Cu foil 触媒を用いた大気圧化学気相成長法による グラフェン成長の系統的な評価

A systematic study of atmospheric pressure chemical vapor deposition Growth of graphene on Cu foil

北大院情報科学¹, 北大創成研² °Shirini Soraya¹, Subagyo Agus^{1,2}, 末岡和久¹

Graduate School of Information Science and Technology¹, CRIS², Hokkaido University

°Shirini Soraya¹, Subagyo Agus^{1,2}, and K. Sueoka¹

E-mail: soraya@nano.ist.hokudai.ac.jp

2次元物質であるグラフェンは優れた電子移動性, 光透過性, 機械的強度特性, 柔軟性などの特性を持ち, 様々な分野から注目されている. グラフェンの成長方法として容易性, 優れた拡張性, かつ大面積の成長が可能である化学気相成長(CVD: chemical vapor deposition)法の研究が広く行われてきた^[1,2]. トランジスタなどの電子デバイス応用に適している単層および2層グラフェンの成長は, Cuを触媒とした低圧CVDを用いるのが一般的である. 近年, 低コストグラフェン成長が目的とした大気圧CVD (Atmospheric pressure CVD: APCVD)法の使用も進められており, 高品質なグラフェン成長が可能になってきたが成長時間が長くなったりするなどのデメリットが生じている^[3]. 本研究は, APCVD法における成長時の様々なパラメータとグラフェンの質の関係を明らかにすることを目的とし, Cu foil 触媒の清浄化・平坦化およびグラフェン成長条件の最適化をおこなった.

触媒としてCu foil (純度 99.96%)を用いように数100nm以上の凹凸があり, 作製時に汚染物付着, 酸化物形成がなされるためグラフェン成長に悪影響を与える. 我々は, 有機溶媒洗浄に加え, 汚染物のみならず酸化物も除去できる電解研磨をおこなった. 電解研磨はリン酸(H_3PO_4)を用いた. Cu foilの表面の粗さは原子間力顕微鏡(AFM), グラフェンの質はラマン分光法を用いて評価した. 60分間の電解研磨を加えることによって図1(b)に示すように130nmあるrmsが10nm程度まで平坦になった. このような平坦なCuフォイルを触媒とし, カーボン材料として高純度 CH_4 を用いたAPCVD法によるグラフェンの成長をおこなった. グラフェンの成長過程は, 上昇, 加熱, 成長および冷却の4ステップに分けられ, 本研究では, 加熱・成長ステップにおける温度, 時間, ガス流量の依存性について系統的に調査した. 図2に示すように電解研磨されたCu foil上に成長されたグラフェンはAPCVD法における2層グラフェンのCoverageは51%という高い値を示したが, 電界研磨をおこなわなかったCu foil上のグラフェンの約90%は複層であった. Cu foilのラフネスがグラフェンの層数に大きく影響を与えると言える. 他の条件のグラフェン成長結果についても報告する.

References

- [1] X. Li *et al.*, *Science* **324**, 1312 (2009). [2] I. Vlassiuk *et al.*, *Carbon* **54**, 58 (2013).
[3] P. Trinsoutrot *et al.*, *Surface & Coatings Technology* **230**, 87 (2013).

図1 AFM images of (a) solvent-cleaned Cu foil
(b) electropolished Cu foil

図2 (I_{2d}/I_g) Raman maps ($50\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$) of
graphene grown on (a) electropolished Cu foil
(b) solvent-cleaned Cu foil