

双层石墨烯在栅压调控下的各向异性刻蚀

王国乐 谢立 陈鹏 杨蓉 时东霞 张广宇

Anisotropic etching of bilayer graphene controlled by gate voltage

Wang Guo-Le Xie Li Chen Peng Yang Rong Shi Dong-Xia Zhang Guang-Yu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 196101 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.196101

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.196101>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

THz 谐振腔型石墨烯光电探测器的设计

Design and performance analysis of THz microcavity-enhanced graphene photodetector

物理学报.2016, 65(16): 168101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.168101>

化学气相沉积法制备的石墨烯晶畴的氢气刻蚀

Hydrogen etching of chemical vapor deposition-grown graphene domains

物理学报.2016, 65(9): 098101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.098101>

基于石墨烯互补超表面的可调谐太赫兹吸波体

Tunable terahertz absorber based on complementary graphene meta-surface

物理学报.2016, 65(1): 018101 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.018101>

含石墨烯临界耦合谐振器的吸收特性研究

Study on the absorbing properties of critically coupled resonator with graphene

物理学报.2015, 64(23): 238103 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.238103>

单层石墨烯带传输模式及其对气体分子振动谱的传感特性研究

Transmission mode of a single layer graphene and its performance in the detection of the vibration spectrum of gas molecular

物理学报.2015, 64(19): 198102 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.198102>

双层石墨烯在栅压调控下的各向异性刻蚀*

王国乐¹⁾ 谢立¹⁾ 陈鹏¹⁾ 杨蓉^{1)†} 时东霞¹⁾ 张广宇^{1)2)3)4)‡}

1)(中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家实验室, 北京 100190)

2)(北京纳米材料与纳米器件重点实验室, 北京 100190)

3)(量子物质科学协同创新中心, 北京 100190)

4)(中国科学院大学物理学院, 北京 100190)

(2016年7月22日收到; 2016年8月12日收到修改稿)

石墨烯纳米结构在纳电子学研究领域表现出了良好的应用前景. 氢等离子体各向异性刻蚀技术是加工石墨烯精细纳米结构的关键技术之一, 可以实现 10 nm 以下平整的锯齿型石墨烯纳米带的可控加工. 本文系统研究了外加电场对石墨烯各向异性刻蚀效应的影响, 利用外加栅压实现了氧化硅衬底上的双层石墨烯各向异性刻蚀速率的调控. 在 ± 30 V 栅压变化范围内, 刻蚀速率比可达 45. 由此不仅可以提高大批量加工石墨烯纳米结构的效率, 还可以实现 5 nm 以下极小尺寸石墨烯纳米带的可控加工. 研究结果为石墨烯精细纳米结构器件的高效批量加工提供了思路.

关键词: 石墨烯纳米结构, 各向异性刻蚀, 栅压, 可控加工

PACS: 61.72.S-, 81.05.ue, 61.48.Gh, 82.30.Fi

DOI: 10.7498/aps.65.196101

1 引言

石墨烯纳米结构在未来的纳电子器件如晶体管、传感器、自旋阀、光电探测器等方面具有广泛的应用前景^[1-10]. 近些年, 锯齿形边界的石墨烯纳米结由于其独特的电子学性质受到了人们的广泛关注^[4,11,12]. 迄今为止, 加工锯齿形边界的石墨烯纳米结构包括两类方法: 以分子组装为主的自下而上^[13,14]和各向异性刻蚀的自上而下方法^[15-18]. 从器件加工与应用的角度, 自上而下的方法更可控, 可以大批量加工出高质量的石墨烯纳米结构, 也与现有的半导体工艺兼容. 在之前的研究工作中, 我们利用远程氢等离子体与石墨烯在一定条件下反应, 实现了单层、双层和多层石墨烯的各向异性刻蚀^[16,17]. 各向异性刻蚀只在缺陷处发生, 对完

美的晶格无影响. 刻蚀之后, 点缺陷变成六角孔洞, 线缺陷即晶界变成沟槽. 结合微纳加工技术在石墨烯上加工缺陷阵列, 再辅以各向异性刻蚀, 就可以加工各种具有锯齿形边界的石墨烯纳米结构, 加工线宽可以小于 10 nm.

