

(様式第4号)

実施課題名：グラフェンの成長メカニズムとキャラクタリゼーション

English: Growth Mechanism and Characterizations of Graphene

著者氏名：吾郷浩樹、伊藤由人

English: Hiroki Ago, Yoshito Ito

著者所属：九州大学 先導物質化学研究所

English: Institute for Materials Chemistry and Engineering, Kyushu University

1. 概要

化学蒸着法 (CVD 法) によって合成したグラフェン薄膜の電子構造に関する知見を得るため、角度分解光電子分光 (ARPES) を用いて検討を行った。

(English)

We studied the electronic structure of graphene films grown by a chemical vapor deposition (CVD) using angle-resolved photoelectron spectroscopy (ARPES).

2. 背景と研究目的

グラフェンは 2004 年の剥離法による作製の報告以来 [1]、そのユニークな物性と優れた電子輸送特性から大きな注目を集めている。基本的には一枚のグラフェンを使った量子ホール効果や K 点での直線的なバンド分散等に由来するディラックフェルミオンの振る舞いは興味を集めている。さらに、 $200,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ともいわれる高い移動度や光学的透過性や機械的フレキシビリティはエレクトロニクスへの応用から期待を集めている。

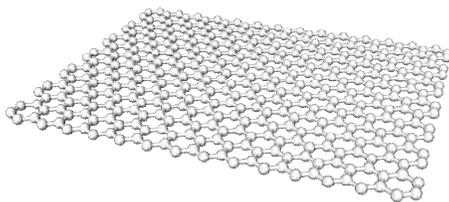


図1 グラフェンの構造

従来、グラフェンは HOPG からスコッチテープを用いて剥離して、シリコン上に転写することで作製されていた。しかし、この方法で得られるグラフェンは厚さや形状が不均一であり、実際の応用には適していない。また、この他に SiC 単結晶の熱分解などが報告されているが [2]、SiC 単結晶は高価な上、入手できる基板サイズが非常に小さいため応用範囲は限られるという問題がある。

そのような中、2008 年から化学気相蒸着法 (CVD 法) を用いたグラフェンの合成が報告されるようになってきた。この CVD 法では、シリコンに堆積させた Ni や Co などの遷移金属の薄膜上でメタンを接触分解させることでグラフェン薄膜が合成される [3-5]。メタンから供給された炭素原子が金属膜内部に拡散し、冷却過程で炭素が析出する際に、グラフェンが形成され

ると説明されている。このような溶解・析出モデルを考えると、層数の制御は容易ではないと推測できる。応用上は単層、もしくは二層のグラフェンが望ましい。しかし Ni 触媒上では、単層の割合は 50% を超えてはいるが、多層のグラフェンがかなりの割合で含まれている [3-5]。さらに、シリコン上の触媒金属が多結晶であるために、グラフェンのドメインサイズが小さく、またドメインバンドリーの存在のため、CVD で合成したグラフェンのキャリア移動度は期待されているほど高くない。

そこで本研究では触媒金属の結晶性の重要性に着目し、シリコン基板の代わりに単結晶基板を用いて、エピタキシャル的な金属触媒を堆積させ、その上で高品質なグラフェンを合成することを試みている。最近、エピタキシャル触媒上に四角形や三角形のピットが生成し、その中で優先的にグラフェンが析出することを見出している [6]。今回は、CVD 法により基板全面を覆う均一な単層グラフェン膜を合成することを試みた。そして、この方法で合成したグラフェンのバンド構造や電子状態について知見を得るため、角度分解光電子分光 (ARPES) の測定を行った。

3 . 実験内容 :

九州シンクロトロン研究センターのビームライン BL10 の ARPES 装置を利用し、高真空中で角度依存の光電子分光の測定を行った。測定は、同センターの吉村博士、瀬戸山博士、岡島博士のご協力を得て行った。

4 . 結果、および、考察

単結晶基板の上に、Ni もしくは Co を堆積させ、前処理条件や CVD 条件を検討することで、

単層の割合の高いグラフェン膜を合成することができた。シリコン基板に転写されたグラフェン膜の光学顕微鏡やラマン分光による解析により、単層の割合が高いことが分かった。なお、この割合は、Ni や Co を用いたものでは、これまでの報告の中では最も高いと考えている。

この金属触媒上に成長したグラフェンのバンド分散を ARPES を用いて測定することを試みた。しかし、初期実験では明瞭なグラフェンのバンド分散を得るまでには至らなかった。

5 . 今後の課題

ARPES の測定ためには、グラフェンのさらなる高結晶化、均一化、清浄化が必要と考えられ、今後も継続して研究を進める計画である。

6 . 論文発表状況・特許状況

グラフェンの合成法に関して、応用物理学会 (2010/3/18) での発表、及び論文発表を予定している。

7 . 参考文献

- [1] K. S. Novoselov *et al.*, *Science*, **306**, 666 (2004).
- [2] C. Berger *et al.*, *Science*, **312**, 1191 (2006).
- [3] Q. Yu *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 113103 (2008).
- [4] A. Reina *et al.*, *NanoLett.*, **9**, 30 (2009).
- [5] K. S. Kim *et al.*, *Nature*, **457**, 706 (2009).
- [6] H. Ago *et al.*, *Small*, submitted (2010).

