

УДК 621.315

## Влияние осаждения частиц кобальта на квантовые поправки к проводимости Друде в твистированном CVD графене

© 2019 г. А. К. Федотов<sup>1</sup>, С. Л. Прищепа<sup>2,3</sup>, А. С. Федотов<sup>4</sup>, В. Э. Гуменник<sup>1,4</sup>,  
И. В. Комиссаров<sup>2,3</sup>, А. О. Конаков<sup>5</sup>, С. А. Воробьева<sup>5</sup>,  
О. А. Ивашкевич<sup>5</sup>, А. А. Харченко<sup>1,§</sup>

<sup>1</sup> *Научно-исследовательское учреждение «Институт ядерных проблем»  
Белорусского государственного университета,  
ул. Бобруйская, д. 11, Минск, 220006, Беларусь*

<sup>2</sup> *Белорусский государственный университет информатики и радиоэлектроники,  
ул. П. Бровки, д. 6, Минск, 220013, Беларусь*

<sup>3</sup> *Национальный исследовательский ядерный университет (МИФИ),  
Каширское ш., д. 31, Москва, 115409, Россия*

<sup>4</sup> *Белорусский государственный университет,  
просп. Независимости, д. 4, Минск, 220030, Беларусь*

<sup>5</sup> *«Научно-исследовательский институт физико-химических проблем»  
Белорусского государственного университета, ул. Ленинградская, д. 14, Минск, 220006, Беларусь*

**Аннотация.** Использование графена в электронике требует как экспериментального исследования процесса формирования высококачественных низкоомных контактов, так и углубления понимания механизмов электронного переноса в окрестности контакта металл/графен. В работе исследован транспорт носителей заряда в твистированном CVD графене, который декорирован электрохимически осажденными частицами Co, образующими омический контакт с графеновым слоем. Сопоставляются температурные и магнетопольные зависимости слоевого сопротивления  $R_{\square}(T, B)$  исходного и декорированного твистированного графена на подложке из оксида кремния. Показано сосуществование отрицательного (при индукции магнитного поля ниже 1 Тл) и положительного (индукция выше 1 Тл) вкладов в магниторезистивный эффект в обоих типах образцов. Зависимости  $R_{\square}(T, B)$  анализируются на основе теории двумерных интерференционных квантовых поправок к проводимости Друде с учетом конкуренции вклада от прыжкового механизма проводимости. Показано, что в изученной области температур (2—300 К) и магнитных полей (до 8 Тл) при описании транспорта носителей заряда в исследованном графене необходимо учитывать не менее трех интерференционных вкладов в проводимость: от слабой локализации, междолинного рассеяния и нарушения хиральности псевдоспина, а также короблением графена вследствие тепловых флуктуаций.

**Ключевые слова:** графен, структуры графен/металл, электротранспорт, магнетосопротивление

### Введение

В последнее десятилетие графен широко изучается благодаря таким его необычным физическим

свойствам как высокая электро- и теплопроводность, развитая удельной поверхность, высокая механическая прочность, гибкость и т. д. Согласно дорожной карте развития графеновой электроники [1],

**Федотов Александр Кириллович**<sup>1</sup> — доктор физ.-мат. наук, профессор, главный научный сотрудник, лаборатория физики перспективных материалов, e-mail: fedotov@bsu.by; **Прищепа Сергей Леонидович**<sup>2,3</sup> — доктор физ.-мат. наук, профессор, кафедра защиты информации (2), профессор, кафедра физики конденсированных сред (3), e-mail: prischera@bsuir.by; **Федотов Александр Сергеевич**<sup>4</sup> — канд. физ.-мат. наук, старший преподаватель кафедры компьютерного моделирования физического факультета, e-mail: fedotov.alexandro@gmail.com; **Гуменник Владислав Эдмундович**<sup>1,4</sup> — студент (1), стажер младшего научного сотрудника, лаборатория физики перспективных материалов (4), e-mail: vladgumennik@gmail.com; **Комиссаров Иван Владимирович**<sup>2,3</sup> — канд. физ.-мат. наук, ведущий научный сотрудник (2), доцент кафедры физики конденсированных сред (3), e-mail: komissarov@bsuir.by; **Конаков Артем Олегович**<sup>5</sup> — младший научный сотрудник, e-mail: artjom7777@gmail.com; **Воробьева Светлана Александровна**<sup>5</sup> — канд. хим. наук, ведущий научный сотрудник, e-mail: vorobyova@bsu.by; **Ивашкевич Олег Анатольевич**<sup>5</sup> — академик НАН Беларуси, доктор хим. наук, главный научный сотрудник лаборатории химии конденсированных сред, e-mail: ivashkevicho@bsu.by; **Харченко Андрей Андреевич**<sup>1,§</sup> — канд. физ.-мат. наук, старший научный сотрудник лаборатории физики перспективных материалов, e-mail: XaaTM@mail.ru

§ Автор для переписки

сочетание этих свойств позволяет рассчитывать на возможность создания гибридных наноструктур (например, металл/графен) для изготовления новых типов датчиков, преобразователей, мемристоров, спинтронных приборов, а также для применения в накопителях энергии, для магнитной визуализации биообъектов и т. д. [1—3]. Один из наиболее многообещающих подходов к синтезу таких композиционных структур является осаждение частиц различных магнитных и немагнитных металлов на поверхность графеновых слоев [4—6]. При этом, однако, одной из ключевых проблем использования графена в электронных устройствах остается сложность формирования низкоомных электрических контактов, которые не вносят искажений в кристаллическую решетку графена. Экспериментально показано, что омические электрические контакты проще получить на многослойном графене [2, 3, 7, 8]. Тем не менее, вопрос формирования качественных электрических контактов остается серьезной проблемой как с фундаментальной, так и с технологической точек зрения, что делает особенно важным необходимость понимания механизмов движения носителей заряда вблизи и через область контакта металл/графен.

Транспорт носителей заряда в наноструктурах типа металл/графен зависит от многих факторов. К их числу, во-первых, относятся метод синтеза (механическое отщепление, CVD, эпитаксия и т. д.) и тип графена (однослойный, многослойный, твистированный). Во-вторых, важную роль играет вид диэлектрической подложки (кварц, стекло, оксид кремния и др.), на которую графен осаждается либо переносится. И наконец, в-третьих, существенную роль играют тип, концентрация и распределение возможных дефектов в графеном слое, в том числе связанных с его поликристаллическостью, а также свойствами интерфейса на границе графена с электрическими контактами. Последние определяются, главным образом, типом осаждаемого металла и технологией его осаждения [1—3, 9]. Несмотря на большое количество структурных исследований, о CVD графене, к настоящему моменту, опубликовано относительно мало данных об электронных и гальваномагнитных свойствах образцов, представляющих собой островки металла на графене. Например, в работах [6, 9, 10, 11, 13, 14] исследовалось влияние электрохимического осаждения наночастиц кобальта на свойства твистированного графена. В частности, методами фотоэлектронной спектроскопии и магнитометрии показано, что осаждаемые частицы кобальта характеризуются заметным поверхностным окислением и склонны к формированию структуры типа «ядро Co — оболочка CoO». Тем не менее, электрохимическое осаждение позволяет сформировать омический электрический контакт [14].

Существует еще одна проблема, связанная с выявлением основных механизмов электротранспорта

в графене, несмотря на то, что на сегодняшний день исследованию гальваномагнитных свойств графеновых слоев и гибридных структур графен—металл посвящено достаточно много исследований. Дело в том, что подавляющее большинство таких исследований выполнено на образцах графена микронных размеров, полученных либо отщеплением от графита [12, 15—18] либо вырезанных из отдельных зерен поликристаллического графена [19—21]. Исследование же электротранспорта в магнитном поле для крупноразмерных образцов (доли и единицы миллиметра) проводилось в относительно небольшом количестве работ [22—26]. Очевидно, что в таких образцах существенную роль в электротранспорте начинают играть границы зерен и другие крупномасштабные дефекты (разрывы, коробление и др.).

В литературе, при описании низкотемпературного электротранспорта и магнетотранспорта в чистом графене, как правило, учитывают интерференционный механизм в рамках теории квантовых поправок к проводимости Друде в условиях слабой локализации [16—18, 27]. В случае сильной локализации, учитывается прыжковый механизм проводимости в рамках моделей Мотта [28] или Шкловского—Эфроса в нулевом магнитном поле [29], либо моделей Микошибы [30] и Альтшулера—Аронова—Хмельницкого [27] для электропереноса во внешнем магнитном поле. В промежуточном (между слабой и сильной локализацией) случае необходимо учитывать как интерференционные, так и прыжковые механизмы [19—21]. В композиционных структурах в виде графенового слоя, на который осажжены частицы (островки) металла, последние могут представлять собой пространственно-распределенный (дефрагментированный) металлический шунт [14, 31], который при приложении поперечного магнитного поля может искажать токовые пути в графеновом слое (из-за действия силы Лоренца) и делает возможным вклад в магнетотранспорт в виде экстраординарного магниторезистивного эффекта [32]. Очевидно, что сочетание перечисленных механизмов транспорта в структурах металл/графен должно определяться как дефектностью, так и способом получения исходного графена, а также состоянием границы раздела между металлом и графеновым слоем.

Цель работы — исследование влияния частиц кобальта на механизмы магнетотранспорта в композиционных структурах металл/графен, полученных электрохимическим осаждением частиц кобальта на твистированный CVD графен.

#### Методики получения образцов и эксперимента

В качестве рабочего слоя для осаждения частиц Co был выбран твистированный графен, поскольку он менее подвержен влиянию подложки по сравне-

нию с однослойным графеном [31, 33]. Кроме того, как отмечено выше, вероятность образования омического контакта металла с двуслойным графеном обычно выше, чем с однослойным [2, 3, 7, 8], .

