

R1462

低温化学気相成長したグラフェン/遷移金属触媒界面に関する研究

Investigation of the interface between transition metal catalyst and multi-layered graphene grown by low-temperature chemical vapor deposition

松本 貴士^a, 滝沢 優^b, 山中 恵介^b
Takashi Matsumoto^a, Masaru Takizawa^b, Keisuke Yamanaka^b^a東京エレクトロン株式会社 技術開発センター, ^b立命館大学 SR センター
^aTechnology Development Center, Tokyo Electron Ltd., ^bThe SR Center, Ritsumeikan University

低温化学気相成長 (CVD) 法によるグラフェン成長機構を解明するために、代表的な触媒金属であるニッケルの L 吸収端 XANES 測定を行うことで、遷移金属触媒と炭素原子の相互作用について調べた。XANES 測定の結果から、Ni-L₃ 吸収端はニッケル中の炭素固溶の濃度が高くなるに従って低エネルギー側の信号強度が僅かながら強くなり、ニッケル結晶格子中への炭素固溶による構造変化を捉えることに成功した。

In order to reveal the graphene growth mechanism in chemical vapor deposition (CVD), we have investigated the interaction between transition metal catalysts and carbon atoms by using of the Ni-L edge X-ray absorption near edge structure (XANES) measurement. As the concentration of carbon in nickel catalyst has become higher, so the intensity on the low-energy side of Ni-L₃ edge has tended to increase in slightly. As a result of XANES measurement, we have found that the carbon solid solution caused the nickel crystal structural or chemical state changes.

Keywords: Multi-layered graphene, Low-temperature CVD, Ni catalyst, Ni-L edge, XANES

背景と研究目的: グラフェン中の電子は特異な線形バンド構造 (Dirac cone) を有し非常に高い電子移動度 200,000 cm²/Vs を示すことから、従来のシリコンデバイスの性能を遥かに凌駕する超高速スイッチングデバイスの実現が期待されている[1,2]。将来的にグラフェンデバイスを実用化するためには 300mm シリコンウェハー上に形成する技術が必要であり、CVD 法による大面積グラフェン成長技術の開発が積極的に進められている[3]。CVD 法によるグラフェン成長には遷移金属触媒が広く用いられており、ニッケルもそのうちの一つである。ニッケルは結晶格子内に炭素原子を固溶することから、ニッケルを加熱・冷却すると炭素原子が表面に析出してグラフェン形成することが知られている。

ニッケルからグラフェン成長する機構を理解するためには、ニッケル中への炭素原子の固溶、拡散、析出過程を明らかにする必要がある。今回、Ni-L 吸収端の XANES 測定を行うことで、ニッケルと炭素原子間の相互作用に関する情報を取得し、ニッケル触媒からグラフェン成長する機構について知見を得る

ことを目的とした。

実験: ニッケルと炭素原子の相互作用を調べるために、ニッケル中に含まれる炭素濃度を制御して試料を作製した。最もニッケルの純度が高い試料として、高真空スパッタリング法でニッケル試料 (Metallic-Ni) を作製した。逆に、最も高濃度に炭素を含む試料として、炭化ニッケル (Ni₃C) 基板を焼結法で作製した。上記の2試料以外にニッケル中の炭素濃度を制御した試料として、高炭素濃度 (1×10²¹ atoms/cm²) と低炭素濃度 (5×10¹⁵ atoms/cm²) のニッケル試料を作製した。ニッケル中の炭素濃度については、二次イオン質量分析法 (SIMS) で定量化を行った。

ニッケルの L 吸収端 XANES 測定は、立命館大学 SR センター (BL-11) において行った。X 線をニッケル試料表面に対して垂直に入射し、発生した蛍光 X 線 (PFY) を測定した。また同時に全電子収量法 (TEY) と部分電子収量 (PEY) 測定も行った。

結果、および、考察: 炭素含有濃度の異なるニッケル試料の L 吸収端 XANES 測定結果

を図 1 に示す。Ni-L₂ 吸収端 (871 eV) については、ニッケル中の炭素濃度の違いによる特徴的な差異は見られなかった。一方、Ni-L₃ 吸収端 (854 eV) については、最も高純度のニッケルである Metallic-Ni のスペクトルに対して、炭素濃度が高くなるに従って僅かながら 853 eV 付近の強度が強くなる傾向が確認できる (図 1 (b))。ニッケルに対して炭素原子を固溶する場合、侵入型固溶体としてニッケル結晶格子間に配位する。ニッケル中の炭素濃度を高くするに従って、ニッケル-炭素原子間の相互作用が徐々に強くなり、Ni-L₃ 吸収端のスペクトル変化にその効果が反映されているのではないかと考えている。

今後、炭素濃度の違いによるニッケルの結晶構造の変化と、ニッケル-炭素原子の相互作用の詳細について引き続き検討を行う。

文 献

- [1] Novoselov, K.S. *et al.* Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films. *Science* **306**, 666-669 (2004).
- [2] Bolotin, K.I. *et al.* Ultrahigh electron mobility in suspended graphene. *Solid State Communications* **146**, 351-355 (2008).
- [3] Bae, S. *et al.* Roll-to-roll production of 30-inch graphene films for transparent electrodes. *Nature Nanotechnology* **5**, 574-578 (2010).

論文・学会等発表
投稿準備中

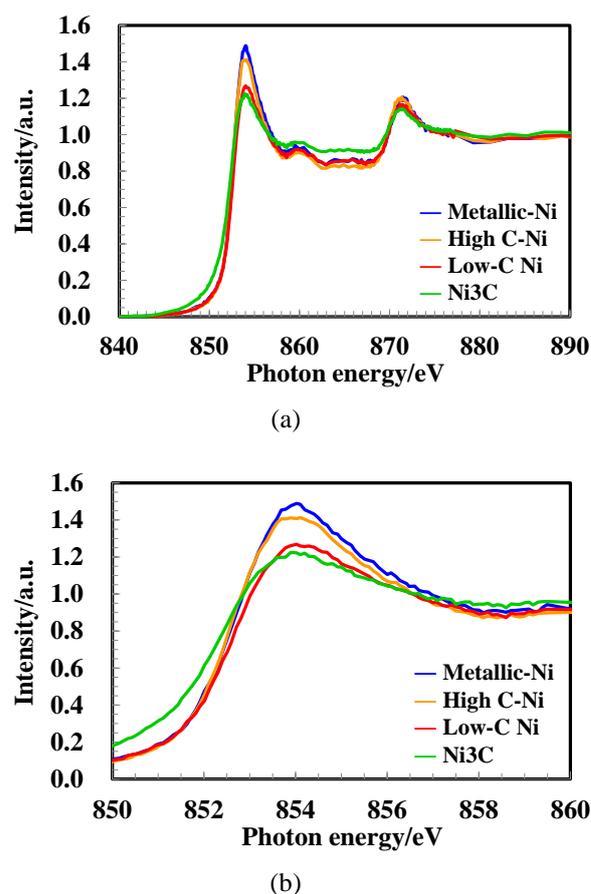


Fig. 1. Ni L-edge XANES spectra of carbon contained nickel catalyst films. (a) Ni-L₂ and Ni-L₃ edge. (b) Ni-L₃ edge.