

グラフェンの可逆的酸化

ーグラフェンをベースとしたエレクトロニクスに向けて

元東京大学物性研究所博士研究員（現在、群馬大学助教）のMd. Zakir Hossain 博士を中心としたアメリカと日本の研究者による国際共同研究により、グラフェンを可逆的に酸化する新しい方法が開発されました（Nature Chem.の4月号に掲載済）。これは、グラフェンをベースとした高性能デバイスの物性探索への一歩となるでしょう。

<研究の背景と経緯>

グラフェンは、炭素原子1層のハニカム格子であり、物理的・電子的に新様な特性を示す。このため次世代エレクトロニクスへの応用が期待されています。多くの研究者は、高速で薄いフレキシブルな電子デバイスの観点から、シリコンの代替材料として注目しています。しかし、グラフェンをベースとしたエレクトロニクス実現のためには、グラフェンの電子的性質を制御することが解決すべき課題となっています。シリコンのような半導体とは異なり、純粋なグラフェンはバンドギャップがゼロであるので、電子的に電流の流れをオフにすることが難しいという問題がありました。それゆえ、グラフェンそのままではICを構成するデジタル回路には向いていないと考えられていました。

グラフェンの電子物性を制御しより機能化するために、グラフェンの化学修飾が研究されてきています。最も広く用いられている方法は1940年代に開発されたHummers法で、グラフェンを酸化することができます。しかし、反応性の強い化学薬品を用いるため、グラフェン酸化物が化学的に不均一で不可逆的であるという問題が生じていました。ノースウェスタン大学、群馬大学、東京大学物性研究所、理化学研究所を含む国際共同研究チームは、Hummers法の問題点を克服するグラフェンの酸化法を開発に成功しました。

<研究の結果と考察>

六角格子を形成している炭素原子の化学的性質のために、グラフェン表面で酸化反応を実現することは困難です。典型的な方法としてHummers法では強酸を用いますが、この方法では六角形ハニカム格子を破壊し、材料の制御性に乏しいという問題があります。我々の方法は、超高真空チャンバー内に酸素ガス(O₂)を導入し、白熱させたタングステン・フィラメント(~1500℃)を用いて、酸素分子から原子状酸素を発生させました。高い反応性を有する原子状酸素はグラフェン格子に均一に入射し反応します。

超高真空中で、この方法で酸化されたグラフェン酸化物は化学的に均一で熱的に可逆的であるので、電子物性を制御することつまり高性能エレクトロニクスを探索することに適しています。酸化されたグラフェンの化学的均一性と熱的可逆性は、走査トンネル顕微鏡(STM)、X線光電子分光(XPS)などの表面解析手段で評価されました。グラフェンはSiC(001)表面にエピタキシャル成長させたものです。図1に、反応前のグラフェン表面と原子状酸素で酸化後のグラフェン表面

のSTM像を示します。図2は、原子状酸素と反応前後および加熱後に測定されたグラフェンのC1s-XPSスペクトルを示します（KEK PF BL13Aにおける高分解能XPS測定）。

<参考図>

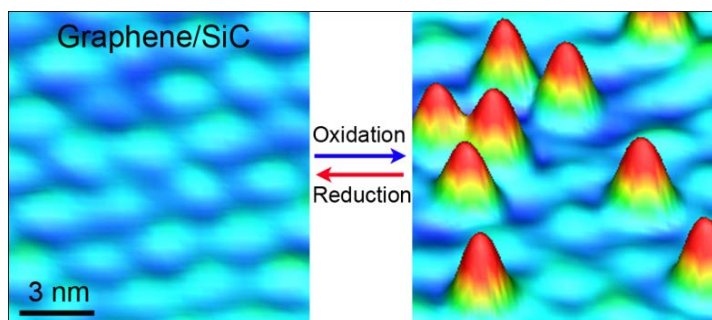


図1. SiC単結晶表面に作製したグラフェンのSTM像。酸化前（左）と原子状酸素による酸化後（右）。右図で観察される突起は、グラフェンに反応した酸素を示す。サンプルバイアス = +2.4 V, トンネル電流 = 50 pAの条件で測定。

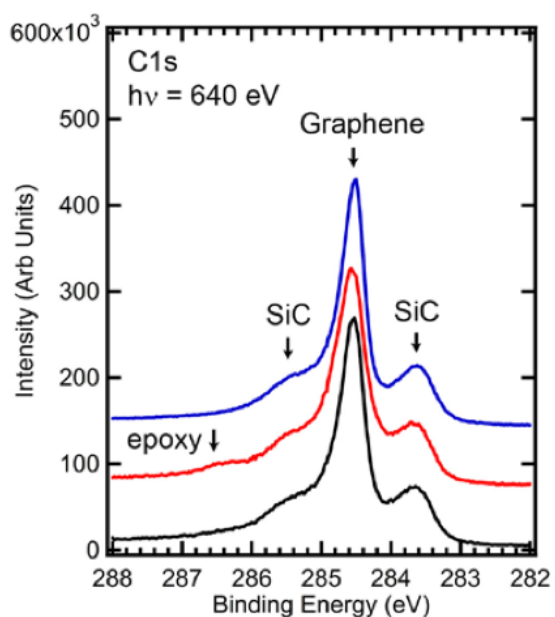


図2 KEK-PFのBL13Aで測定されたC1s光電子分光スペクトル (2009S2-007)。SiC単結晶表面に作製したエピタキシャル・グラフェン（黒）、原子状酸素によるエポキシ化（赤）、260°Cの加熱による清浄グラフェンの再生（青）。ピーク位置から酸化物がエポキシ種であることが同定された。

<掲載論文情報>

Md. Zakir Hossain, James E. Johns, Kirk H. Bevan, Hunter J. Karmel, Yu Teng Liang, Shinya Yoshimoto, Kozo Mukai, Tatanori Koitaya, Jun Yoshinobu, Maki Kawai, Amanda M. Lear, Larry L. Kesmodel, Steven L. Tait, and Mark C. Hersam, "Chemically homogeneous and thermally reversible oxidation of epitaxial graphene" *Nature Chem.* 4, 305-309, **2012**.

<問い合わせ先>

東京大学物性研究所 教授 吉信 淳
TEL: 04-7136-3320 FAX: 04-7136-3473
E-mail: yoshinobu@issp.u-tokyo.ac.jp

群馬大学先端科学研究指導者育成ユニット 助教 Md. Zakir Hossain
TEL: 0277-30-1625
E-mail: zakir@gunma-u.ac.jp
http://asrldu.dept.med.gunma-u.ac.jp/hossain/Md.Zakir_Hossain.html