

R1418

## 低温 CVD グラフェンの入射角度依存 XAFS 分析

## Incident angle dependent XAFS analysis of CVD graphene grown at low-temperature

松本 貴士<sup>a</sup>, 高倉 亮<sup>a</sup>, 滝沢 優<sup>b</sup>  
Takashi Matsumoto<sup>a</sup>, Ryo Takakura<sup>a</sup>, Masaru Takizawa<sup>b</sup><sup>a</sup>東京エレクトロン株式会社 技術開発センター, <sup>b</sup>立命館大学 SR センター  
<sup>a</sup>Technology Development Center, Tokyo Electron Ltd., <sup>b</sup>The SR Center, Ritsumeikan University

低温化学気相成長 (CVD) 法で Ni 触媒基板上に成長した多層グラフェン試料について、入射角度依存 XAFS 測定による結晶配向性評価を行った。多層グラフェンを構成する炭素原子の K 吸収端 XANES 測定を行うことで、結晶配向性と電気的特性との相関関係について調べた。その結果、多層グラフェンの結晶構造が(0001)面に強く配向するほど、シート抵抗率が低下する傾向を示すことを明らかにした。

We have demonstrated to synthesize the multi-layered graphene on Ni catalytic substrate at low-temperatures by chemical vapor deposition (CVD), and evaluated its crystalline orientation by using of the incident angle dependent X-ray absorption fine structure (XAFS) measurement. We have measured the C-K edge of multi-layered graphene samples by X-ray absorption near edge structure (XANES), and discussed the correlation between the crystalline orientation and electric properties. We have revealed that the resistivity of the multi-layered graphene have been directly proportional to the crystalline orientation aligned to Graphene (0001) face.

**Keywords:** Multi-layered graphene, Low-temperature CVD, Ni catalyst, XANES, Incident angle dependence

**背景と研究目的:** 二次元結晶の代表であるグラフェンは、極めて高い電子移動度 200,000 cm<sup>2</sup>/Vs を示す等、高速スイッチング、高周波トランジスタやスピントロニクスといった次世代電子デバイスを実現するために必要な材料として期待されている[1]。我々は、次世代半導体向けの低抵抗配線としてグラフェンが複数積層した多層グラフェンの研究開発を行っている。今回、多層グラフェンの電気的特性に及ぼす結晶配向性による違いについて、入射角度依存 XAFS 測定により解明を行った。

**実験:** 多層グラフェンは有機金属気相成長法 (MOCVD) で Ni を成膜したシリコン基板上に熱 CVD 法で成長させた。カーボンソースとして Ar で希釈したアセチレン (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>) を用い、基板を 650 °C に加熱することで Ni/シリコン基板表面に多層グラフェンを形成させた。

多層グラフェンの電気的特性評価としては四探針測定法 (NAPSON社製 RG-100PV) によるシート抵抗測定を行った。ただし、Ni 触媒基板上では多層グラフェンの正確なシート抵抗測定が行えないので、多層グラフェン

のみを Ni 触媒基板から剥離して絶縁性の SiO<sub>2</sub> 基板に転写した。多層グラフェン上面に PMMA 膜をスピンコート法で成膜し、その試料を HCl+H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 混合溶液に浸すことで Ni をウェットエッチングして PMMA/多層グラフェン膜のみを取り出した。PMMA/多層グラフェン膜を SiO<sub>2</sub> 基板上に貼り付けてアセトンで PMMA をエッチングすることで、多層グラフェン/SiO<sub>2</sub> 基板を作製した。

さらに、立命館大学 SR センター (BL-8) において、多層グラフェンを構成する炭素 (C) の K 吸収端 XANES 測定を行った。阻止電位グリッド付き MCP 検出器を用いた部分電子収量法 (PEY) で測定した。阻止電位は -150 V とした。直線偏光した放射光の入射角を変化させた偏光依存性 XAFS 測定により多層グラフェンの基板に対する結晶配向性を評価した。

