

平成21年 6月 19日

新材料グラフェンからのテラヘルツ誘導放出に成功
新原理テラヘルツレーザーの実現へ大きく前進

東北大学 電気通信研究所
ブロードバンド工学研究部門 超ブロードバンド信号処理研究分野
尾辻研究室 教授 尾辻泰一
E-mail otsuji@riec.tohoku.ac.jp

<概要>

電波と光波の境界域にあるテラヘルツ帯は、長らく未踏周波数領域とされてきたが、近年、広帯域光源や高感度検出素子の開発が急速に進み、禁止薬物・危険物の透視や大気汚染計測をはじめとする安心・安全分野や、未来の超高速無線通信分野など、産業応用に向けて大きな展開を見せている。この魅力あるテラヘルツ帯を超高速通信など次世代の情報通信技術へ有効利用を図るためには、現在の LSI や半導体レーザーダイオードのように、小型・集積化が可能でかつ室温で動作するデバイス技術の開発が不可欠であるが、従来の動作原理では達成困難な周波数領域とされてきた。また、進展著しい量子カスケードレーザーを用いても室温動作が達成できない領域にあり、新たなデバイスの創出が望まれている。

今回、我々は、会津大学 Victor Ryzhii 教授らのグループとの共同研究によって、新材料として注目されている炭素原子の単層シート：グラフェンを用いて、テラヘルツ電磁波の誘導放出に世界で初めて成功した。新しい動作原理による室温動作テラヘルツレーザーの実現に向けて大きな一歩を踏み出した。

グラフェン中の伝導電子はエネルギーと運動量が線形な関係にあり、伝導帯と価電子帯が対称な円錐形を成して、それらの頂点どうしが1点で交わるという、バンドギャップのない線形分散特性を有している。このため、伝導帯の自由電子と価電子帯の正孔は電荷の極性が正負に反転した完全対称な量子であって、かつ、あたかも光のように質量ゼロの量子として振る舞う。しかも、固有の状態を占有する量子数はスピンを含めて2という通常の電子・正孔の統計的性質は保持している[1-3]。2004年に英国マンチェスター大の A. Geim 教授らのグループが初めてグラフェンの作製に成功し[3]、以来、夢の新材料として研究開発が加速度的に進展している。会津大学 Victor Ryzhii 教授らのグループは、我々との共同で、このグラフェンの光電子物性に早くから注目し、赤外線レーザーを照射して光電子・正孔対を生成（これをポンピングと称する）すれば、両者は光学フォノンを放出しながらバンド内を遷移し、やがては再結合して消滅し、そのときに遷移エネルギーに相当する光子を放出すること、そして、レーザー光強度をある一定のしきい値以上にするすることで、自然放出ではなく、レーザー動作の条件となる誘導放出が得られることを、他に先駆けて2007年に理論的に予測している(図1参照)[4]。グラフェンのギャップレスかつ対照的なバンド構造のために、ポンピングレーザーの周波数を調整することによって、広いテラヘルツ周波数帯で望みの周波数のレーザー発振を実現できると期待される。

そこで、グラフェンからのテラヘルツ誘導放出を実験的に検証した。用いたグラフェン試料は、東北大学電気通信研究所末光眞希教授らのグループが開発したエピタキシャル成長グラフェンを用いた。これは、シリコン基板上にエピタキシャル成長した SiC の表面を熱処理によってグラフェン化するという独自技術によるもので、数十 mm 四方の領域に均質なグラフェン薄膜が成長で

きる(図 2 参照)。放射されるフォトンの周波数がテラヘルツ帯になるように、ポンピングするレーザーの波長を 1550nm 帯に設定した。しきい値以上のポンピング強度を得るために、フェムト秒レーザーを用いた。電気光学サンプリングの手法を用いて、試料から放射される電磁波を時間分解測定した(図 3 参照)。測定された放射電界強度の時間応答波形から求めたフーリエスペクトルには、ポンピング光のスペクトルが転写されており、予想通り、誘導放出によるテラヘルツ放射であることが確認できた(図 4 参照)。

今回の成果は、我々の理論予測を、自ら実証することに成功したものである。室温動作が可能な新しいテラヘルツレーザーの実現に向けて大きな一歩を踏み出した。今後、レーザー動作のための共振器構造や高効率放射のための導波路構造の組み込みを行うことによって、新原理テラヘルツレーザーの誕生に期待がかかる。

本成果は、6月19日(現地時間)にドイツ・ミュンヘン市で開催の CLEO-Europe (レーザーと電子光学に関する欧州国際会議)で発表することとなった[5]。本成果は、JST CREST プログラムおよび JSPS 科学研究費補助金基盤研究 (S) の援助によって成されたものである。

