

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21684016

研究課題名（和文） カーボンナノチューブにおける電子スピンドイナミクスの光検出

研究課題名（英文） Towards optical detection of electron spins in carbon nanotubes

研究代表者

加藤 雄一郎 (KATO YUICHIRO)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：60451788

研究成果の概要（和文）：

単層カーボンナノチューブ内のスピンを光検出するために必要となるデバイス構造および測定手法の開発に取り組んだ。スピンの電気注入と光検出を両立させるため、架橋カーボンナノチューブに電極を取り付けた電界効果トランジスタの作製手法を確立した。また、単一ナノチューブの発光を検出可能なレーザー走査型共焦点蛍光顕微分光装置を構築し、さらに、スピン共鳴に必要な低温磁場環境およびマイクロ波の導入を実現した。

研究成果の概要（英文）：

Device structures and measurement systems were developed for optical detection of spins in single-walled carbon nanotubes. To enable electrical spin injection and optical detection on individual nanotubes, field-effect transistors that utilize suspended carbon nanotubes have been fabricated. In addition, we have constructed a laser scanning confocal photoluminescence microscopy system with capabilities for low temperatures measurements in static magnetic fields and microwave fields.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	10,500,000	3,150,000	13,650,000
2010 年度	6,900,000	2,070,000	8,970,000
2011 年度	3,400,000	1,020,000	4,420,000
年度			
年度			
総計	20,800,000	6,240,000	27,040,000

研究分野：量子オプトエレクトロニクス

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：単層カーボンナノチューブ、スピン物性、ナノデバイス、光物性、物性実験

1. 研究開始当初の背景

ナノスケールにおいて局所的に電子スピンの操作・保持・輸送を行なう電子スピン制御デバイスは、スピントロニクスや量子エレクトロニクスをはじめ、さまざまな分野で必要とされている。これは、磁性の根源である電子スピンをナノスケールで自由自在に制

御することができれば、超常磁性限界を超える究極の情報記録密度を持つ磁気記憶素子やスピン演算素子など、革新的な機能を持ったスピントロニクス素子へと展開することが期待できるからである。また、スピンは本質的に量子力学的な性質を持っているため、個々のスピンの状態やスピン間の相互作用、スピンと光子の相互作用などを精度よく制

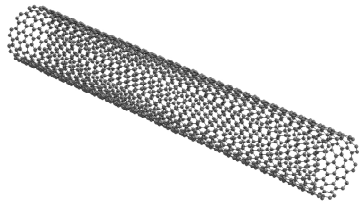


図1：単層カーボンナノチューブ

御することができれば、量子記録、量子計算、量子通信といった量子情報における様々な新概念の実現に繋がる。

2. 研究の目的

このようなナノスケールスピ制御にカーボンナノチューブ（図1）を利用することが注目されている。その理由の一つとして挙げられているのが、スピン軌道相互作用が弱く核スピン濃度が低いカーボンナノチューブにおいては、電子スピンの緩和時間が長いであろうという期待である。しかし、単一のカーボンナノチューブ内でのスピンコヒーレンス長やコヒーレンス時間の測定はされてないうえ、実際にはスピン軌道相互作用がかなり強いとの報告もあり、カーボンナノチューブ内のスピン物性は不明な点が多い。また、これまでのカーボンナノチューブ内のスピン物性に関する測定は、磁性金属電極を用いた磁気抵抗など電気測定によるものが主であり、高感度な光学手法は用いられてこなかった。そこで、本研究では、カーボンナノチューブ内のスピンを光検出することを目的として、単一カーボンナノチューブデバイスの試作と高感度な光学的スピン検出システムの構築に取り組んだ。

3. 研究の方法

単層カーボンナノチューブは、その構成原子がすべて表面に存在するという特異な構造を持つため、基板等に接触している場合は発光しない。フォトルミネッセンスを測定するためには、溝を架橋させて基板に触れない構造を用いる必要がある。また、電流によるスピン注入を行うには電極をカーボンナノチューブに取り付ける必要がある。これを両立させるデバイスの作製手法を確立した。まずはカーボンナノチューブ架橋構造を作製し、これにトランジスター用の電極を加えた構造を用いて架橋型カーボンナノチューブ電界効果トランジスターを作製した。