Экспериментальные условия выращивания исследуемых слоев графена детально описаны в работах [14, 31, 33, 34]. Синтез осуществлялся методом химического осаждения из паровой фазы при атмосферном давлении на медную фольгу толщиной 25 мкм (чистота Alfa Aesar 99,8 %) из  $n$ -декана  $C_{10}H_{22}$  как прекурсора с азотом в качестве газа-носителя. Электрохимическое осаждение частиц Co на поверхность графенового слоя на медной фольге проводилось при постоянном токе с плотностью 2,5 мА/см<sup>2</sup> в течение 30 с при комнатной температуре. Использованный электролит содержал 0,96 г/л сульфата кобальта и 0,064 г/л хлорида натрия, растворенного в дистиллированной воде. Полученные образцы графена на медной фольге с электрохимически осажденными частицами Co были тщательно промыты дистиллированной водой и высушены при комнатной температуре. Для измерения электрических свойств до и после осаждения частиц Co слой графена переносился с медной фольги на подложки из оксидированного кремния. Перенос осуществлялся после растворения фольги меди в 1 М FeCl<sub>3</sub> и промывки в дистиллированной воде.

Морфологию поверхности образцов как на медной фольге, так и на подложках SiO<sub>2</sub>/Si изучали с помощью сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) на приборе Hitachi S4800. Последний был оборудован энергодисперсионным рентгеновским спектрометром Bruker QUANTAX 200 (EDXS), что давало возможность определения карты элементного состава материала. Качество графенового слоя также оценивалось с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) на приборе микрорамановского рассеяния Confotec NR500 с длиной волны возбуждения 473 нм и спектральным разрешением около 3 см<sup>-1</sup> [14, 33—36]. Мы дополнительно исследовали толщину графена, перенесенного на стекло, путем измерения пропускания света в диапазоне длин волн 400—800 нм (спектрометр PROSCAN MC-121). Значение коэффициента пропускания было более 94 % (при 550 нм), что позволяет сделать вывод о том, что среднее количество графеновых слоев равно двум.

Температурные и магнитополевые зависимости электропроводности  $R_{\square}(T, B)$  измерялись четырехзондовым методом на бескриогенной измерительной системе БИС (Cryogenics Ltd) на базе рефрижератора замкнутого цикла. Зависимости  $R_{\square}(T, B)$  измерялись в температурном диапазоне  $2 < T < 300$  К и в поперечном магнитном поле с индукцией  $B$  до 8 Т. Измерения проводились на образцах, расположенных на контактной площадке, показанной на рис. 1, а, с использованием 4-х ин-

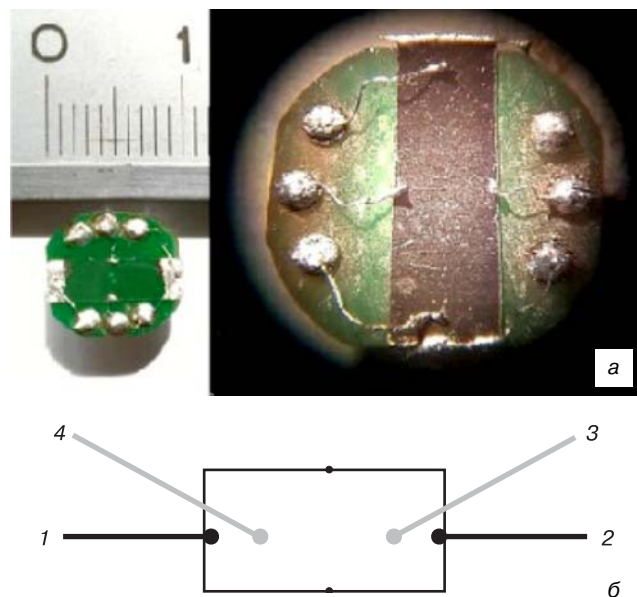


Рис. 1. Фотография образца на контактной площадке (а) и схема расположения измерительных контактов (б): 1, 2 — токовые контакты; 3, 4 — потенциальные контакты  
Fig. 1. Photograph of the sample on the contact pad (a) and the arrangement of the measuring contacts (b): (1, 2) current contacts, (3, 4) potential contacts

диевых (In) электрических контактов, в которые были впаяны медные микропроволоки диаметром 50 мкм. Измерительная ячейка с образцом на контактной площадке помещалась в специальный измерительный зонд, который находился в атмосфере газообразного гелия под низким давлением и включал термометры и датчики магнитного поля, а также нагреватели, тепловые экраны. Зонд вставлялся в канал сверхпроводящего соленоида внутри криостата в БИС. Ток через образец задавался и измерялся с помощью прибора Keithley 6430, который позволял определять электрическое сопротивление образцов в диапазоне от 100 мкОм до 10 ГОм с точностью не хуже 0,1 %. Температуру образцов контролировали диодами LakeShore, откалиброванными с точностью 0,005 К и воспроизводимостью 0,01 К. Температура стабилизировалась и измерялась с помощью контроллера LakeShore 331.

Слоевая проводимость определялась следующим образом: как

$$\sigma_{\square}(T) = \sigma(T) \left( \frac{L}{W} \right), \quad (1)$$

где  $\sigma(T)$  — проводимость образца;  $W$  — ширина токопроводящего канала (графенового слоя);  $L$  — расстояние между потенциальными контактами 3 и 4 на рис. 1, б. Относительное магнитосопротивление определяется как

$$MR = 100 \frac{R(B) - R(0)}{R(0)}, \quad (2)$$

где  $R(B)$  и  $R(0)$  — сопротивление в магнитном поле с индукцией  $B$  и в отсутствие магнитного поля

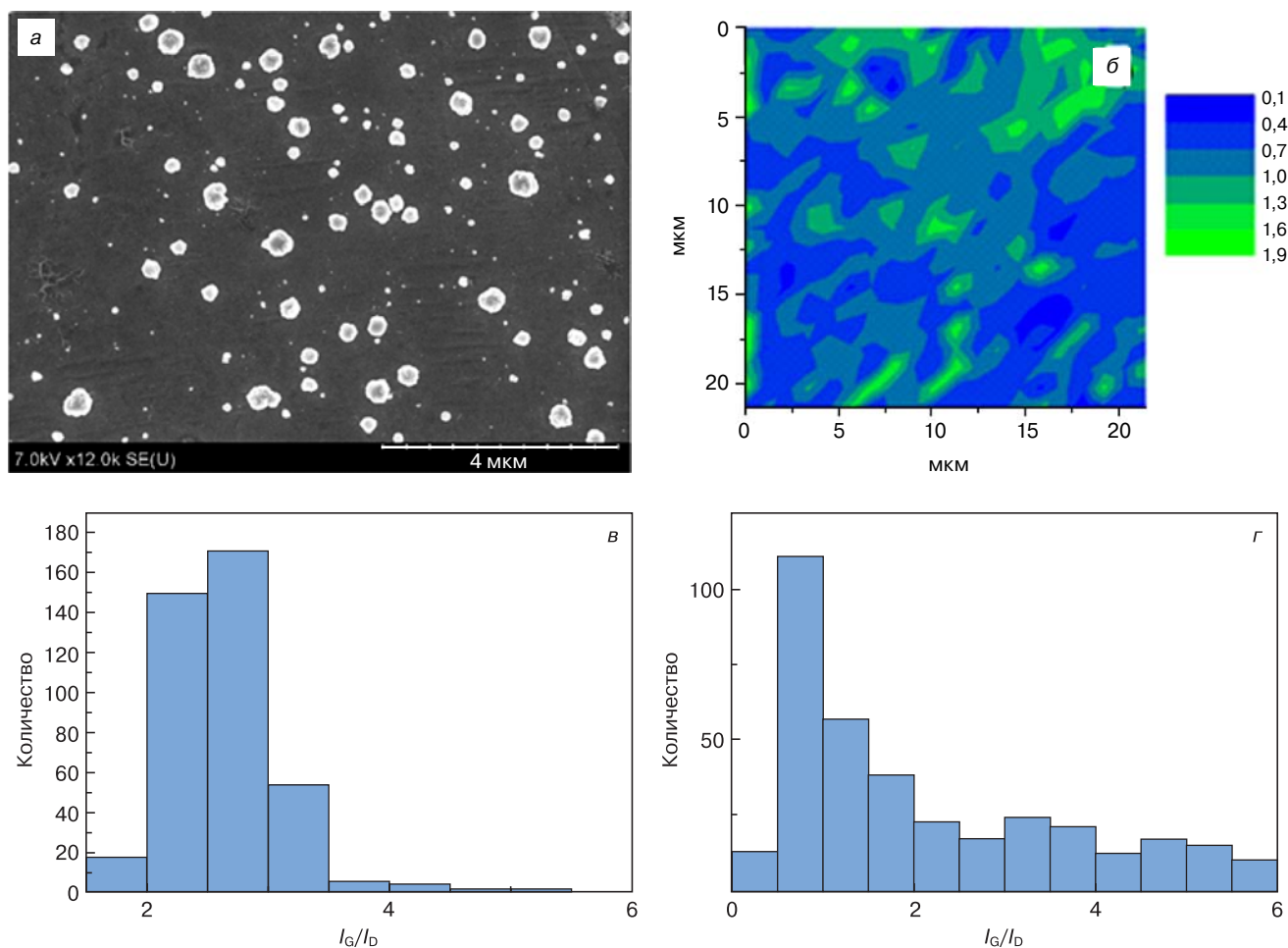


Рис. 2. Пример СЭМ изображения (а) и карта соотношения интенсивностей линий  $I_G/I_D$  (б) для образца  $Co-G/SiO_2$ , а также гистограммы отношения интенсивности пиков  $I_G/I_D$  рамановских спектров для  $G/SiO_2$  (в) и  $Co-G/SiO_2$  (г)

Fig. 2. An example of an SEM image (a) and a map of the ratio of the intensities of the  $I_G/I_D$  lines (б) for the  $Co-G/SiO_2$  sample, as well as histograms of the ratio of the intensities of the  $I_G/I_D$  peaks of the Raman spectra for  $G/SiO_2$  (v) and  $Co-G/SiO_2$  (r)

соответственно. Погрешность определения  $MR$  и  $\sigma_{\square}(T)$  не превышала 5 % и была обусловлена, преимущественно, погрешностью измерения геометрических параметров образца и электрических контактов.

