CVD 成長した二層グラフェンの積層構造の制御

Control of stacking structure of bilayer graphene grown by CVD

九大院総理工 [1]，九大グローバルイノベーションセンター[2]，関学理工 [3]，
○寺尾 友里 [1]，河原 憲治 [2]，水野 清義 [1]，日比野 浩樹 [3]，吾郷 浩樹 [1,2]
Kyushu Univ.[a], Kwansei gakuin Univ.[b]
○Yuri Terao[a], Kenji Kawahara[a], Seigi Mizuno[a], Hiroki Hibino[b], Hiroki Ago[a]
E-mail: h-ago@gic.kyushu-u.ac.jp

【背景】AB積層した二層グラフェンは垂直電場を印加することでバンドギャップを開くことができ[1]、トランジスタなどのエレクトロニクスへの応用が期待されている。AB積層した二層グラフェンは主に剥離法によって作製されるが、得られるグラフェンの大きさや層数が不均一という問題がある。一方、CVD法は単層グラフェンを大面積に合成可能であるが、均一な複層グラフェンや積層構造を制御したグラフェンを合成することは困難である。近年、我々は炭素固溶度の異なるCuとNiを組み合わせたCu-Ni合金が二層成長に有効であることを報告したが[2]、そのAB積層の割合は約70%で、残り30%は回転積層しており、トランジスタ応用には十分でなかった。そこで本研究では、Cu-Ni(111)合金等を触媒に用いて二層グラフェンを合成し、さらなる積層構造の制御について検討した。

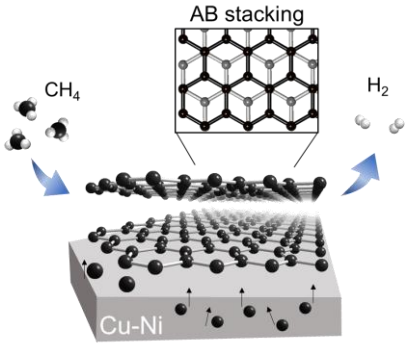

Fig. 1 Schematic of bilayer graphene growth on Cu-Ni alloy catalyst.

【結果と考察】サファイアc面基板上に成膜したNi濃度25%のCu-Ni(111)合金の薄膜を触媒とし、Ar/H_2/CH_4混合ガスを用いた大気圧CVDを行った。Cu(111)上での単層グラフェンの方位は反応温度に依存するため[3]、反応温度を1075 ℃から1000 ℃の間で系統的に変化させて二層グラフェンを合成した。しかし、Fig. 2(a)に示すように、CVD温度を1000 ℃まで下げてもAB積層の割合は向上しなかった。これは、Cu-Ni合金中のNiによってCu(111)の対称性が低下し、積層に乱れが生じているためだと考えられる。そこで、Ni濃度を10%に減少させたところ、二層の被覆率は低下したものの、Fig. 2(b)に示すようにドメイン中のAB積層の割合は90%に向上した。Ni濃度が低下したことでCu(111)の対称性が向上し、グラフェンがエピタキシャルに成長したものと考えられる。以上の結果から、触媒の組成比がグラフェンの積層構造に強く影響するという結論を得た。

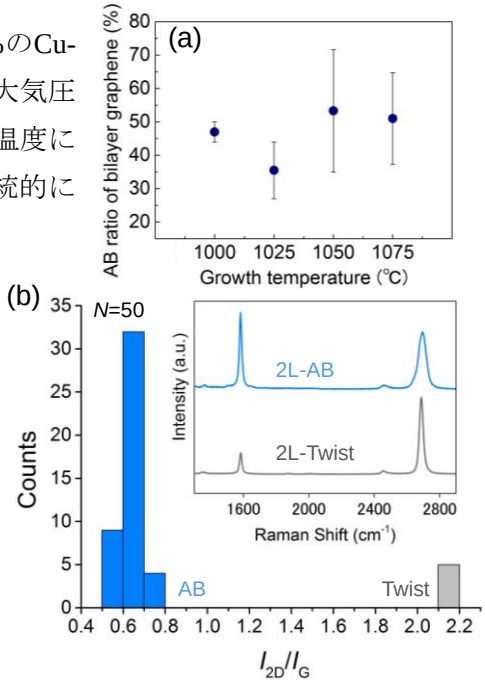

Fig. 2 (a) Effect of growth temperature on AB stacking ratio (Ni: 25%). (b) Relative intensity of 2D band to G band of bilayer graphene (Ni: 10%). Inset is the Raman spectra of AB- and twist-stacked bilayer graphene.

【参考文献】[1] Y. Zhang *et al.*, *Nature*, **459**, 820 (2009).
[2] Y. Takesaki *et al.*, *Chem. Mater.*, **28**, 4587 (2016).
[3] H. Ago *et al.*, *Chem.Mater.*, **27**, 5379 (2015).