物理所石墨烯晶界输运性质研究取得系列进展

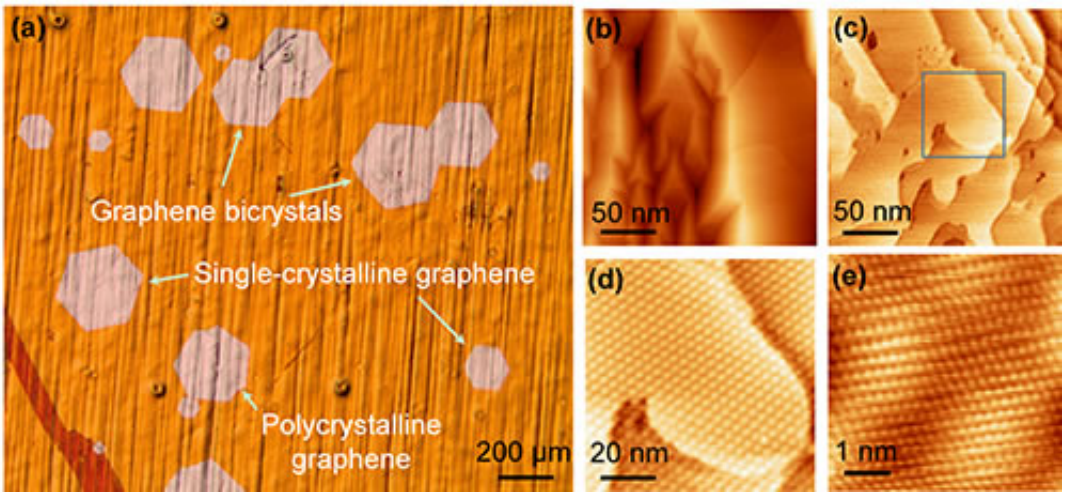

图1. （a）通过CVD方法生长在铜箔上石墨烯的光学显微照片。（b）-（c）铜箔上石墨烯的STM形貌图。（d）图（c）中蓝色方框区域所对应的放大STM形貌图，能够看到连续的摩尔斑图。（e）图（d）中摩尔斑图处的原子分辨STM图像。

