

カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス  
**Photoluminescence spectroscopy of carbon nanotubes**

大野雄高<sup>1,2</sup>, 丸山茂夫<sup>3</sup>, 水谷孝<sup>1,4</sup>

<sup>1</sup>名古屋大学工学研究科量子工学専攻

<sup>2</sup>科学技術振興機構さきがけ

<sup>3</sup>東京大学工学研究科機械工学専攻

<sup>4</sup>名古屋大学高等研究院

Yutaka Ohno<sup>1,2</sup>, Shigeo Maruyama<sup>3</sup>, and Takashi Mizutani<sup>1,4</sup>

<sup>1</sup>Department of Quantum Engineering, Nagoya University

<sup>2</sup>PRESTO, Japan Science and Technology Agency

<sup>3</sup>Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo

<sup>4</sup>Institute of Advanced Research, Nagoya University

Abstract

Recently, light emission from semiconducting single-walled carbon nanotube has attracted special interests from the viewpoints of the physics of exciton and the application for optoelectronic devices in nano-dimension. Here, we present the photoluminescence spectroscopy and the time-resolved measurement of the material, and also show possibilities of optical techniques for the characterization of nanotube field-effect transistors.

## 1. はじめに

自己組織化的に成長するカーボンナノチューブは、微細加工技術を駆使して作製される細線に比べ、理想的に近い一次元電子状態をもつ。ナノチューブのエネルギーバンドはフォノンを介することなく発光が可能な直接遷移型であることから、一次元構造特有の高効率な発光・光吸収が期待でき、光機能材料という点から興味深い[1]。

近年、界面活性剤などを用いて孤立化したナノチューブにおいて、光励起による発光現象（フォトルミネッセンス；PL）が報告され、注目を集めている[2]。PL分光は、ナノチューブのカイラリティなどの構造決定のみならず、電子構造や励起子物性を調べることも可能であり、ラマン散乱分光と並んで重要なナノチューブ評価技術となっている。また、ナノチューブの発光をセンサー等に利用しようとする試み[3]も報告され始めており、ナノチューブの発光現象に関する研究は基礎物性から応用まで多岐に広がりを見せつつある。

本稿では、カーボンナノチューブの発光に関する著者らの研究から、架橋ナノチューブの発光特性と環境の効果、および発光を利用したナノチューブ電界効果型トランジスタ（FET）のキャリア輸送解析について紹介する。

## 2. ナノチューブの PL

はじめに、カーボンナノチューブの光学的性質を簡単に紹介する。カーボンナノチューブにおいて、キャリアはナノチューブの円周方向に閉じ込められており、円周方向のエネルギーは周期境界条件により量子化される。これにより、図 1(a)に示すように、ファン・ホーブ特異点に起因する一次元構造特有の状態密度の発散が生ずる。光の吸収・放出といった光学遷移は、主にファン・ホーブ特異点間で行われる。本稿では、例えば第 1 準位間の光学遷移エネルギーを  $E_{11}$  のように表記する（同様に第  $i$  準位間を  $E_{ii}$  とする）。なお、正確にはナノチューブの持つ 1 次元性のため、振動子強度は励起子に集中し、励起子遷移が顕著になる。

ファン・ホーブ特異点のエネルギーはナノチューブのカイラリティによって異なるため、分光学的にカイラリティを同定すること、あるいは特定のカイラリティのナノチューブを観測することが可能である。例えば、半導体ナノチューブの PL 測定では、 $E_{22}$  や  $E_{33}$  でキャリアを励起し、励起されたキャリアはバンド内で緩和して、 $E_{11}$  において再結合発光を生ずる。したがって、励起エネルギーと発光エネルギーの関係から

ナノチューブのカイラリティが同定される。

半導体ナノチューブを発光させるためには、ナノチューブのバンドル（束）を解いて孤立させなければならない。バンドルの状態では、半導体ナノチューブにおいて励起されたキャリアは隣接している金属ナノチューブやより小さいバンドギャップをもつ半導体ナノチューブへ移動して緩和する。このようなキャリア移動を防ぐため、ナノチューブを孤立化させる方法として、界面活性剤を用いてミセル化する方法[2]や、Si 基板などに形成された微細構造上に架橋成長させる方法[4]などが提案されている。なお、孤立状態においても、基板に接している場合は、PL は観測できていない。

図 1(b)は石英基板上に形成したグレーティングに架橋成長させたカーボンナノチューブの SEM 像である[5]。グレーティングの形成は、フォトリソグラフィにより周期  $2\ \mu\text{m}$  のレジストパターンを形成した後、Al を蒸着・リフトオフし、続いて Al をマスクとしてフッ素系の反応性イオンエッチングにより石英をエッチングすることにより行った。ナノチューブの成長は、まず触媒となる酢酸 Mo と酢酸 Co のエタノール溶液を基板にディップコーティングし、つづいてエタノールをカーボン源とした化学気相成長法 (CVD) を用いることにより行った。なお、ナノチューブが成長しやすい（短時間で量が得られる）成長条件を選ぶことにより、次に示すように多くのカイラリティについて発光が得られる。

図 1(c)は作製した架橋ナノチューブの PL マッピング測定の結果であり、縦軸に励起エネルギー、横軸に受光エネルギーをとり、発光強度を色の違いで示している。なお、励起光源は波長可変のチタン・サファイアレーザ(700~950 nm)、ディテクタは液体窒素冷却の InGaAs の光電子増倍管(900~1700 nm)である。励起エネルギーおよび発光エネルギーは、それぞれナノチューブの  $E_{22}$  および  $E_{11}$  に対応する。図中の黒丸は PL のピーク位置を示し、各カイラリティに対応する。なお、対応するカイラリティ ( $n,m$ )については後に図 2 に示す。このサンプルでは、測定の波長範囲に存在する全てのカイラリティ (20 種) が観測されている。また、PL マップ中を斜めに走る輝線（発光エネルギーが励起光エネルギーに比例している信号）はナノチューブのラマン線である。

### 3. PL における環境の効果

カーボンナノチューブの吸収・発光のエネルギーはナノチューブを孤立化させる方

法により異なる[5-7]. これは, ナノチューブ周囲の材料の誘電率の違いで生じると考えられており, 環境の効果として扱われている. ナノチューブにおいては励起子の形成 (つまり電子-ホール相互作用) に寄与する電気力線がナノチューブの外側を通るため, 励起子の結合エネルギーは周囲の誘電率によって変化する[8,9]. このような環境の効果を利用して, ナノチューブを覆う DNA の構造変化などを発光エネルギーの変化としてセンシングした例などが報告されている[3]. また, 環境を変えることにより発光波長を制御することも可能であり, 物性としての興味のみならず, 応用上も環境の効果の詳細に理解することが重要である.

