

課題番号 : 2015B-E15
利用課題名 (日本語) : 放射光 X 線表面回折法による SiC 熱分解過程の表面構造変化の解明
Program Title (English) : Surface-structure changes in SiC thermal decomposition studied by synchrotron radiation x-ray surface diffraction
利用者名 (日本語) : 吉田雅洋¹⁾, 久津間保徳¹⁾, 堂島大地¹⁾, 水木純一郎¹⁾
Username (English) : M. Yoshida¹⁾, Y. Kutsuma¹⁾, D. Dohjima¹⁾, J. Mizuki¹⁾
所属名 (日本語) : 1) 関西学院大学理工学研究科
Affiliation (English) : 1) School of Science and Technology, Kwansai Gakuin University
キーワード :

1. 概要 (Summary)

グラフェンは、高い移動度(～ 200,000 cm²V⁻¹s⁻¹)を持つため、次世代デバイス材料への応用が期待されている。数多くのグラフェン作製法が世界中で研究開発されているが、その中でも高品質で大面積なものが作製できる手法として、単結晶 SiC の熱分解現象を用いたエピタキシャルグラフェン成長法(SiC 熱分解法)が注目されている。この手法で作製されるグラフェンの高品質化において、成長温度・周辺雰囲気・圧力は重要なパラメータである。デバイス応用に資するグラフェン作製に向けて、これらのパラメータの最適条件を見いださなければならない。そのためには、各パラメータを制御しながら、原子レベルでその場観察し、成長過程を明らかにすることが必要である。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

本研究の目的は、SiC 熱分解法による超高温グラフェン成長過程における表面/界面構造を明らかにすることである。今回の実験では、buffer 層由来の超格子反射の観測を行い、その反射の温度変化を、超高温その場観察を通じて行った。

試料は、事前に関西学院大学で作製した 1-3 原子層グラフェンが成膜している 4H-SiC 基板を用いた。実験は図 1 のような光学系を利用し、表面 X 線回折実験を行った。buffer 層由来の超格子反射の探索は室温真空下で行い、その反射の温度変化は、50°C/min の昇温過程において二次元検出器 PILATUS を用いたその場観察により行った。入射 X 線のエネルギーは 20 keV を用いた。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

buffer 層由来の超格子反射は、Riedl らによる LEED パターンを参考に、幾何学的に角度を求め、その付近

を探索した。その結果、グラフェン 10-10 反射周りでこの超格子反射を発見した。SiC に対して 30° 回転したエピタキシャル成長であることが知られているが、今回観測した超格子反射は、それから 1~2° ずれていることがわかった。これまで電子線回折像から 30° 回転していることが示唆されてきた。しかし、実際の結晶構造はわずかな格子不整合などの影響でちょうど 30° 回転のエピタキシャル成長ではない可能性が出てきた。従って、より詳細な GIXD 実験を通じて、buffer 層の面内構造を決定する必要がある。

二次元検出器 PILATUS を導入し、buffer 層由来の超格子反射の温度変化のその場観察を試みた。実験条件は、真空下 face-to-face 法 (図1) で、1500°C 10min を昇温速度 50°C/min で行った。基板は、1 - 3 ML グラフェンが成長した SiC 基板 (2014年10月 関西学院大学にて作製) を用いた。特に顕著な変化を観測した温度での二次元データを図2に示す。超格子反射が温度上昇に伴う、低角側へのシフトが観察された。これは、熱膨張によるものだと考えられる。1500°C で非常に高強度のピークが観察された。(図2c) このピークは、出現後図上から下へ動きながら消失する。強度がグラフェン由来ピークよりも 2 桁ほど大きいため、グラフェン あるいは buffer 層由来である可能性は低いと考えている。候補としては、基板 SiC の CTR 散乱であるが、現時点では推測の域を出ないため、今後検証が必要である。

一般的に、SiC(0001) 上のグラフェン成長では、一度 buffer 層が形成し、その buffer 層の下で SiC の分解が起きますと、buffer 層が単離しグラフェンになり、その直下に新しく buffer 層ができるという成膜プロセスが、現在最も支持されている。今回観測した超格子反射のピークプロファイルは、1200°C ですこし曖昧になり、1500°C で

再びはっきりとしているように見える。これは、上述した成膜プロセスと関連付けると、高温域でbuffer層が一度壊れ、その後再構成していく過程を捉えたと考えられる。この変化をより定量的に議論することができれば、グラフェン成膜過程での表面/界面構造変化を明らかにすることができると期待でき、今後最も重要な研究課題となる。

4. その他・特記事項 (Others)

共同研究者として、大和田謙二主任研究員と共に実験を行った。



図 1

face-to-face 法の概略図。基板間と成長温度のみをパラメータとして、グラフェン成膜が可能な手法である。

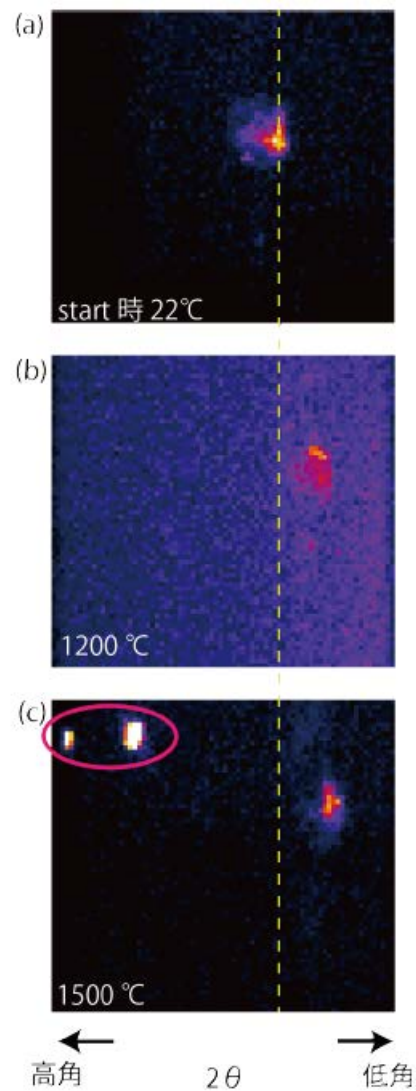


図 1 その場観察による各温度での超格子反射。上から 22, 1200, 1500°C。黄線は 22°C でのピーク位置を示した。1500°C で出現したピークを桃円で強調した