### Результаты и их обсуждение

Типичные изображения СЭМ образцов графена, изображенное на рис. 2, а, с осажденными частицами  $Co$  ( $Co-Gr/SiO_2$ ) показывают, что средний диаметр  $\langle d \rangle$  частиц был близок к 200 нм. Кроме того, рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия образца  $Co-Gr/SiO_2$  показала, что металлические частицы на нем обладают структурой «кобальтовое ядро/оксидная оболочка  $CoO$ » [33, 34].

Исследование структуры исходного твистированного графена ( $G/SiO_2$ ) и образца  $Co-G/SiO_2$ , на который были осаждены частицы  $Co$ , проводилось методом микрорамановской спектроскопии. Детальный анализ рамановских спектров образцов описан в работах [14, 33—36]. Пространственное распределение соотношения интенсивности пиков  $I_G/I_D$

для образца  $Co-G/SiO_2$  представлено на рис. 2, б. Гистограммы отношения интенсивности пиков  $I_G/I_D$ , приведенные на рис. 2, в и г указывают на повышение дефектности твистированного графена после осаждения кобальта по сравнению с исходным образцом  $G/SiO_2$ .

На рис. 3 представлены температурные зависимости слоевой проводимости  $\sigma_{\square}(T)$  образцов  $G/SiO_2$  (кривая 1) и  $Co-G/SiO_2$  (кривая 2) в нулевом магнитном поле. Ход кривых 1 и 2 в виде роста проводимости при повышении температуры свидетельствует об активационном характере механизма электропереноса. Кроме того, наблюдается линейризация зависимостей  $\sigma_{\square}(T)$  в полулогарифмическом масштабе в области температур ниже 150—200 К.

Наличие таких линейных участков в координатах  $\sigma_{\square}(\log[T])$  обычно приписывают интерференционному вкладу в проводимость Друде в условиях слабой локализации [12, 15—18, 27, 37—40].

На рис. 3 наблюдаются признаки перехода к насыщению проводимости при температурах ниже 5—6 К. Последнее можно связать с тем, что в поликристаллическом CVD графене при понижении

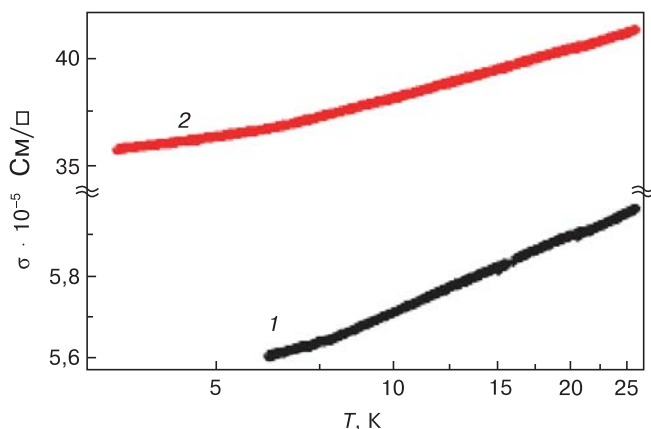


Рис. 3. Температурные зависимости слоевой проводимости  $\sigma_{\square}(T)$  в полулогарифмическом масштабе для образцов  $G/\text{SiO}_2$  (1) и  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (2)

Fig. 3. Temperature dependences of the layer conductivity  $\sigma_{\square}(T)$  on a semilogarithmic scale for samples  $G/\text{SiO}_2$  (1) and  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (2)

температуры длина свободного пробега стремится к размерам зерен [41]. Последнее может приводить к независимости проводимости от температуры из-за рассеяния носителей на границах зерен. Кроме того, как показано нами ранее в [14], сильная дефектность твистированного графена приводит к необходимости учета вклада от моттовского двумерного прыжкового механизма при температурах выше 10 К.

Как следует из результатов спектроскопии комбинационного рассеяния и СЭМ, осаждение частиц  $\text{Co}$  на слой твистированного графена усиливает дефектность образца  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$ , по сравнению с исходным  $G/\text{SiO}_2$ . Однако, несмотря на это, сравнение зависимостей 1 и 2 на рис. 3 указывает на явное уменьшение сопротивления после осаждения частиц  $\text{Co}$ . Это свидетельствует о формировании хорошего электрического контакта (без каких-либо барьеров) между частицами  $\text{Co}$  и графеновым слоем. Таким образом, как было отмечено в [14, 31], металлические кластеры шунтируют находящиеся под

ними границы зерен, имеющиеся в исходном поликристаллическом слое твистированного графена. Это означает, что фиксируемая с помощью РФЭС оболочка  $\text{CoO}$  присутствует только в верхней части частиц кобальта и отсутствует на интерфейсе кобальт/графен.

Естественно предположить, что осаждение частиц кобальта будет также сильно влиять на длину сбоя фазы носителей, когда они пересекают границу раздела между графеном и частицами  $\text{Co}$ . Согласно [14], время сбоя фазы, определенное в образце  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  из температурных зависимостей  $\sigma_{\square}(T)$ , возросло на порядок по сравнению с исходным образцом  $G/\text{SiO}_2$ . Однако, в указанной работе был проанализирован только вклад от интерференционных поправок к проводимости Друде, обусловленных лишь слабой локализацией [38, 40].

Для выявления роли других возможных вкладов в магнетотранспорт были проанализированы магнетопольные зависимости относительного магнетосопротивления  $MR(B, T)$ , представленные на рис. 4. Отметим три следующие важные особенности указанных зависимостей  $MR(B, T)$ . Во-первых, при низких температурах для обоих видов образцов наблюдается конкуренция отрицательного (**ОМРЭ**) и положительного (**ПМРЭ**) магнеторезистивного эффектов. Во-вторых, при температурах ниже 50 К вклад ОМРЭ преобладает только в магнитных полях менее 1 Тл. Кроме того, осаждение частиц  $\text{Co}$  приводит к уменьшению ОМРЭ, что следует из сравнения кривых 1—4 на рис. 4, а и б. В третьих, вклад ПМРЭ в  $MR(B, T)$  увеличивается с ростом как магнитной индукции  $B$ , так и температуры. В результате при  $T > 100$ —120 К ОМРЭ полностью подавляется и наблюдается только положительный магнеторезистивный эффект. При этом  $MR(B)$  для образцов  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (зависимости 5—7 на рис. 3, а) возрастает с температурой и магнитным полем значительно быстрее, чем в исходном образце  $G/\text{SiO}_2$ .

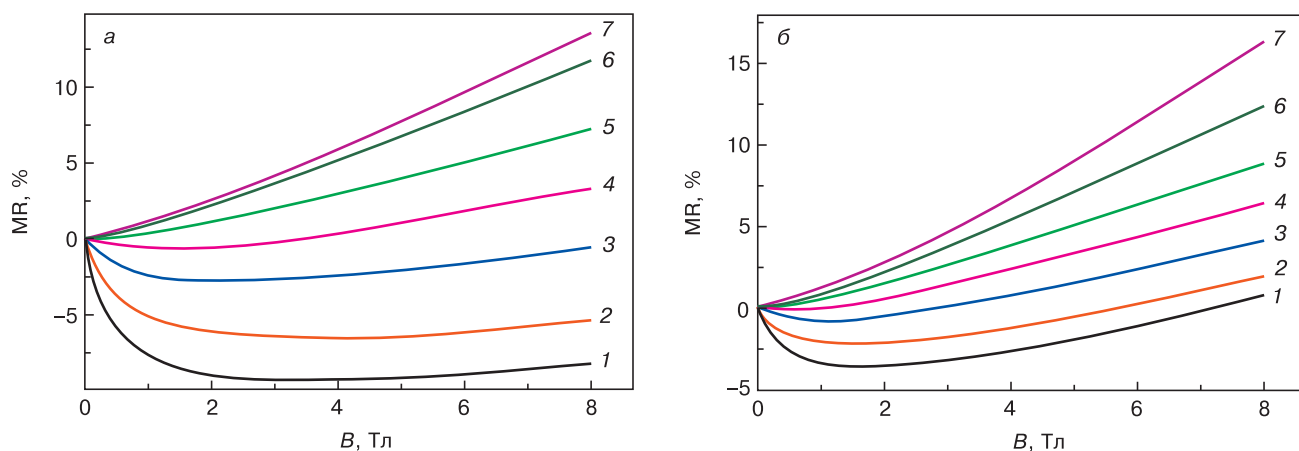


Рис. 4. Зависимости относительного магнетосопротивления  $MR$  в образцах  $G/\text{SiO}_2$  (а) и  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (б) от индукции магнитного поля  $B$  при температурах  $T = 5$  К (1), 10 К (2), 25 К (3), 50 К (4), 100 К (5), 200 К (6), 300 К (7)

Fig. 4. Dependences of the relative magnetoresistance  $MR$  in samples  $G/\text{SiO}_2$  (a) and  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (б) on the induction of magnetic field  $B$  at temperatures  $T = 5$  К (1), 10 К (2), 25 К (3), 50 К (4), 100 К (5), 200 К (6), 300 К (7)



