

グラフェン・オン・シリコンの水素との反応による界面処理の 角度分解・リアルタイム測定

Realtime and angle-resolved PES observation on the interface processing by
reaction of atomic hydrogen with epitaxial graphene formed on silicon substrates

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

Naoki HARAMOTO Syuya INOMATA Shota SANBONSUGE Yuya Murakami 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原子状水素照射を行い、原子状水素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、グラフェンと原子状水素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. 目的

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[1]、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[2]。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[3]、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の一が下地の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1つであると推論されている[4]。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おり[4]、もしこれがGOSに適用可能であれば、GOS技術の実用化に大いに資するものと期待される。一方、水素インターカレーション法における水素化カイネティクスについては、いまだ不明の点が多い。今回の実験では、GOSへの水素インターカレーション法の適用を念頭に、4H-SiC基板上EGに原子状水素照射を行い、その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、 $1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ の重水素雰囲気下、フィラメント $1400 \text{ }^\circ\text{C}$ にて原子状重水素を生成し、基板温度 $300 \text{ }^\circ\text{C}$ の4H-SiC基板上エピタキシャルグラフェンに120分間、原子状重水素を照射した。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

重水素照射前の LEED パターンを図 1(a)に、照射後の LEED パターンを図 1(b)にそれぞれ示す。重水素照射後の LEED パターン (図 1(b)) では、界面層に起因するスポットが弱くなっていることから、共有結合の開裂が進んだと考えられる。

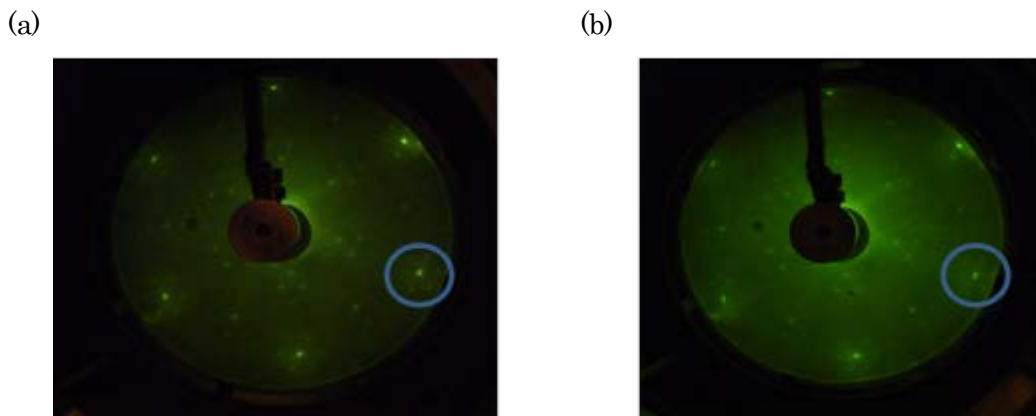


図 1 LEED パターン

原子状重水素照射前後の C1s 内殻光電子スペクトルの「その場」測定を行った(図 2)。図 2(a)は照射前、図 2(b)は照射後の測定結果を示している。図 2(a)、(b)を比較すると、界面に起因するピークが原子状重水素照射後に減少していることが分かる。このことから、重水素照射によって確かに界面層の共有結合が減少したことが確認できる。

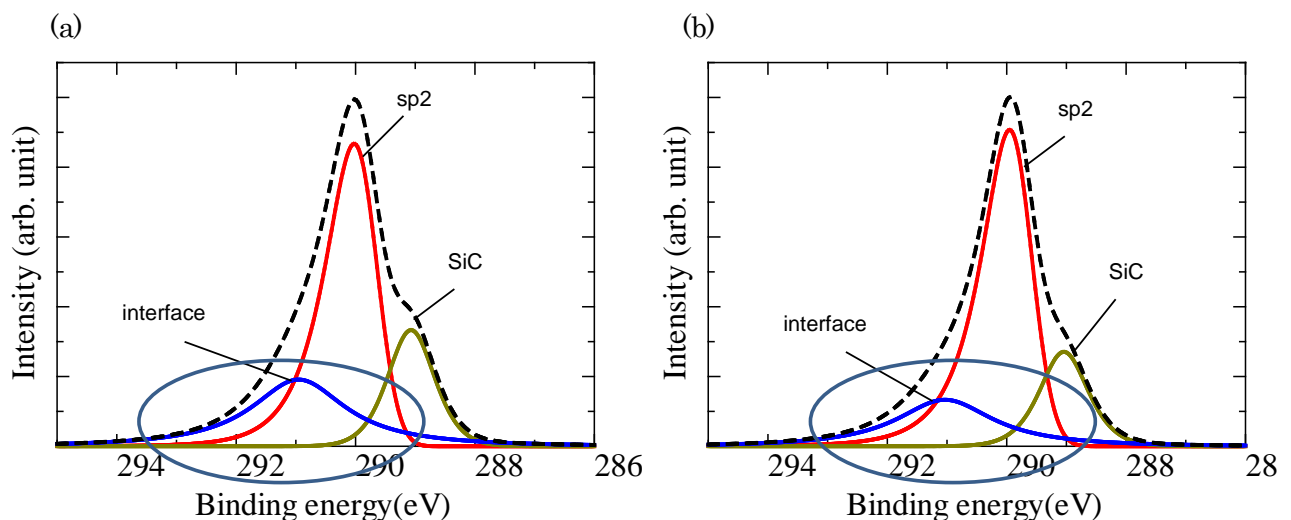


図 2 内殻準位スペクトル

今回の実験では予想以上に原子状水素強度が弱く完全に共有結合を切る事ができなかったが、タングステンフィラメントを用いた水素クラッキングは界面処理に有用であることが分かった。今後は更なる条件出しを行い共有結合の完全な開裂を目指すと共に、GOS 試料への適用を行っていきたいと考えている。

4. 引用(参照)文献等

- [1] S.V.Morozov, et al., PRL 100, 016602 (2008)
- [2] M. Suemitsu *et al.*, e-J. Surf. Sci. Nanotech, 7, 311 (2009).
- [3] Takahashi et al., JJAP (2011)
- [4] C. Riedl, C. Coletti, T. Iwasaki, A. A. Zakharov, and U Starke: Phys. Rev. Lett. 103 (2009) 246804