

## 電気化学グラフェン合成法における印可電位の影響

## Influence of potential on graphene synthesis by electrochemical exfoliation

山大院理工<sup>1</sup> ○沖本治哉, 高林駿, 佐野正人

Yamagata Univ. ○Haruya Okimoto, Syun Takabayashi, Masahito Sano

E-mail: haruya@yz.yamagata-u.ac.jp

グラフェンの合成法は、主に、真空プロセスの CVD 法と、液相プロセスの Hummers 法である。我々は、Hummers 法のような強力な酸化剤を利用しない液相法として塩の電解質を利用した電気化学的合成法を報告した。これは、塩を使用することで、グラファイトの層間距離を上げグラフェンを作製する。酸化剤が必要な Hummers 法に比べ、反応環境が温和である。本合成では電解質のインターカレーションを利用するが、水中のグラファイト上での電気化学反応では、電解質の種類・印可電圧に応じて、水の電気分解、インターカレーション、アノード酸化といった複数の化学現象が同時に起こる。よって、それらが、グラフェン合成にどのような影響を与えるかを理解することは高品質化・大面積化・薄層化の点で重要である。そこで、本研究では、電気化学グラフェン合成法の電気化学合成に電圧が及ぼす影響を明らかにすることを目的とする。

電気化学実験は、3 電極方式(陽極:Grafoil(グラフェンの原料),陰極:Pt 電極, 参照電極:Ag/AgCl 電極)で、ポテンシostatで電圧を制御した。サイクリックボルタンメトリ(CV)及び、グラフェン合成のための定電圧制御を行なった。電解質は、インターカレート剤として使用される硫酸系及び、インターカレーションの他、アノード酸化も起こる硝酸系電解質を使用し、濃度は、1M とした。電気化学剥離後、濾過、超音波による DMF 分散を行ない、遠心分離により薄層グラフェンを分取した。

Fig 1 に硫酸ナトリウムの CV を示す。1.5 V 付近からの水の電気分解による急激な電流上昇の中で、1.8 V 付近に、小さなピークが現れた。この電位は、硫酸においては、インターカレーション電位の 1 つとされていることから、中性条件である硫酸ナトリウムにおいても同程度の電位でインターカレーションが起こっていることが明らかとなった。そこで、その電位及び過剰電位(2.1V)、低電位(1.7 V)に電位を固定し、グラフェンを作製し、それぞれの電位におけるグラフェンの膜厚を評価した。まず、1.7V 以下においては、グラファイト電極の形状変化はほとんどなく、グラフェンも作製できなかった。1.7V 付近においては、水の電気分解による酸素が発生しているが、それがグラフェンに与える影響はほとんどないと示唆される。次に、1.8V 以上においては、グラフェンが作製でき、AFM から見積もった高さ分布は Fig.2 のようになった。1.8 V 以上の電位においては、膜厚分布においてほぼ一定であったことから、硫酸ナトリウムにおいては、1.8 V 以上の電位であればほぼ同程度の膜厚のグラフェンが作製できることが明らかとなった。

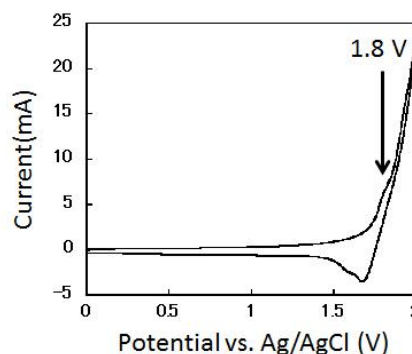


Fig 1 Cyclic voltammogram recorded at Grafoil in 1 M Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>.

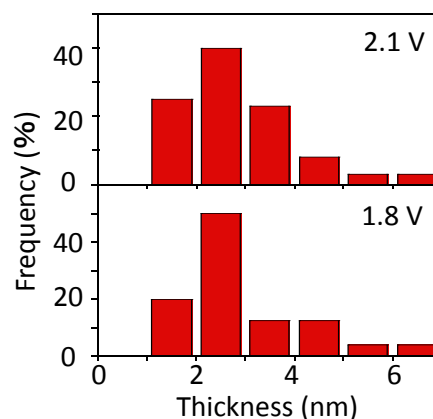


Fig 2 Thickness histograms for exfoliated graphene calculated using AFM