

n 型単層エピタキシャルグラフェンにおける非平衡キャリア 緩和ダイナミクスのサブ 5 fs 時間分解 ARPES 計測

Sub-5-fs high-harmonic-based ARPES measurement of ultrafast relaxation dynamics of nonequilibrium photoexcited carrier in n-type SiC epitaxial monolayer graphene

NTT 物性基礎研¹, 東京理科大理工², 関西学院大学³ ○(M2)當銘 賢人^{1,2}, 小栗 克弥¹,
増子 拓紀¹, 加藤 景子¹, 関根 佳明¹, 日比野 浩樹^{3,1}, 須田 亮², 後藤 秀樹¹

NTT Basic Research Labs.¹, Tokyo Univ. of Science², Kwansei Gakuin Univ.³ ○Kento Toume^{1,2},
Katsuya Oguri¹, Hiroki Mashiko¹, Keiko Kato¹, Yoshiaki Sekine¹, Hiroki Hibino^{3,1}, Akira Suda² and
Hideki Gotoh¹

E-mail: oguri.katsuya@lab.ntt.co.jp

グラフェンは、超高速光応答特性、広帯域光吸収、強い非線形性、そして高い耐損傷性など優れた光学特性を有していることから、超高速光変調器や超短パルスレーザー用過飽和吸収材料などに応用されている。近年、光電界誘起電流、高次高調波発生、キャリア多重励起などさらに短い時間スケールの応答に関わる現象が報告され、10 fs からサブフェムト秒時間スケールにおける光励起ダイナミクスの更なる理解が求められている[1]。従来、グラフェンの超高速ダイナミクス計測は、超短パルスレーザーを用いた時間分解透過率・反射率測定が用いられてきたが[2]、最近、高次高調波を用いた時間分解角度分解光電子分光法(ARPES)が適用され、注目を集めている[3]。これまで、我々は、PHz 周波数級の時間スケールにおける固体電子系の直接計測を目的として、サブ 5-fs の時間幅を有する極端紫外領域高次高調波光源を利用した時間分解 ARPES 法を構築してきた[4]。本講演では、SiC(0001)基板上に成長した単層エピタキシャルグラフェンに本手法を適用し、光励起により形成される非平衡キャリアの緩和ダイナミクスを調べたので報告する。

我々の開発した時間分解 ARPES システムは、中心波長 790 nm の基本波パルスの第 27 次高調波 (42.5 eV) をプローブ光源としており、サブ 5 fs というプローブ時間分解能と、 $2 \text{ \AA}^{-1}$ に達する広い波数空間計測域を特徴としている。単層 SiC グラフェンサンプルは、n ドープされており(ドープ密度: $1.1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$)、フェルミレベルがディラック点より約 430 meV 高いエネルギーに位置している。図 1(a) は、パルス幅 21.5 fs、エネルギー密度 1 mJ/cm^2 の近赤外パルス照射した場合のディラック点近傍の ARPES スペクトルの時間発展である。フェルミレベル以上の伝導帯への電子励起により、2 eV 以上の広いエネルギー領域に渡って過渡的な電子分布が形成され($\Delta t = \pm 0 \text{ fs}$)、その後、急速に緩和する様子を表している($\Delta t = +33 \text{ fs}$, $+100 \text{ fs}$)。空間電荷効果を考慮し、プローブ光がポンプ光よりも十分先に到達した場合の ARPES スペクトルを参照して、過渡電子分布強度の時間発展をプロットすると、早い緩和成分($\tau_{\text{fast}} = 28 \text{ fs}$)と遅い緩和成分($\tau_{\text{slow}} = 166 \text{ fs}$)で指数関数フィッティングされた。このような励起非平衡キャリアの 10 fs レベルの高速緩和は、電子-電子散乱によって引き起こされると考えられており、本手法はその過渡的なエネルギー-運動量マッピングの計測に有効であることを示している。

本研究の一部は、科学研究費補助金 JP23310086、JP16H02120 の支援を受けて行われた。

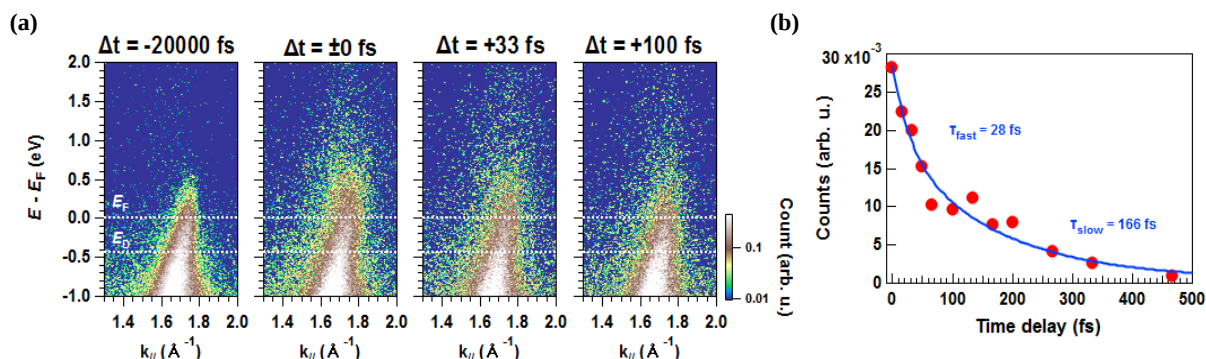


Fig. 1. Time-resolved ARPES spectra at K-point of the n-doped graphene. (a) Snapshots of ARPES spectra, (b) the photoexcited electrons density as a function of time delay.

- [1] Higuchi, Nature, **550**, 224(2017);Winzer, NL, **10**, 4839(2010)
- [2] Dawlaty, APL, **92**, 042116(2008);Breusing, PRB, **83**, 153410(2011).
- [3] Gierz, PRL, **115**, 086803 (2015);Johannsen, PRL, **111**, 027403(2013);Someya, APL, **104**, 1611013(2014)
- [4] 當銘、第 65 回応用物理学会春季学術講演会 19p-B301-2 (2018).