

グラフェンとトポロジカル絶縁体におけるキャリアダイナミクスの 超高速赤外発光分光による研究

物質系専攻 47-146034 前澤 俊哉

指導教員：末元 徹（教授）

キーワード：グラフェン、トポロジカル絶縁体、キャリアダイナミクス、時間分解発光分光

【序論】

近年、ディラックコーンと呼ばれるバンド構造を持つ物質の研究が盛んに行われている。ディラックコーンは、線形な分散関係を持つ円錐状の二つのバンドが互いの頂点で接したギャップレスなバンドである。ディラックコーンを持つ物質の代表として、グラフェンと三次元トポロジカル絶縁体がある[1, 2]。グラフェンは、炭素原子が六角格子状に並んだ膜状の物質である。グラフェンにおけるフェルミ準位付近のバンドは、図 1(a)に示すように、ディラックコーンとして近似される。また、三次元トポロジカル絶縁体は、バルクが絶縁体状態をとる一方で、表面はバルク電子波動関数の非自明なトポロジーに基づく金属状態をとる物質である。三次元トポロジカル絶縁体の表面状態は、図 1(b)に示すように、バルク伝導バンドとバルク価電子バンド間に位置する、スピン偏極したディラックコーンとして近似される。ディラックコーンでは、キャリアが高い移動度を持つ上、赤外領域やテラヘルツ領域での光学遷移が生じる。これらの特性を活かし、グラフェンと三次元トポロジカル絶縁体のエレクトロニクスデバイスやオプトエレクトロニクスデバイスへの応用が期待される。

デバイスへの応用に向けて、グラフェンとトポロジカル絶縁体におけるキャリアダイナミクスの研究が、過渡反射分光や過渡吸収分光、時間分解角度分解光電子分光といったフェムト秒パルスレーザーを用いた時間分解分光により行われている[3, 4]。一方、時間分解発光分光は、原理上バンド端から励起パルス光の光子エネルギーにわたる幅広いエネルギー領域でキャリアの過渡的な分布を観測できる上、大気雰囲気下でも測定を行える。本研究では、グラフェンと三次元トポロジカル絶縁体において時間分解発光測定を行うことで、幅広いエネルギー領域でキャリアの過渡的な分布を観測した。

【実験方法】

グラフェンの試料として、SiC 基板上的単層グラフェン (MLG, $E_F = 0.38$ eV) と擬孤立単層グラフェン (QFMLG, $E_F = -0.27$ eV) に加え、グラファイト ($E_F = 0$ eV) を用いた[5]。さらに、グラフェンの試料として、リン酸緩衝溶液と KCl 溶液からなる電解質溶液をゲートとした、無水石英基板上的二層グラフェンからなるグラフェン電界効果トランジスタ (G-SGFET, $E_F = -0.28$ eV ~ 0 eV) を用いた[6]。また、三次元トポロジカル絶縁体の試料として、キャリアチューニングされた $TlBiSe_2$ ($E_F \sim 0$ eV) を用いた[7]。 $TlBiSe_2$ におけるバルクバンドギャップエネルギーは 0.35 eV である。

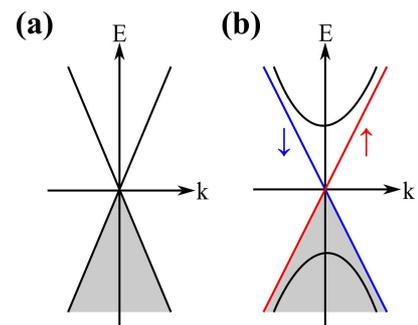


図 1 (a)グラフェンにおけるバンド構造。(b)三次元トポロジカル絶縁体におけるバンド構造。

各試料において、アップコンバージョン法による時間分解発光測定を行った[8]。アップコンバージョン法では、発光とゲートパルス光を非線形結晶上の同一箇所集光し、非線形光学効果により生じた和周波光を測定する。時間分解能がゲートパルス光の時間幅程度になるため、時間分解分光による測定手法のうち最も高い時間分解能を達成できる。また、赤外領域での発光を可視領域での和周波光に変換して測定できるため、赤外領域での発光に対して高い分光感度を持つ。光源として、繰り返し周波数 200 kHz、時間幅 70 fs、中心波長 800 nm のパルス光を出力するフェムト秒チタンサファイアレーザーシステムを用いた。測定は室温下かつ大気雰囲気下で行われた。測定装置の時間分解能は 200 fs 程度である。

