

単層グラフェン作製のための転写行程の問題点 Issues during Transfer Process of Single Layer Graphene

○小谷 匠¹, 竹原 広樹¹, 鈴木 雅登² 岩田 展幸³

Takumi Kotani¹, Hiroki Takehara¹, Masato Suzuki², and Nobuyuki Iwata³

Abstract: Graphene is made using copper foil catalyst by CVD. Experiments are performed with different methods in etching Cu foil and rinse. The film adsorbed on SiO₂/Si substrate shows much reduced film thickness comparing previous research.

1. 背景及び目的

グラファイト層間化合物は、電子-正孔対(エキシトン)を媒介としたクーパー対の生成による T_c の上昇が期待されているが、現在までに報告されている T_c の最高値は、グラファイトにCaをインターカレートした場合での11.5 Kに留まっている¹⁾。我々はグラファイトに替わる炭素系室温超伝導物質として、グラフェンに着目した。グラフェンとはグラファイトを単層化したものであり、2層グラフェンはグラフェンを2層に積層したものである。比較的拘束力の小さな2層グラフェンの層間に金属原子をインターカレートする場合、GICで生じる結晶性の低下あるいは金属原子の不均一な分布を抑制でき、 T_c の上昇が期待できる。本実験ではCu箔からの単層グラフェンの作成を試みた。従来までの転写方式では、表面像から、高さ数千 nm の転写物が付着しており、グラフェンが清浄に転写されていないことがわかった。そこで本実験では転写工程に注目した。また、作製した試料はラマン分光法や走査型プローブ顕微鏡により評価した。

2. 実験方法

2.1. 単層グラフェン/Cu箔の作製

CVD法にはホットウォールCVD装置を使用した。CVD法によるグラフェン成長には触媒として低層のグラフェンを作製できるCu箔

(12×12 mm²、厚 20 μm)を用いた。図1にCu箔上へのグラフェン成長時のCVD条件を示す。

従来使用していた炉心管上部にCu箔による汚れが付着しており、それがSampleに影響を及ぼすか、基板のみを大気中でアニールしたところ洗浄後の基盤と比べて約15nm程の厚みが増した。そこで、新しい炉心管に変えて実験を行った。

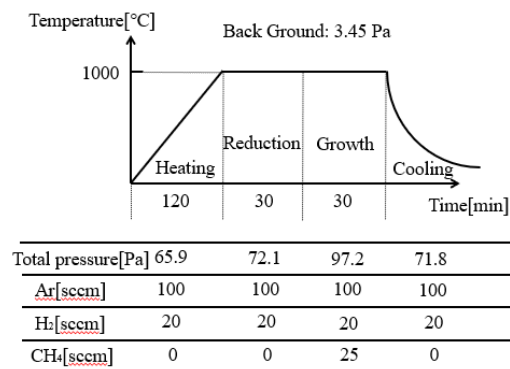


図1 CVD条件

2.2. 単層グラフェン/SiO₂/Siの作成転写工程

図2に単層グラフェンのSiO₂/Si基板への転写の手順(a→d)を示す。これをSample1とする。また、Sample1の転写工程をいくつか変更したものをSample2とした。

従来までの研究では、グラフェンを直接基板で抄い転写をしていたが、転写の成功率の

良さから本実験ではサーマルテープを用いた転写法で行っている。aのCuエッチング工程を純水20mlに対しての硝酸鉄の流入量を1.0gから2.0gに変更し、bの工程を純水に5分浸漬から、純水5分→エタノール5分の浸漬を二回繰り返すリンス工程とした。dの工程では従来アセトンに24時間浸漬させていたが、12時間で1回アセトンを交換する工程に変更した。

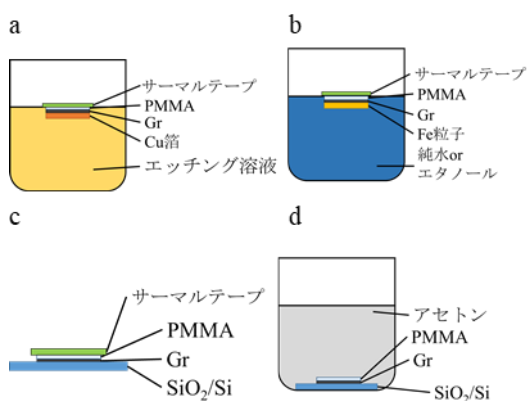


図2 単層グラフェンのSiO₂/Si基板への転写

3. 評価方法

グラフェンの総評には、ラマン分光器を用いてラマンスペクトルを測定し、G/2D比より層数評価を行う。また、走査型プローブ顕微鏡でグラフェン膜厚を測定することで層数と膜質評価を行った。

4. 結果及び考察

Sample2の表面像を図3に、図4にラマン分光器で測定したラマンスペクトラムを示す。

平均面粗さにおいてSample1、2を比較すると、18.3nm、2.83nmとなった。これは、新リンス工程により、Fe粒子やごみの減少、PMMAの残留率が低下したことにより、平均面粗さが向上したと考察できる。実際にラマン分光器で測定した結果、ラマンスペクトルからグラフェン特有のピークを確認した。Sample2の

G/2D比が0.83であり多層グラフェンが生成されている。この結果により、新転写工程はグラフェン膜厚評価の低下に繋がった。

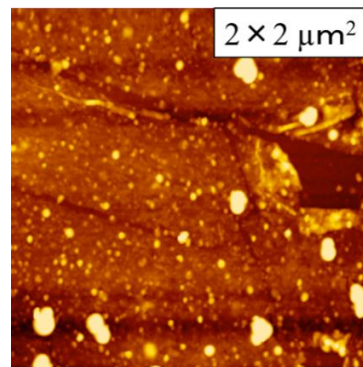


図3 Sample2 グラフェン表面像右の段差より膜厚評価

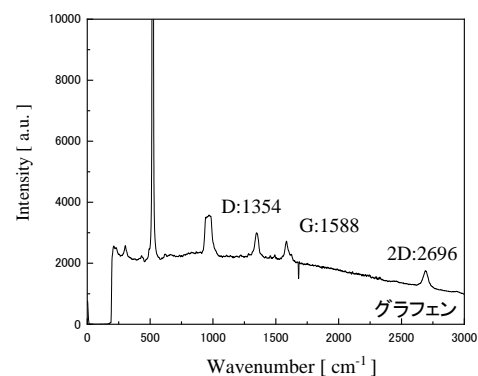


図4 Dピーク、Gピーク、2Dピークが確認されたSample2ラマンスペクトラム

5. まとめ

新転写工程によりグラフェンの膜厚は低下した。しかし、表面像の結果より粒形が確認できることから更に転写工程の見直しが必要である。

6. 参考文献

[1] A. P. Drozdov, *et. al.*, *Nature*, **73** (2015) 525.