

層交換の新展開：多層グラフェンの Fe 誘起成長

New development of layer exchange: Fe-induced crystallization for multilayer graphene

筑波大院 [○]中島義基, 村田博雅, 末益崇, 都甲薫

Univ. of Tsukuba: [○]Y. Nakajima, H. Murata, T. Suemasu, and K. Toko

E-mail: y418nakajima@gmail.com

【はじめに】絶縁体上に IV 族半導体を高品質・低温合成する手法として、「層交換」が活発に研究されてきた[1-4]。これまで層交換を誘起する触媒金属として、「被結晶化物を固溶すること」「被結晶化物和化合物を形成しないこと」が必須条件と考えられてきた。このような指針の基、我々は最近、Co や Ni を金属触媒とした層交換により高品質な多層グラフェン (Multilayer graphene: MLG) を絶縁体上に直接合成した[5-7]。今回、炭素と化合物を形成する Fe においても層交換が発現し、新たな層交換の指針が得られた。

【実験方法】SiO₂ ガラス基板上に Fe 層 50 nm と非晶質炭素 (a-C) 層 75 nm をスパッタ堆積後、Ar 雰囲気中で 600-1000 °C の熱処理を施し、層交換を誘起した (Fig. 1)。その後、希硝酸溶液により Fe を除去した。

【結果・考察】試料表面において、成長温度が高温になるほど Fe が凝集する様子が見られた (Fig. 2)。エッチング後には基板全面を被覆した MLG が得られ (Fig. 2)、MLG 中の Fe 残留量は EDX の検出限界 (< 1%) 以下であった。以上より、層交換が発現したことが判る。熱処理直後の試料のラマンスペクトルにおいて、裏面だけでなく表面からも MLG に起因する 3 つのピークが得られた (Fig. 3(a))。これは層交換後に Fe が凝集し、MLG が露出したためである (Fig. 2)。また、G/D ピーク強度比は熱処理が高温になるほど向上した (Fig. 3(b))。一方、導電率は成長温度に依存しなかった (Fig. 3(c))。成長温度に対し、結晶粒径と粒内欠陥がトレードオフの関係にあることを反映している。また、導電率の値は Ni 誘起層交換で合成した MLG と同程度となった[6]。以上のように、C と化合物を形成する Fe においても良好な層交換が発現した。これは、化合物 (Fe₃C) よりも MLG がエネルギー的に安定であるためと推察される。層交換材料の選択肢を広げる新たな指針の構築である。

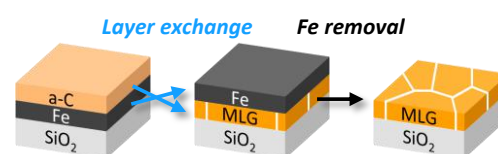


Fig. 1. Schematic of the sample preparation.

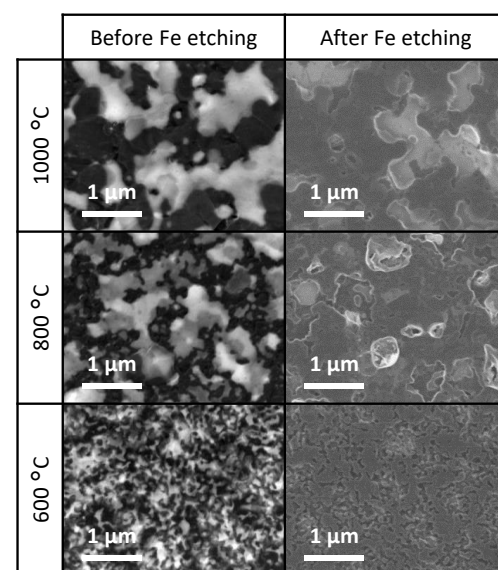


Fig. 2. SEM images of the annealed samples before and after Fe removal.

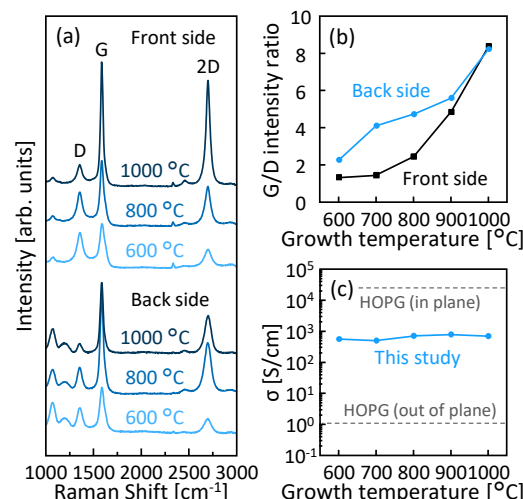


Fig. 3. (a) Raman spectra obtained from the front and back sides of the annealed samples. (b) G/D intensity ratio as a function of growth temperature. (c) Electrical conductivities (σ) of the MLG layers.

[1] M. Kurosawa *et al.*, APL **95**, 132103 (2009).

[3] J.H. Park *et al.*, APL **103**, 82102 (2013).

[5] H. Murata *et al.*, JJAP **56**, 05DE03 (2017).

[7] H. Murata *et al.*, APL **111**, 243104 (2017) (Highlighted by Nature Index in March 2018).

[2] K. Toko *et al.*, APL **101**, 072106 (2012).

[4] H. Higashi *et al.* APL **106**, 41902 (2015).

[6] H. Murata *et al.*, APL **111**, 243104 (2017).