

グラフェンオンシリコンの酸素との反応によるグラフェンナノリボン形成過程のリアルタイム測定・面方位依存性

Realtime observation and surface orientation dependence of the reaction of oxygen with Graphene-on-Silicon to form graphene nanoribbon

原本直樹¹⁾ 猪俣州哉¹⁾ 三本菅正太¹⁾ 吉越章隆²⁾ 寺岡有殿²⁾ 吹留博一¹⁾ 末光真希^{1,3)}

Naoki HARAMOTO Syuya INOMATA Shota SANBONSUGE Akitaka YOSHIGOE Yuden TERAOKA

Hirokazu HUKIDOME Maki SUEMITSU

¹⁾東北大学 ²⁾原子力機構 ³⁾JST/CREST

4H-SiC(0001)基板上に成長させたエピタキシャルグラフェンに水素イオン照射を行い、水素イオンとグラフェン表面およびグラフェン/SiC 界面との反応を観察した。反応後および真空加熱後のグラフェンを LEED、XPS を用いたリアルタイム測定法により評価し、グラフェンと水素イオンの反応および真空加熱時における水素脱離過程を観測することに成功した。今後、グラフェン/SiC 界面に水素が挿入されるインターカレーション条件を探索し、水素によるグラフェン電子物性の制御法を確立したいと考えている。

キーワード : グラフェン 水素 LEED リアルタイム放射光光電子分光

1. 序論

カーボン原子層の2次元結晶であるグラフェンは、 $300,000 \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ という高移動度を示すため、次世代デバイス材料として大きな注目を集めている。グラフェンの実用化に関しては、Si 基板上 SiC 薄膜の熱改質によりシリコン基板上にエピタキシャルグラフェン (EG) を形成するグラフェン・オン・シリコン (GOS) 技術が一つの有力な解である[1]。GOS 技術の特徴の一つに、基板面方位と SiC 薄膜の組合せによってグラフェン物性を制御できることが挙げられる。このうち 3C-SiC(111)/Si(111)上 EG は 6H-SiC(0001)上 EG と同様のグラフェン形成過程とグラフェン構造を示すことがすでに知られており[2]、前者には後者と同様、SiC とグラフェン層の間に界面層が存在する。界面層はグラフェンと良く似た構造を有するが、層中の炭素原子の三分之一が下地の SiC と共有結合しており、6H-SiC(0001)上 EG においては、この共有結合が EG 中のキャリア移動度を低下させる要因の一つであると推論されている。界面層による移動度低下に対する解決策として、界面層の共有結合を水素を用いて開裂させる水素インターカレーション法が提案されている[3]。そこで本研究では、水素イオンを用いたイオン照射により GOS 上水素界面処理を試みることを最終目的とし、まずその予備実験として、4H-SiC 基板上 EG に水素イオン処理を行い、表面反応を低速電子回折法(LEED)、C1s 内殻光電子スペクトルのリアルタイム測定を用いて評価した。

2. 方法

4H-SiC基板上に形成したEGに対し、重水素(D₂)ガス、イオン源にArイオン銃を用いて電圧を印加し、 $2.85 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ の水素雰囲気下で水素イオン照射を行った。反応後のグラフェンをLEED、XPSを用いたリアルタイム測定法により評価した。

3. 結果及び考察

イオン照射前の LEED パターンを図 1(a)に、照射後の LEED パターンを図 1(b)に、加熱によるリアルタイム測

定後の LEED パターンを図 1(c)にそれぞれ示す。水素照射後の LEED パターン（図 1(b)）では、グラフェンと SiC 両者のスポットが消滅していることから、今回の実験では、期待していた水素のインターカレーションではなく、水素イオンにより表面がエッチングされて損傷し、グラフェンがアモルファス状になってしまったものと考えられる。

