

グラフェン CVD 成長における核発生と基板形状の *in-situ* 観察

In-situ observation of nucleation and substrate morphology in CVD growth of graphene

東大理¹、筑波大数理²、東大新領域³ ○平良 隆信¹、寺澤 知潮²、小幡 誠司³、斉木 幸一朗^{1,3}

Univ. of Tokyo^{1,3}, Univ. of Tsukuba² ○Takanobu Taira¹, Tomoo Terasawa², Seiji Obata³, Koichiro Saiki^{1,3}

E-mail: taira@epi.k.u-tokyo.ac.jp

【序】大面積・高品質な単層グラフェンの作製を目指して Cu 基板上での CVD が広く研究されている。我々はこれまでにグラフェン CVD において、原料である CH₄ の供給と停止によってグラフェンの成長と除去が起こること[1]、Cu 箔基板の加熱・グラフェン成長・除去のサイクルの繰り返しでグラフェンの核密度が減少すること[2]を示してきた。しかし核密度の減少の原因については未解明であった。そこで本研究では、箔よりも表面状態が制御しやすい Cu 単結晶を基板に用いて、上記サイクルに伴う基板表面の形状変化と核密度を *in-situ* で観察し、両者の相関を評価した。

【実験】背圧 0.2 Pa まで排気した真空槽で、研磨した Cu(100)および Cu(111)単結晶を基板として、Ar/H₂/CH₄=1000/100/5 sccm、全圧 2700 Pa、基板温度 950 °C の条件でグラフェンを成長させた。CH₄ の供給を止めてグラフェンを除去した後、同一の基板を 3 時間加熱して、再び CH₄ を供給し、グラフェンを作製した。上記サイクルを繰り返した時の核密度を熱放射光学顕微鏡法[1]により評価した。このとき基板を一定時間毎に照明することで基板表面の反射光光学顕微鏡像も撮影し、基板表面の形状変化を観察した。

【結果】上記サイクルを 4 回繰り返した後の Cu(111)基板上に、CH₄ を 1 時間供給して基板上をグラフェンで完全に被覆した後に供給を止め、10 時間かけてグラフェンを除去した。供給停止から 2 時間後の熱放射光学顕微鏡像と反射光光学顕微鏡像を Fig. (a), (b)に示す。グラフェンが除去された領域 ((a)の黒色部分) は反射光光学顕微鏡像では凹部として観察された。供給停止から 10 時間後に、同じ位置で撮影した反射光光学顕微鏡像を Fig. (c)に示す。グラフェンが除去されるにつれて、その箇所から基板表面が凹状に変化し、基板全体にマクロな凹凸が増加していく様子が観察された。当日は核密度と基板形状の相関についても議論する予定である。

[1] T. Terasawa and K. Saiki, *Nat. Commun.* **6**, 6834 (2015).

[2] 寺澤、平良、斉木 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会 14p-2T-12 (2015).

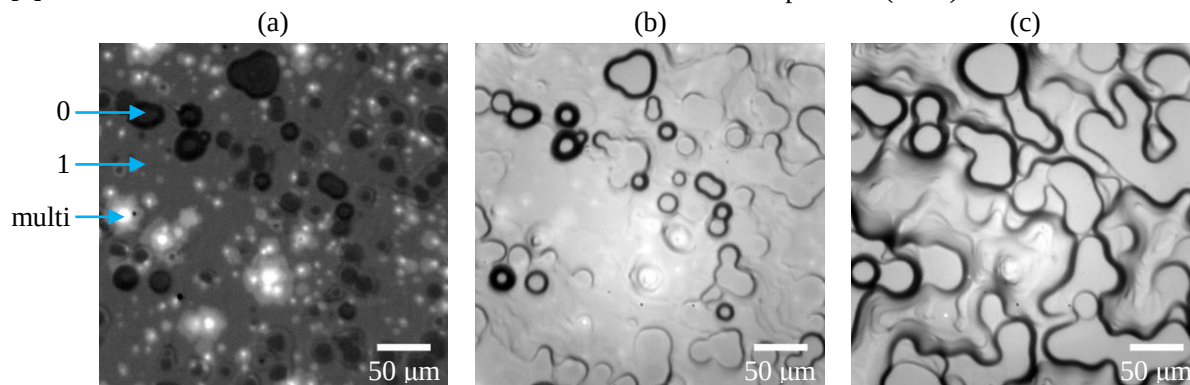


Fig. (a) Radiation-mode optical micrograph on Cu(111) substrate at graphene shrinkage time of 2 h after full coverage. Arrows show layer numbers of graphene. (b), (c) Reflection-mode optical micrograph on Cu(111) substrate at graphene shrinkage time of 2 h and 10 h after full coverage respectively, showing substrate morphology at the same place as (a).