

M-4

ホットウォール型化学気相成長装置を用いたサファイア基板上への 単層カーボンナノチューブの面内配向成長

In-Plane Oriented growing of Single-Walled Carbon Nanotubes to Sapphire Board Top Using Hot-Wall Chemical Vapor Deposition method

○石川翔梧¹、川口大貴²、保延賢人¹、永田知子³、山本寛³、岩田展幸³*Shogo Ishikawa¹、Daiki Kawaguchi²、Kento Honobe¹
Tomoko Nagata³、Hiroshi Yamamoto³、Nobuyuki Iwata³

Abstract: We grow in-plane oriented single – walled carbon nanotubes (SWNTs) using hot wall type(HW-) chemical vapor deposition(CVD) method and Al₂O₃ substrate. The grown SWNTs are analyzed by scanning probe microscopy and Raman spectrum. The grown SWNTs are obtained, but do not aligned in-plane. The G-band, D-band and radial breathing mode(RBM) peaks are observed, indicating the growth of SWNTs. Optimized condition is required to explore for dense in-plane SWNTs growth.

1. 背景・目的

近年、電子デバイスは高集積化、低消費電力化が進んでいる。その中で特徴的な電気特性やナノスケールのサイズや形状から注目されている物質がカーボンナノチューブ(Carbon Nanotube : CNT)である[1][2]。

CNTの中でも一枚のグラフェンシートを巻いた構造からなる単層カーボンナノチューブ (Single-Walled Carbon Nanotube : SWNT)は、Si 半導体にとって代わる次世代のナノスケール基幹素子となることが期待されている[3][4]。

SWNT の成長は異方性が強く、その成長位置は触媒担架位置に依存する。SWNT を電子デバイスに応用するためには①カイラリティ制御、②位置制御、③配向制御を行うことが必要不可欠となる[5][6]。

本報告では、サファイア単結晶基板を用いて成長した SWNT が基板の表面原子に沿うように配向成長しているのを、表面像測定、ラマン散乱を行うことで明らかにし、サファイア単結晶基板による配向制御の有効性を立証する。

2. 実験方法・条件

2.1 基板洗浄

サファイア単結晶基板(10mm×10mm)を用いた。基板に付着した塵や油分を除去するためにアセトンで 5 分間、エタノールで 15 分間、アセトンで 5 分間の超音波洗浄を行った。

2.2 真空蒸着法

SWNT の触媒となる Co を、真空蒸着法により成膜した。真空蒸着条件を表 2 に示す。水晶振動子に触媒が 0.5nm 成膜されるまで蒸着を行った。成膜時にはメタルマスクを用いた。

表 2 : Co 真空蒸着条件

触媒膜厚 [nm]	0.5
印加電流 [A]	40
内圧 [Pa]	7.0×10^{-3}

2.3 CVD

ホットウォール型(Hot Wall Type : HW-)化学気相成長 (Chemical Vapor Deposition : CVD)装置内の残留炭素の除去を目的として、850℃ で 30 分間のアニール処理を行った。その後、HW-CVD 装置を用いて、サファイア単結晶基板上に SWNT 成長を行った。図 7 に CVD 条件と手順の時間的流れを示す。還元剤として水素 2%とアルゴン 98%の混合ガスを 200sccm 用い、混合ガス雰囲気中 1kPa で 850 °C までの昇温を行った。その後 30 分間温度を保ち還元処理を行った。還元処理後、アセチレン 1.9%とアルゴン 98.1%の混合ガスを 500sccm 導入し 10 分間 1kPa で SWNT 成長を行った。SWNT 成長後、アセチレンアルゴン混合ガスを止めて、200sccm のアルゴン水素混合ガスを流入し、1kPa で降温を行った。

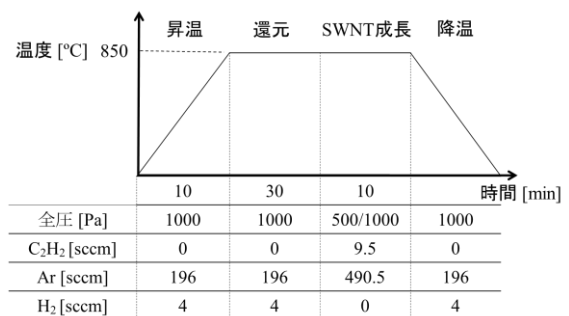


図 1: CVD 条件。アルゴン水素混合ガス雰囲気中 850℃ まで昇温を行った。その後雰囲気中 30 分間の還元処理を行った後、アセチレンアルゴン混合ガスを導入し SWNT 成長を 10 分間行った。

