

アモルファス SiC 薄膜から形成しグラフェンの状態解析 The Analysis for The Graphene Made from Amorphous SiC Film

舘野 泰範^{a)}, 米村 卓巳^{a)}, 三橋 史典^{a)}, 河内 剛志^{a)}, 岡田 政也^{a)}, 吹留 博一^{b)}
Yasunori Tateno^{a)}, Takumi Yonemura^{a)}, Fuminori Mitsuhashi^{a)}, Tsuyoshi Kochi^{a)},
Masaya Okada^{a)}, and Hirokazu Fukidome^{b)}

^{a)}住友電気工業株式会社, ^{b)}国立大学法人東北大学
^{a)}Sumitomo Electric Industries, Ltd., ^{b)}Tohoku University

SiC 単結晶基板上にスパッタ法によりアモルファス SiC 薄膜を形成し, そのアモルファス SiC 薄膜のみ, 熱昇華法によりグラフェン化させて形成したエピグラフェンについて, グラフェンの状態や層数分布を LEEM/PEEM により評価した. SiC 基板の C 面上に形成されたグラフェンの場合, 通常のエピグラフェンと比べて, 同一層数サイズが大きく, また, 各グラフェン層が配向していることが分かった. SiC 基板の Si 面上に形成されたグラフェンの場合は, 通常 Si 面エピグラフェンと同様に, SiC 基板表面のステップ部分でグラフェン化が進行し, 層数が多層になることも確認できた.

キーワード: グラフェン, グラフェン/基板界面, アモルファス SiC, 光電子顕微鏡

背景と研究目的:

グラフェンをチャネル層に用いたグラフェントランジスタ(GFET)は, 非常に高いキャリア移動度をもつため, テラヘルツ帯, サブミリ波帯などの通信用途・電波天文用途などに使用されるキーデバイスとしての研究が盛んである.

しかし, 現状のグラフェンデバイス開発では, グラフェン材料に関し大きな課題が二つある. 一つは, 基板上での面内均一性改善である. グラフェンは, 膜質(とくに結晶欠陥)や層数が異なると移動度やバンドギャップなどの物性値が大きく変化するため, できるだけ高い面内均一性を実現する必要がある. 二つ目は, グラフェンの単結晶ドメインのサイズ拡大である. 結晶ドメインの境界をまたいでキャリアが輸送されると, その境界でキャリア散乱により移動度が著しく悪化する. 従って, 上記のテラヘルツ帯動作を目指す場合, トランジスタの真性部分は単結晶ドメインであることが必須であり, ドメインサイズは数十 μm ~100 μm 以上を実現せねばならない.

これらの課題を解決するため, 我々はスパッタ SiC 薄膜をグラフェン化する技術を開発中である[1]. 具体的には, まず SiC 単結晶基板上にスパッタによってアモルファス SiC 薄膜を形成し, そのスパッタ SiC 薄膜のみをグラフェン化させるというものである. これは, 単結晶に比べアモルファスの方がグラフェン形成の起点が多いことに着目した手法である. スパッタ膜 SiC 層の Si 組成と膜厚を制御することで, 層数分布については非常に均一なグラフェンが得られることを確認できている.

さて, このスパッタ膜 SiC グラフェンについて, 膜質や均一性, またキャリア移動度を改善するためには, グラフェンの状態や結晶ドメインの分布の理解が必須である.

そこで, BL17SU の SPELEEM 装置を利用して, スパッタ膜グラフェンの状態, ドメインサイズ, 結晶配向状態の評価・解析を行った.

実験:

図 1 にグラフェン試料形成の模式図を示す. まず, 半絶縁性 6H-SiC 基板上にスパッタ法によりアモルファス SiC 薄膜を形成する. 今回の実験では, SiC 薄膜の厚さを 3 nm とした. 次に熱昇華法により SiC スパッタ膜をグラフェン化した.

今回は SiC 単結晶基板の Si 面上にグラフェンを形成したもの(サンプル#1), C 面上にグラフェンを形成したもの(サンプル#2), 通常のエピグラフェン(SiC 単結晶基板を用いて形成されたグラフ

エン；サンプル#3)の3種類のサンプルを用意した.

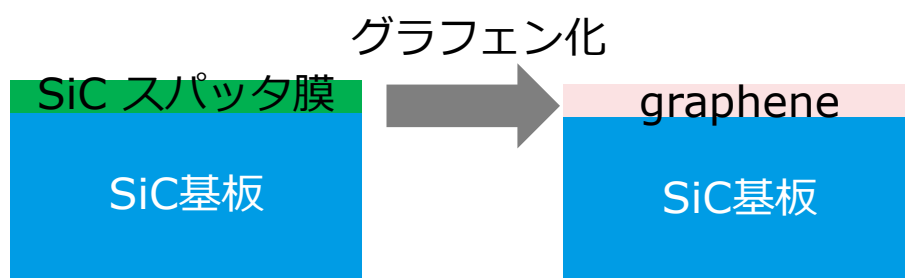


図1. 評価サンプルの形成手順模式図

結果および考察：

まず、2つのサンプルともに、電子線を入射し、LEEM観察を行った。

図2(a)にサンプル#1(Si面上グラフェン)の、LEEM像を示す。Start Voltageは1.45 Vで、視野系は30 μm に設定した。図に示すとおり、明るいコントラストの領域(図でAと示した領域)と、横筋状の暗いコントラストの領域(BやCの領域)が観察された。暗いコントラスト領域は、よく見ると、濃淡の違う2種類が混じっている。図2(a)の場合、領域Cの方が領域Bよりも暗い色調となっている。