**結果、および、考察:** 成長条件の異なる 2 種類の多層グラフェン試料に対して四探針法によるシート抵抗測定を行ったところ、それぞれ 61.9 Ω/□ と 525.9 Ω/□ という結果が得られた。

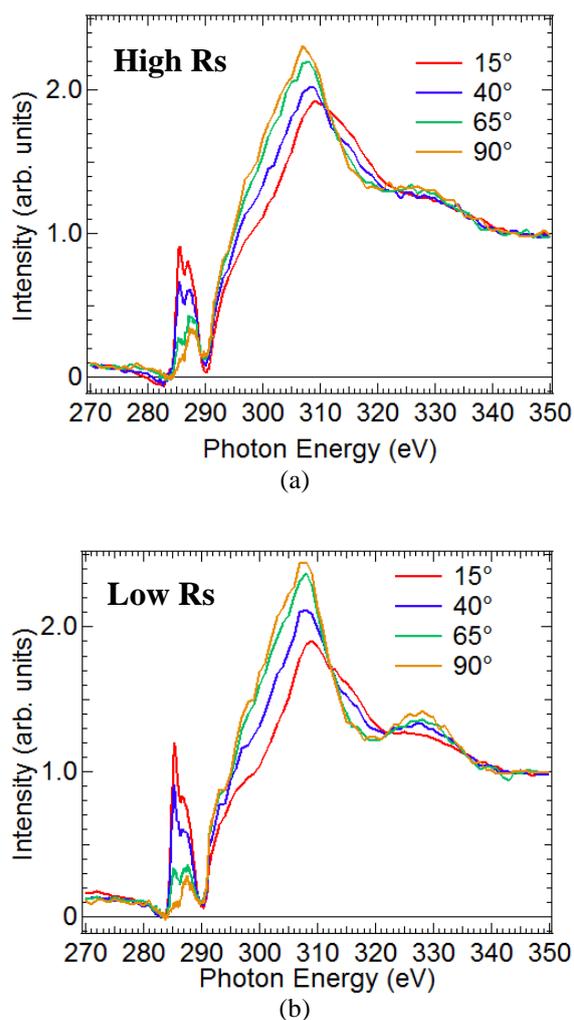
2種類の高抵抗多層グラフェン試料の結晶配向性を評価するために、入射角度依存 XAFS 測定を行った。C-K 吸収端 XANES 測定の結果を図 1 に示す。285 eV 付近の構造は  $C 1s \rightarrow \pi^*$  への遷移であり、310 eV 付近の構造は  $C 1s \rightarrow \sigma^*$  への遷移である。X 線の入射角度を試料面に対して 15, 40, 65, 90° の 4 角度とし、C-K 吸収端スペクトルの変化を調べた。その結果、高抵抗と低抵抗の高層グラフェン試料では、その入射角度依存性が異なることが分かった。図 1(a) の高抵抗多層グラフェンに対して図 1(b) の低抵抗多層グラフェンの方が、入射角度に対する  $C 1s \rightarrow \pi^*$  遷移に起因するスペクトル強度変化が強いことが分かった。これは、低抵抗多層グラフェン試料の方が、基板面に対してグラフェンシートの(0001)面がより強く配向している結晶構造であることを示している。このことから、電気抵抗に代表される様な電気的特性は、多層グラフェンの結晶配向性に強く依存することを明らかにした。

## 文 献

[1] K. I. Bolotina et al., Solid State Commun. 146 (2008) 351-355.

## 論文・学会等発表

[1] T. Matsumoto, D. Nishide, M. Kagaya, R. Ifuku, M. Wada, N. Sakuma, A. Kajita and T. Sakai, 2014 Materials Research Society Fall Meeting & Exhibit (ポスター発表)



**Fig. 1.** The incident angle dependent C K-edge XANES spectra of the multi-layered graphene synthesized on Ni catalytic substrate by thermal CVD with  $C_2H_2$  precursor. (a) High sheet resistivity sample. (b) Low sheet resistivity sample.