

(12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织
国际局

(43) 国际公布日
2020 年 9 月 3 日 (03.09.2020)



(10) 国际公布号
WO 2020/172863 A1

(51) 国际专利分类号:
H01L 21/02 (2006.01) *C23C 16/26* (2006.01)
C23C 16/02 (2006.01)

(21) 国际申请号: PCT/CN2019/076541

(22) 国际申请日: 2019 年 2 月 28 日 (28.02.2019)

(25) 申请语言: 中文

(26) 公布语言: 中文

(71) 申请人: 天津大学 (TIANJIN UNIVERSITY) [CN/
CN]; 中国天津市津南区海河教育园区雅
观路135号, Tianjin 300354 (CN)。

(72) 发明人: 马雷(MA, Lei); 中国天津市津南区海河
教育园区雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。 德
斯海尔·沃尔特·亚历山大(DE HEER, Walter
Alexander); 中国天津市津南区海河教育园
区雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。 纪佩璇
(JI, Peixuan); 中国天津市津南区海河教育园

区雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。 张凯敏
(ZHANG, Kaimin); 中国天津市津南区海河教
育园区雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。 赵
健(ZHAO, Jian); 中国天津市津南区海河教育
园区雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。 赵梅
(ZHAO, Mei); 中国天津市津南区海河教育园区
雅观路135号, Tianjin 300354 (CN)。

(74) 代理人: 中科专利商标代理有限责任
公司(CHINA SCIENCE PATENT & TRADEMARK
AGENT LTD.); 中国北京市海淀区西三环北路
87号4-1105室, Beijing 100089 (CN)。

(81) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的国家
保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,
BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU,
CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB,
GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS,
JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK,
LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX,

(54) Title: SINGLE-LAYER GRAPHENE HAVING NONPOLAR CRYSTAL PLANE SiC AS SUBSTRATE AND CONTROL-
LABLE GROWTH METHOD

(54) 发明名称: 以非极性晶面SiC为衬底的单层石墨烯及可控生长方法

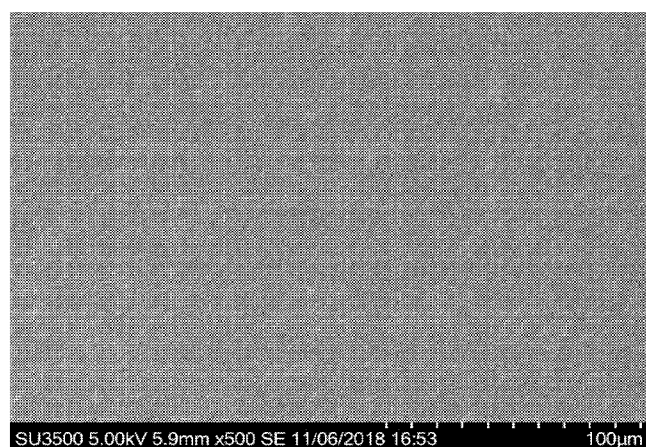


图 7

(57) Abstract: Single-layer graphene having a non-polar crystal plane SiC as a substrate and a controllable growth method. According to the controllable growth method, by means of epitaxial growth of single-layer graphene on a non-polar crystal plane at any angle of a non-polar crystal plane SiC substrate, the electrical transport properties of the graphene are controlled by the non-polar crystal plane. By the controllable growth method, single-layer graphene having ballistic transport properties can be obtained on one non-polar crystal plane of a non-polar crystal plane SiC substrate.

(57) 摘要: 一种以非极性晶面SiC为衬底的单层石墨烯及可控生长方法, 所述可控生长方法是在非极性晶面SiC衬底的任意角度的非极性晶面上外延生长单层石墨烯, 由此利用所述非极性晶面对石墨烯的电输运性质进行调控; 通过所述可控生长方法能够在所述非极性晶面SiC衬底的其中一非极性晶面上得到弹道输运性质的单层石墨烯。

[见续页]



WO 2020/172863 A1

MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL,
PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,
US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国 (除另有指明，要求每一种可提供的地区
保护)：ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ,
NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM,
AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG,
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU,
IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT,
RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI,
CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布：

— 包括国际检索报告 (条约第21条(3))。

以非极性晶面 SiC 为衬底的单层石墨烯及可控生长方法

技术领域

本公开涉及半导体材料技术领域，尤其涉及一种以非极性晶面 SiC 为衬底的单层石墨烯及可控生长方法。

背景技术

随着现代微电子技术的快速发展，传统硅基半导体电子器件已经无法满足人们的需求，寻找一种新的电子学器件基础材料迫在眉睫。石墨烯是由碳原子按照六角蜂窝状排列而成的二维材料，由于其在力学、电子学、光学等方面表现出的各种优异性能，被大家认为是极具应用前景的纳米电子器件材料。与机械剥离法和化学沉积法相比，使用单晶 SiC 衬底外延生长石墨烯可以有效的避免在电子器件制备过程中引入缺陷，如褶皱、裂缝、杂质污染等不利因素。最重要的是，外延石墨烯生长所采用的衬底是与传统半导体工艺兼容的 SiC 晶片，就目前的发展趋势而言，这似乎也是唯一可用于制备二维纳米电子器件的基础材料。

传统的 SiC 衬底外延法生长石墨烯主要用于六方晶系 SiC 衬底的两个晶面，(0001) 面（即 Si 面）以及 (000-1) 面（即 C 面），得到的外延石墨烯性能与机械剥离的石墨烯相比，其电学性能依旧存在较大差异。2014 年由美国 Walt de Heer 教授研究组发现的在 SiC 衬底上生长的侧壁石墨烯纳米带具有独特且极其优异的电输运性质。但是该方法同现代平面化电子加工工艺难以契合，主要是由于该结构必须在侧壁上，即首先要对 SiC 衬底进行纵向纳米级的微纳加工和后续热处理以期获得侧壁石墨烯生长和调控所必须的特定晶面指数的非极性面。而在现代半导体加工没有完全适用于 SiC 三维纳米机构加工的成熟工艺，同时由于所有的侧壁石墨烯均生长在三维的侧壁上对后续的半导体器件的制造增加了不小的难度。

公开内容

有鉴于此，本公开的主要目的在于提供一种单层石墨烯的可控生长

方法，以期至少部分地解决上述提及的技术问题中的至少之一。

为实现上述目的，本公开技术方案如下：

作为本公开的一个方面，提供了一种单层石墨烯的可控生长方法，其中，在非极性晶面 SiC 衬底的任意角度的非极性晶面上外延生长单层石墨烯，由此利用所述非极性晶面对石墨烯的电输运性质进行调控。

作为本公开的另一个方面，提供了一种利用如上所述的可控生长方法制得的单层石墨烯，其中，所述单层石墨烯外延生长于非极性晶面 SiC 衬底的任意角度的非极性晶面上，所述单层石墨烯的电输运性质由所述非极性晶面进行调控。

作为本公开的再一个方面，提供了一种非极性晶面 SiC 衬底的制备方法，包括以下步骤：根据一非极性晶面与（0001）面或（000-1）面的夹角，来调整金刚石线相对于一 SiC 晶柱的角度，利用金刚石线对所述 SiC 晶柱进行切割得到 SiC 晶片；对所述 SiC 晶片进行研磨、机械抛光和化学机械抛光，得到具有原子级平整度的非极性晶面；在所述非极性晶面被验证无误后，对所述 SiC 晶片进行切割，得到所述非极性晶面 SiC 衬底。

作为本公开的又一个方面，提供了一种非极性晶面 SiC 衬底，其为利用如上所述的制备方法制得。

基于上述技术方案，本公开的有益效果在于：

（1）我们基于侧壁石墨烯特点、生长条件和物理机理的分析，提出在任意非极性晶面上生长石墨烯，利用任意非极性晶面本身的物理性质对于其上生长石墨烯的调控以及利用任意非极性晶面同石墨烯的相互作用大规模调控石墨烯性质的方法。

（2）进一步提出对 SiC 晶体直接进行任意角度切割而实现任意非极性晶面，根据不同晶面 SiC 的硬度不一样，在切割过程中采用最佳的切割进给速度来实现所需厚度任意晶面 SiC 的切割。同时在目前对 SiC 零角度抛光现有技术的基础上，公开了对任意晶面 SiC 实现原子级平整度的抛光技术。