Указанные особенности поведения  $MR(B, T)$  в области температур 2—300 К свидетельствует о возможном существовании в изученных образцах графена не только поправок, обусловленных слабой локализацией (они дают ОМРЭ в полях менее 1 Тл [38, 40]), но и других вкладов в интерференционные кантовые поправки к проводимости, приводящих к ПМРЭ. Согласно [18], в области ПМРЭ в графене основную роль начинают играть поправки, связанные с междолинным рассеянием и нарушением хиральности псевдоспина, а также короблением графена [38—40]. Указанные вклады (вместе с локализационной поправкой) в зависимость проводимости графена от магнитного поля  $\Delta\sigma(B) = [\sigma(0) - \sigma(B)]$  обычно описываются соотношениями типа

$$\Delta\sigma_{\square} = \frac{e^2}{\pi h} \left[ F\left(\frac{B}{B_{\phi}}\right) - F\left(\frac{B}{B_{\phi} + 2B_i}\right) - 2F\left(\frac{B}{B_{\phi} + B_{\square}}\right) \right], \quad (3)$$

где  $F(x) = \ln(x) + \psi(0,5 + x^{-1})$ , а  $\psi$  является дигамма-функцией. Здесь параметр  $x = B/B_{\phi, i, *}$  определяется отношением индукции внешнего магнитного поля  $B$  к некоторому характеристическому полю  $B_{\phi, i, *}$  процесса рассеяния. Характеристические поля  $B_{\phi, i, *}$  определяют времена сбоя фазы  $\tau_{\phi, i, *}$  носителей заряда для соответствующего процесса упругого или квазиупругого рассеяния. Эти времена определяются из соотношения

$$\tau_{\phi, i, *} = \frac{\hbar c}{4eD} B_{\phi, i, *}^{-1}, \quad (4)$$

где  $D$  — коэффициент диффузии электронов.

Первое слагаемое в выражении (3) с индексом  $\phi$  соответствует рассеянию на низкоэнергетичных фононах, второе слагаемое с индексом  $i$  — междолинному рассеянию, третье с индексом «\*» соответствует нарушению хиральности и наличию «ряби» (коробления) графена вследствие тепловых флуктуаций.

Для оценки характерных времен процессов, приводящих к появлению квантовых поправок к проводимости Друде, (см. соотношение (4)), необходимо определение коэффициента диффузии  $D$  носителей заряда. В работе Ф. В. Тихоненко [38] для оценки коэффициента диффузии  $D$  в графене предлагается выражение:

$$D = v_F \frac{l}{2}, \quad (5)$$

где  $v_F$  — фермиевская скорость носителей заряда;

$l$  — длина свободного пробега равная  $l = \frac{\hbar}{2e^2 k_F n}$ ;

$k_F$  — фермиевский импульс,  $n$  — концентрация носителей заряда. При этом считается, что в проводимости участвуют лишь те носители заряда, которые

находятся на поверхности Ферми. Таким образом, для бездефектного графена данный подход наиболее корректен в области низких температур.

Поскольку в изученных слоях графена квантовые поправки наблюдаются также при температурах существенно выше 25 К [26], мы предлагаем более общий подход для расчета  $D$ , который можно использовать и для высоких температур.

Представим проводящий образец как однородную среду, пренебрегая вкладом крупномасштабных дефектов, например, границ зерен. Будем полагать, что распределение носителей заряда по энергиям описывается функцией Ферми—Дирака

$$f(E) = \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1}.$$

Тогда концентрация носителей заряда может быть описана соотношением

$$n = \int f(E)g(E)dE, \quad (6)$$

где  $g(E)$  — зонная плотность состояний. Воспользуемся выражением

$$\sigma = e^2 D \left( \frac{\partial n}{\partial \mu} \right)_T, \quad (7)$$

из работы [43] для связи проводимости и коэффициента диффузии. В этой формуле величина  $\left( \frac{\partial n}{\partial \mu} \right)_T$  характеризует носители заряда, участвующие в переносе заряда. Поскольку химический потенциал  $\mu$  не входит в плотность состояний  $g(E)$ , соотношение (7) может быть переписано в виде:

$$\begin{aligned} \sigma &= e^2 D \int_{-\infty}^{+\infty} g(E) \frac{\partial}{\partial \mu} \left( \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1} \right) dE = \\ &= \frac{e^2 D}{kT} \int_0^{\infty} g(E) \left( \frac{\frac{E-\mu}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1}}{\left( \frac{E-\mu}{e^{\frac{E-\mu}{kT}} + 1} \right)^2} \right) dE = \\ &= \frac{e^2 D}{kT} \int_0^{\infty} g(E) f(E) (1 - f(E)) dE. \end{aligned} \quad (8)$$

Из последнего выражения и следует соотношение для коэффициента диффузии

$$D = \frac{\sigma kT}{e^2} \int_0^{\infty} f(E, \mu) [1 - f(E, \mu)] g(E) dE. \quad (9)$$

С помощью равенства (9) становится возможным оценивать средний (эффективный) коэффициент диффузии носителей заряда.

Предложенный метод расчета коэффициента диффузии дает следующие важные преимущества: а) возможность оценивать  $D$  путем изменения плотности состояний  $g(E)$  не только для однослойного графена, но и для двуслойного; б) возможность учитывать распределение носителей заряда по энергиям при температурах существенно выше гелиевых; в) возможность учета смещение уровня Ферми (химического потенциала)  $\mu$  при приложении к образцу внешнего электрического поля (например, при измерениях с третьим электродом).

Основным ограничением использования данного метода является то, что связь (8) между  $\sigma$  и  $D$  корректна только тогда, когда мы имеем дело с диффузионной (дрейфовой) проводимостью. При низких же температурах экспериментально измеренная проводимость  $\sigma$  может включать также вклад от прыжкового механизма переноса. Поэтому, при оценке коэффициента диффузии  $D$  необходимо убедиться, что в образце не наблюдается значительный вклад прыжковой проводимости, либо имеет-

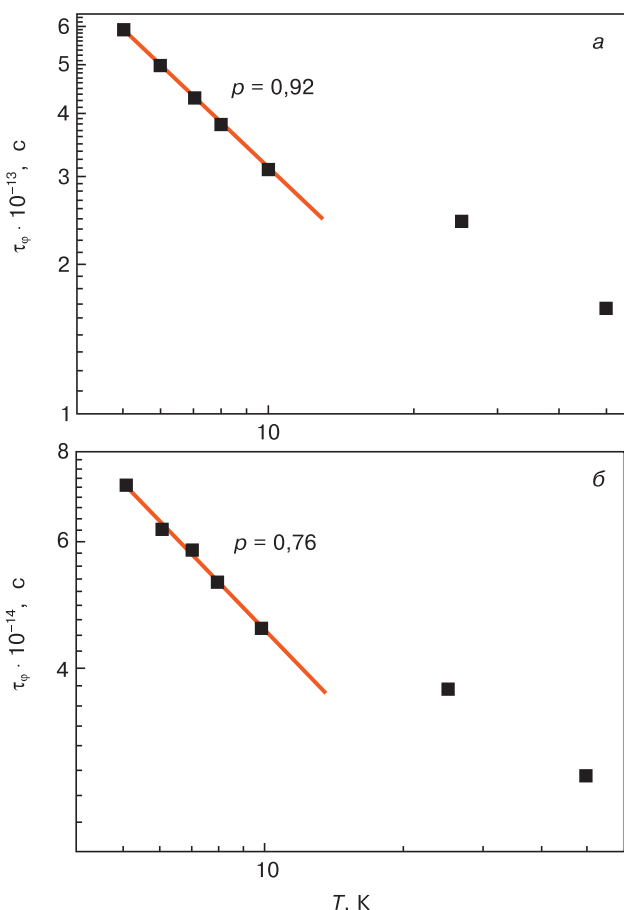


Рис. 5. Температурные зависимости времен сбоя фазы  $\tau_\phi(T)$  для вклада в квантовые поправки от слабой локализации в образцах  $G/\text{SiO}_2$  (а) и  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  (б). Точки — расчеты из экспериментальных зависимостей  $\Delta\sigma(B)$ , прямые — линейная аппроксимация

Fig. 5. Temperature dependences of phase failure times  $\tau_\phi(T)$  for the contribution to quantum corrections from weak localization in (a)  $G/\text{SiO}_2$  and (б)  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  samples. Points is calculations from experimental dependences  $\Delta\sigma(B)$ , straight lines is linear approximation

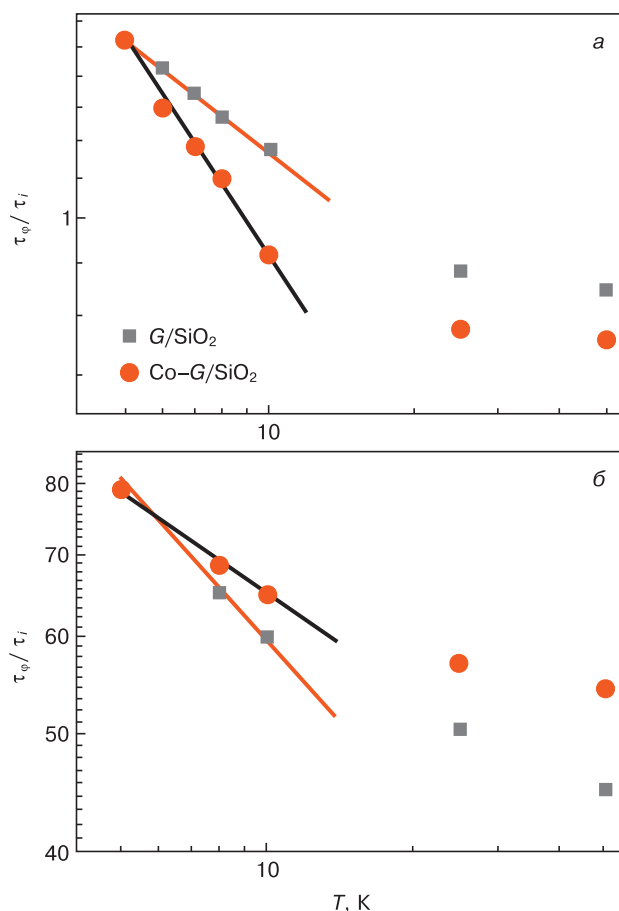


Рис. 6. Температурные зависимости отношения времен сбоя фазы  $\tau_\phi$  при рассеянии на низкоэнергетичных фононах ко временам сбоя фазы для процессов междолинного рассеяния  $\tau_l$  (а) и рассеяния, обусловленного нарушением хиральности  $\tau_l$  (б) для  $G/\text{SiO}_2$  и  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$ . Точки — расчеты из экспериментальных зависимостей  $\Delta\sigma(B)$ , прямые — линейная аппроксимация

