

最先端・次世代研究開発支援プログラム
事後評価書

研究課題名	グラフェンの成長制御と加工プロセスを通じたカーボンエレクトロニクスへの展開
研究機関・部局・職名	九州大学・先導物質化学研究所・准教授
氏名	吾郷 浩樹

【研究目的】

グラフェンは、2004年に黒鉛から初めて剥離されて以降、究極的な原子膜として基礎的に興味深い物性を示すことに加え、幅広い応用の可能性が期待されていることから、世界的に非常に大きな注目を集めている。グラフェンは、炭素からなる一層の原子膜であるため、機械的に柔軟で、光透過率、電気伝導度、そして熱伝導度が高いという利点がある。さらに、二次元に広く発達した π 共役により、極めて高い移動度を示すことも分かっている。グラフェンの移動度は、シリコンやゲルマニウムなどの一般的な半導体材料よりも高く、架橋したグラフェンでは $200,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ と物質中で最高の移動度が得られており、大きな将来性を有している。このような特長から、グラフェンはフレキシブルな論理回路、高周波トランジスタ、化学・バイオセンサー、透明電極、タッチパネルなど次世代のエレクトロニクスを担う材料として、活発に研究が行われている。本研究では、①グラフェンの成長法の研究、②新規加工法やナノリボン合成法の検討、③物性・デバイス特性の評価の3つを主な目的として研究を行った。

① グラフェンの成長法の研究

グラフェンの応用を促進するためには、欠陥が少なく結晶性が高いグラフェンの合成法の確立が不可欠である。グラフェンは機械的剥離法、SiC単結晶の熱分解法、酸化グラフェンの還元などいくつかの方法で得ることができるが、大面積にグラフェンを合成する方法として、化学蒸着法（CVD法）が近年大きな期待を集めている。このCVD法で銅ホイルを触媒として用いることにより、単層グラフェンを大面積に合成することが可能となってきた。しかし、銅ホイル上に合成したグラフェンは、異なる向きをもつ微小なドメインからなる多結晶体であるため、ドメイン間に存在するバンドラー（結晶粒界）がキャリア移動度の低下やシート抵抗の増大などに結び付き、期待されるほどの物性が得られていなかった。そこで、本研究では、エピタキシャルに堆積させた高結晶性の金属薄膜を触媒として利用することにより、六員環の方位が統一され、ドメインサイズが大きなグラフェンを成長させることを目指した。

② 新規加工法やナノリボン合成法の検討

優れたキャリア移動度を示すグラフェンにおいて、トランジスタなどの半導体材料としての応用は非常に興味深く、グリーン・イノベーションに向けた重要なテーマである。キャリア移動度の向上によりデバイスの動作速度が向上し、かつデバイスの発

熱とオフ電流を大きく抑制することで低消費電力の電子デバイスへと発展することが期待されるからである。また、化学修飾によるバイオセンサーなど新たな分野への広がりも期待できる。このようなデバイス応用において大きな課題として認識されているのが、グラフェンのバンドギャップ制御である。通常の単層グラフェンはバンドギャップをもたないことが、半導体としての応用を制限している。そこで、この課題を解決するために、グラフェンナノリボンと呼ばれる細長い一次元構造を有するグラフェンの創製を進めることを第二の目的とした。このグラフェンナノリボンの合成のため、金属触媒上での直接的なナノリボンの CVD 成長（ボトムアップ）、ならびに高品質グラフェンのナノリボンへの加工法（トップダウン）の検討を行い、グラフェンナノリボンの新規作製法の開発を行った。

③ 物性・デバイス特性の評価

グラフェンの特性を最大限引き出すためには、その構造やキャリア輸送の特性の評価が重要となる。そこで、グラフェンの CVD 成長とともに、CVD グラフェンのドメイン構造に関して基礎的な理解を進めるとともに、電界効果型トランジスタの作製・評価を行い、構造と物性に関する研究を推進し、カーボンエレクトロニクスの可能性を拓げていくことを第三の目的とした。

以上のように、グラフェンの成長を基軸として、合成・加工法の開発と様々なキャラクタリゼーションを通じて、カーボンに基づく新たなグリーン・イノベーションにつながる新機能の創出へと展開し、将来的な新産業に結びつけていくことを目標とした。