（3）本公开解决了在侧壁石墨烯纳米带上的加工难题，同时实现

了大规模生长平面化的单层石墨烯，尤其是，在一特定角度非极性面上生长出大面积具有弹道输运性质的石墨烯，为弹道输运石墨烯电子器件开创了纪元。

附图说明

图 1 为本公开实施例 1 中 SiC 衬底两相互垂直的参考面与钢板相互垂直之间的相互位置；

图 2 为本公开实施例 1 中 SiC (0001) 面与金刚石线平行示意图；

图 3 为本公开实施例 1 中切割 SiC 特定晶面的示意图；

图 4 为本公开实施例 2 中经过研磨后 SiC 的扫描电镜 (SEM) 图；

图 5 为本公开实施例 2 中经过机械抛光后 SiC 的原子力显微镜 (AFM) 图；

图 6 为本公开实施例 2 中经过化学机械抛光后 SiC 的 AFM 图；

图 7 为本公开实施例 3 中生长石墨烯的 SEM 图；

图 8 为本公开实施例 3 中生长石墨烯的横向力显微镜 (LFM) 图；

图 9 为本公开实施例 3 中生长石墨烯的拉曼图；

图 10 为本公开实施例 3 中生长石墨烯的低能量电子衍射 (LEED) 图；

图 11 为本公开实施例 3 中非极性晶面石墨烯的电输运性质测量结果；

图 12 为本公开实施例 4 中生长石墨烯的 SEM 图；

图 13 为本公开实施例 4 中生长石墨烯的拉曼图；

图 14 为本公开实施例 5 中生长石墨烯的 LFM 图；

图 15 为本公开实施例 5 中生长石墨烯的拉曼图；

图 16 为本公开对比例 1 中生长石墨烯的 SEM 图；

图 17 为本公开对比例 1 中生长石墨烯的 LFM 图；

图 18 为本公开对比例 1 中生长石墨烯的拉曼图；

图 19 为本公开对比例 1 中生长石墨烯的电输运性质测量结果。

上述附图中，附图标记含义如下：

1：夹具；

- 2: SiC 晶柱;
- 21、22: 参考面;
- 3: 钢板;
- 4: 金刚石线。

具体实施方式

为使本公开的目的、技术方案和优点更加清楚明白，以下结合具体实施例，并参照附图，对本公开作进一步的详细说明。

本公开公开了一种以非极性晶面 SiC 为衬底的单层石墨烯及可控生长方法，在任意非极性晶面 SiC 衬底上外延生长单层石墨烯，由不同非极性晶面对石墨烯性质，尤其是电输运性质进行调控。此处“非极性晶面 SiC 衬底”即为上、下表面中至少有一面为非极性晶面的 SiC 衬底。其主要物理机制是通过 SiC 特定晶面的物理性质对石墨烯生长的影响以及该特定晶面同石墨烯之间的相互作用的调控，使得特定晶面外延石墨烯具有了同普通 (0001) 和 (000-1) 面上非常不同的物理性质。申请人在研究过程中还克服了以下技术难点：目前对任意角度非极性面 SiC 切割和磨抛还没有完整有效的工艺，对任意角度非极性晶面 SiC 衬底上大面积生长单层石墨烯也没有普遍适用的方法。

具体地，本公开提供了一种单层石墨烯的可控生长方法，在非极性晶面的非极性晶面 SiC 衬底的任意角度的非极性晶面上外延生长单层石墨烯，由此利用非极性晶面对石墨烯的电输运性质进行调控。

其中，非极性晶面 SiC 衬底为六方晶系，优选为 4H-SiC 衬底或 6H-SiC 衬底，非极性晶面优选为 (1-105) 面，与 (0001) 面成 37.1° 夹角。

其中，非极性晶面 SiC 衬底通过以下步骤制备：

根据一非极性晶面与 (0001) 面或 (000-1) 面的夹角，来调整金刚石线相对于一 SiC 晶柱的角度，利用金刚石线对 SiC 晶柱进行切割得到 SiC 晶片；

对 SiC 晶片进行研磨、机械抛光和化学机械抛光，得到具有原子级平整度的非极性晶面；

在非极性晶面被验证无误后，对 SiC 晶片进行切割，得到非极性晶面 SiC 衬底。

其中，金刚石线的线径在 0.2~0.8mm，优选为 0.6mm，进给速度为 1.5mm/min~5mm/min，优选为 3mm/min。

其中，研磨的条件为：采用含金刚石颗粒的磨盘或砂纸，金刚石颗粒的粒径为 3~60 μ m，抛光压力为 20~250N，动力头速度和磨盘转速分别为 30~80r/min、100~300r/min；

作为优选，研磨的条件为依次以金刚石颗粒粒径为 60 μ m 和 30 μ m 的磨盘进行研磨，并且在研磨时抛光压力从 100~200N 逐渐增加，动力头速度和磨盘转速分别为 60r/min、280r/min。

其中，机械抛光的条件为：采用金刚石悬浮液，金刚石颗粒粒径为 0.05~9 μ m，抛光压力为 20~80N，抛光盘为合成丝绸布，动力头速度为 30~100r/min，磨盘转速为 60~320r/min；

作为优选，机械抛光的条件为依次以金刚石颗粒粒径为 3 μ m 和 1 μ m 的金刚石悬浮液进行抛光，抛光压力依次分别为 80N 和 60N，动力头速度和磨盘转速分别为 80r/min 和 310r/min。

其中化学机械抛光的条件为：使用碱性的二氧化硅抛光液，pH 优选为 9~12，更优选为 11，抛光压力为 20~80N，优选为 60N，抛光液滴加速度为 5~50 ml/min，优选为 40mL/min，抛光垫为绒毛类结构，动力头速度为 30~100r/min，优选为 60r/min，磨盘转速为 60~320r/min，优选为 120r/min。

其中，SiC 晶片被切割为长度为 3~8mm，宽度为 4~10mm 的小晶片作为非极性晶面 SiC 衬底。

其中，石墨烯通过 SiC 热解法进行生长，具体包括以下步骤：

对非极性晶面 SiC 衬底进行预处理；

将经预处理后的非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中，500~900℃下加热 20~60min，优选为 500℃下加热 60 min；

将非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 1100~1350℃，优选为 1100℃，加热 20~100min，优选为 80min，然后升温至 1500~1600℃，优

选为 1500℃，加热 20~150min，优选为 120min；

待降温至室温后石墨烯生长结束。

其中，石墨烯还可以以涂覆于非极性晶面 SiC 衬底上的有机物为固态碳源进行生长，该方法填补了某些非极性晶面上难以直接通过热解法外延生长石墨烯的空白，具体包括以下步骤：

对所述非极性晶面 SiC 衬底进行预处理；

将经预处理后的所述非极性晶面 SiC 衬底旋涂 10~100nm 厚的有机物；

将所述非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中，在 500~1000℃下加热 20~60min，优选为 800℃下加热 40min；

将所述非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 1200~1400℃，优选为 1400℃，加热 20~100min，优选为 81min，然后升温至 1500~1700℃，优选为 1700℃，加热 20~150min，优选为 115min；

待降温至室温后石墨烯生长结束。

其中，有机物例如为光刻胶、聚苯乙烯或聚丙烯腈等。

此外，本公开还提供了一种利用如上所述的单层石墨烯的可控生长方法制得的单层石墨烯，该单层石墨烯外延生长于非极性晶面 SiC 衬底的任意角度的非极性晶面上，单层石墨烯的电输运性质由非极性晶面进行调控。

基于上述，本公开还提供了一种非极性晶面 SiC 衬底的制备方法，包括以下步骤：

步骤 A：根据一非极性晶面与（0001）面或（000-1）面的夹角，来调整金刚石线相对于一 SiC 晶柱的角度，利用金刚石线对 SiC 晶柱进行切割得到 SiC 晶片；

对 SiC 晶片进行研磨、机械抛光和化学机械抛光，得到具有原子级平整度的非极性晶面；

在非极性晶面被验证无误后，对 SiC 晶片进行切割，得到非极性晶面 SiC 衬底；

其中，上述步骤的具体操作与前文所述相同。

进一步地，本公开还提供了一种非极性晶面 SiC 衬底，其为利用如上所述的非极性晶面 SiC 衬底的制备方法制得。

下面列举多个实施例配合附图对本公开的技术方案做进一步的详细说明。需要说明的是，下文中的具体实施例仅用于示例，并不用于限制本公开。

实施例 1 非极性晶面的切割

一种精确切割成任意角度非极性晶面 SiC 的方法，具体步骤如下：

(1) 需要先确定所需非极性晶面与 (0001) 面之间的夹角，本实施例中该非极性晶面为 (1-105)，与 (0001) 面成 $\theta=37.1^\circ$ 夹角，在其他实施例中为其他不同角度的非极性晶面；

(2) 利用夹具 1 对一 SiC 晶柱 2 进行固定，如图 1 所示，该 SiC 晶柱 2 具有两个相互垂直的参考面 21、22，如图 2 所示，该夹具上垂直设置有一钢板 3，该夹具 1 可在水平面内旋转 360° ，在固定 SiC 晶柱前需确保夹具平面高度水平，进而此时钢板处于竖直状态；

在对 SiC 晶柱 2 进行固定时，需要将 SiC 晶柱 2 两个相互垂直的参考面 21、22 分别与钢板 3 两个相互垂直面对齐，从而 SiC 的两个参考面 21、22 分别为水平面和竖直面；

(3) 将 SiC 晶柱 2 按上述要求固定好之后，通过在水平面内旋转夹具 1 使得 SiC (0001) 晶面平行于金刚石线 4；

(4) 切割 SiC 晶柱 2 的所需非极性晶面是指如图 3 所示，以竖直轴为旋转轴将夹具 1 及 SiC 晶柱 2 旋转 $\theta=37.1^\circ$ ，将金刚石线 4 以 4.0mm/min 的进给速度对 SiC 晶柱 2 进行切割，每切完一 SiC 晶片，控制 SiC 晶柱 2 向金刚石线 4 前进一距离，该距离为晶片厚度与金刚石线 4 线径之和。

实施例 2 非极性晶面的磨抛

一种可实现 SiC 任意角度非极性晶面达到原子级平整度的磨抛方法，具体步骤如下：

(1) 将实施例 1 切割后的 SiC 晶片用石蜡粘贴在动力头盘上，然

后在抛光机上进行研磨，抛光盘为金刚石颗粒磨盘，先后采用金刚石颗粒粒径为 $60\mu\text{m}$ 和 $30\mu\text{m}$ 的磨盘对 SiC 晶片进行研磨，抛光压力在抛光过程中从 $100\sim 200\text{N}$ 逐渐增加，动力头速度和磨盘转速分别为 60r/min 、 280r/min ，在抛光过程中保持水流一直在冲洗，以降低在研磨过程中由于摩擦产生的热；

(2) 将 SiC 晶片在抛光机上进行机械抛光，先后使用两种金刚石悬浮液，金刚石颗粒粒径分别为 $3\mu\text{m}$ 和 $1\mu\text{m}$ ，抛光压力分别为 80N 和 60N ，抛光盘为中等硬度的合成丝绸布，动力头速度和磨盘转速分别为 80r/min 、 310r/min ；

(3) 将 SiC 晶片在抛光机上进行化学机械抛光，使用碱性的二氧化硅悬浮液 ($\text{pH}=11$)，溶液滴加速率为 40ml/min ，抛光压力为 60N ，抛光垫为绒毛类结构，动力头速度和磨盘转速分别为 60r/min 、 120r/min ；

