

カーボンナノチューブによる室温動作・光通信波長帯単一光子光源の研究開発 (082103001)

Carbon nanotube optoelectronic device for single-photon emitter

研究代表者

牧英之 慶應義塾大学

Hideyuki Maki Keio University

研究期間 平成 20 年度～平成 22 年度

概要

単一光子を用いた絶対的安全性を持つ量子暗号通信が提案されているが、本研究では、巨大な励起子結合エネルギーなど単一光子発生に優れた特性を有する半導体カーボンナノチューブ量子ドットを用いた単一光子発生の観測を試みた。ここでは、カーボンナノチューブからの通信波長帯での単一光子発生の観測や電流注入型光源の開発を試みた。また、歪印加によるバンドギャップ変調を利用した波長可変発光に関する研究も進めた。

Abstract

Excitons play an important role in the optical properties of SWNTs because the exciton binding energies are anomalously large in SWNTs. The strong Coulomb interaction causes exciton-exciton annihilation due to the rapid Auger processes. It is expected that these nonradiative recombination processes induce photon antibunching. In this project, we tried to observe single-photon generation, electroluminescence and tunable light emission from carbon nanotubes.

1. まえがき

1 パルス中に含まれる光子が 1 個に制限された単一光子は、量子力学に関する基礎研究分野や、それらの応用で盗聴の検知による絶対的に安全な量子暗号通信などの研究分野において近年注目されている。特に量子暗号通信の実用化には、光ファイバー低損失領域（通信波長帯）である波長 $1.3\mu\text{m}$ 帯や $1.55\mu\text{m}$ 帯での長距離単一光子伝送が必要とされているが、レーザー光源を単純に減衰した場合、単一光子の発生効率が低く伝送距離や通信速度の著しい低下を招くため、効率よく確実に単一光子を発生させる素子の開発が望まれている。このような単一光子発生源として、半導体量子ドットからの単一光子発生が注目されており、励起子の基底状態からの発光による高効率な単一光子発生が期待されるとともに、電流駆動による電子素子化も可能である。このような半導体を用いた単一光子発生素子のうち、量子暗号通信で重要な通信波長帯での単一光子発生に関しては、化合物半導体を用いた研究が進められており、レーザー光励起による単一光子発生が実現しているとともに、電流注入型の単一光子発生素子も試作されている。しかしながら、化合物半導体を用いた場合、素子温度を極低温にする必要があり、実用化に不可欠な室温での動作には、材料自身が根本的に抱えている多くの問題に対して大きなブレイクスルーを要する。そのため、実用化可能な室温動作単一光子発生素子の実現のためには、従来の化合物半導体に変わる新たな材料系を探索することが求められている。

本研究では、巨大な励起子結合エネルギーなど単一光子発生に優れた特性を有する半導体カーボンナノチューブを用いた単一光子発生を提案し、カーボンナノチューブからの高温・通信波長帯での単一光子発生の観測・電流注入型光源開発・波長可変光源を開発することを目的として研究を進めた。カーボンナノチューブは、①通信波長帯で発光可能である、②励起子の結合エネルギーが非常に大きく（数百 meV）室温で安定して励起子が存在、③大きな離散化エネルギーを持つなど、通信波長帯での単一光子発生に極めて有望な材料である。さらに、電子デバイスの観点で

は、④ドーピングを必要としない電子正孔キャリア制御、⑤横型素子構造が可能のため集積回路への組み込みが期待、⑥Si 基板上への素子形成、⑦自身が持つ低次元構造に由来した優れた量子輸送特性が実現されているなど、電子素子化による電流注入型の単一光子発生素子が期待される。さらに我々は、圧電素子を用いてカーボンナノチューブに弾性的な歪を印加することにより、カーボンナノチューブのバンドギャップを連続的・可逆的に制御することに世界で初めて成功し、外部からの電圧印加により発光波長を自由に制御できることを明らかにした。この素子を単一光子発生に用いれば、波長可変の単一光子発生素子という全く新しい単一光子現が実現される。そこで、本研究では、

