

## 繰り返し転写による多層グラフェンの作製

### Fabrication of multi-layer graphene by repeated transfer

株式会社エアメムブレ<sup>1</sup>, <sup>○</sup>川田 和則<sup>1</sup>, 川木俊輔<sup>1</sup>, 中村 孝子<sup>1</sup>, 古賀 義紀<sup>1</sup>, 長谷川 雅考<sup>1</sup>,

AirMembrane Corporation<sup>1</sup>, <sup>°</sup>Kazunori Kawata<sup>1</sup>, Syunsuke Kawaki<sup>1</sup>, Takako Nakamura<sup>1</sup>, Yoshinori

Koga<sup>1</sup>, Masataka Hasegawa<sup>1</sup>

E-mail: [kawata-kazunori@airmembrane.co.jp](mailto:kawata-kazunori@airmembrane.co.jp), <http://www.airmembrane.co.jp>,

【はじめに】グラフェンは非常に高い電子移動度、熱伝導率、機械的強度など、幅広い物性に優れた特性を備えており、原子層の極薄と組み合わせ、さまざまな分野での応用が期待されている。また単層グラフェンはバンドギャップがないため、非常に広い波長範囲の光を吸収することから、光学センサーとしての利用が期待されている。しかしながら工業利用のためにはその感度の改善が必要である<sup>[1]</sup>。最近、多層グラフェンが単層グラフェンよりも高い移動度を示すことができることが報告されている<sup>[2]</sup>。本研究では、単層グラフェンを酸化シリコン基板上に繰り返し転写して複数の層を形成し、グラフェンのドーピング特性を調査した。

【実験】本研究では、プラズマ CVD 法により銅箔上に合成した単層グラフェンを利用した<sup>[3]</sup>。グラフェンの転写は PMMA を利用したウェット法で行った。転写後のグラフェン表面の PMMA 残留物と残留水を除去するため、石英管アニール炉を使用して、5%水素および 95%アルゴン 100Pa 雰囲気中で 330°C1 時間のアニールを行った。これを繰り返すことで、酸化シリコン基板上に最大 8 層の多層グラフェンを形成した。得られたグラフェンについて、ラマン分光法(励起波長 532nm, スポットサイズ 1 $\mu$ m, HORIBA, XploRA)により、グラフェンのドーピング状態を観察した。

【結果および考察】ラマン分光測定により得られた G バンドと 2D バンドのプロットを Fig.1 に示す。黒丸はアニール前、赤丸はアニール後、数字は繰り返し転写回数を示す。赤傾斜軸は機械的ひずみ、黒傾斜軸は電荷ドーピング量を表している<sup>[4]</sup>。ひずみやドーピングの影響を受けない自立単層グラフェンを原点(緑丸)とした。1 回転写およびアニールしたグラフェンは、自立単層グラフェンに比べ大幅にドーピングされており、かつアニールではドーピングを減少させることができなかったことを示唆している。一方、2 層目を積層することにより、プロットは大きく左に移動し、ドーピング量が著しく減少したことを示している。これは、ドーピングの主な原因が基板とグラフェンとの直接接触にあり、PMMA や残留水分の影響は小さいことを示唆する。これらの結果は、1 層目のグラフェンが基板の影響を抑制することにより、2 層目およびそれ以降の層が受ける影響が小さくなることを示唆する。また、グラフェンの転写を繰り返すことにより、プロットは左上に集まり、乱層構造を持つ熱分解黒鉛(青丸)へと近づいた。

【結論】単層グラフェンを繰り返し転写し、グラフェンのドーピング状態を観察した。1 層目のグラフェンは基板の影響を受けてドーピングされるが、2 層目以降への影響は小さかった。グラフェンの転写を繰り返すことで、乱層積層構造グラファイトに近づくことが期待される。

【謝辞】本研究は、防衛装備庁が実施する安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けたものである。

[1] Koppens FHL, et al., Nat Nanotechnol 2014; 9: 780-793.

[2] Uemura K, et al., Jpn J Appl Phys 2018; 57: 030311.

[3] Kato R, et al., Carbon 2016; 96: 1008-1013.

[4] Lee JE, et al., Nat Commun 2012; 3: 1024.

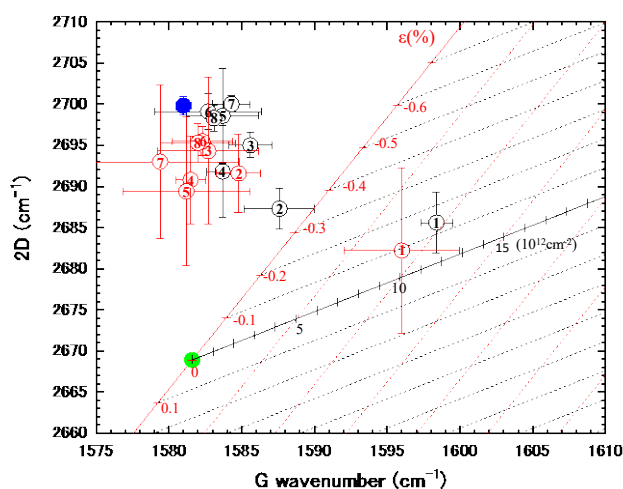


Fig. 1 Correlation between the G band and the 2D band of the Raman spectra of repeated transferred graphene on silicon oxide substrate.