

# グラフェンを用いたインビジブルアンテナの開発

青山学院大学 理工学部電気電子工学科 黄 晋二

## Research and Development of Graphene Invisible Antennas

Shinji Koh

Department of Electrical Engineering and Electronics,  
College of Science and Engineering,  
Aoyama Gakuin University

我々は透明アンテナの電極材料として、厚さわずか原子1層の2次元シート炭素材料であるグラフェンに注目している。本研究では、化学気相成長(CVD)法によって成膜した単層グラフェンを3層に積層し、これにキャリアドーピングを施すことによって、可視光透過率90%以上を維持しながらシート抵抗を $80\Omega/\text{sq}$ まで低減させることに成功した。このグラフェン膜を電極材料とした透明モノポールアンテナを作製しアンテナ特性を評価したところ、グラフェン電極は金属的な電波放射の振る舞いを示した。Wheeler cap法により評価した放射効率は9.8GHzにおいて52.5%であり、低抵抗化によって金属アンテナの約1/2の放射効率を達成した。

We are focusing on graphene, a one-atom-thick two-dimensional carbon sheet, as an electrode material for optically transparent antennas. In this study, we fabricated graphene films with a low sheet resistance of  $80\Omega/\text{sq}$  and a high optical transmittance over 90% by stacking graphene films and carrier doping. We fabricated and characterized the optically transparent monopole antenna based on the three-layer stacked and carrier-doped graphene film. We demonstrated through the characterization of the antenna that the graphene film behaved similarly to metal. Furthermore, the radiation efficiency of the antenna was 52.5% which is comparable to half of that of the metal antenna.

### 1. はじめに

Internet of Things (IoT)ではヒトや様々なモノが無線通信でつながるため、今後のIoTの普及拡大に伴い電波の送受信に使用されるアンテナの数が増加し様々な場所に設置されると予想される。一方、第5世代移動通信システム(5G)では、現状の周波数帯より高い周波数(27GHz帯)が使用されるが、通信速度が飛躍的に向上する一方で、電磁波の伝搬損失増大に伴い伝搬距離が短くなる。また、高い周波数帯ではフラウンホーファー回折が弱まるために、電波が障害物の裏側に伝搬する「回り込み」が抑制される。このために無線通信エリアのカバレッジが減少してしまうことから、現状よりも多数のアンテナが必要となる。透明導電膜で作製する透明アンテナは、透明なモノの透明性を維持しつつアンテナの機能を付与することができるため、建造物の窓ガラスや自動車のフロントガラスなど、高い可視光透過率が必要な場所やモノに設置が可能であり、無線通信エリアのカバレッジ

確保を実現する技術の1つとして注目されている<sup>1)</sup>。併せて、モノの外観を変えることなくアンテナ機能を付与することができるため、液晶ディスプレイや時計文字盤等の表面にも設置することができるなど、新しい付加価値を提供する技術としても期待されている。本研究では、透明アンテナの電極材料として炭素原子1層の2次元シート状材料であるグラフェンに注目し研究開発に取り組んだ。

## 2. 透明アンテナ材料としてのグラフェンの特徴と課題

透明アンテナを作製するためには低い電気抵抗と高い光学的透明性を両立する透明導電膜が必要である。これまでに微細な金属メッシュ構造を挿入したガラス、及びITO(indium tin oxide)などの金属酸化物系透明導電膜を用いた透明アンテナについて研究開発が進められており、一部は既に実用化に至っているが、これらの透明導電膜では低抵抗化と透明性の維持はトレードオフの関係にある。我々が透明アンテナ材料として注目したグラフェンは、図1(a)に示すように炭素原子の2次元的なハニカム構造で構成される、わずか原子1層の厚さのシート状材料であり、高いキャリア移動度、高い可視光透過率、優れた機械的特性とフレキシブル性、軽量性、高い熱伝導性などの特徴を持つ透明導電膜である<sup>2)</sup>。グラフェンの作製方法には様々なものがあるが、我々は大面積かつ高品質なグラフェンを作製できる化学気相成長法(chemical vapor deposition: CVD)を採用した。CVD法を用いて金属触媒基板上に成膜したグラフェンは一様なシートとして様々な基板表面上へ転写することが可能であり、フォトリソグラフィ等の成熟したデバイスプロセスをそのまま活用することができる。グラフェンが持つ透明アンテナの材料として重要な特徴は、グラフェンの光吸収率 $A$ がプランク定数 $h$ 、電気素量 $e$ 、真空中の光速 $c$ の3つの物理定数のみで記述される微細構造定数 $a(=e^2/hc)$ を用いて $A=\pi a \sim 2.3\%$ と表されることである<sup>3)</sup>。グラフェンの光吸収は、価電子帯電子の伝導帯への光励起過程に起源があるが、キャリア密度をドーピングなどによって増大させても光吸収率は可視光領域で変わらず一定値(2.3%)を取る。つまり、グラフェンは既存の透明導電膜材料が有する電気抵抗と透明性のトレードオフからフリーな透明導電膜材料である可能性を持っている。また、微細金属メッシュ構造やITO系透明導電膜は湾曲に対して脆弱であるため、グラフェンの優れた機械的特性がフレキシブルな透明アンテナの作製における大きなメリットになると考えている。

