

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：82108

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20393

研究課題名(和文) Development of Flexible Graphene-nanoribbon-base Biochemical Sensors with Highly Strain-controllable Selectivity and Reliability

研究課題名(英文) Development of Flexible Graphene-nanoribbon-base Biochemical Sensors with Highly Strain-controllable Selectivity and Reliability

研究代表者

張 秦強 (ZHANG, Qinqiang)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・NIMSポスドク研究員

研究者番号：90911082

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：高い安全性と信頼性のある人間社会の持続可能な発展を確保するためには、日常環境を常に監視できる電子デバイスの開発が重要である。この研究では、第一原理計算により、二次元(2D)センシング材料と有害ガス分子間のひずみ誘起電荷移動の変化が調査され、感知原理が解明された。さらに、直接バンドギャップを持つ新しい2D材料も研究開発された。蒸気輸送法を用いて数十マイクロメートルの大きさの高品質単結晶を合成することに成功した。単結晶の形態とその異方性を持つ電子-フォノン相互作用が観察された。新しい2D材料は、トランジスタ、生化学センサー、光検出器など、次世代電子デバイスの開発において大きな潜在性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

二次元層状半導体は最も魅力的な材料の一つとして、高性能、高信頼性、高効率な次世代バイオケミカルセンサーの開発に大きな潜在能力を持っている。次世代バイオケミカルセンサーの開発を加速するために、センシング原理の解明と新しい二次元材料の開発に関する研究は、基盤研究として重要であり、将来の研究者やエンジニアに役立ちがある。本研究開発したフレキシブルバイオケミカルセンサーが人間の皮膚につけられて、日常環境の常時監視が可能である。

研究成果の概要(英文)：To assure the safety and reliability of the sustainable development of human society, it is important to develop miscellaneous electronic and optoelectronic applications for monitoring our daily environments timely. In this proposal, the strain-induced change of charge transfer between the two-dimensional (2D) sensing material and the target toxic gas molecules were investigated by using first-principles calculations and the sensing mechanism was clarified. In addition, a new type of 2D material with a direct bandgap was investigated. High quality single-crystal in size of several tens of micrometers was successfully synthesized by using a physical vapor transport method. The morphology of single-crystal and its anisotropic behaviors of electron-phonon interaction were observed. The new 2D material shows major potential for development of next-generation electronic and optoelectronic applications, such as transistors, biochemical sensors, photodetectors, and light-emitters.

研究分野：Mechanical engineering

キーワード：two-dimensional material semiconductor DFT calculation vapor transport method

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

持続可能な社会の実現に向けて、高い安全性と信頼性を備えた社会の実装を加速するためには、私たちの日常生活の環境を適時にモニタリングすることが重要である。そのためには、揮発性有機化合物のモニタリングや遠隔医療現場でのテストなどには、高性能で低コストのさまざまな生化学センサーの開発が不可欠である。最近、申請者のグループは、第一原理計算を用いて、グラフェン上の一酸化炭素分子の吸着エネルギーのひずみ誘起変化を発見した。さらに、製造されたテストサンプルでは、異なるガス環境下でひずみによる電気信号の変化が観察された。しかし、対象ガスの吸着挙動に対するひずみ誘起変化のメカニズムはまだ明らかにされていない。

2. 研究の目的

この研究の目的は、異なるガス環境条件 (CO 、 H_2O 、 NH_3) における吸着挙動のひずみ誘起変化のセンシングメカニズムを明らかにするための理論モデルを開発し、高感度で選択的かつ信頼性の高いグラフェンベースの生化学センサーを開発することがある。このモデルは、異なる二次元 (2D) 材料を使用して開発された他のシステムにも適用可能である。さらに、申請者は、生化学センサーやトランジスタ、光エミッターの開発に向けて、ゲルマニウムモノスルフィド (GeS) という別の 2D 材料の研究も行う予定がある。

3. 研究の方法

第一原理計算は、Vienna ab-initio simulation package コードを利用して、密度汎関数理論 (DFT) に基づいて行われた。電子間の相互作用は、プロジェクター補完波疑似ポテンシャルを通じて評価された。交換相関エネルギーは、一般化された勾配近似の下で Perdew-Burke-Ernzerhof 関数を使用して計算された。原子構造は、エネルギー収束の許容範囲が 10^{-5} eV であることを条件に、完全にリラックスされた。全体のシステム内の各原子の電荷は、Bader 電荷解析を利用して計算された。電子輸送挙動の軌道相互作用を可視化するために、電荷密度の差が適用された。また、GeS の合成は簡便な化学気相成長装置を使用して行われた。合成された GeS の形態は走査型電子顕微鏡を使用して確認された。結晶性の GeS は、ラマン顕微鏡およびエネルギー分散 X 線検出器を使用して特徴付けられた。

