溶液ゲート型グラフェン電界効果トランジスタを用いた遊離塩素測定

Solution-gated graphene field-effect transistors for free chlorine measurements

青学大理工，°菅原 大翔(B4)，渡辺 剛志，黄 晋二

°M. Sugawara, T. Watanabe, and S. Koh

Aoyama Gakuin University

E-mail: masato_sugawara@joker.ee.aoyama.ac.jp

水道水やプールの水の消毒には遊離塩素が使用され、常時適正な濃度に制御するための連続測定が可能な遊離塩素センサが求められている。現在利用されている測定法である比色 DPD 法は連続測定に向かず、また電気化学測定法では頻繁な電極の洗浄を必要とする。グラフェンをチャネルとする電界効果トランジスタ（GFET）は連続測定可能でメンテナンスフリーな遊離塩素センサとして期待され、我々はゲート電極にグラフェンを使用することで高い感度を示すことを報告している[1]。本研究ではグラフェンゲート電極が高い感度を示す機構を解明することを目的とし、ゲート電極/溶液界面の電気二重層容量に焦点を当て、測定感度への影響について評価した。

CVD 法により Cu 基板上にグラフェンを成長させ、PMMA 支持転写法によりガラス基板上に転写した。その後 Au/Cr を蒸着しグラフェンチャネルを作製した。GFET における伝達曲線への電気二重層容量の影響を調べるため、Au ゲート電極の面積を変化させて測定を行った。図 1 に Au ゲート電極の面積を変化させた際の伝達曲線を示す。電気二重層容量は電極面積に比例するため、電気二重層容量が小さい GFET においてディラック点が観測される電圧が大きい結果となった。これは電気二重層容量が小さいと、ゲート電圧 V_{GS} のゲート/溶液界面の電位差 V_{GE} への分配割合が大きくなり、V_{GS} 変化時のチャネル/溶液界面の電位差 V_{CE} 変化が減少し、ディラック点に到達するまでより大きな V_{GS} が必要になるためと考えられる。次に Au ゲート電極とグラフェンゲート電極を用いた GFET において遊離塩素濃度を変えながら伝達曲線を測定すると、遊離塩素濃度の増加に応じてディラック点の観測される電圧が正側にシフトした (図２)。遊離塩素濃度が増加するとディラック点がシフトするのは Nernst 平衡に基づきゲートの電位が正側にシフトするためである。また、Au ゲート電極に比べてグラフェンゲート電極においてより大きなシフトが観測された。EIS 法により電気二重層容量を測定した結果、グラフェン電極では 3.1 μF/cm^2 と求まり、Au の 130 μF/cm^2 の約 40 倍小さい値であった。グラフェンゲートを用いた GFET が遊離塩素濃度変化に対してディラック点シフト量が大きいのは、電気二重層容量の低さに起因すると考えらえる。

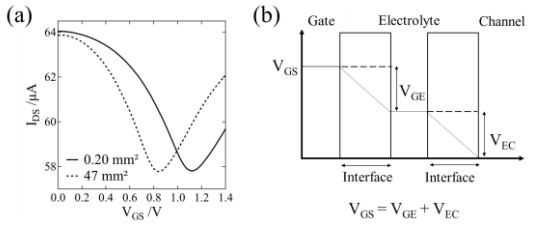

Fig.1: (a) Transfer curves using GFET with Au gate electrodes of different areas and (b) schematic diagram of voltage distribution in GFET.

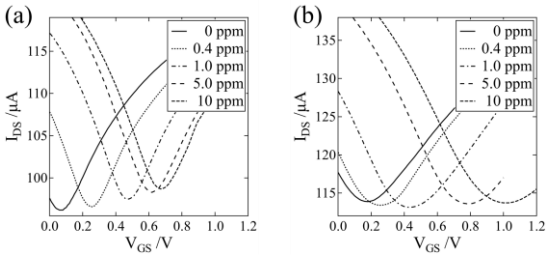

Fig.2: Transfer curves for 0-10 ppm free chlorine in 10 mM PBS (pH 7.5) using GFET with (a) Au and (b) graphene gate electrodes.

[1] 中條 康太、第 80 回応用物理学会秋季学術講演会、21a-PB1-44 (2019)