

52. 発光中心の自在導入による量子光デバイス開発

物質・材料研究機構ナノアーキテククス材料研究センター 主任研究員 小澤 大知

概要

本研究は、決定論的単一分子結合法に基づく発光中心の導入により、量子光デバイスに向けた量子材料を創出することを目的とした。まず、カーボンナノチューブにおいて *in-situ* 光化学反応による単一発光中心の決定論的形成・位置制御に成功し、光子アンチバンチングから単一光子源としての動作を確認した。さらに本手法を二次元材料へ展開し、単層 WS_2 へのヨードベンゼンの気相光化学反応により発光中心の形成を実証するとともに、極低温での鋭い発光ピークの出現や励起波長依存性の発見など、波長選択的な発光中心形成制御への道を拓いた。

背景および目的

量子通信や量子計算の実現には、高性能な単一光子源の開発が不可欠である。なかでも、カーボンナノチューブは室温で通信波長帯（近赤外域）の単一光子を発生できるため、量子光源の有力な候補材料として注目されている。カーボンナノチューブに化学修飾により導入される量子欠陥（発光中心）は、局在した電子状態をもち、単一光子源や量子ビットとして機能する。しかしながら、NV 中心などにおける従来の量子欠陥形成技術は高温・高エネルギープロセスに依存しており、欠陥が確率論的に形成されるため、その位置や個数を決定論的に制御することが本質的に困難であった。

申請者らはこれまでに、カーボンナノチューブへの気相光化学反応により、 $1\text{ }\mu\text{m}$ あたり 1 個という極低密度で分子を結合させる技術を確認した¹⁾。本研究では、この成果を発展させ、「決定論的単一分子結合法」を確立することで、所望の位置・個数・エネルギー準位をもつ量子欠陥をカーボンナノチューブに自在に導入し、量子光デバイスに向けた量子材料を創出することを目的とした。具体的には、(1) 紫外光を回折限界まで集光して局所的な光化学反応を誘起し、単一分子レベルで量子欠陥の形成を制御する技術の開発、および (2) 作製した量子欠陥の単一光子源としての性能評価を行ない、高性能な量子光源の実現を目指した。

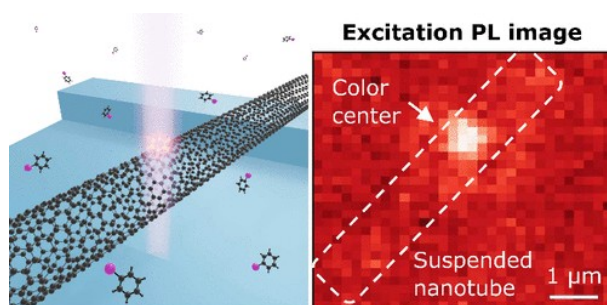


図 1. 決定論的単一分子修飾法の模式図および、それを用いて修飾したカーボンナノチューブの励起発光イメージ。

成果

本研究ではまず、カーボンナノチューブにおいて *in-situ* 光化学反応による決定論的単一分子修飾法の原理実証に成功した。発光スペクトルの離散的な強度変化をリアルタイムで観測することで、発光中心（量子欠陥）の一つ一つの形成を個別に検出・制御することを実現した。さらに、発光イメージングにより量子欠陥の位置制御が可能であることを実証し、光子アンチバンチングの観測から形成された欠陥が単一光子源として機能することを確認した。この成果は Nano Lett.誌に掲載された。

カーボンナノチューブで確立した本手法を二次元材料へと展開するため、単層 WS₂ を対象とした光化学反応の探索を行った。その結果については「結果とまとめ」に記す。

結果とまとめ

本研究では、*in-situ* 光化学反応の顕微分光測定系を構築し、単層 WS₂ を対象にヨードベンゼン蒸気雰囲気下で可視光レーザー照射による光化学反応を誘起した。発光強度の時間変化はレート方程式モデルと良好に一致し、分子結合による発光中心の形成が示唆された。極低温発光分光では量子欠陥に起因する鋭い発光ピークを観測した。一方、ヘキサフェニルジシランやマンガンカルボニルでは反応が進行せず、分子と基板の反応性マッチングの重要性が示された。さらに、光化学反応の励起波長依存性を発見し、波長選択的な発光中心形成制御への展開を可能にした。

(完)

発表論文

- 1) D. Kozawa, Y. Shiota, M. Wang, Y. K. Kato, Deterministic Formation of Single Organic Color Centers in Single-Walled Carbon Nanotubes, Nano Letters, 25, 13103–13109 (2025).

引用文献

- 1) D. Kozawa, X. Wu, A. Ishii, J. Fortner, K. Otsuka, R. Xiang, T. Inoue, S. Maruyama, Y. Wang, Y. K. Kato, Formation of organic color centers in air-suspended carbon nanotubes using vapor-phase reaction, Nature Communications, 13, 2814 (2022).