4. 研究成果

図 1 は、グラフェンと対象分子 (CO 、 NH_3 、 H_2O) との間のひずみ誘起吸着エネルギーの変化を示している。調査された 3 つの分子は、引張ひずみ下での吸着エネルギーの変化率が異なる。標準の DFT 計算は 0 K の温度で制限されていたため、室温 (26 meV) での熱エネルギーの効果はここでは考慮されていない。したがって、特定のひずみ範囲と温度を実験に適用することで、3 つの異なる対象分子を識別することができる。また、複雑なクリーニング処理なしに、ひずみを加えることで吸着した分子を脱離させることができる。グラフェンと対象分子間の電荷移動を調査するために、ワークファンクションを考慮したシミュレーションの概要とモデルも説明されている。図 2 に示すように、グラフェンベースの柔軟な生化学センサーが開発された。現在、研究対象のチャネルは柔軟基板上のナノスケール幅リボンにうまくパターン化されていないが、水分子の検出のためのグラフェンベースのセンサーの感度と回復速度は依然として大幅に向上している。これは、室温での引張ひずみ下でグラフェンと水分子間の絶対吸着エネルギーが増加することに主に起因している。感度を向上させるためにバンドギャップを開くためにグラフェンをナノスケール幅リボンにパターン化することはかなり困難が、ここでは別の 2D 材料である GeS が調査された。層状の半導体である GeS は、厚さに応じて約 1.6~1.9 eV の直接バンドギャップを持っている。図 3 は、合成された単結晶の GeS の走査型電子顕微鏡 (SEM) 画像、ラマンス

ペクトル、および透過電子顕微鏡 (TEM) 画像を示している。GeS は直交晶系であり、異方性の構造を示している。これは、次世代の電子機器、光エレクトロニクス、センサーの開発において大きなポテンシャルを示している。(本報告書は英語から ChatGPT を使用して翻訳された。)