这种基于各向异性刻蚀加工的锯齿形边界石墨烯纳米结构为研究其本征物理性质和构筑纳米器件奠定了基础. 然而, 对于石墨烯中各向异性刻蚀本身的理解在实验方面的研究还比较少. 前期实验发现, 各向异性刻蚀的速率对样品的温度存在依赖性, 在 400 °C 左右存在一个峰值^[16,19]. 单层石墨烯的各向异性刻蚀存在衬底的依赖性, 衬底的粗糙度和衬底的掺杂浓度都会对石墨烯的各向异性刻蚀产生明显的影响^[19-21]. 衬底的粗糙会给石墨烯引入应变和产生褶皱, 会改变碳-碳键长并由此影响面内化学活性. 衬底的电荷掺杂会局部改变费

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB934500, 2013CBA01602)、国家自然科学基金(批准号: 91223204, 61325021, 11574361, 91323304)和中国科学院 B 类先导项目(批准号: XDB07010100)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: ryang@iphy.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: gyzhang@iphy.ac.cn

米能级, 因此会改变电荷转移并影响石墨烯活性. 然而, 对于氢等离子体各向异性刻蚀, 在刻蚀过程中是氢离子还是中性的氢原子在起作用目前还不清楚. 理论计算表明, 虽然在反应氛围中, 氢原子密度远大于氢离子, 但是氢离子会对石墨烯的刻蚀起主要作用, 氢原子会辅助刻蚀被氢离子破坏的石墨烯边缘^[22,23]. 然而实验上没有观察到证据验证这一点.

本文设计了通过栅压调控石墨烯纳米结构的可控加工的装置与器件, 在远程等离子体刻蚀系统中原位对石墨烯施加不同栅压. 通过不同栅压下氧化硅衬底上的双层石墨烯刻蚀速率与 0 V 栅压下石墨烯的刻蚀速率比值, 观察到了栅压对石墨烯各向异性刻蚀速率的控制现象, 即随着栅压从负到正的增大, 石墨烯的刻蚀速率逐渐减小. 在 ± 30 V 栅压调制范围内, 石墨烯的刻蚀速率比可高达 45. 石墨烯的各向异性刻蚀受栅压调控影响很大, 意味着带电氢离子对石墨烯的刻蚀起主导作用. 同时, 也可以通过对氧化硅衬底上双层石墨烯施加不同的栅压可以实现电荷掺杂的控制, 进而对石墨烯各向异性刻蚀速率进行调控, 实现高效、精细可控的加工.

2 实验装备、器件制备及数据采集

2.1 实验装置及器件制备

采用氢等离子体对石墨烯进行各向异性刻蚀, 使用我们自建的远程等离子体增强化学气相沉积系统 (plasma enhanced chemical vapor deposition, PECVD)^[16]. 为了能够原位进行各向异性刻蚀的同时调控栅压, 需要从外部引入电极. 使用耐高温真空导电插头, 从化学气相沉积系统腔体引出电极引线, 外部的源表可以由此给器件加上栅压. 在腔体内部, 耐高温引线连接到芯片基座 (chip carrier) 上.

通过机械剥离的方法^[24]在硅基片上 300 nm 的氧化硅衬底上获得双层石墨烯样品, 利用光学显微镜和拉曼光谱仪 (Raman) 进一步确认石墨烯层数^[25]. 使用电子束光刻 (electronic beam lithography, EBL) 与反应离子束刻蚀 (reactive ion etching, RIE) 技术, 人为制造出圆孔缺陷, 方便后续使用氢等离子体放大并计算各向异性刻蚀速率. 经过电子束蒸镀 (electronic beam evaporation, E-Beam) 上

钛金电极 (2 nm Ti/40 nm Au), 再通过引线仪用金丝引出到芯片基座上. 为控制实验变量, 每一个硅基片上引出三个独立的石墨烯样品, 分别施加不同的栅压, 在反应腔体中同时刻蚀. 图 1 (a) 给出了双层石墨烯施加栅压下器件结构及各向异性刻蚀的环境示意. 一块双层石墨烯连接到外部电压源, 相同基片上不同的石墨烯所施加的电压不同. 在不同的栅压下, 石墨烯的费米能级会向导带 (正栅压) 或价带 (负栅压) 偏移, 导致石墨烯呈现电子导电或空穴导电, 如图 1 (b) 所示. 本文实验中, 氢等离子体刻蚀环境为 400 °C, 60 W, 0.3 Torr.

