

# エタノール雰囲気高温還元した酸化グラフェン薄膜の表面形状と結晶性

## Surface morphology and crystallinity of graphene oxide thin films reduced by high temperature annealing in ethanol vapor environment

○(M1)神田 哲志<sup>1\*</sup>, (M1)島崎 直希<sup>1</sup>, (M2)山下 朋晃<sup>1</sup>、鶴飼 智文<sup>2</sup>, 黒須 俊治<sup>2</sup>,  
花尻 達郎<sup>1,2</sup>, 前川 透<sup>2</sup>、仁科 勇太<sup>3</sup>, 根岸 良太<sup>1,2</sup>

東洋大院理工<sup>1</sup>, 東洋大バイオ・ナノエレクトロニクス研究センター<sup>2</sup>, 岡山大学<sup>3</sup>  
Toyo Univ. Graduate School<sup>1</sup>, Bio-nanoelectronics research center<sup>2</sup>, Okayama Univ.<sup>3</sup>

<sup>○</sup>S. Kanda<sup>1</sup>, N. Shimazaki<sup>1</sup>, T. Yamashita<sup>1</sup>, T. Ukai<sup>2</sup>, S. Kurosu<sup>2</sup>,

T. Hanajiri<sup>1,2</sup>, T. Maekawa<sup>1,2</sup>, Y. Nishina<sup>3</sup>, R. Negishi<sup>1,2</sup>

\* E-mail: s36C02400048@toyo.jp

【はじめに】 安価に大量合成可能な酸化グラフェン(GO)は、還元することで電子材料としての応用が期待される。エタノール雰囲気高温還元することにより、GO 内に残存する欠陥構造を修復し、高結晶性の還元型酸化グラフェン(rGO)薄膜を形成することが可能である[1,2]。特に、1400℃以上での処理において、この結晶性の向上が顕在化する[2,3]。同時に、処理温度の上昇はエタノールガスの熱分解能力を高めるため、欠陥構造の修復のみならず GO 薄膜表面へのアモルファスライクな炭素凝集体の堆積をも引き起こすことが予測される。そこで本研究では、還元温度とエタノール供給量による GO 薄膜表面への影響を調べることで、高結晶性 rGO の形成に向けた効果的な構造修復過程について検討した。

【実験内容】 オゾンクリーニング処理後、3-amino-propyl-trimethoxysilane (APTMS) 処理した熔融石英基板を酸化グラフェン水分散液へ浸漬することで GO 薄膜を作製した。マスフローコントローラーで流量調整したエタノールおよび、キャリアガスである Ar を流し、赤外線加熱炉により還元処理を行った。その後、rGO 薄膜の結晶性および膜厚を顕微ラマン分光測定 (LabRAM・HORIBA)、表面形状を原子間力顕微鏡 (AFM/Jupiter・Oxford Instruments) により評価した。

【結果と考察】 還元温度 1400℃で全圧を 1.33kPa で固定し、エタノール分圧を変化させた rGO 薄膜表面に対して AFM 測定により評価した二乗平均平方根 (RMS) ラフネスを図1に示す。図 1 より、エタノール分圧の増加に伴って表面 RMS ラフネスも増加していることが分かる。また、図 2 に図 1 と同様エタノール分圧を変化させたときの結晶粒サイズを示す。ここで、結晶粒サイズはラマン分光測定から得られる G バンドと D バンドの強度比から算出された[4]。図 2 より、エタノール分圧の増加に伴い結晶粒サイズの増加がみられる。しかし、1.33Pa~2.67Pa の領域では結晶粒サイズの増加がほぼ頭打ちとなっている。還元温度 1400℃において、エタノールが結晶性を有意に向上させるのは 1.33Pa 程度までであり、それ以降は rGO の表面 RMS ラフネスの増大を引き起こす。図 3 に還元温度 1400℃、エタノール分圧 2.67Pa での AFM 像を示す。図 3 より、rGO 上に単原子層厚さのステップ構造を有する六角形のグラフェンアイランドが形成していることが分かる。このことから、GO 表面にエピタキシャル成長したグラフェンが、パッチワーク的に空乏欠陥構造を修復して、結晶性を飛躍的に向上させているものと結論付ける。

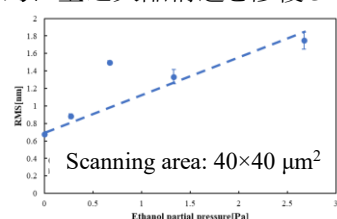


Fig. 1 RMS roughness of the rGO thin films prepared by thermal annealing with various partial pressure of ethanol vapor.

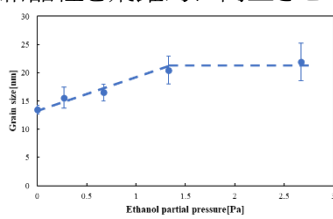


Fig. 2 Grain size estimated from rGO thin films prepared by thermal annealing with various partial pressure of ethanol vapor.

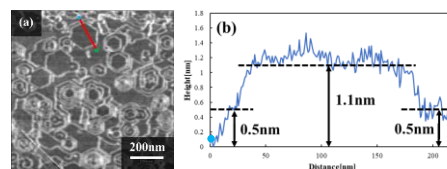


Fig. 3 (a) AFM image of the GO surface prepared by thermal annealing at 1400℃ with ethanol partial pressure of 2.67Pa and (b) height profile of red line as shown in (a).

謝辞 本研究の一部は科研費(22K04865)および井上円了研究助成金、BN 研究センターの援助を受けて実施しました。

[1] Negishi, R., et al., *Sci. Rep.*, **6**, 28936 (2016). [2] Ishida, T., et al., *Appl. Phys. Express*, **9**, 025103 (2016). [3] 山下 朋晃 他., 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 15a-PA01-27 (2023). [4] L. G. Cançado et al., *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 163106 (2006).