上にCNTを合成する触媒を配置し、化学気相成長法を用いて基板に触れないように架橋したCNTを合成した。この構造で、共振器に結合したCNTからの単一光子放出を実証した。この手法は、直接接触を避けることでCNTの発光強度を維持しているが、高台によって共振器とCNTの距離が200 nm程度空いていることによって、CNTからの発光と共振器との結合が直接集積した場合に比べて弱くなるというデメリットもある。これを解決するためにCNTの光物性への影響が少ない六方晶窒化ホウ素という二次元絶縁体をCNTと共振器の間に挿入することを試みた。本手法は研究の計画段階では計画していなかったが、2020年に本研究室でCNTの光物性への影響が少ない二次元材料であるということがわかったため使用を試みた。これによって発光強度を損なうことなく、共振器との光結合を高めることが可能である。また、この二次元物質の厚さは20 nm程度しかないため、CNT発光の共振器へ的高効率な結合が期待できる。実際そのようなデバイスを作製し、共振器に強く結合したCNT発光スペクトルの観測に成功した。

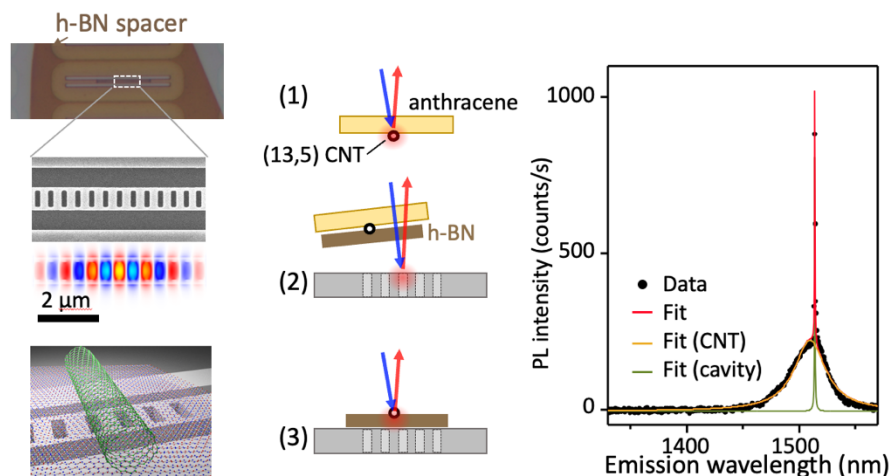


図1. ナノビーム共振器に結合した1本のカーボンナノチューブからの発光スペクトルとそのデバイス構造と転写手法の模式図。

(2) 導波路に結合した空気モードフォトニック結晶ナノビーム共振器を用いて光子の高効率取り出しを実現するために、片側の空気孔の数を減らすことで導波路方向への意図的な光の漏れを導入し、導波路端から共振器に結合した光子を高効率に取り出すことを目指した。有限差分時間領域シミュレーションによる電磁界分布解析を行い、右側の空気孔の数を減らすことで Q 値を維持しつつ、導波路に光を取り出せるデザインを用いた。このようなデバイスを作製し、単一の CNT を導波路に結合したシリコン微小共振器に集積することに成功した。カーボンナノチューブの広いスペクトルは抑制され、共振器によって増強された鋭いピークを持つ成分のみが導波路を通して放出されている。

