コバルトと鉄の積層膜を触媒とした熱フィラメント CVD 法による単層カーボンナノチューブの低温成長

Growth of Single-Walled Carbon Nanotubes by Hot-Filament Chemical Vapor Deposition at Low Temperatures Using Double-Layer Film Consisting of Cobalt and Iron Layers as Catalyst

日本工業大学, ○齋藤 駿介, 西口 貴郁, 宮野 虎太郎 石川 豊

Nippon Institute of Technology. ○Shunsuke Saito, Takafumi Nishiguchi, Kotaro Miyano, Yutaka Ishikawa

E-mail: origamitabletennis@gmail.com

1.序論　単層カーボンナノチューブ(SWCNT)は、螺旋度(カイラリティ)により金属または半導体の性質に分かれるという特異な性質から、LSI への応用が期待されている。LSI への応用を行うためには、許容プロセス温度である 450℃より低い温度での SWCNTs の成長が必要である。当グループでは 350℃において Co と Ni の積層触媒を用いて、わずかだが SWCNTs の成長を報告している [1)]。また、Rh 触媒による非常に低い圧力下での 270℃での SWCNTs 成長が報告されている [2)]。われわれは、Co と Fe の積層薄膜を触媒に用い、比較的安価な方法により、SWCNT の低温成長を行った。

2.実験方法　Si ウエハ上に SiO_2 膜を形成し、直流マグネトロンスパッタにより試料表面に Co(または Fe)を付着させた。その上に、Fe(または Co)を付着させた。このとき、下に付着させた薄膜は酸化させ、上に付着させた薄膜は酸化させたものと酸化させていないものを用意した。Ar+H_2(H_2:3%)混合気体を 260ml/min 流して、フィラメントを 1420℃に昇温させた。ハロゲンランプによる加熱で試料表面の温度を 350℃にし、30 分間触媒の還元及び微粒子化を行った。その後、混合気体流量を 460ml/min にし、エタノール蒸気を流し、350℃において 30 分間 CNTs の成長実験を行った。試料表面の評価は、ラマン分光法(励起波長 532nm)、電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM)により行った。

3.結果　Fig.1 に酸化 Fe1.0nm の上に Co を 0.0nm～1.4nm を積層させ触媒として用いた、成長温度 350℃での CNT 成長実験後の試料表面のラマンスペクトルを示す。Fig.1 より、Co を積層させた試料には、G バンド、RBM が存在することがわかる。さらに、G バンドの低周波数側に G-が見られるため、SWCNT も成長していることが明らかである。しかし、酸化 Fe のみを触媒とした試料には、G バンド、RBM 共に存在していない。Fig.2 に厚さ 1.0nm の酸化 Fe 上に Co を 1.2nm 積層させた触媒を用いた、成長実験後の試料表面の SEM 像を示す。Fig.2 より、CNT の収量が多いことがわかる。当日は、積層順や酸化の有無、酸化条件についても議論する予定である。

参考文献　1)石川　豊,上野　朋洋,春田　僚：表面科学,34,346(2013).
2)T.Maruyama,A.Kozawa,T.Saida,S.Narituka and S.Iijima:Carbon,116,pp.128-132(2017).

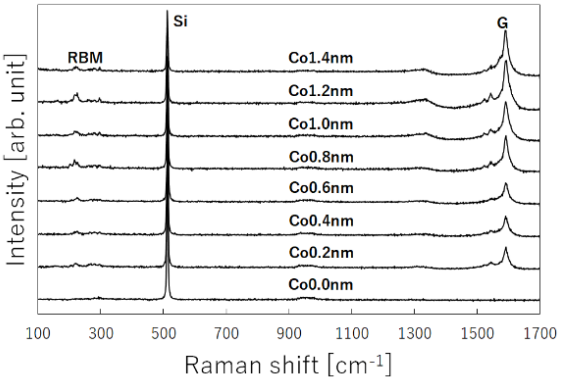

Fig.1 Raman spectra of CNTs grown using Fe oxide film of 1.0nm thick(350℃).

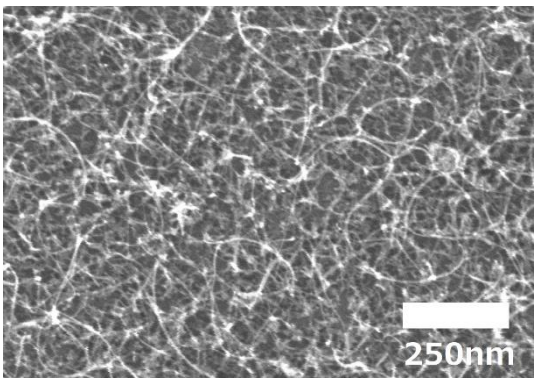

Fig.2 SEM image.

© 2019年 応用物理学会