参考文献

- [1] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov, "Electric field effect in atomically thin carbon films," *Science* **306**, 666-669 (2004).
- [2] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, M.I. Katsnelson, I.V. Grigorieva, S.V. Dubonos, and A. . Firsov, "Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene," *Nature* **438**, 197-200 (2005).
- [3] P. Kim, Y. Zhang, Y.-W. Tan, H.L. Stormer, "Experimental observation of the quantum Hall effect and Berry's phase in graphene," *Nature* **438**, 201-204 (2005).
- [4] V. Ryzhii, M. Ryzhii, and T. Otsuji, "Negative dynamic conductivity of graphene with optical pumping," *J. Appl. Phys.* **101**, 083114 (2007).
- [5] H. Karasawa, T. Komori, T. Watanabe, M. Suemitsu, V. Ryzhii, and T. Otsuji, "Observation of carrier relaxation and recombination dynamics in optically pumped epitaxial graphene heterostructures using terahertz emission spectroscopy," *Tech. Dig. European Conf. on Lasers and Electrooptics (CLEO/Europe)*, CF8.3, Munich, June 19th, 2009.

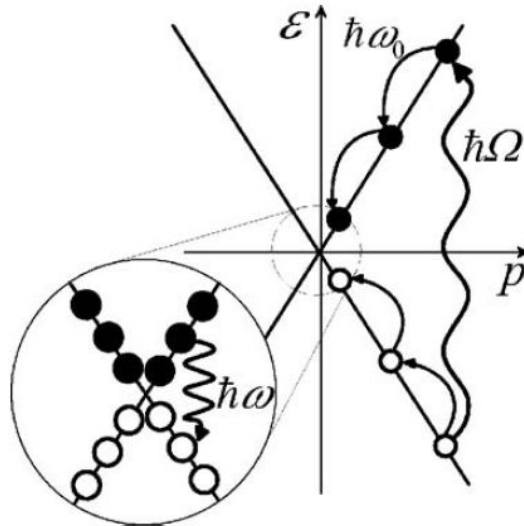


図1 光励起グラフェンのキャリア緩和・再結合過程

光ポンピングによって生成された電子・正孔対の緩和・再結合の過程。 $\hbar\Omega$ の光子エネルギーを有するレーザーで光ポンピングすると、価電子帯の電子が伝導帯に励起され、自由電子（黒丸）・正孔（白丸）の対が生成される。この光励起電子・正孔はそれぞれ、高速に光学フォノン（エネルギー： $\hbar\omega_0$ ）の放射を繰り返し、バンド内をフェルミ準位（交差点）に向かって遷移する。フェルミ準位とのエネルギー差が光学フォノンエネルギーよりも小さくなる（図中、最近接の黒丸と白丸）と、再結合して消滅する。そのとき、遷移エネルギー： $\hbar\omega$ に相当する光子（光子）を放出する。上準位の電子密度のほうが遷移先の下準位の電子密度よりも上回るといいうゆる反転分布が容易に形成される。また、光ポンピング強度が一定のしきい値以上になると、自然放出から誘導放出に移行する。