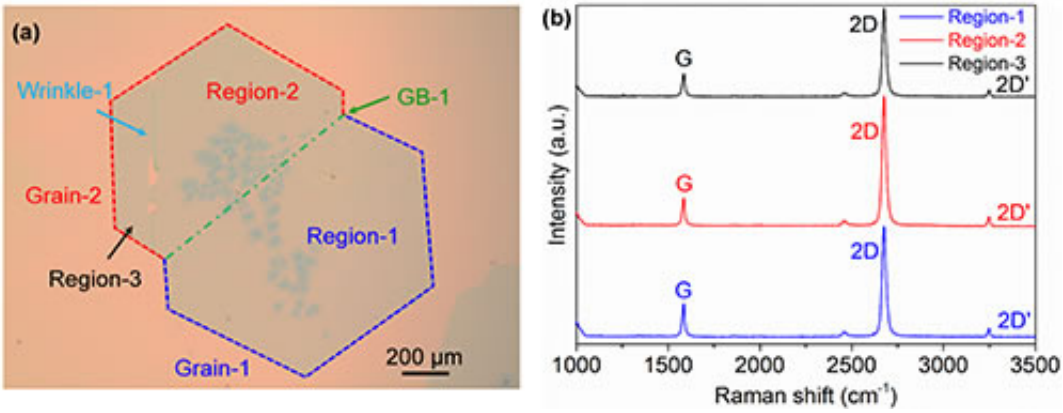

图2. （a）转移到SiO2/Si衬底上双晶石墨烯的光学显微照片。（b）图（a）中三个区域所对应的拉曼光谱。

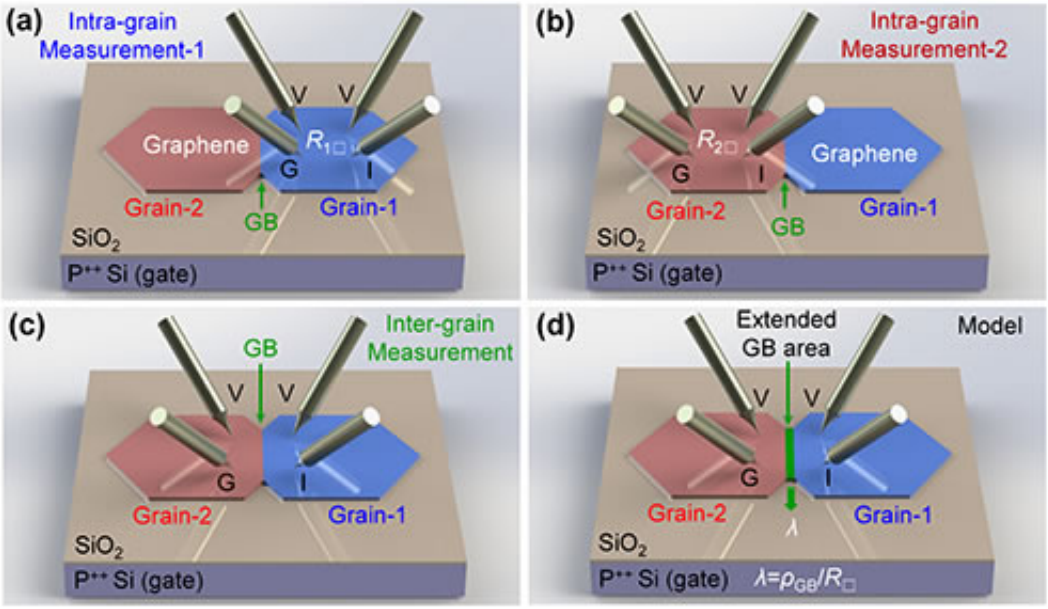

图3. （a）-（b）利用四探针法测量双晶石墨烯两侧晶畴输运性质的示意图。（c）跨石墨烯晶界的四探针法输运测试示意图。（d）获取石墨烯晶界电阻率以及载流子迁移率的模型示意图。