Fig. 6. Temperature dependences of the ratio of phase failure times  $\tau_\phi$  during scattering by low-energy phonons to phase failure times for intervalley scattering  $\tau_l$  (a) and scattering due to chirality violation  $\tau_l$  (б) for  $G/\text{SiO}_2$  and  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$ . Points is calculations from experimental dependences  $\Delta\sigma(B)$ , straight lines is linear approximation

ся возможность разделить вклады прыжковой и дрейф-диффузионной проводимости.

Из магнетопольевых зависимостей ОМРЭ в соответствии с формулами (3) и (4) можно определить температурный ход времени сбоя фазы  $\tau_\phi(T)$ , обусловленного слабой локализацией [15—18, 39]. В формуле (4) величина  $D$  с помощью соотношения (8) была оценена как  $0,018 \text{ м}^2/\text{с}$  для образца  $G/\text{SiO}_2$  и  $0,025 \text{ м}^2/\text{с}$  для  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$ . Представленные на рис. 5 зависимости указывают, что ниже 10 К ход кривых  $\tau_\phi(T)$  в соответствии с теорией квантовых поправок может быть описан степенной зависимостью типа  $\tau_\phi(T) \sim T^{-p}$ , с показателем  $p \approx 0,92$  для образца  $G/\text{SiO}_2$  и  $p \approx 0,76$  для образца  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$ . Близость показателя степени к теоретическому значению  $p = 1$  в исходном графене  $G/\text{SiO}_2$  подтверждает, что сбой фазы в области ОМЭ обусловлен, в основном, упругим рассеянием электронов на низкоэнергетичных фононах [37, 39]. Уменьшение показателя  $p$

и времени сбоя фазы  $\tau_\phi$  в результате осаждения частиц кобальта, по-видимому, обусловлено их шунтированием границ зерен.

К сожалению, извлечение характеристических времен для других процессов рассеяния, которые определяют положительные вклады в квантовые поправки в области ПМРЭ [39, 40], сопряжено с трудностями. В частности входящие в эти члены характеристические магнитные поля включают суммы  $(B_\phi + 2B_i)$  и  $(B_\phi + B_*)$  от двух процессов, а обратное время рассеяния  $\tau_*^{-1}$ , учитывающее тепловые флуктуации в графене и входящее в характеристическое поле  $B_*$ , является суммой обратных времен, обусловленных как нарушением хиральности, так и междолинным рассеянием ( $\tau_*^{-1} = \tau_w^{-1} + \tau_i^{-1}$ ). Поэтому на рис. 6 представлены температурные зависимости отношений времени сбоя фазы  $\tau_\phi$  (оно определено выше) к соответствующим временам для процессов междолинного рассеяния  $\tau_i$  и рассеяния, обусловленного нарушением хиральности и «рябью»  $\tau_*$ . Как видно, характерные времена сбоя фазы для процессов междолинного рассеяния  $\tau_i$  для графена без Co примерно в два раза ниже времени сбоя фазы  $\tau_\phi$  для слабой локализации. В то же время, характеристические времена сбоя фазы обусловленные нарушением хиральности  $\tau_*$  уменьшаются почти на два порядка, по сравнению с  $\tau_\phi$ . Кроме того, по сравнению с исходным графеном, осаждение частиц кобальта приводит к снижению как  $\tau_i$ , так и  $\tau_*$ .

Заметим, что температурный ход этих отношений также имеет степенной вид  $\tau_i, \tau_* \sim T^{-p}$  в диапазоне температур 2—10 K, что следует из линеаризации кривых в двойных логарифмических координатах. При этом, наклон прямой после осаждения кобальта увеличивается для  $\tau_*$  (с  $p \approx 0,38$  до  $p \approx 0,77$ ) и уменьшается для  $\tau_i$  (с  $p \approx 0,42$  до  $p \approx 0,29$ ). Описанное поведение совпадает с результатами, описанными для однослойного графена в работах [42].

### Заключение

Показано, что в структурах  $G/\text{SiO}_2$  и  $\text{Co-G}/\text{SiO}_2$  при низких температурах наблюдается конкуренция отрицательного (ОМРЭ) и положительного (ПМРЭ) магниторезистивного эффекта. При этом обнаружено, что ОМРЭ подавляется полностью уже слабым магнитным полем (с индукцией  $B \leq 1$  Тл), а осаждение частиц Co на графеновый слой снижает вклад от ОМРЭ. Выявлено, что низкотемпературный электроперенос и магнетотранспорт в области ОМРЭ обусловлен главным образом локализационной квантовой поправкой к проводимости Друде. В магнитных полях выше 1 Тл (в области ПМРЭ) преобладают вклады в квантовые поправки, учитывающие междолинное рассеяние, нарушение хиральности и коробление графена. Обнаружено, что осаждение частиц кобальта приводит к некоторому увеличению

времени сбоя фазы  $\tau_\phi$  за счет слабой локализации, тогда как характеристические времена сбоя фазы за счет междолинного рассеяния  $\tau_i$  и нарушения хиральности  $\tau_*$ , наоборот, сильно уменьшаются.

### Библиографический список

1. Ferrari A. C., Bonaccorso F., Fal'ko V., Novoselov K. S., Roche S., Boggild P. et al. Science and technology roadmap for graphene, related two-dimensional crystals, and hybrid systems // *Nanoscale*. 2015. V. 7, N 11. P. 4598—4810. DOI: 10.1039/c4nr01600a
2. Liu Y., Liu Z., Lew W. S., Wang Q. J. Temperature dependence of the electrical transport properties in few-layer graphene interconnects // *Nanoscale Res. Lett.* 2013. V. 8. P. 335—340. DOI: 10.1186/1556-276X-8-335
3. Castro Neto A. H., Guinea F., Peres N. M. R., Novoselov K. S., Geim A. K. The electronic properties of graphene // *Rev. Mod. Phys.* 2009. V. 81, N 1. P. 109—115. DOI: 10.1103/RevModPhys.81.109
4. Asshoff P. U., Sambricio J. L., Rooney A. P., Slizovskiy S., Mishchenko A., Rakowski A. M., Hill E. W., Geim A. K., Haigh S. J., Fal'ko V. I., Vera-Marun I. J., Grigorieva I. V. Magnetoresistance of vertical Co-graphene-NiFe junctions controlled by charge transfer and proximity-induced spin splitting in graphene // *2D Mater.* 2017. V. 4, N 3. P. 031004. DOI: 10.1088/2053-1583/aa7452
5. Iqbal M. Z., Iqbal M. W., Lee J. H., Kim Y. S., Chun S.-H., Eom J. Spin valve effect of NiFe/graphene/NiFe junctions // *Nano Research*. 2013. V. 6. P. 373—380. DOI: 10.1007/s12274-013-0314-x
6. De Franco V. C., Castro G. M. B., Corredor J., Mendes D., Schmidt J. E. In-situ magnetization measurements and ex-situ morphological analysis of electrodeposited cobalt onto chemical vapor deposition graphene/SiO<sub>2</sub>/Si // *Carbon Lett.* 2017. V. 21. P. 16—22. DOI: 10.5714/CL.2017.21.016
7. Khatami Y., Li H., Xu C., Banerjee K. Metal-to-multilayer-graphene contact. Part I: Contact resistance modeling // *IEEE Trans. Electron. Devices*. 2012. V. 59, Iss. 9. P. 2444—2452. DOI: 10.1109/TED.2012.2205256
8. Ruhl G., Wittmann S., Koenig M., Neumaier D. The integration of graphene into microelectronic devices // *Beilstein J. Nanotechnol.* 2017. V. 8. P. 1056—1064. DOI: 10.3762/bjnano.8.107
9. Bayev V. G., Fedotova J. A., Kasiuk J. V., Vorobyova S. A., Sohar A. A., Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Prischepa S. L., Kargin N. I., Andrulevičius M., Przewoznik J., Kapusta Cz., Ivashkevich O. A., Tyutyunnikov S. I., Kolobylna N. N., Guryeva P. V. CVD graphene sheets electrochemically decorated with «core-shell» Co/CoO nanoparticles // *Appl. Surf. Sci.* 2018. V. 440. P. 1252—1260. DOI: 10.1016/j.apsusc.2018.01.245
10. Tuček J., Sofer Z., Bouša D., Pumera M., Holá K., Malá A., Poláková K., Havrdová M., Čépe K., Tomanec O., Zbořil R. Air-stable superparamagnetic metal nanoparticles entrapped in graphene oxide matrix // *Nature Commun.* 2016. V. 7. P. 12879. DOI: 10.1038/ncomms12879
11. Zhidkov I. S., Skorikov N. A., Korolev A. V., Kukharencov A. I., Kurmaev E. Z., Fedorov V. E., Cholakh S. O. Electronic structure and magnetic properties of graphene/Co composite // *Carbon*. 2015. V. 91. P. 298—303. DOI: 10.1016/j.carbon.2015.04.086
12. Sokolik A. A., Zabolotskiy A. D., Lozovik Yu. E. Many-body effects of Coulomb interaction on Landau levels in graphene // *Phys. Rev. B*. 2017. V. 95, Iss. 12. P. 125402-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.125402
13. Majumder C., Bhattacharya S., Saha S. K. Anomalous large negative magnetoresistance in transition-metal decorated graphene: Evidence for electron-hole puddles // *Phys. Rev. B*. 2019. V. 99, Iss. 4. P. 045408-1—13. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.045408
14. Fedotov A. K., Prischepa S. L., Fedotova J. A., Bayev V. G., Ronassi A. A., Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Vorobyova S. A., Ivashkevich O. A. Electrical conductivity and magnetoresistance in twisted graphene electrochemically decorated with Co particles // *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*. 2020. V. 117. P. 113790. DOI: 10.1016/j.physe.2019.113790
15. Jobst J., Waldmann D., Gornyi I. V., Mirlin A. D., Weber H. B. Electron-electron interaction in the magnetoresistance of graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2012. V. 108, Iss. 10. P. 106601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.106601
16. Morozov S. V., Novoselov K. S., Katsnelson M. I., Schedin F., Ponomarenko L. A., Jiang D., Geim A. K. Strong suppression of weak localization in graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2006. V. 97, Iss. 1. P. 016801-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.016801