(4) 将抛光后的 SiC 晶片放在加热到 50°C 的超声清洗机中清洗，先后选择丙酮、乙醇和水进行超声，各 20 分钟；

(5) 使用 X 定向仪验证非极性晶面，可查表或者计算得到所需晶面的衍射角，若无消光现象，可直接检测。反之，可逆向旋转 $\theta=37.1^\circ$ ，得出结果为 (0001) 晶面的衍射角即可证明所得晶面为所需非极性晶面。

如图 4~6 所示，经过研磨后 SiC 表面有明显较深的划痕（如图 4），而经过机械抛光后表面划痕达到 $2\sim 3\text{nm}$ （如图 5），最终通过化学机械抛光表面没有划痕，表面起伏为 pm 量级（如图 6）。

实施例 3 以非极性晶面 SiC 为衬底的大面积单层石墨烯生长

基于衬底天然周期性原位生长调控石墨烯性质的概念，提出了一种在任意角度非极性晶面非极性晶面 SiC 衬底上生长大面积单层石墨烯的方法，具体步骤如下：

(1) 将实施例 2 经过磨抛所得的 SiC 晶片利用石蜡粘在陶瓷上，进而切割成 $3.5\times 4.5\text{mm}$ 非极性晶面 SiC 衬底，对其进行预处理以去除石蜡和彻底清洗；

(2) 将经预处理的 $3.5\times 4.5\text{mm}$ 的非极性晶面 SiC 衬底放在新制备

的石墨坩锅内，再将石墨坩锅放在感应加热炉铜圈加热位置；

(3) 第一阶段，在真空环境下，升温到 500℃保持 60 min；

(4) 第二阶段，通入高纯氩气，氩气流量为 500 sccm，将温度升高至 1100℃保持 80min；

(5) 第三阶段，将温度升高到 1500℃保持 120 min；

(6) 第四阶段，快速降温到室温，完成石墨烯生长。

石墨烯测试结果为，如图 7 所示，可观察到图中所有区域几乎一致，石墨烯全部覆盖；如图 8 所示，图中颜色亮的区域为 SiC 区域，颜色较深为石墨烯，可观察到石墨烯几乎全部覆盖；如图 9 所示，图中 2D 峰的半高峰宽为 28.8，表示得到的石墨烯为单层石墨烯，从图中的 G 峰位置 (1580cm^{-1}) 和 2D 峰位置 (2695cm^{-1}) 没有发生蓝移，可以看出石墨烯和 SiC 衬底相互作用力弱；如图 10 所示，光斑位置表明了石墨烯的对称性；如图 11 所示，反应了非极性晶面外延石墨烯独特的量子霍尔效应，具有弹道输运性质，可以实现无功耗或极低功耗的电输运。

实施例 4 以非极性晶面 SiC 为衬底的大面积单层石墨烯生长

本实施例与实施例 3 的区别在于：使用的坩埚为第二次使用的坩埚。具体步骤如下：

(1) 将与实施例 3 相同的 $3.5\times 4.5\text{mm}$ 的非极性晶面 SiC 衬底放在石墨坩锅内（生长面朝下），再将石墨坩锅放在感应加热炉铜圈加热位置；

(2) 第一阶段，在真空环境下，升温到 500℃保持 60min；

(3) 第二阶段，通入高纯氩气，氩气流量为 500sccm，将温度升高至 1100℃保持 80min；

(4) 第三阶段，将温度升高到 1500℃保持 120min；

(5) 第四阶段，快速降温到室温，完成石墨烯生长。

石墨烯测试结果为，如图 12 所示，图中颜色较深区域为石墨烯，可看出石墨烯生长为台阶状；如图 13 所示，图中 2D 峰的半高峰宽为 39.8，表示得到的石墨烯为单层石墨烯，由于坩埚的使用次数越多，坩

坩埚内壁硅的附着量越多，硅原子不易于蒸发出来，从而生长的石墨烯越少，从图中 G 峰位置 (1600 cm^{-1}) 和 2D 峰位置 (2749 cm^{-1}) 发生蓝移，可以看出石墨烯和 SiC 衬底结合力强。

实施例 5 以非极性晶面 SiC 为衬底的大面积单层石墨烯生长

本实施例与实施例 3 区别在于：利用有机物作为固态碳源进行石墨烯生长，实现不同衬底对石墨烯物性的调控。具体步骤如下：

(1) 对 $3.5\times 4.5\text{mm}$ 的非极性晶面 SiC 衬底进行预处理以去除石蜡和彻底清洗；具体为：利用热水浴去除石蜡，丙酮、酒精、去离子水各超声 30min 进行清洗；

(2) 将清洗后的片子用 N_2 吹干，旋涂 60nm 左右的 AZ 光刻胶；

(3) 将非极性晶面 SiC 衬底放入石墨坩埚中，再将石墨坩埚放入感应加热炉中；

(4) 第一阶段在真空中进行，真空度达到 $5\times 10^{-6}\text{ mbar}$ 左右， 800°C 维持 40min；

(5) 第二阶段在 100sccm 流动氩气下， 1400°C 维持 81min；

(6) 第三阶段在 100sccm 流动氩气下， 1700°C 维持 115min；

(7) 第四阶段炉冷，石墨烯生长结束。

石墨烯测试结果为：如图 14 所示，石墨烯几乎全部覆盖，如图 15 所示，2D 峰的半高峰宽为 42 表示得到的石墨烯为单双层石墨烯。

对比例 1 以 (0001) 面 SiC 为衬底的大面积石墨烯生长

具体步骤如下：

(1) 对 $3.5\times 4.5\text{mm}$ 的 (0001) SiC 衬底进行预处理，以去除石蜡和彻底清洗；具体为：利用热水浴去除石蜡，丙酮、酒精、去离子水各超声 30min 进行清洗；

(2) 将 SiC 衬底放入石墨坩埚中，再将石墨坩埚放入感应加热炉中；

(3) 整个生长过程均在真空中进行，真空度在 $5\times 10^{-6}\text{ mbar}$ 以下；

- (4) 第一阶段在 800℃维持 30min;
- (5) 第二阶段在 1200℃维持 30min;
- (6) 第三阶段在 1520℃维持 40min;
- (7) 第四阶段炉冷，石墨烯生长结束。

石墨烯测试结果为：如图 16 和 17 所示，石墨烯几乎全部覆盖，如图 18 所示，2D 峰的半高峰宽为 43，表示得到的石墨烯为单双层石墨烯。图 19 为在 Si 面测得的电输运性质图。

以上所述的具体实施例，对本公开的目的、技术方案和有益效果进行了进一步详细说明，应理解的是，以上所述仅为本公开的具体实施例而已，并不用于限制本公开，凡在本公开的精神和原则之内，所做的任何修改、等同替换、改进等，均应包含在本公开的保护范围之内。

权利要求

1、一种单层石墨烯的可控生长方法，其特征在于，在非极性晶面 SiC 衬底的任意角度的非极性晶面上外延生长单层石墨烯，由此利用所述非极性晶面对石墨烯的电输运性质进行调控。

2、根据权利要求 1 所述的可控生长方法，其特征在于，所述非极性晶面 SiC 衬底为六方晶系，所述非极性晶面为 (1-105) 面，与 (0001) 面成 37.1° 夹角。

3、根据权利要求 2 所述的可控生长方法，其特征在于，所述非极性晶面 SiC 衬底为 4H-SiC 衬底或 6H-SiC 衬底。

4、根据权利要求 1 所述的可控生长方法，其特征在于，所述非极性晶面 SiC 衬底通过以下步骤制备：

根据一非极性晶面与 (0001) 面或 (000-1) 面的夹角，来调整金刚石线相对于一 SiC 晶柱的角度，利用金刚石线对所述 SiC 晶柱进行切割得到 SiC 晶片；

对所述 SiC 晶片进行研磨、机械抛光和化学机械抛光，得到具有原子级平整度的非极性晶面；

对所述 SiC 晶片进行切割，得到所述非极性晶面 SiC 衬底。

5、根据权利要求 4 所述的可控生长方法，其特征在于，所述金刚石线的线径在 0.2~0.8 mm，进给速度为 1.5~5 mm/min。

6、根据权利要求 5 所述的可控生长方法，其特征在于，所述金刚石线的线径为 0.6 mm，进给速度为 3 mm/min。

7、根据权利要求 4 所述的可控生长方法，其特征在于，所述研磨的条件为：采用含金刚石颗粒的磨盘或砂纸，金刚石颗粒的粒径为 3~60 μm ，抛光压力为 20~250N，动力头速度和磨盘转速分别为 30~80r/min、100~300r/min。

8、根据权利要求 7 所述的可控生长方法，其特征在于，所述研磨的条件为：依次以金刚石颗粒粒径为 60 μm 和 30 μm 的磨盘进行研磨，并且在研磨时抛光压力从 100~200N 逐渐增加，动力头速度和磨盘转速

分别为 60r/min 和 280r/min。

9、根据权利要求 4 所述的可控生长方法，其特征在于，所述机械抛光的条件为：采用金刚石悬浮液，金刚石颗粒粒径为 $0.05\sim 9\mu\text{m}$ ，抛光压力为 $20\sim 80\text{N}$ ，抛光盘为合成丝绸布，动力头速度为 $30\sim 100\text{r/min}$ ，磨盘转速为 $60\sim 320\text{r/min}$ 。

10、根据权利要求 9 所述的可控生长方法，其特征在于，所述机械抛光的条件为：依次以金刚石颗粒粒径为 $3\mu\text{m}$ 和 $1\mu\text{m}$ 的金刚石悬浮液进行抛光，抛光压力依次分别为 80N 和 60N ，动力头速度和磨盘转速分别为 80r/min 和 310r/min 。