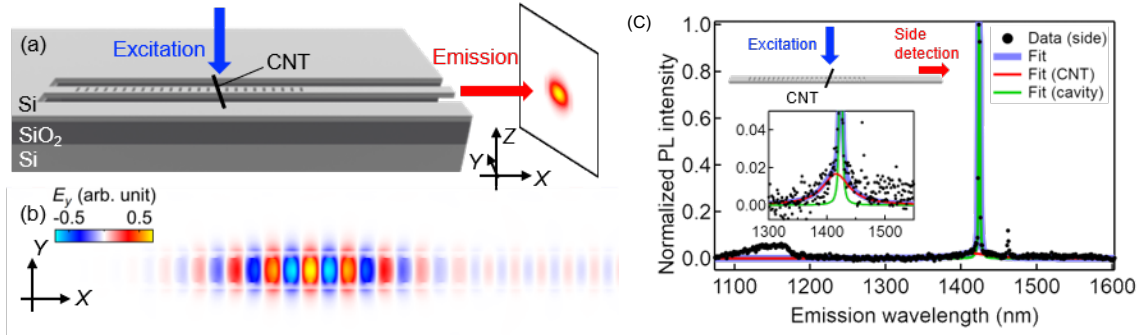


図 2. (a) 導波路-共振器結合単一カーボンナノチューブ発光デバイスデバイスの概略図. (b) フォトニック結晶ナノビーム共振器・導波路の電磁界分布. (c) 導波路端から検出した発光スペクトル.

(3) 上述の研究から、二次元材料と共振器の親和性の高さに注目し、そのハイブリッドデバイスの研究も進めた。様々な二次元材料をナノビーム共振器に積載したデバイスを作製し、二次元材料の誘電率と厚さによって共振波長が精密にコントロールできることを実験と数値計算から実証した。特に、二次元材料として WSe<sub>2</sub> を用いたデバイスでは、挿入損失をほとんど生じさせず 200 nm という大きな波長シフトを達成するとともに、原子一層レベルで共振波長を再現性よくコントロールすることにも成功した。

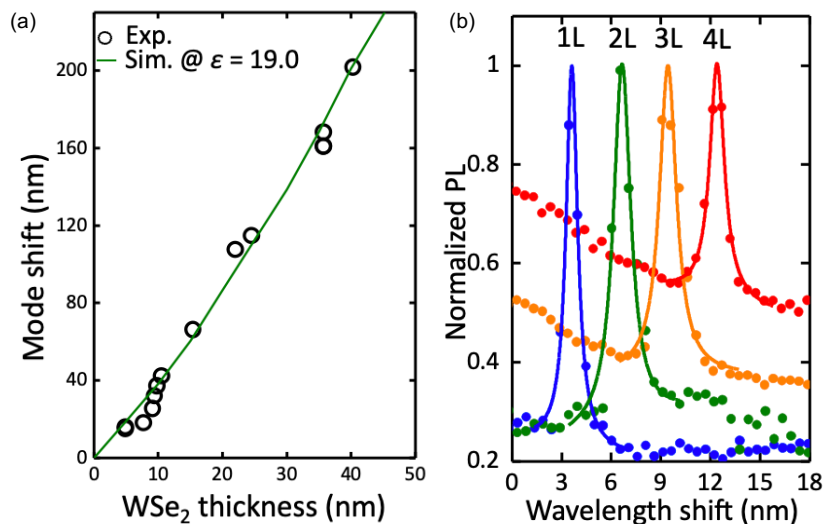


図 3. (a) 共振モードシフトの WSe<sub>2</sub> 厚さ依存性. (b) 共振モードシフトの原子層厚さによる制御.