【実験結果と考察】

グラフェン MLG、QFMLG、グラファイトにおけるフォトンエネルギー 0.6 eV での発光波形を図 2 に示す。MLG、QFMLG、グラファイトのうち、MLG における発光波形の減衰時間が最も短く、グラファイトにおける発光波形の減衰時間が最も長い。したがって、グラフェンにおいて、フェルミ準位がディラック点から遠ざかるほど発光波形の減衰時間が減少するという仮説が成り立つ。この振る舞いは、フェルミエネルギーの変化による電子-フォノン散乱効率の変化とフェルミ・ディラック分布の変化により説明できた。

さらに、各フェルミエネルギーの G-SGFET におけるフォトンエネルギー 0.6 eV での発光波形を図 3 に示す。また、MLG、QFMLG、各フェルミエネルギーの G-SGFET における発光波形の減衰時間を図 4 に示す。MLG、QFMLG、各フェルミエネルギーの G-SGFET において、フェルミ準位がディラック点から遠ざかるほど発光波形の減衰時間が減少する。また、異なるフェルミエネルギーを持つグラフェンにおける発光波形の振る舞いは、電子とフォノンに関するレート方程式モデルに基づくモデル計算により再現された。以上のように、グラフェンにおいて、フェルミ準位がディラック点から離れるほど発光波形の減衰時間が減少する、すなわちキャリアが激しく冷却されるという仮説を支持する結果が得られた。

トポロジカル絶縁体 TlBiSe₂ におけるフォトンエネルギー 0.25 eV ~ 1.0 eV での発光波形を図 5 に示す。また、TlBiSe₂ における発光波形のピーク位置時間と減衰時間を図 6 に示す。バルクバンドギャップエネルギー 0.35 eV 以上のエネルギー領域では、フォトンエネルギーが 1.0 eV から 0.5 eV に低下するにつれて、発光波形の立ち上がり時間が