- (a) 半導体カーボンナノチューブを用いた電流注入型発光素子開発
- (b) カーボンナノチューブへの歪印可による波長可変素子の開発
- (c) CNT 量子ドットを用いた電子輸送制御・励起子消滅による単一光子発生に関する研究を進めた。

2. 研究内容及び成果

(1) 半導体カーボンナノチューブを用いた電流注入型発光素子開発

本研究では、電流注入型の CNT 単一光子発生素子実現に向けて、CNT への電流注入に伴う発光「エレクトロルミネッセンス (EL)」に関する研究を進め、CNT 発光素子の開発、発光波長の短波長化、発光機構解明に関する研究を行った。本素子では、シリコン基板上に Co 触媒を形成後、化学気相成長 (CVD) 法により基板に接触した CNT を成長した (図 1)。成長した一本の CNT 両端に対して、ソース・ドレイン電極を形成し、基板を通してバックゲート電圧が印加可能な FET 型の素子を作製した。本素子において、従来の CNT 発光素子と比べて 300nm 以上の短波長発光の観測に成功し、通信波長帯発光以上のエネルギーバンドギャップを持つ CNT において世界で初めて EL を観測した (図 1)。

(2) カーボンナノチューブへの歪印可による波長可変素子

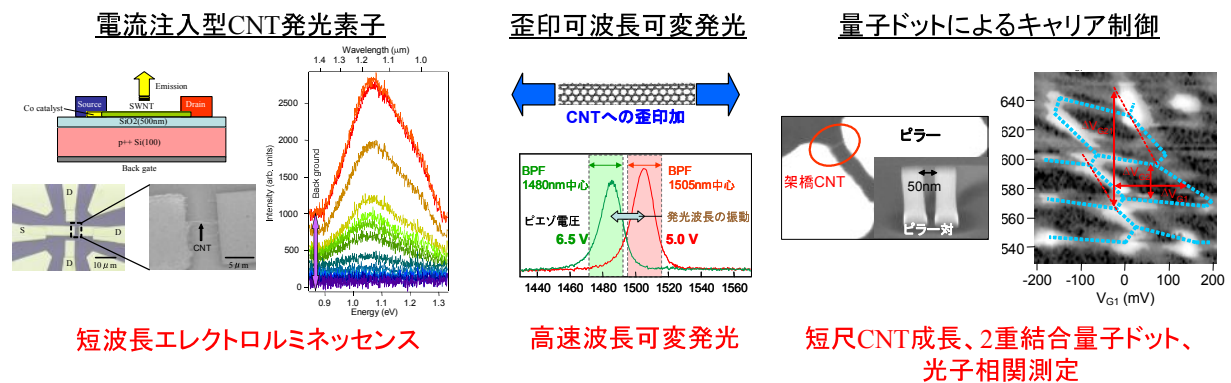


図 1

子の開発

本研究では、カーボンナノチューブへ歪を印可する新規素子を開発し、歪印可に伴う連続可変なバンドギャップ制御により、波長可変な発光を実現することを目指した。本素子は、圧電素子により歪を印加することから、矩形波を印加することにより、高速でのバンドギャップ制御が期待される。しかし、高速変調された一本のカーボンナノチューブ (CNT) からの微弱な発光を通常の顕微フोटルミネッセンス測定装置で測定することは感度的に困難であることから、アバランシェフォトダイオード (APD) を用いた単一光子計数法によって、ヒストグラム表示により時間分解を観測する新たな光計測系を構築した。その結果、図 1 に示すように歪印可に伴う発光波長の制御に成功した。さらに、413Hz の矩形波を圧電素子に印加し、アバランシェフォトダイオードによる時間分解測定を行った結果、繰り返し歪印加に応じて発光波長が変化することに起因し、ピエゾ電圧に同期したフォトンカウンタ数の変調が観測され、高速繰り返し歪印加によるバンドギャップの高速変調を観測することに成功した。これにより、歪を変調信号として CNT へ入力することにより、高速の波長可変発光が実現可能であることが明らかとなった。

