

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400326

研究課題名(和文)カーボンナノマテリアルにおける電子格子相互作用の素過程

研究課題名(英文)Elemental process of the electron-lattice interaction in carbon nanomaterial

研究代表者

田中 慎一郎(TANAKA, Shin-ichiro)

大阪大学・産業科学研究所・准教授

研究者番号：00227141

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：格子の集団振動であるフォノンによって電子が散乱され、別の電子状態に遷移することが電子格子相互作用の素過程である。本研究では、グラファイトおよびグラフェンにおいて、ブリルアンゾーンのK点付近にある電子が、光とフォノンによって同時に散乱され、点付近に遷移する間接遷移過程を、高分解能角度分解光電子分光法を用いて世界で初めて観察した。この結果は、電子格子相互作用の素過程の本質であるマトリックスエレメントを直接的に検出した唯一の実験研究として重要である。また、光による励起プロセスもこの過程においては重要な役割を担っているため、理論研究によって光電子分光を定量的に評価する研究を行った。

研究成果の概要(英文)：The elemental process of the electron-lattice interaction is the electron transition as a result of the electron-phonon scattering. In this study, the process of the electron scattering by the phonon from the K-point to the neighborhood of the Gamma-point in the Brillouin zone of the graphite and single-layered graphene is, for the first time, observed by using the angle-resolved photoelectron spectroscopy in a way of resolving momentum and energy. Our finding is important because this reveals quantitatively the matrix element of the electron-phonon scattering which rules the electron-lattice interaction. Moreover, since the optical transition plays critical role in the whole process, we theoretically investigate the photoelectron excitation process in graphite and graphene.

研究分野：光物性

キーワード：電子格子相互作用 グラフェン 角度分解光電子分光 シンクロトロン放射光 フォノン分散 間接遷移

1. 研究開始当初の背景

電子格子相互作用は固体の性質を支配する最も重要な要因の一つであり、集中的に研究されてきた。しかし、実験的にはこの相互作用の素過程、すなわちフォノン（格子振動）による電子の散乱を、運動量まで分解した形の実験的研究はなかった。グラフェンを始めとするカーボンナノチューブにおいても、電子格子相互作用はデバイスとしての性能を決定する最も重要な要因であり、電子格子相互作用を、その素過程まで分解した形での研究は強く望まれている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、グラフェンおよびグラファイトにおける電子格子相互作用の素過程を、電子およびフォノンの運動量およびエネルギーまで分解して測定する手法を開発することである。これはすなわち、固体内電子がフォノンによって散乱されるとき、散乱前後の電子のエネルギー・運動量の変化を観測することである。この手法によって、特定の電子状態における特定のフォノンの特定の運動量の結合の強さが分かり、それはカーボンナノマテリアルにおける電子格子相互作用の本質についての知見を与える。

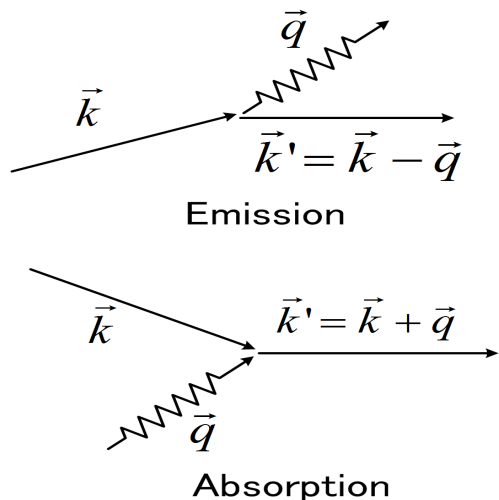
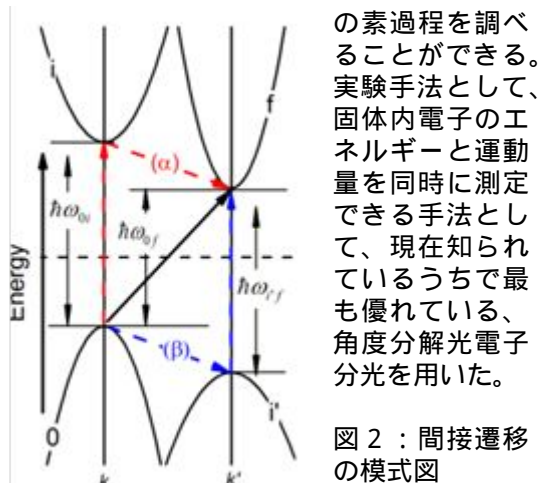