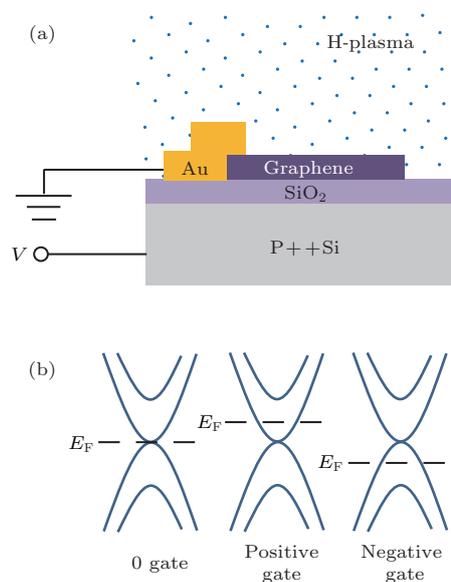


图 1 栅压调控下双层石墨烯器件与费米能级图 (a) 氢等离子体刻蚀环境下的施加栅压的双层石墨烯, 不同栅压下的石墨烯在同一时间同一环境下刻蚀; (b) 不同栅压下双层石墨烯的费米能级

Fig. 1. Sketch map of gated bilayer graphene device and Fermi level: (a) Hydrogen plasma etching environment of gated bilayer graphene, a piece of bilayer graphene is connected to outer voltage source, applied gate voltage, different gated bilayer graphene are etched at one time under the same condition; (b) Fermi level of different gated bilayer graphene.

2.2 数据采集与测量

石墨烯的刻蚀情况由原子力显微镜 (atomic force microscopy, AFM) 表征. 在原子力显微镜下, 可以直接测量出被刻蚀的孔洞的直径 (针对圆形孔) 或对边距 (针对六边形孔).

由于使用氧气反应离子束刻蚀技术, 初始人造缺陷孔洞是各向同性的圆形. 为了使实验结果更

真实, 先把这样的样品置于氢等离子体氛围中进行各向异性刻蚀, 使之出现原始的六边形孔洞, 以此记刻蚀次数 0. 在以后的氢等离子体刻蚀中, 每刻蚀一次, 记数累加 1, 并用原子力显微镜表征刻蚀长度.

3 结果与讨论

刻蚀结果如图 2 所示. 图 2(a) 和图 2(d) 分别是同一硅基片上的样品 I 和样品 II 的初始六边形孔洞. 图 2(b) 和图 2(c) 是样品 I 在不同偏压下的刻蚀结果, 图 2(e) 和图 2(f) 是在同一块硅基片上的对照样品 II 在 0 V 偏压下相同条件的刻蚀结果. 在加栅压刻蚀之前, 先把样品 I 与 II 放入 PECVD 中使用氢等离子体刻蚀一段时间, 使之出现初始的六边形孔洞, 以确定晶向. 在后续实验中, 氢等离子体刻蚀的结果只是使这个六边形孔洞各边同时扩大. 但是, 刻蚀出来的六边形孔洞并不一定是完美

的六边形, 各边长会有些差别. 同时, 由于 AFM 的横纵向也会存在飘移误差, 导致三个对边距不完全相等. 这样在计算每次刻蚀长度时, 选取固定的对边距, 以减少测量误差.

图 2(b) 与图 2(e) 分别为第一次刻蚀中栅压为 20 V 和 0 V 的刻蚀结果. 样品 I 的初始孔洞对边距为 199.22 nm, 如图 2(a); 对照样品 II 的初始孔洞对边距为 191.41 nm, 如图 2(d). 给样品 I 加 +20 V 的栅压, 同时给样品 II 加 0 V 的栅压, 经过 2 h 的刻蚀, 两样品孔洞均被放大. 其中, 样品 I 的六边形孔洞对边距变为 234.38 nm, 对照样品 II 的六边形孔洞对边距变为 320.31 nm. 两样品对边距分别增长了 35.16 nm 与 128.9 nm, 亦即刻蚀长度. 相同环境与反应时间下, 不同栅压石墨烯的刻蚀长度表现其刻蚀速率. 结果显示, 在施加正向栅压下, 氧化硅衬底上的双层石墨烯在氢等离子体环境中的刻蚀速率受到了抑制, 反应速率慢于 0 V 栅压下的石墨烯. 其刻蚀长度 L 的比值为 $L_{20\text{ V}} : L_{0\text{ V}} \approx 0.27$.