本研究で示した、フォトニック結晶ナノビーム共振器・導波路に結合した単一カーボンナノチューブ発光デバイスは、シリコン基板上に集積された様々な光部品や、光ファイバに容易に接続することができ、単一カーボンナノチューブ光デバイスの応用性を広げることができる。また、ナノチューブの基板集積時に問題になる基板接触による発光減少を回避する方法を提案し、ナノチューブ-シリコンフォトニクス集積デバイスにおける有用性を実証できた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 H. Machiya, D. Yamashita, A. Ishii, and Y. K. Kato	4. 巻 4
2. 論文標題 Evidence for near-unity radiative quantum efficiency of bright excitons in carbon nanotubes from the Purcell effect	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L022011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevresearch.4.l022011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 K. Otsuka, N. Fang, D. Yamashita, T. Taniguchi, K. Watanabe, and Y. K. Kato	4. 巻 12
2. 論文標題 Deterministic transfer of optical-quality carbon nanotubes for atomically defined technology	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-23413-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Z. Li, K. Otsuka, D. Yamashita, D. Kozawa, and Y. K. Kato	4. 巻 8
2. 論文標題 Quantum Emission Assisted by Energy Landscape Modification in Pentacene-Decorated Carbon Nanotubes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Photonics	6. 最初と最後の頁 2367 ~ 2374
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp Photonics.1c00539	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yamashita D., Machiya H., Otsuka K., Ishii A., Kato Y. K.	4. 巻 6
2. 論文標題 Waveguide coupled cavity-enhanced light emission from individual carbon nanotubes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 APL Photonics	6. 最初と最後の頁 031302 ~ 031302
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0042635	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 N. Fang, D. Yamashita, S. Fujii, K. Otsuka, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. Nagashio, Y. K. Kato	4. 巻 -
2. 論文標題 Quantization of mode shifts in nanocavities integrated with atomically thin sheets	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Optical Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 D. Yamashita, H. Machiya, K. Otsuka, A. Ishii, Y. K. Kato
2. 発表標題 Waveguide coupled cavity-enhanced light emission from individual carbon nanotubes
3. 学会等名 8th Workshop on Nanotube Optics and Nanospectroscopy (WONTON 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 D. Yamashita, H. Machiya, K. Otsuka, A. Ishii, Y. K. Kato
2. 発表標題 Waveguide-coupled narrow-linewidth photoluminescence from a single carbon nanotube
3. 学会等名 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Otsuka, N. Fang, D. Yamashita, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. K. Kato
2. 発表標題 Deterministic dry transfer of carbon nanotubes into photonic devices using single-crystalline anthracene
3. 学会等名 International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1 . 発表者名 H. Machiya, D. Yamashita, A. Ishii, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Near-Unity Radiative Quantum Efficiency of Excitons in Carbon Nanotubes
3 . 学会等名 239th Electrochemical Society Meeting (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 H. Machiya, D. Yamashita, A. Ishii, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Near-unity radiative quantum efficiency of excitons in carbon nanotubes
3 . 学会等名 International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT21) (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 K. Otsuka, N. Fang, D. Yamashita, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. K. Kato
2 . 発表標題 eterministic transfer of optical-quality carbon nanotubes for atomically defined technology
3 . 学会等名 JSAP-OSA Joint Symposia, the 82nd JSAP Autumn Meeting 2021 (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 K. Otsuka, N. Fang, D. Yamashita, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Deterministic transfer of optical-quality carbon nanotubes for atomically defined technology
3 . 学会等名 The 61st Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 Z. Li, K. Otsuka, D. Yamashita, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Directional exciton diffusion in pentacene-decorated carbon nanotubes
3 . 学会等名 JSAP-OSA Joint Symposia ( 国際学会 )
4 . 発表年 2020年

1 . 発表者名 D. Yamashita, H. Machiya, K. Otsuka, A. Ishii, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Waveguide coupled cavity-enhanced light emission from individual carbon nanotubes
3 . 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 D.Yamashita, H. Machiya, K. Otsuka, A. Ishii, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Waveguide coupled cavity-enhanced light emission from individual carbon nanotubes
3 . 学会等名 The 60th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 Z. Li, K. Otsuka, D. Yamashita, Y. K. Kato
2 . 発表標題 Directional exciton diffusion in pentacene-decorated carbon nanotubes
3 . 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4 . 発表年 2020年

1. 発表者名 Z. Li, K. Otsuka, D. Yamashita, Y. K. Kato
2. 発表標題 Directional exciton diffusion in pentacene-decorated carbon nanotubes
3. 学会等名 The 59th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>フォトニック結晶ナノビーム共振器・導波路に結合した単一カーボンナノチューブ発光  <a href="http://katogroup.riken.jp/ja/waveguidecoupling.html">http://katogroup.riken.jp/ja/waveguidecoupling.html</a></p>
---

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

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