

エピタキシャル成長したMoSe₂超薄膜のラマン分光Raman spectroscopy of epitaxially grown ultrathin MoSe₂ films

NTT物性基礎研, °小野満恒二, Aleksandra Krajewska, Ryan Neufeld, 前田文彦, 熊倉一英, 山本秀樹

NTT BRL, °K. Onomitsu, A. Krajewska, R. Neufeld, F. Maeda, K. Kumakura and H. Yamamoto

E-mail: onomitsu.koji@lab.ntt.co.jp

遷移金属ダイカルコゲナイド(TX₂)は、グラファイトに代表される層状物質の一つで、弱いvan der Waals力で層間が結合している。TとXの組み合わせによって絶縁体、半導体、金属とさまざまな性質を示す物質が存在する[1]中で、我々は半導体のMoSe₂に注目して研究を進めている。これまで、GaAs(111)B基板上に、原子層ステップが確認できる平坦なGaAsバッファ層を成長し、その表面をSe終端した後、ウエハスケールで層数制御したMoSe₂薄膜を成長したことを報告してきた[2]。今回、層数の異なるMoSe₂に対してラマン分光測定を行い、その層数依存性を調べたので報告する。

測定は、Se終端GaAs(111)B上に成長した1層から4層のMoSe₂に加え、1層に満たない状態で成長を止めた試料、さらに参照試料としてSe終端GaAs(111)Bに対して行った(図(a), (b))。剥離法により作製された試料で報告されている285cm⁻¹付近のE_{2g}モードのピークは、今回測定した試料ではGaAs(111)BのLOおよびTOフォノンピークに隠れて観測することができない。図(b)はA_{1g}モードのピーク付近の拡大図である。MoSe₂の層数が増えると、層間相互作用により、ラマンアクティブモードであるA_{1g}モードのピークが高波数側にブルーシフトすること、対称性の複雑化からスプリットすることが知られている[3]。図(b), (c)のように、今回の測定結果でも、A_{1g}モードのピークは、層数が増えるにしたがって、240.5cm⁻¹から241.7cm⁻¹にブルーシフトすることが確認できた。しかし、ピークの明確なスプリットは確認できなかった。これは、今回用いた試料は面内で局所的に次の層の初期形成核を含んでおり、観察したスペクトルでは±1層程度揺らいでいるMoSe₂からのスペクトルが重畳しているため考えられる。

超薄膜に関する実験から、1層にわずかに満たないMoSe₂試料は、A₁'モード(単層の場合はA_{1g}モードと区別される)のピークは観測できないが、1層をわずかに超えたMoSe₂試料ではA_{1g}モードが観測できることがわかった。更に、数層の試料からは並進対称性の乱れによって、353cm⁻¹付近にバルク試料では観測されないピークが現れるとする報告があるが[3]、今回の測定では、いかなる層数の試料に対しても353cm⁻¹付近にピークは観測されなかった。

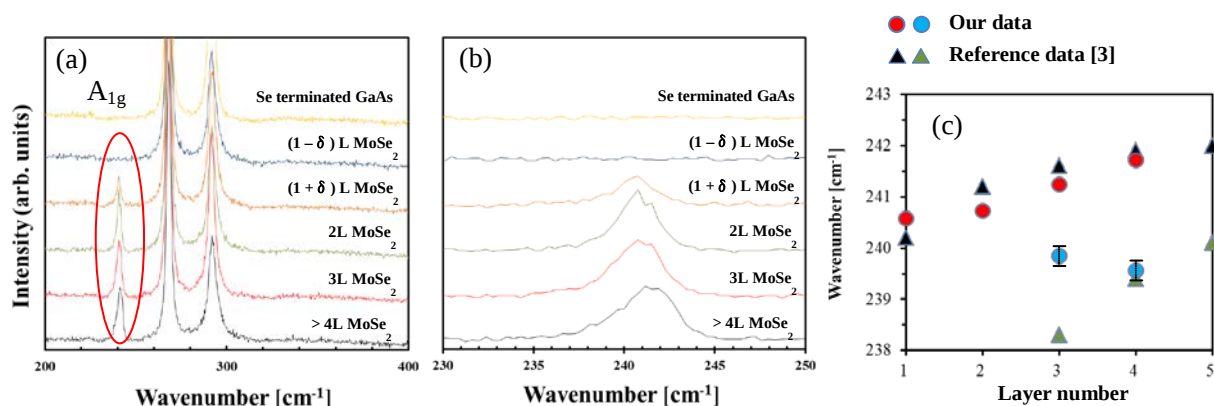
[1] J. Wilson, A. Yoffe, *Adv. Phys.* **18**, 193 (1969). [2] 小野満恒、第75回応用物理学会秋季学術講演会 18p-B3-9.[3] P. Tonndorf *et al.* *Opt. Express* **21**, 4908 (2013).

Figure (a) layer number dependence of Raman spectra in MoSe₂. Figure (b) Magnified view around A_{1g}. Figure (c) Layer number dependence of peak position of A_{1g}. Peak positions (circles) were determined by fitting. Spectra were fitted as a single peak for 1L and 2L. Spectra were fitted as double peaks for 3L and 4L. Reference data obtained from reported spectra [3] are also indicated by triangles.