

4H-SiC エピタキシャルグラフェンの  
フェムト秒近赤外過渡吸収分光

(関西学院大・理工) 重政 英史, 久津間 保徳, 大谷 昇, 金子 忠明, 玉井 尚登

Femtosecond Near-IR Transient Absorption Spectroscopy  
of Epitaxial Graphene on 4H-SiC

(Kwansei Gakuin Univ.) Hidefumi Shigemasa, Yasunori Kutsuma

Noboru Ohtani, Tadaaki Kaneko, Naoto Tamai

【序】過渡吸収分光法はフォノンとカップリングしたキャリアの緩和過程を評価する有効な手段である。SiC 上のエピタキシャルグラフェンを光励起すると、キャリア-キャリア散乱によりホットキャリア $\tau_1$  (~30 fs) が生じ[1]、ホットキャリア-フォノン散乱 $\tau_2$  (<0.2 ps)、フォノン-フォノン散乱 $\tau_3$  (1.4~1.8 ps) を経て、キャリアが緩和すると考えられている[2]。しかしこれまでの研究では、グラフェン層数に依存したキャリア緩和過程は報告されているが、1 点波長のみの緩和ダイナミクスしか解析されておらず、初期 SiC の極性面依存性や、C 面上で特有に発生する回転乱れを有した多層グラフェンのエネルギー緩和過程は明らかにされていない。今回、4H-SiC の C 面上に回転乱れを有した多層グラフェンを作製すると共に、フェムト秒近赤外過渡吸収分光法によりキャリア緩和過程を評価したので報告する。

【実験】2200°Cまで急速昇温可能な超高真空 ( $10^{-9}$  Torr)・高温加熱炉を用いて、on-axis 4H-SiC (000-1) C 面を 1800°C、5 分間超高真空アニール処理により、エピタキシャルグラフェン成長させた。作製したグラフェンの層数は吸収分光を用いて、600~800 nm の平均吸光度から算出した[3]。また、共焦点顕微鏡を用いた空間分解ラマン分光 ( $\lambda_{EX} = 488$  nm)、及び各種顕微鏡 (AFM、SEM) により、グラフェン層の歪み及び均一性を評価した。キャリア緩和過程の評価は、励起光 550 nm、800 nm のフェムト秒パルス、観測光 900~1300 nm のフェムト秒白色光を用いた過渡吸収分光測定により行った。

【結果と考察】本実験で作製した C 面試料のグラフェン層は吸収分光から 19 層であると見積もられた。Fig.1(a)に空間分解ラマン分光結果を示す。ラマン 2D バンド半値全幅マッピング像から、単層グラフェンに類似した 2D バンド幅の狭いスペクトルを観測した。これは、グラフェン層間に回転の乱れが生じ、単層グラフェンに類似した電子構造を有したためと考えられる。また、2D バンド半値全幅が  $40 \text{ cm}^{-1}$  以下では非常に高いキャリア移動度を示すということが報告されている[4]。そのため、2D バンド半値全幅が  $40 \text{ cm}^{-1}$  以下の領域を回転乱れ領域と仮定すると、回転乱れ領域が 60% 以上占める事が分かった (Fig.1(b))。また、比較対象と

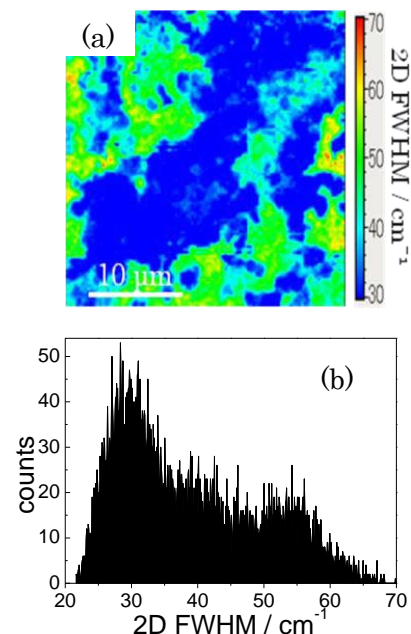


Fig.1 4H-SiC(000-1)1800°C、5 分アニール炭化(a)ラマン 2D FWHM マッピング像, (b) 2D FWHM ヒストグラム

して作製した Si 面試料のグラフェン層は、吸収分光から 1~2 層であると見積もられた。ラマン 2D バンド半値全幅マッピング像も、大部分の領域で 40~60  $\text{cm}^{-1}$  の値を示し、Si 面試料のグラフェン層が 1~2 層である事を示唆している[5]。