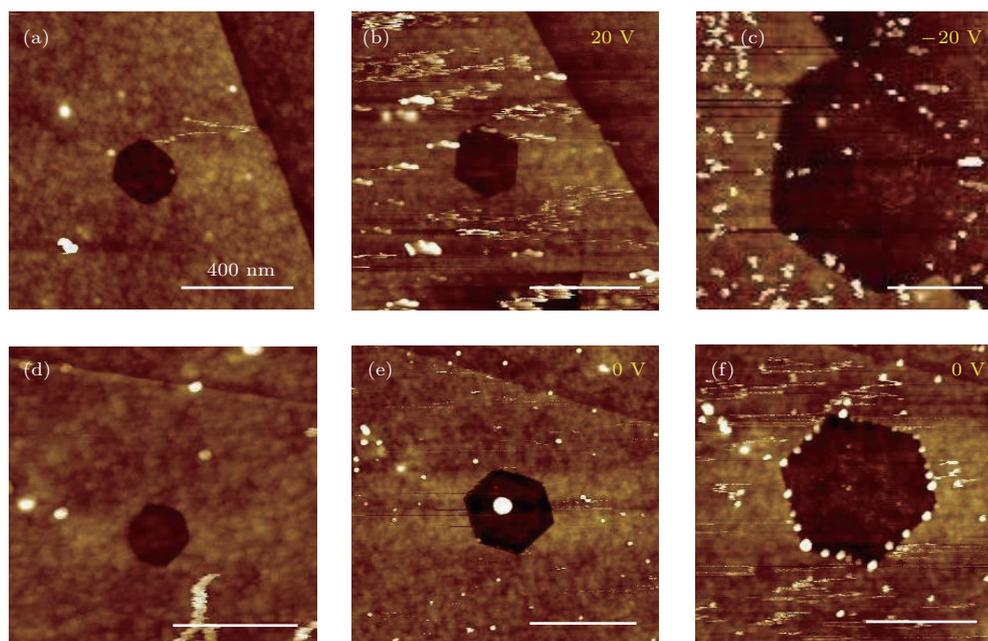


图 2 (网刊彩色) 栅压调控下双层石墨烯的各向异性刻蚀效应的原子力显微镜形貌图 (a) 通过各向异性刻蚀方法形成的初始六边形孔洞; (b) 双层石墨烯在正 20 V 栅压下各向异性刻蚀的结果; (c) 双层石墨烯在负 20 V 栅压下各向异性刻蚀的结果, 从 (b) 开始刻蚀; (d) 参照样品的初始六边形孔, 与样品 (a) 一起准备的; (e) 双层石墨烯在 0 V 栅压下各向异性刻蚀的结果, 与 (b) 一起刻蚀的; (f) 双层石墨烯在 0 V 栅压下各向异性刻蚀的结果, 从 (e) 开始刻蚀, 与样品 (c) 一起刻蚀的; 比例尺均为 400 nm

Fig. 2. (color online) AFM images of gated bilayer graphene etching effect: (a) Initial hexagonal hole is prepared through anisotropic etching method; (b) etching result of 20 V back gated bilayer graphene; (c) etching result of -20 V back gated bilayer graphene, starting from (b); (d) initial hexagonal hole of control sample, prepared together with (a); (e) etching result of 0 V back gated bilayer graphene, together with (b); (f) etching result of 0 V back gated bilayer graphene, together with (c), starting from (e). All scale bars are 400 nm.

除了观察正向栅压对石墨烯的刻蚀速率的影响之外,也研究了负栅压对石墨烯的刻蚀效果影响.图2(c)与图2(f)分别是氧化硅衬底上双层石墨烯在 -20 V 栅压下与 0 V 栅压下刻蚀的结果.这次刻蚀接着第一次刻蚀,所以,对于样品I,本次刻蚀的初始的六边形孔洞对边距为 234.38 nm ,即上一次刻蚀结束时的大小,如图2(b).同样地,对照样品II本次刻蚀初始的六边形孔洞对边距为 320.31 nm ,如图2(e).给样品I加 -20 V 的栅压,同时给对照样品II加 0 V 栅压,经过在氢等离子体中 4 h 的反应,两样品孔洞均被放大.其中,样品I的六边形孔洞对边距增大为 996.09 nm ,相比本次刻蚀初始值,刻蚀长度为 762.52 nm .对照样品II的六边形孔洞对边距增长为 507.81 nm ,相较本次刻蚀初始值增大了 187.5 nm .本次实验结果证明,相比于 0 V 栅压下的氢等离子体刻蚀石墨烯, -20 V 栅压下,石墨烯被刻蚀得更快,也即负栅压对刻蚀速率有促进作用,其刻蚀长度 L 比为 $L_{-20\text{ V}}:L_{0\text{ V}}\approx 4.1$.

