リモート酸素プラズマ照射によるグラフェンの layer-by-layer エッチング過程のその場透過電子顕微鏡観察

In-situ transmission electron microscopy observation of layer-by-layer etching of graphene under remote oxygen plasma irradiation

名大院工[1]，名大未来材料・システム研究所[2],名大未来社会創造機構[3]

○杉浦 啓嗣[1]，近藤博基[1]，樋口 公孝[2]，荒井 重勇[2]，堤 孝嘉[1]，石川 健治[1]，堀 勝[3]

Nagoya Univ.[1], Nagoya Univ. IMaSS[2], Nagoya Univ. Inst. of Innovation for Future Society[3]

○Hirotsugu Sugiura[1], Hiroki Kondo[1], Kimitaka Higuchi[2], Shigeo Arai[2], Takayoshi Tsutsumi[1], Kenji Ishikawa[1], Masaru Hori[3]

E-mail: sugiura.hirotsugu@h.mbox.nagoya-u.ac.jp

グラフェンはその層数によって特異的な光学的透過率、キャリア移動度などの特徴を示す。したがって、グラフェンの層数制御はグラフェンのデバイス作成のために重要な課題である[1]。層数制御方法として酸素プラズマエッチングが報告されているが、そのエッチング機構は未だ明らかとなっていない。精密な層数制御のためには、エッチング機構の解明が必要である。そこで本報告ではエッチング機構の解明に向け、透過電子顕微鏡(TEM)内でプラズマ照射を行うことが可能なサンプルホルダーを独自に開発し、リモート酸素プラズマ照射によるグラフェンの layer-by-layer エッチングのその場 TEM 観察を行った。

図 1 は、本実験に用いたプラズマ照射下その場 TEM 観察システムの概略図である。TEM は名古屋大学・超高圧電子顕微鏡施設の反応科学超高圧走査透過電子顕微鏡 JEM 1000K RS を用い、加速電圧 1 MeV で TEM 観察を行った[2]。本 TEM は環境セルを備えており、ガス雰囲気下での観察が可能である。サンプルホルダー後方から、開発したマイクロ波励起のリモートプラズマユニットを挿入し、酸素ガス 1 sccm, 4.6 Pa の条件下でマイクロ波 20 W を印加し、試料から 5 cm 離れた位置でプラズマを生成して、リモート酸素プラズマ照射を行った。グラフェン試料は、単結晶グラファイトから剥離したものを粉砕し、Cu シートメッシュに載せた。

図 2 は、リモート酸素プラズマ照射を 0、30 および 60 分間行った後のグラフェンの TEM 像である。照射時間の増加に伴い、エッジ部分の後退、グラフェン領域と真空領域のコントラスト差の減少が確認され、エッジ方向と層方向のエッチングの同時進行が直接観察された。

本手法により、リモート酸素プラズマ照射によるグラフェンエッチングその場 TEM 観察が可能であることが示された。講演では、電子エネルギー損失分光法、電子線回折像から層方向のエッチング過程について更なる考察をする。

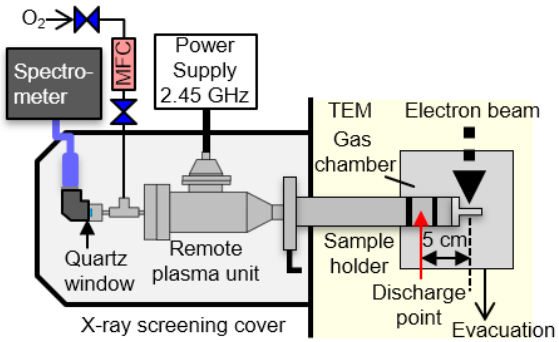

Figure 1 Schematic of experimental setup with reaction-science TEM chamber and the environmental cell (gas chamber), equipped with the newly-developed remote-type plasma source.

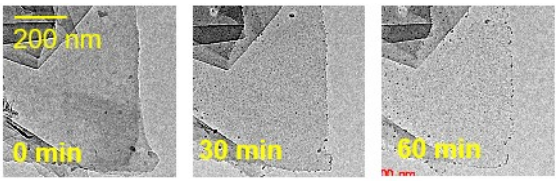

Figure 2 TEM images of graphenes after remote oxygen plasma irradiations for 0, 30, and 60 min, which came from the bottom-left corner in each figure.

Reference

1) C.-M. Seah, B. Vigolo, S.-P. Chai, and A.R. Mohamed, Carbon N. Y. **105**, 496 (2016).
2) N. Tanaka, J. Usukura, M. Kusunoki, Y. Saito, K. Sasaki, T. Tanji, S. Muto, and S. Arai, Microscopy **62**, 205 (2013).

© 2019年 応用物理学会