図2(a)のA, B, Cそれぞれの領域のグラフェン層数を調べるため、電子の入射エネルギーを変えた測定を行った。結果を図2(b)に示す。一般的に、グラフェンの場合、反射率の極小値の個数とグラフェン層数が対応している[2]。

図2(b)の極小値の個数から、領域Aは一層グラフェン、領域Bは2層、そして領域Cは3層であることが分かった。

同じサンプルで、観察視野系を75 μm に拡大したものを図3に示す。暗いコントラスト領域(2層グラフェン)が、横筋状に存在していることがはっきりと分かる。大まかに、それらの筋は等間隔で平行に並んでおり、これはSiC基板表面のステップの上形成されているものと推測できる。通常のエピグラフェンの場合、基板のステップ部分はグラフェン化が進行しやすく、多層グラフェンになりやすいとの報告があるが、スパッタSiCをグラフェン化したものも、基板最表面の影響を受けることが分かった。

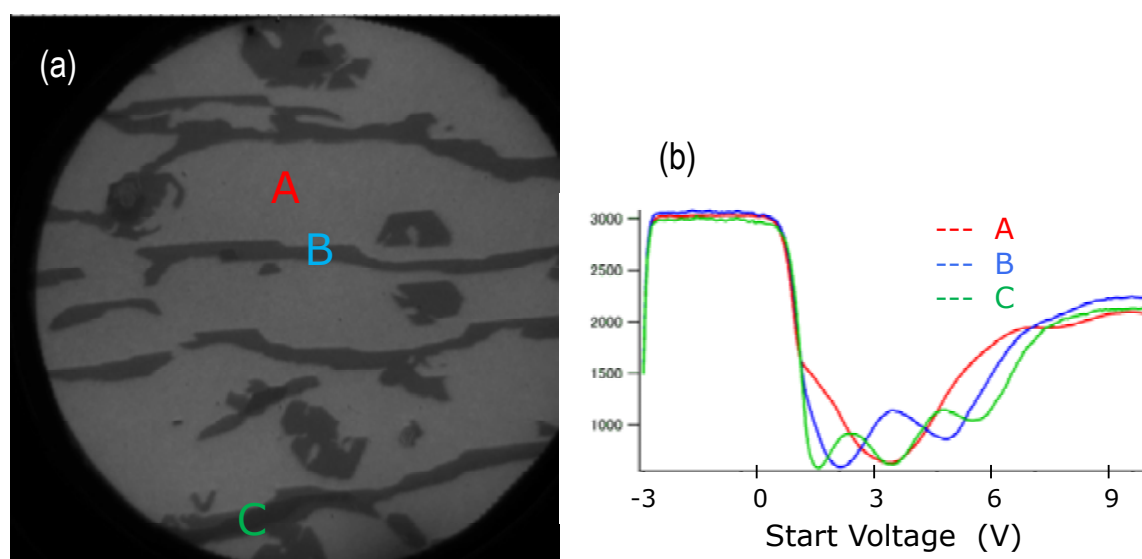


図2. (a)サンプル#1(Si面上スパッタ膜グラフェン)のLEEM像、視野系30 μm ,
(b)反射率の入射電子エネルギー依存

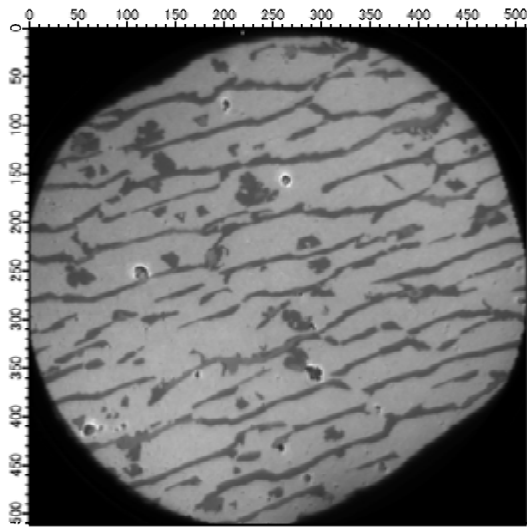


図3. サンプル#1(Si 面上スパッタ膜グラフェン)の LEEM 像, 視野系 75 μm

次に, 図4(a)にサンプル#2 (C 面上グラフェン)の, LEEM 像を示す. Start Voltage は 2.84 V で、視野系は 75 μm に設定した. サンプル#2 の場合, 暗いコントラストの領域(図で A と示した領域)が全面に亘って存在し, その中に島状の明るいコントラストの領域(B の領域)が観察された.

