プラズマ酸化を援用した 低ピット密度グラフェン形成の起源

Origin of Graphene Formation with Low Pit Density

Assisted by Plasma Oxidation

阪大院工 ⁰南 映希, 伊藤 亮太, 佐野 泰久, 川合 健太郎, 山村 和也, 有馬 健太

Osaka Univ., ^OOuki Minami, Ryota Ito, Yasuhisa Sano, Kentaro Kawai, Kazuya Yamamura, Kenta Arima

E-mail: minami@pm.prec.eng.osaka-u.ac.jp

転写を必要としないSiC熱分解法で形成したグラフ エンには、SiC上のC原子の不足により、ピットと呼 ばれる欠陥が生成される¹⁾。我々は既に、室温でのプ ラズマ酸化とウェットエッチングにより、表面にC原 子一層分のC堆積層を有するSiC基板を真空中で加熱 することで、低ピット密度グラフェンの形成に成功し ている²⁾。以降、このC堆積層を形成する手法をプラ ズマ酸化プロセスと呼び、形成したグラフェンをプラ ズマ酸化援用グラフェンと呼ぶ。本稿では、プラズマ 酸化援用グラフェンの評価とその起源を調査した。

試料基板として、3 インチの n 型 4H-SiC(0001)(抵 抗率 0.018 Ωcm)を用いた。これを 2×7 mm²に切り出 した後、チャンバー内に導入し 8 Pa まで真空排気を行 った。そして、微量の O₂ ガスを含有する He ガスを大 気圧まで充填し、室温で He をベースにしたプラズマ を照射した。このプラズマ照射後には、SiC 表面に nm オーダーの SiO₂膜が形成される。更に、得られた試料 を HF に浸漬して SiO₂膜を除去し、SiC 基板表面に C 堆積層を形成した。この際、プラズマ酸化時間と、酸 化膜厚、及び C 堆積層膜厚には、正の相関があること を XPS によって確認している。次に、C 堆積層を有す る SiC 基板を別のチャンバーに移し、2.0×10⁻⁸ Pa まで 真空排気を行った。その後、1100℃、30 分の通電加熱 によりグラフェンを形成した。

図1にプラズマ酸化援用グラフェンと未処理グラフ ェンのラマンスペクトルによる分析結果を示す。グラ フェンを評価する際、グラフェン中のsp²結合を示すG ピーク、欠陥密度を示すDピーク、層数を示す2Dピ ークを比較する。図1(a)は、欠陥密度(D/G比)を示 しており、プラズマ酸化援用グラフェンが0.12~0.36、 未処理グラフェンが0.25~0.48であった。また、図1(b) の2D半値幅から、プラズマ酸化援用グラフェンは44 ~67 cm⁻²、未処理グラフェンは41~62 cm⁻²となった。 SiC上のグラフェンは、2D半値幅が40 cm⁻²以上の時、 2 層、もしくは多層であることが知られている。以上 の結果から、未処理グラフェンに比べてプラズマ酸化 援用グラフェンは欠陥密度が低減し、層数については 大きな差異は無いと考えられる。

図 2(a)は未処理 SiC 表面、図 2(b)、(c)は C 堆積量が 異なる SiC 表面の AFM 像である。酸化前(図 2(a)) に見えたステップ構造が、酸化時間に依存する C 堆積 量の増加に伴い、不鮮明になることを確認した。更に これらの試料をグラフェン化したところ、未処理グラフェン(図 3(a))に比べ、図 3(b)、(c)では、プラズマ酸化時間の増加とともに、ピットが抑制された表面構造を得た。以上の結果から、プラズマ酸化プロセスにより SiC 上に C 堆積層が存在する場合、C 堆積層が緩衝層を均一に形成し、Si の不均一な脱離を抑制することでピットが抑制されたと考えている。





図 2 プラズマ酸化プロセス前後の SiC 表面構造の変化 (a)未処理 SiC、プラズマ酸化時間(b)1 分、(c)10 分



図3 プラズマ酸化時間とグラフェン表面構造の変化 (a)未処理 SiC、プラズマ酸化時間(b)1分、(c)10分

謝辞

本成果は、文部科学省ナノテクノロジープラットフ オーム(大阪大学ナノテクノロジー設備供用拠点) (S-17-OS-0035)の支援を受けて実施されました。

参考文献

- 1) J.B. Hannon et al., Phys. Rev. B, 77 (2008) 241404.
- 2) N. Saito et al., Carbon, 80 (2014) 440.