

4H-SiC{0001}エピタキシャルグラフェンの  
フェムト秒近赤外ポンプ-プローブ分光  
(関学大・理工) 重政 英史, 飛川 慶治郎, 久津間 保徳,  
大谷 昇, 金子 忠昭, ○玉井 尚登

Femtosecond Near-IR Pump-Probe Spectroscopy  
of Epitaxial Graphene on 4H-SiC{0001}

(Kwansei Gakuin Univ.) Hidefumi Shigemasa, Keijiro Tobikawa,  
Yasunori Kutsuma, Noboru Ohtani, Tadaaki Kaneko, ○Naoto Tamai

【序】SiC(0001)Si 面上に作製したエピタキシャルグラフェンは、グラフェン層と基板との間にバッファ層が存在する。このバッファ層はグラフェンの易動度に影響を及ぼす事が知られている。キャリア緩和過程におけるバッファ層の効果を理解することは、将来のグラフェンを基盤とするデバイス開発において必要不可欠である。一方、過渡吸収分光法はキャリア緩和過程を評価するのに有力な手段である。これまで、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]。本研究では、フェムト秒近赤外過渡吸収分光法によって、SiC(0001)Si 面と SiC(000-1)C 面上の 1 層グラフェンのキャリアダイナミクスを調べ、キャリア緩和におけるバッファ層の役割を評価したので報告する。

【実験】サンプルは 4H-SiC{0001}基板の熱分解法によって作製した。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、グラフェン層の層数及び均一性を評価した。キャリア緩和過程の評価には、800 nm のフェムト秒パルスを励起光とし、近赤外領域のフェムト秒白色光をプローブ光とするフェムト秒過渡吸収分光法を用いた。

【結果と考察】本実験で作製した C 面試料のグラフェン層の平均吸光度は 0.0142 であり、吸収分光から 1 層であると見積もられた。Fig. 1(a)に C 面上グラフェンの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。また、

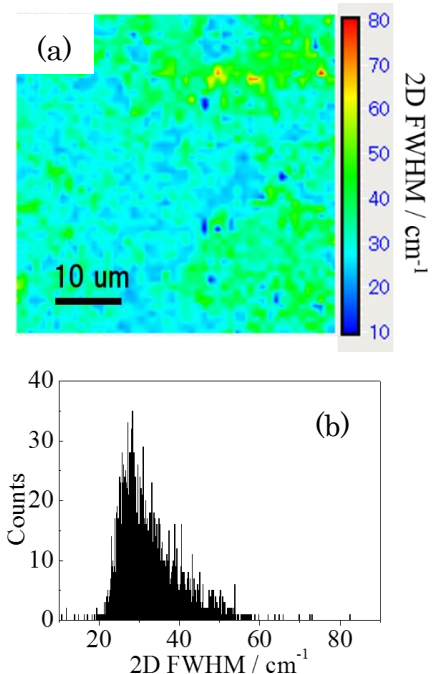


Fig. 1 4H-SiC(000-1)C 面上グラフェン(a)ラマン 2D FWHM マッピング像(b) 2D FWHM ヒストグラム

このようなスペクトル領域が大部分を占めていることが分かった (Fig. 1(b))。比較対象として作製した Si 面試料のグラフェン層の平均吸光度は 0.0172 であり、吸収分光から 1 層であると見積もられた。さらに、ラマン 2D バンド半値全幅マッピング像も、約 63% の領域で  $40 \text{ cm}^{-1}$  の値以下の値を示した。Si 面において 2D FWHM と層数との相関関係が報告されており、それからも Si 面試料のグラフェン層が 1 層であることを示唆している [4]。

C 面, Si 面 1 層グラフェンと市販の HOPG 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 C 面 1 層グラフェンの過渡吸収スペクトルを示す。正の吸収が見られ、これは励起光によって伝導体に励起した電子をプローブ光によって観測しているものと考えられる。Fig. 3 に観測波長 1200 nm における C 面, Si 面 1 層グラフェン及び HOPG の過渡吸収ダイナミクスを示す。C 面 1 層グラフェン, HOPG 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 230 fs (72%), 420 fs (56%), 遅い緩和成分の時定数  $\tau_3$  はそれぞれ 2.07 ps (28%), 2.95 ps (44%) であった。速い緩和成分  $\tau_2$  は電子と光学フォノン間の結合によるもので、遅い緩和成分  $\tau_3$  はホットフォノン効果による励起光強度依存性がある [5]。C 面 1 層グラフェンでは基板とグラフェン層の間にバッファ層がないため、基板との相互作用が小さい。そのため、C 面 1 層グラフェンと HOPG のダイナミクスの違いはグラフェン層数による影響が大きく関わっていると考えられる。また、Si 面 1 層グラフェンでは超高速減衰が支配的であり、時定数は 60 fs であった。今回、C 面, Si 面グラフェンどちらも 1 層にも関わらず、ダイナミクスに大きな違いが現れた。これは、バッファ層による基板とグラフェンの強いカップリングが追加の緩和過程を生み出し、これがホットフォノン効果を減少させ、超高速減衰が支配的になる原因と考えられる。同様の試料の励起光強度依存性についても報告し、ホットフォノンとバッファ層の関係を明らかにする予定である。

#### 【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., *Acta Physica Polonica A*, **116** (2009) 835.
- [4] Lee D.S. et al., *Nano Lett.*, **8** (2008) 4320.
- [5] L. Huang et al., *Surface Science*, **605** (2011) 1657.

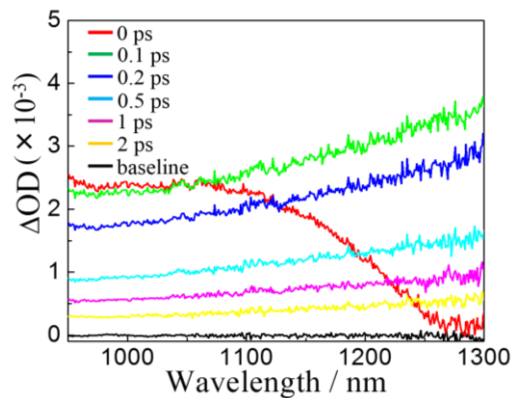


Fig. 2 励起波長 800 nm, 励起光強度  $1 \text{ mJcm}^{-2}$  での C 面 1 層グラフェンの過渡吸収スペクトル

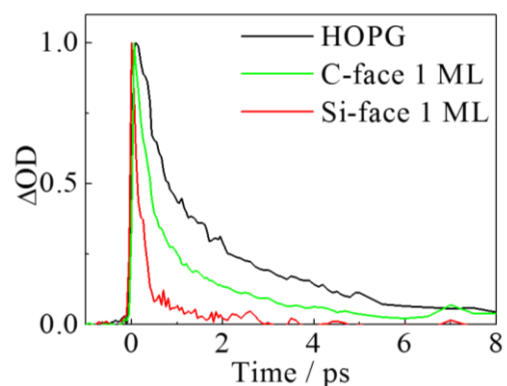


Fig. 3 C 面, Si 面と HOPG での比較。励起光強度  $1 \text{ mJcm}^{-2}$ , 観測波長 1200 nm での過渡吸収ダイナミクス