

단일벽탄소나노튜브에서의 3차조화파 발생

Observation of Third-Harmonic Generation from Single-Walled Carbon Natotubes

변지수, 최수봉*, 정문석, 차옥환, 김종수, 고도경, 이종민, 안계혁**, 이영희**
 광주과학기술원 고등광기술연구소, *광주과학기술원 고등광기술연구소/서울대학교 물리학과,
 **성균관대학교 물리학과
 byeon@apri.gist.ac.kr

탄소나노튜브(CNT)는 1991년 Iijima에 의해 발견된⁽¹⁾ 미래 나노소자의 중심적인 역할을 할 매우 중요한 구조로 활발한 연구들이 이루어져 왔다. CNT는 화학적으로 견고한 구조이며 다양한 에너지 영역에서 상대적으로 강한 전기적 혹은 광학적 반응을 보이는 매우 특이한 첨단 소재로서 디스플레이, FET 트랜지스터, 센서, 이차전지 및 수소저장장치 등 여러 가지 새로운 초소형 나노응용소자 개발의 핵심 주제가 되고 있다⁽²⁾. 특히, 수 나노 미터 직경 크기의 단층벽 탄소나노튜브(SWCNT)는 유기화합물 이면서도 메탈이나 반도체의 특성을 가지고 있어 기능성 전자소자로서의 가능성도 널리 연구되고 있다. 또한, 디스플레이, 광통신 및 새로운 기능성 초고속 광 소자분야에서도 매우 중요한 미래소재로 인정받고 있으나, 다양한 크기와 구조 및 합성에 이용된 촉매 금속에 따른 광학적 특성 변화에 관해서는 실험적인 결과들이 많이 알려져 있지 않다. SWCNT의 비선형 광학적 특성 분석은 SWCNT를 이용한 기능성소자 개발에 필요한 이론적 모델수립과 이를 바탕으로 한 에너지구조 탐사에 필요한 여러 가지 실험적 검증을 제공하며, 비선형 광 기능성 나노소재 개발을 위한 직접적인 광 반응 및 광 특성 연구에 중요한 부분이다. 본 연구에서는 근적외선 영역의 순간세기가 높은 펄스 레이저광원을 조사하여 SWCNT에서 가시광 영역의 3차조화파(THG)가 발생함을 관측함으로써 CNT의 비선형 광학적 특성을 조사하였다.

90년대 초반부터 시작된 CNT에 대한 연구는 대부분 CNT 합성방법과 전자적인 특성분석이 그 주를 이루어 왔으나, 최근에는 광학적인 특성분석과 기능성에 관한 관심도 점점 높아져가고 있다. THG 발생을 위한 기존의 실험에서는 투명한 사파이어나 quartz 혹은 glass 기판 위에 CNT의 박막을 입히고 레이저 광을 조사시키는데, CNT 층의 두께가 얇아서 비선형 현상을 관측할 만큼 세기가 높은 광원이 조사될 경우에는 시료가 손상을 입거나 CNT에서의 THG를 기판에서 발생하는 보다 강한 THG과 구분하기가 불가능하다. 또한, 기존 CNT에서의 THG 실험들은 THG 광 신호의 세기가 약해 복잡하게 구성된 Gated Lock-in Amplifier Technique을 이용하여야만 THG를 검출해낼 수 있었다.⁽³⁻⁵⁾ 이러한 기존의 연구들은 SWCNT의 이론적 모델을 이용하였으나, 실질적인 실험들은 대부분 다층벽 탄소나노튜브(MWCNT)에서 이루어졌다.

본 연구에서는 우선 기판을 사용하지 않는 수 mm 두께의 bulk SWCNT층을 제작하여 이용함으로써 기판에 의한 현상을 완벽하게 배제 하여, SWCNT에서 발생하는 THG만을 측정할 수 있었다. 실험에 사용된 높은 순도의 SWCNT에서는 Gated Lock-in Amplifier를 이용하지 않는 상대적으로 매우 간단한 실험장치를 이용하였어도 강한 THG의 발생을 관측할 수 있었다.(그림 1) 조사되는 레이저 광의

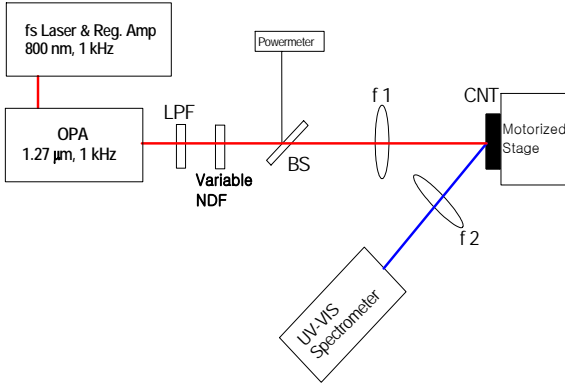


그림 1. SWCNT에서의 THG 측정 장치.