本稿では, 空中に架橋したナノチューブと界面活性剤(Sodium-dodecyl-sulfate; SDS)で孤立化したナノチューブにおいて PL マップを比較することより, 環境の効果について調べた. 図2は架橋ナノチューブの PL のピーク位置 (●と■) と, SDS 孤立化ナノチューブの結果 (○と□) [10]をプロットしたものである. 各点にカイラリティ ( $n,m$ )を添えた. ここで, 丸と四角は半導体ナノチューブの電子構造的な型の違いを示しており, 丸は  $2n+m$  を 3 で割るとあまりが 1 となるナノチューブ (type-I), 四角はあまりが 2 となるナノチューブ (type-II) を示す. 図中の破線は type-I と type-II の境界を示し, 破線の右下に type-I, 左上に type-II がプロットされる. また, 架橋ナノチューブと SDS 孤立化ナノチューブのピーク位置の違いを矢印で示した.

破線付近の  $n-m$  が小さい (つまりアームチェアに近い) ナノチューブでは, SDS 孤立化ナノチューブに対して, 架橋ナノチューブの  $E_{11}$  と  $E_{22}$  はともに高エネルギー側へシフトしている.  $n-m$  の増加 (つまりカイラル角の減少) に伴い, type-I では  $E_{22}$  が, type-II では  $E_{11}$  が大きくなっている. この結果から, 環境による光学遷移エネルギーの変化はカイラリティによって異なることがわかる. さらに, そのカイラリティによる違いはカイラル角に関係していることが示唆される.

図3は架橋ナノチューブと SDS 孤立化ナノチューブの  $E_{ii}$  の差  $\Delta E_{ii} = E_{ii}^{\text{air}} - E_{ii}^{\text{SDS}}$ , ( $i=1, 2$ )をカイラル角に対してプロットしたものである. ほとんどのナノチューブで  $\Delta E_{11}$ ,  $\Delta E_{22}$  は正であるが, カイラル角の小さい type-II ナノチューブにおいては  $\Delta E_{22}$  は負の値を持つ. また,  $\Delta E_{11}$ ,  $\Delta E_{22}$  のカイラル角に対する依存性は type-I と type-II で異なっており, type-I の場合, カイラル角の増加に伴い  $\Delta E_{11}$  は増加し  $\Delta E_{22}$  は減少しているが, 一方, type-II の場合では, 逆に  $\Delta E_{11}$  は減少し  $\Delta E_{22}$  は増加している. また, カイラル角の大きいナノチューブにおいては type-I と type-II の違いはなくなっている.

ナノチューブの光学遷移エネルギーは、ナノチューブのバンドギャップと励起子の結合エネルギー（負の値をもつ）の和で与えられる。環境の誘電率が小さくなった場合、クーロン相互作用は強められ、励起子の結合エネルギーの絶対値は増加する。このことから推測すると、架橋ナノチューブの遷移エネルギーは SDS 孤立化ナノチューブのそれに比べ小さくなり、 $\Delta E_{ii}$  は負となるが、実験結果は、図 3 で示したように、ほとんどのナノチューブで  $\Delta E_{ii}$  は正の値であった。ここで、ナノチューブのバンドギャップは電子-電子相互作用により摂動を受けるということに注意しなければならない[8]。つまり、環境の誘電率の変化は、励起子の結合エネルギーのみならず、電子-電子相互作用の反発エネルギーにも影響を及ぼすと考えられる。したがって、 $\Delta E_{ii}$  が正であることは環境の誘電率が小さくなったことによる電子-電子反発エネルギーの増加に起因すると理解できる。

環境の変化による遷移エネルギーの変化  $\Delta E_{ii}$  がカイラル角依存性をもつことについて考える。励起子の結合エネルギー  $E_b$  は励起子半径  $r$  と環境の誘電率  $\epsilon$  によって  $E_b = -e^2/(\epsilon r)$  で与えられる。 $e$  は素電荷である。したがって、環境の  $\epsilon$  の変化に伴う  $E_b$  の変化の係数として  $1/r$  が掛かる。ここで、励起子半径  $r$  は有効質量の関数であるが、この有効質量がカイラル角に強く依存する。詳細は文献 11 を参考にさせていただきたいが、グラフィートの運動量空間では、バンド端となる  $K$  点付近で等エネルギー面が三角形に歪んでおり (trigonal warping effect), チューブを形成するとき量子化する方向 (つまりカイラル角) によって、バンド端の曲率つまり有効質量が異なる。電子-電子反発エネルギーについても励起子と同様な記述 (符号は正) が可能と考えられ、 $\Delta E_{ii}$  に有効質量のカイラル角依存性が反映されると考えられる。

#### 4. 時間分解 PL 測定

カーボンナノチューブの光物性に関する最近のホットな話題としては、時間分解計測が挙げられる。以前から、膜状のナノチューブの過渡吸収測定は行われていたものの、ナノチューブ間のキャリア移動が支配的な緩和過程であった。ところが、最近、界面活性剤等でナノチューブを孤立化させることが可能となったことから、ナノチューブ間のキャリア移動が無視できるようになり、ナノチューブ内のキャリア緩和現象を探ることが可能となっている。本章では、著者らが行っている PL の時間分解計測について紹介する[12]。

時間分解 PL の測定には、励起強度相関法[13]を用いている。これは、励起強度に対する発光強度の非線形性を利用したもので、図 4(a)に示すような光学系で測定を行う。パルスレーザの出力を 2 つのビームに分け(50:50)、それぞれチョッパを用いて周波数  $f_1$ ,  $f_2$  で変調し、サンプルに照射する。なお、片方のビームラインには遅延器を入れる。発光の検出は分光器を通して光電子増倍管を用いて行い、ロックインアンプを用いて和周波( $f_1+f_2$ )成分、あるいは差周波( $f_1-f_2$ )成分を検出する。ここで、励起強度と発光強度の関係に非線形性があると、和周波成分および差周波成分が生成され、相関信号として計測される。PL の時間分解測定方法としては、他に、高価なストリークカメラを用いる方法や光学結晶を光ゲートとして用いる和周波発生法などがあるが、ストリークカメラはナノチューブの波長帯に高速・高感度なものがなく、また和周波発生法は高度な実験技術を要する。励起強度相関法においては、時間分解能はレーザのパルス幅で決まるため、フォトダイオードや光電子増倍管などの受光素子を用いているにもかかわらず、高い時間分解能が得られるとともに、分光測定も容易である。

