

LPCVD 法による ALD- Al_2O_3 上へのグラフェンの直接生成

Direct synthesis of graphene on ALD- Al_2O_3 by LPCVD method

旭川高専¹, °鎌田 悠司¹, 簗 耕司¹, 中村 基訓¹

NIT, Asahikawa College¹, °Yuji Kamada¹, Koji Takamura¹, Motonori Nakamura¹

E-mail: nakamura@asahikawa-nct.ac.jp

1. はじめに

グラフェンは機械的強度や電気的特性に優れ、かつ熱的安定性や光学的透過性を併せ持つ注目の材料である。その特異な形状や電気特性から燃料電池の電極材料やフレキシブルデバイス、ウェアラブルデバイスなどの様々なデバイスへの応用が考えられている。

一般にグラフェンを CVD 法により生成する場合、銅などの金属シートや鉄などの薄膜材料から生成し、 SiO_2/Si 基板などの絶縁基板上に転写するのが一般的である。一方で、サファイヤなどの非金属基板上に直接グラフェンを生成する手法も提案されており、グラフェンの劣化が起りやすい転写工程が不要なことから有力なグラフェン生成技術として期待されている[1]。

我々は SiO_2/Si 基板上に ALD 法により Al_2O_3 膜を形成した基板を用い、数層以下のグラフェン生成を試みた。ALD(Atomic Layer Deposition)法はその被覆性の良さから 3 次元構造を持つ基板に対しても適用でき、本研究で提案したプロセスにより ALD- Al_2O_3 上に形成したグラフェンは、太陽電池や 3D センサなどへの応用が可能となる。

2. 実験

本実験では、有機洗浄した SiO_2/Si 基板上に、ALD 装置を用い Al_2O_3 を成膜した。炭素源としてエタノールを用いた LPCVD 法によるグラフェン成長を行った。真空排気(約 20Pa)をした後に設定した成長温度まで加熱しながら、 $\text{Ar}+\text{H}_2(3\%)$ の混合ガスを 300sccm で導入し、管内圧力を 40kPa に維持した。成長温度へ到達後、管内温度安定のため、導入しているガスの量及び管内圧力を保ったまま一定時間待機した。混合ガスの導入を止め、成長圧力 1.3kPa でエタノールを 10 分間供給しグラフェンを成長させた。その後、導入するガスを $\text{Ar}+\text{H}_2(3\%)$ に切り替え、10 分程度空冷し基板を室温まで冷却した。CVD 成長後の試料をラマン分光法により評価した。

3. 実験結果と考察

Fig.1 には Al_2O_3 を 1nm で成膜し成長温度 900°C で CVD 成長した基板のラマン分光結果を示した。G'/G 比は 0.6 程度であり、数層グラフェンが生成されていると考えられる。一方で、 Al_2O_3 を成膜せずに CVD 成長した場合、カーボン由来のピークを検出できなかった。これより Al_2O_3 を成膜することがグラフェン成長に必要であることがわ

かった。

Fig.2 には Al_2O_3 膜厚(0.5,1,3,5nm)及び成長温度(850,900,950,1000°C)をパラメータとして生成したグラフェンについて、(a)には G'/G 比を、(b)には G/D 比をパラメータごとにまとめて示した。成長温度 900°C の場合、G'/G 比は最大の値を示しており 0.6 程度であった。また、成長温度 950°C 以上で、G/D 比が高い値を示している。また、G'/G 比及び G/D 比ともに Al_2O_3 膜厚に対する依存性は見られなかった。

また、 Al_2O_3 ナノパーティクル上のグラフェン形成メカニズムについて報告されており、グラフェン成長中の H_2 の役割等が議論されている[2]。講演では、グラフェン成長工程での $\text{Ar}+\text{H}_2(3\%)$ 混合ガスの分圧をパラメータに加え、各パラメータについて生成されたグラフェンの状態について詳細を報告する。

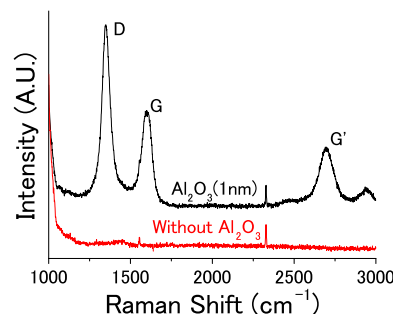


Fig.1 Raman spectra of a graphene films grown by LPCVD(temperature:900°C) with and without 1nm Al_2O_3 layer.

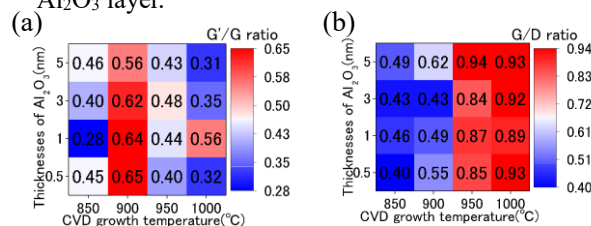


Fig.2 Heatmap with different thickness of Al_2O_3 (nm) and growth temperature(°C): (a) shows G'/G ratio and (b) shows G/D ratio.

参考文献

- [1] Jae Hyeok Shin, et al., Carbon 129 (2018) 785
- [2] Chang-Duk Kim, et al., Mater. Chem. Phys. 202 (2017) 215

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP16K06248 の助成を受けたものです。