

カーボンナノチューブ単一光子源

研究代表者
加藤雄一郎 理化学研究所 准主任研究員



1. 研究の背景と達成目標

単層カーボンナノチューブは、室温・通信波長帯で発光し、電極を取り付けて電界制御も可能なナノ光源である。また、高効率な励起子-励起子消滅過程により、室温でも単一光子が発生できるのではないかと期待が高まっている。そこで、本研究では単一の架橋カーボンナノチューブにおける単一光子発生の可能性検証に取り組んだ。単一光子発生を確認するために通信波長帯における高感度な光子相関計測システムを構築し、清浄なカーボンナノチューブの架橋構造を作製して架橋長さやカイラリティ、温度や励起強度による単一光子発生効率への影響を調査することにより実用可能な単一光子発生素子への第一歩とすることを目指した。

2. 主な研究成果と社会、学術へのインパクト

- ・単一光子発生に重要な現象である励起子-励起子消滅過程が一次元系であるカーボンナノチューブでは特に効率良く起きることを示した。通常、二粒子の散乱過程は密度の二乗に比例するが、カーボンナノチューブでは三乗に比例するため、単一光子発生に有利な系であることが明らかになった。
- ・清浄なカーボンナノチューブの架橋構造に対する光子相関測定により、室温で単一光子が発生していることを実証し、室温・通信波長帯で動作する単一光子発生素子への道を拓いた。

3. 研究成果

本研究では、単一の架橋カーボンナノチューブにおける単一光子発生の可能性検証のため、単一の単層カーボンナノチューブに対する顕微分光測定および光子相関測定に取り組んだ。

まず、カイラリティ(巻き方)を明らかにした上での励起子拡散と励起子-励起子消滅過程の定量的な評価を行った。その結果、単一光子発生に重要な現象である励起子-励起子消滅の頻度が励起子密度の三乗に比例していることを示唆する実験結果を得た。モンテカルロ・シミュレーションにより実験データが再現できることを確認し、高励起強度領域では励起子緩和は励起子-励起子消滅過程が支配的になっており、そのレートは励起子密度の三乗に比例していることを明らかにしたほか、炭素原子あたりの吸収断面積および発光量子効率に関する知見を得た。

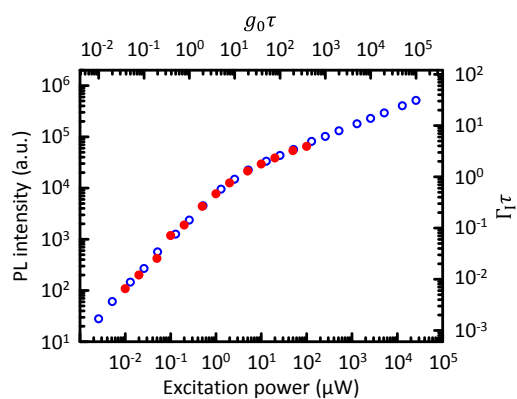


図 1: 単一架橋カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス強度の励起強度依存性(赤丸)。シミュレーション結果は青丸で示されている。強励起領域の傾きから、励起子密度の三乗に比例して励起子-励起子消滅が起きていることが分かった。

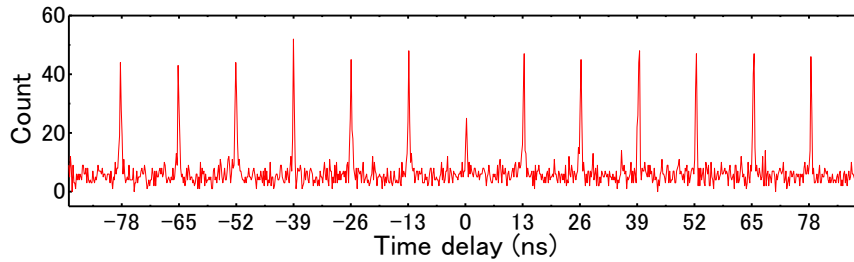


図 2: 架橋カーボンナノチューブを用いた単一光子生成実験。時間差 0 のタイミングにおいてシグナルのカウントが低下するアンチバンチングが見えており、単一光子の生成が確認できる。

