

グラフェンCVD成長におけるホットフィラメント効果の熱放射顕微観察

Rad-OM observation of effect of hot filament in CVD growth of graphene

東大院理¹, 東大新領域² ○平良 隆信¹, 篠原 拓也², 小幡 誠司², 斉木 幸一朗^{1,2}

The Univ. of Tokyo^{1,2}, °Takanobu Taira¹, Takuya Shinohara², 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核密度の低減が必要である。さらに最近の先行研究では高速成長の手法[1]が提唱されており、効率が重要視されている。ホットフィラメントは反応効率を高める手法と考えられるが、その効果についての先行研究[2]は少ない。我々はこれまでに、熱放射光学顕微(Rad-OM)法[3, 4]を用いてグラフェン CVD 成長を *in-situ* 観察し、炭素不純物が核発生源であること[5, 6]、酸素アニールが核発生に寄与すること[7]などを示してきた。本研究では、ホットフィラメントを用いたグラフェン CVD 成長を *in-situ* 観察し、核発生および成長速度に与える効果を評価した。

【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。基板を Ar 雰囲気下のアニールおよび Ar イオン照射で前処理した後、Ar/H₂=750/200 sccm、全圧 $1.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ 、基板温度 970°C の条件にした。また、基板の上流に設置した W フィラメント（ニラコ、 $\phi = 0.35 \text{ mm}$ ）に 8 A の電流を流し約 1600°C に加熱した。CH₄ の流量を 0 sccm から 0.1 sccm ずつ増やしていき、核発生が起きる下限の流量を求めた。また対照実験として W フィラメントを室温にした条件での成長も同様に行った。各成長を Rad-OM 法でリアルタイム観察し、成長速度を評価した。

【結果】W フィラメントが室温の条件では、核発生が起きる CH₄ の流量は 0.6 sccm であったが、 1600°C に加熱した条件では 0.4 sccm であった。各流量での成長時の熱放射像を Fig. (a), (b) に示す。これらの動画から核発生源とドメインの頂点との距離（矢印）の変化を測定した結果を Fig. (c) に示す。成長速度は、W フィラメントが室温および 1600°C の条件で、それぞれ $0.91 \mu\text{m}/\text{min}$, $3.1 \mu\text{m}/\text{min}$ であった。以上より、ホットフィラメントはグラフェンの核発生と成長の両方を促進するが、成長を加速する効果の方が高く、核密度を低く保ちながら成長を高速化できる可能性がある。

[1] X. Xu *et al.* *Nat. Nanotechnol.* **11**, 930 (2016). [2] N. Selvakumar *et al.* *Appl. Phys. A* **122**, 943 (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 *et al.* *APEX* **10**, 055502 (2017). [6] T. Taira *et al.* *APEX* **10**, 075503 (2017). [7] 平良, 小幡, 斉木, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 7p-C16-17 (2017).

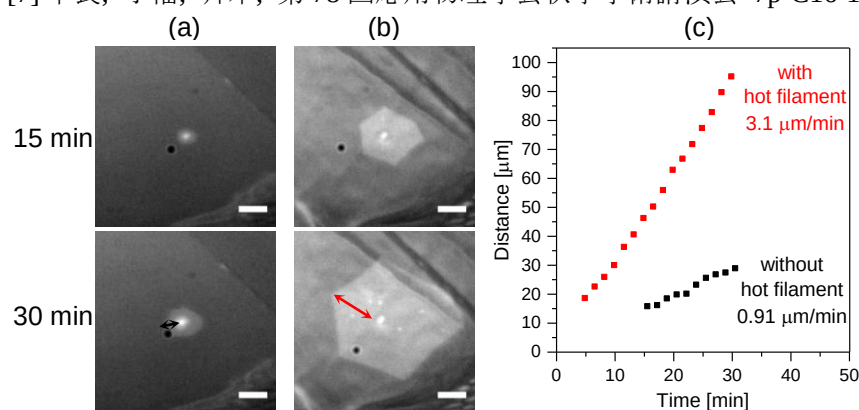


Fig. Rad-OM images of the graphene growth at 15 and 30 min (a) without and (b) with hot filament. White area corresponds to graphene. Black and red arrows denote the measured distance between nucleation site and an apex of the grain. Scale bar: 50 μm. (c) Time evolution of the distance. Black and red plots indicate the distance of the growth without and with hot filament, respectively.