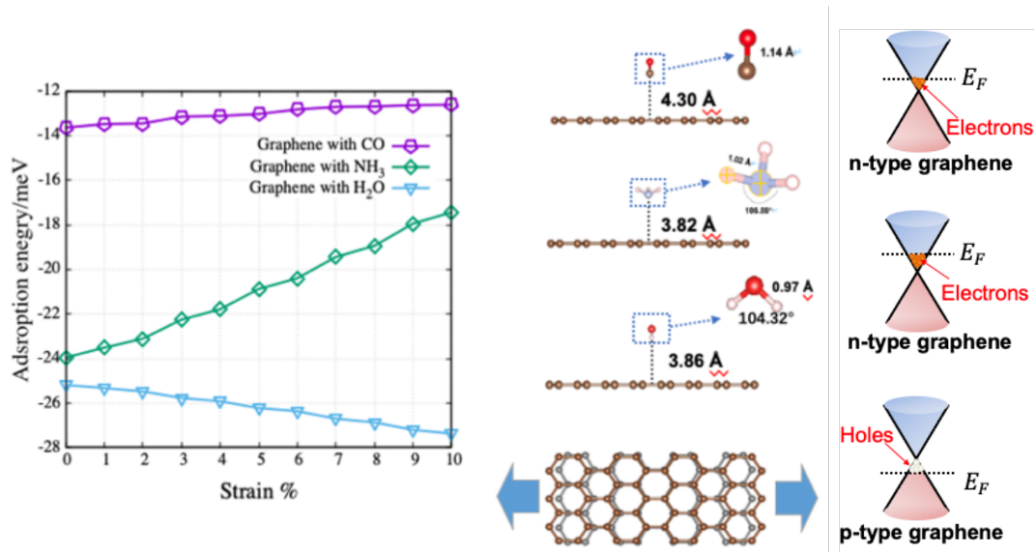


図 1. ひずみ誘起による吸着エネルギーの変化とシミュレーションの模式図。

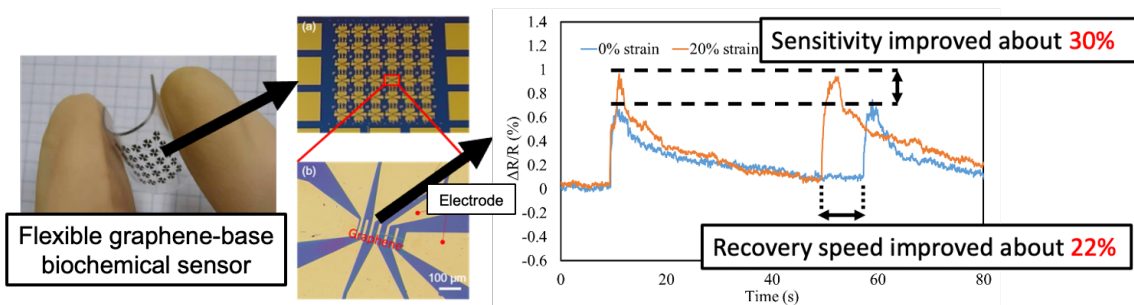


図 2. 開発された柔軟なグラフェンベースの生化学センサーの写真と評価結果。

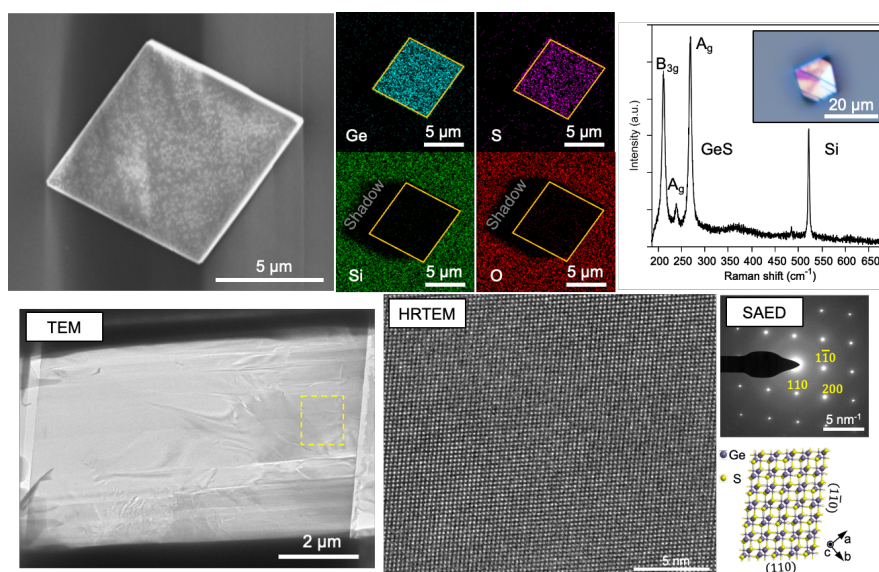


図 3. 単結晶 GeS の走査型電子顕微鏡 (SEM) 画像、ラマンスペクトル、および透過電子顕微鏡 (TEM) 画像。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yin Meng, Qiao Xiangyu, Zhang Qinqiang, Suzuki Ken, Wang Lei	4. 巻 86717
2. 論文標題 Strain-Induced Change of Adsorption Behaviour of Gas Molecules on Graphene Analyzed by Density Functional Method	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ASME 2022 International Mechanical Engineering Congress and Exposition	6. 最初と最後の頁 V009T13A005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1115/IMECE2022-94892	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhang Qinqiang, Matsumura Ryo, Fukata Naoki	4. 巻 6
2. 論文標題 Synthesis of Large-Area GeS Thin Films with the Assistance of Pre-deposited Amorphous Nanostructured GeS Films: Implications for Electronic and Optoelectronic Applications	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 6920 ~ 6928
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsnm.3c00669	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Abdelbar Mostafa F., Zhang Qinqiang, Abdelhameed Mohammed, El-Amir Ahmed A.M., Jevasuwan Wipakorn, El-Kemary Maged, Fukata Naoki	4. 巻 6
2. 論文標題 Spectral Downshifting and Passivation Effects Using 2D Perovskite (0Am)2SnBr4 Films to Enhance the Properties of Si Nanowire Solar Cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 4219 ~ 4228
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acsaem.3c00064	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhang Qinqiang, Suzuki Ken, Miura Hideo	4. 巻 1
2. 論文標題 Theoretical study on strain-controllable gradient Schottky barrier of dumbbell-shape graphene nanoribbon for highly sensitive strain sensors	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEEE, 2021 International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD)	6. 最初と最後の頁 171-174
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/SISPAD54002.2021.9592548	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Suzuki Ken, Nakagawa Ryohei, Zhang Qinqiang, Miura Hideo	4. 巻 11
2. 論文標題 Development of Highly Sensitive Strain Sensor Using Area-Arrayed Graphene Nanoribbons	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 1701 ~ 1701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano11071701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Goundar Jowesh Avisheik, Zhang Qinqiang, Suzuki Ken, Miura Hideo	4. 巻 1
2. 論文標題 Electronic Band-Engineering of a Dumbbell-shaped Graphene Nanoribbon by the Application of Uniaxial Tensile Strain	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 IEEE, 2021 International Conference on Electronics Packaging (ICEP)	6. 最初と最後の頁 147-148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.23919/ICEP51988.2021.9451931	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 張 秦強
2. 発表標題 蒸気輸送法による GeS 結晶化の温度依存性
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年 ~ 2023年

1. 発表者名 張 秦強
2. 発表標題 高感度ひずみセンサー用のダンベル型グラフェンナノリボンのショットキーエネルギー障壁のひずみ誘起変化に関する理論的研究
3. 学会等名 プロセス・デバイス・回路シミュレーションおよび一般（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 ZHANG Qinqiang
2. 発表標題 Theoretical study on strain-controllable gradient Schottky barrier of dumbbell-shape graphene nanoribbon for highly sensitive strain sensors
3. 学会等名 2021 International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関