

太陽炉を用いた酸化グラフェンの超高温処理によるグラフェン形成

Graphene formation by ultrahigh temperature process of graphene oxides using solar furnace

阪大院工¹, 若狭湾エネ研² ◯楠本太郎¹, 山元克真¹, 篠田佳彦², 小林慶裕¹

Osaka Univ.¹, Wakasawan Energy Research Center²,

◯T. Kusumoto¹, K. Yamamoto¹, Y. Shinoda², Y. Kobayashi¹

E-mail: kobayashi@ap.eng.osaka-u.ac.jp

【はじめに】 大量合成可能な酸化グラフェン(graphene oxide, GO)をグラフェン材料として利用するには、合成時に形成する酸化物の還元や欠陥の修復プロセスが重要となる。このようなGOの構造回復は、ナノカーボン材料の化学気相成長(CVD)条件において効率的に進行する[1]。ただし、CVD処理で常用される上限温度である1000°Cでも構造の回復は十分ではなく、高結晶性のグラフェンを得るにはさらに高温での処理が必要となる。しかし、通常の電気炉を用いたCVD炉では1000°C以上の超高温でエタノールなどの反応性ガスを導入することは困難である。これは、試料だけではなく処理系全体が高温になり、気相中で起こる自発的な熱分解によって反応管や試料周辺に意図しない不純物が堆積するためである。この現象は超高温で顕著となる。そこで本研究では、局所的に超高温加熱が可能な太陽炉を利用して、GO試料周辺のみを超高温・反応性雰囲気中で処理し、その構造回復効果を検証することを目指す。今回は、その予備検討として、不活性雰囲気中でGOを超高温処理した結果について報告する。

【実験】 図1に本研究で用いた超高温処理系の構成を示す。サファイヤ、イットリア安定化ジルコニア(YSZ)、HOPGを基板及びびるつぼの材料に用いた。基板上に市販の単層GO(Graphene Laboratories Inc. 製)を分散したものを試料とした。常圧の高純度窒素・アルゴン雰囲気において、フレネルレンズにより太陽光を10000倍に集光して試料周辺を局所的(1cm²)に加熱処理した。試料温度は放射温度計(Si検出器、放射率を0.8に設定)を用いて計測した。処理したGOの構造解析はラマン分光法で行った。

【結果と考察】 図2に処理前及び様々な処理後のGOから観測されたラマンスペクトルを示す。GOの構造回復は2DバンドとGバンドの強度比($I(2D)/I(G)$)から評価した。既報[1]の通り、950°CのAr/H₂中処理では構造回復がほとんど進行しないのに対し、アルコールCVD雰囲気では明瞭な2Dバンドが観測され、顕著に構造回復している。一方、太陽炉を用いた窒素中1550°C処理では、950°CのAr/H₂中処理と同様であるが、処理温度1900°Cとすると950°Cのアルコール中処理と同程度にまで回復する。処理温度を2000°Cまで上げると、さらに構造回復が進行する。また、20分以後の処理では構造回復がほとんど進行しないこともわかった。これは、特定温度で回復可能な欠陥構造は限定されており、結晶性向上には、さらに高温での処理が必要であることを示している。集光効率改善による加熱温度向上やアルコール中処理による欠陥修復の効率化を進めると、GOからの高結晶性グラフェン形成が可能になると期待される。

[1] C-Y. Su et al., ACS Nano 4(2010)5285, 楠本他 第73回応物学会講演会(2012年秋) 12a-C1-3

謝辞: 本研究の一部は(公財)若狭湾エネルギー研究センターの公募型共同研究事業の支援により実施した。

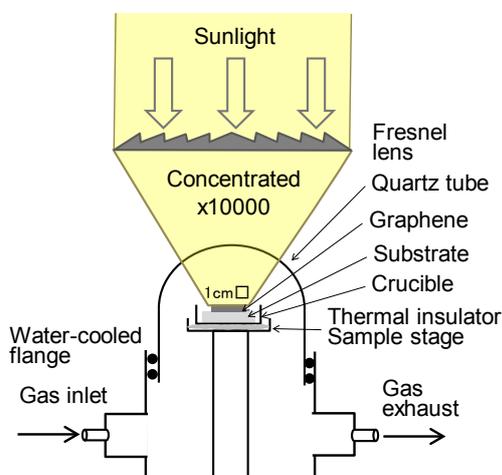


Fig.1: Schematics of ultrahigh temperature process system using solar furnace

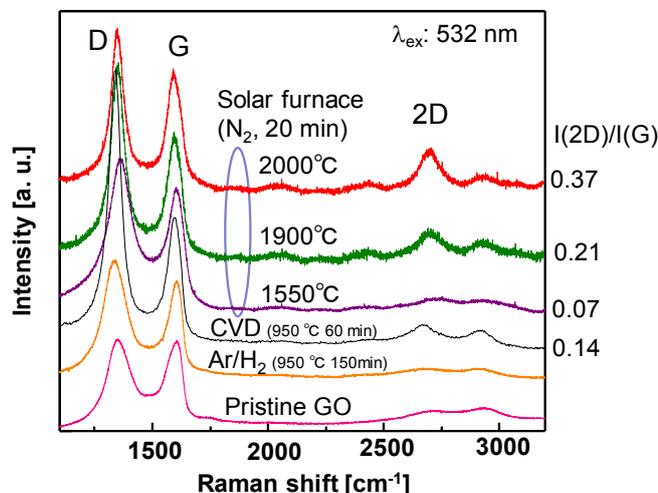


Fig.2: Raman spectra observed from various graphene samples