

グラフェン成長応用に向けた Ni(111)の組成分析および構造評価

Chemical and structural analysis of Ni(111) for graphene growth applications

北大院情 ○(M1)八木遂行, Subagyo Agus, (M2)佐藤真, (M2)大和田真, (M1)中根晃紀, 八田英嗣,
末岡和久

Graduate School of IST, Hokkaido Univ., °K. Yagi, A. Subagyo, M. Sato, M. Owada, K. Nakane,
E. Hatta and K. Sueoka

E-mail: yagi.katsuyuki.m0@elms.hokudai.ac.jp; agus_subagyo@ist.hokudai.ac.jp

二次元物質のグラフェンは、そのキャリア移動度の高さ、高透光性、機械的柔軟性から、タッチパネルのような透明電極、高周波トランジスタ、集積回路など様々な応用が期待されている[1-4]。電子デバイスへの応用では、大面積で均一な単結晶グラフェンが求められ、一般的には熱化学気相成長法(熱 CVD) 法によってグラフェン成長をおこなう[5, 6]。低コストの要求に伴い、熱 CVD 法の他にプラズマ CVD 法や真空加熱法なども開発されている[7, 8]。いずれの方法において、触媒材料である Cu や Ni の結晶構造や酸素不純物の有無がグラフェン高品に影響を与える。グラフェンを成長させる前に水素ガス雰囲気中で結晶化と清浄化をおこなうため、フォイル材や大気中に暴露された薄膜の触媒の酸化物の除去に有効である。一方、アモルファスカーボン炭素源とした真空加熱法においては水素ガスを導入しない場合もあり、触媒の不純物がグラフェン成長に与える影響についての議論がほとんどなされていない。本研究は、Ni 膜触媒表面の組成を分析し、真空加熱した際の結晶構造に与える影響を調べる目的でおこなった。

Ni 膜触媒はスパッタ装置を用いて成膜した。基板、Ni(111)単結晶基板を作製するためには、ミスマッチが比較的小さい α -Al₂O₃(0001)を用いることとした。比較として SiO₂/Si 基板も用いた。真空度 4×10^{-1} Pa を保ちながら表 1 の温度で Ni を 300nm 成膜した。成膜温度は、室温と 300°C でおこない、その効果も調べた。作製した試料を電気炉によって、真空中(4.5×10^{-2} Pa)と真空中に水素を導入(水素 4%, 窒素 96%, 3.4×10^1 Pa)した条件で 900°C の温度を保ちながら 30 分間加熱した。加熱する前に Ni 膜は大気中に暴露されているため、XPS を用いて組成分析をおこない、加熱後にどのように変化するかも調べた。結晶構造は XRD を用いて調べた。

XPS 測定より、Ni 膜の表面が酸化されることが分かった。なお、表面を Ar⁺イオンスパッタによりエッチングした後の酸化物はほぼなくなったので成膜中による酸化はないと考えられる。水素を導入した真空加熱後は、XRD より Ni 膜が(111)結晶面になる傾向にあるが、Ni 酸化物由来のピークもみられ、XPS 測定結果からも確認した。また、加熱後の Ni 表面を数回 Ar⁺イオンスパッタによりエッチングしても酸素が残り、真空加熱によって Ni が内部まで酸化されたことが分かった。一方確認のため、水素導入した真空加熱の場合は、Ni 酸化膜由来の XRD ピークが見られたが減少することが分かった。したがって、基板に炭素を成膜した後に Ni 膜触媒を成膜した Ni/C 構造の触媒の真空加熱によるグラフェン成長が多く報告されているが、炭素を Ni 表面上に成膜した方が Ni の酸化を防止できるためグラフェン品質改善に繋がると考えられる。

References:

- [1]. K. S. Novoselov *et al.*, Science **306**, 666 (2004).
- [2]. Y.-M. Lin *et al.*, Science **327**, 662 (2010).
- [3]. G. Eda *et al.*, Nat. Nanotech. **3**, 270 (2008).
- [4]. M. Xu *et al.*, Small **5**, 2638 (2009).
- [5]. X. Chen *et al.*, Synthetic Metals **210**, 95–108 (2015).
- [6]. Y. Hu *et al.*, Science **56**, 3220–3229 (2021).
- [7]. J. Wang *et al.*, New Carbon Material **35**, 193–208 (2020).
- [8]. J. Hpfrichter *et al.*, Nano Lett. **10**, 36–42 (2010).