図1：電子のフォノンによる散乱の模式図

3. 研究の方法

グラファイトやグラフェンなどのカーボンナノマテリアルにおいては、フェルミエネルギー近傍の電子はブリルアンゾーンのK点周辺のみにある。したがって、この電子がフォノン散乱されてエネルギーと運動量がどう変化するかを調べれば、電子フォノン散乱



の素過程を調べることができる。実験手法として、固体内電子のエネルギーと運動量を同時に測定できる手法として、現在知られているうちで最も優れている、角度分解光電子分光を用いた。

図2：間接遷移の模式図

K点付近の電子を特定の波長の光で励起すると、2次的な過程として、左図に示すような間接遷移が起こり得る。ここで、角度分解光電子スペクトルを詳細に解析することで、電子を散乱したフォノンの運動量とエネルギーを調べることができるのである。

4. 研究成果

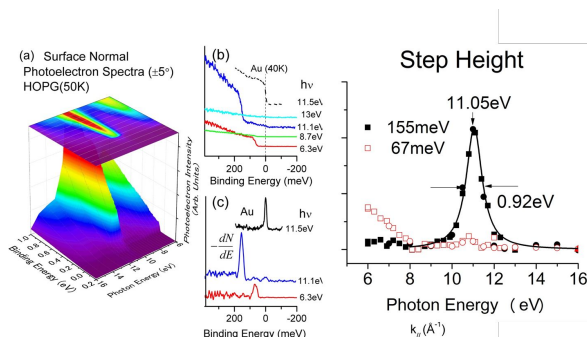


図3：グラファイトの角度分解光電子分光

上図は、グラファイトにおける表面垂直（点）の光電子スペクトルである。(b)およびその微分形の(c)から分かるように、光エネルギーに応じて、異なるところにスペクトルにステップ状の構造が見える。この強度は右に示しているように、特定の終状態に起因していることが励起エネルギー依存性から分かる。このステップは、散乱におけるエネルギー依存性によって、フォノン放出に伴ったフェルミエッジがフォノンのエネルギーの分だけシフトしたことによる。すなわち、終状態および対応した中間状態に応じて、電子とフォノンのカップリング強度が異なり、散乱確率が特定のバンドと特定のフォノンで大きくなっていることが分かる。〔文献1〕

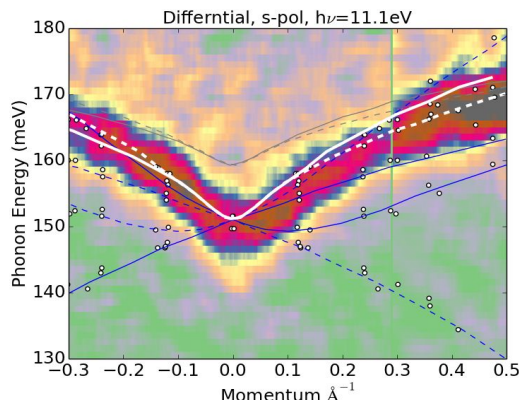


図4：グラファイトの電子散乱に寄与するフォノンの分散

図4は、光エネルギー11.1eVにおいて測定した微分形式での角度分解光電子スペクトルのマップである。運動量保存則により、電子の運動量はすなわち散乱に関与したフォノンの運動量であるので、ここでフォノンの分散が測定されている。散乱に関与したフォノンのみを取り出して分散を観察した結果は世界で初めてである〔論文執筆中〕。さらに、SiC上に作成した単層グラフェンにおいても同様の結果を収めた。ただし、グラフェンにおいては関与するフォノンモードが一つだけであり、グラフェンでは強い散乱を起こした面間のフォノンによる散乱は観測されなかった。これは層数による電子格子相互作用の変化を示しており、興味深い。(論文執筆中)

