グラフェン成長過程のその場表面観測と解析

Surface Monitoring and Analysis in Graphene Growth

京都工繊大　○河村 侑馬、石徹白 智、野々村 秋人、川上 栞生、林 康明
Kyoto Inst. Technol.
○Yuma Kawamura, Satoshi Ishidosiro, Akito Nonomura, Kansei Kawakami, Yasuaki Hayashi
E-mail: hayashiy@kit.ac.jp

はじめに　結晶性の高い単層グラフェンを、デバイスプロセスに適した低温で作製する技術は未だ確立されていない。これまで、マグネトロンプラズマ CVD（化学気相堆積）装置を用いて、比較的低温でグラフェンの成長を行ってきた[1,2]。しかし、熱 CVD 法に比較してドメインサイズが小さく結晶性に課題がある。私達は、成長基板の表面状態をその場で観測し解析・制御することが重要であると考えている。今回、偏光を用いた簡単なモニタリング方法として、表面反射光が消光状態から徐々に変化する過程を光強度変化として観測し、表面状態変化の解析を行った。

実験方法　グラフェンの成長には、RF マグネトロンプラズマ CVD 装置[1]を用いた。マグネトロン電極と基板（接地電位）との間隔を 50mm とし、基板には、シリコンウェーハ、または、その上にスパッタリング法で堆積した鏡面状の銅薄膜を用いた。H_2 プラズマによる基板前処理後、原料ガスに C_2H_4 と H_2（流量それぞれ 4, 2 sccm）を用い、圧力を 5.5 Pa、基板温度を 680 ℃、RF パワーを 100W として成長を行った。表面状態のモニタリングには、消光方式の偏光解析装置を用いた。波長 532nm のレーザーを光源とし入射角約 70°の方向から直線偏光を試料表面に照射し、反射光を 1/4 波長板と検光子を通してイメージセンサで動画像として記録した。

実験結果　水素前処理から成長終了までのグラフェンの成長過程において、シリコン基板表面での反射光強度の変化を Fig. 1 に示す。水素プラズマ前処理後に、光強度のゆるやかな増加が確認できる。水素プラズマ前処置を 5 分間行った後、成長ガスを導入して放電を開始し、CVD 成長を 5 分間行った。ガス導入直後から光強度が大きく増加し、プラズマ発生後にさらに増加して、表面状態が変化したことがわかる。成長を行った試料表面のラマン分光分析の結果を、Fig.2 に示す。Fig.2 より G ピーク、2D ピークを確認することができ、基板表面に多層グラフェンが成長していることがわかる。これより、グラフェンの成長開始が反応ガス導入時に開始していた可能性も示唆される。

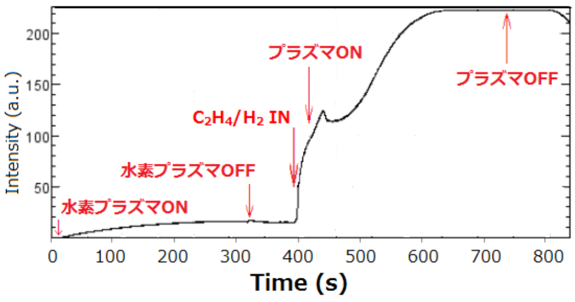

Fig.1　Evolutions of light intensity during growth.

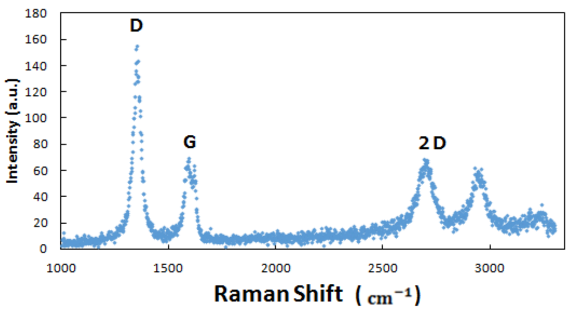

Fig.2　Raman spectrum of graphene film.

1)　M. Kawano,S. Yamada, and Y. Hayashi.: Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 06HC04
2)　石徹白、山田、河村、林：2016 年秋季応用物理学会講演会, 16a-B7-3.