实验中,由于需要使用AFM对样品表征,需要反复地固定基片、引线、连接腔体线路等,不可避免地会引入杂质,对样品表面产生污染,如图2中的颗粒.在多次实验中,这些污染对实验结果并无明显的影响.

给氧化硅衬底上的双层石墨烯施加栅压,在氢等离子体刻蚀作用下,石墨烯的刻蚀速率加快(-20 V)或者减慢($+20\text{ V}$).为了找到栅压对石墨烯的各向异性刻蚀作用的影响规律,我们进行了一系列不同栅压下的实验,并将其结果做了统计,如图3所示.我们选取的栅压范围是 $-30\text{—}30\text{ V}$,这足以涵盖石墨烯的电子掺杂和空穴掺杂范围.在此范围内,每隔 10 V 取一次实验点进行刻蚀.每个栅压实验点,选取若干个石墨烯样品,对刻蚀长度结果进行统计,计刻蚀长度为 L_{Gate} .同时,在每个栅压实验点,均放置一组 0 V 栅压对照样品,在相同的环境下进行刻蚀,计其刻蚀长度为 $L_{0\text{ V}}$.以每次刻蚀中 0 V 栅压下对照样品的刻蚀长度为归一化,得到不同栅压下的石墨烯与 0 V 栅压下的石墨烯的刻蚀长度比, $r=L_{\text{Gate}}/L_{0\text{ V}}$.其比值 r 随着栅压变化如图3所示.其刻蚀长度比 r 也直接反映出不同栅压下双层石墨烯的各向异性刻蚀速率.

从图3可以看出,随着栅压的增加,刻蚀比不

断减小,二者呈负相关. -30 V 与 0 V 栅压下石墨烯长度刻蚀比为 3.12 ,而 30 V 与 0 V 栅压下石墨烯长度刻蚀比则降到 0.07 .也就是说,在 -30 V 栅压下,石墨烯可以被氢等离子体刻蚀得很快,在 30 V 栅压下,石墨烯基本不与氢等离子体发生反应.

与石墨烯接触的气氛中包含氢离子、氢原子和氢气分子.其中,氢气分子不具有活性,不与石墨烯的碳原子发生反应,在实验环境下,也不会造成物理吸附.氢气分子对石墨烯的刻蚀不起作用.与石墨的反应类似^[26–28],氢离子对石墨烯的刻蚀起主要作用^[23].不同能量的氢离子可以对石墨烯造成氢化,打破石墨烯的碳-碳键,形成碳氢化合物以及石墨烯的氢钝化边缘.虽然氢原子密度远高于氢离子^[22],但是其具有较低的热能,不能直接打破碳-碳键.但是,热氢原子可以与被氢离子破坏产生的悬键反应,这样就加速了氢离子对石墨烯的刻蚀速率.在对氧化硅衬底上的石墨烯施加栅压后,石墨烯的载流子浓度被调控.当施加正向栅压时,石墨烯表面会感生出与栅压对应的负电荷,这些负电荷会使接触石墨烯的氢离子中和,使其失去能量打破碳-碳键产生刻蚀效应.栅压越大,感生的负电荷越多,由此越阻碍氢离子对石墨烯的刻蚀.当施加负栅压时,石墨烯表面感生出正电荷,接触石墨烯的氢离子不会被中和,更多的与石墨烯反应,使刻蚀速率快.

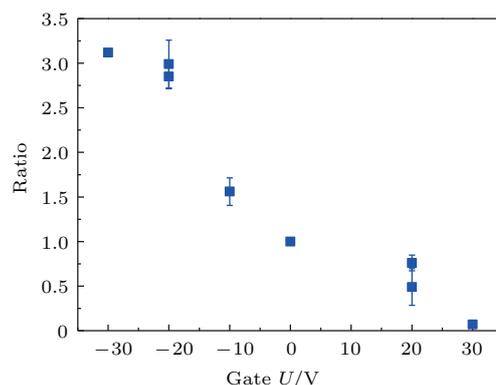


图3 栅压调控的石墨烯刻蚀长度比的统计结果.不同栅压下石墨烯的刻蚀长度与 0 V 栅压下石墨烯的刻蚀长度比值随着栅压的变化关系,随着栅压的增大,石墨烯的刻蚀长度比减小,误差条的引入是由于多样品统计的结果.
Fig. 3. Static results of gate tunable etching length ratio. Etching length ratio of graphene under certain gate voltage v.s. zero gate voltage. With gate voltage increasing, etching length ratio decreases. Error bars are induced due to several different samples.

