

低温プラズマ CVD 法によるフレキシブルウェブへのグラフェンの Roll-to-Roll 成膜

Roll-to-Roll deposition of graphene on flexible web by low-temperature plasma CVD

産総研¹, TASC² °山田貴壽^{1,2}, 嶋田那由太², 植草和輝², 長谷川雅考^{1,2}

AIST¹, TASC², °T.Yamada^{1,2}, N.SHimada², K.Uekusa², M. Hasegawa^{1,2}

E-mail: takatoshi-yamada@aist.go.jp

グラフェンは、高電気伝導性と高光透過性を有することから、透明電極材料として期待され、実用レベルの電気伝導性や光透過率性を有するグラフェン透明電極が、熱 CVD 法[1,2]や酸化グラフェンの還元法[3]により開発されている。我々は、比較的低温でのグラフェン成膜が可能なプラズマ CVD 法と、量産技術の一つである Roll-to-Roll 技術と組み合わせることで、Roll-to-Roll・プラズマ CVD 装置を開発し、A4(297mm)幅のグラフェンの Roll-to-Roll 成膜に成功している[4]。しかし、搬送皺やグラフェン膜内の圧縮応力、欠陥の存在に起因すると思われる高いシート抵抗 ($10^6 \Omega/\square$) が、実用的な透明導電膜に応用するための課題である。

低温成膜の利点を十分に活用し、搬送皺形成の低減と応力緩和を目的に、フレキシブルフィルムである銅/ポリイミド(Cu/PI)をウェブとして用い、グラフェンの Roll-to-Roll 成膜を試みた。グラフェンの合成には、Roll-to-Roll 機構を組み込んだスロットアンテナ型マイクロ波プラズマ CVD 装置をもちいた。Roll-to-Roll・プラズマ CVD 装置は 4 台のスロットアンテナ、モータ機能を有する巻取り部、ブレーキ機能を有する送出し部、水冷ホルダが設置されている。ウェブ(300mm 幅)は、約 50cm の距離を搬送され、その間にグラフェンが成膜される。応力はラマン分光法により G バンドピークのシフトを評価した。ラマンスペクトルの測定は、638nm の波長の半導体レーザーを励起光として用いた。ビーム系は $1\mu\text{m}$ である。

図 1 に、Roll-to-Roll・プラズマ CVD 法で Cu/PI 上グラフェンのラマン分光スペクトルを示す。欠陥に起因する D および D' バンドピークが観測されるが、G および 2D バンドが観測され、Roll-to-Roll・プラズマ CVD 法によりフレキシブルウェブ上へグラフェンが成膜で来たことがわかった。図 2 に、G バンド付近のスペクトルを示す。比較として、銅箔上に成膜(Cu foil)したグラフェンのラマンスペクトルも示す。Cu/PI および銅箔上に成膜されたグラフェンの G バンドピーク位置は 1586.5 および 1591cm^{-1} であり、Cu/PI を用いることで G バンドピークは熱 CVD 法で合成したグラフェンのピーク位置 (1582cm^{-1}) からのピークシフトが小さく、応力の低減が示唆される。D' ピーク強度から、Cu/PI を用いることで欠陥の低減が考えられる。

Roll-to-Roll・プラズマ CVD 法により、フレキシブルウェブである Cu/PI 上にグラフェンの成膜に成功した。さらに、Cu/PI をウェブに用いることでグラフェンの膜内応力や欠陥の低減が出来ることが確認された。

本研究の一部は、NEDO プロジェクト「グラフェン基盤研究開発」として行われた。

- [1] S. Bae et al., Nature Nanotechnol. 5, 574–578 (2011).
 [2] T. Kobayashi et al., Appl. Phys. Lett. 102(2013)023112
 [3] H. Yamaguchi et al., ASC Nano. 4, 524–528 (2010).
 [4] T. Yamada et al., Carbon 50 (2012) 2615.

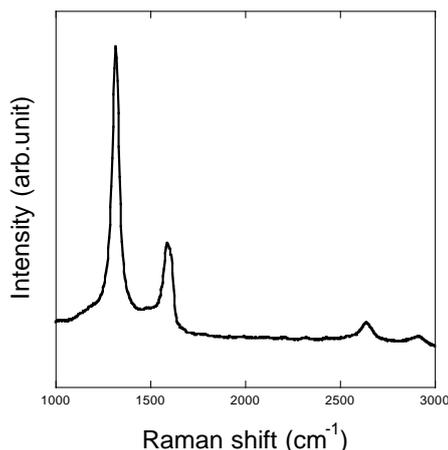


図 1. Roll-to-Roll・マイクロ波プラズマ CVD 法により Cu/PI 上に成膜したグラフェンのラマンスペクトル

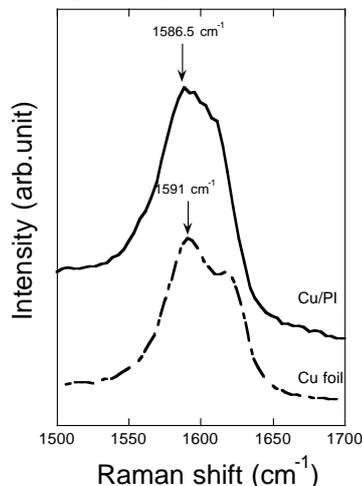


図 2. Roll-to-Roll・マイクロ波プラズマ CVD 法により Cu/PI および銅箔上に成膜したグラフェンの G バンドスペクトル