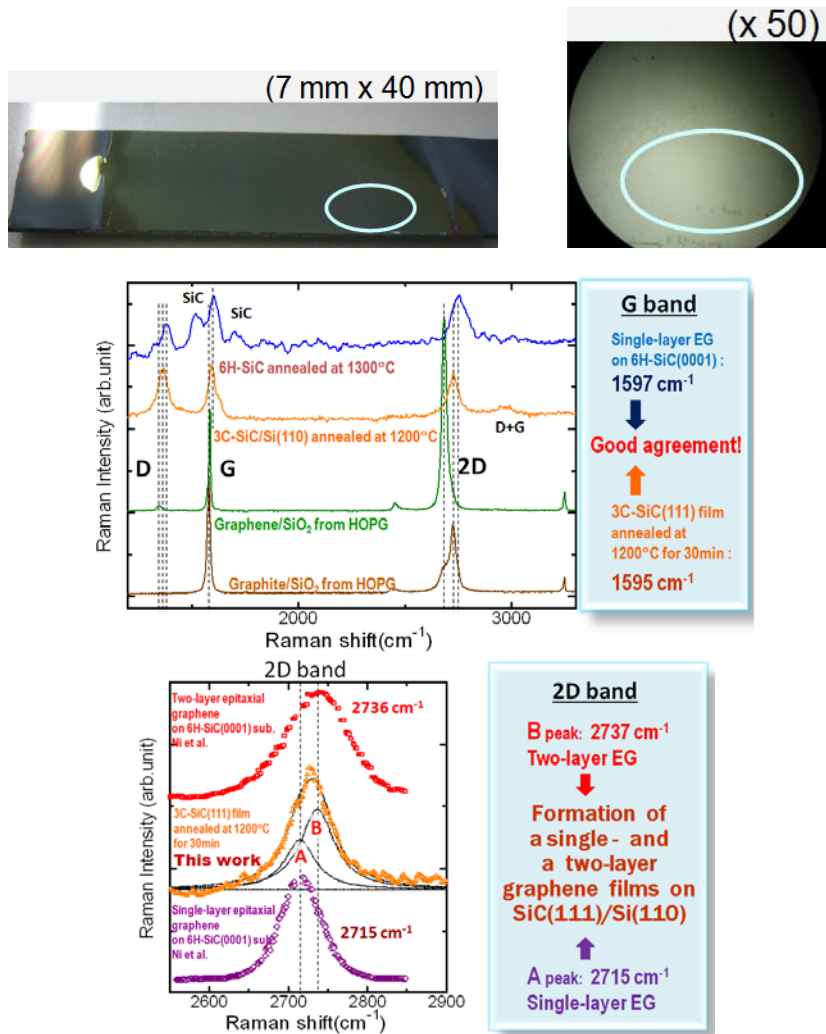


図2 実験に用いた Si 基板上エピタキシャルグラフェン

上段： 実験に使用した、独自技術で製作した Si 基板上エピタキシャルグラフェン（左）とその表面の干渉顕微鏡写真（右）広範な領域にわたって均質なグラフェン膜が形成されている。Si 基板上にモノメチルシランという有機ガスを導入した分子線エピタキシーと呼ばれる製法によって、まず、80 nm 程の厚さの SiC 単結晶層を成長させる。その後、真空中での熱処理(1200°C)によって、表面の SiC 層から Si 原子を離脱させ、残る C 原子の自律再配列によって、六員環構造のグラフェン層へと改質する。本製造技術は、東北大学電気通信研究所末光眞希教授とそのグループによって開発された独自技術（JST—CREST プログラムの成果）である。

中段・下段： 製作した Si 基板上エピタキシャルグラフェンのラマン分光スペクトルと、他の手法によって製作したグラフェンとの比較。G と記載したバンドのスペクトルがグラファイト結晶構造を反映しており、その波数：1597 cm⁻¹より、光学フォノンエネルギー： $h\omega$ が約 198meV であることがわかる。下図は、2D バンドの拡大図（図の中段が本成果）。2D バンドのスペクトルピーク位置は、グラフェンシートの層数に応じてシフトすることが実験的に確認されており、1 層のピーク（下段）と 2 層のピーク（上段）との対応から、製作したグラフェンには、1 層と 2 層の構造が共存していることがわかる。

