多層酸化グラフェン還元体の電気特性評価

The electrical characterization of the multi-layered reduced graphene oxide

⁰屠 宇迪,中元 宏,宇都宮 徹,一井 崇,杉村 博之(京大院工)

^OYudi Tu, Hiroshi Nakamoto, Toru Utsunomiya, Takashi Ichii, Hiroyuki Sugimura,

(Dept. of Mater. Sci. & Eng., Kyoto Univ.)

E-mail: tu.di.57c@st.kyoto-u.ac.jp

はじめに:これまでに当研究グループでは,酸化グラフェン(graphene oxide, GO)の低コスト・高スルー プットでのパターニングを実現するために真空紫外光(vacuum ultraviolet, VUV)光還元法を確立した. ^[1]インコヒーレントな VUV 光とフォトマスクを組み合わせることで,絶縁体の GO シート面内に,図 la のよ うに高分解能を持つ導電性還元体(reduced graphene oxide, rGO)の周期パターンを描画することができ た.ただし,今までに得られた導電性パターンの電気伝導性は低く,電子デバイスや電気回路への応用 にはより高い電気伝導性が求められる.GO 作製時の液相酸化プロセスにより導入された欠陥により,

VUV-rGO シート面内にはヘテロ構造(図 1b)を有する ことが走査型トンネル顕微鏡(STM)により解明された. $^{[2]}$ rGO 面内ヘテロ構造が示唆する π 電子構造の分断 が低い電気伝導性の由来であると考えられる. 今まで 様々な研究によって, rGO の π 電子構造を全面的に修 復することは困難であることが知られている. 本研究で は, rGO の二次元共役構造の修復ではなく, 多層 rGO による三次元共役伝導構造を築くことで, rGO の電気 伝導性を向上した. 電流計測原子間力顕微鏡(CAFM) をもちいて, 多層 rGO の電気伝導率および局所電気 特性を分析した. ^[3]



Figure 1 (a) CAFM current map of the rGO pattern on SiO₂. (b) STM topographic image of rGO.

実験と結果: Si 基板 (90 nm 酸化膜つき)に担持された GO に、真空チャンバー (<10⁻³ Pa)内 で、VUV 光 (λ =172 nm, 10 mW/cm²)を照射した.還元された試料の上に真空蒸着法により Ti/Au 電極をパターニングした.光学顕微鏡を用いて、シートが重なった多層 rGO 領域を特定後、CAFM により多層 rGO の表面形状評価および面内方向電流分布計測を行った.図 2a に示すように、基板と密着した第一層および第二層の rGO シートが観察された.図 2b に、図 2a に対応した CAFM 電流分布像を示す.単層 rGO 領域における電流は二層領域におけるそれと比べ、明らかに小さかった.その原因は 2 点挙げられる.(1) 第一層の rGO は基板と直接接触していることに加えて、VUV 光化学反応により GO と基板の相互作用がさらに強まった.そのため、第一層 rGO の声やリアは SiO₂基板からの影響を強く受ける.(2) 前述した通り、VUV 光還元でも rGO の面内共役構造を修復できないため、rGO の電気伝導性が低い.それに対して、二層 rGO 領域から検出された

電流は明らかに単層より大き い.その原因は,第二層と第 一層の層間に形成された三次 元の電流パスである.拡大し た電流分布像(図 2c)に示す通 り,rGO の面内へテロ構造は残 存している.そのため,電気伝 導性の向上は,三次元パスによ り各単層 rGO それぞれに存在 する共役ドメインが相互作用す ることに由来すると考えられる.



Figure 2 (a) Topographic image of the rGO on SiO_2 . (b) CAFM current map corresponding to (a). (c) CAFM current map corresponding to the frame in (a).

^{[1] (}a) Y. Tu, T. Ichii, O.P. Khatri, and H. Sugimura, Appl. Phys. Express 7, 75101 (2014). (b) Y. Tu, T. Ichii, T. Utsunomiya, and H. Sugimura, Appl. Phys. Lett. **106**, 133105 (2015).

 ^[2]中元宏,屠宇迪,Om P. Khatri, 一井崇,宇都宮徹,黒川修,杉村博之<第76回>応用物理学会秋季学術講演会,16a-PA2-37.
^[3] J.M. Mativetsky, E. Treossi, E. Orgiu, et al., J. Am. Chem. Soc. 132, 14130 (2010).