結晶化 Ni 触媒からのグラフェン直接析出成長その場観察

Insitu observation of graphene direct precipitation from crystallized Ni catalyst

名城大理工 [1]，量研機構 [2]　○(M1)阿知波 良介 [1]，村橋　知明 [1]，成塚 重弥 [1]，丸山 隆浩 [1]，
佐々木 拓生 [2]，藤川 誠司 [2]

Meijo Univ. [1], QST[2], °Ryosuke Achiwa[1], Tomoaki Murahashi[1], Shigeya Naritsuka[1],
Takahiro Maruyama[1], Takuo Sasaki[2], and Seiji Fujikawa[2]

E-mail: 213428001@ccmailg.meijo-u.ac.jp

我々は直接析出法を開発し、問題の多い転写プロセスを経ることなしに絶縁基板上にグラフェンを直接得ることに成功している[1]。直接析出法では加熱温度、加熱時間、冷却速度を制御することにより析出するグラフェンの層数が制御できる。本実験では層数の薄いフューレーヤグラフェンの作製ならびにグラフェンの高品質化を目指し、結晶化 Ni 触媒層を使用する。結晶化 Ni 触媒と通常の多結晶 Ni 触媒のグレインがあるなしの差が析出するグラフェンの品質を左右するメカニズムを解明するため、大型放射光施設 Spring8 が発生する高輝度 X 線を用い、成長その場 X 線回折測定を行ったので報告する。

c 面サファイア基板上に分子線結晶成長装置を用いて Ni(100nm)をエピタキシャル成長させ、その後電子ビーム蒸着装置により Ni(300nm)を堆積した。さらに、Ni 触媒層を熱処理し単結晶化した。また、グラフェン成長のための炭素源としてはナノダイヤモンドを使用した。ビームライン 11XU に設置された分子線結晶装置にサンプルを導入し、高真空中で加熱しながらその場 X 線回折測定を行った。温度プロファイルとしては、5 分間での昇温、730℃、10 分間の熱処理、降温速度 3℃/min の冷却である。

Ni を単結晶化した場合としない場合のグラファイト(002)回折強度の時間依存性を図 1 に示す。図より昇温中に急速にグラフェンが生成し、それも結晶化しない(グレイン有り)サンプルの方が層数が厚くなることがわかる。これはグレインが有るサンプルでは、低温でも炭素が粒界拡散し品質の悪いグラフェンがより多く生じたことを物語る。一方、730℃での加熱時間中にはグラフェンの成長が停止していた。これは昇温中に Ni の表面側もグラフェンで覆われ、ナノダイヤモンドがそれ以上溶解しなくなり、グラフェンの成長がいったん停止したためと考えられる。また、降温中にグラフェンが析出成長した様子も観察された。しかし、単結晶 Ni サンプルの場合は回折ピーク強度の増加が途中で止まった。その原因を調べるために、(002)回折ピークのラウエフィッティングをおこなった。両サンプルとも同様にグラフェンが 3～4 層成長していることが解った。よって、単結晶 Ni サンプルでは触媒-基板界面に発生する熱収縮応力が大きく、X 線回折信号が早く減衰してしまったものと考えられる。

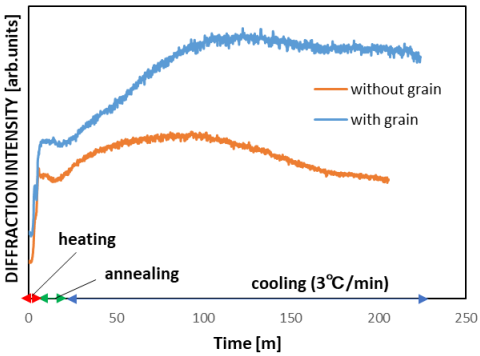

Fig.1 Time dependence of graphite (002) diffraction intensity.

参考文献［1］J. Yamada et al., Jpn. J. Appl. Phys., 55 (2016) 100302-1-4.