



グラフェン試料の作成は SiC(0001)基板の Ar 雰囲気下中で高温アニールを基本とし、最表面である Si 層を昇華させることで基板表面にグラフェンをエピキシャル成長させた。時間分解測定の前に試料表面の He 放電管を用いた角度分解光電子分光実験を行い、良質かつ均一な単層グラフェンが生成されていることを確認した。また、本実験のグラフェンサンプルでは基板から電子ドーピングがあり、グラフェンのディラック点は結合エネルギー390 meV に位置することを本測定で確認している。

時間分解光電子分光実験の結果を図 1 (b)に示す。ポンプレーザー照射直後 ( $\Delta t = 100$  fs) では、バンドの先端がフェルミ準位を横切った先に大きく伸びていることがわかる。これはポンプ光によってエネルギーの高い準位に励起されたキャリアが散乱緩和によりフェルミ準位の直上まで緩和していることを反映している。このようなフェムト秒の時間スケールで発生する散乱は、キャリア同士の衝突を介してエネルギーや運動量のやり取りを行うキャリア-キャリア散乱である。そして、今回のようにキャリア-キャリア散乱が支配的な緩和機構である場合、キャリアマルチプリケーションの発生が指摘されている[4]。キャリアマルチプリケーションとは、光励起されたキャリアがキャリア同士の散乱を通じて価電子を次々に伝導帯に励起する、光誘起キャリアの増幅現象である。特にグラフェンはディラックコーンと呼ばれる線形でギャップレスなバンド構造を持つことから、エネルギーと運動量の保存則に起因するキャリア-キャリア散乱の抑制因子がなく、キャリアマルチプリケーションの高効率化が期待できる。キャリアマルチプリケーションの過程を簡易的に表した模式図を図 2 (a)に示す。図 2 (a)に示した通り、終状態では伝導帯を占有するキャリアの数が増えていることがわかる。このように、キャリアマルチプリケーションは、少量の光であっても大量の電流に変換することができるため、太陽電池素材や超高感度光センサー等への商業応用が期待されている。

図 2 (b)は光電子スペクトルの時間発展を示している。ポンプ光照射前 ( $\Delta t = -850$  fs) に比べ、ポンプ光照射直後 ( $\Delta t = 100$  fs) には伝導帯の光電子強度が増加している様子が明確に確認された。その後 ( $\Delta t = 430$  fs, 1.5 ps) は、伝導帯の光電子強度が減少していく様子が観測され、この一連の過渡過程は緩和時間 400 fs の超高速緩和過程であることがわかった。また、フェルミ準位近傍のスペクトル形状はフェルミ分布関数  $f_{FD}(T, E, \mu)$  が支配しており、このフェルミ分布関数をフィッティングすることにより、レーザー照射直後には電子温度が 900 K まで上昇していることがわかった。これはレーザー照射によるエネルギー付与から期待される電子温度上昇値よりも遥かに高い温度である。これはキャリアマルチプリケーションにより、フェルミ準位直上に多数のキャリアが励起されたことにより電子温度がこのように高く観測されたと考えられる。これはキャリアマルチプリケーションがグラフェン内で起きていることを示している。

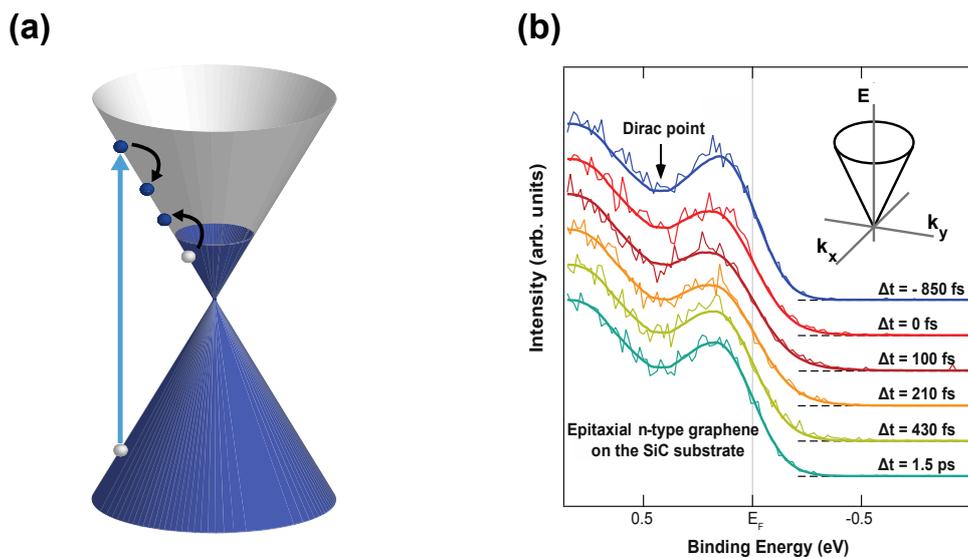


図 2. (a) キャリア-キャリア散乱によるキャリアマルチプリケーションの概念図。(b) 各遅延時間における光電子強度スペクトル。ポンプレーザー照射直後に見られる伝導帯バンド ( $E > E_F$ ) の光電子強度の増加がキャリアマルチプリケーションに対応している。

## 今後の展望

本研究により、フェムト秒の時間スケールで起こる超高速電子ダイナミクスをバンド構造上の変化として直接観察することに成功した。本研究では電子ドーピングの単層グラフェンを用いたが、グラフェンはドーピングの極性や層数を制御することでその特性を著しく変化させることができる。例えば高速 FET に適した C 面 SiC 基板上の二層グラフェンや、超短パルス THz レーザーに適したホールドーピング単層グラフェンなどの超高速ダイナミクスの知見を得ることは、応用開発の観点からも必須である。これらのグラフェンデバイスの早期開発を促すために、今後も本研究の知見を生かした後続研究に取り組みたいと考えている。

## 謝辞

本研究成果は、吹留博一准教授(東北大学)、板谷治郎准教授、小森文夫教授、辛埴教授の先生方及び各研究室メンバーとの共同研究によるものです。特に石田行章助教(東京大学)には実験や解析手法につきまして多大なるサポートを頂きました。本研究は文科省及び JST の「光・量子融合連携研究開発プログラム」及び「ACT-C プログラム」にて実施されました。

## 参考文献

- [1] K. J. Tielrooj *et al.*, Nat. Phys. **9**, 248 (2013).
- [2] V. Ryzhii, M. Ryzhii, A. Satou, T. Otsuji, A. A. Dubinov and V. Ya. Aleshkin, J. Appl. Phys. **106**, 084507 (2009).
- [3] T. Someya *et al.*, Appl. Phys. Lett. **104**, 161103 (2014).
- [4] T. Winzer, A. Knorr, and E. Malic, Nano Lett. **10**, 4839 (2010).