

グラファイト薄膜の金属誘起層交換成長における金属種効果

Effects of catalyst metal species in the layer exchange growth of graphite thin film

筑波大 °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】グラファイト薄膜(Graphite thin film: GTF)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、グラファイト薄膜は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、大粒径かつ高配向なグラファイト薄膜を形成する必要がある。我々は Co や Ni を用いた金属誘起層交換成長により、高配向なグラファイト薄膜を絶縁基板上に低温合成することに成功した[1,2]。本研究では、触媒金属の種類がグラファイト薄膜の層交換成長に与える影響を調査した。

【実験方法】SiO₂ ガラス基板上に触媒金属層 50 nm と非晶質炭素(a-C)層 75 nm をスパッタ堆積後、N₂ 雰囲気中で 600-1000 °C (1 h) の熱処理を施し、層交換を誘起した。

【結果・考察】熱処理後の試料は(1)層交換発現、(2)a-C 層の結晶化、(3)炭化物形成、(4)未反応の 4 種に分類された(Fig. 1)。(1)の Fe, Co, Ni, Ru, Ir, Pt の試料は、目視(Fig. 2(a))および試料裏面のラマンスペクトル(Fig. 3)から、層交換の発現が確認された。また、金属層除去後には基板全面をグラファイト薄膜が被覆した(Fig. 2(b))。(2)の Pd の試料は、表面と裏面からグラファイト由来のピークが得られた。これより、Pd は a-C を結晶化させる触媒作用を持つことがわかった(Fig. 3)。(3)の Ti, Mo の試料は、X 線回折法により炭化物の形成が確認されたが、グラファイト由来のピークは得られなかった(Fig. 3)。(4)の Cu, Ag, Au の試料ではグラファイトが形成されず、また、熱処理中に金属層が不連続となり、a-C 由来のピークが裏面に出現した(Fig. 3)。Fig. 4 に上記分類を周期表にまとめる。前期遷移金属は固溶体を形成しないため層交換を誘起せず、一方で、後期遷移金属は固溶体を形成するため層交換を誘起したと考えられる。以上より、グラファイト薄膜の層交換成長を発現する触媒金属選択の指針を構築した。また、これまで層交換の発現には、触媒金属と非晶質層が化合物を形成しないことが必須条件とされてきた。本研究において、炭化物を形成する Fe においても層交換が発現したことは、層交換研究において特筆すべき事例である。

[1] H. Murata, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 05DE03 (2017).

[2] H. Murata, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **110**, 033108 (2017).

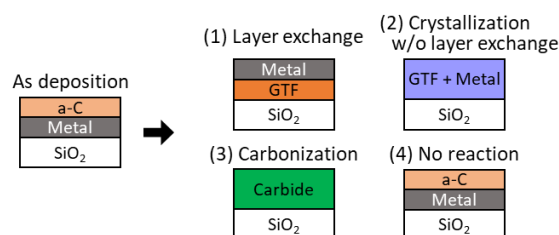


Fig. 1. Classification of interactions between transition metals and carbon.

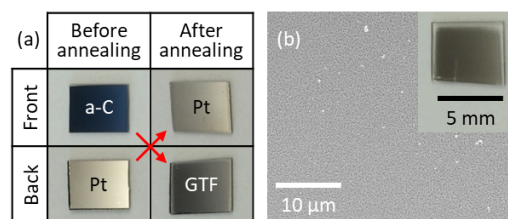


Fig. 2. (a) Photographs of the Pt sample before and after annealing. (b) SEM image and photograph of the 800 °C annealed sample after Pt removal.

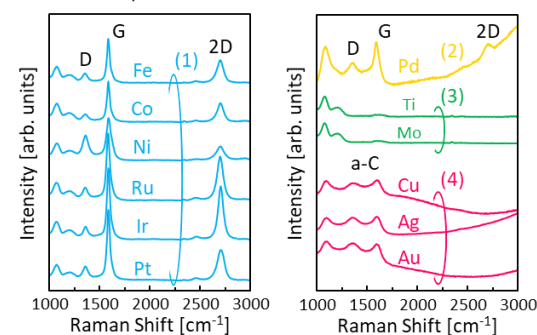


Fig. 3. Raman spectra obtained from the back sides of 1000 °C annealed samples.

	3	4	5	6	7	8	9	10	11
4	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu
5	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag
6	Ln	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au

Fig. 4. Periodic Table colored by the classification of interactions between transition metals and carbon. The elements labeled in blue induce layer exchange, those in yellow crystallize carbon without layer exchange, those in green make carbide, and those in red do not react with carbon at 1000 °C.