一方で、単一のカーボンナノチューブの発光を検出するには高感度な分光顕微システムが必要であり、さらにスピン共鳴実験には低温磁場環境とマイクロ波の印加も要する。このような測定を実現するため、レーザー走

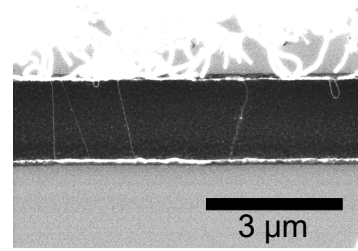


図2：架橋カーボンナノチューブの電子顕微鏡像。

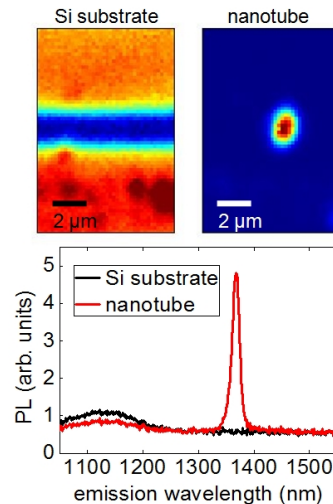


図3：作製したレーザー走査型共焦点分光顕微鏡によるシリコン基板と単一カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス像（上）と発光スペクトル（下）。

査型共焦点蛍光顕微分光装置を設計および作製した。さらに、これに低温磁場環境を組み合わせ、またマイクロ波を導入可能にした測定系を構築した。

4. 研究成果

まず、第一段階としてカーボンナノチューブの架橋構造を作製し、顕微分光測定を行った。作製した架橋構造の電子顕微鏡像を図2に示す。この試料に対して、構築した顕微システムで測定を行った結果を図3に示す。単一のカーボンナノチューブの発光を感度良く測定可能であることを確認できた。この測定系を活用し、架橋カーボンナノチューブにおける励起子拡散長の測定を行ったほか、フォトリック結晶共振器や微小ディスク共振器との光結合を捉えることにも成功した。

次に、電極を取り付けて電界効果トランジスターとして動作するデバイスを実現した。ここで、ナノチューブの光学特性を損なわないために、先に溝および電極を加工し、カーボンナノチューブの合成を最終段階で行っ

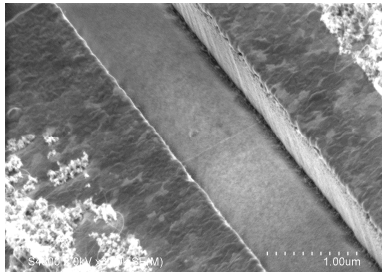


図4：架橋カーボンナノチューブ電界効果トランジスタの電子顕微鏡像。

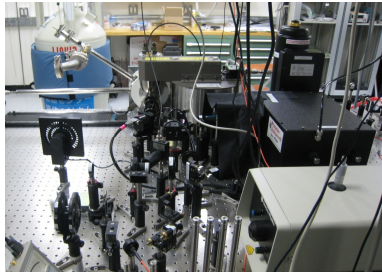


図5：構築した光学検出式スピン共鳴測定システム。

た。完成したデバイスの電子顕微鏡像を図4に示す。本研究で構築した顕微分光測定システムにより、ナノチューブの構造（カイラリティ）を同定した上で、ゲート電圧の発光に及ぼす影響を測定することにも成功した。電界効果によるキャリア蓄積により効率よく発光制御が可能であることを明らかにした。

最後に、構築した光学検出式スピン共鳴測定システムを図5に示す。単一カーボンナノチューブの発光検出を確認したほか、アモルファスシリコンを利用して電子スピン共鳴の光学検出が可能であることも実証し、カーボンナノチューブにおけるスピン共鳴の光学検出に向けた技術的な基盤を確立できた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計4件)

- [1] S. Imamura, R. Watahiki, R. Miura, T. Shimada, Y. K. Kato, “Optical control of individual carbon nanotube light emitters by spectral double resonance in silicon microdisk resonators”, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 161102 (2013). 査読有 DOI:10.1063/1.4802930
- [2] R. Watahiki, T. Shimada, P. Zhao, S. Chiashi, S. Iwamoto, Y. Arakawa, S. Maruyama, Y. K. Kato, “Enhancement of carbon nanotube photoluminescence by photonic crystal nanocavities”, *Appl.*