3. 結果・考察

図 2(a)に CVD 後の DFM による基板表面像($2 \times 2 \mu\text{m}^2$)を示す。基板表面に粒子状の物質と繊維状の物質を確認した。繊維状の物質はラマンスペクトルより SWNT であると判断した。また図 2(b)に CVD 後の励起波長 532nm におけるラマンスペクトルを示す。G-Band、D-Band 及び RBM を確認することができた。G/D 比は 12.5 であった。直径 0.9nm と 0.84nm の SWNT の成長を確認できた。

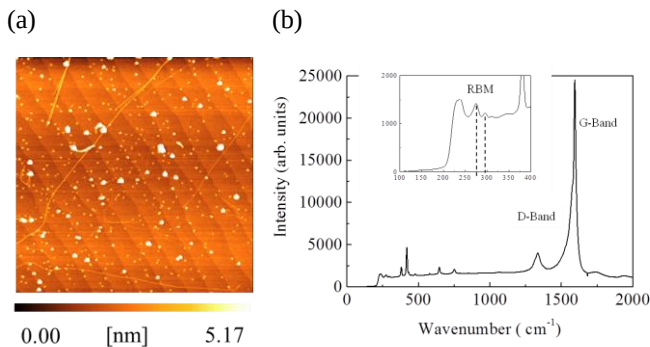


図 2 : (a) DFM による基板表面像($2 \times 2 \mu\text{m}^2$) (b) 励起波長 532nm におけるラマンスペクトル。ランダム方向に成長した SWNT と粒子状物質と G-Band、D-Band、RBM を確認した。

粒子状物質の除去を目的としてメタルマスクを超音波洗浄し、同様に CVD を行った。図 3(a)に CVD 後の DFM による基板表面像($2 \times 2 \mu\text{m}^2$)を示す。基板表面に粒子状の物質と繊維状の物質を確認した。繊維状の物質はラマンスペクトルより SWNT であると判断した。また、図 3(b)に CVD 後の励起波長 532nm におけるラマンスペクトルを示す。G-Band、D-Band 及び RBM を確認することができた。G/D 比は 5.4 であった。直径 0.91nm と 1.02nm の SWNT の成長を確認できた。

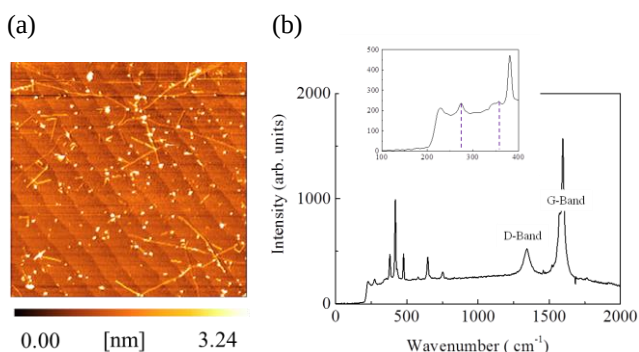


図 3 : (a) DFM による基板表面像($2 \times 2 \mu\text{m}^2$) (b) 励起波長 532nm におけるラマンスペクトル。ランダム方向に成長した SWNT と粒子状物質と G-Band、D-Band、RBM を確認した。

4. まとめ

サファイア単結晶基板に SWNT が面内配向成長しな

かった原因として、基板表面に付着している粒子が SWNT の面内配向成長を妨げたことが考えられた。この付着した粒子は、蒸着の際につけたマスクから付着したものであると考えた。マスクの洗浄を行っても CVD 後の表面像には粒子状の物質が確認できたことから、マスクの超音波洗浄のみでは原因となる物質が除去しきれていない可能性が高い。基板表面への粒子の付着を防ぐことで、サファイア単結晶基板上に SWNT を配向成長させることができると考える。

5. 参考文献

- [1] 飯島 澄男、遠藤 守信、”カーボンナノチューブ・グラフェンハンドブック”、コロナ社出版(2011)
- [2] K.Sakai, D.Ishiduka, H.Takesita, K.Kaneki, N.Iwata, H.Yamamoto, Trans.Mater.Res.Soc.Jpn. 35(2010) 343-346.
- [3] H. Kataura, Y. Suzuki, Y.Kobayashi, A.Yamazaki, H.Yoshimura, and Y.Honma, Appl. Phys. Lett. vol.90. pp.043108-043108-3, 2007
- [4] K. Sakai, S. Doi, N. Iwata, H. Yajima, and H. Yamamoto, IEICE Trans. Electron. E94-C (2011) 1861-1866.
- [5] C. Kocabas, S. H. Hur, A. Gaur, M. A. Meitl, M. Shim and J. A. Rogers, small 1, 1110 (2005).
- [6] D. Yuan, L. Ding, H. Chu, Y. Feng, T. P. McNicholas, and J. Liu, Nano Lett. 8 (2008) 2576.