転写フリーグラフェンの結晶性に及ぼす Ni 金属触媒の結晶性の効果 II

Effect of crystal quality of Ni metal catalyst on crystal quality of transfer-free graphene II

○高橋明空、芝南々子、久保俊晴、三好実人、江川孝志（名古屋工業大学）
○A. Takahashi, N. Shiba, T. kubo, M. Miyoshi, T. Egawa (Nagoya Inst. of Tech.)
E-mail: 32413083@stn.nitech.ac.jp

1. はじめに

我々はこれまでに金属触媒を凝集させる技術を用いることで転写フリー多層グラフェンを絶縁基板上に形成できることを報告した[1,2]。また、転写フリー多層グラフェンを用いた FET を作製し、ゲート電圧によるドレイン電流の変調を確認した[3,4]。CVD 法でグラフェンを作製する際に、金属触媒である Ni について、Ni(111)エピタキシャル膜を形成して使用することが報告されており[5]、前回までの発表では金属凝集法においても Ni 膜の結晶子サイズが大きい場合に、形成されたグラフェン膜の欠陥が減少し FET の特性が向上したことを報告した[6][7]。本研究では、Ni 膜成膜後のアニール(PDA)処理の際の温度とグラフェン膜の結晶性との関係を評価したので、その結果について報告する。

2. 実験方法

前回の報告と同様にして、Sapphire 基板上に Ni 膜を成膜した[6][7]。まず Ni を膜厚 20nm、基板を 150℃で加熱しながら EB 蒸着を行った後、高真空下において 5 分間の PDA を行った。PDA 温度は 600℃から 1000℃まで 100℃間隔とした。その後、これまでと同様の方法により、転写フリーグラフェン膜を形成した。まず、PAPD（Pulse Arc Plasma Deposition）でカーボン 50nm を蒸着し、その後 1000℃で 20 分間アニールすることによりグラフェン膜とした。形成したグラフェン膜の結晶状態をラマン分光測定により評価した。

3. 実験結果

Ni 蒸着後の PDA 温度が 600℃の試料と 1000℃の試料のラマン分光測定の結果を Fig. 1(a)および(b)にそれぞれ示す。Fig. 1(a)において G バンドと D バンドのピーク強度比(I_G/I_D)は 7.47 であるのに対して、Fig. 1(b) では I_G/I_D は 36.5 であり、高温でアニールすることで結晶性が向上していることが分かる。また、2D バンドと G バンドのピーク強度比(I_{2D}/I_G)に関しては、Fig. 1(a)および(b)でそれぞれ 0.74 および 0.65 であり、600℃と 1000℃では大きな違いがないことが分かる。次に PDA 温度に対する I_G/I_D および I_{2D}/I_G の依存性を Fig. 2 に示す。Fig. 2 より、PDA 温度を上昇させると、I_G/I_D が徐々に増大し、1000℃において大きく増大していることが分かる。前回までの報告において、Ni 膜に対するアニールにより Ni 膜の結晶性が向上すると共にグラフェン膜の結晶性が向上することを報告した。今回の結果も PDA 温度の上昇に伴い Ni 膜の結晶性が向上したことが考えられる。ただし、ラマンマッピング測定からは、1000℃の PDA を行った試料では測定結果の位置依存性が大きくなったことから、1000℃では Ni 膜の結晶性の向上は局所的に生じていることが考えられる。また、I_{2D}/I_G の PDA 温度依存性より、PDA 温度を上昇させると強度比が減少することから、PDA 温度上昇に伴いグラフェン膜の膜厚が厚くなり、1000℃において結晶性が良く膜厚の薄いグラフェン膜が局所的に生じることが示唆される。

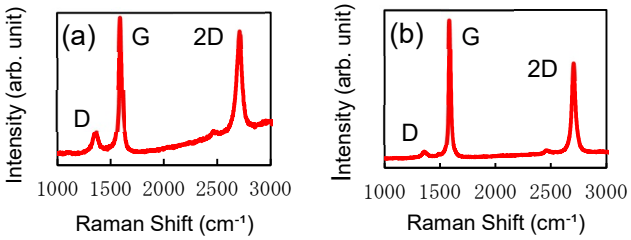

Fig. 1 Raman spectrum of graphene; (a) PDA: 600℃, (b) PDA: 1000℃.

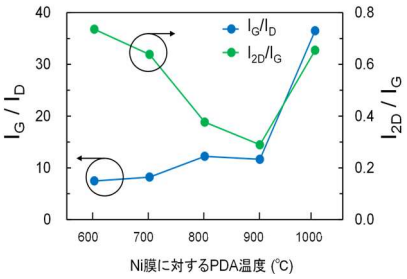

Fig. 2 Dependence of the intensity ratio of G to D band (I_G/I_D) and 2D to G band (I_{2D}/I_G) on the PDA temperature.

4. まとめ

金属凝集法を用いた転写フリーグラフェンの作製において、金属触媒である Ni 膜成膜後の PDA の温度を上昇させることにより、形成されるグラフェン膜の結晶性が向上することが確認された。

5. 参考文献

[1] K. Banno, et al. APL 103, 082112 (2013).
[2] M. Miyoshi, et al. MRX 2, 015602 (2015).
[3] M. Miyoshi, et al. APL 107, 073102 (2015).
[4] M. Miyoshi, et al. APL 110, 013103 (2017).
[5] S. Entani, et al.J. Appl. Phys. 111, 064324 (2012)
[6] 小林幹, 他, 第 80 回応用物理学会, 21a-PB1-42 (2019).
[7] 小林幹, 他, 第 81 回応用物理学会, 12a-PA2-53 (2020).

謝辞: 本研究の一部は JSPS 科研費 19K04531 の支援を受けて実施された。

© 2021年 応用物理学会