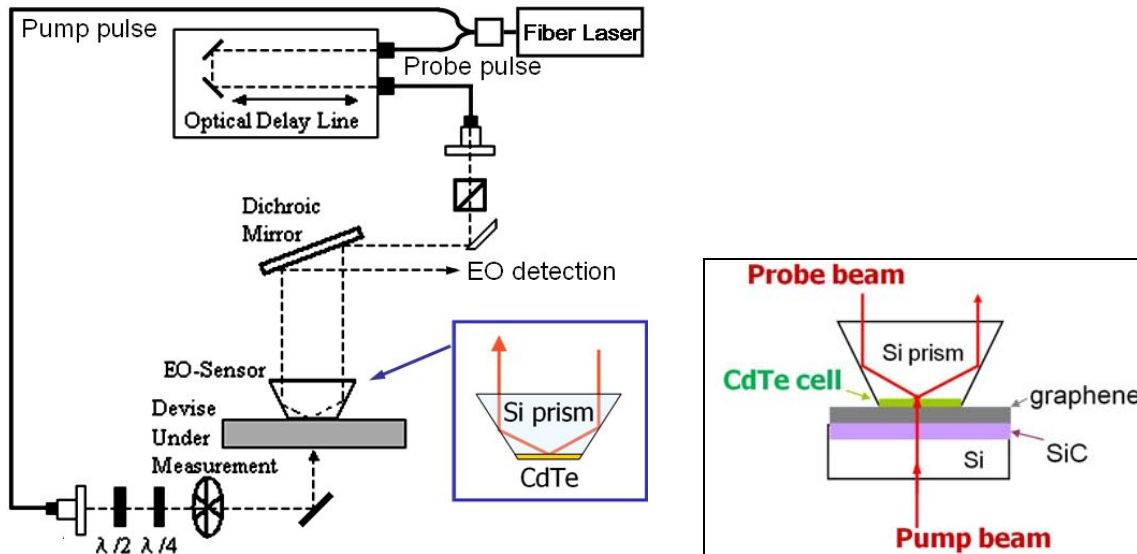


図 3 電気光学サンプリングによる実験系

レーザー光源（ファイバーレーザーと表記）を2つに分岐し、一方は、波長版（ $\lambda/2$, $\lambda/4$ ）を介して直線偏光にしてグラフェン試料に裏面から照射する（ポンピング光）。もう一方は、プローブ光として、試料上面に導入し、Siプリズムを介してCdTeという電気光学結晶（特定の軸方向の屈折率が電界に比例して変化する）の表面で全反射させる。そのとき、グラフェンから放射されたテラヘルツ波に応じてCdTe結晶内には電場が生成されており、その電界強度に依存して、CdTeの屈折率、従って表面反射率が変化し、プローブ光の偏光状態が変化する。その偏光状態の変化量から電界強度を読み取る。レーザー光源のパルス幅は80フェムト秒と非常に短く、その時間幅の電界強度情報をプローブ光は担っている。そこで、光遅延線でプローブ光の照射タイミングを少しずつずらしながら、同じ測定を繰り返すことによって、サンプリング計測が果たされる。すなわち、フェムト秒レーザーによる光ポンピング後の電磁波発生の時間応答を測定することができる。なお、1つの時間ポイントのサンプリング計測には、S/Nを改善するために、1万回以上の繰り返し測定を行い、平均化処理を施している。

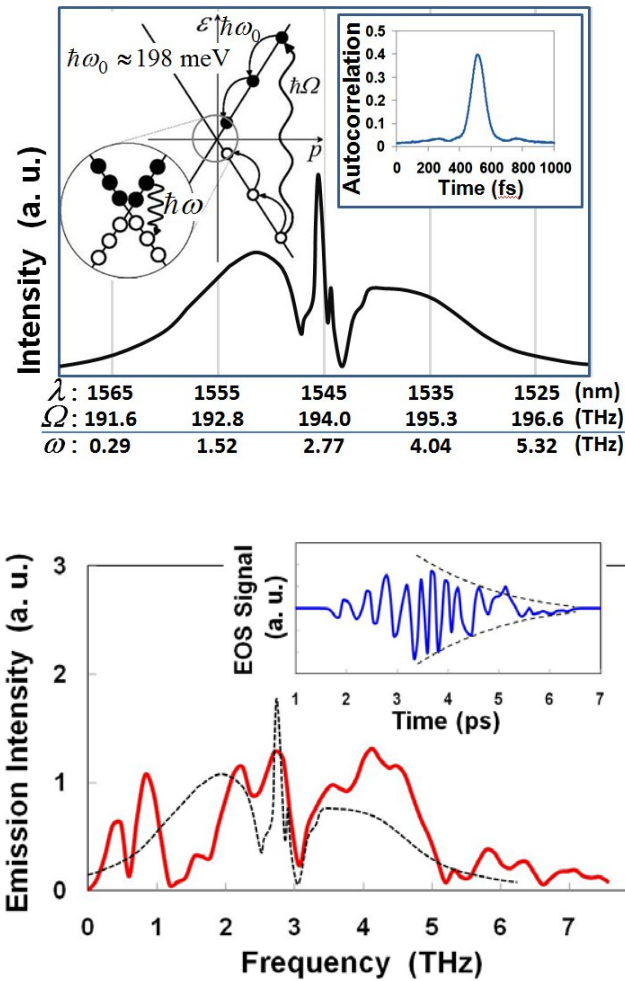


図4 実験結果

上段： ポンピング光に用いたフェムト秒レーザーの放射スペクトル形状と時間応答自己相関波形（右上枠内）。

下段： 測定された、グラフェンからの電磁波放射時間応答波形（右上枠内の青色実線）とそのフーリエスペクトル（赤色実線）。赤色実線に重ねて記した黒色実線は、ポンピング光のスペクトルから予測される放射テラヘルツフォトンのスペクトル形状。赤色実線は2 THz 付近から低域が遮断されている。1 THz 以下の2つのピークは、時間応答波形（青色実線）に見られる成長の包絡線と減衰の包絡線の時定数を表す。減衰の時定数は4~10 ps と見積もられ、光励起電子・正孔対が放射再結合する寿命に対応している。図より、2 THz 以上の放射スペクトルにはポンピング光のスペクトルが保存されている様子がわかる。このようにポンピング光のスペクトルが放射電磁波スペクトルに保存されるということは、バンド間遷移に基づく光子であることの証であり、また、繰り返し測定による平均化処理によるサンプリング計測の結果として、固有の時間応答波形が得られていることから、電磁波放射はコヒーレントな応答を示していることがわかり、自然放出ではなく、誘導放出が得られていることの証となる。