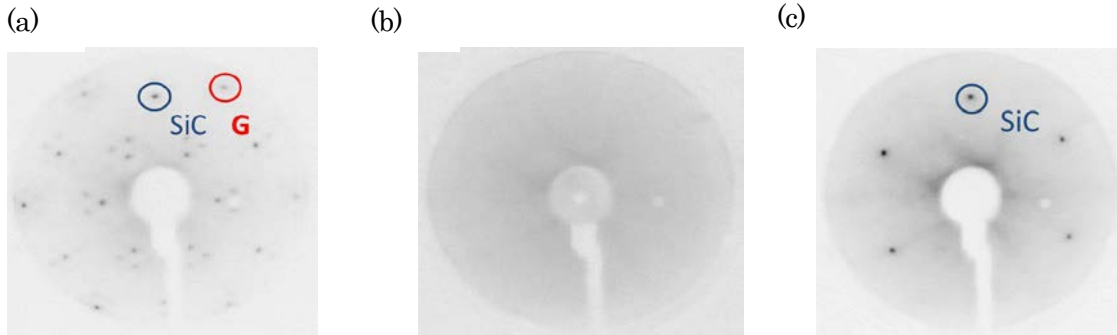


図 1 LEED パターン

次に水素イオン照射基板からの水素の熱脱離反応を観察するため、水素イオン照射したグラフェン付 SiC 基板を真空加熱し、C1s 内殻光電子スペクトルの「その場」測定を行った(図 2)。温度依存性を示す図 2(a)の測定結果より、温度が上昇するに連れて、SiC および sp^2 ピークが増加することから、水素の熱脱離が生じていることが確認できる。図 2(b)は、図 2(a)の 1000°C 加熱試料をさらに 1000°C で 60 分加熱したものであるが、ピークの変化はほとんどなく、図 2(a)の段階で水素脱離が終了したものと考えられる。図 1(c)では、基板を 1000°C まで加熱し水素が脱離したことにより、SiC に起因する LEED スポットが再び観測された。以上、本実験では、EG に対する水素イオン照射による表面構造変化を LEED で、表面化学結合状態の変化を XPS C1s 測定により「その場」評価する実験手法を確立し、とくに C1s を用いて水素脱離過程を検出することに成功した。今後、グラフェン下にインターカレーションを生じる水素イオンの照射強度の条件出し、並びにタングステンフィラメントによる原子状水素照射実験を行い、バルク基板 EG 並びに Si 基板上 EG (GOS) への水素インターカレーションを実現し、同過程の詳細な評価を行いたいと考えている。

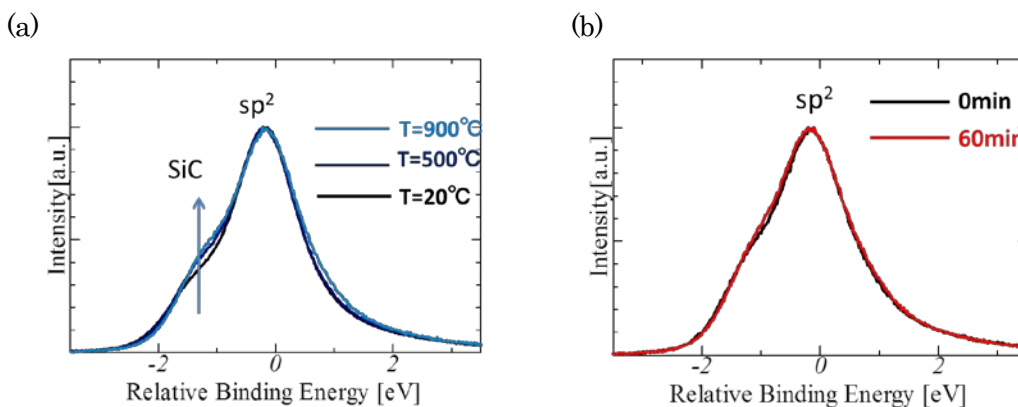


図 2 内殻準位スペクトル

4. 引用(参照)文献等

- [1] M. Suemitsu *et al.*, *e-J. Surf. Sci. Nanotech*, **7**, 311 (2009).
- [2] Takahashi *et al.*, *JJAP* (2011)
- [3] C. Riedl, C. Coletti, T. Iwasaki, A. A. Zakharov, and U. Starke: *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009) 246804