

**熱放射光学顕微法および放射光 XPS による  
グラフェン CVD 成長における水素の効果の in-situ 観測**  
**In-situ Observation of Effect of Hydrogen on CVD Growth of Graphene  
by Radiation-mode Optical Microscopy and Synchrotron Radiation XPS**  
 東大物性研 °平良 隆信, 崔 永賢, 土原 悠, 向井 孝三, 田中 駿介, 吉信 淳  
 ISSP, The Univ. of Tokyo, °Takanobu Taira, Younghyun Choi, Yu Tsuchihara,  
 Kozo Mukai, Shunsuke Tanaka, Jun Yoshinobu  
 E-mail: taira@issp.u-tokyo.ac.jp

【序】工業応用を目指したグラフェンの化学気相成長(CVD)では、基板として Cu 箔、原料ガスとして CH<sub>4</sub> を用い、CH<sub>4</sub> と同時に H<sub>2</sub> も供給するのが一般的である。H<sub>2</sub> の効果として、グラフェンをエッチングする[1]、グラフェンのグレイン形状を変化させる[2]などが報告されているが、H<sub>2</sub> がグラフェン成長に与える効果とその機構については明らかではない。そこで本研究では、熱放射光学顕微(Rad-OM)法[3-6]によるグラフェン CVD 成長のリアルタイム観察、および in-situ 放射光 XPS による CVD 停止後の基板測定を行い、H<sub>2</sub> がグラフェン成長に与える効果を評価した。

【実験】Cu 箔を基板とし、真空中アニールと Ar イオン照射で前処理した。H<sub>2</sub> 有りおよび H<sub>2</sub> 無しの条件での CVD をそれぞれ別の基板で行い、その後 H<sub>2</sub> 中で加熱した。H<sub>2</sub> 有り CVD は Ar/H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>=750/200/2 sccm, 2 分、H<sub>2</sub> 無し CVD は Ar/H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>=950/0/2 sccm, 2 分、H<sub>2</sub> 中加熱は Ar/H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>=750/200/0 sccm, 15 分で、いずれも全圧  $1.0 \times 10^4$  Pa、基板温度 950 °C の条件で行った。KEK PF BL-13B にて、各過程を Rad-OM 法で観察し、各過程停止後に in-situ XPS 測定を行った。

【結果】H<sub>2</sub> 有りの CVD、H<sub>2</sub> 無しの CVD とともに炭素の発生と成長が Rad-OM 法により観察された (Fig. 1 (a), (c)) が、炭素量は H<sub>2</sub> 無しの条件の方が多かった。XPS 測定からも同様の傾向が見られた (Fig. 2 (a), (b))。その後の H<sub>2</sub> 中加熱で炭素は光学観察下限以下の大きさになった (Fig. 1 (b), (d)) が、XPS 測定からは炭素が検出された (Fig. 2 (a), (b))。これらの結果は H<sub>2</sub> による炭素のエッチング効果を示している。当日は H<sub>2</sub> がグラフェン核発生に与える効果についても議論する予定である。

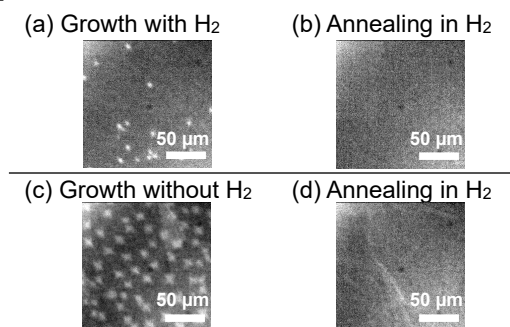
[1] Y. Zhang *et al.* *ACS Nano* **6**, 126 (2012).

[2] P. Zhao *et al.* *Nanoscale* **8**, 7646 (2016).

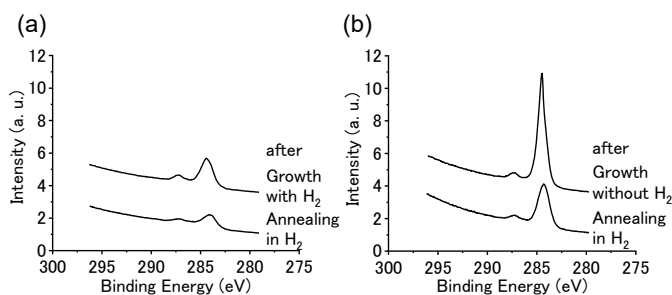
[3] T. Terasawa and K. Saiki, *Nat. Commun.* **6**, 6834 (2015). [4] 斉木, 寺澤, 応用物理 **85**, 485 (2016).

[5] T. Taira, T. Shinohara, S. Obata, and K. Saiki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SIIB24 (2019).

[6] 平良, 崔, 土原, 中野, 向井, 田中, 吉信 第 67 回応用物理学会春季学術講演会 14p-A403-17 (2020).



**Fig. 1.** Rad-OM images of the graphene growth (a) with H<sub>2</sub> and (c) without H<sub>2</sub>, and (b), (d) subsequent annealing in H<sub>2</sub>, respectively. White area in (a) and (c) correspond to carbon species.



**Fig. 2.** XPS C1s spectra ( $h\nu=330$  eV) (a) after growth with H<sub>2</sub> and subsequent annealing in H<sub>2</sub>, and (b) after growth without H<sub>2</sub> and subsequent annealing in H<sub>2</sub>, respectively.