

酸素アニールがグラフェン CVD 核発生に与える影響の *in-situ* 観察

In-situ observation of effect of oxygen annealing on nucleation in CVD graphene growth

東大院理¹, 東大新領域² ○平良 隆信¹, 小幡 誠司², 斉木 幸一郎^{1,2}

The Univ. of Tokyo^{1,2}, ○Takanobu Taira¹, Seiji Obata², Koichiro Saiki^{1,2}

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

【序】大面積の単結晶グラフェンの作製を目指して Cu 箔基板上での化学気相成長法(CVD)が広く研究されている。大面積の単結晶グラフェンを得るためにはグラフェンの核密度の低減が必要である。先行研究において、酸素アニールによる基板の前処理は効果的な核密度の低減手法であることが報告されている[1, 2]。我々はこれまでに、熱放射光学顕微(Rad-OM)法[3, 4]を用いて Cu 箔基板の前処理とグラフェン CVD 成長を *in-situ* 観察し、炭素不純物が核発生点であること[5]、Cu 箔内部からの炭素の拡散が核発生に寄与すること[6, 7]などを示唆してきた。本研究では、従来のグラフェン成長に加えて酸素アニール過程を *in-situ* 観察し、核発生に与える影響を評価した。

【実験】Cu 箔（レアメタリック、 $t = 50 \mu\text{m}$ ）を基板として使用した。前処理のアニールは、 O_2 雰囲気下で全圧 $5.7 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 、基板温度 700°C 、30 分 の条件で行った。グラフェン成長は $\text{Ar}/\text{H}_2/\text{CH}_4$ 750/200/1 sccm、全圧 $1.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ 、基板温度 970°C 、60 分 の条件で行った。また対照実験として、Ar 雰囲気下でアニールした Cu 箔を用いてグラフェン成長を行った。アニールおよびグラフェン成長の各過程を、Rad-OM 法および光学反射法でリアルタイム観察した。

【結果】 O_2 アニール開始直後、基板上に炭素不純物と思われる輝点が観察された(Fig. 1(a))。 O_2 アニール中にはこれとは別の輝点が大量に発生した(Fig. 1(b))。Ar アニール中には輝点の大量発生は見られなかった。基板を成長温度に昇温すると発生した輝点の多くは消失したが、残留した輝点の一部からグラフェンの核発生が見られた。グラフェンの核密度は O_2 アニール後の成長の方が Ar アニール後の成長よりも低かった(Fig. 2)。当日は、全ての輝点と核発生点との相関を解析した結果について議論する予定である。

[1] Y. Hao *et al.* *Science* **342**, 720 (2013). [2] J. Kraus *et al.* *Carbon* **96**, 153 (2016).

[3] T. Terasawa and K. Saiki, *Nat. Commun.* **6**, 6834 (2015). [4] 斉木, 寺澤, 応用物理 **85**, 485 (2016).

[5] T. Taira, S. Obata, and K. Saiki, *Appl. Phys. Express* **10**, 055502 (2017).

[6] T. Taira, S. Obata, and K. Saiki, *Appl. Phys. Express* **10**, 075503 (2017).

[7] 平良, 小幡, 斉木, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 16p-B6-13 (2017).

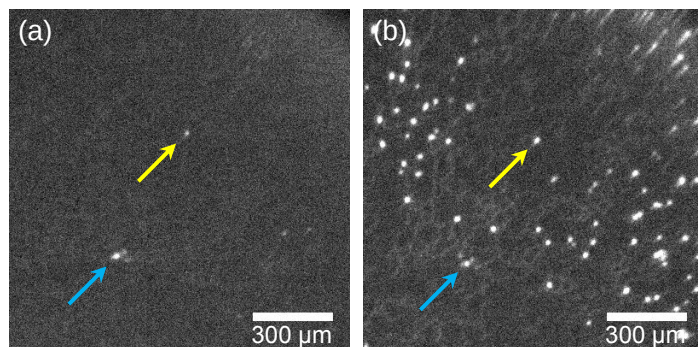


Fig. 1. Rad-OM images of a Cu foil substrate (a) at the beginning of, (b) during O_2 annealing. Yellow and blue arrows denote the same bright spot on the substrate, respectively.

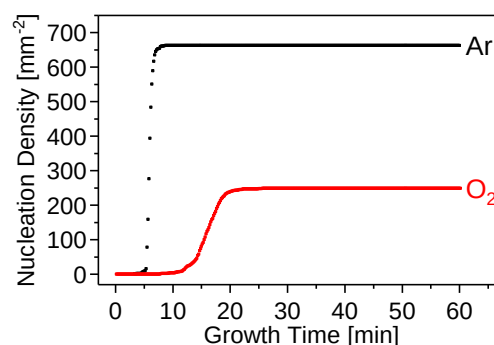


Fig. 2. Time evolution of graphene nucleation density. Black and red plots indicate the nucleation density of the growth after Ar and O_2 annealing, respectively.