次に、励起子-励起子消滅過程が光子相関に与える影響を調査するため、通信波長帯 Hanbury-Brown-Twiss 干渉計の構築に取り組んだ。励起光源としてフェムト秒チタンサファイアレーザー、検出器として InGaAs アバランシェフォトダイオードを用い、これらの機器と光子相関計数器を接続して測定系を構築した。干渉計を構成するビームスプリッターから検出器までの光学系を、ナノチューブの評価に利用している顕微フォトルミネッセンス系に組み込み、評価後にそのまま光子相関測定を開始可能な測定系とした。また、自動測定を実行するためのソフトウェアを開発して長時間積算を可能とする試料位置追跡システムを実現した。その結果、単一の架橋カーボンナノチューブのフォトルミネッセンスにおいて、室温でのアンチバンチングの観測に成功した(図 2)。

4. 今後の展開

本研究により、架橋カーボンナノチューブによる室温における通信波長帯単一光子発生が確認できた。単一欠陥など高度な制御技術が必要となるこれまでの単一光子源とは異なり、簡易に作製可能なマイクロスケールの系において単一光子が生成できることを示せた意義は大きい。今後は発生効率や取り出し効率の向上、そして電界制御や電界駆動などの課題に取り組み、扱いの容易な通信波長帯単一光子源を実現したい。

5. 発表実績

- [1] “Electric-field induced activation of dark excitonic states in carbon nanotubes”, T. Uda, M. Yoshida, A. Ishii, Y. K. Kato, *Nano Lett.* **16**, 2278 (2016).
- [2] “Gate-voltage induced trions in suspended carbon nanotubes”, M. Yoshida, A. Popert, Y. K. Kato, *Phys. Rev. B* **93**, 041402(R) (2016).
- [3] “Exciton diffusion, end quenching, and exciton-exciton annihilation in individual air-suspended carbon nanotubes”, A. Ishii, M. Yoshida, Y. K. Kato, *Phys. Rev. B* **91**, 125427 (2015).
- [4] “Gate-controlled generation of optical pulse trains using individual carbon nanotubes”, M. Jiang, Y. Kumamoto, A. Ishii, M. Yoshida, T. Shimada, Y. K. Kato, *Nat. Commun.* **6**, 6335 (2015).
- [5] “Localized guided-mode and cavity-mode double resonance in photonic crystal nanocavities”, X. Liu, T. Shimada, R. Miura, S. Iwamoto, Y. Arakawa, Y. K. Kato, *Phys. Rev. Applied* **3**, 014006 (2015).
- [6] “Ultralow mode-volume photonic crystal nanobeam cavities for high-efficiency coupling to individual carbon nanotube emitters”, R. Miura, S. Imamura, R. Ohta, A. Ishii, X. Liu, T. Shimada, S. Iwamoto, Y. Arakawa, Y. K. Kato, *Nat. Commun.* **5**, 5580 (2014).
- [7] “Stark effect of excitons in individual air-suspended carbon nanotubes”, M. Yoshida, Y. Kumamoto, A. Ishii, A. Yokoyama, Y. K. Kato, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 161104 (2014).
- [8] “Exciton physics in individual carbon nanotubes”, Y. K. Kato, *Fundamental optical processes in semiconductors (FOPS)*, Breckenridge, Colorado, USA (August 6, 2015) (Invited).
- [9] “Single carbon-nanotube photonics and optoelectronics”, Y. K. Kato, *6th Workshop on Nanotube Optics and Nanospectroscopy (WONTON15)*, Kloster Banz, Germany (June 4, 2015) (Invited).
- [10] “Single carbon-nanotube photonics and optoelectronics”, Y. K. Kato, *March Meeting of the American Physical Society*, San Antonio, Texas, USA (March 2, 2015) (Invited).