

スポンジ状高空隙酸化グラフェンの超高温処理による

乱層多層グラフェンの形成

Synthesis of turbostratic multilayer graphene film from porous graphene oxides by ultrahigh temperature process

阪大院工¹、岡山大² ○中村慎悟¹、石田俊¹、仁科勇太²、小林慶裕¹

Osaka Univ.¹, Okayama Univ.², ○S.Nakamura¹, T. Ishida¹, Y.Nishina², Y. Kobayashi¹

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

【はじめに】酸化グラフェン(GO)をグラフェンとして利用するには、合成時に導入される欠陥の除去が必要となる。不活性雰囲気中の超高温でGOを処理すると、欠陥は修復されるが、一方でグラファイト化が進行し、グラフェンの優れた物性が発揮できないことが問題となる。これまで我々は、エタノール雰囲気中で超高温処理すると、欠陥が修復されるだけではなく、単層に類似した物性が期待される乱層構造を維持したグラフェンが形成する現象を見出した[1]。しかし、試料としてGO凝集体を用いており、乱層構造となるのが表面近傍に限られるため、グラフェン薄膜としての物性計測への展開が困難であった。本研究では、乱層構造化がより内部まで進行し、薄膜化が容易な高空隙GOを処理した結果について報告する。

【実験】スポンジ状高空隙GOはGO分散液を凍結乾燥して作製した。Fig.1にそのSEM像を示す。エタノールの作用が試料内部へ波及する空隙の多い構造であることがわかる。この試料をグラファイト製するつば上で光による局所加熱することで超高温処理を行った。処理は高純度アルゴンガスにエタノールを添加した減圧雰囲気で行った。処理後のGOの構造はラマン分光法(励起波長532nm)で評価した。

【結果】Fig.2に処理後GOのラマンスペクトル及び2Dバンドの解析結果を示す。GOの結晶性はDバンドとGバンドの強度比 $I(G)/I(D)$ から評価した。1800℃処理の場合、アルゴン雰囲気では $I(G)/I(D)=4.2$ に対して、エタノール雰囲気では $I(G)/I(D)=7.1$ であり、より低欠陥であることがわかった。2Dバンドの形状解析からBernal積層構造の割合(R)を求めた。アルゴン雰囲気処理では $R=72\%$ であり、グラファイト化が進行している。一方エタノール雰囲気では、 $R=24\%$ とグラファイト化が抑制され、乱層構造が維持されている。これは空隙のないGO凝集体を試料に用いた場合[1]と同様の結果である。粉体化して測定してもスペクトルに変化がないことから試料内部も表面と同じ構造となっている。超高温にも関わらずエタノール雰囲気中でグラファイト化が進行しないのは、グラフェンの欠陥周辺でのエタノールのエッチング効果により、欠陥修復が速やかに進行して、準安定状態となるためと考えられる[2]。高空隙GOから得られた乱層グラフェンは任意の基板への転写や、自立膜としての成形が可能である。今後、低欠陥の多層・乱層グラフェンからの新規な物性発現が期待される。

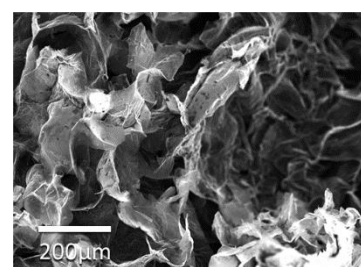


Fig.1 SEM image of porous graphene oxides

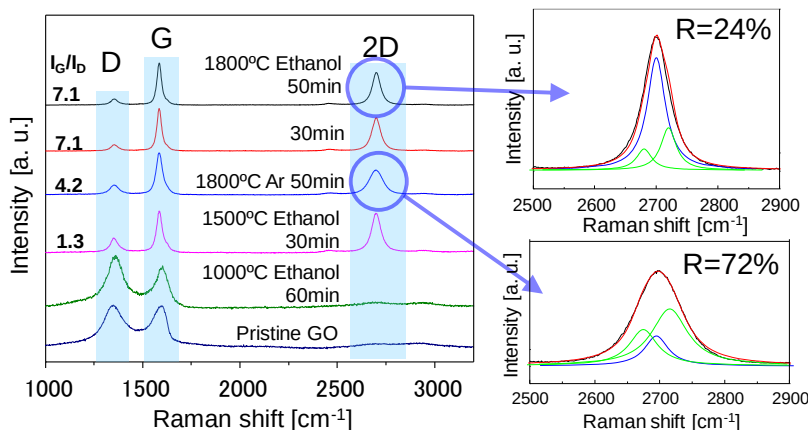


Fig.2 Raman spectra observed from various graphene samples and the detailed analysis of the 2D bands to evaluate the stacking order.

謝辞:本研究の一部は科研費及び(公財)谷川熱技術振興基金の助成により実施した。

[1] T. Ishida et al., Appl. Phys. Express, **9**(2016)025103

[2] 石田他 第77回応物学会(2016年秋)16a-A33-6