我々はこれまでに、単層CVDグラフェンを用いた透明アンテナの作製と評価を通してグラフェン透明アンテナの可能性を見出している<sup>4-5)</sup>。図1(b)に同形状で作製した金属ダイポールアンテナ、図1(c)に単層CVDグラフェン透明ダイポールアンテナを示す。単層グラフェンは約97%という高い可視光透過率を有するためアンテナエレメントを目視で観察することは困難である。しかし、原子1層であるためシート抵抗が約 $750\Omega/\text{sq}$ とアンテナ電極材料としては著しく高く、グラフェン透明アンテナの実用

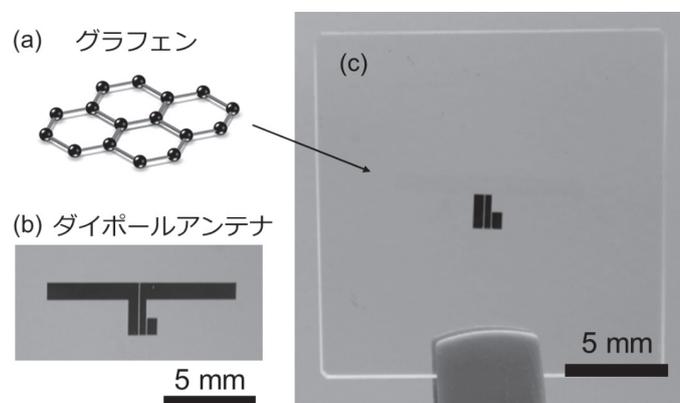


図1 (a)グラフェンの結晶構造(b)金属製ダイポールアンテナ(c)単層CVDで作製した透明ダイポールアンテナ

化にはグラフェンの高い透過率を維持しながらシート抵抗を低減する必要があることが課題として抽出された。そこで我々は、シート抵抗の低減のために2つのアプローチに取り組んだ。1つ目はグラフェンの積層である。シート抵抗  $R_s$  は、材料の導電率  $\sigma$  と厚さ  $t$  を用いて  $R_s = 1/\sigma t$  と表されるため、単層グラフェンを2層積層した場合、そのシート抵抗  $R_s$  は積層前に比べ半分になると期待できる。しかし、積層数を増やすと透過率  $T$  は低下していくため、いたずらに層数を増やすことはできない。90%以上の透過率を維持するためには積層数を4以下に抑えなければならないが、今回は3層積層のグラフェンを用いた。2つ目のアプローチはキャリアドーピングである。導電率  $\sigma$  は  $\sigma = en\mu$  で表される ( $n$ : キャリア密度、 $\mu$ : キャリア移動度)。我々は、グラフェン表面に分子を含んだ液体を塗布し、その分子がグラフェンから電子を引き抜く現象によりキャリアをドーピングし、キャリア密度  $n$  を増大させた。

### 3. 実験方法

#### 3.1 グラフェンの低抵抗化プロセス

図2にグラフェン膜の低抵抗化プロセスを示す。(1)メタンを炭素源とするCVD法によりCu箔上に単層グラフェンを成長し、(2)単層グラフェン表面に支持材としてPMMA (polymethylmethacrylate) を塗布した後にCu箔をエッチングした。(3)Cu箔がエッチングされたPMMA/グラフェン膜を別途用意したCu箔上の単層CVDグラフェンで掬い取り、(4)再度Cu箔のエッチングを行った。以上の(3)

