

グラフェン CVD 成長における酸素分圧の影響

Effect of oxygen partial pressure on CVD growth of graphene on Cu

東大院理¹, 東大院新領域² ○寺澤 知潮¹, 斉木 幸一朗^{1,2}

Sch. of Sci., The Univ. of Tokyo¹, Grad. Sch. of Frontier Sci., The Univ. of Tokyo²

◦Tomoo Terasawa¹, Koichiro Saiki^{1,2}

E-mail: terasawa@epi.k.u-tokyo.ac.jp

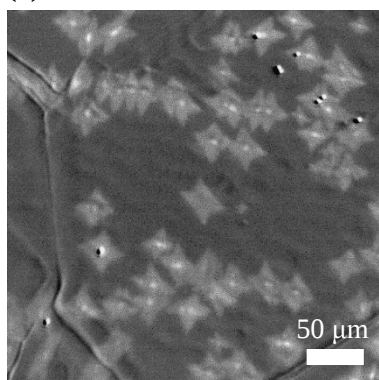
【序】大面積かつ高品質なグラフェンの作製を目指して Cu 基板上での化学気相成長法(CVD)が広く研究されている。近年, 触媒である Cu の表面を事前に酸化すると, グラフェンの核密度を減らす一方でグラフェン端の水素を除去し沿面成長を促進すると報告された^[1]。しかし, 基板表面の酸素濃度は系中の酸素分圧により直接に制御する方が簡便である。そこで本研究では放射顕微法によるリアルタイム観察によってグラフェンの CVD 成長における酸素分圧の影響を評価した。

【実験】背圧 0.2 Pa まで排気した真空槽に酸素を導入し(0.04-0.12 Pa), アルゴン 1000 sccm, 水素 100 sccm, メタン 5 sccm, 全圧 2700 Pa, 基板温度 950℃の条件で CVD によりグラフェンを成長させた, メタンの供給の停止によるグラフェンの除去を確認した後, 酸素分圧を変化させて同一の基板上にグラフェンを作製した。一連の実験により 0.04-0.12 Pa の範囲で酸素分圧に対するグラフェンの飽和核密度(n_{sat}), 成長速度, および除去速度の依存性を明らかにした。

【結果】酸素分圧 0.09 Pa における成長開始から 7 分後の放射顕微像を Fig. (a)に示す。グラフェンの放射率は Cu 基板より高いためグラフェンは輝点として観察された。Fig. (b)は酸素分圧を 0.04-0.12 Pa と変化させた時のグラフェンの飽和核密度, 成長速度, 収縮速度を示す。酸素分圧に対して収縮速度が単調増加し飽和核密度は単調減少した。また, 酸素分圧 0.12Pa においてグラフェンは成長しなかった。これらの結果から酸素によってグラフェンの成長前駆体が消費されたと考えられる。さらに, 酸素分圧 0.07Pa でのグラフェン成長速度の極大値は, 酸素によるグラフェン端からの水素の引き抜きおよび前駆体の消費の競合により成長速度が決定される機構を示唆する。

[1] Y. Hao *et al.*, *Science* **342** 720 (2013).

Fig. (a)



(b)

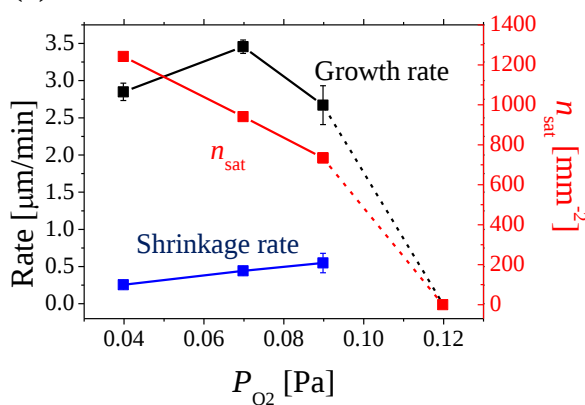


Fig. (a) Radiation-mode optical micrograph on Cu substrate during graphene growth at 7 min with oxygen partial pressure (P_{O_2}) of 0.09 Pa. Bright patches correspond to graphene grains. (b) Evolution of growth rate (black), shrinkage rate (blue), and saturation nucleation density (n_{sat} , red) of graphene to P_{O_2} . The left black axis stands for the rate while the right red axis stands for n_{sat} .