

カーボンナノチューブの非線形および磁気光学特性の研究

市田正夫

甲南大学理工学部

1. 研究のねらい

単層カーボンナノチューブは炭素原子だけで作られた自然形成の量子細線で、1次元の電子構造を持ち、またその構造によって金属あるいは半導体的なバンド構造を有している。最近、ナノチューブ特有の「電子的」「構造的」機能を生かして、次世代ナノエレクトロニクスデバイスに応用しようとする研究が盛んに行われてきている。超高速光通信を目指した次世代の光デバイスへの応用もその一例である。その実現のためには「光で光を制御する」ことが必要となり、光学材料が巨大かつ高速に応答する非線形感受率を持つことが重要となる。本研究では、カーボンナノチューブの非線形光学応答と磁気光学特性を調べ、カーボンナノチューブの非線形光学応答の起源やその時間挙動、さらに新奇な磁気光学現象を解明し、カーボンナノチューブベースの光デバイスとしての応用への指針を与えることを目的とした。

フェムト秒光パルスを用いたポンプ・プローブ分光法を用いて、この系が大きな光学非線形性を有していることを見出し、その時間応答が、金属チューブと半導体チューブで大きく異なっていることを明らかにした。また、この系が、その構造に起因した特異な磁気光学特性を示すことを発見した。

2. 研究成果と考察

(1) 単層カーボンナノチューブの非線形光学応答

フェムト秒光パルスを用いた単層カーボンナノチューブのポンプ・プローブ分光の結果を図1に示す。図1(a)は平均直径1.22nmの単層カーボンナノチューブの吸収スペクトルであり、吸収帯Aと吸収帯Bは半導体チューブ、吸収帯Cは金属チューブの光学遷移に対応する。図1(b)はフェムト秒紫外光パルス励起直後の吸収スペクトルの変化分をあらわす差分スペクトルである。吸収帯A, B, Cのすべてに吸収減少(非線形吸収)が見られる。吸収変化の励起光強度依存性から、3次の非線形感受率の虚部 $|\text{Im}\chi^{(3)}|$ が求まり、 $10^9\text{esu}\sim 10^{10}\text{esu}$ であった。特に吸収帯Aでは、吸収帯B, Cと比べて感受率の増大が見られた。これは、半導体チューブに現れる励起子効果によるものであると考えられる。図1(b)の挿入図は、半導体チューブによる吸収帯Aおよび金属チューブによる吸収帯Cの吸収変化の時間発展を示している。半導体チューブの遷移である吸収帯Aでは、減衰時定数が1ps程度であるが、図1(c)に示されるように、チューブ直径に依存し、細いチューブほど速い減衰挙動を示す。吸収変化のスペクトル形状とその時間挙動のチューブ直径依存性から、半導体チューブでは、光励起キャリアによる状態占有により非線形吸収がおこること、その緩和はチューブ内に存在する欠陥によるキャリアのトラップで支配されることが分かった。一方、金属チューブでは、およそ200fsで緩和する成分と1.5ps程度で緩和する2つの成分があることが分かった。金属チューブでは、光励起により作られた電子の非平衡分布および高い電子温度の擬フェルミ分布が非線形吸収とその時間応答を決めていることが分かった。

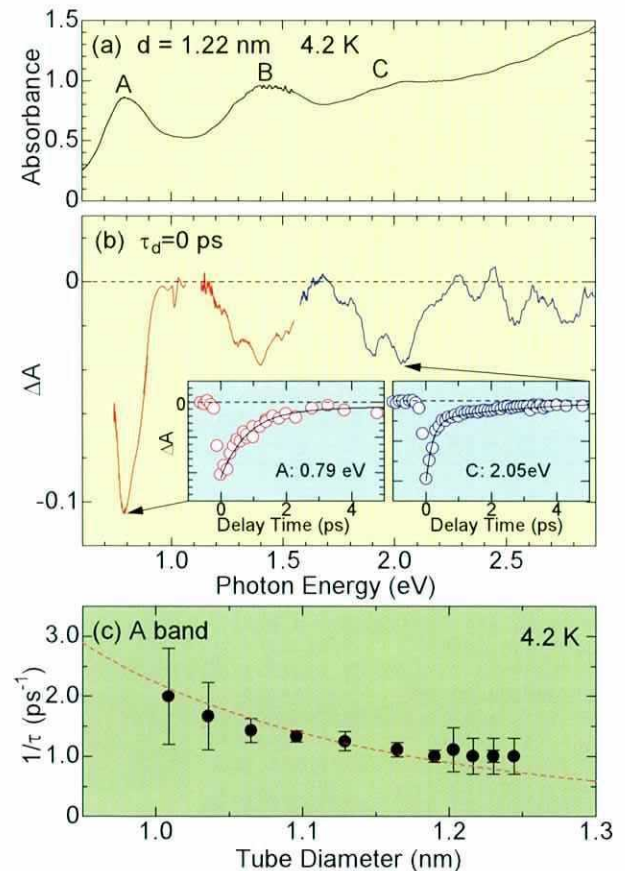


図1 (a): 単層カーボンナノチューブの吸収スペクトル。(b): 光励起後の吸収スペクトルの変化分。挿入図は半導体(A)および金属(C)チューブの吸収変化の時間発展。(c): 半導体チューブの緩和レートの直径依存性

