

酸化グラフェン修復過程における六方晶窒化ホウ素の触媒作用

Catalytic Property of Hexagonal Boron Nitride for the restoration reaction of Graphene Oxide

東大新領域¹, NIMS² ○小幡 誠司¹, 渡邊 賢司², 谷口 尚², 塚越 一仁², 斉木 幸一朗¹

Univ. of Tokyo¹, NIMS² ○Seiji Obata¹, Kenji Watanabe², Takashi Taniguchi²,

Kazuhito Tsukagoshi², Koichiro Saiki¹

E-mail: obata@edu.k.u-tokyo.ac.jp

序) 六方晶窒化ホウ素(h-BN)上のグラフェンは非常に高い移動度を示し、基板からの影響を極力排除した状態で、グラフェン本来の物性を測定できることから近年盛んに研究が進められている。試料の多くは剥離法と光学顕微鏡を用いた貼り合わせにより作製されており、歩留まりや大量生産という観点からは新たな作製法が望まれている。一方で我々は、Cu 触媒と CH₄/H₂ プラズマを用いることで、絶縁基板上でも酸化グラフェン(GO)から高結晶性のグラフェンを作製できることを報告してきた[1]。そこで、本手法を用いて、グラフェン/h-BN 構造の大量作製に関する研究を進めている。その中で h-BN がグラフェン修復に対する触媒性を有することを見出した。さらに、h-BN 上に GO 単層膜を大量に生成する手法の開発にも成功した。今回、この 2 点について報告する。

実験) 試料は以下の手順で作製した。1) h-BN を剥離法により、厚さ 300 nm の熱酸化膜をもつ Si 上に成膜する。2) 改良 Hummers 法で作製した GO をスピコート法により成膜。この際、h-BN 上にはのみ GO が積層し、SiO₂ 上には GO は成膜されなかった。3) この試料を水中で 10 秒間、超音波処理を行う。この処理により、単層の GO のみを高被覆率で h-BN 上に残すことが可能であることを見出した (Fig. 1)。次に、この試料に対し CH₄ と H₂ の流量比 35 sccm : 35 sccm、温度 400–550°C、全圧 9.7 Pa、プラズマ出力 10W、反応時間 1 時間でプラズマ処理を行った。

結果) Fig. 2a, b は 500°C で作製された h-BN 上のグラフェンの Raman 分光の結果である。明瞭な 2D band が出現し、グラフェン化が進行していることがわかる。SiO₂ 上では Cu 触媒が必要であったが、h-BN では Cu 触媒がない場合でも同様にグラフェン化が進むことがわかった。さらに、SiO₂ 上では Cu 触媒を併用してもグラフェン化が進行しない 450°C においても、h-BN 上では Cu 触媒を使用せずにグラフェン化の進行が確認された。このことは h-BN が GO のグラフェン化に対して触媒性を有していることを示している。Fig. 2a と b を比較すると同一の h-BN 上に作製されたグラフェンシートでも、I_D/I_G, I_{2D}/I_G が大きく異なっていることがわかる。これは、触媒作用にグラフェンと h-BN の配向が影響することを示唆している。

[1] Obata *et al.* *Nanotechnology* 29 (24), 245603 (2018)

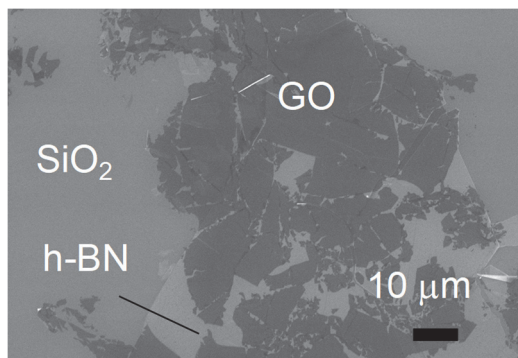


Fig.1 SEM image of h-BN covered with a plenty of monolayer GO sheets after the sonication in water for 10 s.

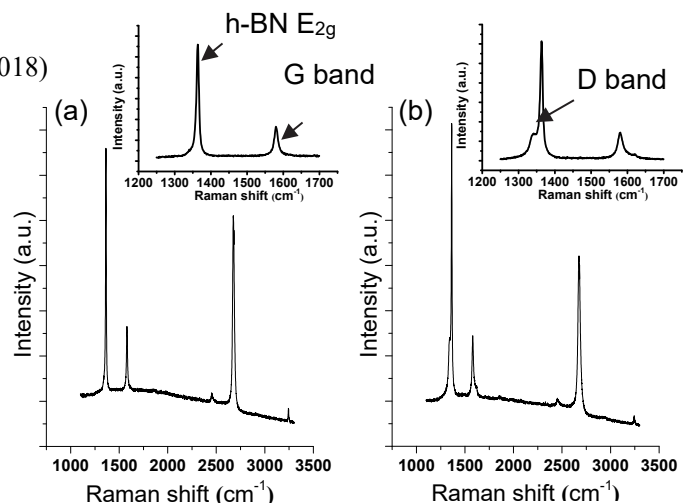


Fig.2 (a) (b) Two Raman spectra of GO on the same h-BN sheet after the plasma treatment. Inset: Magnified spectra around D-, G- band