17. Gorbachev R. V., Tikhonenko F. V., Mayorov A. S., Horsell D. W., Savchenko A. K. Weak localization in bilayer graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2007. V. 98, Iss. 17. P. 176805–1–4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.176805
18. Kechedzhi K., McCann E., Fal'ko V. I., Suzuura H., Ando T., Altshuler B. L. Weak localization in monolayer and bilayer graphene // *Eur. Phys. J. Spec.* 2007. V. 148. P. 39–54. DOI: 10.1140/epjst/e2007-00224-6
19. Shlimak I., Butenko A. V., Zion E., Richter V., Kaganovskii Yu., Wolfson L., Sharoni A., Haran A., Naveh D., Kogan E., Kaveh D. Structure and electron transport in irradiated monolayer graphene / In: *Future Trends in Electronics: Journey into Unknown*. John Wiley & Sons, Inc.: Hoboken (New Jersey), 2016. P. 217–231. DOI: 10.1002/9781119069225.ch2-9
20. Shlimak I., Haran A., Zion E., Havdala T., Kaganovskii Yu., Butenko A. V., Wolfson L., Richter V., Naveh D., Sharoni A., Kogan E., Kaveh M. Raman scattering and electrical resistance of highly disordered graphene // *Phys. Rev.* 2015. V. 91, Iss. 4. P. 045414–1–4. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.045414
21. Shlimak I., Zion E., Butenko A. V., Wolfson L., Richter V., Kaganovskii Yu., Sharoni A., Haran A., Naveh D., Kogan E., Kaveh M. Hopping magnetoresistance in ion irradiated monolayer graphene // *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*. 2016. V. 76. P. 158–163. DOI: 10.1016/j.physe.2015.10.025
22. Isacsson A., Cummings A. W., Colombo L., Colombo L., Kinaret J. M., Roche S. Scaling properties of polycrystalline graphene: a review // *2D Mater.* 2017. V. 4, Iss. 1. P. 012002–1–13. DOI: 10.1088/2053-1583/aa5147
23. Huang P. Y., Ruiz-Vargas C. S., van der Zande A. M., Whitney W. S., Levendorf M. P., Kevek J. W., Garg S., Alden J. S., Hustedt C. J., Zhu Y., Park J., McEuen P. L., Muller D. A. Grains and grain boundaries in single-layer graphene atomic patchwork quilts // *Nature*. 2011. V. 469. P. 389–392. DOI: 10.1038/nature09718
24. Wang C., Wang J., Barber A. H. Stress concentrations in nanoscale defective graphene // *AIP Advance*. 2017. V. 7, Iss. 11. P. 115001. DOI: 10.1063/1.4996387
25. Lebedev A. A., Agrinskaya N. V., Lebedev S. P., Mynbaeva M. G., Petrov V. N., Smirnov A. N., Strel'chuk A. M., Titkov A. N., Shamshur D. V. Low-temperature transport properties of multigraphene films grown on the SiC surface by sublimation // *Semiconductors*. 2011. V. 45. P. 623–627. DOI: 10.1134/S1063782611050186
26. Ramnani P., Neupane M. R., Ge S., Balandin A. A., Lake R. K., Mulchandani A. Raman spectra of twisted CVD bilayer graphene // *Carbon*. 2017. V. 123. P. 302–306. DOI: 10.1016/j.carbon.2017.07.064
27. Altshuler B. L., Aronov A. G., Khmel'nitsky D. E. Effects of electron-electron collisions with small energy transfers on quantum localisation // *J. Phys. C: Solid State Phys.* 1982. V. 15, N 36. P. 7367–7386. DOI: 10.1088/0022-3719/15/36/018
28. Shklovskii B. I., Efros A. L. *Electronic properties of doped semiconductors*. Springer Series in Solid-State Sciences. V. 45. Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag, 1984. 388 p. DOI: 10.1007/978-3-662-02403-4
29. Shklovskii B. I. Hopping conductivity of semiconductors in strong magnetic fields // *JETP*. 1972. V. 34, N 5. P. 1084–1088. URL: [http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e\\_034\\_05\\_1084.pdf](http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e_034_05_1084.pdf)
30. Mikoshiba N. Weak-field magnetoresistance of hopping conduction in simple semiconductors // *J. Phys. Chem. Solids*. 1963. V. 24, Iss. 3. P. 341–346. DOI: 10.1016/0022-3697(63)90192-6
31. Bayev V., Fedotova J., Humennik U., Vorobyova S., Konakow A., Fedotov A., Svitlo I., Rybin M., Obratsova E. Modification of electric transport properties of CVD graphene by electrochemical deposition of cobalt nanoparticles // *Intern. J. Nanoscience*. 2019. V. 18, N 03n04. P. 1940041–1–4. DOI: 10.1142/S0219581X19400416
32. Solin S. A., Tineke Thio, Hines D. R., Heremans J. J. Enhanced room-temperature geometric magnetoresistance in inhomogeneous narrow-gap semiconductors // *Science*. 2000. V. 289, Iss. 5484. P. 1530–1532. DOI: 10.1126/science.289.5484.1530
33. Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Labunov V. A., Girel K. V., Korolik O. V., Tivanov M. S., Lazauskas A., Andrulevičius M., Tamulevičius T., Grigaliūnas V., Meškinis Š., Tamulevičius S., Prischepa S. L. Nitrogen-doped twisted graphene grown on copper by atmospheric pressure CVD from a decane precursor // *Beilstein J. Nanotechnol.* 2017. V. 8. P. 145–158. DOI: 10.3762/bjnano.8.15
34. Kovalchuk N. G., Nigirish K. A., Mikhalik M. M., Kargin N. I., Komissarov I. V., Prischepa S. L. Possibility of determining the graphene doping level using Raman spectra // *J. Appl. Spectrosc.* 2018. V. 84. P. 995–998. DOI: 10.1007/s10812-018-0576-x
35. Chung T.-F., Xu Y., Chen Y. P. Transport measurements in twisted bilayer graphene: Electron-phonon coupling and Landau level crossing // *Phys. Rev. B*. 2018. V. 98, Iss. 3. P. 035425. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.035425
36. Shih C.-J., Vijayaraghavan A., Krishnan R., Sharma R., Han J.-H., Ham M.-H., Jin Z., Lin S., Paulus G. L. C., Reuel N. F., Wang Q. H., Blankschtein D., Strano M. S. Bi- and trilayer graphene solutions // *Nat. Nanotechnol.* 2011. V. 6, Iss. 7. P. 439–445. DOI: 10.1038/nnano.2011.94
37. Pudalov V. M. Metallic conduction, apparent metal-insulator transition and related phenomena in two-dimensional electron liquid / In: *Proceedings of the International School of Physics «Enrico Fermi»*. V. 157: The Electron Liquid Paradigm in Condensed Matter Physics. IOS Press, 2004. P. 335–356. DOI: 10.3254/978-1-61499-013-0-335
38. Tikhonenko F. V., Horsell D. W., Gorbachev R. V., Savchenko A. K. Weak localization in graphene flakes // *Phys. Rev. Lett.* 2008. V. 100, Iss. 5. P. 056802. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.056802
39. McCann E., Kechedzhi K., Fal'ko V. I., Suzuura H., Ando T., Altshuler B. L. Weak-localization magnetoresistance and valley symmetry in graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2006. V. 97, Iss. 14. P. 146805. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.146805
40. Kechedzhi K., Fal'ko V. I., McCann E., Altshuler B. L. Influence of trigonal warping on interference effects in bilayer graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2007. V. 98, Iss. 17. P. 176806. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.176806
41. Tikhonenko F. V., Kozikov A. A., Savchenko A. K., Gorbachev R. V. Transition between electron localization and antilocalization in graphene // *Phys. Rev. Lett.* 2009. V. 103, Iss. 22. P. 226801–1–4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.226801
42. Araujo E. N. D., Brant J. C., Archanjo B. S., Medeiros-Ribeiro G., Alves E. S. Quantum corrections to conductivity in graphene with vacancies // *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*. 2018. V. 100. P. 40–44. DOI: 10.1016/j.physe.2018.02.025
43. Бонч-Бруевич В. Л., Калашников С. Г. *Физика полупроводников*. М.: Наука, 1977. 672 с.

