

Ni 誘起層交換によるグラファイト薄膜の合成と透明導電膜応用

Synthesis of graphite thin films by Ni-induced layer exchange for transparent conductive film applications

筑波大院 °村田博雅, 末益崇, 都甲薫

Univ. of Tsukuba: °Hiromasa Murata, Takashi Suemasu, and Kaoru Toko

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

1. はじめに

グラファイト薄膜はグラフェンを積層した構造を持ち、高い電気・熱伝導度を有することから、様々なデバイスへの応用が期待される。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グラファイト薄膜を形成する必要がある。我々は金属誘起層交換法により、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グラファイト薄膜の層交換合成に成功すると共に、透明導電膜への応用を志向した。

2. 実験方法

石英ガラス (SiO_2) 基板上に Ni 層と非晶質 C (a-C) 層を 50 nm 及び 5 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 500 ~ 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。

3. 結果および考察

熱処理後の試料 (50 nm) 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グラファイトに起因する 3 つのピークが出現した[3]。一方、500、600、800 °C で熱処理した試料は、裏面でのみグラファイト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 500、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、基板上に(001)配向したグラファイト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グラファイト薄膜が得られた (Fig. 3(a))。また、グラファイト中の 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) [4]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[5]。さらに、Ni と a-C 層の膜厚を 5 nm とした試料において層交換を誘起し、透明なグラファイト薄膜の合成に成功した (Fig. 4)。透明導電膜への応用に向け、現在、更なる導電率の向上を検討している。

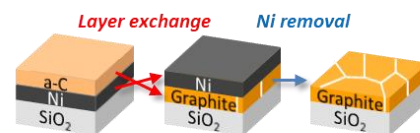


Fig. 1. Schematic of the sample preparation.

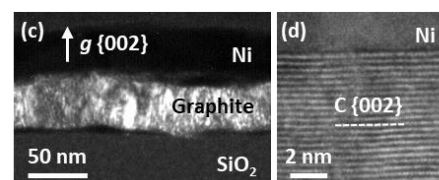
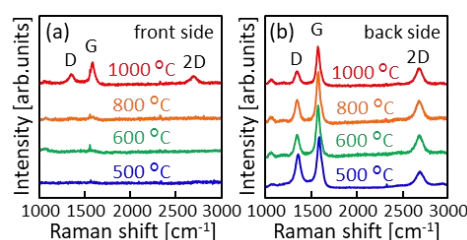


Fig. 2. Raman spectra obtained from the (a) front and (b) back sides of the annealed samples. (c) Dark-field TEM and (d) High resolution lattice images of the sample annealed at 500 °C.

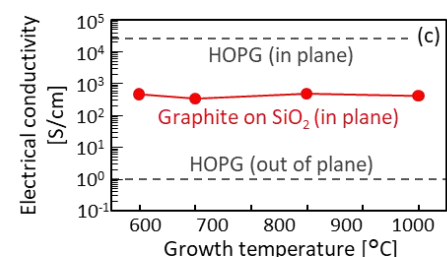
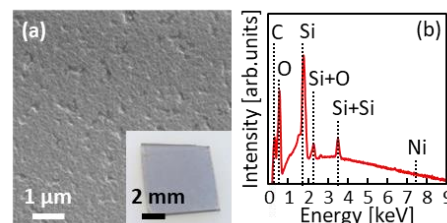


Fig. 3. (a) SEM image and photograph and (b) EDX spectrum of the 500 °C annealed sample after Ni removal. (c) The electrical conductivities of the graphite layers.

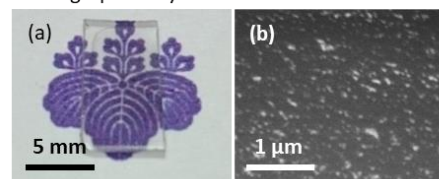


Fig. 4. (a) Photograph and (b) SEM image of the 5-nm-thick graphite sample.

- [1] Toko *et al.*, APL. **104**, 022106 (2014). [2] Toko *et al.*, JAP. **115**, 094391 (2014). [3] Murata *et al.*, JJAP. **56**, 05DE03 (2017). [4] Sato *et al.*, JJAP. **104**, 04DB01 (2012). [5] Murata *et al.*, APL. **110**, 033108 (2017).