この結果は光とフォノンによる散乱を同時に観察することに成功した画期的な成果である。解析のためにはグラフェンやグラファイトにおける光励起過程の詳細な情報が必要であり、同時にさまざまな計算を用いて励起過程について研究も行った。〔文献2・3〕

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

- 1) Shin-ichiro Tanaka, Masaharu Matsunami, and Shin-ichi Kimura, “An investigation of electron-phonon coupling via phonon dispersion measurements in graphite using angle-resolved photoelectron spectroscopy” , Sci. Rep. 3, 3031 (2013). 査読有
- 2) Shin-ichiro Tanaka, Yusaku Takano, Makoto Okusawa, and Kazuhiko Mase, “What Does the Angle-Integrated Photoelectron Spectrum Show? :A Comparison Between First-Principles Calculation and Experiments for Graphite”, J. Phys. Soc. Jpn 83, 084705 (2014) 査読有
- 3) Pourya Ayria, Ahmad R. T. Nugraha, Eddwi

H. Hasdeo, Thomas R. Czank, Shin-ichiro Tanaka, and Riichiro Saito, “Photon energy dependence of angle-resolved photoemission spectroscopy in graphene”, Physical Review B 92, 195148 (2015) 査読有

〔学会発表〕(計39件)

国際学会発表(8件)

- 1) The 12th Asia Pacific Physics Conference (APPC12,2013年7月,幕張(口頭発表))”Direct Observation of the Electron-Phonon Scattering in Graphite by Using the Angle-Resolved Photoelectron Spectroscopy”
- 2) Advanced Spectroscopy of Correlated Materials (A satellite meeting of SCES2013),2013年8月,岡崎(招待講演) ,”Electron-phonon coupling investigation via phonon dispersion measurement in graphite by angle-resolved photoelectron spectroscopy”
- 3) The 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月,松江(口頭発表) , “Dynamics of the Secondary Electron Emission from the Graphite Surface Excited by the Soft-X ray: Investigation by the Electron-Electron Coincidence Spectroscopy”
- 4) The 7th International Symposium on Surface Science, 2014年11月,松江(口頭発表) , “Electron-Phonon Scattering between Unoccupied Electronic States of Graphite Probed by Angle- Resolved Photoelectron and Electron Energy Loss Spectroscopies”
- 5) The 15th International Conference on Vibrations at Surfaces,2015年6月, Donostia-San Sebastián, Spain(口頭発表) , “Momentum-resolved direct-observation of the electron-phonon scattering for graphite and graphene by using ARPES and HREELS”
- 6) The 15th International Conference on Vibrations at Surfaces, 2015年6月, Donostia-San Sebastián, Spain(ポスター発表) ”Proposal of a new scattering mechanism in the electron energy loss spectroscopy: A case study in graphite”
- 7) The sixteenth international conference on the science and application of nanotubes, 2015年7月,名古屋(ポスター発表) , “Momentum-resolved detection of the electron-phonon scattering in graphene by using ARPES”
- 8) International Conference on Electron Spectroscopy and Structure: ICESS-2015, 2015年9月, Stony-Brook, USA(ポスター発表) , “The dispersions of the phonons

coupling with the electron in the graphite and graphene: An angle-resolved photoelectron spectroscopy study”

国内学会発表（31件）

- 1) 日本物理学会 8件
- 2) 日本放射光学会（6件）
- 3) 真空・表面科学合同講演会（3件）
- 4) 物構研サイエンスフェスタ（3件）
- 5) フラールン・カーボンナノチューブ・グラフェン学会（4件）
- 6) その他（4件）

〔図書〕（0件）

〔産業財産権〕

出願状況（計0件）

取得状況（計0件）

〔その他〕

プレスリリース 1件

「原子の集団振動で電子が散乱する現象の直接観察に成功 超伝導物質・超高速デバイスなどの新機能材料開発に貢献」平成 25 年 10 月 24 日

新聞報道 1 件

日経産業新聞 10 月 28 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 慎一郎 (Tanaka, Shin-ichiro)

大阪大学産業科学研究所・准教授

研究者番号：00227141

(2) 研究分担者

丸山 隆浩 (Maruyama, Takahiro)

名城大学理工学部・教授

研究者番号：30282338