日韓共同研究でグラフェン準結晶状態の超高速変化を直接観測

―次世代光デバイス制御に新たな自由度―

附属極限コヒーレント光科学センター 鈴木 剛、小森 文夫、松田 巌

1. はじめに

炭素原子一層のシートからなるグラフェンは、その優れた強度・伝導性・伝熱性から、次世代のデバイス素子を担う SUPER MATERIAL として注目されている。そして、層数を増やすことにより、バンド分散を線形(ディラックバンド)から質量とギャップを持つ形状にできることが示され、金属のみならず半導体としての利用も可能になってきた。さらにごく最近、二層グラフェンの「ねじれ角」が新たな自由度としてみいだされ、約 1.1° のねじれ角にすることで、モット絶縁体や超伝導など新奇な物性が現れることから大きな注目を集めている[1][2]。他方、ねじれ角を30°にすることで、並進対称性を伴わない準結晶構造が生まれることが発見され、準結晶としての特異な物性を調べる舞台としても注目されている[3][4]。

準結晶状態ねじれ二層グラフェンの特徴として、上層と下層の元々のディラックバンドに加えて、上層と下層の層間相互作用を介して、ウムクラップ散乱の条件を満たすように、レプリカディラックバンドが現れることが報告されている[3][4]。図 1 に通常の二層グラフェン(a,c)と準結

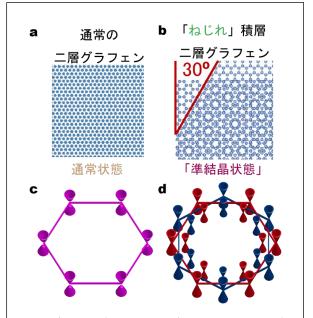


図1 通常の二層グラフェンと準結晶 30° ねじれ二層グラフェンの結晶構造(**a,b**)とバンド構造(**c,d**)。**d**. 内側の小さいディラックバンドがレプリカディラックバンドに相当する。

晶ねじれ二層グラフェン(b,d)の結晶構造とバンド構造の 模式図を示す。

2. 実験結果と議論

このような背景の中、我々は、準結晶ねじれ二層グラ フェン結晶における光励起後の過渡的な電子状態変化を直 接調べるために、高次高調波レーザーを用いて時間分解光 電子分光測定を行った[5]。図 2a,b に上層、下層ディラッ クバンドの平衡状態における角度分解光電子スペクトルを 示し、図 2c.d にそれらの時間変化を示す。光励起直後に、 電子が高いエネルギーまで励起され、その後、元の状態に 素早く緩和していく様子が見て取れる。これをより詳しく みるために、角度方向に積分した光電子密度分布をフェル ミディラック分布関数でフィッティングすることにより、 過渡的な電子温度と化学ポテンシャルを求めた(図 2e,f)。 参照として、通常のねじれていない二層グラフェンの結果 も示す。温度に注目すると、上層と下層でほとんど変わら ない振る舞いが現れ、これは、励起後の緩和ダイナミクス に共通の熱浴(フォノン散乱)が寄与していることを示唆し ている。次に、化学ポテンシャルに注目すると、通常の二 層グラフェンではほとんど変化しないのに対し、準結晶ね じれ二層グラフェンでは、上層と下層で対照的な振る舞い が現れた。つまり、上層では化学ポテンシャルが減少する が、下層では増加する。このことは、1 ps 以下の超高速な 時間領域では、電子分布が上層と下層で不均衡となること を意味している。

この観測された上層と下層における電子分布の不均衡を説明するために、それぞれの電子数の時間変化をレート方程式により表し、実験結果を再現するパラメータを求めた。図 3a に上層(UL)・下層(LL)・バッファー層(Buffer)の模式図と、電子が流出入する様子を表した。上層と下層間、下層とバッファー層間の流出入項をパラメータ γ_1 , γ_2 で示し、光励起に伴うバッファー層から上層と下層への流入項をパラメータ G_1 , G_2 で示した。図 3b に、実験的に求めた電子数密度の時間変化をマーカーで示し、レート方程式の計算結果を実線で示す。再現されたパラメータは、 $\gamma_1=1.5~{\rm ps}^{-1}$, $\gamma_2=0.5~{\rm ps}^{-1}$, $G_1=5\times10^{13}~{\rm cm}^{-2}~{\rm ps}^{-1}$, $G_2=8\times10^{13}~{\rm cm}^{-2}~{\rm ps}^{-1}$ であり、その大きさを図 3a に矢印の太さ

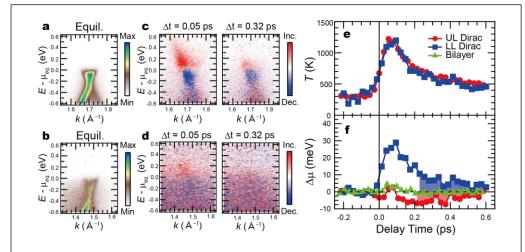


図 2 a-d.上層と下層ディラックバンドの平衡状態における角度分解光電子スペクトル(a,b)と時間変化 (c,d)。e,f. 上層(UL Dirac)と下層ディラックバンド(LL Dirac)の温度と化学ポテンシャルの時間変化。参照として通常の二層グラフェン(Bilayer)の結果も示す。

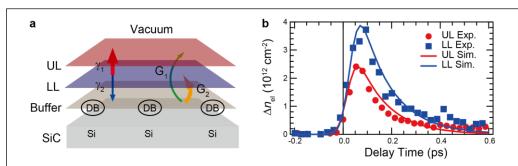


図 3a. 上層・下層・バッファー層の模式図と電子の流出入する様子。b. 上層と下層ディラックバンドにおける電子数の時間変化(マーカー)と計算結果(実線)。

として表した。得られた結果から、励起に伴うバッファー層からの電子数流入の際に、上層と下層で顕著な違い $(G_2 > G_1)$ があることから、電子分布の不均衡が過渡的に生じることが明らかになった。

3. まとめと将来展望

本研究により、準結晶ねじれ二層グラフェン結晶において、1 ps 以下の超高速な時間領域で上層と下層で電子数が不均衡になることが明らかになった。光デバイスの観点から着目すると、わずか 3.4 Å の層間に 30 mV の電圧がかかっていることに相当し、これは過渡的ながら巨大な電場印加に相当する。今後、本研究によりもたらされた知見をもとに、次世代の光デバイスへの利用や新たな原子シートの探索につながることが期待される。

謝辞

本研究は、東京大学物性研究所(趙宇豪、渡邉真莉、徐佳 笛、藤澤正美、金井輝人、石井順久、板谷治郎、岡﨑浩三、 辛埴 各氏)、東北大学(諏訪健斗、吹留博一 各氏)、九州大学(田中悟氏)、及びシュンキュンカン大学(Sung Joon Ahn, Joung Real Ahn 各氏)の共同研究により行われた。また、文部科学省科学研究費補助金 新学術領域(研究領域提案型)「量子液晶の物性科学」(JP19H05826)、JSPS 科研費(16H06361, 18H03874, 18K19011, 18K13498, 18H01146, 19H00659, 19H01818, 19H00651)、文部科学省「光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP)」(JPMXS0118068681)の助成のもとに行われました。ここに感謝申し上げます。

参考文献

- [1] Y. Cao, et al., Nature **556**, 43 (2018).
- [2] Y. Cao, et al., Nature 556, 80 (2018).
- [3] S. J. Ahn, et al., Science 361, 782 (2018).
- [4] W. Yao, et al., Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 115, 6928 (2018).
- [5] T. Suzuki, et al., ACS Nano 13, 11981-11987 (2019).