在 ± 30 V以内, 可以调控刻蚀速率比可达约45. 用这种方法, 可以实现石墨烯的各向异性刻蚀速率的调控. 这样, 通过施加不同的栅压, 可以高效或者精细地可控加工石墨烯纳米结构.

4 结 论

本文通过栅压实现了氧化硅衬底上的双层石墨烯各向异性刻蚀速率的调控. 通过自行设计的实验装置, 在刻蚀的同时分别给同一基片上的不同石墨烯样品原位施加不同的栅压, 观察到了由栅压引起的刻蚀长度差, 亦即刻蚀速率差. 在 ± 30 V栅压变化范围内, 刻蚀速率比可达45. 本文在实验上验证了在石墨烯的各向异性刻蚀中起主要作用的是氢离子, 氢原子起辅助作用. 同时为加工石墨烯纳米结构在纳米电子学的应用提供了一个可调控的方法.

参考文献

- [1] Kim K, Choi J Y, Kim T, Cho S H, Chung H J 2011 *Nature* **479** 338
- [2] Ponomarenko L, Schedin F, Katsnelson M, Yang R, Hill E, Novoselov K S, Geim A K 2008 *Science* **320** 356
- [3] Martins T B, da Silva A J, Miwa R H, Fazzio A 2008 *Nano Lett.* **8** 2293
- [4] Son Y W, Cohen M L, Louie S G 2006 *Nature* **444** 347
- [5] Rycerz A, Tworzydło J, Beenakker C 2007 *Nat. Phys.* **3** 172
- [6] Kim W Y, Kim K S 2008 *Nat. Nanotechnol.* **3** 408
- [7] Min S K, Kim W Y, Cho Y, Kim K S 2011 *Nat. Nanotechnol.* **6** 162
- [8] Konstantatos G, Badioli M, Gaudreau L, Osmond J, Bernechea M, de Arquer F P G, Gatti F, Koppens F H 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 363
- [9] Miao J S, Hu W D, Guo N, Lu Z Y, Liu X Q, Liao L, Chen P P, Jiang T, Wu S W, Ho J C, Wang L, Chen X S, Lu W 2015 *Small* **11** 936
- [10] Long M, Liu E F, Wang P, Gao A Y, Xia H, Luo W, Wang B G, Zeng J W, Fu Y J, Xu K, Zhou W, Lü Y Y, Yao S H, Lu M H, Chen Y F, Ni Z H, You Y M, Zhang X A, Qin S Q, Shi Y, Hu W D, Xing D Y, Miao F 2016 *Nano Lett.* **16** 2254
- [11] Magda G Z, Jin X Z, Hagymási I, Vancsó P, Osváth Z, Nemes-Incze P, Hwang C, Biró L P, Tapasztó L 2014 *Nature* **514** 608
- [12] Wang S Y, Talirz L, Pignedoli C A, Feng X L, Muellen K, Fasel R, Ruffieux P 2016 *Nat. Commun.* **7** 11507
- [13] Cai J M, Ruffieux P, Jaafar R, Bieri M, Braun T, Blankenburg S, Muoth M, Seitsonen A P, Saleh M, Feng X L 2010 *Nature* **466** 470
- [14] Yang X Y, Dou X, Rouhanipour A, Zhi L J, Räder H J, Müllen K 2008 *J. Am. Chem. Soc.* **130** 4216
- [15] Solís-Fernández P, Yoshida K, Ogawa Y, Tsuji M, Ago H 2013 *Adv. Mater.* **25** 6562
- [16] Yang R, Zhang L C, Wang Y, Shi Z W, Shi D X, Gao H J, Wang E G, Zhang G Y 2010 *Adv. Mater.* **22** 4014
- [17] Shi Z W, Yang R, Zhang L C, Wang Y, Liu D H, Shi D X, Wang E G, Zhang G Y 2011 *Adv. Mater.* **23** 3061
- [18] Xie L M, Jiao L Y, Dai H J 2010 *J. Am. Chem. Soc.* **132** 14751
- [19] Diankov G, Neumann M, Goldhaber-Gordon D 2013 *ACS Nano* **7** 1324
- [20] Sharma R, Baik J H, Perera C J, Strano M S 2010 *Nano Lett.* **10** 398
- [21] Yamamoto M, Einstein T L, Fuhrer M S, Cullen W G 2012 *ACS Nano* **6** 8335
- [22] Nunomura S, Kondo M 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 093306
- [23] Harpale A, Panesi M, Chew H B 2016 *Phys. Rev. B* **93** 035416
- [24] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [25] Ferrari A C, Meyer J C, Scardaci V, Casiraghi C, Lazzeri M, Mauri F, Piscanec S, Jiang D, Novoselov K S, Roth S, Geim A K 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 187401
- [26] Roth J, Garcia-Rosales C 1996 *Nucl. Fusion* **36** 1647
- [27] Mech B, Haasz A, Davis J 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 1655
- [28] Liu S G, Sun J Z, Dai S Y, Stirner T, Wang D Z 2010 *J. Appl. Phys.* **108** 073302

