

大気圧 CVD 法における簡易酸化プロセス導入による グラフェン核生成の制御

Oxidation of Cu through a Simply Modified Process and Its Effect for Graphene Nucleation in Atmospheric CVD

○鈴木 誠也、寺田 佳史、吉村 雅満 (豊田工大院工)

ⁱ Seiya Suzuki, Yoshifumi Terada, Masamichi Yoshimura (Toyota Tech. Inst.)

E-mail: seiya09417@gmail.com

【はじめに】化学気相成長(CVD)法で得られるグラフェンは多結晶であり、グラフェンの高い電子移動度は結晶粒界によって低下する。そのため、グラフェンの核生成を抑制し、より大きなグラフェンの単結晶ドメインを得る必要がある。本研究では、グラフェン成長直前の Ar 中アニールを導入することにより銅表面が酸化し、効果的にグラフェンの核生成を抑制できることを見出したので報告する。

【実験方法及び結果】基板に 100 μm 厚の銅板(純度: 99.96%)を用い、石英管チャンバー内で大気圧化学気相成長(CVD)法によるグラフェン合成を行った。Fig. 1 に合成プロセスを示す。Ar 中で 1000 $^{\circ}\text{C}$ まで昇温し、続いて 15~20 分間水素アニール(水素濃度~16.7%)を行った。その後、水素流量をゼロにし、Ar 中でアニールした直後にグラフェン成長を開始した。Fig. 2(a-c)に 0-10 分の Ar アニール後にグラフェンを成長した銅表面の光学顕微鏡像を示す。明るく見える六角形が単層グラフェンを示し、Ar アニール時間を長くすることでグラフェン密度が低下することが分かった。Fig. 2(d)に Ar アニール時間とグラフェン密度の関係を示す。10 分間の Ar 加熱により約 5 cm^{-2} の低密度で、直径 400 μm 以上のグラフェンドメイン(Fig. 2(c))が成長可能なことがわかる。

Ar アニールにより核生成が抑制される理由を調べるため、Fig. 1(a)に示した A 及び B のプロセス直後に冷却した銅板を X 線光電子分光により測定した。その結果、5 分間の Ar アニールで表面の酸素濃度が約 5%上昇し、表面の酸化による活性サイトの減少が核生成抑制に繋がったと考えられる[1]。酸素の発生起源は、石英管に吸着した酸素の脱離、高温での加熱による SiO_2 の分解、石英管内の残留酸素、未処理銅板より発生した酸素の残存などが考えられ、現在検討中である。

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

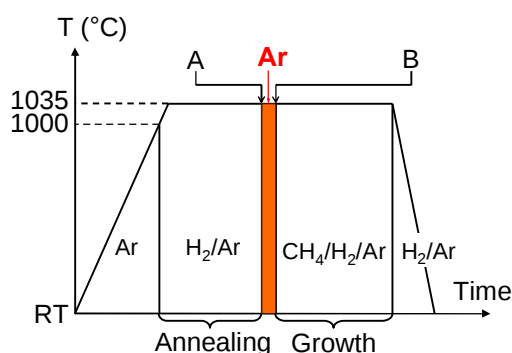


Fig. 1. Schematic diagram of CVD process

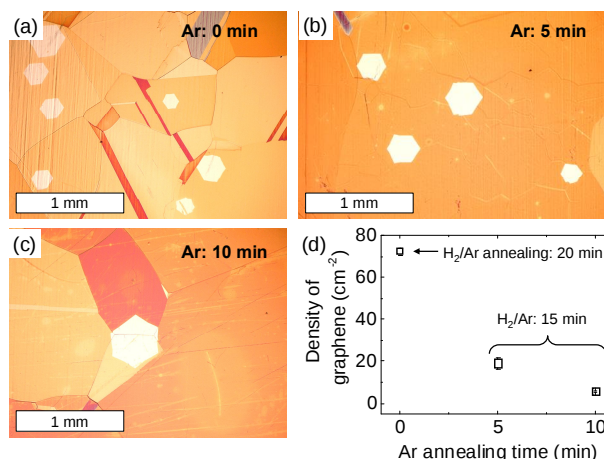


Fig. 2. Optical micrographs of graphenes on Cu with Ar annealing for (a) 0, (b) 5, and (c) 10 minutes. (d) Dependence of graphene density on Ar annealing time.