*Работа выполнена при финансовой поддержке Государственной программы «Фотоника, опто- и микроэлектроника» (задание 3.3.01), Государственного комитета по науке и технике Республики Беларусь (проект БРФФИ F18PLSHG–005), и контракта № 08626319/182161170–74 с ОИЯИ (Российская Федерация). С. Л. Прищепина и И. В. Комиссаров признательны за финансовую поддержку «Программы повышения конкурентоспособности» Национального исследовательского ядерного университета МИФИ. Авторы выражают благодарность канд. физ.-мат. наук И. А. Свито (БГУ) за проведение измерений электрических свойств и аспиранту А. В. Пашкевича (ИЯФ БГУ) за помощь при подготовке статьи.*

*Статья поступила в редакцию 3 ноября 2019 г.*

*Izvestiya vuzov. Materialy elektronnoi tekhniki = Materials of Electronics Engineering.* 2019, vol. 22, no. 2, pp. 73–83.  
DOI: 10.17073/1609-3577-2019-2-73-83

## Influence of deposition of cobalt particles on quantum corrections to Drude conductivity in twisted CVD graphene

A. K. Fedotov<sup>1</sup>, S. L. Prishchepa<sup>2,3</sup>, A. S. Fedotov<sup>4</sup>, V. E. Gumennik<sup>1,4</sup>, I. V. Komissarov<sup>2,3</sup>,  
A. O. Konakov<sup>5</sup>, S. A. Vorobyova<sup>5</sup>, O. A. Ivashkevich<sup>5</sup>, A. A. Kharchenko<sup>1,§</sup>

<sup>1</sup> *Research Scientific Institute for Nuclear Problems of Belarusian State University, 11 Bobruiskaya Str., Minsk 220030, Belarus*

<sup>2</sup> *Belarusian State University of Informatics and Radioelectronics, 6 P. Brovka Str., Minsk 220013, Belarus*

<sup>3</sup> *National Research Nuclear University MEPhI, 31 Kashirskoe Shosse, Moscow 115409, Russia*

<sup>4</sup> *Belarusian State University, 4 Nezavisimosti Ave., Minsk 220030, Belarus*

<sup>5</sup> *Research Institute for Physical Chemical Problems of the Belarusian State University, 14 Leningradskaya Str., Minsk 220006, Belarus*

**Abstract.** The use of graphene in electronics requires both an experimental study of the formation of high-quality low-resistance contacts and a deeper understanding of the mechanisms of electron carrier transport in graphene sheets and in the vicinity of metal / graphene interface. In this work, we studied the charge carrier transport in twisted CVD graphene, which was decorated with electrochemically deposited Co particles forming an ohmic contact with the graphene sheet. The temperature and magnetic field dependences of the sheet resistance  $R_{\square}(T, B)$  in the pristine and decorated twisted graphene on silicon oxide substrate are compared. The coexistence of the negative (at magnetic fields with induction  $B$  below 1 T) and positive ( $B$  higher than 1 T) contributions to the magnetoresistive effect in both types of samples is shown. The  $R_{\square}(T, B)$  dependences are analyzed in framework of the theory of two-dimensional interference quantum corrections to Drude conductivity, taking into account the competition of the contribution from the hopping conduction mechanism. It has been shown that in the studied temperatures range (2–300 K) and magnetic fields (up to 8 T), when describing the transport of charge carriers in the studied samples, it is necessary to take into account at least three interference contributions to the conductivity: from weak localization, intervalley scattering, and breaking of pseudospin chirality, as well as warping of graphene due to thermal fluctuations.

**Keywords:** graphene, graphene/metal structures, electric transport, magnetoresistance

### References

1. Ferrari A. C., Bonaccorso F., Fal'ko V., Novoselov K. S., Roche S., Bøggild P. et al. Science and technology roadmap for graphene, related two-dimensional crystals, and hybrid systems. *Nanoscale*, 2015, vol. 7, no. 11, pp. 4598–4810. DOI: 10.1039/c4nr01600a
2. Liu Y., Liu Z., Lew W. S., Wang Q. J. Temperature dependence of the electrical transport properties in few-layer graphene interconnects. *Nanoscale Res. Lett.*, 2013, vol. 8, pp. 335–340. DOI: 10.1186/1556-276X-8-335
3. Castro Neto A. H., Guinea F., Peres N. M. R., Novoselov K. S., Geim A. K. The electronic properties of graphene. *Rev. Mod. Phys.*, 2009, vol. 81, no. 1, pp. 109–115. DOI: 10.1103/RevModPhys.81.109
4. Asshoff P. U., Sambricio J. L., Rooney A. P., Slizovskiy S., Mishchenko A., Rakowski A. M., Hill E. W., Geim A. K., Haigh S. J., Fal'ko V. I., Vera-Marun I. J., Grigorieva I. V. Magnetoresistance of vertical Co-graphene-NiFe junctions controlled by charge transfer and proximity-induced spin splitting in graphene. *2D Mater.*, 2017, vol. 4, no. 3, p. 031004. DOI: 10.1088/2053-1583/aa7452
5. Iqbal M. Z., Iqbal M. W., Lee J. H., Kim Y. S., Chun S.-H., Eom J. Spin valve effect of NiFe/graphene/NiFe junctions. *Nano Research*, 2013, vol. 6, pp. 373–380. DOI: 10.1007/s12274-013-0314-x
6. De Franco V. C., Castro G. M. B., Corredor J., Mendes D., Schmidt J. E. In-situ magnetization measurements and ex-situ mor-

phological analysis of electrodeposited cobalt onto chemical vapor deposition graphene/SiO<sub>2</sub>/Si. *Carbon Lett.*, 2017, vol. 21, pp. 16–22. DOI: 10.5714/CL.2017.21.016

7. Khatami Y., Li H., Xu C., Banerjee K. Metal-to-multilayer-graphene contact. Part I: Contact resistance modeling. *IEEE Trans. Electron. Devices*, 2012, vol. 59, no. 9, pp. 2444–2452. DOI: 10.1109/TED.2012.2205256

8. Ruhl G., Wittmann S., Koenig M., Neumaier D. The integration of graphene into microelectronic devices. *Beilstein J. Nanotechnol.*, 2017, vol. 8, pp. 1056–1064. DOI: 10.3762/bjnano.8.107

9. Bayev V. G., Fedotova J. A., Kasiuk J. V., Vorobyova S. A., Sohor A. A., Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Prischepa S. L., Kargin N. I., Andrulevičius M., Przewoznik J., Kapusta Cz., Ivashkevich O. A., Tyutyunnikov S. I., Kolobylina N. N., Guryeva P. V. CVD graphene sheets electrochemically decorated with «core-shell» Co/CoO nanoparticles. *Appl. Surf. Sci.*, 2018, vol. 440, pp. 1252–1260. DOI: 10.1016/j.apsusc.2018.01.245

10. Tuček J., Sofer Z., Bouša D., Pumera M., Holá K., Malá A., Poláková K., Havrdová M., Čépe K., Tomanec O., Zbořil R. Air-stable superparamagnetic metal nanoparticles entrapped in graphene oxide matrix. *Nature Commun.*, 2016, vol. 7, p. 12879. DOI: 10.1038/ncomms12879

11. Zhidkov I. S., Skorikov N. A., Korolev A. V., Kukharrenko A. I., Kurmaev E. Z., Fedorov V. E., Cholakh S. O. Electronic

### Information about authors:

**Fedotov Alexander Kirillovich**<sup>1</sup>: Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Chief Researcher Laboratory of Physics of Prospective Materials (fedotov@bsu.by); **Sergey L. Prishchepa**<sup>2,3</sup>: Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Professor of the Information Security Department (2), Professor of the Condensed Matter Physics Department (3) (prischepa@bsuir.by); **Alexander S. Fedotov**<sup>4</sup>: Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Lecturer, Department of Computer Simulations (fedotov.alexandro@gmail.com); **Vladislav E. Gumennik**<sup>1,4</sup>: Student (1), Researcher Laboratory of Physics of Prospective Materials (4) (vladgumennik@gmail.com); **Ivan V. Komissarov**<sup>2,3</sup>: Cand. Sci. (Phys.–Math.), Leading Scientist of the Research Department (2), Associated Professor of the Condensed Matter Physics Department (3) (komissarov@bsuir.by); **Artem O. Konakov**<sup>5</sup>: Junior Researcher (artjom7777@gmail.com); **Svetlana A. Vorobyova**<sup>5</sup>: Cand. Sci. (Chem.), Leading Researcher (vorobyova@bsu.by); **Oleg A. Ivashkevich**<sup>5</sup>: Academician of the NASB, Dr. Sci. (Chem.), Chief Researcher (ivashkevich@bsu.by); **Andrei A. Kharchenko**<sup>1,§</sup>: Cand. Sci. (Phys.–Math.), Senior Researcher, Laboratory of Physics of Prospective Materials (XaaTM@mail.ru)