と(4)の工程を繰り返すことで3層積層グラフェン膜を作製することができる。次に(5)石英ガラス基板に3層積層グラフェン膜を転写しPMMAをアセトンで除去した。最後に、グラフェンへのp型キャリアドーピング効果があり、可視域での透過率が高いTFSA (bis(trifluoromethanesulfonyl) amine) を1-butanolに50mMの濃度で溶かし、これを3層積層グラフェン膜表面にスピンコートによって塗布することでキャリアドーピングを行った。

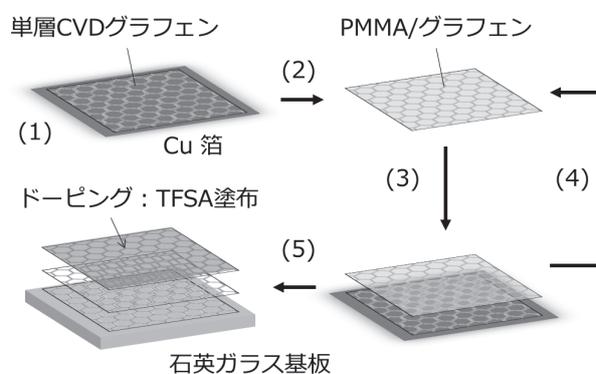


図2 低抵抗グラフェンの作製プロセス

#### 3.2 透明なグラフェンモノポールアンテナの作製と評価

低抵抗化したグラフェン膜を用いて透明アンテナを作製し特性評価を行った<sup>6)</sup>。アンテナ構造は接地板付きモノポールアンテナとした。この構造を用いることで、アンテナ素子のみの特性を評価することが可能となり、かつ、ホイラーキャップ法を用いた放射効率の評価も可能となる。今回は、測定装置等の実験環境を考慮してアンテナの共振周波数を8GHz前後として構造を設計した。作製した接地板付きモノポールアンテナの構造を図3(a)に示す。モノポールアンテナを作製した石英ガラス基板が、Al接地円板中心に設置された構造をとっている。図3(b)にモノポールアンテナ中心の断面図を示した。ガラス基板には長方形の低抵抗グラフェン膜と台形のコンタクト用Au電極が形成されている。モノポールアンテナの作製プロセスを図3(c)に示す。(1)前述した方法でガラス基板上に3層積層グラフェンを転写し、(2)転写グラフェン上にAuを真空蒸着する。(3)フォトリ