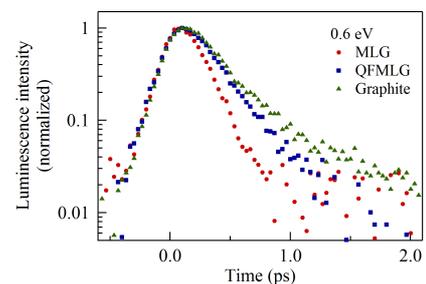


図 2 MLG、QFMLG、グラファイトにおけるフォトンエネルギー 0.6 eV での発光波形。

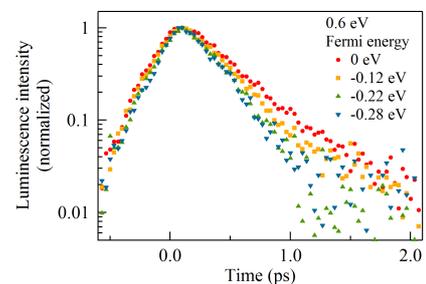


図 3 各フェルミエネルギーの G-SGFET におけるフォトンエネルギー 0.6 eV での発光波形。

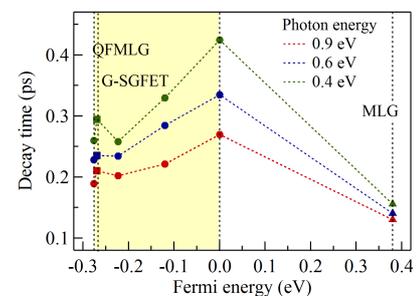


図 4 MLG、QFMLG、各フェルミエネルギーの G-SGFET における発光波形の減衰時間。

増大する。一方、バルクバンドギャップエネルギー0.35 eV以下のエネルギー領域では、光子エネルギー0.25 eV、0.3 eVでの発光波形が光子エネルギー0.5 eV以上での発光波形に比べて早い立ち上がり時間と長い減衰時間を示す。バルクバンドギャップエネルギー0.35 eVを境界とした発光波形の振る舞いは、絶縁体バンド構造を持つバルクバンドに由来する発光とギャップレスなバンド構造を持つ表面バンドに由来する発光により説明できた。また、発光波形の振る舞いは、バルク電子と表面電子に関するレート方程式モデルに基づくモデル計算により再現された。以上のように、時間分解発光分光により、トポロジカル絶縁体におけるバルクキャリアと表面キャリアの過渡的な応答を区別して議論できた。

【結論】

異なるフェルミエネルギーを持つグラフェンにおけるキャリアダイナミクスを時間分解発光分光により観測し、グラフェンにおけるキャリアダイナミクスがフェルミエネルギーに強く依存することを示した。また、三次元トポロジカル絶縁体におけるキャリアダイナミクスを時間分解発光分光により観測することに成功し、時間分解発光分光がデバイスへの応用において重要な大気雰囲気下での三次元トポロジカル絶縁体におけるキャリアダイナミクスの研究手法として有用であることを示した。

【参考文献】

- [1] K. S. Novoselov *et al.*, Nature **490**, 192 (2012).
- [2] M. Z. Hasan and C. L. Kane, Rev. Mod. Phys. **82**, 3045 (2010).
- [3] J. C. Johannsen *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 027403 (2013).
- [4] J. A. Sobota *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 117403 (2012).
- [5] F. Speck *et al.*, Appl. Phys. Lett. **99**, 122106 (2011).
- [6] J. Ristein *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **43**, 345303 (2010).
- [7] K. Kuroda *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 205306 (2015).
- [8] T. Suemoto *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 224302 (2013).

【論文・学会発表】

S. Maezawa, H. Watanabe, M. Takeda, K. Kuroda, T. Someya, I. Matsuda and T. Suemoto, “Optically detecting the edge-state of a three-dimensional topological insulator under ambient conditions by ultrafast infrared photoluminescence spectroscopy”, Sci. Rep. **5**, 16443 (2015).
 他 国際会議 1 件、国内会議 5 件（共著 1 件、発表予定 1 件）、第 25 回光物性研究会奨励賞。

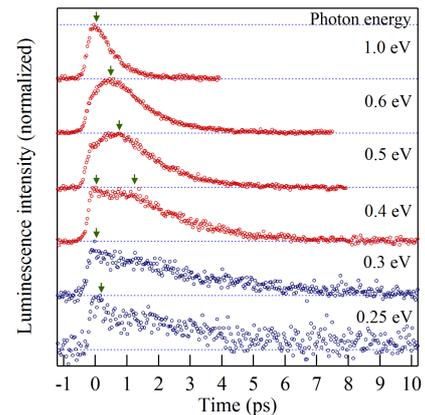


図 5 TlBiSe₂における光子エネルギー0.25 eV ~ 1.0 eVでの発光波形。

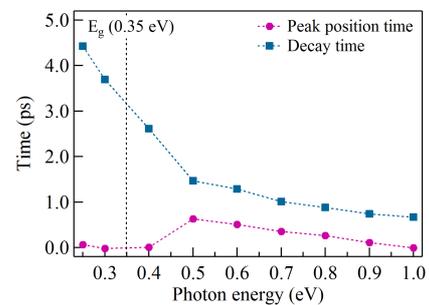


図 6 TlBiSe₂における発光波形のピーク位置時間と減衰時間。