

高温での機械剥離グラフェン上多層グラフェンの成長様式解析

Multi-layer graphene growth on mechanically exfoliated graphene at high temperature

阪大院工、[○]丸岡 真人、根岸 良太、小林 慶裕

Osaka Univ., Masato Maruoka, Ryota Negishi and Yoshihiro Kobayashi

E-mail: negishi@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】 グラフェンの層数や層間相互作用は電子物性に強く影響するため、グラフェンのデバイス応用に向けてこれらの制御が可能な成長技術の確立が期待されている。これまでに機械剥離グラフェンを核とした結晶成長により、多層・乱層積層グラフェンの形成が可能であることを示した[1]。さらに前回の応用物理学会講演会において、1000°Cを超える高温で成長することにより得られる多層グラフェンの結晶性が著しく向上することを明らかにした[2]。本研究では高温での成長様式について、処理温度や炭素源であるエタノールの分圧をパラメーターとして詳細に検討した結果を報告する。

【実験】 成長はエタノールを炭素源とし、赤外線加熱炉を用いた化学気相成長法で行った。成長温度は1100°Cから1300°Cまで100°Cずつ変化させ、エタノールの分圧は4~10 Paの範囲で行った。

【結果と考察】 Fig.1に成長温度1300°C、エタノール分圧4 Paでの成長前(a)と後(b)の原子間力顕微鏡(AFM)像と(c)M-M'に沿った高さ分布を示す。AFM像から成長核であるグラフェンのステップが成長後には伸長していることが分かる。M-M'断面図から単原子層の高さを持つ直径100nm程度のテラス状構造も観察された。ラマンスペクトルのDバンドピーク強度が微弱であることから、高結晶性のグラフェンが層状成長していると考えられる。ほぼ同一のエタノール分圧(5 Pa)で成長温度を1100°Cとすると、高密度で3次元的な島構造や島同士の衝突による表面ラフネスの増大が観察された。ラマンスペクトルのDバンド強度が増加していることから、結晶性が低下しているものと考えられる。これらの結果から、この温度領域では成長温度の上昇によって過飽和度が低下することが示された。次に、成長温度1300°Cにおける過飽和度の効果を検証するため、エタノール分圧10 Paの高過飽和度条件で成長をおこなった。Fig.2に成長前(a)と後(b)のAFM像と(c)N-N'に沿った高さ分布を示す。Fig.1とは異なり、3次元的な島状成長やスパイラル成長が観察された。島は単原子層厚の層が10層程度重なった同心円や花卉状のピラミッド型をしている。N-N'断面図から3次元的島構造の下には単原子層ステップ構造が存在していることがわかる。高過飽和度条件では、成長初期に形成した核密度が高いため、ステップ成長の衝突による結晶粒界が高密度に形成する。その領域におけるダングリッド構造がカーボンの取り込みを促進するため、3次元的な島状成長が進行したと考えられる。以上の結果から、高温プロセスにおいて、エタノール過飽和度の制御により、成長様式を層状成長や3次元的な島状成長に変化させることが可能であることが明らかとなった。

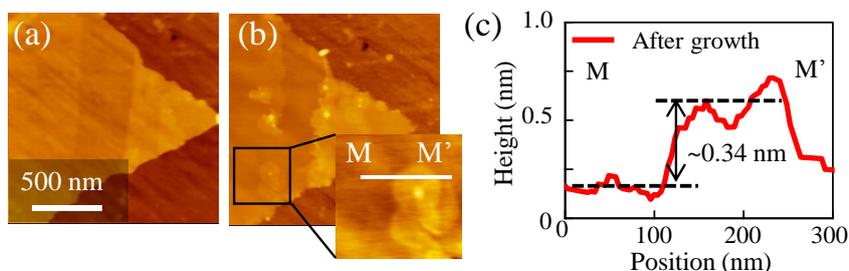


Fig.1 AFM images of (a) before and (b) after growth at 1300°C and 5 Pa (partial pressure of ethanol). (c) Height profile along M-M' line.

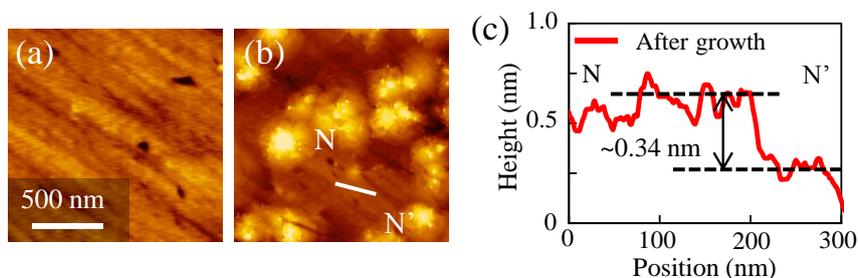


Fig.2 AFM images of (a) before and (b) after growth at 1300°C and 10 Pa (partial pressure of ethanol). (c) Height profile along N-N' line.

謝辞:本研究の一部は科研費及び大阪大学フォトニクスセンターの援助を受けて実施した。

[1] R. Negishi et al., Thin Solid Films **519**(2011)6447. [2] 根岸 他、第78回(2017)秋季応物 8a-C16-5