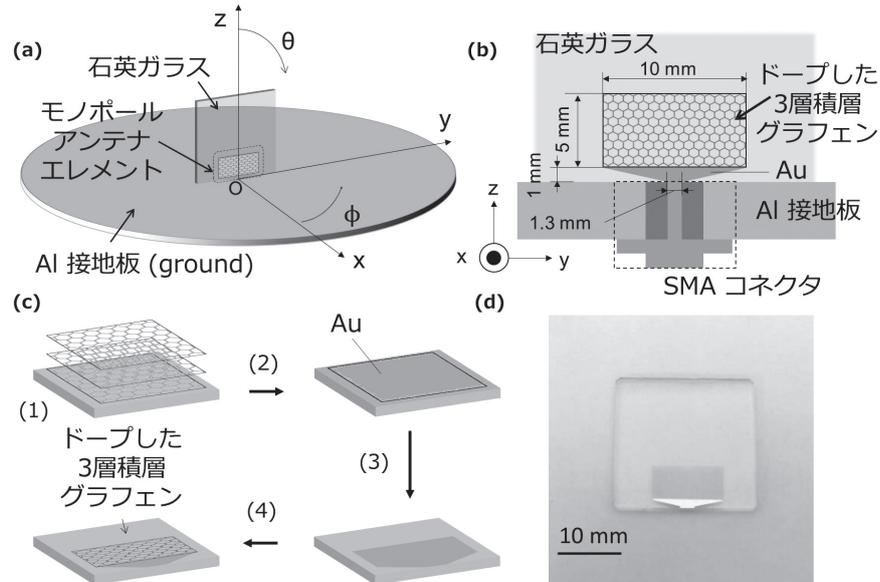


図3 可視域における透過率スペクトル

ソグラフィにより Au 上にモノポールアンテナのフォトレジストパターンを作製した後、パターン外の Au をウェットエッチングし、このパターンニングした Au 膜をマスクとして酸素プラズマエッチングを行って余分なグラフェンを除去した。(4)再度フォトリソグラフィと Au エッチングを行い、グラフェンのアンテナエレメントを形成した上で、TFSA/1-butanol 溶液を塗布しキャリアドーピングを施した。作製したグラフェンモノポールアンテナを図 3 (d) に示す。参照用として、グラフェンアンテナと同形状の Au (膜厚: 500 nm) を材料とするモノポールアンテナも作製して比較評価を行った。

## 4. 結果と考察

### 4.1 ドーピングした3層積層グラフェンの特性

作製した3層積層グラフェンの電気特性をホール効果測定によって評価した結果、及び可視域での透過率を測定した結果を表1にまとめた。表1には、キャリアドーピングを施していない(ドーピング無し)単層 CVD グラフェンと3層積層グラフェン膜の結果も併せて示している。我々が作製する転写 CVD グラフェンは p 型伝導性を示し、キャリアは正孔(ホール)である。3層積層することによってシート抵抗が  $750 \Omega/\text{sq}$  から  $580 \Omega/\text{sq}$  に低下し、更にドーピングを施すことによって、3層(ドーピング有り)のキャリア密度が3層(ドーピング無し)と比べ約 15 倍増大し、期待通りの強いキャリアドーピング効果を得ることができた。ド

表1: ホール効果測定と透過率測定の結果

	単層 (ドーピング無し)	3層 (ドーピング無し)	3層 (ドーピング有り)
シート抵抗 [ $\Omega/\text{sq}$ ]	750	580	80
キャリア密度 [ $\text{cm}^{-2}$ ]	$6.4 \times 10^{12}$	$4.5 \times 10^{12}$	$6.6 \times 10^{13}$
移動度 [ $\text{cm}^2/\text{Vs}$ ]	1,320	2,380	1,180
透過率 (550 nm) [%]	96.8	90.4	90.1

ーピング後の3層積層グラフェン膜のシート抵抗は80Ω/sqであり、シート抵抗を単層グラフェンの約1/9に低減させることに成功した。

図4に可視域の透過率スペクトルを示す(内挿図は2cm角ガラス基板上の3層積層グラフェン)。破線が3層積層グラフェンのドーピング前(Pristine)、実線が3層積層グラフェンのドーピング後(Doped)、点線が単層グラフェン(Pristine)の透過率スペクトルである。単層グラフェンでは理論値に近い約97%の透過率が可視域全体にわたって得られている。3層積層グラフェンでは、ドーピング前における透過率(波長550nm)は3層積層で90.4%であったが、ドーピング後のスペクトルはドーピング前後において可視域ではほとんど変化が無く、3層積層の透過率(波長550nm)は90.1%であった。このように、積層とドーピングによってシート抵抗を80Ω/sqまで低減させたグラフェン膜において、90%以上の高い可視光透過率が維持された。

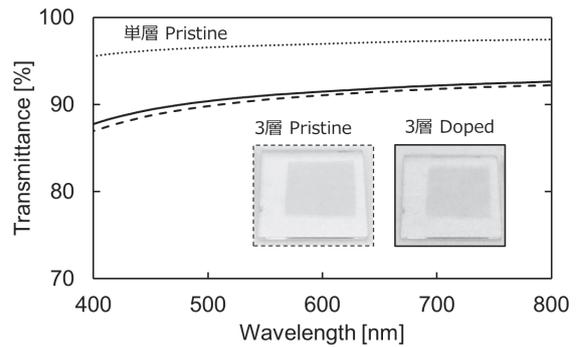


図4 (a)接地板付きモノポールアンテナの構造 (b)断面図(c)アンテナの作製プロセス(d)作製したグラフェン透明モノポールアンテナ

#### 4.2 グラフェンモノポールアンテナの特性

図5(a)に測定した反射係数(|S<sub>11</sub>|)を示す。グラフェンアンテナと併せて参照用Auアンテナのデータを示している。反射零点はグラフェンアンテナでは6.7GHz(-8.3dB)、Auアンテナでは11.9GHz(-10.1dB)で確認された。次に、以下の式を用いて算出した入力インピーダンスZ<sub>in</sub>を図5(b)に示す。

$$S_{11} = \frac{Z_{in} - 50}{Z_{in} + 50}$$

ここから、入力インピーダンスの虚部Im(Z<sub>in</sub>)がゼロとなる共振周波数f<sub>r</sub>は、グラフェンアンテナでは9.8GHz、Auアンテナでは6.3GHzであると決定した。

