

令和元年6月13日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19065

研究課題名(和文) グラフェンデバイスの実用化を基礎づけるSiC結晶上擬自立化グラフェン作製法の革新

研究課題名(英文) Fabrication of quasi-free-standing epitaxial graphene to realize graphene-based devices

研究代表者

末光 眞希 (SUEMITSU, Maki)

東北大学・電気通信研究所・名誉教授

研究者番号：00134057

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,800,000円

研究成果の概要(和文)：グラフェンは次世代高速デバイス材料として期待が高まるが、グラフェンとこれを担持する基板との間の強い相互作用を除去する技術の未確立が、その実用化を妨げてきた。本研究は最も有望なグラフェン材料であるSiC結晶Si面上エピタキシャルグラフェン(EG)を取り上げ、EGとSiC基板との間に存在する界面層の簡便除去法の確立に取り組んだ。SiCとグラフェンの熱膨張係数の符号の違いを利用したマイクロ波基板加熱急冷(MWA)処理を開発し、その界面層除去効果を評価したところ、従来法の十分の一の時間で界面層を除去することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

すぐれた物性を有するグラフェンも、基板との相互作用によってその性能をデバイス上で発揮できずにいた。本研究の成果は、グラフェンと基板の相互作用を机上の電子レンジで除去できるという画期的なものである。まだ大気圧下での酸化条件での検証に留まっているが、今後雰囲気制御を行うことによって更なる発展が見込める新技術である。

研究成果の概要(英文)：With its extremely high mobility, graphene attracts recent attention as a material for the next generation high-speed devices. Its realization has been impeded, however, by the lack of the elimination method for the interaction between graphene and its supporting substrate. This study proposed a novel method to eliminate the harmful buffer layer between graphene and the Si-terminated SiC substrate. The proposed "microwave annealing (MWA)" method has been proved to be quite effective in eliminating the buffer layer. The most striking point is that the method can realize equivalent elimination with the conventional method with a reduction of the process time by one order of magnitude.

研究分野：半導体表面工学

キーワード：グラフェン エピタキシャルグラフェン 炭化ケイ素 マイクロ波加熱 界面層

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

グラフェンは sp^2 結合した炭素原子数層のシート状物質である。六角形を構成するシート面内の結合が、同じ厚さの鋼の 100 倍の強度及び銅の 12 倍という熱伝導を提供する一方、シート面から垂直に伸びる軌道の電子は Si 結晶内電子の 100 ~ 1000 倍という驚異的な面内移動度を示す。2010 年のノーベル物理学賞受賞も追い風となり、グラフェンは一躍次世代高周波デバイス材料として期待が高まる所となった。

しかしグラフェン FET (以下、GFET) を中心とするグラフェンデバイスは未だ実用化されていない。それはグラフェンと、これを担持する基板との間の強い相互作用を除去する技術が未確立だからである。実用化 GFET 用グラフェンとしては、炭化ケイ素 (SiC) 結晶 Si 面を熱分解することで SiC 結晶に沿って配向したグラフェンを形成するエピタキシャルグラフェン (EG) 法が有力であるが、EG は SiC 基板との間に「界面層」を持ち、これがグラフェンの電子輸送特性を劣化させるため、EG 界面層除去法の確立が GFET 実用化の鍵を握ると目されていた。

2. 研究の目的

本研究は、SiC 結晶と EG との間に界面層を持たない、GFET 作製に最適な擬自立化グラフェンをきわめて簡便に形成する技術を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

SiC とグラフェンの熱膨張係数の符号の違いを利用し、独自に開発したマイクロ波基板加熱急冷 (MWA) 処理によって、大気中熱処理プロセスだけで界面層を除去することに挑戦する。界面層消失の確認は (1) 低速電子線回折 (LEED)、(2) ラマン分光法、(3) X 線光電子分光 (XPS)、(4) 角度分解光電子分光法によって確認する。また (5) FET を作製しその電気特性を評価する。

4. 研究成果

本研究が提案するマイクロ波基板加熱法を用いることによって、従来と同等品質の擬自立化グラフェンが従来法の十分の一の時間で形成可能であることを、以下の手法により明らかにした。

(1) 低速電子線回折 (LEED) 評価

MWA 処理により界面層超周期構造が消失することが確認され、同処理により界面層除去が可能であることを証明した。

(2) ラマン分光評価

MWA 処理によりグラフェン層数が 1 層増えることが確認できた。これは界面層の基板側結合が同処理により焼失し、界面層が第 1 層グラフェンへと変化したためと合理的に解釈される。

(3) X 線光電子分光 (XPS) 評価

MWA 処理により界面層由来の成分が消失し、同処理により界面層除去が可能であることを証明した。また Si 酸化成分の増大を観測し、界面層除去が SiC 表面の酸化によるものであることを示唆した。

(4) 角度分解光電子分光法

SPring-8 にて東京大学松田研究室との共同研究として実施し、バンド分散の変化より、処理前に N 型伝導を示したグラフェンが MWA 処理後に P 型伝導となることを明らかにした。

(5) FET による電気特性評価

処理前に N 型伝導を示したグラフェンが MWA 処理後に P 型伝導となることを明らかにした。この結果は角度分解光電子分光のそれと矛盾しない。MWA 処理による遮断周波数及び相互コンダクタンスの劣化は認められなかったが、移動度は約半分の値に落ち込んだ。こ

れはMWA処理によって強いP型ドーブが発生したため、そのイオン散乱によるものと理解される。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

1. K. S. Kim, H. Fukidome, M. Suemitsu, “Direct Formation of Solution-based Al₂O₃ on Epitaxial Graphene Surface for Sensor Applications”, *Sensors and Materials*, (accepted, 2019), (査読有).
2. K. S. Kim, G. H. Park, H. Fukidome, S. Takashi, I. Takushi, K. Fumio, M. Iwao, M. Suemitsu, “A Table-Top Formation of Bilayer Quasi-Free-Standing Epitaxial-Graphene on SiC(0001) by Microwave Annealing in Air”, *Carbon*. **130**, 792 (published online February 2018), (査読有).
3. K. S. Kim, G. H. Park, H. Fukidome, T. Suemitsu, T. Otsuji, W. J. Cho, M. Suemitsu, “Solution-based formation of high-quality gate dielectrics on epitaxial graphene by microwave-assisted annealing”, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56**, 06GF09 (published online May 2017), (査読有).

〔学会発表〕(計 4 件)

1. K. S. Kim, H. Fukidome, and M. Suemitsu, “Growth of high quality epitaxial graphene by modified hydrogen annealing”, 第65回応用物理学会春季講演会 (March 2018).
2. K. S. Kim, H. Fukidome, and M. Suemitsu, “Epitaxial graphene growth in Ar/H₂ ambient”, The 8th edition of Graphene conference (June 2018).
3. K. S. Kim, G. H. Park, H. Fukidome, S. Takashi, I. Takushi, K. Fumio, M. Iwao, and M. Suemitsu, “Simple formation of quasi-free-standing epitaxial graphene (QF SEG) using microwave annealing”, The International Symposium on Epitaxial Graphene (November 2017).
4. K. S. Kim, G. H. Park, H. Fukidome, and M. Suemitsu, “Formation of Quasi-Free-standing Epitaxial Graphene on SiC(0001) by Microwave Annealing”, *Carbon*, (July 2017).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：吹留 博一

ローマ字氏名： (FUKIDOME, Hirokazu)

所属研究機関名：東北大学

部局名： 電気通信研究所

職名： 准教授

研究者番号 (8 桁): 10342841

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。