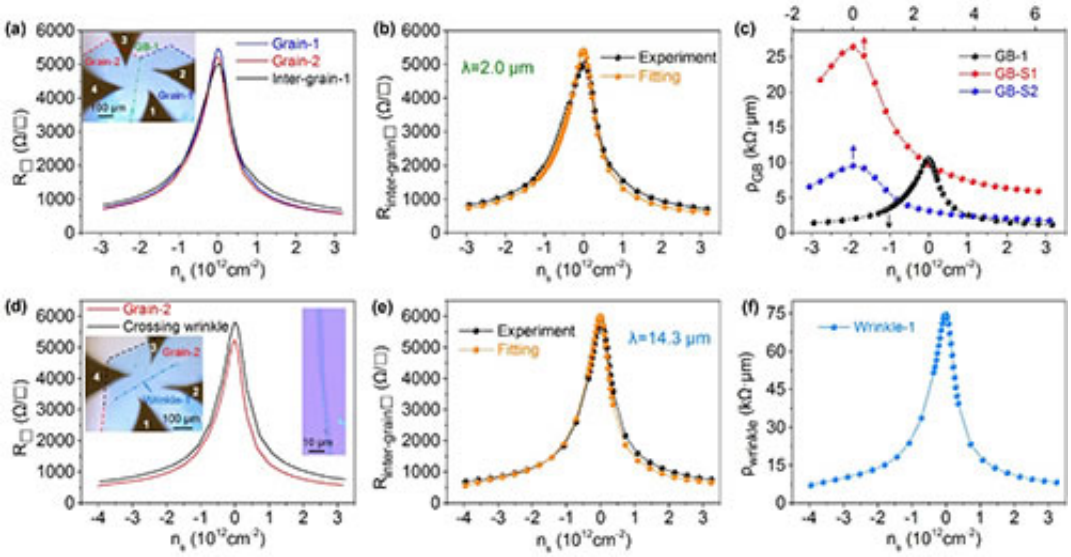

图4. （a）双晶石墨烯两侧晶畴内部与跨晶界（GB-1）的二维电阻随载流子浓度变化曲线。插图为利用四探针法跨石墨烯晶界测试的光学显微照片。（b）跨晶界实验数据与根据模型所拟合数据的对比曲线。（c）三组不同石墨烯晶界的电阻率随载流子浓度的变化曲线。（d）跨石墨烯褶皱（wrinkle-1）与一测石墨烯晶畴的输运测试结果。左侧插图为跨石墨烯褶皱输运测试的光学显微照片。右侧插图为该石墨烯褶皱放大的光学显微照片。（e）跨褶皱输运测试数据与根据模型所拟合数据的对比曲线。（f）石墨烯褶皱的电阻率随载流子浓度的变化曲线。

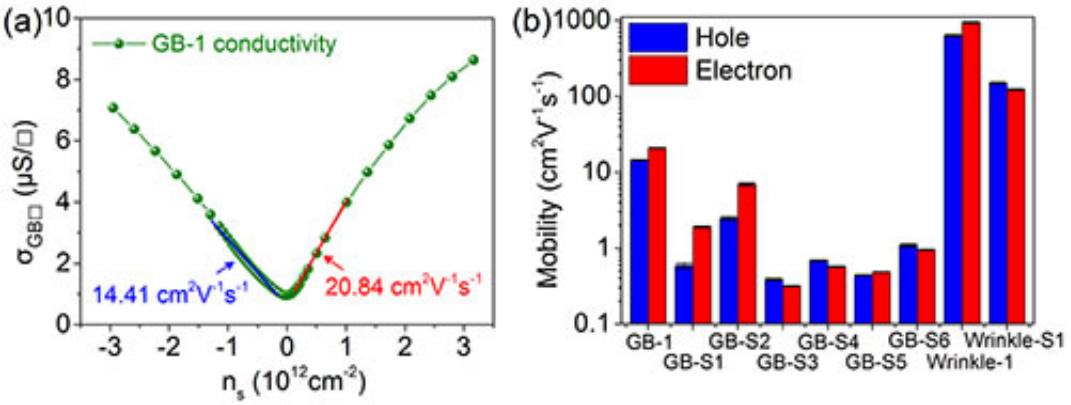

图5. （a）石墨烯晶界GB-S1处不同载流子浓度下的二维电导。通过对该曲线两侧线性区域的拟合可以获得空穴和电子的载流子迁移率。（b）七组石墨烯晶界与两组石墨烯褶皱处的载流子迁移率。

以石墨烯为代表的二维原子晶体材料的准粒子（如激子、狄拉克费米子等）由于量子限域效应，显示出室温量子霍尔效应等新奇量子特性，也促进了相关新型电子、光电子器件的应用等相关研究。获得本征的电学输运特性、光电特性等物理性质乃至最终的器件应用的关键在于大面积、高质量样品的生长。近年来，中国科学院物理研究所/北京凝聚态物理国家实验室（筹）高鸿钧院士研究组在二维原子晶体材料的可控制备、物性调控及原型器件特性研究等方面取得了一系列研究成果。早在2007年，他们就首次通过外延的方法在金属钌单晶表面获得了厘米量级大小、几乎无缺陷的大面积高质量单层石墨烯。2012年又成功将半导体硅材料插入石墨烯与金属基底之间，形成石墨烯/硅/金属结构，实现了石墨烯在电子集成器件应用上与硅基技术的结合。2015年，他们提出并证实了“硅原子诱导产生缺陷-原子穿过-缺陷自修复”的插层机制，揭示了硅原子、石墨烯、基底三者之间的协同作用【J. Am. Chem. Soc. 137,7099 (2015)】。同时，他们还在室温下实现了Ru(0001)上外延石墨烯的低势垒硼替换掺杂，为实现石墨烯的空穴掺杂提供了有价值的参考【Nano Lett. 15, 6464 (2015)】。这一系列结果对于石墨烯电子学具有重要意义。