図6に、遠方界における6、8、10GHzでのグラフェンアンテナ、及びAuアンテナの放射パターンを示す。E面を実線で、H面を破線で示している。グラフェンアンテナとAuアンテナの放射パターンを同じ周波数で見比べると、ローブ数を含めて放射パターンの形状がおおよそ一致しており、作製したグラフェンアンテナが金属アンテナと同様の電波放射の振る舞いをしていると言える。このことから、通常の金属アンテナと同様にアンテナのサイズを小さくすることで高い周波数で動作するアンテナの作製が可能であり、5Gで使われる高周波数帯で動作する透明グラフェンアンテナ

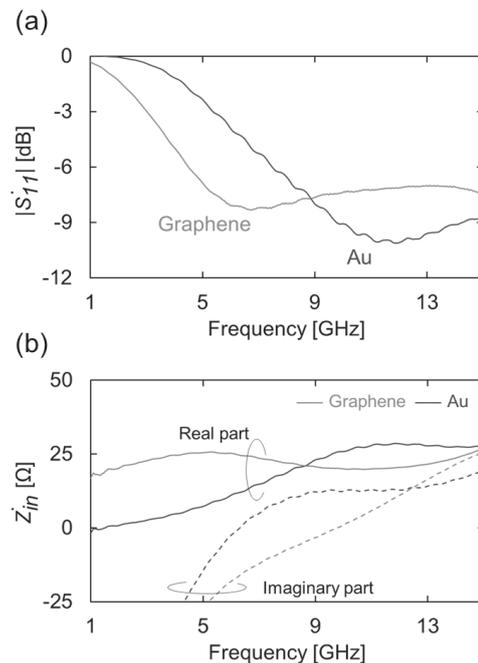


図5 (a)反射係数 |S<sub>11</sub>| (b)入力インピーダンス(Z<sub>in</sub>) (赤: グラフェン、青: Au)

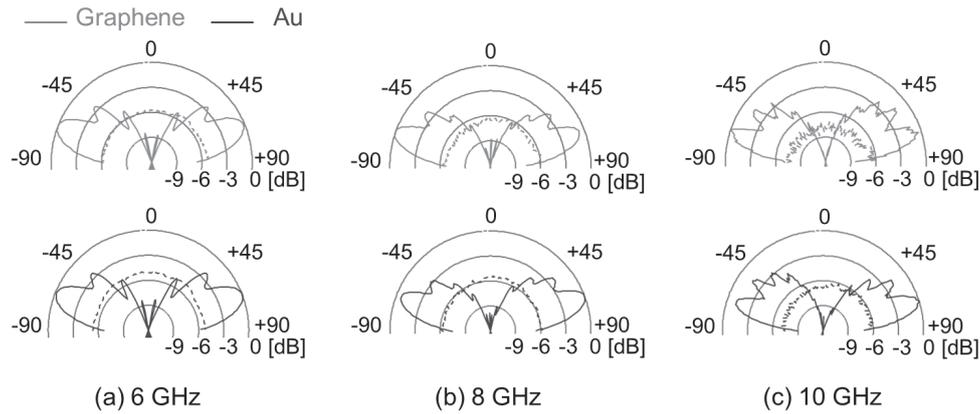


図6 放射パターン(実線:E面, 破線:H面)(赤:グラフェン、青: Au)

