

絶縁基板上多層グラフェンの低温層交換合成と特性評価

Low-temperature layer exchange synthesis and characterization of multilayer graphene on insulator

筑波大院 ◯村田博雅, 都甲薫, 末益崇

Univ. of Tsukuba: ◯H. Murata, K. Toko, and T. Suemasu

E-mail: hiromasa.0718.tsukuba@gmail.com

【はじめに】 多層グラフェン (Multilayer graphene: MLG) は高い電気・熱伝導度を有し、様々なデバイスへの応用が期待されている。一方、グラフェンは特有な二次元構造を持つため特性に異方性があり、また、粒界においてその性質が劣化する。従って、大粒径かつ高配向した多層グラフェンを形成する必要がある。我々は金属誘起層交換成長により、大粒径と高配向を両立する Si や Ge を絶縁基板上に低温形成してきた[1,2]。本研究では、絶縁基板上における多層グラフェンの層交換合成に成功すると共に、その電気的特性を評価した。

【実験方法】 SiO₂ 基板上に Ni 層と非晶質 C (a-C) 層を 50 nm ずつ、それぞれ基板温度 200 °C と室温で連続的にスパッタリング堆積した後、Ar 雰囲気中で 600 ~ 1000 °C、10 min の熱処理を行い、層交換成長を誘起した (Fig. 1)。その後、塩化鉄溶液により Ni を除去した。

【結果・考察】 熱処理後の試料のラマンスペクトル (Fig. 2(a),(b)) において、1000 °C で熱処理した試料は、表面と裏面の両方で多層グラフェンに起因する 3 つのピークが出現した。一方、600、800 °C で熱処理した試料は、裏面でのみ多層グラフェンのピークが出現した。これらの結果は、全熱処理温度で a-C が結晶化し、特に 600、800 °C では層交換が発現したことを示唆している。断面 TEM 観察 (Fig. 2(c),(d)) と EDX 測定により、Ni と C の層交換が発現し、基板の上に (001) 配向した多層グラフェンが形成されていることが判った。また、制限視野回折像の評価から、結晶粒径は数百 nm 程度と判明した。

表面 Ni 層を除去した結果、基板全面を被覆した多層グラフェンが得られた (Fig. 3(a))。また、多層グラフェン中の Ni 残留量は、EDX の検出限界 (<1%) 以下と確認された (Fig. 3(b))。導電率は、高配向熱分解グラファイト (HOPG、結晶粒径: ~5 μm) [3] の面直方向の導電率を 2 桁以上凌駕し、また、面内方向の導電率に 2 桁迫る値となった。層交換パラメータを制御して粒径を拡大することで、さらなる導電率の向上が期待される。

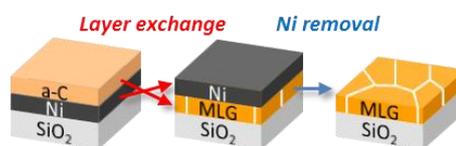


Fig. 1. Schematic of the sample preparation.

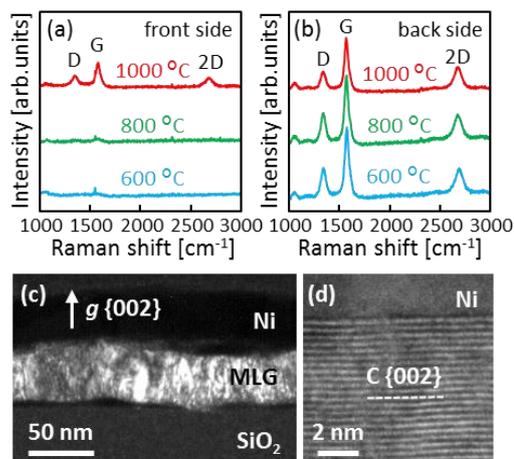


Fig. 2. Raman spectra obtained from the (a) front and (b) back sides of the annealed samples. (c) Dark-field TEM and (d) High resolution lattice images of the sample annealed at 600 °C.

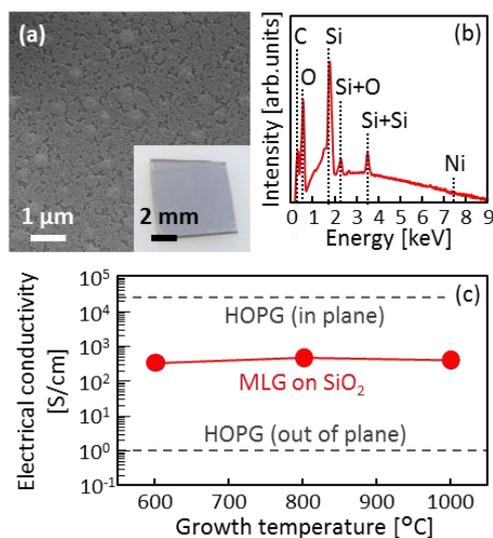


Fig. 3. (a) SEM image and photograph and (b) EDX spectrum of the 600 °C annealed sample after Ni removal. (c) The electrical conductivities of the MLG layers.

[1] Toko *et al.*, APL 104, 022106 (2014). [2] Toko *et al.*, JAP 115, 094391 (2014). [3] Sato *et al.*, JJAP 104, 04DB01 (2012).