11、根据权利要求 4 所述的可控生长方法，其特征在于，所述化学机械抛光的条件为：使用碱性的二氧化硅抛光液，抛光压力为 $20\sim 80\text{N}$ ，抛光液滴加速度为 $5\sim 50\text{ ml/min}$ ，抛光垫为绒毛类结构，动力头速度为 $30\sim 100\text{r/min}$ ，磨盘转速为 $60\sim 320\text{r/min}$ 。

12、根据权利要求 11 所述的可控生长方法，其特征在于，所述化学机械抛光的条件为：所述碱性的二氧化硅抛光液的 pH 值为 $9\sim 12$ ，抛光压力为 60N ，抛光液滴加速度为 40 mL/min ，动力头速度为 60 r/min ，磨盘转速为 120 r/min 。

13、根据权利要求 4 所述的可控生长方法，其特征在于，所述 SiC 晶片被切割成长度为 $3\sim 8\text{mm}$ 、宽度为 $4\sim 10\text{mm}$ 的小晶片，作为非极性晶面 SiC 衬底。

14、根据权利要求 1 所述的可控生长方法，其特征在于，所述石墨烯通过 SiC 热解法进行生长，具体包括以下步骤：

对所述非极性晶面 SiC 衬底进行预处理；

将经预处理后的所述非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中， $500\sim 900^{\circ}\text{C}$ 下加热 $20\sim 60\text{min}$ ；

将所述非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 $1100\sim 1350^{\circ}\text{C}$ ，加热 $20\sim 100\text{min}$ ，然后升温至 $1500\sim 1600^{\circ}\text{C}$ ，加热 $20\sim 150\text{min}$ ；

待降温至室温后石墨烯生长结束。

15、根据权利要求 14 所述的可控生长方法，其特征在于，将经预

处理后的所述非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中、500℃下加热 60 min;

将所述非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 1100℃, 加热 80 min, 然后升温至 1500℃, 加热 120 min。

16、根据权利要求 1 所述的可控生长方法, 其特征在于, 所述石墨烯以涂覆于非极性晶面 SiC 衬底上的有机物为固态碳源进行生长, 具体包括以下步骤:

对所述非极性晶面 SiC 衬底进行预处理;

将经预处理后的所述非极性晶面 SiC 衬底旋涂 10~100nm 厚的有机物;

将所述非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中, 在 500~1000℃下加热 20~60min;

将所述非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 1200~1400℃, 加热 20~100 min, 然后升温至 1500~1700℃, 加热 20~150min;

待降温至室温后石墨烯生长结束。

17、根据权利要求 16 所述的可控生长方法, 其特征在于, 将所述非极性晶面 SiC 衬底在真空环境中, 在 800℃下加热 40min;

将所述非极性晶面 SiC 衬底在惰性气氛下升温至 1400℃, 加热 81 min, 然后升温至 1700℃, 加热 115 min。

18、根据权利要求 16 所述的可控生长方法, 其特征在于:

所述有机物为光刻胶、聚苯乙烯或聚丙烯腈。

19、一种利用如权利要求 1 至 18 任意一项所述的单层石墨烯的可控生长方法制得的单层石墨烯。

20、一种非极性晶面 SiC 衬底的制备方法, 其特征在于, 包括以下步骤:

根据一非极性晶面与 (0001) 面或 (000-1) 面的夹角, 来调整金刚石线相对于一 SiC 晶柱的角度, 利用金刚石线对所述 SiC 晶柱进行切割得到 SiC 晶片;

对所述 SiC 晶片进行研磨、机械抛光和化学机械抛光, 得到具有原子级平整度的非极性晶面;

对所述 SiC 晶片进行切割，得到所述非极性晶面 SiC 衬底。

21、根据权利要求 20 所述的制备方法，其特征在于，所述金刚石的线径在 0.2~0.8 mm，进给速度为 1.5~5 mm/min。

22、根据权利要求 21 所述的制备方法，其特征在于，所述金刚石的线径为 0.6 mm，进给速度为 3 mm/min。

23、根据权利要求 20 所述的制备方法，其特征在于，所述研磨的条件为：采用含金刚石颗粒的磨盘或砂纸，金刚石颗粒的粒径为 3~60 μ m，抛光压力为 20~250N，动力头速度和磨盘转速分别为 30~80r/min、100~300r/min。

24、根据权利要求 23 所述的制备方法，其特征在于，所述研磨的条件为：依次以金刚石颗粒粒径为 60 μ m 和 30 μ m 的磨盘进行研磨，并且在研磨时抛光压力从 100~200N 逐渐增加，动力头速度和磨盘转速分别为 60r/min、280r/min。

25、根据权利要求 4 所述的制备方法，其特征在于，所述机械抛光的条件为：采用金刚石悬浮液，金刚石颗粒粒径为 0.05~9 μ m，抛光压力为 20~80N，抛光盘为合成丝绸布，动力头速度为 30~100r/min，磨盘转速为 60~320r/min。

26、根据权利要求 25 所述的制备方法，其特征在于，所述机械抛光的条件为：依次以金刚石颗粒粒径为 3 μ m 和 1 μ m 的金刚石悬浮液进行抛光，抛光压力依次分别为 80N 和 60N，动力头速度和磨盘转速分别为 80r/min 和为 310r/min。

27、根据权利要求 20 所述的制备方法，其特征在于，所述化学机械抛光的条件为：使用碱性的二氧化硅抛光液，抛光压力为 20~80N，抛光液滴加速度为 5~50 ml/min，抛光垫为绒毛类结构，动力头速度为 30~100r/min，磨盘转速为 60~320r/min。

28、根据权利要求 27 所述的制备方法，其特征在于，所述化学机械抛光的条件为：所述碱性的二氧化硅抛光液的 pH 值为 9~12，抛光压力为 60N，抛光液滴加速度为 40 mL/min，动力头速度为 60 r/min，磨盘转速为 120 r/min。

29、根据权利要求 20 所述的制备方法，其特征在于，所述 SiC 晶片被切割成长度为 3~8mm、宽度为 4~10mm 的小晶片，作为非极性晶面 SiC 衬底。