Phys. Lett. **101**, 141124 (2012). 査読有 DOI:10.1063/1.4757876

- [3] S. Yasukochi, T. Murai, S. Moritsubo, T. Shimada, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, “Gate-induced blueshift and quenching of photoluminescence in suspended single-walled carbon nanotubes”, *Phys. Rev. B* **84**, 121409(R) (2011). 査読有 DOI:10.1103/PhysRevB.84.121409
- [4] S. Moritsubo, T. Murai, T. Shimada, Y. Murakami, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, “Exciton diffusion in air-suspended single-walled carbon nanotubes”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 247402 (2010). 査読有 DOI:10.1103/PhysRevLett.104.247402

〔学会発表〕(計28件)

- [1] C. Trowbridge, B. Norman, Y. K. Kato, D. Awschalom, V. Sih, “Electrically generated nuclear spin polarization in $\text{In}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$ ”, *March Meeting of the American Physical Society*, Baltimore, Maryland, USA (March 21, 2013).
- [2] Y. Kumamoto, M. Yoshida, A. Yokoyama, S. Yasukochi, Y. K. Kato, “Effects of longitudinal electric fields on carbon nanotube photoluminescence”, *March Meeting of the American Physical Society*, Baltimore, Maryland, USA (March 21, 2013).
- [3] S. Imamura, R. Watahiki, R. Miura, T. Shimada, Y. K. Kato, “Optical coupling of air-suspended carbon nanotubes to silicon microdisk resonators”, *March Meeting of the American Physical Society*, Baltimore, Maryland, USA (March 21, 2013).
- [4] A. Ishii, A. Yokoyama, M. Yoshida, T. Shimada, Y. K. Kato, “Chirality dependence of exciton diffusion in air-suspended single-walled carbon nanotubes”, *March Meeting of the American Physical Society*, Baltimore, Maryland, USA (March 21, 2013).
- [5] R. Watahiki, T. Shimada, P. Zhao, S. Chiashi, S. Iwamoto, Y. Arakawa, S. Maruyama, Y. K. Kato, “Enhancement of photoluminescence from single-walled carbon nanotubes by photonic crystal nanocavities”, *The 44th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, Tokyo (March 13, 2013).

- [6] A. Ishii, A. Yokoyama, M. Yoshida, T. Shimada, Y. K. Kato, "Chirality dependence of exciton diffusion in air-suspended single-walled carbon nanotubes", *The 44th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, Tokyo (March 12, 2013).
- [7] S. Imamura, R. Watahiki, R. Miura, Y. K. Kato, "Optical coupling of air-suspended carbon nanotubes to silicon microdisk", *The 44th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, Tokyo (March 11, 2013).
- [8] A. Yokoyama, A. Ishii, M. Yoshida, Y. K. Kato, "Observation of circular dichroism in individual air-suspended single-walled carbon nanotubes", *The 44th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, Tokyo (March 11, 2013).
- [9] Y. K. Kato, "Electron spins in nonmagnetic semiconductors", *7th International Conference on Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors (PASPS 7)*, Eindhoven, Netherlands (August 5, 2012). (招待講演)
- [10] Y. K. Kato, "Exciton dynamics in individual air-suspended single-walled carbon nanotubes", *GMSI International Workshop on Carbon Nanotubes and Graphene*, Tokyo, Japan (June 15, 2012).
- [11] R. Watahiki, T. Shimada, P. Zhao, S. Chiashi, S. Iwamoto, Y. Arakawa, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Enhancement of photoluminescence from single-walled carbon nanotubes by photonic crystal microcavities", *March Meeting of the American Physical Society*, Boston, Massachusetts, USA (March 1, 2012).
- [12] A. Yokoyama, A. Ishii, M. Yoshida, T. Shimada, Y. K. Kato, "Circular dichroism in air-suspended single-walled carbon nanotubes", *March Meeting of the American Physical Society*, Boston, Massachusetts, USA (March 1, 2012).
- [13] T. Shimada, A. Yokoyama, A. Ishii, J. Shiomi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Photoluminescence from suspended individual ^{13}C -enriched nanotubes", *March Meeting of the American Physical Society*, Boston, Massachusetts, USA (March 1, 2012).
- [14] M. Yoshida, A. Yokoyama, S. Yasukochi, Y. K. Kato, "Construction of an optically-detected magnetic resonance system for investigating spins in single-walled carbon nanotubes", *6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech 6)*, Matsue, Japan (August 3, 2011).
- [15] Y. K. Kato, "Electron spins in nonmagnetic semiconductors", *6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech 6)*, Matsue, Japan (August 1, 2011). (招待講演)
- [16] M. Yoshida, A. Yokoyama, S. Yasukochi, Y. K. Kato, "Construction of an optically-detected magnetic resonance system for investigating spins in single-walled carbon nanotubes", *5th International Workshop on Spin Currents*, Sendai, Japan (July 26, 2011).
- [17] S. Moritsubo, T. Murai, T. Shimada, Y. Murakami, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Exciton diffusion in air-suspended (9,8) carbon nanotubes", 第 72 回応用物理学学会学術講演会, 山形 (2011 年 8 月 29 日). (招待講演)
- [18] S. Yasukochi, T. Murai, T. Shimada, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Gate-Induced Blueshift and Quenching of Photoluminescence in Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes", *International Workshop on Metrology, Standardization and Industrial Quality of Graphene and Nanotubes (MSIGN11)*, Cambridge, UK (July 15, 2011).
- [19] S. Yasukochi, T. Murai, T. Shimada, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Gate-Induced Blueshift and Quenching of Photoluminescence in Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes", *12th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT11)*, Cambridge, UK (July 11, 2011).
- [20] S. Moritsubo, T. Murai, T. Shimada, Y. Murakami, S. Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato, "Exciton diffusion in air-suspended (9,8) carbon nanotubes", *4th Workshop on Nanotube Optics and*

