

CVD-Grown Graphene : Domain Structure Control and Characterizations

小川, 友以

<https://doi.org/10.15017/1441277>

出版情報 : 九州大学, 2013, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 : 全文ファイル公表済



氏 名： 小川 友以

論文題目： CVD-Grown Graphene: Domain Structure Control and Characterizations
(CVD成長したグラフェンのドメイン構造制御と評価)

区 分： 甲

論 文 内 容 の 要 旨

グラフェンは炭素原子のみで構成された原子1層分の厚さのユニークな二次元シート構造をもち、シリコンや有機分子よりもはるかに高いキャリア移動度を示し、軽量で光透過性が高く、かつ機械的に柔軟であることから、エレクトロニクスを始めとして幅広い分野での応用が期待されている。グラフェンの合成においては、大面積化、層数や形状の制御、低コスト化などの利点から、遷移金属の薄膜を触媒として、炭化水素を原料とする化学蒸着法（CVD法）が注目されている。しかしながら、従来のCVD法で合成されたグラフェンは、金属触媒の多結晶性などのため、六員環の向きが異なる微小なドメインからなるマルチドメイン構造を有していることが知られている。このようなマルチドメイン構造をもつグラフェンにおいては、多数のドメイン境界によってキャリア輸送特性や機械強度等が低下して、本来のグラフェンの優れた物性が得られないという問題があった。また、このような問題は、グラフェンの応用研究を進める上でも大きな障害となっている。

グラフェン本来の物性を引き出しかつ応用を推し進めるには、そのドメイン構造を高度に制御したグラフェンの合成法の確立が必要である。理想的には大面積の単結晶グラフェンの合成が望まれている。同時にドメイン構造を解析する手法の開発も重要とされている。そこで本研究では、グラフェンのドメイン構造の制御、およびドメイン境界の物性評価を目的として、CVD法によってグラフェンを合成し、種々の測定法を用いてグラフェンのドメイン構造やそれが物性に与える影響に関して研究を行った。特に、ヘテロエピタキシャルの金属触媒を用いることで、金属の結晶面とグラフェンの構造との関係を明らかにした。さらに、分子によるグラフェンの機能化、およびグラフェンを基盤としたフレキシブルデバイスへの応用という観点から、グラフェン上における π 共役系分子の自己組織化に関する研究も行った。

本論文は序論（第一章）と結論（第六章）を含む六つの章から構成され、CVD成長したグラフェンのドメイン構造の制御（第三章）、ドメイン境界のキャラクタリゼーション（第四章）、および π 共役分子の自己組織化におけるテンプレートとしてのグラフェン応用（第五章）の三つに大別される。第二章では、グラフェンの立体構造、バンド構造や電子状態、合成方法、ならびにCVD法における研究課題についてまとめた。

第三章では、ヘテロエピタキシャルCu薄膜の(111)面および(100)面を触媒としてCVD合成を行い、グラフェンのドメイン構造が金属触媒の結晶方位に依存して決定されるということを述べている。Cu(111)上ではドメインの向きを一方向に揃えたグラフェンが成長するのに対し、Cu(100)面では30度回転した二つの方位をもつグラフェンのドメインが共存することを明らかにした。グラフェンと金属触媒の結晶方位関係が重要であると結論づけられた。

第四章では、CVD法で合成したグラフェンのドメイン境界における電荷輸送特性について報告している。

二つのグラフェンドメインの境界部分にまたがるように電界効果トランジスタを作製し、キャリア輸送特性を測定した結果、ドメイン境界部分でキャリアの散乱が生じることを見出している。さらに、電荷輸送の温度依存性を調べることによって、単一ドメイン内ではグラフェンの結晶性が非常に高く、フォノン散乱が支配的なのに対し、ドメイン境界では欠陥の存在を示唆する不純物散乱が優勢であるということが示された。

第五章では、ドメイン構造を制御したCVDグラフェン上に堆積させた分子の自己組織化について述べている。 π 共役を有する塩化アルミフタロシアニン (CIAIPc) 分子は、Cu触媒上にCVD成長したグラフェン上で正方形の単位格子を持って規則的に配列することが分かった。さらにCVDグラフェンのドメインの向きを反映して、CIAIPc分子の自己組織化膜の単位格子も回転することが示唆される結果も示している。これらの結果よりCVDグラフェンは π 共役系分子の自己組織化テンプレートとして有効であることが提示された。

第六章では、研究成果として本論文の各章の要点をまとめた。また、今後のグラフェンや二次元薄膜材料研究において解決すべき課題、ならびに将来の指針についても記し総括とした。