30、一种利用如权利要求 20 至 29 任意一项所述的非极性晶面 SiC 衬底的制备方法制得的非极性晶面 SiC 衬底。

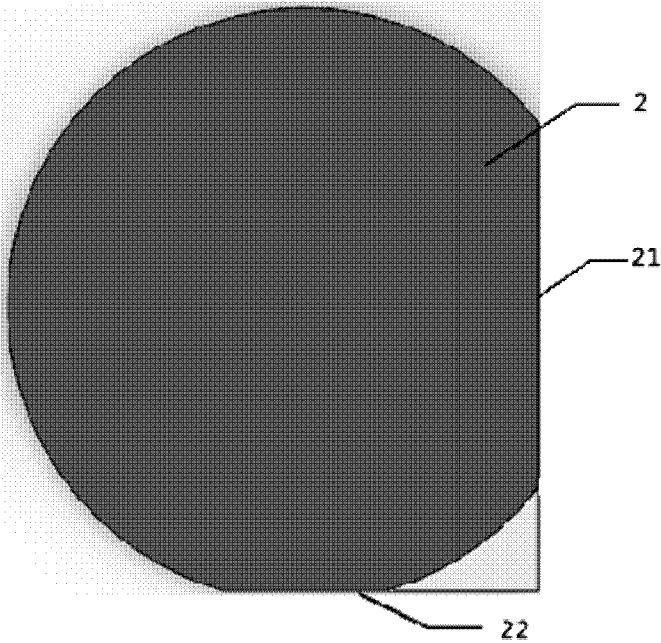


图 1

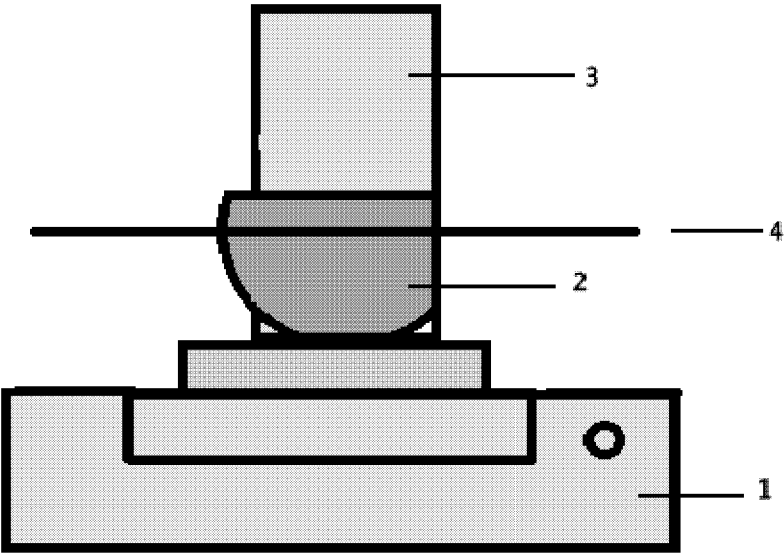


图 2

2/10

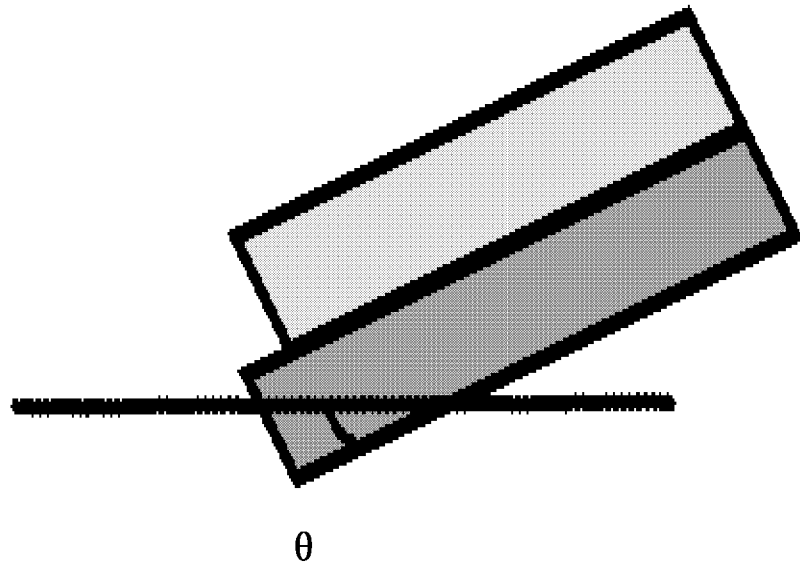


图 3

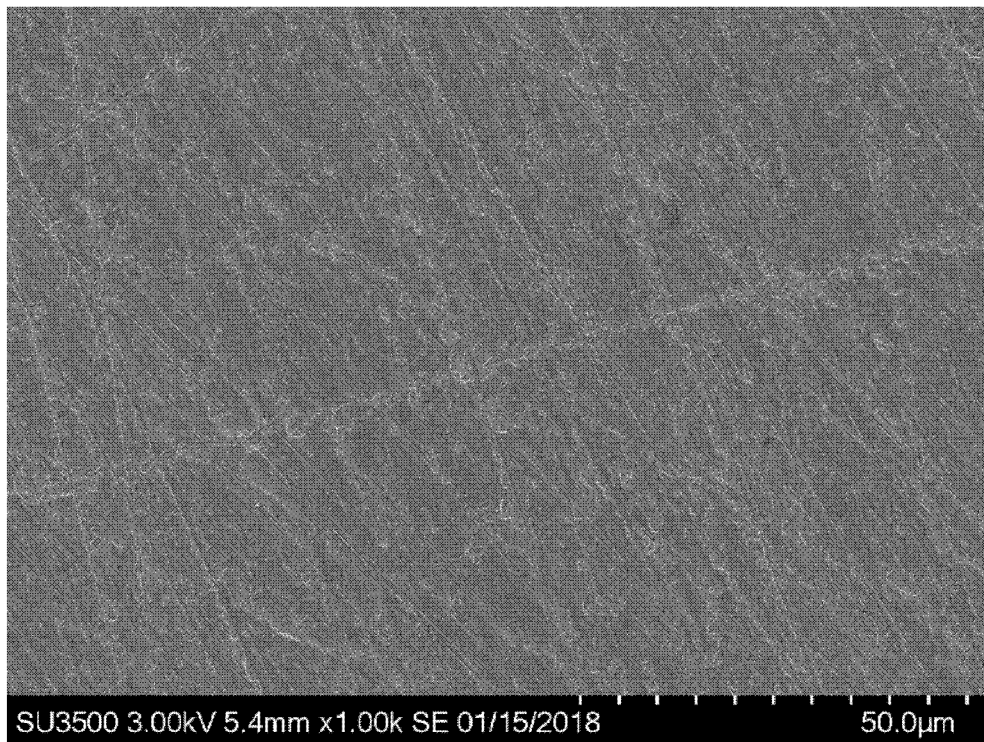


图 4

3/10

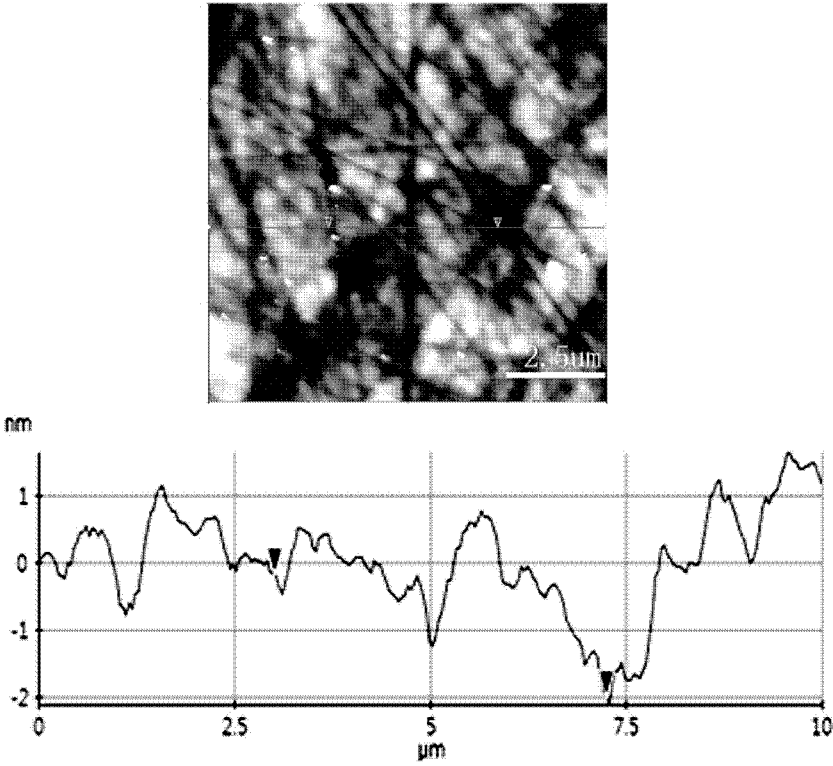


图 5

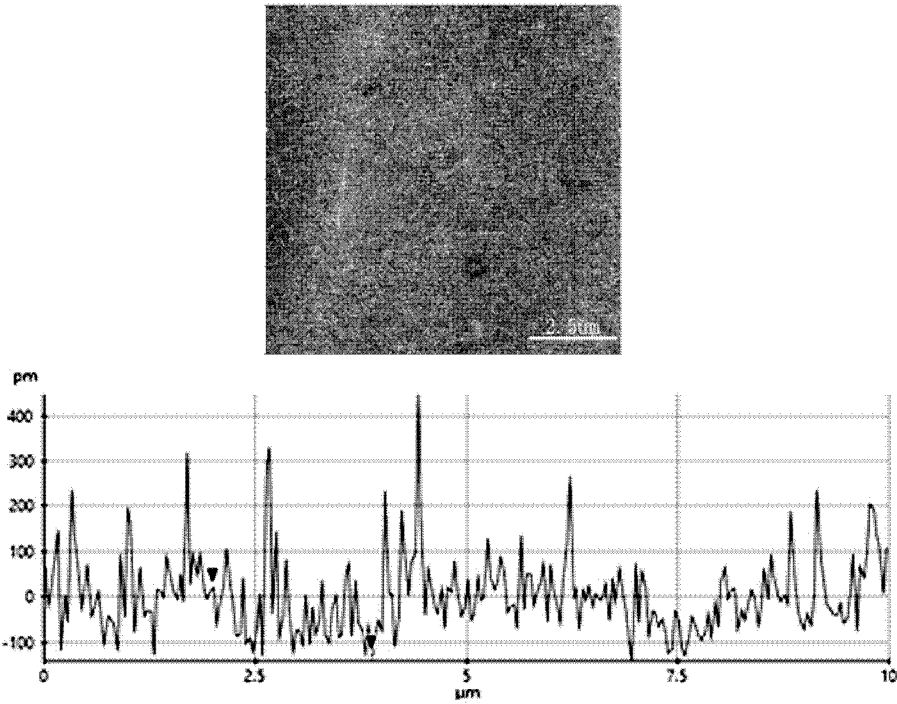


图 6

4/10

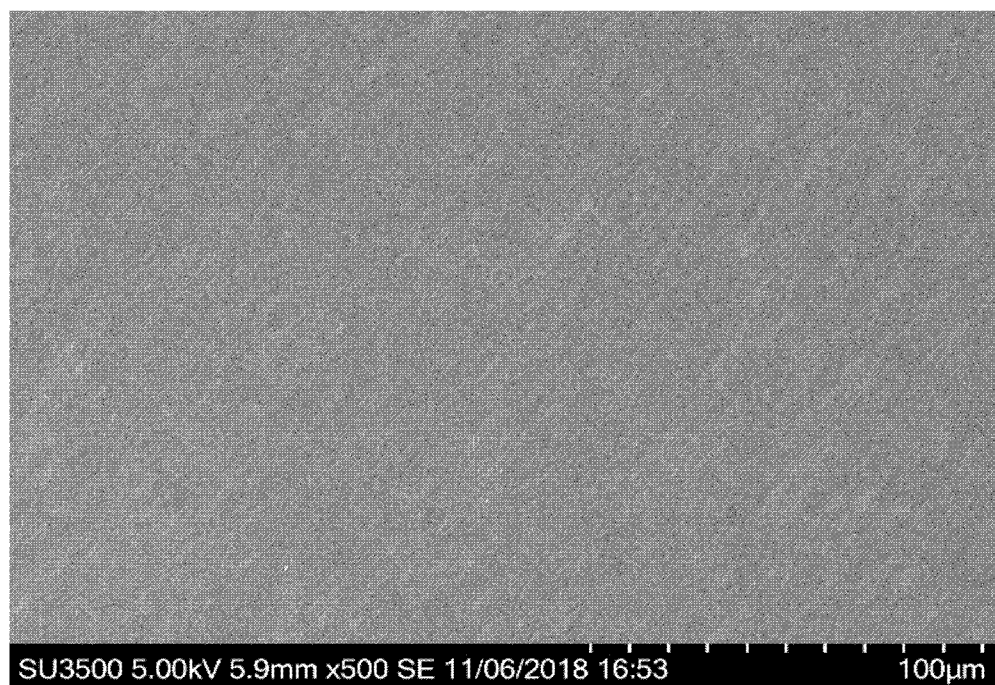


图 7

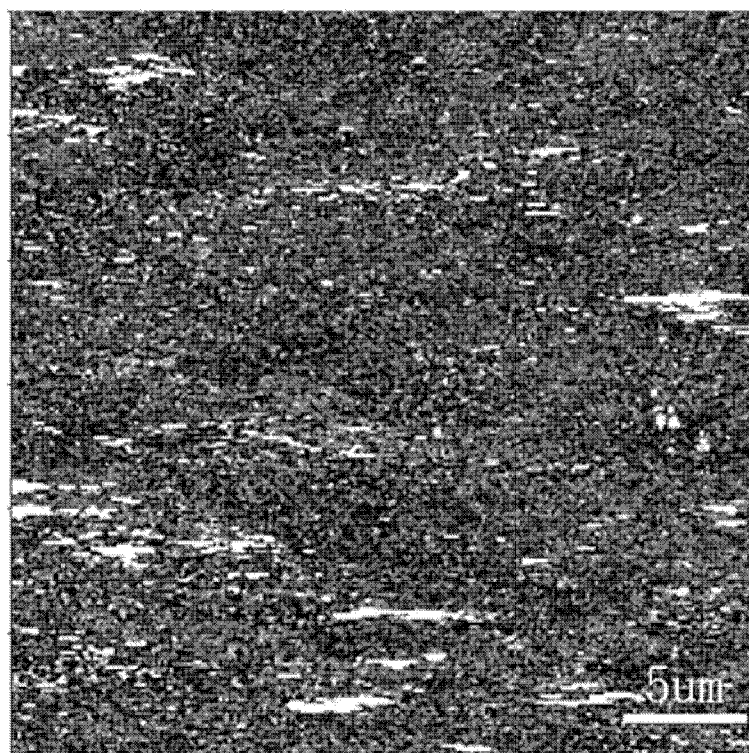


图 8

5/10

石墨烯和碳化硅衬底结合力弱

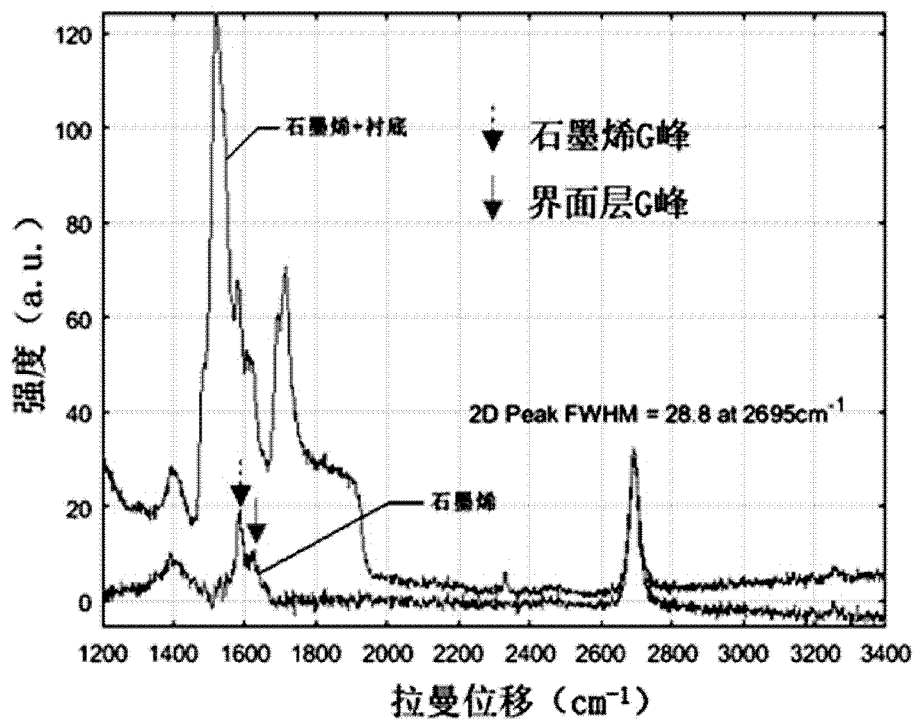


图 9

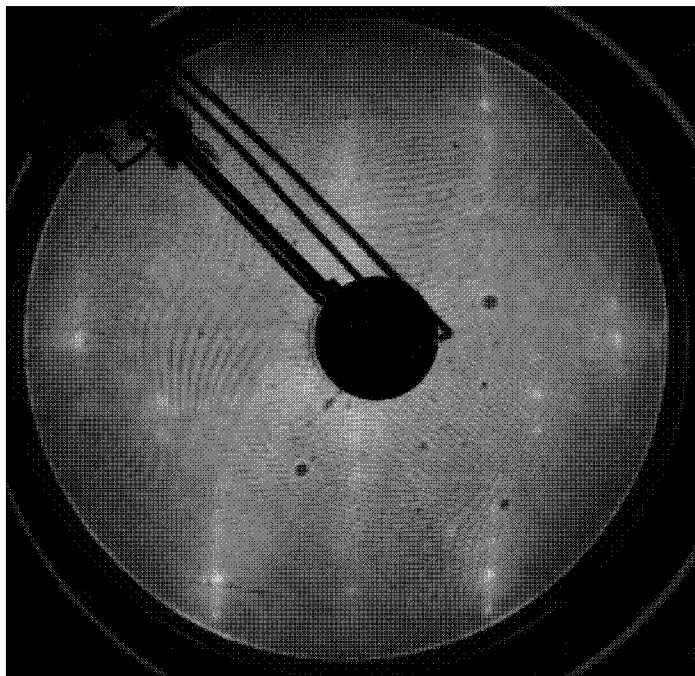


图 10

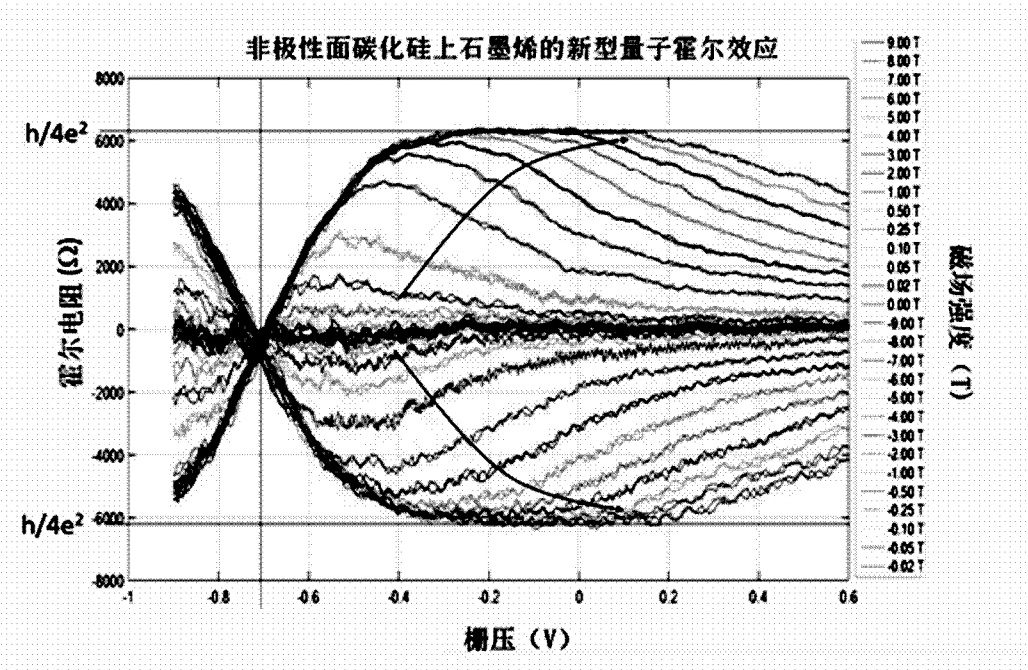


图 11

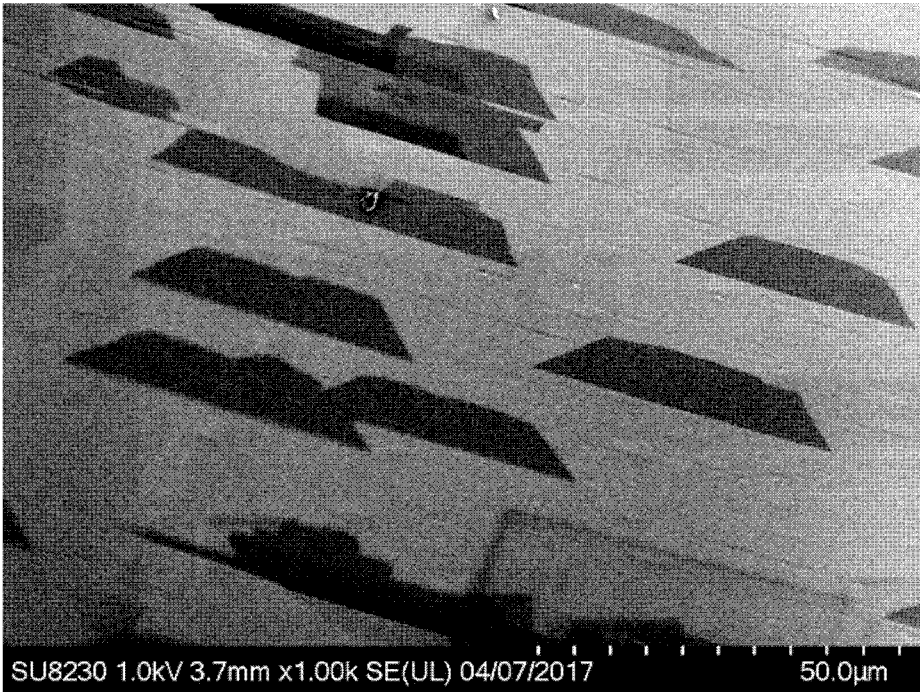


图 12

7/10

石墨烯和碳化硅衬底结合力强

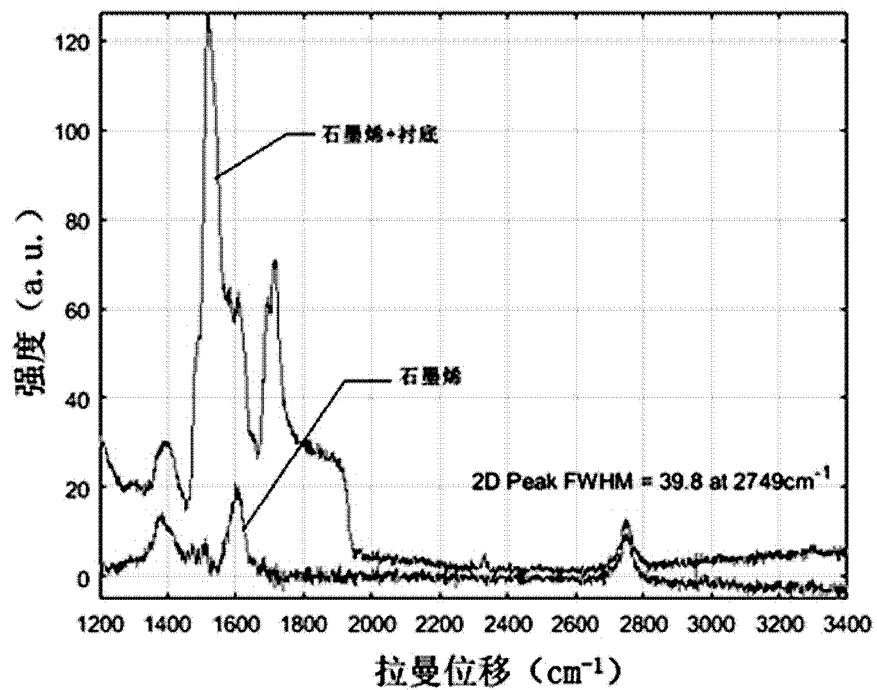


图 13

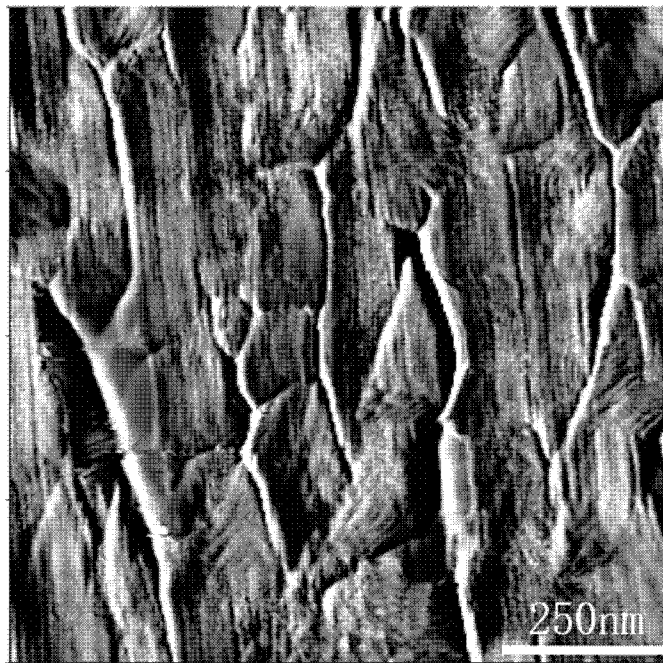


图 14

8/10

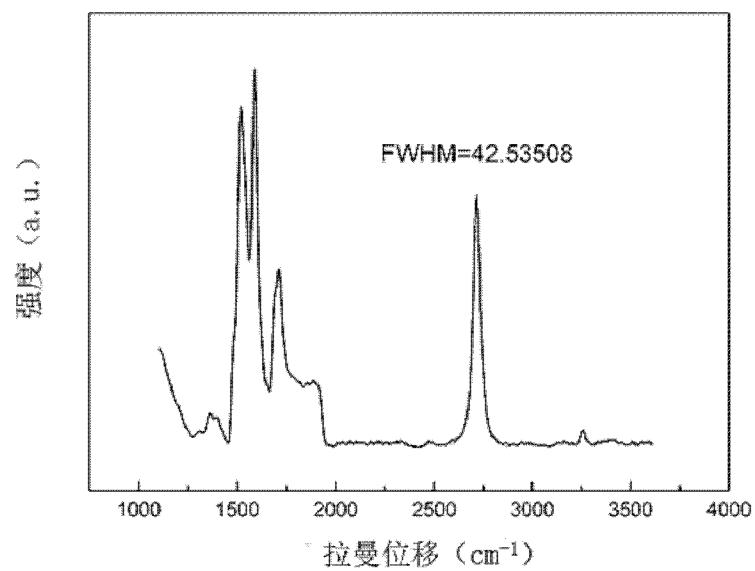


