

リアルタイム観察による CVD グラフェンの成長過程の解析

CVD growth process of graphene based on a real-time observation

NTT 物性科学基礎研 ○小川 友以、Ethan Olivier、谷保 芳孝

NTT BRL ○Yui Ogawa, Ethan Olivier, Yoshitaka Taniyasu

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

物質の成長のリアルタイム観察は、成長初期からの一貫した情報が得ることができ、その物質の成長機構の解明に有用である。我々は、紫外・可視域の光源を用いた反射像観察によりグラフェンの化学気相成長(CVD)過程のリアルタイム観察に成功した [1]。本研究では、金属材料における相変態過程の解析において広く用いられる Johnson-Mehl-Avrami-Kolmogorov (JMAK)モデルを導入し[2]、CVD グラフェンの成長過程の解析に取り組んだ結果を報告する。

グラフェンは CVD 法により Cu 基板上に成長させた。原料ガスには CH₄を用いた。また、Cu 基板表面に垂直に光を照射しその反射光を結像する顕微光学系と CVD 成長装置を組み合わせた実験系を構築し、グラフェンの成長過程をリアルタイム観察した。

CH₄供給量(ガス流量)の異なる条件において成長したグラフェンの被覆率 A の時間変化をリアルタイム観察像から抽出した結果を図 1 に示す。JMAK モデルは

$$A = A_{sat}(1 - e^{-Kt^n}) \dots (1)$$

で表され、A は被覆率、t は CVD 成長時間である。A_{sat} と K はそれぞれ飽和被覆率と成長速度であり、n は核生成密度が寄与する Avrami 指数である。グラフェンの被覆率 A に JMAK モデル (式(1)) を適用したところ、良好なフィッティング結果が得られた。そのフィッティングパラメータを表 1 に示す。実験では CH₄供給量の増加に伴い飽和被覆率、成長速度、核生成密度が増大することが観察された。これは成長に寄与する活性種が増えたためと考えられる。

CVD グラフェンの成長過程は Cu 基板表面に吸着した炭素原子の二次元結晶化として理解できることから、その被覆率の時間変化は JMAK モデルを用いて記述できることが示された。

[参考文献]

1. 小川 他, 第 68 回応用物理学会春季学術講演会, 17a-Z31-4 (2021).
2. M. Avrami, *J. Chem. Phys.* **8** 212 (1940).

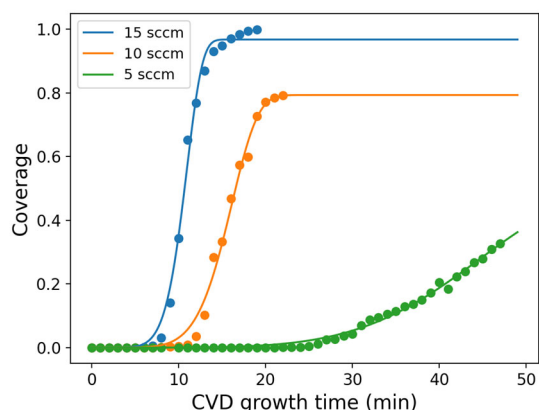


Fig. 1. Coverage of graphene as a function of CVD growth time with three different CH₄ flow rate. The dots and lines indicate experimentally measured value and JMAK model fitting results, respectively.

Table 1. Fitting parameters

CH ₄ flow rate	A _{sat}	K	n
15 sccm	9.68E-01	3.70E-08	7.09
10 sccm	7.93E-01	1.68E-08	6.38
5 sccm	5.03E-01	5.31E-09	4.96