§ Corresponding author

- structure and magnetic properties of graphene/Co composite. *Carbon*, 2015, vol. 91, pp. 298—303. DOI: 10.1016/j.carbon.2015.04.086
12. Sokolik A. A., Zabolotskiy A. D., Lozovik Yu. E. Many-body effects of Coulomb interaction on Landau levels in graphene. *Phys. Rev. B*, 2017, vol. 95, no. 12, pp. 125402-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.125402
  13. Majumder C., Bhattacharya S., Saha S. K. Anomalous large negative magnetoresistance in transition-metal decorated graphene: Evidence for electron-hole puddles. *Phys. Rev. B*, 2019, vol. 99, no. 4, pp. 045408-1—13. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.045408
  14. Fedotov A. K., Prischepa S. L., Fedotova J. A., Bayev V. G., Ronassi A. A., Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Vorobyova S. A., Ivashkevich O. A. Electrical conductivity and magnetoresistance in twisted graphene electrochemically decorated with Co particles. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 2020, vol. 117, p. 113790. DOI: 10.1016/j.physe.2019.113790
  15. Jobst J., Waldmann D., Gornyi I. V., Mirlin A. D., Weber H. B. Electron-electron interaction in the magnetoresistance of graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2012, vol. 108, no. 10, p. 106601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.106601
  16. Morozov S. V., Novoselov K. S., Katsnelson M. I., Schedin F., Ponomarenko L. A., Jiang D., Geim A. K. Strong suppression of weak localization in graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, vol. 97, no. 1, pp. 016801-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.016801
  17. Gorbachev R. V., Tikhonenko F. V., Mayorov A. S., Horsell D. W., Savchenko A. K. Weak localization in bilayer graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, vol. 98, no. 17, pp. 176805-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.176805
  18. Kechedzhi K., McCann E., Fal'ko V. I., Suzuura H., Ando T., Altshuler B. L. Weak localization in monolayer and bilayer graphene. *Eur. Phys. J. Spec.*, 2007, vol. 148, pp. 39—54. DOI: 10.1140/epjst/e2007-00224-6
  19. Shlimak I., Butenko A. V., Zion E., Richter V., Kaganovskii Yu., Wolfson L., Sharoni A., Haran A., Naveh D., Kogan E., Kaveh D. Structure and electron transport in irradiated monolayer graphene. In: *Future Trends in Electronics: Journey into Unknown*. John Wiley & Sons, Inc.: Hoboken (New Jersey), 2016, pp. 217—231. DOI: 10.1002/9781119069225.ch2-9
  20. Shlimak I., Haran A., Zion E., Havdala T., Kaganovskii Yu., Butenko A. V., Wolfson L., Richter V., Naveh D., Sharoni A., Kogan E., Kaveh M. Raman scattering and electrical resistance of highly disordered graphene. *Phys. Rev.*, 2015, vol. 91, no. 4, pp. 045414-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.045414
  21. Shlimak I., Zion E., Butenko A. V., Wolfson L., Richter V., Kaganovskii Yu., Sharoni A., Haran A., Naveh D., Kogan E., Kaveh M. Hopping magnetoresistance in ion irradiated monolayer graphene. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 2016, vol. 76, pp. 158—163. DOI: 10.1016/j.physe.2015.10.025
  22. Isaacson A., Cummings A. W., Colombo L., Colombo L., Kinaret J. M., Roche S. Scaling properties of polycrystalline graphene: a review. *2D Mater.*, 2017, vol. 4, no. 1, pp. 012002-1—13. DOI: 10.1088/2053-1583/aa5147
  23. Huang P. Y., Ruiz-Vargas C. S., van der Zande A. M., Whitney W. S., Levendorf M. P., Kevek J. W., Garg S., Alden J. S., Hustedt C. J., Zhu Y., Park J., McEuen P. L., Muller D. A. Grains and grain boundaries in single-layer graphene atomic patchwork quilts. *Nature*, 2011, vol. 469, pp. 389—392. DOI: 10.1038/nature09718
  24. Wang C., Wang J., Barber A. H. Stress concentrations in nanoscale defective graphene. *AIP Advance*, 2017, vol. 7, no. 11, p. 115001. DOI: 10.1063/1.4996387
  25. Lebedev A. A., Agrinskaya N. V., Lebedev S. P., Mynbaeva M. G., Petrov V. N., Smirnov A. N., Strel'chuk A. M., Titkov A. N., Shamshur D. V. Low-temperature transport properties of multigraphene films grown on the SiC surface by sublimation. *Semiconductors*, 2011, vol. 45, pp. 623—627. DOI: 10.1134/S1063782611050186
  26. Ramnani P., Neupane M. R., Ge S., Balandin A. A., Lake R. K., Mulchandani A. Raman spectra of twisted CVD bilayer graphene. *Carbon*, 2017, vol. 123, pp. 302—306. DOI: 10.1016/j.carbon.2017.07.064
  27. Altshuler B. L., Aronov A. G., Khmel'nitsky D. E. Effects of electron-electron collisions with small energy transfers on quantum localisation. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 1982, vol. 15, no. 36, pp. 7367—7386. DOI: 10.1088/0022-3719/15/36/018
  28. Shklovskii B. I., Efros A. L. Electronic properties of doped semiconductors. Springer Series in Solid-State Sciences. Vol. 45. Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag, 1984. 388 p. DOI: 10.1007/978-3-662-02403-4
  29. Shklovskii B. I. Hopping conductivity of semiconductors in strong magnetic fields. *JETP*, 1972, vol. 34, no. 5, pp. 1084—1088. URL: [http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e\\_034\\_05\\_1084.pdf](http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e_034_05_1084.pdf)
  30. Mikoshiba N. Weak-field magnetoresistance of hopping conduction in simple semiconductors. *J. Phys. Chem. Solids*, 1963, vol. 24, no. 3, pp. 341—346. DOI: 10.1016/0022-3697(63)90192-6
  31. Bayev V., Fedotova J., Humennik U., Vorobyova S., Konakov A., Fedotov A., Svitlo I., Rybin M., Obratsova E. Modification of electric transport properties of CVD graphene by electrochemical deposition of cobalt nanoparticles. *Intern. J. Nanoscience*, 2019, vol. 18, no. 03n04, pp. 1940041-1—4. DOI: 10.1142/S0219581X19400416
  32. Solin S. A., Tineke Thio, Hines D. R., Heremans J. J. Enhanced room-temperature geometric magnetoresistance in inhomogeneous narrow-gap semiconductors. *Science*, 2000, vol. 289, no. 5484, pp. 1530—1532. DOI: 10.1126/science.289.5484.1530
  33. Komissarov I. V., Kovalchuk N. G., Labunov V. A., Girel K. V., Korolik O. V., Tivanov M. S., Lazauskas A., Andrulevičius M., Tamulevičius T., Grigaliūnas V., Meškiniš Š., Tamulevičius S., Prischepa S. L. Nitrogen-doped twisted graphene grown on copper by atmospheric pressure CVD from a decane precursor. *Beilstein J. Nanotechnol.*, 2017, vol. 8, pp. 145—158. DOI: 10.3762/bjnano.8.15
  34. Kovalchuk N. G., Nigirish K. A., Mikhalik M. M., Kargin N. I., Komissarov I. V., Prischepa S. L. Possibility of determining the graphene doping level using Raman spectra. *J. Appl. Spectrosc.*, 2018, vol. 84, pp. 995—998. DOI: 10.1007/s10812-018-0576-x
  35. Chung T.-F., Xu Y., Chen Y. P. Transport measurements in twisted bilayer graphene: Electron-phonon coupling and Landau level crossing. *Phys. Rev. B*, 2018, vol. 98, no. 3, p. 035425. DOI: 10.1103/PhysRevB.98.035425
  36. Shih C.-J., Vijayaraghavan A., Krishnan R., Sharma R., Han J.-H., Ham M.-H., Jin Z., Lin S., Paulus G. L. C., Reuel N. F., Wang Q. H., Blankschtein D., Strano M. S. Bi- and trilayer graphene solutions. *Nat. Nanotechnol.*, 2011, vol. 6, no. 7, pp. 439—445. DOI: 10.1038/nnano.2011.94
  37. Pudalov V. M. Metallic conduction, apparent metal-insulator transition and related phenomena in two-dimensional electron liquid. In: *Proceedings of the International School of Physics «Enrico Fermi»*. Vol. 157: The Electron Liquid Paradigm in Condensed Matter Physics. IOS Press, 2004, pp. 335—356. DOI: 10.3254/978-1-61499-013-0-335
  38. Tikhonenko F. V., Horsell D. W., Gorbachev R. V., Savchenko A. K. Weak localization in graphene flakes. *Phys. Rev. Lett.*, 2008, vol. 100, no. 5, p. 056802. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.056802
  39. McCann E., Kechedzhi K., Fal'ko V. I., Suzuura H., Ando T., Altshuler B. L. Weak-localization magnetoresistance and valley symmetry in graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2006, vol. 97, no. 14, p. 146805. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.146805
  40. Kechedzhi K., Fal'ko V. I., McCann E., Altshuler B. L. Influence of trigonal warping on interference effects in bilayer graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, vol. 98, no. 17, p. 176806. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.176806
  41. Tikhonenko F. V., Kozikov A. A., Savchenko A. K., Gorbachev R. V. Transition between electron localization and antilocalization in graphene. *Phys. Rev. Lett.*, 2009, vol. 103, no. 22, pp. 226801-1—4. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.226801
  42. Araujo E. N. D., Brant J. C., Archanjo B. S., Medeiros-Ribeiro G., Alves E. S. Quantum corrections to conductivity in graphene with vacancies. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 2018, vol. 100, pp. 40—44. DOI: 10.1016/j.physe.2018.02.025
  43. Bonch-Bruевич V. L., Kalashnikov S. G. Semiconductor physics. Moscow: Nauka, 1977. 674 p. (In Russ.)

#### Acknowledgement.

This work was financially supported by the State Program «Photonics, Optoelectronics and Microelectronics» (assignment 3.3.01), the State Committee for Science and Technology of the Republic of Belarus (project BRFFR F18PLSHG-005), and contract No. 08626319/182161170.-74 with JINR (Russian Federation). S. L. Prishchepa and I. V. Komissars are grateful for the financial support of the «Competitiveness Enhancement Program» of the National Research Nuclear University MEPHI. The authors are grateful to Ph.D. I. A. Svitlo (BSU) for taking measurements of electrical properties and graduate student A. V. Pashkevich (INP BSU) for help in preparing the article.

Received November 3, 2019