レーザー誘起成長により形成された SiC(0001) 上グラフェンの成長過程観察

Observation of growing process of graphene on SiC (0001) formed by laser-induced growth

九州大学¹, NTT物性基礎研²[○]服部正和¹, 池上浩¹, 中村大輔¹, 岡田龍雄¹, 古川一暁², 高村真琴², 日比野浩樹² Kyushu Univ¹., NTT Basic Research Labs.²

•M. Hattori¹, H. Ikenoue¹, D. Nakamura¹, T. Okada¹, K. Furukawa², M. Takamura², H. Hibino² E-mail: ikenoue@ees.kyushu-u.ac.jp

1. 序論

グラフェンは炭素の sp²結合によって構成され た蜂の巣状の 2 次元周期構造をもつ平面状の物 質で,200,000 cm²/Vs の高いキャリア移動度,及 び極めて優れた導電性、耐熱性,透明性を有し, 特異なバンドギャップレス特性を示すことから, 次世代電子デバイス材料として期待されている.

グラフェンの作製方法として, CVD 法やSiC 熱 分解法があるが, CVD 法では成長に触媒金属が 必要となる. そこで我々は, 触媒金属を用いず絶 縁基板上に直接グラフェンを形成し得る技術と して SiC へのレーザー照射によるグラフェン形 成法を提案している.本グループによるこれまで の実験で, Ar 雰囲気にて SiC (0001)上に KrF エ キシマレーザーを照射すると照射領域でグラフ ェンが形成されることを示してきた[1,2].

本報告では本技術を用いて SiC (0001)上にマ イクロサイズのLine & Space (L&S)パターンを作 製し, グラフェン形成領域を電流検出型 AFM 及 びTEM で観察することでレーザー照射における グラフェンの成長過程を観測した.

2. 実験

用いたレーザーはギガフォトン社製エキシマレ ーザーで,波長は248 nm,パルス幅は約55 nsで あった.レーザービームはXYスリットにより形 状制御され,その形状は試料面上で4 μm×350 μmであった.SiC(0001)基板を真空槽内に設置し, 分圧500 PaのAr雰囲気にてレーザーを照射した. L&Sパターンは,幅4μmのビーム短軸方向に8 μmピッチで走査しつつレーザーを照射すること で作製した.形成したグラフェンの膜質をラマン 分光法で評価し,パターン形状はラマン顕微鏡及 び電流検出型 AFM で観察した.

3. 結果

Fig.1 にフルエンス 1.2 J/cm², 照射回数 5000 shots でレーザー照射を行った後の照射領域のラ マンスペクトルを示す.スペクトル中にグラフ エンの sp²結合の存在を示す G 及び 2D ピークが 観測されることが分かる.このことからレーザ 一照射領域において SiC 表面から Si が脱離し, 表面に残留した C によりグラフェンが形成され ると結論する.また sp²結合の欠陥を示す D ピー クと G ピークの強度比から見積もられたグラフ エンのグレインサイズは 20-30 nm[3]であった. Fig.2 にレーザー照射後の SiC(0001)基板の 2D ピーク強度マッピングを示す.レーザー照射領 域のみにおいて 2D ピークが見られることから L&S が形成されていることが確認された.

次にグラフェン形成領域を電流検出型 AFM で 観察した結果, Fig.3 に示すような約30 nmの電流 スポットの集合体が観測された.この大きさは ラマンスペクトルから見積もられるグレインサ イズと一致しており,グラフェンの核成長の過 程を観察していると思われる.さらに断面 TEM でグラフェン形成領域を観察した結果 Fig.4 に 示すように 5000 shots で2層のグラフェンが形 成されており.照射回数を 10000 shots にすると 層数は5~7層に増加することが分かった.

以上の結果からグラフェン形成初期では約 30 nm の大きさの2層グラフェンが形成されている と考えられる.10000 shots の時のラマンスペクト ルから見積もられるグレインサイズが約 50 nm と 5000 shots の時より大きくなっていることか ら,照射回数を増やすと層数の増加に伴いグレ イサイズも大きくなると考えられる.





Raman shift (cm⁻¹) Fig.1 Raman spectrum of laser irradiated area.



Fig.3 Current image of graphene forming area (Sample voltage=-0.3 V)

Fig.2 2D peak intensity mapping.



Fig.4 TEM image of graphene formation area

- [1]服部正和 等, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 17p, S9, 9(2014).
- [2] M. Hattori et al, International Conference on Diamond and Carbon Materials, P1.094 (2014).
- [3] L.G.Cancad et al, Appl Phys Lett 88, 163106(2006).