

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第1区分

【発行日】平成26年7月31日(2014.7.31)

【公表番号】特表2013-537164(P2013-537164A)

【公表日】平成25年9月30日(2013.9.30)

【年通号数】公開・登録公報2013-053

【出願番号】特願2013-529102(P2013-529102)

【国際特許分類】

C 01 B 31/02 (2006.01)

【F I】

C 01 B 31/02 101Z

【手続補正書】

【提出日】平成26年6月10日(2014.6.10)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

炭化ケイ素基材表面からのケイ素の昇華により、炭化ケイ素基材上においてグラフェンを成長させる方法であって、

るつぼ内に炭化ケイ素基材を配置し、前記るつぼを反応チャンバー内に配置することと、圧力を制御し、成長温度に加熱することと、1400超の温度で、及び600乃至1100mbarの不活性ガス圧力で、前記基材の表面上にグラフェンを成長させることとを含み、前記加熱は、少なくとも第1加熱段階及び第2加熱段階で行われ、前記第1加熱段階は少なくとも1200の温度まで第1加熱速度で行われ、前記第2加熱段階は前記第1加熱段階の後に、且つ前記第1加熱速度よりも速い第2加熱速度で行われる方法。

【請求項2】

請求項1に記載の方法であって、前記第1加熱速度は、20乃至30/分であり、好みしくは、20乃至25/分である方法。

【請求項3】

請求項1又は2に記載の方法であって、前記第2加熱速度は25乃至35/分であり、好みしくは28乃至32/分である方法。

【請求項4】

請求項1乃至3の何れか1項に記載の方法であって、前記加熱は、前記第2加熱段階の後に第3加熱段階を更に含み、前記第3加熱段階は、前記第2加熱速度よりも速い第3加熱速度で行われる方法。

【請求項5】

請求項4に記載の方法であって、前記第3加熱速度は、30乃至40/分であり、好みしくは、32乃至37/分である方法。

【請求項6】

請求項1乃至5の何れか1項に記載の方法であって、前記第1加熱速度での加熱の後、且つ前記第2加熱速度での加熱の前に、前記反応チャンバーに不活性ガスが導入される方法。

【請求項7】

請求項1乃至6の何れか1項に記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、本質的に等温条件下で行われる方法。

【請求項 8】

請求項 1 乃至 7 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記第 1 加熱段階は、真空中で行われる方法。

【請求項 9】

請求項 1 乃至 8 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記第 2 加熱段階は、不活性ガス雰囲気で行われる方法。

【請求項 10】

請求項 1 乃至 9 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記炭化ケイ素基材の表面は、ケイ素終端表面である方法。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 10 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、少なくとも 1650 の温度で行われる方法。

【請求項 12】

請求項 1 乃至 11 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、少なくとも 1900 の温度で行われる方法。

【請求項 13】

請求項 1 乃至 12 の何れか 1 項に記載のプロセスであって、前記基材は、グラファイトるつぼ内に配置される方法。

【請求項 14】

請求項 13 に記載の方法であって、前記基材の作用表面は、グラフェンの成長の間、前記るつぼの底面から離れて、且つ該底面と向かい合って配置される方法。

【請求項 15】

請求項 1 乃至 14 の何れか 1 項に記載の方法であって、前記るつぼは、前記グラフェンの成長の間、閉じられている方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0012】

本発明によるプロセスは、るつぼ中に炭化ケイ素基材を配置し、反応チャンバー中に前記るつぼを配置することと、圧力を制御し、成長温度に加熱することと、1400 超の温度で、600 乃至 1100 mbar の不活性ガス圧力でグラフェンを成長させることを含む。前記加熱は少なくとも 2 段階で行われる。第 1 加熱段階は、少なくとも 1200

の温度まで第 1 加熱速度で行われる。第 1 加熱段階が成功した後の第 2 加熱段階は、第 2 加熱速度で行われる。第 2 加熱速度は、第 1 加熱速度より速い。この加熱は、第 3 加熱速度に供する第 3 加熱段階を含んでいてもよく、第 3 加熱速度は、好ましくは第 2 加熱速度より速い。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0014】

第 2 加熱速度は、好ましくは 25 乃至 35 / 分であり、より好ましくは 28 乃至 32 / 分であり、且つ、第 1 加熱速度より速いことが好ましい。第 2 加熱段階の間に、炭化ケイ素表面は黒鉛化を開始する。第 2 加熱段階は、不活性雰囲気下で好適に行われる。このように、実施形態によると、前記第 1 加熱速度での加熱の後に、且つ前記第 2 加熱速度での加熱の前に、反応チャンバーへ不活性ガスが導入される。当業者にとって、不活性ガスが第 2 加熱段階の間も導入され得ることは容易に明らかであろう。さらに、不活性ガス

の圧力は、好ましくは、それがグラフェンの成長の間に用いられることを意図された圧力、例えば、600乃至1100mba_rに対応するように調節される。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

本開示によるプロセスは、閉鎖されたるつぼ中に炭化ケイ素基材を配置することと、炉の反応チャンバー中に前記るつぼを配置することと、圧力を制御し、成長温度に加熱することと、1400超の温度で、600乃至1100mba_rの不活性ガス圧力で、基材の表面にグラフェンを成長させることとを含む。前記加熱は少なくとも2段階で行われる。第1加熱段階は、少なくとも1200の温度に至るまで第1加熱速度で行われる。第1加熱段階が成功した後の第2加熱段階は、第2加熱速度で行われる。第2加熱速度は、第1加熱速度より速い。この加熱は、第3加熱速度に供する第3加熱段階を含んでいてもよく、第3加熱速度は、好ましくは第2加熱速度より速い。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0025