(3) CNT 量子ドットを用いた電子輸送制御・励起子消滅による単一光子発生

本研究では、CNT 量子ドットにおける量子輸送特性や励起子消滅による単一光子発生に向けて、量子ドットデバイスにおける電子輸送制御・短尺カーボンナノチューブ成長・光子相関測定系構築に関する研究を進めた。

クーロンブロッケードを利用した単一光子発生に関連して、2つの局所ゲート電極を有する量子ドットデバイス作製を試みた。一本のカーボンナノチューブに対して2つの局所バックゲートを形成し、ナノチューブ内に存在する2つの量子ドットが結合した二重結合量子ドットを作製した。その結果、図 1 に示すような二重結合量子ドットに特徴的なハニカム状のクーロンピークが観測された。これにより、バックゲート構造による二重結合量子ドット作製にはじめて成功したことから、キャリアをゲート電圧に同期して、一個ずつ輸送することが可能となり、単一キャリア輸送による単一光子発生への応用が期待される。

半導体量子ドットにおいて、高温で一つの励起子から単一光子を得る場合、大きな離散化準位および複数の励起子相互作用を大きくすることが必要であることから、単一光子発生に適した CNT として短尺のカーボンナノチューブ成長技術の確立を行った。図 1 に示すように、ピラー間に長さ 50nm の架橋カーボンナノチューブを成長することに成功した。長さ 50nm のカーボンナノチューブは、非常に大きな離散化準位間隔が得られると理論的に予想される

ことから、この短尺ナノチューブによる単一光子発生素子の高温動作が期待される。

また、単一光子発生観測に適した測定系を構築するため、温度制御可能な顕微分光測定系の構築を行い、続いて APD を用いた単一光子測定系の構築を進めた。その結果、発光の時間分解測定が可能な光学測定系の構築に成功するとともに、Hanbury-Brown and Twiss 法による単一光子観測測定系の構築にも成功した。本装置を用いて単一光子観測が今後期待される。

3. むすび

CNT を用いた単一光子光源に向けて、電流注入型の CNT 発光素子開発、波長可変発光素子開発、2重結合量子ドット素子開発、短尺 CNT 成長に成功し、単一光子観測技術の構築にも成功したことから、今後の CNT 単一光子発生素子の実現が期待される。

【誌上発表リスト】

- [1] H. Maki, T. Mizuno, S. Suzuki, T. Sato, and Y. Kobayashi, "Multi-Back-Gate Control of Carbon Nanotube Double-Quantum Dot", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.48 pp04C201/1-4 (2009 年 4 月)
- [2] N. Hibino, S. Suzuki, H. Wakahara, Y. Kobayashi, T. Sato, and H. Maki, "Short-Wavelength Electroluminescence from Single-Walled Carbon Nanotubes with High Bias Voltage", ACS Nano, 5, pp1215-1222 (2011 年 1 月)
- [3] H. Maki, T. Yasuda, Y. Muronoi, H. Wakahara, and T. Mori, "Carbon Nanotube Optoelectronic Devices For Single Photon Generation", Updating Quantum Cryptography and Communications 2010 (2010 年 10 月 19 日)

【受賞リスト】

- [1] 牧英之、第 45 回日本電子材料技術協会秋期講演大会優秀賞、“歪印加によるカーボンナノチューブのバンドギャップ制御と光素子応用”、2008 年 11 月 14 日
- [2] 若原弘行、牧英之、佐藤徹哉、鈴木 哲、第 46 回日本電子材料技術協会秋期講演大会優秀賞、“発光・電気伝導の同時測定によるカーボンナノチューブからの励起子・自由キャリア電界発光観測”、2009 年 11 月 20 日
- [3] 山内陽平、牧英之 第 47 回日本電子材料技術協会秋期講演大会優秀賞、“カーボンナノチューブ薄膜からの黒体放射発光とエレクトロルミネッセンスの観測”、(東京) (2010 年 11 月 19 日)