(2) 単層カーボンナノチューブの磁気光学効果

図2(a)に10Tの磁場下で測定した配向したナノチューブの吸収スペクトルを示す。チューブ軸と磁場が平行な場合、図2(b)に示されるように、磁場下では吸収スペクトルが変化した。一方、垂直では変化は見られなかった。この吸収変化は、磁場によるナノチューブの電子状態の変化に対応している。図2(c)は、チューブに磁束が入ることによって生じるアハラノフ・ボーム(AB)効果を考慮した吸収スペクトルを計算したものであるが、実験で観測された変化は、計算結果よりも大きい。ナノチューブでは、電子の周回方向の運動が量子化され、その量子数が角運動量量子数になっている。この「軌道角運動量」によるゼーマン効果がAB効果と共にナノチューブの磁気光学効果として現れているものと考えられる。

今後は、光学非線形性の直径依存性を明らかにし、ナノチューブを光スイッチなどの非線形光デバイスとして応用することを目指す。また、磁気光学効果の詳細を明らかにして、ナノチューブベースの磁気スイッチングデバイスに向けた研究を展開する。

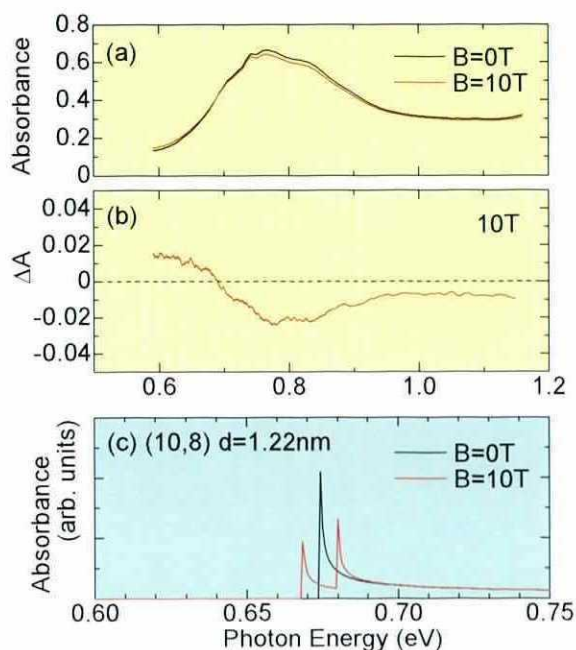


図2 (a)10Tの磁場下における吸収スペクトル (b)磁場による吸収スペクトルの変化 (c)アハラノフ・ボーム効果による吸収スペクトルの変化の計算結果

3. 主な論文

論文

- 1) "Temperature dependence of time-resolved luminescence spectra for 1D excitons in single-walled carbon nanotubes in micelles", M. Ichida, I. Umezumi, H. Kataura, M. Kimura, S. Suzuki, Y. Achiba, and H. Ando, *J. Lumin.*, in press, 2004.
- 2) "Ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in metallic and semiconducting single-walled carbon nanotubes", M. Ichida, Y. Hamanaka, H. Kataura, Y. Achiba, A. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 73, in press, 2004.
- 3) "Anisotropic optical properties of mechanically aligned single-walled carbon nanotubes in polymer", M. Ichida, S. Mizuno, H. Kataura, Y. Achiba, and A. Nakamura, *Appl. Phys. A*, 78, 1117-1120, 2004.

プロシーディングス、国際会議発表

- 1) "Ultrafast relaxation dynamics of photoexcited carriers in single-walled carbon nanotubes", M. Ichida, Y. Hamanaka, H. Kataura, Y. Achiba, and A. Nakamura, *Proc. 26th Int. Conf. Phys. Semicond. IoP Conf. 171*, M4_3, 2002.
- 2) "Magneto-optical properties of aligned single-walled carbon nanotubes", M. Ichida, H. Wakida, H. Kataura, Y. Achiba, and H. Ando, *27th International Conference on the Physics of Semiconductors (H5.012)*, Arizona, July, 2004.
- 3) "Ultrafast nonlinear optical response of single-walled carbon nanotubes", M. Ichida, Y. Hamanaka, H. Kataura, Y. Achiba, and A. Nakamura, *1st International Congress on Bio-Nanointerface (23D-15-L4)*, Tokyo, May, 2003.

著書

- 1) 「カーボンナノチューブの基礎と応用」 斎藤理一郎・篠原久典共編, 第7章, 培風館, 2004
- 2) 「カーボンナノチューブ -進む材料開発技術と今後の用途展開」, 第2章, 情報機構, 2002

4. その他

特許

出願件数 2件