図 4(b)は界面活性剤溶液 (1wt% SDS 水溶液) に分散したナノチューブの時間分解 PL の測定結果である。励起波長、測定波長は、それぞれ 736 nm, 1056 nm であり、(10,2)のカイラリティをもつナノチューブについて測定している。発光の緩和は単一の指数関数で表すことができず、緩和時間は 9.0 ps から 621 ps 程度の成分を含んでいる。なお、両対数プロットを行うと、直線で表されることから、べき乗則で緩和していることがわかる。

このようなべき乗則は、励起子の寿命が励起子密度に依存する場合に観測され、励起子対消滅による緩和[14]、あるいは、相互相関をもつ複数のトラップを介して行われる緩和[15]が過程として考えられる。本測定法の場合、ストリークカメラのように PL の過渡的な減衰を直接捕らえているわけではなく、PL 強度の励起強度に対する非線形性を利用しているため、キャリアの蓄積に関する情報を測定しており、これらの緩和過程が強調されて観測されていると考えられる。

また、他のカイラリティのナノチューブについても調べたところ、同様にべき乗則に従う緩和が見られたが、直径が大きいナノチューブほど緩和時間が長いようである。ナノチューブの直径に従って励起子のサイズが大きくなるため、寿命が長くなると思われる。

## 5. ナノチューブ FET における光電流と PL

PL 分光などの光学的解析手法は、半導体材料の電子状態を調べることのみならず、トランジスタなどの電子デバイスにおいては、散乱や蓄積などのキャリア輸送現象などを調べることに有用である[16]. トランジスタにおけるキャリアの振舞いは、通常、電流—電圧特性から調べられる. しかしながら、電流—電圧特性解析は、いわばブラックボックスの中身を3つの端子から探るような方法であり、必ずしも十分な情報が得られるとはいえない. この3端子に加えて、光を第4のプローブとして用いることにより、トランジスタ内部のキャリアのエネルギー分布や位置分布などを知ることが可能となる.

ナノチューブ FET においては、図5に示すように、電流と光との相互変換が可能である. 例えば、ナノチューブ FET に光を照射すると、ナノチューブが光を吸収し、キャリアが励起される. このキャリアは電流として、電極から取り出すことが可能である(光誘起電流)[17]. なお、光励起されたキャリアの一部は、ナノチューブ内で再結合発光を起こす(PL)[18]. 逆に、電極から電子と正孔を注入することにより、再結合発光を起こすことも可能である(エレクトロルミネッセンス)[19]. これらの分光測定においては、ナノチューブのバンド構造やキャリアのエネルギーに関する情報を得ることが可能であり、例えば、デバイス中で電界により加速されたキャリア(ホットキャリア)のエネルギー分布や[20], それを決める電界分布や散乱現象に関する知見など、豊富な情報が得られる.

まず、ナノチューブ FET で観測された光誘起電流について述べる[17]. 図6(a)は、レーザ光を対物レンズで $\sim 2 \mu\text{m}$ に絞り、SEM像に示すように点Aから点A'までスキャンしたときのドレイン電流の変化である. ここで、ナノチューブ FET にはドレイン電圧を印加し、ゲート電圧をオフ領域にバイアスしている. SEM像で見られるようにナノチューブがソース・ドレイン電極間を接続している位置にレーザを照射した場合に、ドレイン電流が流れた. オフ領域においては、電極からナノチューブへのキャリア注入は少なく、このドレイン電流はナノチューブ内において光励起されたキャリアに起因する光誘起電流と考えられる. このナノチューブ FET で光誘起電流が観測された位置において AFM 観察を行ったところ、直径 $\sim 2 \text{ nm}$ のナノチューブが観察された. したがって、観測された光誘起電流は1本の半導体ナノチューブによると思われる.

る。

話は逸れるが、図 6(a)の SEM 観察は低倍で行われているが、1本の単層ナノチューブを観察していると思われる。経験的に、1) SEM の加速電圧が 0.5~1 kV と低く、2) ナノチューブが厚さ 100 nm 程度の SiO<sub>2</sub> 等の絶縁膜をもつ Si 基板上にあり、3) ナノチューブが電極などのリザーバに接続されているという条件が揃うと、1本の単層ナノチューブであってもこのような SEM 観察が可能である。これは電子線によりナノチューブの周囲の SiO<sub>2</sub> がチャージアップするため、ナノチューブに電子線が集中するためと考えている。基板上に成長したナノチューブの成長具合や位置を確認するのに便利な観察手法である。

また、励起光に波長可変のチタン・サファイアレーザを用いて励起波長を変化させ、光誘起電流の励起スペクトルを調べた。図 6(b)に示すように、励起エネルギーが 1.73 eV のとき、光誘起電流のピークが観測された。このエネルギーは直径~2 nm の半導体ナノチューブの E<sub>33</sub> の吸収に対応すると考えられ、ある程度のカイラリティの推定が可能である。また、E<sub>33</sub> のピークの低エネルギー側にはフォノンを介した吸収によると思われるサイドバンドが観測されている。光誘起電流分光は1本のナノチューブの吸収スペクトルを得ることが可能であるとともに、ナノチューブ FET の特性とカイラリティとの関係を調べる上でも有効な評価手段となり得る。

次に、ナノチューブ FET において PL 測定を行うことでバイアス印加時のキャリアの振舞いを調べた[18]。図 7 は架橋ナノチューブをチャンネルとするナノチューブ FET の(a)模式図と(b)SEM 像である。作製手順としては、まず、反応性イオンエッチングにより Si 基板に溝を形成した後、その両脇に触媒をパターニングし、最後にナノチューブの CVD 成長を行う。このとき、溝を架橋して成長したナノチューブがチャンネルとなる。なお、架橋成長したナノチューブはその後の電極形成プロセスに耐えないため、触媒として用いた金属膜を電極として使用している。この素子構造では、ゲート動作はソース・ドレイン電極付近で行うことが可能である。

