

ペンタセン原料を用いた Cu 基板上へのグラフェンの低温形成 Low-Temperature Formation of Graphene on Cu Substrate Using Pentacene Source

兵庫県立大工¹ °部家 彰¹, 松尾 直人¹

Univ. of Hyogo¹, °Akira Heya¹, Naoto Matsuo¹

E-mail: heyaa@eng.u-hyogo.ac.jp

【背景】

グラフェン形成法の 1 つに化学気相成長 (CVD) があるが、 CH_4 や $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ を原料とし、Cu, Ni 等の金属触媒上での分解や金属触媒体への固溶・析出過程を経て形成するため、 1000°C 程度の高温を必要とする[1]。我々は原料に 6 員環構造を有するペンタセン ($\text{C}_{22}\text{H}_{14}$) を用い、分子構造をある程度維持した堆積前駆体を生成し、その堆積前駆体同士の反応を制御することで、グラフェン系有機膜を作製することを試みている[2,3]。本研究では、ペンタセンを用いることで Cu 基板上へのグラフェン低温形成を試みた。

【実験方法】

アセトン脱脂後、酸 ($\text{H}_2\text{O} : \text{H}_2\text{SO}_4 : \text{HNO}_3 : \text{HCl} = 100 : 50 : 50 : 1$, 10s) 洗浄した Cu 基板 ($0.5\text{mm} \times 20 \times 20$) を用いた。成膜装置の概略図を Fig. 1 に示す。本装置では基板と原料との間にペンタセンをある程度分解し、堆積前駆体とするための W メッシュ (線径 0.1 mm , 30 mesh/inch、サイズ $10 \times 80\text{ mm}^2$) が設置されている。W メッシュ温度 T_{mesh} : 1700°C 、ペンタセン原料: 30 もしくは 60 mg 、原料加熱温度: 315°C 、W メッシュ-基板間距離 D_{ms} : 30, 100 mm、 H_2 流量 400 sccm 、ガス圧 30 Pa の条件で成膜した。K 型熱電対をセラミックボンドで Cu 基板表面に固定して成膜時の Cu 基板温度を測定した。膜特性はラマン分光測定 (Ar^+ レーザー、 514.5 nm , 2 mW) により評価した。

【結果と考察】

作製した膜のラマンスペクトルを Fig. 2 に示す。 $D_{\text{ms}}=100\text{ mm}$ ではグラフェンに起因するピークは観測されなかったが、 $D_{\text{ms}}=30\text{ mm}$ では 1350 cm^{-1} に D バンド、 1612 cm^{-1} に G バンドのピークが観測され、グラフェン多層膜が形成されていることが確認された。Cu 基板温度は $D_{\text{ms}}=30, 100\text{ mm}$ でそれぞれ $250, 100^\circ\text{C}$ であった。 $D_{\text{ms}}=30\text{ mm}$ でグラフェン多層膜が形成できたのは Cu 基板温度が高いためであると考えられる。一般に Cu 基板表面が清浄でなく、自然酸化膜が存在すると、グラフェンの成長が阻害されるが、導入された H_2 ガスが W メッシュ上で分解されることで生成した原子状水素が Cu 基板表面を清浄化したため、Cu 基板の前処理なしでもグラフェンが形成されたと考えられる。欠陥に起因する D ピークが顕著に見られたことから良質とは言えないが、ペンタセンを原料として用いることで 250°C でもグラフェンを形成可能であることが明らかとなった。

[1] C. Mattevi et al. J. Mater. Chem. **21** (2011) 3324.

[2] A. Heya et al., Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 110204.

[3] A. Heya et al., Thin Solid Films **570** (2014) 20.

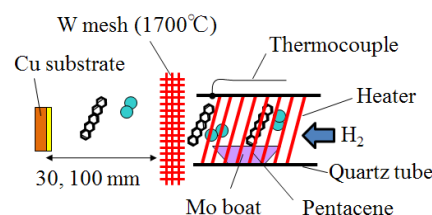


Fig. 1 Schematic diagram of the HMD apparatus for formation of graphene-based organic film.

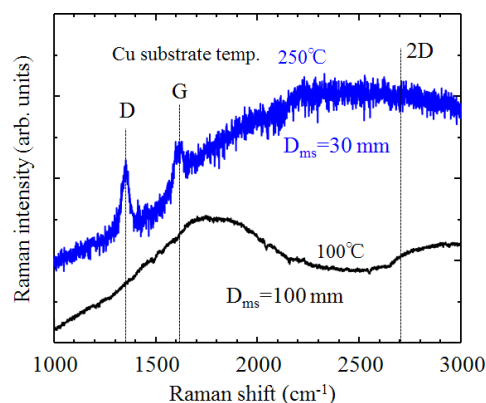


Fig. 2 Raman spectra of organic films prepared on Cu substrate. D_{ms} were 30 and 100 mm.