광의 발생과 THG의 발생은 CNT 구조적으로 서로 독립된 mechanism이라는 추측을 뒷받침한다. 조사광의 세기가 높아지면 THG의 세기가 세제곱 비례식을 만족하였다 ($I_{THG} \propto I^3$, 실험결과는 2.96. 그림3). 그러나, 조사광의 세기가 높아지면 세제곱 비례식을 따르지 않음이 관측되는데, 이는 강한 세기의 조사광에 의한 ablation과 고차비선형 현상에 의한 것이라 추측된다. 3차조화파에 의한 탄소나노튜브의 비선형 광학적 특성은 단일벽 탄소나노튜브의 에너지구조 및 빛과의 상호작용 mechanism 연구에 매우 유익한 정보를 제공하며, 광센서나 광검출기 등의 다양한 기능성 광소자 개발 등에도 이용될 수 있으리라 기대한다.

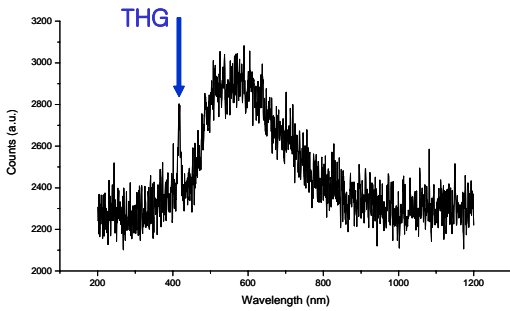


그림 2 SWCNT에서의 THG과 백색광 발생

세기가 낮을 경우 넓은 영역대의 백색광이 THG과 함께 발생하였고, (그림 2) 이러한 CNT에서의 백색광의 발생은 기존의 MWCNT를 사용한 실험에서도 보고되어진 바가 있으나 아직까지 그 원인이 자세히 규명되지는 않았다.⁽⁴⁾ 일정한 세기의 조사광에서는 조사시간이 길어지면 발생하는 백색광이 점차적으로 감소되며, 발생하는 백색광은 조사광의 세기가 높아지면 감소되는 조사시간이 빨라지고 세기가 더욱 높아지면 THG만이 관측되기도 한다. 백색광의 발생이 감소하는 동안 THG의 세기는 비교적 변하지 않고 지속적으로 동일한 양이 발생되었다. 이러한 관측결과는 백색

광의 발생과 THG의 발생은 CNT 구조적으로 서로 독립된 mechanism이라는 추측을 뒷받침한다. 조사광의 세기가 높아지면 THG의 세기가 세제곱 비례식을 만족하였다 ($I_{THG} \propto I^3$, 실험결과는 2.96. 그림3). 그러나, 조사광의 세기가 높아지면 세제곱 비례식을 따르지 않음이 관측되는데, 이는 강한 세기의 조사광에 의한 ablation과 고차비선형 현상에 의한 것이라 추측된다. 3차조화파에 의한 탄소나노튜브의 비선형 광학적 특성은 단일벽 탄소나노튜브의 에너지구조 및 빛과의 상호작용 mechanism 연구에 매우 유익한 정보를 제공하며, 광센서나 광검출기 등의 다양한 기능성 광소자 개발 등에도 이용될 수 있으리라 기대한다.

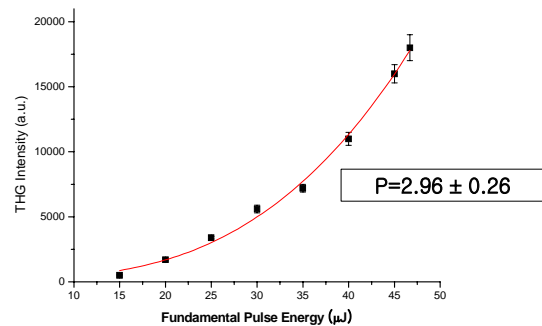


그림 3 조사광 세기에 따른 THG. 조사광 세기의 세제곱에 비례한다.

1. S. Iijima, Nature 354, 56-58 (1991).
2. 이 영희, 새물리 51, 84-144 (2005).
3. L. De Dominicis, S. Botti, L. S. Asilyan, R. Ciardi, R. Fantoni, M. L. Terranova, A. Fiori, S. Orlanducci, and R. Appolloni, Appl. Phys. Lett. 85, 1418-1420 (2004).
4. C. Stanciu, R. Ehlich, G. Ya. Slepian, A. A. Khritchinski, S. A. Maksimenko, F. Rotermund, V. Petrov, O. Steinkellner, F. Rohmund, E. E. B. Campbell, J. Herrmann, and I. V. Hertel, Proc. SPIE 5352, 116-125 (2004).
5. S. O. Konorov, D. A. Akimov, A. A. Ivanov, M. V. Alifimov, S. Botti, R. Ciardi, L. De Dominicis, L. S. Asilyan, A. A. Podshivalov, D. A. Sidorov-Biryukov, R. Fantoni, and A. M. Zheltikov, J. Raman Spectrosc. 34, 1018-1024 (2003).