- Nanospectroscopy (WONTON11)*,
Bordeaux, France (May 29, 2011).
- [21] T. Murai, S. Yasukochi, S. Moritsubo,
T. Shimada, Y. Murakami, S. Chiashi,
S. Maruyama, Y. K. Kato,
“Photoconductivity measurements of
single-walled carbon nanotube field
effect transistors”, *March Meeting of
the American Physical Society*, Dallas,
Texas, USA (March 22, 2011).
- [22] S. Yasukochi, T. Murai, T. Shimada, S.
Chiashi, S. Maruyama, Y. K. Kato,
“Electric field dependence of
photoluminescence from individual
single-walled carbon nanotubes”,
*March Meeting of the American
Physical Society*, Dallas, Texas, USA
(March 22, 2011).
- [23] S. Moritsubo, T. Murai, T. Shimada, Y.
Murakami, S. Chiashi, S. Maruyama,
Y. K. Kato, “Exciton diffusion in
air-suspended (9,8) carbon nanotubes”,
*11th International Conference on the
Science and Application of Nanotubes
(NT10)*, Montreal, Canada (July 1,
2010).
- [24] P. Loptien, S. Moritsubo, T. Murai, Y.
K. Kato, “Growth and
photoluminescence of
carbon-nanotubes laying on silicon
substrates”, *Spring Meeting of the
German Physical Society*, Regensburg,
Germany (March 24, 2010).
- [25] S. Moritsubo, T. Murai, T. Shimada, Y.
Murakami, S. Chiashi, S. Maruyama,
Y. K. Kato, “Trench width dependence
of photoluminescence intensity from
individual suspended carbon
nanotubes”, *March Meeting of the
American Physical Society*, Portland,
Oregon, USA (March 16, 2010).
- [26] 村井智昭, 森坪繁, 嶋田行志, 村上陽一,
丸山茂夫, 加藤雄一郎, 「単一カーボン
ナノチューブ FET 構造を用いた光電流
測定」, 第 70 回応用物理学会学術講演
会, 富山 (2009 年 9 月 10 日) .
- [27] 加藤雄一郎, 「海外留学とキャリアデザ
イン」, 第 70 回応用物理学会学術講演
会, 富山 (2009 年 9 月 9 日) . (招待
講演)
- [28] 森坪繁, 村井智昭, 嶋田行志, 村上陽一,
丸山茂夫, 加藤雄一郎, 「様々な幅の溝
に架橋させたカーボンナノチューブか
らのフォトルミネッセンス」, 第 70 回
応用物理学会学術講演会, 富山 (2009
年 9 月 8 日) .

[その他]

ホームページ等

<http://ykkato.t.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加藤 雄一郎 (KATO YUICHIRO)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号 : 60451788

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし