

低圧化学気相成長法によるグラフェン成長過程の 反射高速電子回折その場観察

In situ RHEED Study on Growth Process of Graphene
by Low Pressure Chemical Vapor Deposition

名大院工, ○湊 拓郎, 中原 仁, 安坂 幸師, 齋藤 弥八

Nagoya Univ., ○Takuro Minato, Hitoshi Nakahara, Koji Asaka and Yahachi Saito

E-mail: t.minato.0522@gmail.com

【はじめに】グラフェンは、炭素原子が六角形構造に sp^2 結合した層状物質であり、優れたキャリア移動度や機械的強度、化学的安定性などを有し、透明電極や化学センサーへの応用が期待されている。グラフェンの安価で大面積な成長方法として、化学気相成長(CVD)法があるが、その成長過程の詳細は解明されていない。そこで本研究では、CVD 法によるグラフェンの成長過程を、反射高速電子回折(RHEED)法を用いてリアルタイム観察することにより、グラフェンの成長過程の詳細を明らかにすることを試みた。

【実験】本研究では CVD と RHEED を同時に行うために、差動排気系を導入した実験系を用いた。炭素固溶度による成長過程の違いを比較するために、触媒金属として低炭素固溶度の Cu と、高炭素固溶度の Co(それぞれ 1000 °Cにおいて 0.04 at.%と 4.5 at.%)の 2 種類を使用した。電子ビーム蒸着法により Si 基板上に Cu/SiO₂/Si と Co/SiO₂/Si を作製した。炭素源はエタノールを使用し、成長条件はエタノール圧力を 0.1 Pa、エタノール温度を 700 °C、基板温度を 900 °C、CVD 時間を 5 分とした。この成長条件下で RHEED その場観察を行った。また、成長後の基板を Raman 分光法により評価した。

【結果】図 1(a)–(c) に、Co 触媒を用いた基板表面での CVD 前、CVD 中、CVD を終了し基板冷却後の RHEED パターンを示す。CVD 前は Co のパターンを示し(図 1(a))、CVD プロセスが進むにつれて二次元多結晶を表すストリークパターンに変化し、グラフェンの(10)反射が現れた(図 1(b))。CVD 終了後に急速冷却することによってグラフェンの(10)反射と(11)反射がより強く観察された(図 1(c))。以上から、グラフェンは CVD プロセス中に既に表面上に成長していることが示唆された。Cu 基板においても同様のストリークパターンが観察された。図 2 に CVD 終了後の基板の Raman スペクトルを示す。G、2D ピークはグラフェンの存在を示唆している。この結果は、RHEED パターンの変化と一致するものとなった。

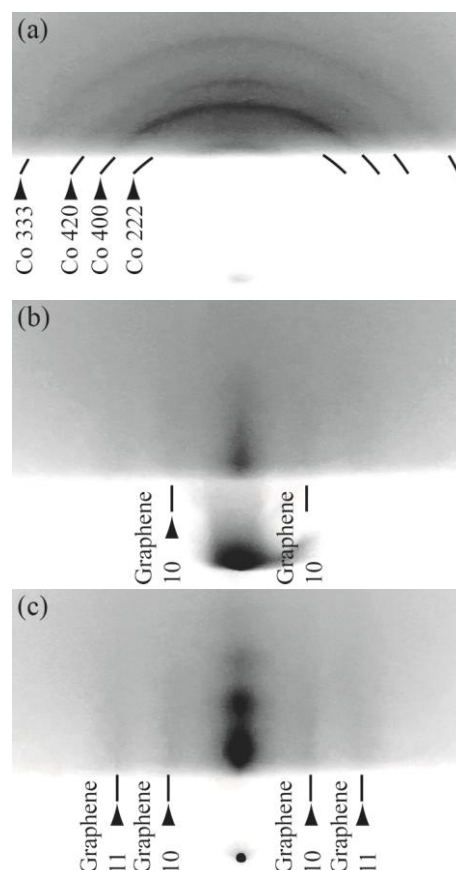


Fig. 1. RHEED patterns (a) before CVD. (b) during CVD. (c) after CVD.

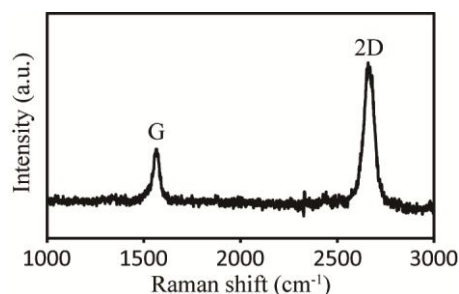


Fig. 2. Raman spectrum of graphene grown on the Co/SiO₂/Si substrate.