PL 測定は対物レンズを用いて、励起レーザを 1 μm 程度に絞って行った。これにより、1本のナノチューブの発光を観測することが可能であるとともに、ある程度の分解能で空間分布を測定できる。図 7(c)は架橋した1本のナノチューブに沿って励起レーザを走査し、PL の空間分布を調べた結果である。ナノチューブの発光は、基板の SiO<sub>2</sub> に接触した部分からは得られず、架橋した部分のみで観測された。現在のところ、



基板との接触によるフォトルミネッセンスの減衰の原因は明らかでないが、基板との界面に非発光の再結合中心が形成されていると推測している。ナノチューブを光電子デバイスに応用する場合、架橋構造などのように周囲との相互作用の少ないデバイス構造を構築することが重要である。また、挿入図に示すように、室温にもかかわらず 12 meV という細い発光線が得られており、ナノチューブが良質な一次元構造を持つことを示唆している。

ゲート電圧による PL スペクトルの変化を調べたところ、発光エネルギーの変化は観測されなかったものの、発光強度が変調された。図 8 はゲート電圧の関数として、発光強度をプロットしたものである。ここではドレインバイアスは印加していない。やや負のゲート電圧において発光強度は最大となった。発光強度は近似的に電子濃度とホール濃度の積に比例する。本デバイス構造においては、キャリア濃度は、光生成と再結合のみならず、電極による注入と引抜きによっても変化する。ゲート電圧に対して非対称な依存性を示すことは、FET が p 型であるため、ホール注入に起因していると考えられる。つまり、負のゲート電圧を印加することによりソース・ドレイン電極からホールが注入され、その結果、発光強度が増加したと考えられる。なお、FET のホール電流は、このゲート電圧付近で流れ始めることから、発光強度の増加はホール注入に起因していると考えられる。さらに負の方向にゲート電圧を印加すると、発光強度は減衰しており、少数キャリアである電子が電極に引抜かれたことを示唆している。同様に、正方向のゲート電圧では、ホールが引抜かれていることにより、発光強度が減衰したと考えられる。

また、真空中において同様の実験を行うと、ゲート電圧が 0 V のときに発光強度が最大となった。このことは、大気中で観測されたような電極からのキャリア注入による発光強度の増大よりも、光励起キャリアが電極に引抜かれることによる発光強度の低下の方が支配的であることを示唆している。これは、電極とナノチューブの接合で形成されているショットキー障壁の変化を考えると説明できる。大気中ではホールに対するショットキー障壁が低く容易にホールが注入されたが、一方、真空中においてはショットキー障壁が高くなりホール注入が抑制されたと考えられる。この状態ではゲート電圧を印加しても、ホール注入による発光強度の増大は起こらず、光励起キャリアの引抜きにより発光強度は低下することが説明できる。なお、真空中においては、FET は両極性伝導を示したことから、ショットキー障壁の変化が示唆される。なお、

ショットキー障壁の変化は，界面付近に吸着している酸素分子の脱離によって，界面ダイポールが変化することに起因していると考えられている．

ドレインバイアスを印加すると，電圧の上昇とともに発光強度は単調に減衰した．これは，図9の挿入図に示すように，光励起された電子とホールが，電界によりそれぞれソースとドレインに引抜かれることに起因すると考えられる．この場合，発光強度は再結合寿命 $\tau_r$ と電極への走行時間 $\tau_t$ との大小関係で決まる．例えば，ドレイン電界が小さく走行時間 $\tau_t$ が長い場合，光励起されたキャリアはナノチューブ内に留まり， $\tau_r$ 程度の時間で再結合発光する．一方，ドレイン電界が大きくなると，キャリア速度 $v$ が上昇し，走行時間 $\tau_t$  ( $\sim l/2v$ ,  $l$ :チャンネル長)は短くなる．その結果，キャリアは再結合する前に電極に引き抜かれ，発光強度は低下する．

このような機構を考えると，ドレイン電界による発光強度の減衰からキャリア速度 $v$ と再結合寿命 $\tau_r$ との関係を求めることが可能である．詳細は割愛するが，結果としては，図9に示すように，キャリア速度と再結合寿命の積 $v\tau_r$ がドレイン電界の関数として求められる．ドレイン電界とともに $v\tau_r$ は増加し，電界が $\sim 4$  kV/cm程度になると， $v\tau_r$ は飽和する傾向を示した．この飽和は，キャリア速度 $v$ の飽和に関係していると考えられる．4章で述べたように，再結合寿命 $\tau_r$ は $\sim 10$  psのオーダーであり，飽和速度は $10^7$  cm/s程度と見積もられる．この飽和速度は光学フォノン散乱を仮定して計算された値[21]と比べ大きな差はない．

## 6. おわりに

本稿では，ナノチューブのPL解析から環境の効果と時間分解測定の結果について述べるとともに，ナノチューブFETの動作解析やキャリア輸送を光誘起電流やPL解析から調べようという試みについて紹介した．ナノチューブの分野において，光学特性に関する研究は，現在，最も進展の速いテーマのひとつであるが，発光の緩和メカニズムやナノチューブごとの特性のばらつきなど，まだ十分に理解されていない部分も多く，物性解析に重点が置かれている．基礎物性も興味深いが，これを如何に利用するかを考えることも重要と思われる．本文中で少し触れたように，環境により発光波長が変化することを利用したセンサーなど，興味深い応用が提案されている．また，5章で示したように，ナノチューブFETを用いれば，1本のナノチューブによって光信号と電気信号の相互変換が可能であることを示しており，ナノチューブFETはナノ

スケールの光・電子融合デバイスとしての可能性をもつことを示唆している。最近、半導体量子構造からの単一光子放出現象が量子通信の分野で注目を集めている。カーボンナノチューブはカイラリティによっては光通信の波長帯(1.3  $\mu\text{m}$  帯や 1.55  $\mu\text{m}$  帯)で発光が可能であるとともに、比較的良質な量子構造を持っており、このような分野への展開も興味深い。ナノチューブの光学的特長を如何に利用するか、今後のアイデアに期待したい。