目前国际上普遍采用的另一种石墨烯的合成方法是利用化学气相沉积（CVD）的办法在铜箔上合成毫米甚至厘米量级的石墨烯，然而，利用 CVD 方法所合成的石墨烯通常具有多晶特性。这些多晶石墨烯单畴之间的晶界在微观结构上由一些扭曲的六元环以及非六元环（五元环、七元环和八元环）组成，石墨烯的载流子在通过这些缺陷时会引入

额外的散射，从而造成电导率、迁移率的降低，制约了石墨烯在电子电路领域的应用。一般来说，人们通常采用两种办法来表征石墨烯晶界的输运特性，一种是利用微加工手段制作霍尔电极，另一种是基于扫描探针显微镜的方法。前者会对石墨烯表面引入污染，进而影响石墨烯的本征性质。后者则需要耗费大量时间对石墨烯晶界进行定位，例如扫描隧道电位仪（STP）和开尔文原子力显微镜（KPFM）等。因此如何快速无损地实现对石墨烯晶畴和晶界本征电学输运性质的测量，具有极大的挑战性。

为有效地开展低维结构的本征电输运特性研究，该研究组全面彻底地改造了一台商业化四探针扫描隧道显微镜（STM）系统，显著改善了该系统信噪比、机械和温度稳定性、成像分辨率以及降温等性能【Rev. Sci. Instrum., 88 (6) 063704, 2017】。利用彻底改造后的四探针系统，他们对转移到SiO2/Si衬底上的单晶石墨烯进行输运测试，首次报道了利用van der Pauw方法来获得石墨烯单晶载流子迁移率【Chin. Phys. B, 26 (6) 066801, 2017】。最近，该研究组博士生马瑞松、副研究员鲍丽宏等利用上述四探针STM对石墨烯晶界电阻率与迁移率等输运特性展开了系统深入的研究。

研究发现，通过CVD方法在铜箔上所生长的石墨烯尺寸可达毫米量级，其中包括具有六边外形的单晶石墨烯、双晶石墨烯以及多晶石墨烯。大量STM的表征证实了石墨烯单晶畴区的连续性与高质量。该研究工作主要集中在转移到SiO2/Si衬底上的双晶石墨烯，从而保证所研究石墨烯晶界的唯一性。拉曼测量表明，该双晶石墨烯的单层特性以及低缺陷性质。研究人员利用四探针法获得了石墨烯晶界电阻率。首先，他们利用栅极与探针之间的电容作为进针反馈信号，将四个STM探针作为点接触电极，无损地测量双晶石墨烯两侧晶畴以及跨晶界的二维电阻。为了提取石墨烯晶界的电阻率，他们建立了晶界扩展模型，即将石墨烯晶界等同于具有一定宽度λ的单晶畴区，得到了双晶石墨烯两侧晶畴内部与跨晶界（GB-1）的二维电阻随载流子浓度变化曲线。根据该扩展模型，他们能够很好地拟合出不同载流子浓度下石墨烯晶界处的电阻率。另外，他们还将该方法应用于石墨烯褶皱的输运测试，获得了褶皱处的电阻率。进一步根据不同载流子浓度下的电阻率，利用Drude输运模型，可以提取石墨烯晶界或褶皱处的载流子迁移率。结果表明，石墨烯晶界处迁移率要比本征石墨烯低三到四个数量级，而褶皱处的迁移率约为本征石墨烯处的1/6至1/5。

本工作拓展了人们对石墨烯晶界/褶皱处本征电子输运特性的认识，展示了四探针扫描隧道显微镜系统在研究缺陷等微观结构特性对材料输运性质的影响方面的独特优势，也为其他二维材料晶界的输运性质表征提供了可行的方法。

以上结果近期在线发表在Nano Letters（DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b01624）上。在该研究中，物理所团队与中科院化学研究所刘云圻研究组和美国Vanderbilt大学教授Sokrates T. Pantelides等开展了合作。该工作得到了科技部、国家自然科学基金委以及中科院的资助。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/114057.html