

4P096

## グラファイトの超高速コヒーレント面内振動

(物質・材料研究機構<sup>1</sup>、筑波大学院数理物質<sup>2</sup>、ピッツバーグ大学<sup>3</sup>)

○石岡邦江<sup>1,2</sup>、長谷宗明<sup>2</sup>、北島正弘<sup>1,2</sup>、Hrvoje Petek<sup>3</sup>

固体結晶に短パルス光を照射すると、反射率や透過率などの光学特性がテラヘルツ (THz) 周波数域での周期的変調を示し、その周波数はラマン活性な光学フォノンのそれに一致する。一般にコヒーレント光学フォノンと呼ばれるこの現象は、格子原子が巨視的な空間にわたって位相を揃えて (コヒーレントに) 振動していると解釈され、励起状態における格子振動、電子・格子相互作用の超高速ダイナミクスを知るには格好の手法である。グラファイトはきわめて非等方的な層状結晶構造を有し、層内では強い共有結合で、層間は弱い van der Waals 結合でカーボン原子が結合している。その電子構造は単層グラフェンの二次元半金属的な電子構造でほぼ記述できる。われわれは超短パルスレーザー光を用いてグラファイト表面の過渡反射率測定を行うことにより、固体中に光励起された電子とコヒーレント光学フォノンの超高速相互作用を 10 フェムト秒 (fs) 以下の時間分解能で計測することに成功した。

高配向性グラファイト (HOPG) を試料として、チタンサファイアレーザーの 2 倍波 (波長 400nm、パルス幅 10fs) を光源としたポンプ・プローブ反射率測定を行った。ポンプとプローブ間の遅延を 20Hz で掃引し、デジタルオシロスコープで積算平均を行う (ファストスキャン法) ことにより、グラファイトの格子振動による  $10^{-6}$  以下の微小な反射率変化を「リアルタイム」で捉えることができる。

得られた過渡反射率 (図) は周期 770 fs と 21 fs の二つの振動を示し、その振動数 ( $42\text{ cm}^{-1}$  および  $1584\text{ cm}^{-1}$ ) はラマン活性な面間ずれ振動 ( $E_{2g1}$ ) と面内 C-C 伸縮振動 ( $E_{2g2}$ ) のラマンシフトとそれぞれよく一致する。ポンプ光の偏光  $\theta$  を回転させると、両モードとも振幅が  $\cos 2\theta$  の偏光依存性を示す。これは  $E_{2g}$  対称性モードのラマンテンソルから予測される偏光依存性であり、グラファイトのコヒーレントフォノンが瞬時的誘導ラマン過程 (Impulsive Stimulated Raman Scattering: ISRS) によって励起されることを示唆している。面内振動 ( $E_{2g2}$ ) モードの振動数は光励起の瞬間に高シフトを示し、その後 0.5-1 ps の時間をかけて定常値に戻る。この時定数はテラヘルツ分光で得られた光励起電子の熱化時間 (thermalization time) [1] によく対応し、フォノンの振動数シフトが非熱的電子分布との相互作用によることを示唆している。 $E_{2g2}$  モードの振動数はコーン異常と呼ばれる、電子の遮蔽に由来する電子格子相互作用によってソフト化している [2] が、光励起によってこの遮蔽が瞬時的に弱まり、振

動数の過渡的な高波数シフトとして観測されたものと解釈できる。われわれの実験結果は、グラファイトでは他の半金属とは対照的に、電子・格子相互作用により格子のハードニングが起こっていることを明らかにしたものであり、この特異性はグラファイトのフェルミ準位近傍の電子構造に起因する。

### 参考文献

1. T. Kampfrath, L. Perfetti, F. Schapper, C. Frischkorn, and M. Wolf, *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 187403 (2005).
2. S. Piscanec, M. Lazzeri, F. Mauri, A.C. Ferrari, and J. Robertson, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 185503-1-4 (2004).

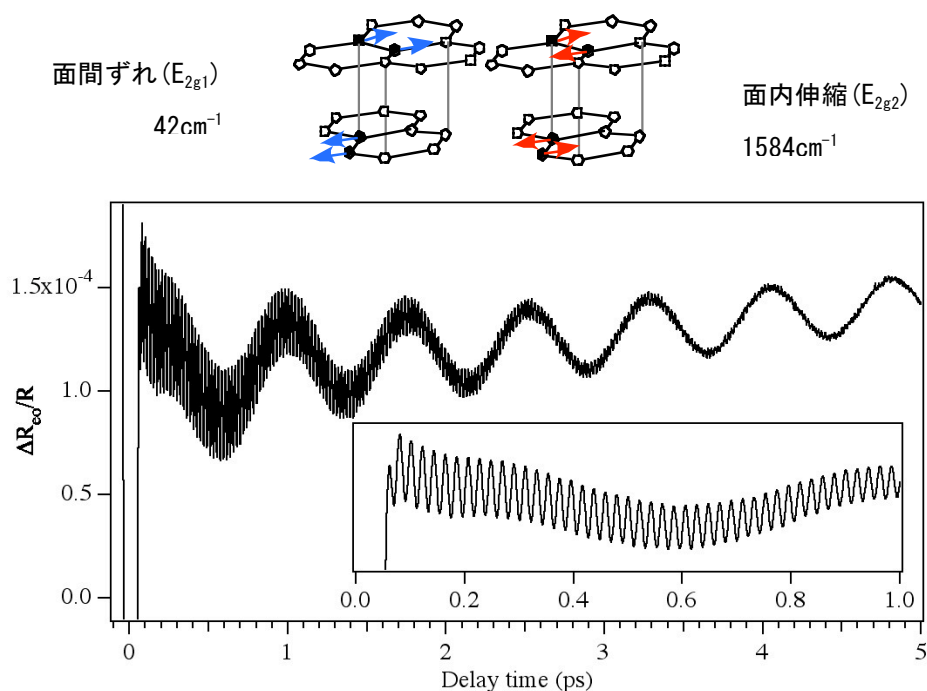


図 グラファイトの非等方的反射率変化  $\Delta R_{co}/R = (\Delta R_x - \Delta R_y)/R$  には、それぞれコヒーレント面間ずれ、面内伸縮振動に対応する振動数 1.3 THz および 47 THz の周期的振動が見られる。