

UV/O<sub>3</sub> 処理および UV 光照射による酸化還元後のグラフェンの伝達特性Transfer characteristic of graphene after redox processes through UV/O<sub>3</sub> treatment and UV irradiation奈良先端大<sup>1</sup>, 青山学院大学<sup>2</sup>, 科学技術振興機構<sup>3</sup>Yana Mulyana<sup>1</sup>, 上沼睦典<sup>1,3</sup>, 石河 泰明<sup>1,3</sup>, 黄 晋二<sup>2</sup>, 浦岡 行治<sup>1,3</sup>NAIST<sup>1</sup>, Aoyama Gakuin University<sup>2</sup>, CREST<sup>3</sup>Yana Mulyana<sup>1</sup>, Mutsunori Uenuma<sup>1,3</sup>, Yasuaki Ishikawa<sup>1,3</sup>, Shinji Koh<sup>2</sup>, Yukiharu Uraoka<sup>1,3</sup>

E-mail: y-mulyana@ms.naist.jp

**はじめに:** グラフェンの電子物性を制御し、より機能化するために、近年、グラフェンの化学修飾が研究されてきている。1940 年代に開発された Hummers 法が広く用いられるが、反応性の強い化学薬品を使用するため、不可逆的で、グラフェン格子に多量の欠陥が導入され、高特性は得られない。2012 年に、グラフェンの可逆的な酸化法が提案された [1]。この方法では、超高真空チャンバ内に酸素を導入し、タングステンのフィラメントを 1500°C まで加熱して酸素ラジカルを発生させ、グラフェン格子にドーピングを行う。そして、260°C の加熱により酸化グラフェンの還元を行うが、超高真空環境での高温アニール処理であるため、高コストである。

本研究では、より簡便な方法として、オゾン雰囲気中での紫外線照射 (UV/ O<sub>3</sub> 処理) により室温大気圧でグラフェン格子に酸素をドーピングする手法について検討を行ってきた。これまで本研究では、UV/ O<sub>3</sub> 処理によるグラフェン酸化の熱的可逆性を実証した [2]。今回は、UV/ O<sub>3</sub> 処理によりグラフェンを酸化させ、UV 光照射により酸化グラフェンの還元を行い、グラフェンのラマン及び XPS (X 線光電子分光) スペクトルの変化を評価しグラフェン酸化の非熱的可逆性を実証してみたが [3]、今回は、酸化還元前後のグラフェン FET (電界効果トランジスタ) の伝達特性を評価し比較を行った。

**実験と結果:** グラフェン層の形成は KISH 黒鉛の機械的剥離法を用いて SiO<sub>2</sub> (90 nm)/Si 基板に行った。ソース・ドレイン電極を形成する材料には Au/Cr (100 nm/50 nm) を用いた。グラフェンは UV/ O<sub>3</sub> 処理により酸化させる。UV/ O<sub>3</sub> 処理は Samco UV-1 洗浄装置を用いて、室温で 3 分行った。この処理では、装置のチャンバ内にオゾンを提供しながら、波長 184.9 nm 及び 253.7 nm の UV 光を照射する。還元には UV 光照射には、UV/ O<sub>3</sub> 処理を行う際の装置を使用し、同じ UV 光源を用いて大気圧で 3 分行った。グラフェンの酸化還元反応は 2 回行い、酸化還元前後のデバイス特性を 10<sup>-5</sup> Pa 台の真空中で評価した。

1 回目の酸化還元前後の伝達特性を Fig. 1 に示す。初期状態のグラフェンに比べ酸化させたグラフェン FET のアンバイポーラ曲線の傾きが緩やかになったことが分かり、電子移動度の低下を意味している。これは、酸素原子がグラフェンの炭素原子と化学結合しエポキシドを形成して、ソース・ドレイン間電圧によって加速された電子がこの結合電子対と衝突し散乱が起こる確率が高まった結果であることを示唆している。

一方、酸化されたグラフェンに対して UV 光照射を行うと、アンバイポーラ曲線の傾きが回復したことが分かり、電子移動度の低下が回復したことを意味している。これは、UV 光照射により酸素原子とグラフェンの炭素原子との化学結合が切断され、初期状態のグラフェンに再生されたことを示唆している。2 回目の酸化還元前後の伝達特性 (Fig. 2) から同様な結果が読み取れる。

したがって、今回の実験で、UV/ O<sub>3</sub> 処理により酸化

されたグラフェンが UV 光照射により還元されたことが明らかになった。

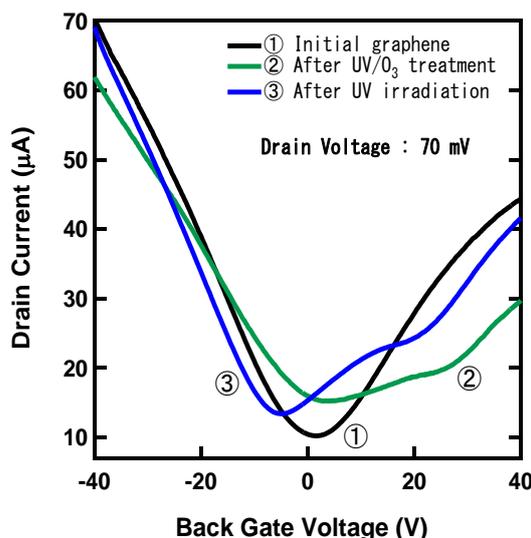


Figure 1 Graphene-based FET's transfer characteristics after first circle of redox processes

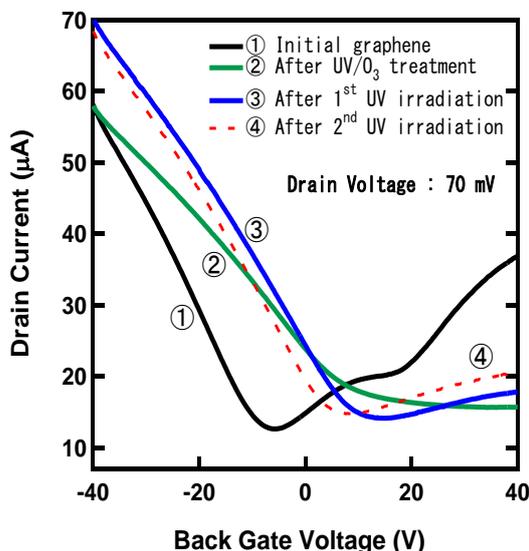


Figure 2 Graphene-based FET's transfer characteristics after second circle of redox processes

## 参考文献:

- [1] Hossain M Z, et al., Nat. Chem. **4**, 305-309 (2012).  
 [2] Mulyana Y, et al., Appl. Phys. Lett. **103**, 063107 (2013).  
 [3] Mulyana Y, et al., 第 74 回応物学会秋季学術講演会, 17-094 (2013).