

CVD 法を用いた液体ガリウム触媒界面におけるグラフェン合成

CVD synthesis of graphene using interfacial graphitization of liquid gallium catalyst

○檜山 卓希^{1,2}、村上 勝久^{1,2}、藤田 淳一^{1,2}(1. 筑波大数理、2. TIMS)

○Takaki Hiyama^{1,2}, Katsuhisa Murakami^{1,2}, and Jun-ichi Fujita^{1,2}

(1.University of Tsukuba, 2.Tsukuba Research Center for Interdisciplinary Materials Science)

E-mail: bk201011077@s.bk.tsukuba.ac.jp

大面積グラフェン合成方法として炭化水素ガスを原料とした CVD 法が活発に研究されている。一般的な CVD 法では、メタン等の炭化水素ガスを用いて Cu や Ni のような固体金属触媒上にグラフェンを合成する。本研究では、炭素源として CH₄、触媒金属として液体 Ga を用いることで基板と液体 Ga の界面に高品質大面積合成することに成功した。この手法の特徴は、サファイア等の絶縁体基板や SiO₂ 酸化膜上に直接に、かつ大面積にグラフェンを合成できる点にある。また、触媒が液体金属 Ga であるので、グラフェン面からの Ga 除去も容易である。得られたグラフェンの層数は 1~2 層ほどで結晶性も良好であることが確認できたので報告する。

【実験方法】サファイア基板上に直径 5 mm ほどの液体ガリウムを滴下し、電気炉内で Ar と 5%CH₄ の混合ガスを流入させ 900℃~1050℃で加熱させることでグラフェン合成を行った。加熱後、液体 Ga を剥離し、得られたグラフェンを TEM、SEM、ラマンスペクトルによって評価した。また、電子露光及び EB 蒸着を用いて Ti/Au (10nm/30nm) の電極を作製し、電気特性計測を行った。

【実験結果】図 1 は合成温度 900℃と 1050℃で合成したグラフェンの AFM 画像(a,b)、ラマンスペクトル(c,d)、ラマンマッピング(d,e)である。900℃において合成したグラフェン(a)と 1050℃において合成したグラフェン (b)では、1050℃において若干基板が腐食されサファイアステップに変形が見られるが、膜のモフォロジーに大きな違いはなかった。(c)と(d)のラマンスペクトルでは、欠陥に由来する D/G 比は、900℃合成膜(c)では 0.47 に対して 1050℃合成膜(d)では 0.13 と低くなり、より高温での合成によって欠陥は減少することが分かった。また、グラフェンの層数に由来する 2D/G 比はラマンスペクトルより(c)で 1.7、(d)で 1.1 となり、大部分が 1~2 層ほどのグラフェンで覆われていることが判明した。AFM や SEM による表面解析の結果、(e)と(f)に示す 2D/G マッピングにおいて、黄色 (2 層グラフェン) および青 (多層グラフェン) が結晶成長核となり、ここから基板全面に単層グラフェンが成長していることが判った。

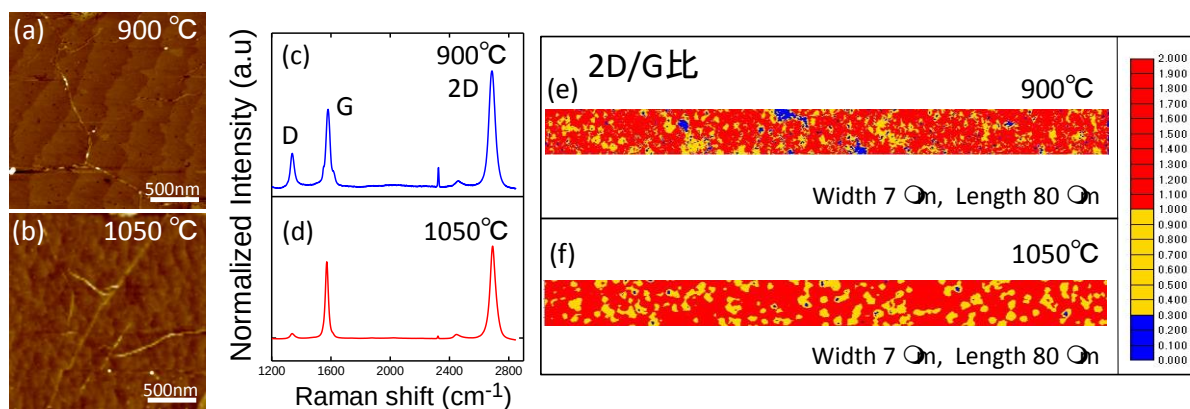


図 1 合成温度変化に対する表面構造、及び結晶性の変化