## 謝辞

本稿で紹介した研究は、村上陽一氏，嶋田行志氏，岩崎慎也氏のご協力を得て行われた。

## 引用文献

- [1] 斎藤理一郎, 篠原久典 : カーボンナノチューブの基礎と応用, 倍風館, 2004.
- [2] M. J. O'Connell, S. M. Bachilo, C. B. Huffman, V. C. Moore, M. S. Strano, E. H. Haroz, K. L. Rialon, P. J. Boul, W. H. Noon, C. Kittrell, J. Ma, R. H. Hauge, R. B. Weisman, and R. E. Smalley, *Science* **297**, 593 (2002).
- [3] D. A. Heller, E. S. Jeng, T.-K. Yeung, B. M. Martinez, A. E. Moll, J. B. Gastala, M. S. Strano, *Science* **311**, 508 (2006).
- [4] J. Lefebvre, Y. Homma, and P. Finnie, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 217401 (2003).
- [5] Y. Ohno, S. Iwasaki, M. Murakami, S. Kishimoto, S. Maruyama, and T. Mizutani, *Phys. Rev. B* (submitted)
- [6] D. A. Tsyboulski, S. M. Bachilo, and R. B. Weisman, *Nano Lett.* **5**, 975 (2005).
- [7] J. Lefebvre, J. M. Fraser, Y. Homma, and P. Finnie, *Appl. Phys. A* **78**, 1107 (2004).
- [8] T. Ando, *J. Phys. Soc. Japan* **74**, 777 (2005).
- [9] V. Perebeinos, J. Tersoff, and Ph. Avouris, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 257402 (2004).
- [10] R. B. Weisman and S. M. Bachilo, *Nano Lett.* **3**, 1235 (2003).
- [11] A. Jorio, C. Fantini, M. A. Pimenta, R. B. Capaz, J. Jian, N. Koabayashi, A. Grüneis, and R. Saito, *Phys. Rev. B* **71**, 075401 (2005).
- [12] Y. Ohno, T. Shimada, S. Kishimoto, S. Maruyama, and T. Mizutani, *J. Phys.: Conference Series* (2006). (accepted for publication)
- [13] M. B. Johnson and T. C. McGill, *J. Appl. Phys.* **63**, 2077 (1988).
- [14] Y. Z. Ma, L. Valkunas, S. L. Dexheimer, S. M. Bachilo, and G. R. Fleming, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 157402 (2005).
- [15] A. K. Jonscher and A. de Polignac, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **17**, 6493 (1984).
- [16] Y. Ohno, K. Asaoka, S. Kishimoto, K. Maezawa, and T. Mizutani, *J. Appl. Phys.* **87**, 4332 (2000).
- [17] Y. Ohno, S. Kishimoto, T. Mizutani, T. Okazaki, and H. Shinohara, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1368 (2004).
- [18] Y. Ohno, S. Kishimoto, and T. Mizutani, *Nanotechnology* **17**, 549 (2006).
- [19] J. A. Misewich, R. Martel, Ph. Avouris, J. C. Tsang, S. Heinze, and J. Tersoff, *Science* **300**, 783 (2003).
- [20] M. Freitag, V. Perebeinos, J. Chen, A. Stein, J. C. Tsang, J. A. Misewich, R. Martel, and Ph. Avouris, *Nano Lett.* **4**, 1063 (2004).
- [21] V. Perebeinos, J. Tersoff, and Ph. Avouris, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 086802 (2005).

## 図表説明

図 1 (a) カーボンナノチューブの状態密度と光学遷移の模式図. (b) 架橋ナノチューブの SEM 像と(b)その PL マップの測定結果.

図 2 架橋ナノチューブと SDS 孤立化ナノチューブの PL マップの比較.

図 3  $\Delta E_{ii}$  のカイラル角依存性.

図 4 (a) 時間分解 PL の測定系. (b) PL 相関信号の時間変化. 挿入図はその両対数プロット.

図 5 ナノチューブ FET における光—電気相互変換.

図 6 (a)光誘起電流の空間分布. (b) 1 本のナノチューブによる光誘起電流スペクトル

図 7 架橋ナノチューブをチャンネルとするナノチューブ FET の(a)模式図と(b) SEM 像.

(c) 1 本の架橋ナノチューブにおける発光分布.

図 8 発光強度のゲート電圧依存性.

図 9 ドレイン電界に対するキャリア速度と再結合寿命の積  $v\tau_r$  の変化. 挿入図はドレイン電界下における光励起キャリアの振舞いを示す.

