時間分解 ARPES による WSe2の超高速バレー間緩和過程の計測

Ultrafast intervalley relaxation in layered WSe₂ by using time-resolved ARPES

NTT 物性基礎研¹, 横浜国大², 関西学院大学³ ^O(M2)山口 大也^{1,2}, 加藤 景子¹, 増子 拓紀¹,

関根 佳明¹, 日比野 浩樹^{1,3}, 片山 郁文², 武田 淳², 小栗 克弥¹

NTT Basic Research Labs.¹, Yokohama National Univ.², Kwansei Gakuin Univ.³

^oHiroya Yamaguchi^{1,2}, Keiko Kato¹, Hiroki Mashiko¹, Yoshiaki Sekine¹, Hiroki Hibino^{1,3},

Ikufumi Katayama², Jun Takeda², Katsuya Oguri¹ E-mail: yamaguchi-hiroya-zc@ynu.jp, katsuya.oguri.hf@hco.ntt.co.jp

VI族遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)はバレー偏極などの興味深い特徴を持っており、スピントロニクスやバレートロニクスの材料として注目を集めている[1]。また、強い光電界によるキャリアのバンド内加速よってバレー間電子状態を制御しうる可能性も指摘されている[2]。バレートロニクスは運動量空間のバレーを自由度として扱っているため、これを制御するためにVI族TMDCの運動量空間における電子の励起・緩和ダイナミクスを解明し知見を得ることは非常に重要である。

そこで我々は、42.1 eV、sub-5 fs の高い時間分解能を持つ時間-角度分解光電子分光法(Tr-ARPES) によって、TMDC の代表的なサンプルの一つである WSe₂の電子励起・緩和ダイナミクスを測定 し、レート方程式を用いた数値計算と比較した。Fig. 1(a)に、1.56 eV、20 fs の直線偏光ポンプ光 で励起したときのK点(k/=1.28 Å⁻¹)と Σ点(k/=0.64 Å⁻¹)の各遅延時間のARPES スペクトルを示す。 ポンプ光を照射することで K 点の伝導帯に電子が励起され(+10 fs)、その後、励起された K 点の 電子が、伝導帯で最もエネルギーの低い Σ点に遷移しポピュレーションが形成されることがわか る(+70 fs) [3]。Fig. 1(b)に K 点、Σ点の伝導帯の光電子数の時間変化およびレート方程式を用いた 数値計算によるフィッティングを示す。この結果から、K 点から Σ点への緩和定数は 30 fs と見積 もられ、観測されたバレー間散乱は、一般的な電子-電子散乱に起因する緩和時間に匹敵するほど の超高速過程であることがわかった。

本研究の一部は、JSPS 科研費(16H2120, 19H02637, 20H00358)の支援を受けて行われた。

参考文献

[1] K. F. Mak et al., Nat. Photon. 12, 451 (2018); X. Xu et al., Nat. Phys. 10, 343 (2014).

[2] F. Langer et al., Nature 557, 76 (2018).

[3] R. Bertoni et al., Phys. Rev. Lett. 117, 277201 (2016); R. Wallauer et al., Appl. Phys. Lett. 109, 162101 (2016).



Fig. 1. (a) Typical temporal snapshots of ARPES spectrum of WSe₂ along Γ -K direction irradiated by the 1.56-eV pump pulse at the time delays of -90 fs, +10 fs, and + 70 fs. Orange and green boxes show the region of photoexcited population in the conduction band at K and Σ valleys, respectively. (b) Integrated electron count at the K and Σ valleys as a function of the delay. For comparison, calculated results on the dynamical population transfer from the K into Σ valley based on a set of rate equations are also illustrated.