

**SiC 基板上にエピタキシャル成長したグラフェン層の
X 線 CTR 散乱を用いた構造解析**
**Structural analysis of grapheme layers epitaxially grown on SiC
using X-ray CTR scattering**

日比野浩樹^a, 前田文彦^a, 廣沢一郎^b, 渡辺義夫^b
Hiroki Hibino^a, Fumihiko Maeda^a, Ichiro Hirose^b, Yoshio Watanabe^b

^aNTT 物性科学基礎研究所, ^b財高輝度光科学研究センター
^aNTT Basic Research Laboratories, ^bJASRI

SiC 基板上にエピタキシャル成長したグラフェン層の原子構造を解析する目的から、X 線 CTR (Crystal Truncation Rod) 散乱測定を行った。2~3 層の非常に薄いグラフェン層に対して測定した CTR 散乱スペクトルにおいても、グラフェン由来のピークが明瞭に観察され、CTR 散乱がグラフェンの界面構造や層間隔を、原子オーダーで解析する手法として有効であることが判明した。

キーワード： グラフェン、SiC、CTR 散乱

【背景と研究目的】

1~数原子層の極薄グラファイト薄膜であるグラフェン層が、その新規な電気伝導特性から、次世代エレクトロニクス材料として関心を集めている[1]。グラフェン層の作製法には、大別して、バルクグラファイトから剥離する方法[2]と、SiC 基板を真空中で加熱しエピタキシャル成長する方法[3]がある。成長グラフェンは大面積化が容易で、剥離グラフェンに比べ、デバイス集積に有利であるが、未だ剥離グラフェンに匹敵する電気伝導特性が得られていない。成長グラフェンのデバイス応用には、電気伝導特性を制限している要因を解明し、それを解決することが不可欠である。特に、SiC(0001)基板に成長したグラフェン層では、電子構造や電荷移動の層数依存性から、グラフェン層と SiC 基板が強く相互作用することが示唆されており[4]、SiC 基板が成長グラフェン層の構造や物性に及ぼす影響の解明が不可欠となっている。そこで、本課題では、X 線 CTR 散乱と表面回折を用い、グラフェン層および界面の構造解析を行い、SiC 基板の影響を明らかにすることを目指した。

【実験】

N ドープの 6H-SiC(0001)基板を、NTT に設置された低エネルギー電子顕微鏡 (LEEM: Low-energy Electron Microscopy) 装置で約 1400°C に加熱し、Si を選択的に昇華させることにより、表面に 2 層から 3 層のグラフェンを形成し、同時に、LEEM 像からグラフェン層数分布を測定した[5]。この試料を真空から取り出し、大気中を搬送して、BL46XU の多軸回折計に設置した。サンプルにはカプトン製のドームを被せ、He 雰囲気、12 keV の X 線を用いて CTR 散乱測定した。CTR 散乱測定には、表面への X 線入射角を θ 、検出器の散乱角を 2θ に固定した状態で、試料を $\omega = \pm 0.05^\circ$ だけロックングすることにより、鏡面反射ビームのプロファイルを測定し、プロファイルから各 θ に対応する逆格子ロッド上の位置 l での散乱強度を求めた。

【結果および考察】

図 1 は、反射ビームの対数強度を、 l と ω の関数で二次元的に表現したものである。反射ビーム

が複数のピークから構成され、それらピークが l とともに移動する様子が明瞭に観察される。ピークの移動は、表面が原子ステップにより分割されたテラスから構成されることから説明され、矢印の位置でのピーク間距離から求めたステップ間距離約 700 nm は、CTR 測定後に行った原子間力顕微鏡結果と良い一致を示した。SPring-8 の X 線が非常に高い干渉性を有することがわかる。一方、図 1 に見られるようなピーク分裂は、CTR 散乱スペクトル測定を複雑にするため、図 2 の CTR 散乱スペクトルは、X 線をよりステップに平行な方向に入射することにより求めた。 $l=2, 4$ の位置に見られる鋭いピークは、バルク SiC に起因するものである。一方、 $l=1.5, 3$ 近傍のブロードなピークはグラフェン層からのもので、2~3 層の非常に薄いグラフェン層であっても、明瞭なピークとして観察できることがわかる。CTR 散乱が、グラフェンの界面構造や層間隔を、原子オーダーで解析する手法として有効であることが判明した。

【今後の課題】

今回の測定では、X 線照射による試料劣化が発生したため、グラフェン由来のピーク強度が時間とともに低下し、信頼性の高いデータが得られなかった。今後、より精度の高い構造解析に向け、X 線照射条件の最適化や測定環境の整備を行い、界面構造や層間隔の決定を図る。

【参考文献】

- [1] A. K. Geim and K. S. Novoselov, Nature Mater. **6**, 183 (2007).
- [2] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, Science **306**, 666 (2004).
- [3] I. Forbeaux, J.-M. Themlin, and J.-M. Debever, Phys. Rev. B **58**, 16396 (1998).
- [4] T. Ohta, A. Bostwick, Th. Seyller, K. Horn, and E. Rotenberg, Science **313**, 951 (2006).
- [5] H. Hibino, H. Kageshima, F. Maeda, M. Nagase, Y. Kobayashi, and H. Yamaguchi, Phys. Rev. B **77**, 075413 (2008).

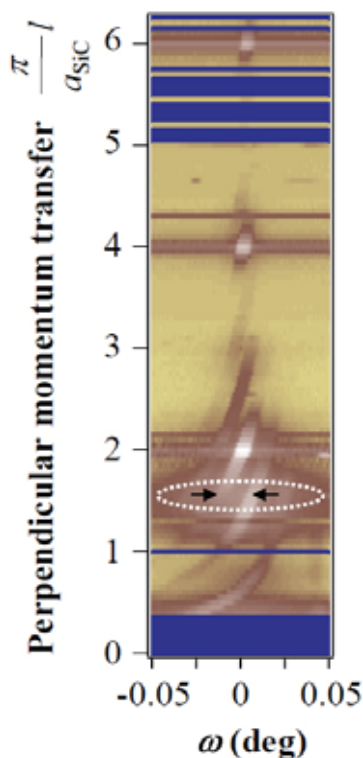


図 1. SiC(0001)表面に成長したほぼ 2 層のグラフェンからの反射ビームプロファイル。

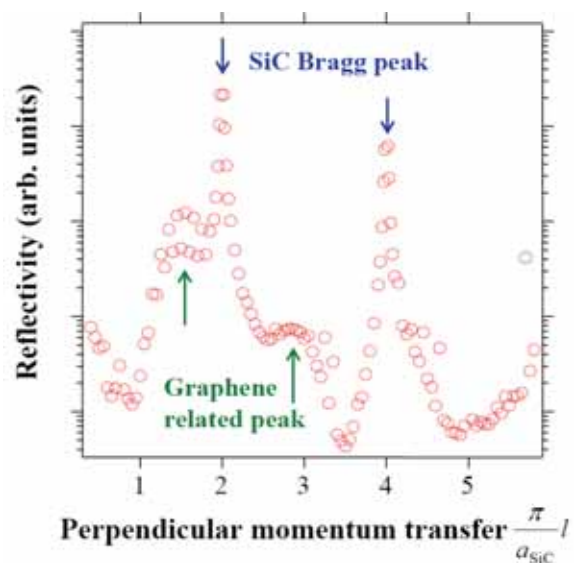


図 2. SiC(0001)表面に成長した 2-3 層のグラフェンからの CTR 散乱スペクトル。