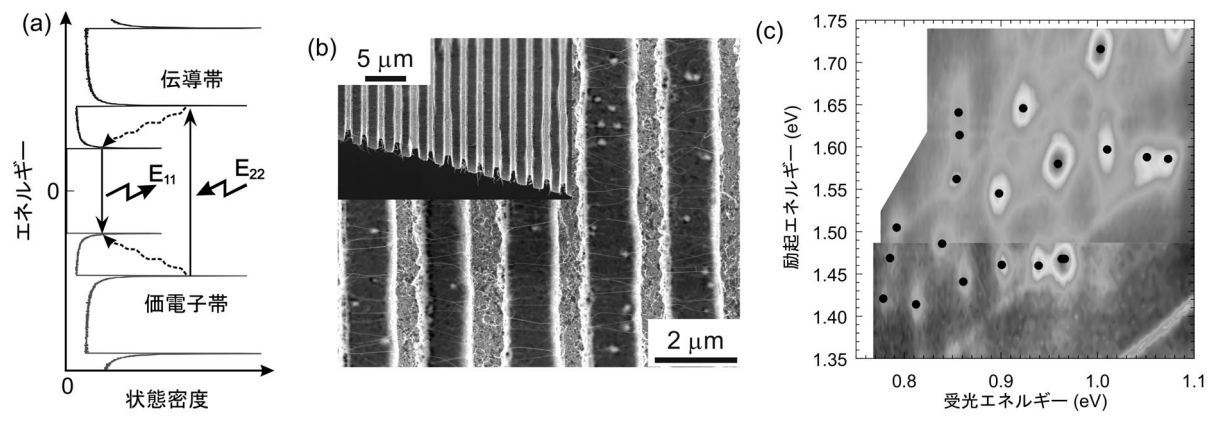


図 1

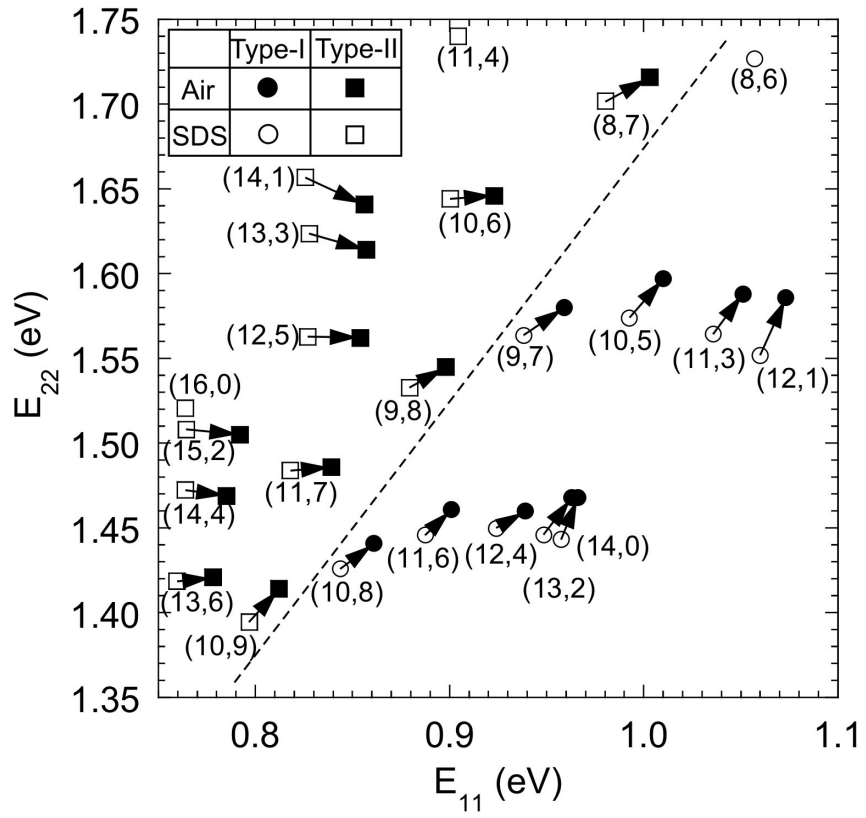


图 2

