グラフェンの電気化学特性と状態密度の相関

Correlation between electrochemical properties and density of states of graphene

青学大理工　°梁井 皓平，渡辺剛志，黄晋二

°Kouhei Yanai, Takeshi Watanabe, and Shinji Koh

College of Science and Engineering, Aoyama Gakuin University

E-mail: kouhei_yni@ee.aoyama.ac.jp

ナノ炭素材料であるグラフェンは高いキャリア移動度を持ち、2 次元シート状物質であることから電極材料などの電気化学応用が期待される。グラフェンの電気化学特性は種々の要因により決定されるが、その一つとして状態密度が挙げられる。金属材料に対して比較的小さな状態密度を持つ炭素材料において、フェルミ準位近傍の状態密度が電気化学特性に与える影響は大きいと考えられる[1]。本研究は CVD (chemical vapor deposition) 法を用いて作製した単層グラフェンの状態密度をバックゲート印加により変化させて電気化学測定を行い、グラフェンの電気化学特性と状態密度との相関関係を実験的に評価することを目的とした。

CVD 法を用いて Cu 上に成膜したグラフェンを SiO_2 膜厚 300 nm の SiO_2/Si 基板へ転写した。ラマン分光測定により転写グラフェンは単層であることを確認した。Au/Ni を導通用電極とし、転写グラフェンをチャネルとしたトランジスタ構造におけるバックゲート変調測定から、転写グラフェンは p 型ドープされていることが分かった。酸化還元プローブに 1 mM の $Ru(NH_3)_6Cl_3$、電解液には 0.1 M の KCl 水溶液を用い、走査速度を 10 mV/s として CV (cyclic voltammetry) 測定を行い、電気化学特性を評価した。図 1 に示すように、CV 測定はバックゲート印加下で行った。

バックゲート電圧 V_{bg} を 5, 10, 15, 20, 25, 30 V 印加して CV 測定を行ったところ、酸化還元電位差 ΔE_p はそれぞれ 122, 127, 129, 132, 134, 139 mV であった。図 2 に示すように ΔE_p の関数として求めた反応速度定数 k^0 は V_{bg} の増加に伴い減少した[2]。グラフェンの状態密度 $\rho(E)$ はエネルギーに対して線形に変化する。正のバックゲート印加により Au/Ni 電極からグラフェンへ電子移動が生じ、p 型ドープされていた転写グラフェンのフェルミ準位 E_f は状態密度が減少する方向に変化したと考えられる。つまり、グラフェンの状態密度が減少したことで電子移動反応速度が低下し、反応速度定数 k^0 が減少したと考えられる。これはグラフェンの電気化学特性と状態密度との相関関係を実験的に評価した結果であると言える。

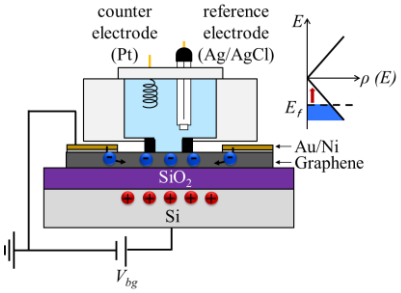

図 1 バックゲート印加下での CV 測定

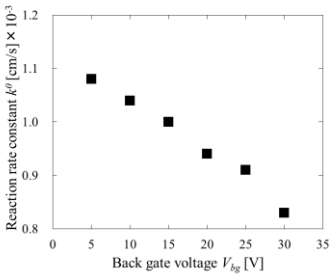

図 2 V_{bg} に対する k^0 の変化

[1] R. L. McCreery, Chem. Rev. **108,** 2646-2687 (2008).

[2] I. Lavagnini, R. Antiochia and F. Mango, Electroanalysis **16,** 505-506 (2004).

© 2017年 応用物理学会