Anisotropic etching of bilayer graphene controlled by gate voltage*

Wang Guo-Le¹⁾ Xie Li¹⁾ Chen Peng¹⁾ Yang Rong^{1)†}
Shi Dong-Xia¹⁾ Zhang Guang-Yu^{1)2)3)4)‡}

1) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics and Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

2) (*Beijing Key Laboratory for Nanomaterials and Nanodevices, Beijing 100190, China*)

3) (*Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100190, China*)

4) (*School of Physics, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

(Received 22 July 2016; revised manuscript received 12 August 2016)

Abstract

Graphene nanostructures are proposed as promising materials for nanoelectronics such as transistors, sensors, spin valves and photoelectric devices. Zigzag edge graphene nanostructures had attracted broad attention due to their unique electronic properties. Anisotropic hydrogen-plasma etching has been demonstrated as an efficient top-down fabrication technique for zigzag-edged graphene nanostructures with a sub-10 nm spacial resolution. This anisotropic etching works for monolayer, bilayer and multilayer graphene and the etching rate depends on substrate temperature with a maximum etching rate at around 400 °C. It has been also founded that the anisotropic etching is also affected by the surface roughness and charge impurities of the substrate. Atomically flat substrates with no charge impurities would be ideal for the anisotropic etching. So far the understanding of hydrogen-plasma anisotropic etching, e.g. whether hydrogen radicals or hydrogen ions dominate the etching process, remains unclear. In this work, we investigated the anisotropic etching of graphene under electrical field modulations. Bilayer graphene peeled off from graphite on SiO₂ substrate was used as the experimental object. 2 nm-Ti (adhesive layer) and 40 nm-Au electrodes was deposited by electronic beam evaporation for electrical contacts. Gate voltates were applied to the bilayer graphene samples to make them either positively or negatively charged. These charged samples were then subjected to the hydrogen anisotropic etching at 400 °C under the plasma power of 60 W and gas pressure of 0.3 Torr. The etching rates were characterized by the sizes of the etched hexagonal holes. We found that the etching rate for bilayer graphene on SiO₂ substrate depends strongly on the gate voltages applied. With gate voltages sweeping from the negative to the positive, etching rate shows obvious decrease. 45 times of etching rate decrease was seen when sweeping the gate voltages from -30 V (positively charged) to 30 V (negatively charged). This gate-dependent anisotropic etching suggests that hydrogen ions rather than radicals plays a key role during the anisotropic etching process since the negatively charged graphene could neutralize the hydrogen ions quickly thus make them unreactive. The present work provides a strategy for fabrication of graphene nanostructures by anisotropic etching with a controllable manner.

Keywords: graphene nanostructure, anisotropic etching, gate voltage, controllable fabrication

PACS: 61.72.S-, 81.05.ue, 61.48.Gh, 82.30.Fi

DOI: 10.7498/aps.65.196101

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant Nos. 2013CB934500, 2013CBA01602), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 91223204, 61325021, 11574361, 91323304), and Strategic Priority Research Program (B) of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB07010100).

† Corresponding author. E-mail: ryang@iphy.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: gyzhang@iphy.ac.cn