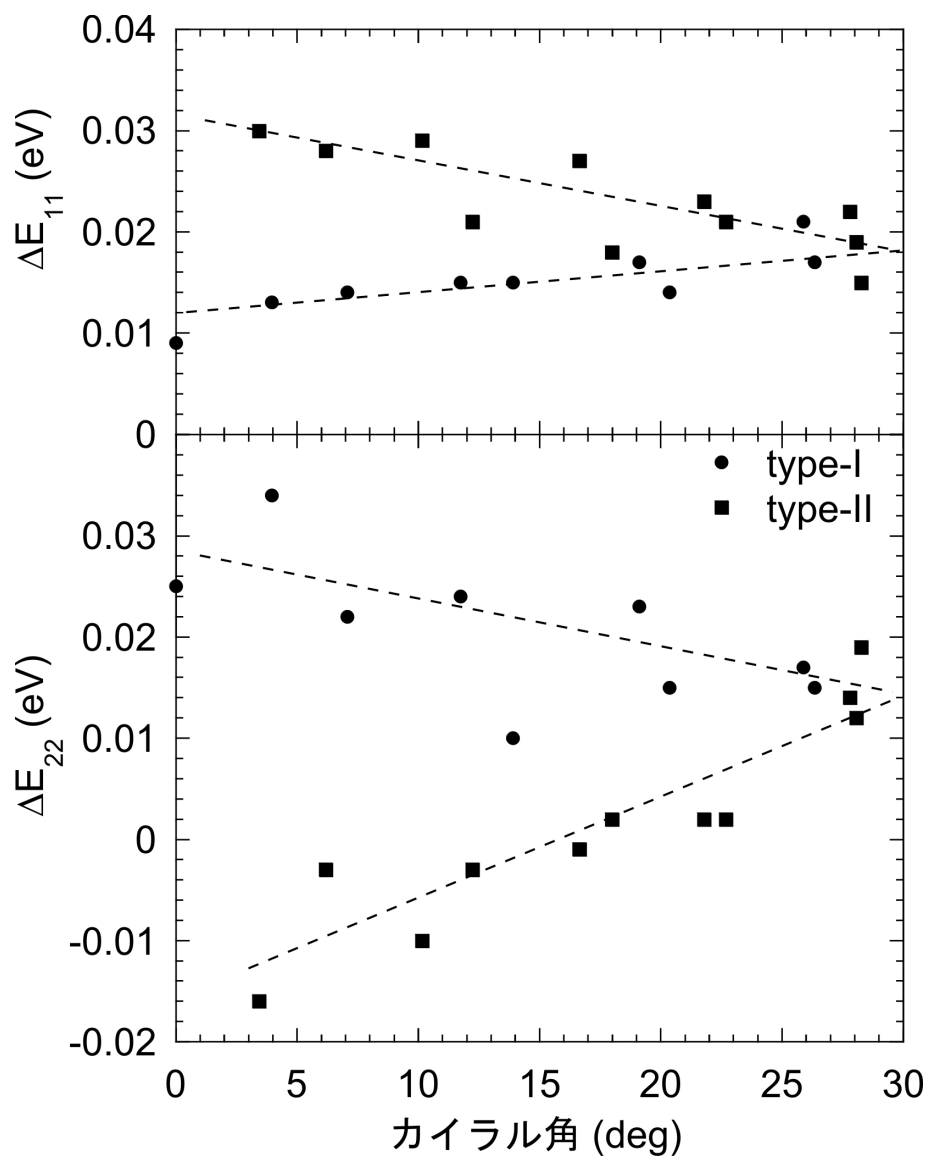


図 3



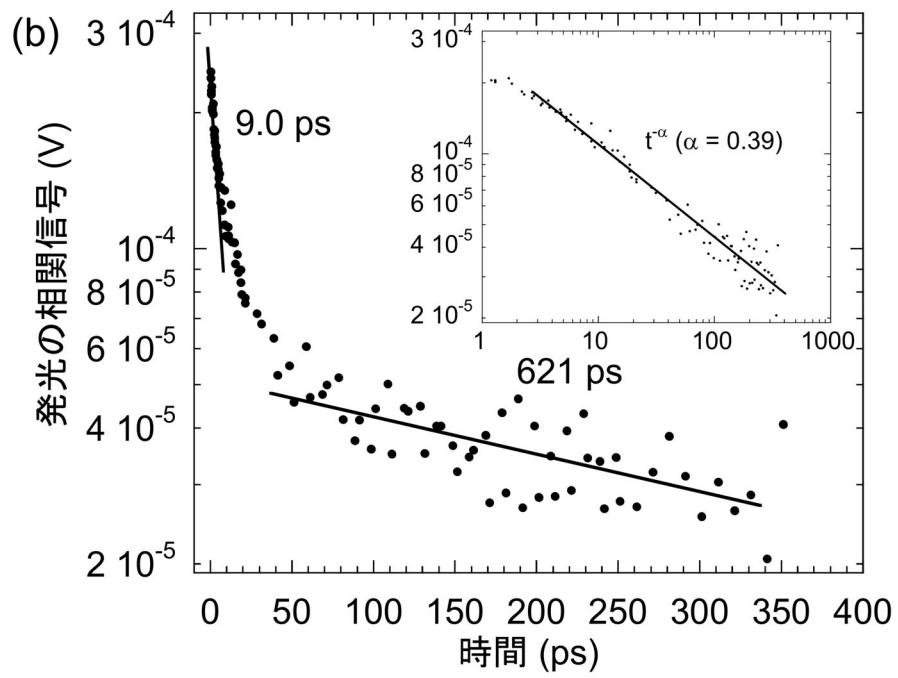
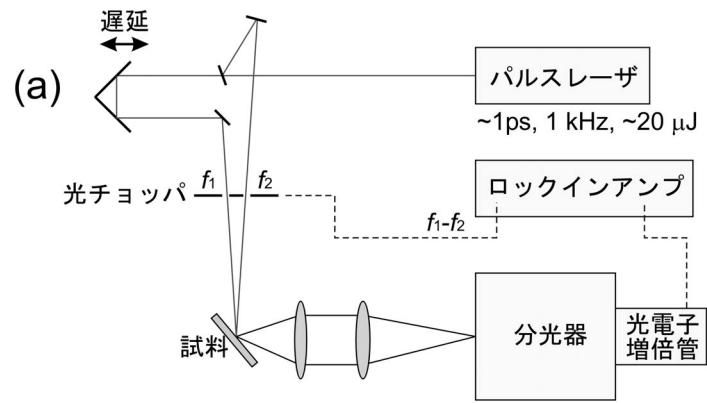