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0025】

第2加熱段階の間の不活性ガス雰囲気は、第1加熱段階後のるつぼ及び反応チャンバー中へ、アルゴンなどの不活性ガスを導入することにより好適に達成される。不活性ガスは、第2加熱段階の間も導入され得る。好ましくは、不活性ガスの圧力は、グラフェンの成長の間に意図した不活性ガス圧力、例えば、600乃至1100mba_rに本質的に対応するように制御される。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0026

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0026】

第3加熱速度は、好ましくは30乃至40/分であり、より好ましくは32乃至37/分であり、且つ、望ましい成長温度に至るまで、例えば、望む結果により約2000に至るまで行われる。通常、第3加熱段階は、不活性ガス雰囲気下、且つ、好ましくは、グラフェンの成長の間に意図した不活性ガス圧力と本質的に同じ圧力、例えば、600乃至1100mba_rで行われる。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0029

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0029】

グラフェンの成長は、600乃至1100mba_rの不活性ガス圧力で行われる。好ましくは、グラフェンの成長の間の不活性ガス圧力は、少なくとも800mba_rであり、より好ましくは、約950乃至約1050mba_rである。グラフェンの成長の間の相対的に高い不活性ガス圧力は、るつぼから離れようとするケイ素原子が周囲の気体原子と衝突し、基材表面近傍において、ケイ素蒸気の長期の滞留時間を生じさせる効果があり、それは、ケイ素蒸気が基材表面の平坦化を助け、グラフェン層の質を向上させるという効果

がある。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0032

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0032】

ケイ素蒸気がゆっくりとだけるつぼから漏れ得るという事実は、ケイ素蒸気が基材表面の平坦化を助けることにより、グラフェン形成のための良好な表面を確保することを援助する。好ましくは、グラフェンの成長の間のるつぼ内部のケイ素蒸気の分圧は、 10^{-5} mbar 乃至 10^{-3} mbar のオーダーであり、より好ましくは、約 10^{-4} mbar のオーダーである。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0053

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0053】

VIII. RFジェネレーターを切ることと、基材を室温まで冷却させることによる成長の終結。

以下、本願の当初の特許請求の範囲に記載の発明を付記する。

[1]

炭化ケイ素基材表面からのケイ素の昇華により、炭化ケイ素基材上においてグラフェンを成長させる方法であって、

るつぼ内に炭化ケイ素基材を配置し、前記るつぼを反応チャンバー内に配置することと、圧力を制御し、成長温度に加熱することと、1400 超の温度で、及び 600 乃至 1100 bar の不活性ガス圧力で、前記基材の表面上にグラフェンを成長させることを含み、前記加熱は、少なくとも第1加熱段階及び第2加熱段階で行われ、前記第1加熱段階は少なくとも 1200 の温度まで第1加熱速度で行われ、前記第2加熱段階は前記第1加熱段階の後に、且つ前記第1加熱速度よりも速い第2加熱速度で行われる方法。

[2]

[1]に記載の方法であって、前記第1加熱速度は、20 乃至 30 / 分であり、好ましくは、20 乃至 25 / 分である方法。

[3]

[1]又は[2]に記載の方法であって、前記第2加熱速度は 25 乃至 35 / 分であり、好ましくは 28 乃至 32 / 分である方法。

[4]

[1]乃至[3]の何れかに記載の方法であって、前記加熱は、前記第2加熱段階の後に第3加熱段階を更に含み、前記第3加熱段階は、前記第2加熱速度よりも速い第3加熱速度で行われる方法。

[5]

[4]に記載の方法であって、前記第3加熱速度は、30 乃至 40 / 分であり、好ましくは、32 乃至 37 / 分である方法。

[6]

[1]乃至[5]の何れかに記載の方法であって、前記第1加熱速度での加熱の後、且つ前記第2加熱速度での加熱の前に、前記反応チャンバーに不活性ガスが導入される方法。

[7]

[1]乃至[6]の何れかに記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、本質的に等温条件下で行われる方法。

[8]

[1] 乃至 [7] の何れかに記載の方法であって、前記第 1 加熱段階は、真空中で行われる方法。

[9]

[1] 乃至 [8] の何れかに記載の方法であって、前記第 2 加熱段階は、不活性ガス雰囲気で行われる方法。

[10]

[1] 乃至 [9] の何れかに記載の方法であって、前記炭化ケイ素基材の表面は、ケイ素終端表面である方法。

[11]

[1] 乃至 [10] の何れかに記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、少なくとも 1650 の温度で行われる方法。

[12]

[1] 乃至 [11] の何れかに記載の方法であって、前記グラフェンの成長は、少なくとも 1900 の温度で行われる方法。

[13]

[1] 乃至 [12] の何れかに記載のプロセスであって、前記基材は、グラファイトるつぼ内に配置される方法。

[14]

[13] に記載の方法であって、前記基材の作用表面は、グラフェンの成長の間、前記るつぼの底面から離れて、且つ該底面と向かい合って配置される方法。

[15]

[1] 乃至 [14] の何れかに記載の方法であって、前記るつぼは、前記グラフェンの成長の間、閉じられている方法。