

銅の再結晶過程における水素の影響とグラフェンの CVD 成長

Recrystallization of copper enhanced by hydrogen treatments for chemical vapor deposition growth of graphene

NTT 物性科学基礎研¹, 関西学院大理工² ○小川友以¹、日比野浩樹^{1,2}、谷保芳孝¹

NTT BRL¹, Kwansai Gakuin Univ.² ○Yui Ogawa¹, Hiroki Hibino^{1,2}, Yoshitaka Taniyasu¹

E-mail: yui.ogawa.er@hco.ntt.co.jp

グラフェンの chemical vapor deposition (CVD)成長に広く用いられている市販の銅箔はマイクロメートルオーダー以下の粒径の結晶粒からなる多結晶構造を持っている。その構造はグラフェンの構造に影響を与えることから、近年、前処理工程による単結晶化が試みられているが、その制御因子については定性的な議論に留まっている [1,2]。本研究では、多結晶銅箔を単結晶化するための再結晶過程について、熱処理工程における H₂ 濃度の影響に着目し、実験と分子動力学(MD)シミュレーション[3]による比較検討を行った。

熱処理後の銅箔の例として、処理温度 950°C、処理時間 60min、H₂ 濃度(Ar 中) 0vol%および 60vol% の場合の光学顕微鏡像をそれぞれ Fig.(a), (b)に示す。Fig.(b)右下が再結晶化した領域であり、この領域は Cu(111)面を持つことを電子線後方散乱回折, X 線回折測定から同定した。Fig.(c)には各熱処理温度における H₂ 濃度に対する再結晶化した領域の面積率を示す。これらより銅箔の再結晶化は熱処理温度だけでなく H₂ 濃度の増加によっても促進されることがわかる。

銅箔の再結晶過程を理解するために、Cu 原子の拡散係数を MD シミュレーションにより計算した。0-10at%の範囲で H 原子を添加した銅の多結晶体についてシミュレーションしたところ、H 原子の添加量増加に伴い Cu 原子の拡散係数が増大した。これより、多結晶銅の再結晶化は原子の拡散を伴う固相反応のひとつであり、熱処理中に H 原子が銅箔中に取り込まれたことが再結晶化を促進する要因であると考えられる。

また、銅箔上に CVD 成長したグラフェンを低エネルギー電子顕微鏡と低速電子線回折により評価したところ、銅箔の再結晶化によりグラフェンの配向度が向上することを確認した。

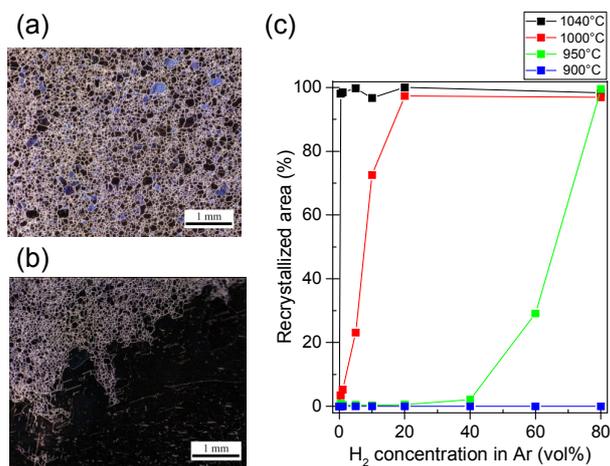


Fig. Optical micrographs of annealed Cu foils at 950°C with H₂ 0% (a) and 60% (b). (c) Recrystallized area for variation of H₂ concentration in Ar at different annealing temperatures.

参考文献 :

[1] L. Brown *et al.*, *Nano Lett.* **14**, 5706 (2014). [2] V. L. Nguyen *et al.*, *Adv. Mater.* **27**, 1376 (2015). [3] Atomistix ToolKit, version 2016, QuantumWise A/S, and A. K. Rappe *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **114**, 10024 (1992).