19p-E2-12

## エタノール気相化学成長法により還元・構造修復させた酸化グラフェン薄膜の バンドライク伝導

Band-like transport of graphene oxide films by reduction and restoration using ethanol chemical vapor deposition

阪大院工<sup>1</sup>、北陸先端大<sup>2</sup>、<sup>0</sup>根岸 良太<sup>1</sup>、赤堀 誠志<sup>2</sup>、村上 達也<sup>2</sup>、山田 省二<sup>2</sup>、小林 慶裕<sup>1</sup> Osaka Univ.<sup>1</sup>, JAIST<sup>2</sup>, <sup>o</sup>R. Negishi<sup>1</sup>, M. Akabori<sup>2</sup>, T. Murakami<sup>2</sup>, S. Yamada<sup>2</sup>, Y. Kobayashi<sup>1</sup> E-mail: negishi@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】我々はこれまでの研究で、エタノールを炭素源とした気相化学成長(CVD)条件において、還 元やグラフェン欠陥構造の修復が進行し、2次元のバリアブルレンジホッピング(2D-VRH)モデルによる 解析から、伝導に寄与するπ電子が空間的に拡張することで移動度が向上することを報告してきた[1]。 今回我々は、高温(~1130℃)条件下でエタノールCVD処理したGO薄膜では、構造修復の効果が顕在 化し、キャリアの伝導がバンドライクな伝導機構へ変化していることを見出したので報告する。

【実験】SiO<sub>2</sub>(280nm)/Si基板上に単層酸化グラフェン分散液(Graphene Laboratories Inc.)を塗布すること により薄膜を作製した。GOの還元・構造回復処理は、エタノールCVD法により850~1130℃の条件で行 った。キャリア移動度は、van der Pauw法を用いたホール効果測定により評価した。

【実験結果と考察】各温度で還元・構造修復させたGO薄膜に対 するラマンスペクトルの2Dバンド・Gバンド強度比(I(2D)/I(G)): 左縦軸)とDバンド・Gバンド強度比(I(D)/I(G):右縦軸)の関係 をそれぞれ示す。*I*(2D)/*I*(G)は還元・構造回復の進行度の指 標となる[2]。950℃付近を境に、傾きが大きくなる傾向が観察され ており、1130℃の高温条件では、単層グラフェンと同程度の値(1 (2D)/I(G)~1)まで達している。さらに注目すべきは、I(D)/I (G)が、950℃付近を境に極値を持っている点である。すなわち、 950℃以上のエタノールCVD処理では、欠陥由来のDバンド強 度が減少し始めており、高温処理により効果的に構造修復が進 行しているものと考えられる。表1に、900、1130℃でエタノールC VD処理をしたGO薄膜に対するホール測定の結果を示す。ヒド ラジンや真空還元などの通常の還元法では、GO薄膜上におけ るπ電子系の局在が強く、ホール電位を観察することは困難であ る。実際、1130℃の高温でAr/H2(3%)雰囲気により還元したGO 薄膜からは外部磁場に対するホール電位応答を観察することは できなかった。その一方で、今回エタノールCVD還元処理したG O薄膜では、明瞭なホール電位を観察することに成功した。とく に1130℃の高温処理では、キャリア移動度が~175cm<sup>2</sup>/Vsにも および、酸化グラフェン系としては極めて高い値が観察された。 これらGO薄膜のキャリア移動度の温度依存性を図2に示す。ここ で各温度の移動度は、室温で得られた値で規格化されている。 900℃の処理条件では、温度の低下とともに移動度が減少してお り、僅かながら表面の局在した電子系間の障壁により伝導機構 は2D-VRHモデルが支配的であると考えられる。注目すべきは、 1130℃の高温処理では、低温領域で移動度が向上する傾向が 観察されている点である。これは、構造修復によりπ電子系の非 局在化が進み、バンドライクな伝導機構が支配的になっているた めと考えられる。以上のように、エタノールを利用した高温CVD 処理では、グラフェン本来が有する電子特性を引き出す非常に 有効な手法であると結論付ける。[1]根岸他、第73回秋季応物 13p-C2-14. [2] Ching-Yuan Su et al., ACS Nano 4(2010)5285.



Fig. 1 Process temperature dependence of I(2D)/I(G) and I(D)/I(G).

Р Т	Process Temperature (°C)	Carrier mobility (cm <sup>2</sup> /Vs)	Carrier density (cm <sup>-2</sup> )	Conduc tivity (S/□)
	1130	$175\pm20$	$1.71 \times 10^{13}$	$5.54 \times 10^{-4}$
	900	41.7 ± 11.4	7.7×10 <sup>12</sup>	3.74×10 <sup>-5</sup>

Table 1 Results of Hall measurements using van der Pauw methods for reduced GO films. Parameters are evaluated at room temperature.



Fig. 2 Temperature dependence of carrier mobility.