

乱層積層した多層グラフェンの合成と電子輸送特性に関する研究
Study of synthesis and electronic properties of turbostratic stacked multilayer graphene

◦ (M2) 山下 朋晃^{1*}, 鶴飼 智文², 黒須 俊治², 花尻 達郎^{1,2}, 前川 透²,
仁科 勇太³, 山口 智弘⁴, 石橋 幸治⁴, 根岸 良太^{1,2}
東洋大院理工¹, バイオ・ナノエレクトロニクス研究センター², 岡山大学³, 理化学研究所⁴
Toyo Univ. Graduate School¹, Bio-nanoelectronics research center², Okayama Univ.³, RIKEN⁴
◦ T. Yamashita¹, T. Ukai², S. Kurosu², T. Hanajiri^{1,2}, T. Maekawa²,
Y. Nishina³, T. Yamaguchi⁴, K. Ishibashi⁴, R. Negishi^{1,2}
* E-mail: s36C02300070@toyo.jp

【はじめに】線形分散型の電子構造を有するグラフェンは、他の物質では見られない特異な物性を示す。その一つとして、テラヘルツ帯での電磁波発光・吸収が注目されている[1]。単層グラフェンの場合、透過率が高いため光に対する利得が少ない。そのため、利得向上には多層化が必要である。しかしながら、最安定構造である Bernal 構造の多層グラフェンは層間相互作用が大きいので、電子構造がグラファイトと同様となり線形分散が消失する。層間相互作用が小さい乱層積層を持つ多層グラフェンならば、その電子特性を失わないことが期待される[2]。これまで、酸化グラフェン(GO)薄膜の還元により、乱層積層した多層グラフェンの合成が可能であることを明らかにしてきた[3]。本研究では、酸化グラフェンの1400℃以上の超高温還元処理による多層グラフェンの高結晶化と、グラフェンチャネルによる電界効果型トランジスタの作製により解析した電気特性について報告する。

【実験内容】キャリアガスとして Ar を 250sccm、炭素供給用ガスとしてエタノールを 1.0sccm 流入し、1000-1400℃で還元することで多層グラフェン(rGO)薄膜を合成した。その後、EB 描画装置を用いてパターンニングを行い、EB 蒸着装置を用いて Ti を 10nm、Au を 80nm 成膜して rGO をチャネルとした電界効果型トランジスタを作製し、4 端子測定による電気移動度測定を行った。その後、絶縁膜として原子層堆積法(ALD)により HfO₂ を 30nm 成膜した。最後に、チャネル上にゲート電極を作製し、ゲート特性を測定した。

【実験結果と考察】1000℃から 1440℃までの還元温度によるラマンスペクトルを図 1 に示す。加熱温度の上昇と共に、欠陥構造に起因する D バンド領域のピーク強度が減少し、炭素結合に起因する G バンドピークと、二重共鳴散乱過程に起因する 2D バンドピークが上昇していることが分かる。1400℃還元でのラマンスペクトルから、2D バンドピークをローレンツ関数でフィッティング解析した結果を図 2 に示す。点線の単相グラフェンバルク成分が約 80 パーセントを占め、還元した多層グラフェンが高い割合で乱層積層していることが計算で求められた。ホール測定による電気特性の測定結果を表 1 に示す。多くのサンプルで 300cm²/Vs 前後の高い電気移動度が観察された。以上の結果から、1400℃付近によるエタノール加熱還元処理において、効率的な六員環構造修復を可能にし、高結晶性かつ乱層積層した多層グラフェンの合成に成功したと結論付ける。

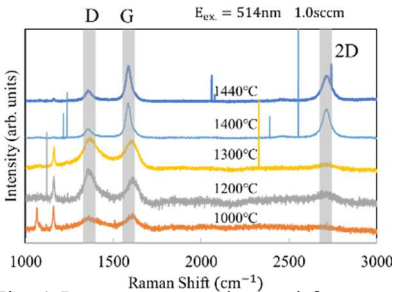


Fig. 1 Raman spectra observed from rGO prepared by various treatment temperature.

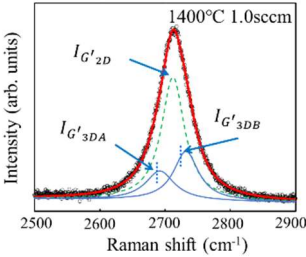


Fig. 2 Fitting analysis of the 2D-band spectrum observed from rGO at 1400°C.

Table 1 Hall measurements of the rGO thin films at 1400 °C.

	Sample A	Sample B
Sheet resistibility (Ω/sq)	1834	99.56
Carrier density (/cm²)	+9.314 × 10 ¹³	+2.304 × 10 ¹⁴
Carrier mobility (cm²/Vs)	365	272

- Sample A:1400℃, 0.5sccm
- Sample B:1400℃, 1.0sccm

謝辞 本研究の一部は科研費(22K04865)および井上円了研究助成金、BN 研究センターの援助を受けて実施しました。

参考文献 [1] L. Ju *et al.*, Nat. Nanotechnol., **6** (2010) 630 [2] S. Latil, *et al.*, PRB **76** (2007) 201402. [3] R. Negishi, *et al.*, Sci. Reports, **6** (2016) 28936.