图 15



图 16

9/10

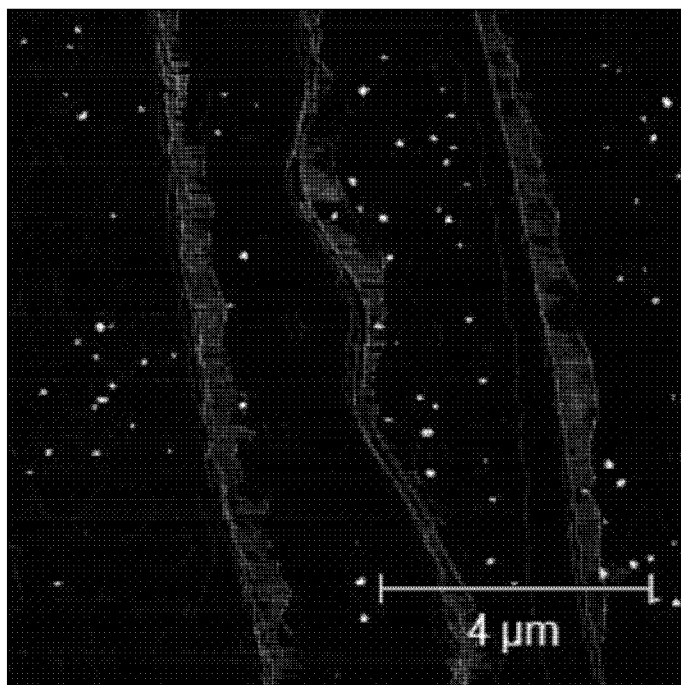


图 17

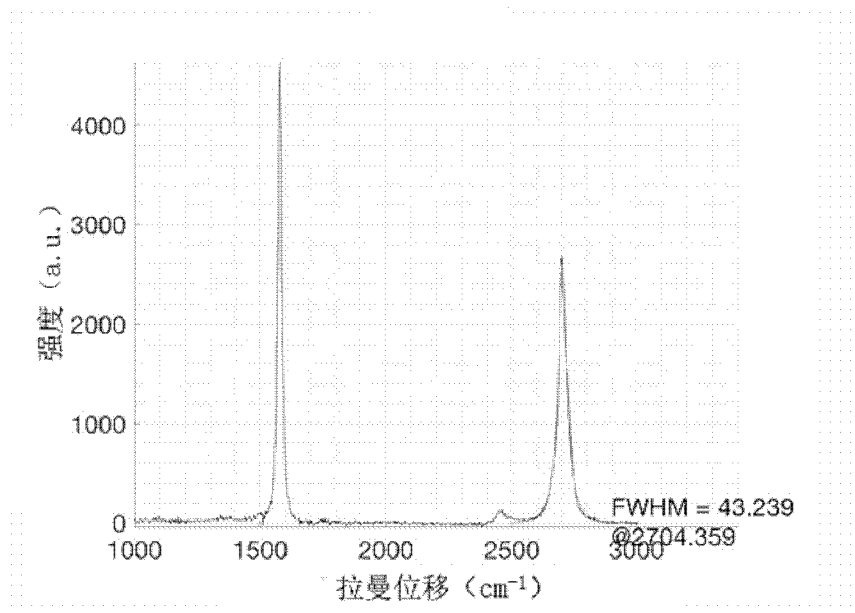


图 18

10/10

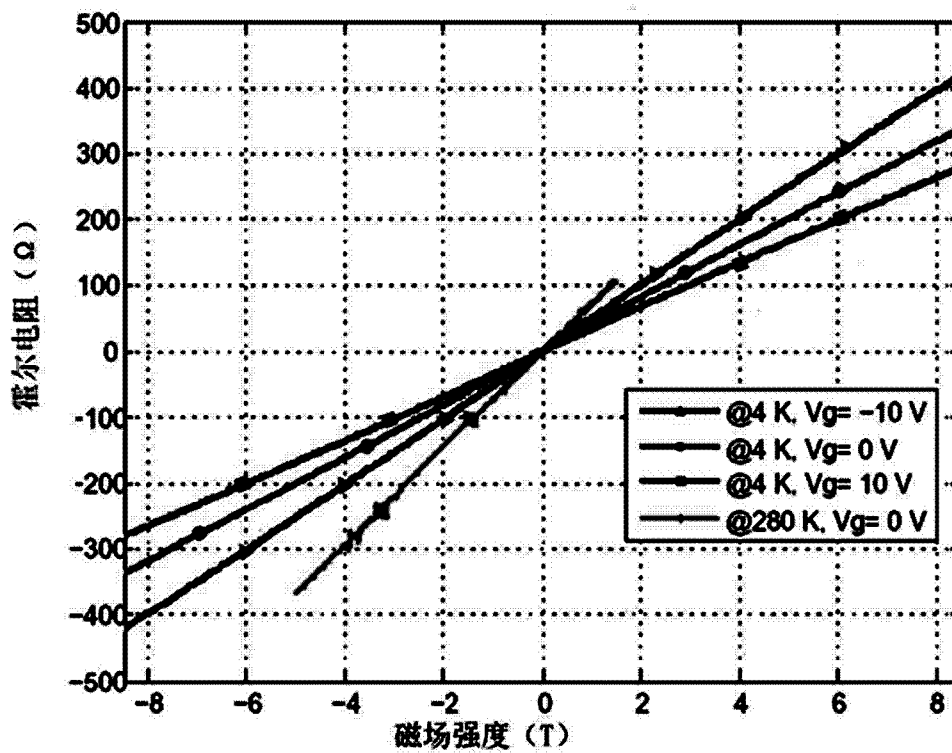


图 19

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2019/076541

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L 21/02(2006.01)i; C23C 16/02(2006.01)i; C23C 16/26(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L21/-; C23C16/-

