

単層カーボンナノチューブの超高速コヒーレント振動ダイナミクス

物質・材料研究機構¹, Univ. Pittsburgh²

○加藤 景子¹, 石岡 邦江¹, 北島 正弘¹, 唐 捷¹, Hrvoje Petek²

【序】

カーボンナノチューブ(CNT)は、一層のグラファイト、すなわちグラフェンを円筒状に丸めた形状を持っており、その特異な機械的、電氣的性質および熱伝導度から次世代のデバイス材料として最も注目を集めている新素材の一つである。これらの諸性質は CNT 内の電子の運動がチューブ軸方向に限定されることに由来するものである。ナノメートルサイズの空間領域に限定された電子の運動は、電子・電子または電子・フォノン相互作用により大きく影響される。よって、CNT のデバイス応用を考える上でキャリアおよびフォノンに関する情報は欠かすことができない。従来、固体のフォノン物性に関しては、ラマン分光法によって行われてきたが、近年のレーザー技術の発展により、超短パルスレーザーの照射によって生成した位相を揃えた格子振動(コヒーレントフォノン)の実時間観測が可能となった。

CNT のコヒーレントフォノンは、2006 年に Gambetta ら[1]によって初めてその報告がなされた。彼らはマトリックス中に分散させた単層カーボンナノチューブに超短パルスを照射し、透過型ポンプ・プローブ実験によって CNT のコヒーレントフォノンを観測した。時間分解測定により、ラマン分光法では観測できなかった振動モード間のカップリングを観測した。しかしながらこれまでに行われた CNT のコヒーレントフォノンに関する実験は 2 報[1,2]に限られており、CNT の振動ダイナミクスに関して十分な情報が得られていない状況である。

本研究では単層カーボンナノチューブにおけるキャリアおよびコヒーレントフォノンのダイナミクスを明らかにすることを目的とし、フェムト秒時間分解反射率測定を行った。

【実験】

チタン・サファイアレーザーを BBO 結晶へ集光して得られた第 2 次高調波(中心波長 395 nm、パルス幅 10 fs 以下)を光源として用いた。得られた可視光をビームスプリッターによってポンプ光とプローブ光の二つに分けた後、プローブ光路側に導入した電動ステージによって 2 つの光の間に遅延時間を設けた。それぞれの光を波長板、偏光板に通してレーザーの偏光および強度を独立に調整した後、球面型ミラーによってガラス基板上の CNT に集光した。CNT から反射されたプローブ光は、遅延時間を掃引しながら、ポンプ光によって誘起された反射率の過渡変化(ΔR)として測定した。反射光の検出に当たっては、観測する振動モードの対称性に応じて等方的検出または非等方的検出を選んだ。等方的検出では、キャリアの応答や全対称伸縮モード(A モード)が検出できる。一方、非等方的検出では反射光を縦偏光成分と横偏光成分に分離し、それぞれの信号強度の差から異方的な反射率変化を信号として捉える。よって、サンプル中に起きた空間的に異方的な変化、縮退モード(E モード)等が検出できる。

サンプルはガラス基板上にチューブ軸を配向させた単層カーボンナノチューブ[3]を用いた。

【実験結果・考察】

図に等方的検出による CNT の時間分解反射率測定による結果を示す。時間 0 における強い信号は光励起キャリアからの応答によるものである。キャリア応答の減衰による非振動成分の上に、CNT のコヒーレントフォノンに由来する振動成分(拡大図)が観測された。コヒーレントフォノン振動は約 47 THz の高周波数成分と 5 THz 程度の低周波数成分の 2 つの振動成分からなる。前者は CNT の面内の C-C 伸縮(G モード)であり、後者はチューブの動径方向に振動するブリージングモードである。講演では、これらのコヒーレントフォノンの偏光依存性や強度依存性について発表する予定である。

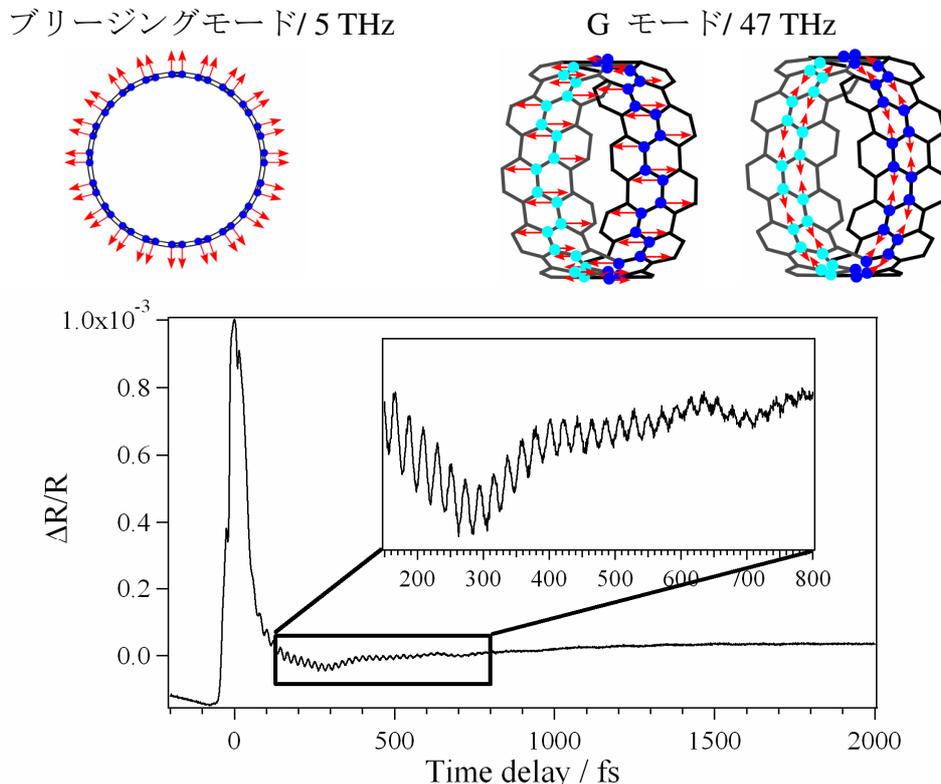


図 単層カーボンナノチューブの等方的反射率変化 $\Delta R/R$ 。炭素間結合の面内振動に由来する高周波数成分(47 THz)およびチューブの直径が伸縮するブリージングモードに対応する低周波数成分の周期的振動が観測された。

【参考文献】

- [1] A. Gambetta *et al.*, *Nature Phys.* **2** 515-520 (2006).
- [2] Y. S. Lim *et al.*, *Nano Lett.* **6** 2696 (2006).
- [3] H. Shimoda *et al.*, *Adv. Mater.* in press.