図4(b)に示す, 反射率の振動構造より, A は3層グラフェン, B は2層グラフェンであることが分かった.

図5にはサンプル#3(通常エピグラフェン)の LEEM 像を示す.
この場合は, 領域 A が3層, B が4層であった.

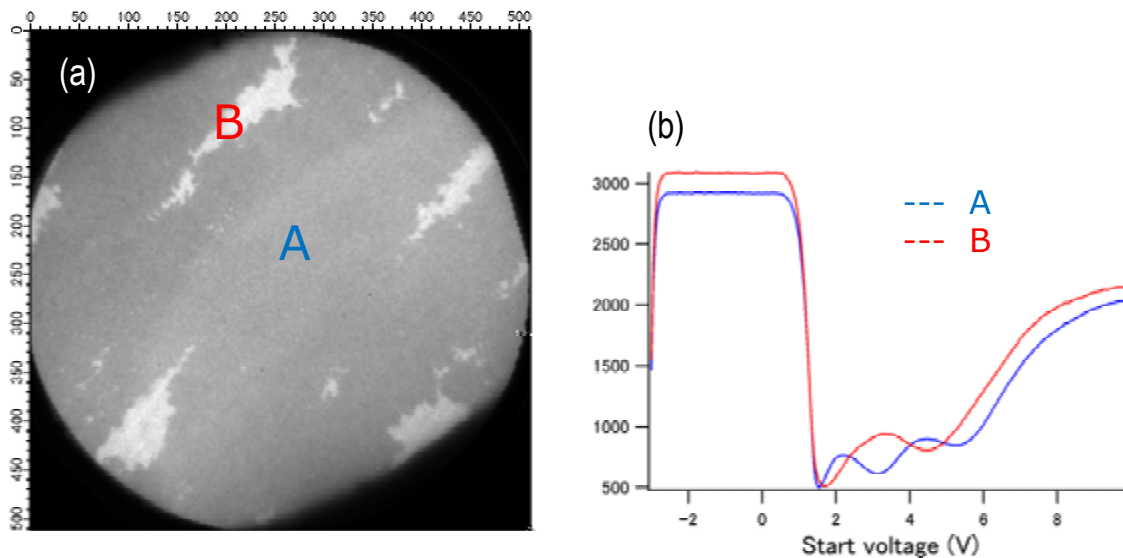


図4. (a)サンプル#2(C 面上スパッタ膜グラフェン)の LEEM 像, 視野系 75 μm ,
(b)反射率の入射電子エネルギー依存

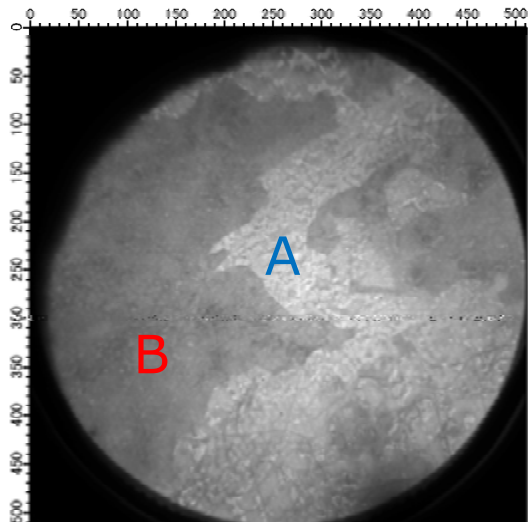


図 5. サンプル#3(C 面上エピグラフェン)の LEEM 像, 視野系 75 μm

この他, それぞれのサンプルの LEED 像を取得し, さらに放射光を入射し, その吸収スペクトルのマッピング測定(XAS, PEEM)も行った.

LEED 像からは, サンプル#3 の通常のエピグラフェンはグラフェン各層が非配向であるのに対し, サンプル#2 は配向していることが分かった.

PEEM 測定の結果は現在, 解析中である.

まとめと今後の課題 :

今回, スパッタ膜グラフェンについて, グラフェンの層数分布について解析した. その結果, C 面上スパッタ膜グラフェンは, 通常のエピグラフェンと比べて単一層数サイズが大きいこと, Si 面上スパッタ膜グラフェンは, 通常のエピグラフェンと同様に, SiC 基板の表面状態の影響を受けた層数分布となっていることが確認できた.

今後, スパッタ膜グラフェンについて, さらに他の物性や電気的特性についての実験, 評価をすすめたい.

参考文献 :

- [1] F. Mitsuhashi, et al., *MRS Advances*, **635**, pp.1 (2016)
- [2] H. Hibino, et al., *Phys. Rev.* **B77**, 075413 (2008)