図 4

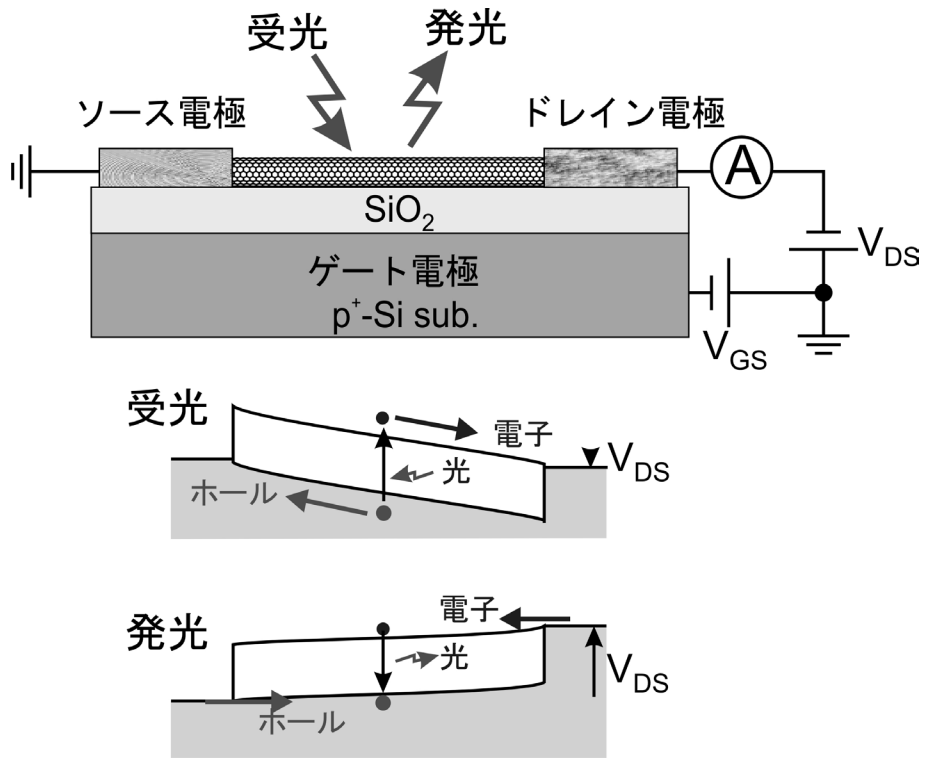


図 5

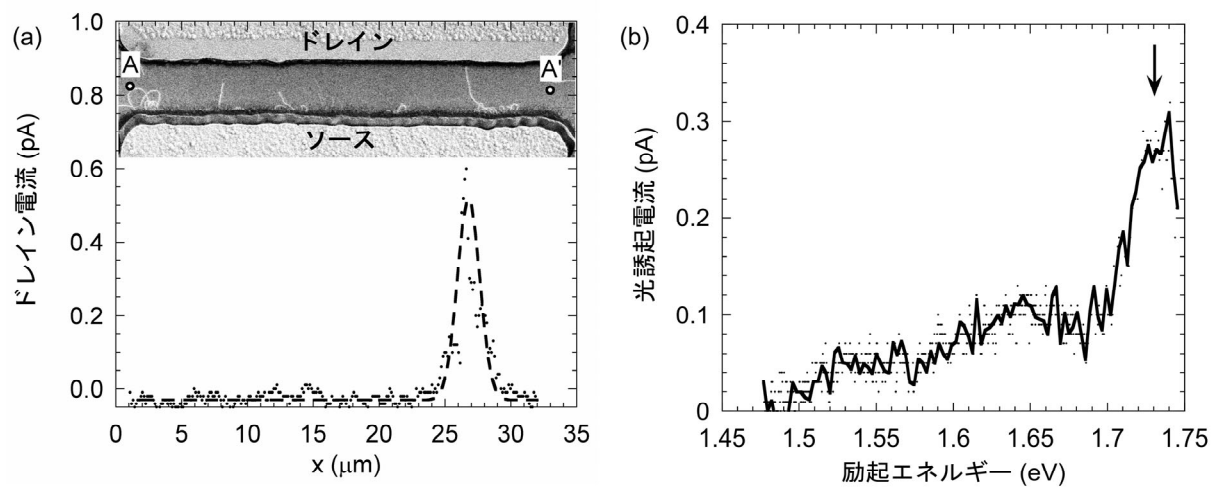


図 6

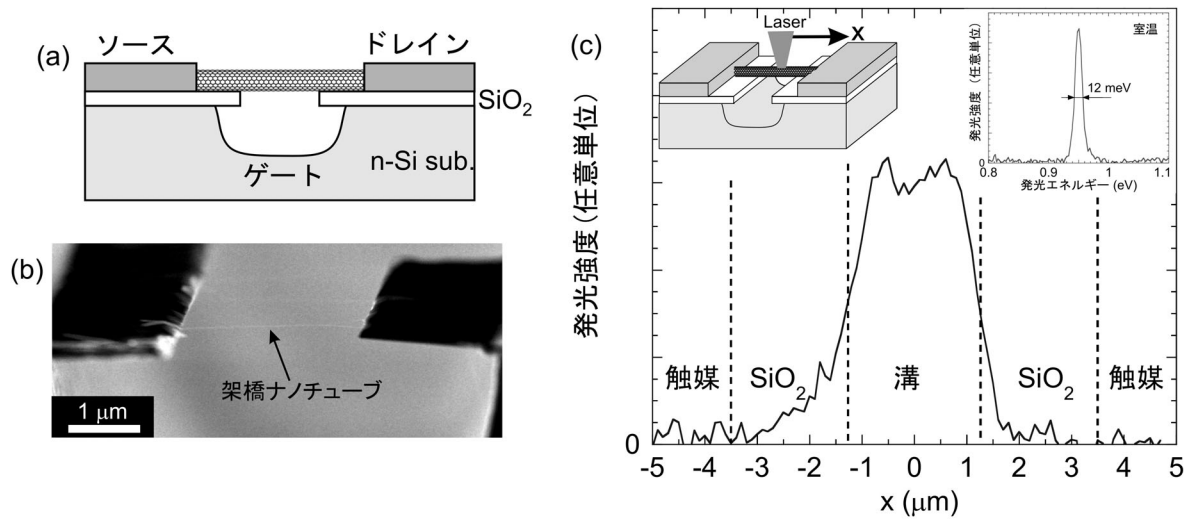


図 7

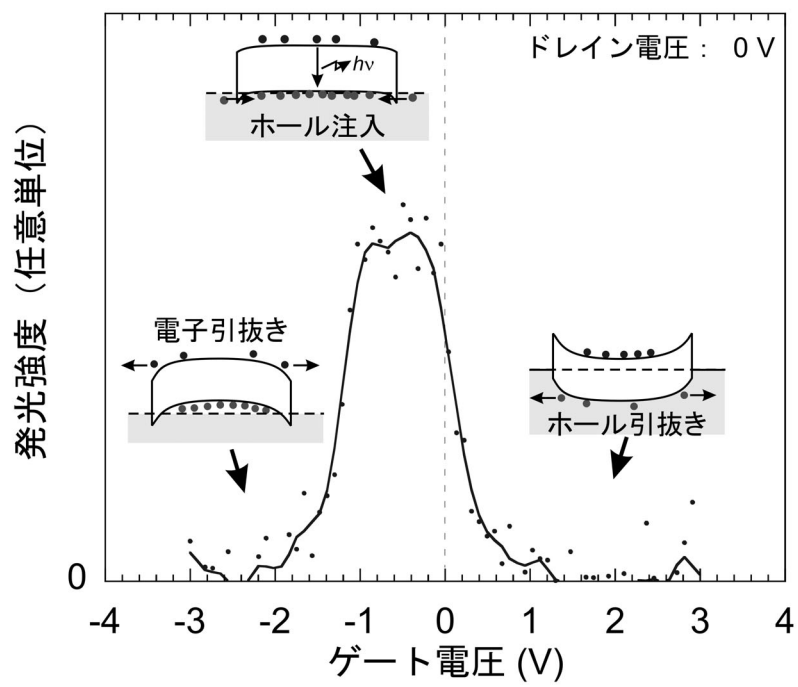


図 8

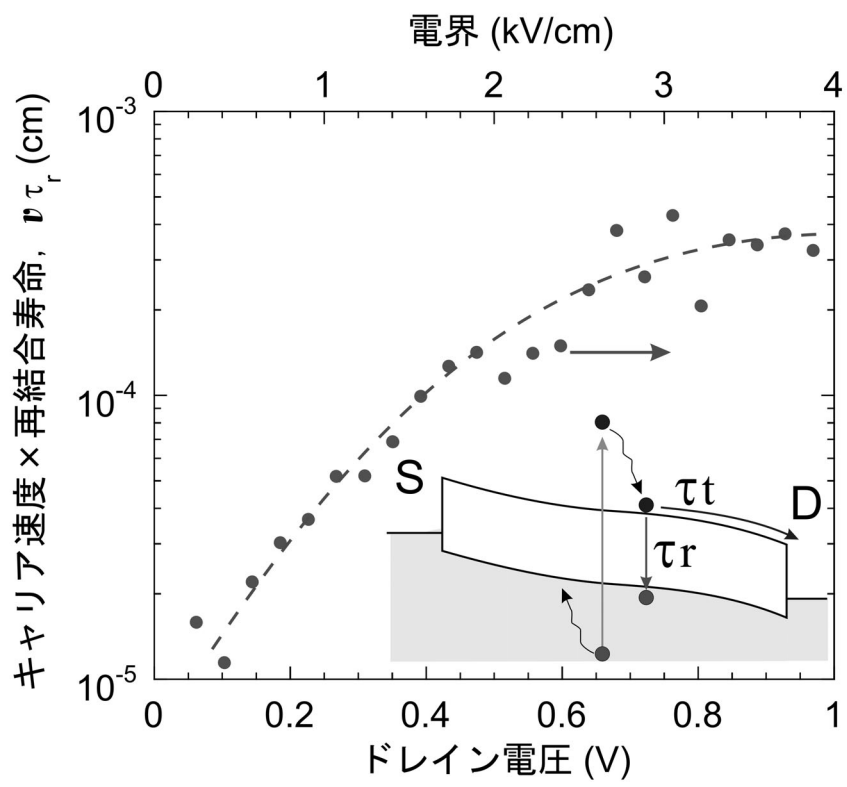


図 9