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CNPAT, CNKI, EPODOC, WPI, Google, STN: 抛光, 外延, non?polar???, 涂刷, 涂覆, 石墨烯, epitaxial, 碳化硅, 切割, graphene, silicon carbide, SiC, 涂布, polish+, paint+, coat+

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	LIN, J. J. et al. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" <i>Chinese Physics B</i> , Vol. 22, No. 1, 31 December 2013 (2013-12-31), 016301	1-3, 14-15, 19
Y	LIN, J. J. et al. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" <i>Chinese Physics B</i> , Vol. 22, No. 1, 31 December 2013 (2013-12-31), 016301	4-13, 16-18
X	HENS, P. et al. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" <i>CABRON</i> , Vol. 80, 22 September 2014 (2014-09-22), pp. 823-829	1-3, 14, 15, 19
Y	HENS, P. et al. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" <i>CABRON</i> , Vol. 80, 22 September 2014 (2014-09-22), pp. 823-829	4-13, 16-18



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

08 October 2019

Date of mailing of the international search report

28 November 2019

Name and mailing address of the ISA/CN

**China National Intellectual Property Administration (ISA/
CN)**
No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao Haidian District, Beijing
100088
China

Facsimile No. (86-10)62019451

Authorized officer

Telephone No.

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DASS, B. K. et al. "Comparison of Epitaxial Graphene Growth on Polar and Nonpolar 6H-SiC Faces: On the Growth of Multilayer Films" <i>Crystal Growth & Design</i> , Vol. 12, 06 June 2012 (2012-06-06), pp. 3379-3387	1-3, 14, 15, 19
Y	DASS, B. K. et al. "Comparison of Epitaxial Graphene Growth on Polar and Nonpolar 6H-SiC Faces: On the Growth of Multilayer Films" <i>Crystal Growth & Design</i> , Vol. 12, 06 June 2012 (2012-06-06), pp. 3379-3387	4-13, 16-18
X	OSTLER, M. et al. "Direct growth of quasi-free-standing epitaxial graphene on nonpolar SiC surfaces" <i>Physical Review B</i> , Vol. 88, 07 August 2013 (2013-08-07), 085408	1-3, 14, 15, 19
Y	OSTLER, M. et al. "Direct growth of quasi-free-standing epitaxial graphene on nonpolar SiC surfaces" <i>Physical Review B</i> , Vol. 88, 07 August 2013 (2013-08-07), 085408	4-13, 16-18
X	DASS, B. K. et al. "Study of epitaxial graphene on non-polar 6H-SiC faces" <i>Materials Science Forum</i> , Vol. 717-720, 14 May 2012 (2012-05-14), pp. 633-636	1-3, 14, 15, 19
Y	DASS, B. K. et al. "Study of epitaxial graphene on non-polar 6H-SiC faces" <i>Materials Science Forum</i> , Vol. 717-720, 14 May 2012 (2012-05-14), pp. 633-636	4-13, 16-18
Y	CN 105668559 A (CHONGQING INSTITUTE OF GREEN AND INTELLIGENT TECHNOLOGY, CHINESE ACADEMY OF SCIENCES) 15 June 2016 (2016-06-15) description, paragraphs 6-10	16-18
X	CN 103286672 A (R&D CENTER OF SHANGHAI INSTITUTE OF CERAMICS; SHANGHAI INSTITUTE OF CERAMICS, CHINA ACADEMY OF SCIENCES) 11 September 2013 (2013-09-11) description, paragraphs 4-8	4-13, 20-30

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/CN2019/076541

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

[1] Regarding claims 1 and 20, see details in Box IV of Table 237

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/CN2019/076541

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)		Publication date (day/month/year)
CN	105668559	A	15 June 2016	None		
CN	103286672	A	11 September 2013	CN	103286672	B 04 November 2015

国际检索报告

国际申请号

PCT/CN2019/076541

A. 主题的分类 H01L 21/02(2006.01)i; C23C 16/02(2006.01)i; C23C 16/26(2006.01)i 按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类																	
B. 检索领域 检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号) H01L21/-; C23C16/- 包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献 在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用)) CNPAT, CNKI, EPDOC, WPI, Google, STN:抛光, 外延, non?polar???, 涂刷, 涂覆, 石墨烯, epitaxial, 碳化硅, 切割, graphene, silicon carbide, SiC, 涂布, polish+, paint+, coat+																	
C. 相关文件 <table border="1"> <thead> <tr> <th>类 型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11$\bar{2}$0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301</td> <td>1-3, 14-15, 19</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11$\bar{2}$0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301</td> <td>4-13, 16-18</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页</td> <td>1-3, 14-15, 19</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页</td> <td>4-13, 16-18</td> </tr> </tbody> </table>			类 型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	X	LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301	1-3, 14-15, 19	Y	LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301	4-13, 16-18	X	HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页	1-3, 14-15, 19	Y	HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页	4-13, 16-18
类 型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求															
X	LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301	1-3, 14-15, 19															
Y	LIN J.J. 等. "Effect of 6H-SiC (11 $\bar{2}$ 0) substrate on epitaxial graphene revealed by Raman scattering" Chin. Phys. B, 第22卷, 第1期, 2013年 12月 31日 (2013 - 12 - 31), 016301	4-13, 16-18															
X	HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页	1-3, 14-15, 19															
Y	HENS Philip等. "Large area buffer-free graphene on non-polar (001) cubic silicon carbide" CABBON, 第80卷, 2014年 9月 22日 (2014 - 09 - 22), 第823-829页	4-13, 16-18															
☒ 其余文件在C栏的续页中列出。 ☒ 见同族专利附件。																	
* 引用文件的具体类型: "A" 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件 "E" 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利 "L" 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的) "O" 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件 "P" 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件 " T" 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件 " X" 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性 " Y" 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性 " & " 同族专利的文件																	
国际检索实际完成的日期 2019年 10月 8日		国际检索报告邮寄日期 2019年 11月 28日															
ISA/CN的名称和邮寄地址 中国国家知识产权局(ISA/CN) 中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088 传真号 (86-10)62019451		授权官员 陈春淳 电话号码 86-(010)-53962329															

C. 相关文件		
类 型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求
X	DASS B.K. 等. "Comparison of Epitaxial Graphene Growth on Polar and Nonpolar 6H-SiC Faces: On the Growth of Multilayer Films" Cryst. Growth Des., 第12卷, 2012年 6月 6日 (2012 - 06 - 06), 第3379-3387页	1-3, 14-15, 19
Y	DASS B.K. 等. "Comparison of Epitaxial Graphene Growth on Polar and Nonpolar 6H-SiC Faces: On the Growth of Multilayer Films" Cryst. Growth Des., 第12卷, 2012年 6月 6日 (2012 - 06 - 06), 第3379-3387页	4-13, 16-18
X	OSTLER M. 等. "Direct growth of quasi-free-standing epitaxial graphene on nonpolar SiC surfaces" PHYSICAL REVIEW B, 第88卷, 2013年 8月 7日 (2013 - 08 - 07), 085408	1-3, 14-15, 19
Y	OSTLER M. 等. "Direct growth of quasi-free-standing epitaxial graphene on nonpolar SiC surfaces" PHYSICAL REVIEW B, 第88卷, 2013年 8月 7日 (2013 - 08 - 07), 085408	4-13, 16-18
X	DASS B.K. 等. "Study of epitaxial graphene on non-polar 6H-SiC faces" Materials Science Forum, 第717-720卷, 2012年 5月 14日 (2012 - 05 - 14), 第633-636页	1-3, 14-15, 19
Y	DASS B.K. 等. "Study of epitaxial graphene on non-polar 6H-SiC faces" Materials Science Forum, 第717-720卷, 2012年 5月 14日 (2012 - 05 - 14), 第633-636页	4-13, 16-18
Y	CN 105668559 A (中国科学院重庆绿色智能技术研究院) 2016年 6月 15日 (2016 - 06 - 15) 说明书第6-10段	16-18
X	CN 103286672 A (上海硅酸盐研究所中试基地 中国科学院上海硅酸盐研究所) 2013年 9月 11日 (2013 - 09 - 11) 说明书第4-8段	4-13, 20-30

第III栏 缺乏发明单一性的意见(续第1页第3项)

本国际检索单位在该国际申请中发现多项发明, 即:

[1] 权利要求1和权利要求20, 具体详见237表第IV栏

1. ☐ 由于申请人按时缴纳了被要求缴纳的全部附加检索费, 本国际检索报告涉及全部可作检索的权利要求。
2. ☒ 由于无需付出有理由要求附加费的劳动即能对全部可检索的权利要求进行检索, 本单位未通知缴纳任何加费。
3. ☐ 由于申请人仅按时缴纳了部分被要求缴纳的附加检索费, 本国际检索报告仅涉及已缴费的那些权利要求, 具体地说, 是权利要求:
4. ☐ 申请人未按时缴纳被要求缴纳的附加检索费。因此, 本国际检索报告仅涉及权利要求书中首先提及的发明; 包含该发明的权利要求是:

对异议的意见

- ☐ 申请人缴纳了附加检索费, 同时提交了异议书, 适用时, 缴纳了异议费。
- ☐ 申请人缴纳了附加检索费, 同时提交了异议书, 但未在通知书规定的时间期限内缴纳异议费。
- ☐ 缴纳附加检索费时未提交异议书。

国际检索报告
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2019/076541

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利	公布日 (年/月/日)
CN	105668559	A	2016年 6月 15日	无	
CN	103286672	A	2013年 9月 11日	CN 103286672	B 2015年 11月 4日