ナの作製が可能であると考えられる。

図7に最大放射方向における利得の周波数特性を示す。各アンテナの最大利得と共振周波数 $f_r$ における利得を表2にまとめた(給電用 Au 電極のみのデータも記載した)。グラフェンアンテナの共振周波数(9.8GHz)における利得(0.4dBi)は、Au アンテナの共振周波数(6.3GHz)における利得(2.8dBi)よりも3.2dBi低い値となった。次に、ホイラーキャップ法を用いて放射効率 $\eta$ の評価を行った。表3に、決定した放射抵抗 $R_r$ と損失抵抗 $R_L$ 、及び放射効率 $\eta (=R_r / (R_r + R_L))$ をまとめた。グラフェンアンテナの放射効率 $\eta$ は52.5%であり、Au アンテナの約1/2にまで到達していた。前述した共振周波数における利得差(3.2dBi)は約48%に相当し、ホイラーキャップ法で求めた放射効率(52.5%)とほぼ合致した。3層積層したグラフェンの厚さは1nm程度であるが、これを用いて作製した透明アンテナが、約500倍の厚さの不透明なAu アンテナのおよそ50%(3dB)の電波放射性能を有していることが分かった。今回得られた結果は、積層とキャリアドーピングを用い

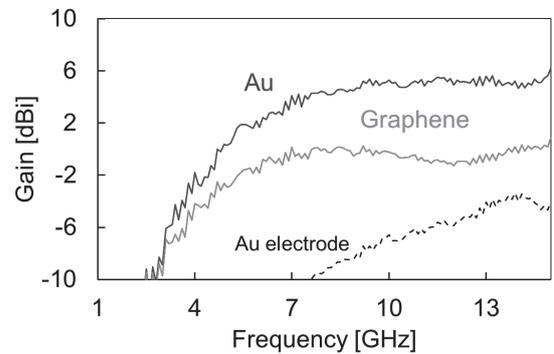


図7 最大放射方向における利得(赤:グラフェン、青: Au、黒:給電用 Au 電極のみ)

表2: 最大利得と共振周波数 $f_r$ における利得

	グラフェンアンテナ	Au アンテナ	Au 電極部のみ
最大利得	0.3 dBi (8.5 GHz)	5.5 dBi (11.5 GHz)	-5.1 dBi (12.4 GHz)
利得 (共振周波数)	0.4 dBi (9.8 GHz)	2.8 dBi (6.3 GHz)	-5.0 dBi (12.9 GHz)

表3: ホイラーキャップ法によって評価した放射抵抗、損失抵抗、放射効率

	放射抵抗 $R_r$	損失抵抗 $R_L$	放射効率 $\eta$
グラフェンアンテナ	10.6 $\Omega$	9.6 $\Omega$	52.5%
Au アンテナ	11.5 $\Omega$	0.5 $\Omega$	95.8%

た低抵抗化によってグラフェン透明アンテナが実用に向けて一歩近づいたことを示すものであると考えている。

## 5. 結論

今回、3層積層とキャリアドーピングにより90%以上の高い可視光透過率と $80\Omega/\text{sq}$ の低シート抵抗を併せ持つグラフェンを作製し、これを電極材料とするモノポールアンテナ金属的な電波放射パターンと約50%の放射効率を得ることができた。実験の詳細等、文献6) (オープンアクセス)に記載されているので是非参照されたい。今後、より効率的なキャリアドーピング技術の確立、及びキャリア移動度の向上に取り組むことで、さらなる低抵抗化を達成できる余地があると考えており、金属アンテナとの差(3dB)を小さくしていくことでグラフェン透明アンテナの実用化の可能性が開けるのではないかと期待している。

## 6. 謝辞

本研究は2019年度日本板硝子工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心から感謝いたします。

## 7. 参考文献

- 1) Z. J. Silva, C. R. Valenta, and G. D. Durgin, *IEEE Antennas Propag. Mag.*, **63**, 27 (2021).
- 2) A. Geim, K. Novoselov, *Nature Mater* **6**, 183 (2007).
- 3) R. Nair et al., *Science* **320**, 1308 (2008).
- 4) S. Kosuga, R. Suga, O. Hashimoto, and S. Koh, *Appl. Phys. Lett.*, **110**, 233102 (2017).
- 5) S. Kosuga, K. Suga, R. Suga, T. Watanabe, O. Hashimoto, and S. Koh, *Microw. Opt. Technol. Lett.*, **60**, 2992 (2018).
- 6) S. Kosuga, S. Nagata, S. Kuromatsu, R. Suga, T. Watanabe, O. Hashimoto, and S. Koh, *AIP Adv.*, **11**, 035136 (2021). OPEN ACCESS