

## 酸化グラフェンの還元・構造修復プロセスにおける気相環境効果

Gas environment effects on reduction and structural restoration of graphene oxides

阪大院工 ○楠本 太郎、山元 克真、根岸 良太、小林 慶裕

Osaka Univ. ○T. Kusumoto, K. Yamamoto, R. Negishi, Y. Kobayashi

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構造を回復するプロセスが必要となる。GOの構造回復はエタノール雰囲気での高温加熱処理で効率的に進行することが報告されている[1]。これまでに我々は、構造回復が①酸素の除去(還元)過程とそれに続く②六員環構造の修復過程の2段階で進行するモデルを提案した[2]。本研究では、それぞれの段階での気相雰囲気が構造回復に与える効果から、その支配要因を検討した結果を報告する。

【実験】市販の単層GO分散液(Graphene Laboratories製)をSiO<sub>2</sub>/Si基板上に塗布し、エタノール、アセチレン、アルゴン希釈水素(H<sub>2</sub>/Ar)雰囲気において950℃でGOを処理した。処理雰囲気は、図1に示すように、GO構造回復の第1段階である酸素除去がほぼ完了する処理時間30分[2]において切り替えた。得られた試料の構造はラマン分光法(励起波長 532 nm)を用いて評価した。

【結果】GOの構造回復はラマンスpektrルの2DバンドとGバンドの強度比I(2D)/I(G)から評価した。得られた結果を図2に示す。スペクトル(a)–(f)はそれぞれ図1のプロセス(a)–(f)に対応する。(a)と(b)の対比から、酸素除去が完了した処理時間30分以後も六員環構造の回復が進行していることがわかる。構造回復の進行は、エタノール雰囲気では30分処理の後にH<sub>2</sub>/Ar処理を行った場合(c)でも、30分で処理を打ち切った場合(b)と同程度である。これは、第2段階の六員環構造修復がH<sub>2</sub>/Ar処理では進行しないことを示している。さらに、30分間のH<sub>2</sub>/Ar処理の後にエタノール処理を行った場合(d)でも(b),(c)と同程度に構造回復が進行している。一方、アセチレン(e)やH<sub>2</sub>/Ar(f)雰囲気での処理では六員環構造の修復はほとんど進行しない。以上の結果から、GOの六員環構造修復は単なる炭素の供給では不十分で、酸素を含むエタノール雰囲気では効率的に進行すること、酸素除去されたGOに対してもその効果は有効であることがわかる。酸素除去過程での気相雰囲気の効果を検証するため、950℃でエタノール、アセチレン、Ar雰囲気で15分処理したGOのXPSスペクトル(X線源: 単色化AlK $\alpha$ 線)を測定した。その結果を図3に示す。酸素除去の進行に伴い、C-Cピークの強度が増大する。エタノール雰囲気処理の場合に酸素除去が最も進行していることが分かる。この結果は酸素除去段階においてもエタノール雰囲気が有効であることを示している。

[1] C.-Y. Su et al., ACS Nano 4(2010)5285

[2] 楠本他、秋季第73回応物学会講演会 12a-C-13 (2012年9月、松山・愛媛大)

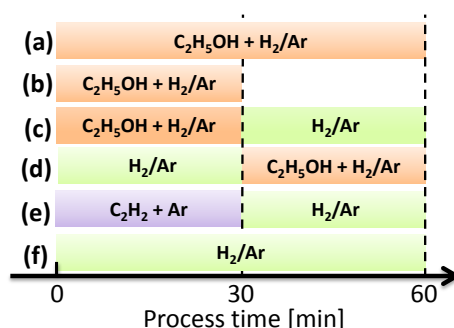


Fig.1 Environment condition of high temperature process for GO restoration

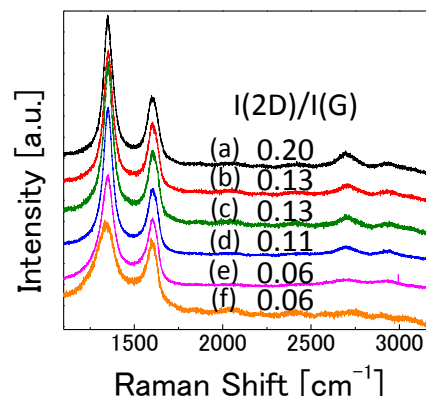


Fig.2 Raman spectra observed from GO after various processes of Fig.1

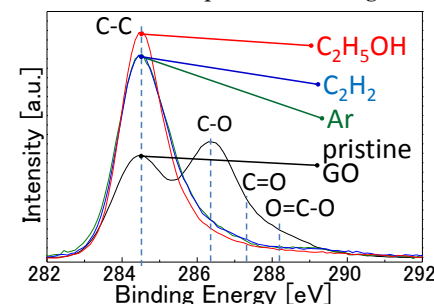


Fig.3 XPS spectra observed from GO after high-temperature treatments under various environment