【総合評価】

○	特に優れた成果が得られている
	優れた成果が得られている
	一定の成果が得られている
	十分な成果が得られていない

【所見】

① 総合所見

合成、加工技術開発に関して当初の計画以上の順調な進捗が見られる。特に、合成に関しては非常に高いレベルでの成果を出している。とりわけ最終年度に明らかにされた大きさが 3 mm 程度の単結晶グラフェン単原子膜合成に成功したことは、特筆すべきことである。本申請者グループの実力を良く物語る研究成果である。グラフェンの研究は合成に留まらず、物性計測、デバイス計測を通じた新規デバイス開発が必須な分野であるため、自身の研究の幅を広げるとともに、協同研究に積極的に関与し、高品質の材料を用いてこの分野におけるリーダーの役割を大いに期待する。

研究課題の成果の発表状況においては、特許、査読付き専門誌、招待講演全てにおいて十分なものである。

② 目的の達成状況

・所期の目的が

(全て達成された ・ 一部達成された ・ 達成されなかった)

本研究課題の目的は1) 高品質グラフェンの合成、2) グラフェンナノ加工技術の開発、3) ナノカーボンでバイスの物性測定とデバイス応用の3点である。この3つの目標に対して、概ね順調に達成していると見られる。とりわけ、大面積高品質グラファイトの合成に関しては、完全に当初目標を達成していると言える。他方、2)の加工技術開発に関しては、金属微粒子による異方的エッチング方法の提示と、その手法の大面積グラフェンへの適用により、高密度で配向が制御されたグラフェンリボン構造の加工に成功しており、当初目的の達成に向けて順調に進捗した。3)のデバイス特性測定と応用に関しては、物性測定に関してはキャリア移動度の測定等を合成された試料に対して適宜実施しており、目標の達成はなされたと考える。

③ 研究の成果

・これまでの研究成果により判明した事実や開発した技術等に先進性・優位性が

(ある ・ ない)

・ブレークスルーと呼べるような特筆すべき研究成果が

(創出された ・ 創出されなかった)

・当初の目的の他に得られた成果が (ある ・ ない)

エピタキシャル銅薄膜を触媒とする CVD に技術のファインチューニングにより達成された、大面積、単一ドメインのグラフェン合成は、その生成物の高品質性、さらには合成後の加工性の点で他のグラフェン合成法と比較して非常に高い優位性を有している。

Co 薄膜に形成されたステップエッジを用いたボトムアップからのグラフェンリボン合成はトップダウンからのグラフェンリボン合成と併せて非常にユニークなものであり、グラフェンリボンを用いたデバイス応用への糸口を与え、ブレークスルーと呼べるような成果である。

当初の目的の他に得られた成果はない。

④ 研究成果の効果

・研究成果は、関連する研究分野への波及効果が

(見込まれる ・ 見込まれない)

・社会的・経済的な課題の解決への波及効果が

(見込まれる ・ 見込まれない)

本研究課題において実施されている、大面積、単一ドメイン構造を有する高品質なグラフェンの合成は、グラフェンを用いた全てのサイエンス、テクノロジーの基盤となる物であり、その波及効果として、将来的に社会的・経済的な課題の解決に向けて、グラフェンをベースとしたナノテクノロジーの更なる発展を誘起することが期待される。

本研究成果が実用化技術へと発展すれば、カーボンエレクトロニクスが現実的になり、省エネルギーで高速動作が可能な回路が実現される。

⑤ 研究実施マネジメントの状況

・適切なマネジメントが (行われた ・ 行われなかった)

研究の着想が優れていたことがあって、3つの課題（成長法、プロセッシング技術、物性・デバイス評価）を平行して研究するスタイルが効を奏し、平成24年度に研究の目的をほぼ達成している。勿論、多いときには博士研究員3名、テクニカルスタッフ2名を活用して集中的に研究を進めたこと、また、研究の進展に合わせて、物性計測技術やデバイス作製・計測技術など申請者の研究室に不足しているところを他研究機関の研究者と共同研究体制をとって進めたことが、世界に先行する研究成果を上げ得た大きな要因と判断する。つまり、研究実施体制を旨く整え、適切なマネジメントが行われてきた。

助成金は、研究に必要な合成装置類および計測装置類の購入、また上記のように博士研究員、テクニカルスタッフの雇用に大部分が使われ、有効に利活用された。

指摘事項は、1) 機能・物性測定解析グループと綿密な連携が必要、2) 合成のプロセスと制御技術の確立が重要、3) 本プログラムとの整合性について具体的な提示が望まれる、であったが、1) については研究の進展に合わせて適切な連携を取り、2) については、申請者の優れた着想があって成功裏に成果を出し、3) については、将来の省エネルギーデバイスへの寄与を示して、的確に対応した。