ドメインサイズの異なる多結晶グラフェンの構造および電気伝導特性

Domain structures and electrical transport properties of polycrystalline graphene with several domain size 1. NTT 物性科学基礎研, 2. 関西学院大理工 ^〇小川友以¹、平間一行¹、日比野浩樹^{1,2}、熊倉一英¹ 1. NTT Basic Research Labs., 2. Kwansei Gakuin Univ. ^〇Yui Ogawa¹, Kazuyuki Hirama¹, Hiroki Hibino^{1,2}, Kazuhide Kumakura¹ E-mail: ogawa.yui@lab.ntt.co.jp

原子厚さの二次元結晶であるグラフェンの化学気相成長(CVD)成長では、複数の核生成点から成長を 開始し1枚のシート状を形成するため、グラフェンは多結晶構造を持つ。多結晶グラフェン内に存在 するドメイン境界は電気伝導におけるキャリアの散乱サイトと考えられていたが[1]、特定のドメイン 境界では良好な電気伝導を示すことも報告され[2]、ドメイン境界と材料物性の関連については探究の 余地がある。本研究では、熱 CVD 法とマイクロ波プラズマ CVD (MPCVD)を用いてドメインサイズ の異なる多結晶グラフェンを成長させ、それらのドメイン構造および電気伝導特性の評価を行ったの で報告する。

成長基板となる銅箔は H₂/Ar 雰囲気 1050℃でのアニール処理により Cu(111)を得て、その表面に CH₄ ガスを炭素源として熱 CVD および MPCVD によって多結晶グラフェンを成長させた。原料ガス濃度, 温度や圧力,マイクロ波パワーを最適化することで種々のドメインサイズをもつグラフェンを得た。

光学顕微鏡,走査電子顕微鏡,原子間力顕微鏡,低エネルギー電子顕微鏡による形状観察により、 グラフェンのドメインサイズは 0.1 ~ 30 μ m と見積もられた。ドメインサイズ 0.1,13 μ m のグラフ ェンについて、C1s X 線光電子分光の結果を Figure 1 示す。ドメインサイズ 0.1 μ m の場合では 284.50 eV (sp² 結合)と 285.30 eV (sp³ 結合)の 2 つの結合に帰属できるのに対し、13 μ m では sp² 結合のみであ ることが分かった。Raman 分光による評価では、ハニカム格子由来の G-band(~1580cm⁻¹)とハニカム格 子内の欠陥由来の D-band(~1350cm⁻¹)の強度比がドメインサイズ 0.1 μ m では I_D/I_G =1.32、13 μ m では I_D/I_G =0.17 であった。バックゲート型電界効果型トランジスタ(FET)による電気伝導測定の結果、ドメ インサイズが大きい場合に電界効果移動度が高く、かつ温度依存性が顕著であることが分かった (Figure 2)。これらの結果より、グラフェンのドメインサイズが小さくなるにつれて sp³結合等のハニカ ム構造の乱れが生じ、併せて電気伝導特性も低下していることが示唆された。





Figure 1 C1s core-level X-ray photoelectron spectra of graphene with 100 nm and 13 μ m domain size in (a) and (b) respectively.

Figure 2 A temperature dependence of the hole mobility taken from back-gate graphene FET with three types of domain size.

[1] Q. Yu et al., Nat. Mater. 10 (2011) 443. [2] A. W. Tsen et al., Science 336 (2012) 1143.