回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン、Si 面 1~2 層グラフェンと市販のグラファイトに対して、過渡吸収分光測定を行った。Fig.2 に励起波長 800 nm を用いた回転乱れを有した C 面 19 層グラフェンの過渡吸収スペクトルを示す。明確なピークは見られず、長波長側になるにつれ、ブリーチが大きくなった。また、観測波長 1200 nm での回転乱れを有した C 面 19 層グラフェンでの励起光強度依存性を調べた。その結果、1400  $\mu\text{Jcm}^{-2}$  の強度まででは大きな励起光強度依存性は見られなかった。Fig.3 に観測波長 1200 nm における Si 面 1~2 層グラフェン、回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン及びグラファイトの過渡吸収ダイナミクスを示した。Si 面 1~2 層グラフェンでは 1 成分の指数関数 ( $\tau_2$ ) で解析でき、時定数は 60 fs であった。回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン、グラファイトは 2 成分の指数関数 ( $\tau_2$ 、 $\tau_3$ ) でそれぞれ解析できた。速い緩和成分の時定数  $\tau_2$  はそれぞれ 180 fs (96%)、300 fs (70%)、遅い緩和成分の時定数  $\tau_3$  はそれぞれ 1.29 ps (4%)、3.49 ps (30%) であった。グラフェン層数が増加するにつれて  $\tau_2$ 、 $\tau_3$  の緩和時間は遅くなった。グラファイトでは観測波長依存性が見られるのに対して、回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン及び Si 面 1~2 層グラフェンでは、ほとんど観測波長依存性は見られなかった。また、観測波長 1200 nm における遅い緩和成分の時定数  $\tau_3$  の励起光強度依存性を解析したところ、グラファイトでは励起光強度依存性が見られるのに対して、回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン及び Si 面 1~2 層グラフェンでは、励起光強度依存性がほとんど見られなかった。今回、回転乱れを有する C 面上 19 層グラフェンの観測波長依存性及び緩和成分  $\tau_3$  の励起光強度依存性は Si 面 1~2 層グラフェンの振る舞いに近いということが分かった。

#### 【参考文献】

- [1]M.Breusing, et al., *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009) 086809.
- [2]B. Gao et al., *Nano Lett.* **11** (2011) 3184.
- [3]K. Grodecki et al., *ACTAPHYSICA POLONICA A* **116** (2009) 835
- [4]J. A. Robinson, et al., *Nano Lett.* **9** (2009) 2873
- [5]Lee D.S. et al., *Nano Lett.* **8** (2008) 4320

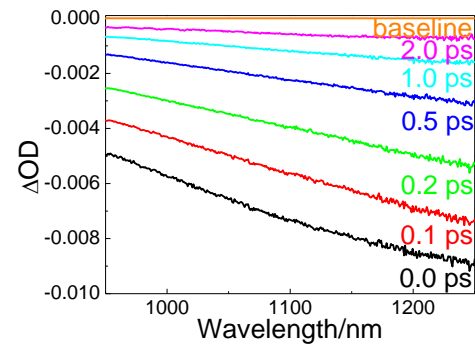


Fig.2 回転乱れを有した C 面 19 層グラフェン。励起波長 800 nm、励起光強度 560  $\mu\text{Jcm}^{-2}$  での過渡吸収ダイナミクス

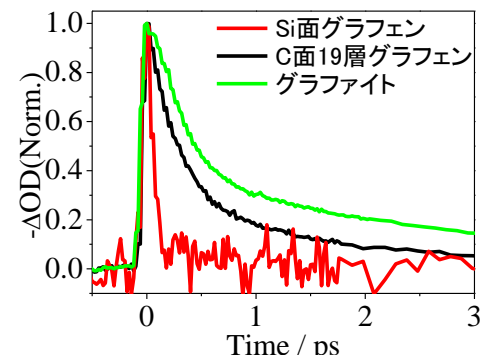


Fig.3 Si 面 1~2 層グラフェン、C 面 19 層グラフェン、グラファイトでの比較。励起光強度 560  $\mu\text{Jcm}^{-2}$ 、観測波長 1200 nm での過渡吸収ダイナミクス