

Pd 修飾した架橋グラフェン水素センサにおける自己加熱の影響

Effect of Self-Heating in Bridged Graphene Hydrogen Sensor
Functionalized with Pd Nanoparticles慶應大理工 電子工¹, 九州大 先端研²○横山 誉宗¹, 下川 慶久¹, 山知 亮介¹, 斎藤 雄太¹, 田中 貴久¹, 高橋 綱己², 内田 建¹
Faculty of Sci. & Tech., Keio Univ.¹, Institute for Materials Chemistry and Eng.², Kyushu University²○T. Yokoyama¹, Y. Shimokawa¹, R. Yamachi¹, Y. Saito¹, T. Tanaka¹, T. Takahashi², and K. Uchida¹

E-mail: yokoyama@ssn.elec.keio.ac.jp, uchidak@elec.keio.ac.jp

【背景および目的】 呼気中に含まれる揮発性有機化合物 (VOC) などの低分子は健康状態の指標となることが知られている。水素は呼気中に数 ppm から数百 ppm 程度含まれており、腸の活動状態を判断可能であると言われている。しかし、一般に水素センサを安定に動作させるためには昇温が必要であり[1], 昇温のためにヒータを組み込むことが低電力化や小型化・集積化の阻害要因となっている。一方、ナノデバイスに電流を流すことによって発生するジュール熱を活用すること (自己加熱) が、センサの低電力化・集積化の観点から注目されている[2]が、グラフェンに適用した例[3]は少なく、利点・欠点は必ずしも明らかではない。今回、自己加熱が効果的に機能するようにグラフェンを架橋化したセンサを作製し、自己加熱と外部加熱 (ヒータによる昇温) との違いについて調べた。

【実験方法】 PDMS 転写を用いて、剥離グラフェンを架橋チャンネルとしたバックゲート型トランジスタを作製した[4]。完成したトランジスタに、電子線蒸着で Pd を 0.3 nm 蒸着した後、400 °C, 30 分間 N₂ 雰囲気下でアニールを行い、Pd をナノドットに凝集化した (図 1)。センサの評価では、はじめの 5 分間は乾燥空気下にセンサを曝し、その後は H₂ 100 ppm (乾燥空気バランス) と乾燥空気の雰囲気中に 3 分ずつ曝した。室温でドレイン電圧 V_D を 0.01 V から 1.1 V まで変化させながら感度評価を行った (方法 A)。また、基板ステージを昇温して (ヒータ加熱) $V_D = 0.01$ V で感度を測定した (方法 B)。

【結果】 方法 A での感度の時間依存性を図 2 に示す。100 ppm 水素曝露開始時を 0 min とし、0 min における抵抗 R_0 の変化率 $(R-R_0)/R_0$ を感度として定義した。 V_D を大きくするに従い、 $V_D = 0.8$ V までは感度や反応速度が上昇していることが確認でき、投入電力による自己加熱の影響であると考えられる。しかし、 V_D を 1.1 V まで増加すると感度が減少した。図 3 には、方法 A と方法 B の感度特性を示した。ただし、自己加熱による温度の見積もりは、方法 A で投入電力ごとの反応速度を求め、方法 B で各反応速度と一致する温度を自己加熱による温度とした。温度依存性では 150 °C において最高感度を示した後に感度が減少していった。温度上昇による水素の脱離が促進されたことで感度が減少したと考えられる。一方で、バイアスによる特性では 150 °C の感度が低く、全測定範囲における最高感度も自己加熱の場合の方が低い。感度が減少した原因としては、ヒータに比べて自己加熱が局所的な加熱になっていることや、電界によるキャリアの加速でクーロン散乱が弱くなっているといった可能性が考えられる。

【結論】 自己加熱を行うことでヒータに相当する温度上昇が可能となるが、局所的な加熱または電界による散乱の減少の理由によってヒータ加熱に比べて感度は減少する傾向がある。

謝辞：本研究は、JST - CREST の支援 (グラント番号 JPMJCR1331) を受けたものである。

[1] Ingemar Lundström, *Sensors and Actuators*, **1**, 403-426, 1981.

[2] G. Meng *et al.*, *ACS Sensors*, **1**, 997-1002, 2016.

[3] Y. Kim *et al.*, *ACS Nano*, **9**, 10453-10460, 2015.

[4] A.Castellanos *et al.*, *2D Materials*, **1**, 1-12, 2014.

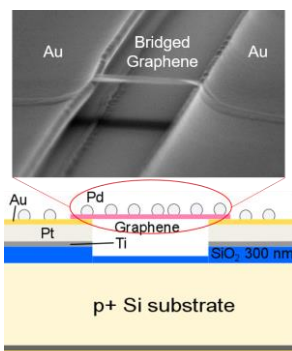


図 1. デバイスの SEM 写真 (上図) と断面の模式図 (下図)。

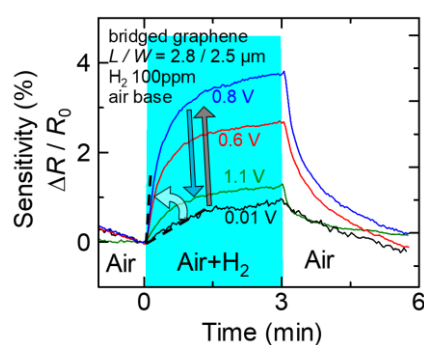


図 2. センサの室温における感度特性。ドレイン電圧を 0.01 V から 1.1 V まで変化させている。

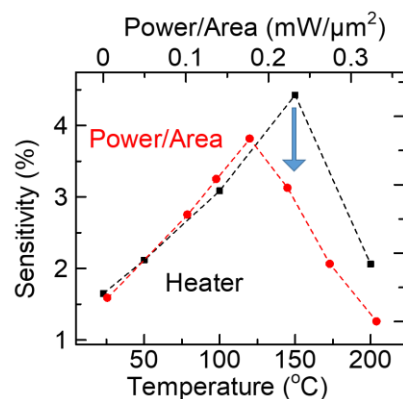


図 3. センサの感度特性。ヒータ加熱 (黒線, 温度依存性) と自己加熱 (赤線, 投入電力依存性)。