## Pd ナノドット修飾グラフェンに水素が及ぼす影響

## Impact of Hydrogen on Carrier Mobility and Concentration in Graphene Decorated with Pd Nanoparticle 慶應大理工 電子工<sup>1</sup>, JST CREST<sup>2</sup> <sup>0</sup>後藤 瑛人<sup>1</sup>, 竹内 豪<sup>1</sup>, 山知 亮介<sup>1</sup>, 田中 貴久<sup>1</sup>, 高橋 綱己<sup>1,2</sup>, 内田 建<sup>1,2</sup>

Dept. Electrical and Electronics Engineering<sup>1</sup>, Keio University CREST, Japan Science and Technology Agency<sup>2</sup> °Akihito Goto<sup>1</sup>, Go Takeuchi<sup>1</sup>, Ryosuke Yamachi<sup>1</sup>, Takahisa Tanaka<sup>1</sup>, Tsunaki Takahashi<sup>1,2</sup>, and Ken Uchida<sup>1,2</sup> E-mail: a.goto@ssn.elec.keio.ac.jp, uchidak@elec.keio.ac.jp

【背景および目的】 近年,燃料電池自動車などの普及が進んできており,将来的な水素利用の増加 が見込まれている.このように水素は新たなエネルギー源として期待される一方で比較的低濃度(4% 程)で爆発の危険性があるため,早期検出が可能なセンサによる安全な管理が必要となる[1].高感度 水素センサとしてパラジウム(Pd)をグラフェン上に修飾した,水素センサが提案されている[2].水 素導入によって Pd 修飾したグラフェンに流れる電流が低下することは知られている[2]が,そのメカニ ズムについては詳しく調べられていない.本研究では水素雰囲気下で Pd ナノドットで修飾したグラフ ェンのホール効果測定を行うことで,キャリア移動度と密度に水素が与える影響を調べた.

【実験方法】 図1に示す、単層のCVD グラフェンをチャネルとし、ホールバーを有するバックゲート構造のトランジスタであるPdナノドット・グラフェンセンサを作製した. グラフェン上にPdを電子線蒸着によって1nm 蒸着し、400℃のN2アニールによってナノドット化した. ホール効果測定はドレイン電圧を100 mV、磁場を0.43 Tとして行なった. 二種類のデバイス A, B の評価を行なっており、チャネル長/チャネル幅はデバイス A が 400/20  $\mu$ m、デバイス B が 300/50  $\mu$ m である. 導入ガスは、始めの3分間と6分後から9分後は窒素を、3分後から6分後は1000 ppmの水素を含有する窒素を導入した. いずれも流量は500 mL/min としている. ゲート電圧は0 V と 40 V で測定しており、キャリア密度(N<sub>s</sub>)およびホール移動度( $\mu$ )の変化率を評価した.

【結果および考察】 図 2 に示すとおり、水素導入による電流の低下を観測した. この原因を調べる ために、水素導入前の  $N_{s, \mu H}$ に対して水素導入 3 分後の変化率  $\Delta N_{s}/N_{s}$ 、  $\Delta \mu_{H}/\mu_{H}$ を測定した. 表 1 に示 すデバイス A, B の測定結果から、キャリア密度の変化率は移動度の変化率より大きく、電流の低下は 主に  $N_{s}$  の変化によって起こっていることが分かる. また、デバイス A では  $N_{s}$ が低くなるとキャリア 密度変化率が大きくなっている (-24.5 % → -42.6 %) のに対し、デバイス B では両者はほぼ同じであ った (-41.4 % → -40.8 %). 本研究の素子では正孔伝導で動作しているため、 $N_{s}$ はゲート電圧を大き くすると低下するが、ある程度の大きさで極小点(ディラック点)を取る. このディラック点を与え るゲート電圧がデバイスによって異なるため、変化率もデバイスによって異なっていると考える. ま た有効質量と  $N_{s}$ および  $\mu_{H}$ の関係式[3]から  $\Delta \mu_{H}/\mu_{H}$ は $-\Delta N_{s}/2N_{s}$ と等しいことが期待されるが、本研究の 素子では移動度の変化率は $-\Delta N_{s}/2N_{s}$ より低い. この理由として、Pd に吸着した水素イオンがキャリ アのクーロン散乱源となり、移動度が低下したのではないかと考える.

【結論】 Pd ナノドットで修飾したグラフェンセンサを水素雰囲気中でホール効果測定を行うことで、 水素中での電流変化はキャリア密度の変化による影響が大きいことが明らかになった.また、水素イ オンがクーロン散乱源となることで、移動度が減少していることが示唆された.これらの結果から、 キャリア密度が低くなるゲート電圧下でセンサ動作をさせることで電流変化率が大きくなり、高感度 化が実現できる可能性があるということが示された.

[1] J. Villatoro et al., Sensors and Actuators B, 110, 23-27, 2005.

[2] R.Kumar et al., Sensors and Actuators B, 209, 919-926, 2015.

[3] K.S.Novoselov et al., Nature, 438, 197-200, 2005.



表1:水素導入前後のキャリア密度および移動度の変化率

|     |            | L/W           | $V_{\rm G}$ | $\Delta N_{\rm s}/N_{\rm s}$ | $\Delta \mu_{\rm H}/\mu_{\rm H}$ |
|-----|------------|---------------|-------------|------------------------------|----------------------------------|
| Dev | evice<br>A | 400 / 20 μm - | 0           | -24.5 %                      | <del>-</del> 8~10 %              |
| A   |            |               | 40          | <del>-</del> 42.6 %          | +12~15 %                         |
| Dev | ice        | 300 / 50 μm - | 0           | -41.4 %                      | +3~6 %                           |
| В   |            |               | 40          | -40.8 %                      | +4~7 %                           |

図1:デバイス構造

## © 2016年 応用物理学会