

金属・炭素ハイブリッド膜からのグラフェン合成過程の LEEM 観察

In-situ LEEM Observation of Graphene Synthesis from Metal-Carbon Hybrid Films

デンソー基礎研究所¹, NTT 物性基礎研² °大島久純¹, 桶結憲二¹, 細川徳一¹, 日比野浩樹²

DENSO CORPORATION Research Labs.¹, NTT Basic Research Labs.²

°Hisayoshi Oshima¹, Kenji Okeyui¹, Norikazu Hosokawa¹, Hiroki Hibino²

E-mail: hoosima@rlab.denso.co.jp

グラフェンを工業的に利用する手段として Cu 上へのグラフェン CVD とそれに続く任意基板への転写が提案され[1,2]、精力的な研究がなされている。しかしながら転写時の欠陥誘起やプロセスの煩雑さから、より簡便なグラフェン形成方法が望まれ、一つの方法として固体炭素源と金属を積層して熱処理する手法が提案されている[3]。一方、我々は基板上へグラフェン合成用の金属を成膜する際にその膜中へ炭素を導入した(金属・炭素ハイブリッド)膜を熱処理する事でグラフェンが合成可能なことを報告してきた[4,5]。本発表では低エネルギー電子顕微鏡(LEEM)を用いてハイブリッド膜表面の変化をその場観察し、グラフェン形成過程を考察した結果を報告する。

スパッターターゲットとして 4N-Fe を用い、メタンを添加(1~10vol.%)したアルゴン中でスパッタすることで炭素・金属ハイブリッド膜(Fe-C 膜)20nm を熱酸化したシリコン基板もしくはサファイア基板上に形成した。その後、LEEM 装置内にて加熱しながら表面の形態変化を観察した。また、加熱途中の試料表面のラマン分析は電気炉にて加熱した試料を用い室温にて行った。

Fig.1 にシリコン基板上の Fe-C 膜の加熱途中の LEEM 像およびその温度近傍で熱処理した試料のラマンスペクトルを示す。600℃付近では膜の凝集は進行していないが、フレーク状のコントラストが表面に現れ、ラマン分析からグラフェンが形成されていることが分った。さらに加熱すると膜の凝集が進行し、750℃付近ではほぼ凝集は完了した。一方、ラマンスペクトルは 2D バンドの強度が若干減少し半値幅が広がったものの各バンド間で大きな強度比の変化は見られなかった。

これらの結果から、我々の手法で得られるグラフェンは Fe の凝集前におおよその大きさが決まり、Fe の凝集過程は層数を増加させる傾向にあると考えられる。また、Fe 膜の凝集状態との比較から、Fe の凝集は自身の凝集力だけでなく、基板に接触したグラフェンが Fe を横方向に押出す力も働いていると思われる。

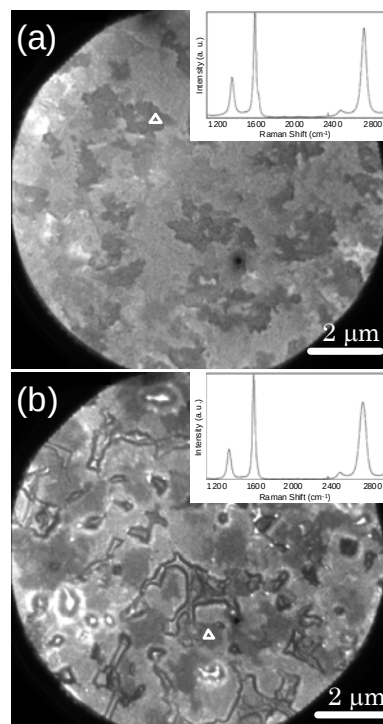


Fig.1 LEEM snapshots at (a) 632°C and (b) 745°C. Raman spectra were measured after thermal treatment in an electric furnace at (a) 610°C and (b) 760°C. with a Raman spectrum for a sample treated

- [1] X. Li et al., Science **324**, 1312 (2009) [2] S. Bae et al., Nat. Nanotech. **5**, 574 (2010) [3] M. Zheng et al., APL **96**, 063110 (2010) [4] 大島 他, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会 29p-G12-1 [5] 大島 他, 第 74 回応用物理学秋季学術講演会 19p-B1-11