

広 Q 範囲測定による酸化グラフェンの層間内の水分分布の解析

Analysis of water distribution in graphene oxide
by wide q range neutron scattering

仁科 勇太¹⁾ 小幡 誠司¹⁾ 有馬 寛²⁾ 岩瀬 裕希²⁾

Yuta NISHINA Seiji Obata Hiroshi ARIMA-OSONOI Hiroki IWASE

¹⁾岡山大学 ²⁾CROSS

(概要)

酸化グラフェン膜が形成する凝集体について、試料雰囲気湿度を変えた時の構造変化を解析した。酸化グラフェンの凝集構造はサブマイクロメートルに及ぶ。そこで、ピンホール型中性子小角散乱 (P-SANS) 測定に加え、集光型SANS (F-SANS) 測定を行った。

キーワード：酸化グラフェン、中性子小角散乱

1. 目的

酸化グラフェン(GO)は種々の官能基をもつグラフェンシートであり、電子デバイス、触媒、水の分離膜など多様な応用が期待されている物質である。これまでも、GOが水との強い相互作用を示すことは知られていたが、詳細な水の分布や、経時変化などは不明であった。本研究では湿度を制御しながら、広 Q 範囲で GO の構造を解析することで、GO 中の水の分布や拡散状況を明らかにし、GO と水の相互作用について詳細な解明を行う。

2. 方法

試料は、GO および還元度(炭素に対する酸素の元素比)10%の還元 GO を直径 10 mm のペレット状に固めて作製した。SANS 測定は SANS-J を使い、試料-検出器間距離 (SDD) を 10 および 2 m にセットして行った。さらに、 10^{-4} \AA^{-1} オーダーの Q 領域を測定するために、集光レンズを用いて F-SANS 測定を行った。試料温度は 25°C で固定した。最初に、乾燥ガスを試料に吹きかけて乾燥状態 (湿度数%以下) にし、湿度を 30%、60%、90% RH と変えて測定した。

3. 結果及び考察

図 1 に (a) GO と (b) 還元 GO の SANS プロファイルの湿度依存性を示す。GO 膜は、 $10^{-3} \text{ \AA}^{-1} < Q < 10^{-2} \text{ \AA}^{-1}$ の Q 範囲で $Q^{-3.35}$ に従う散乱が観測された。このことから、GO がサブミクロンスケールの凝集体を形成し、その凝集体の表面のラフネス度が高いことが示唆された。一方、湿度依存性については変化が観測されなかった。図 1b に示された還元された GO でも同様に $Q^{-3.35}$ に従う散乱され、同様の表面粗さを有する凝集体であることが明らかになった。その凝集体のサイズについては、挿入図に示された通り、GO と異なり、測定可能な最小 Q 値においてもべき乗則に従っていることから、GO の凝集体よりもさらに大きいことが示唆された。また、湿度依存性では、30% RH と 60% RH の間で、低 Q 領域 (挿入図) において変化が観測され、周りに水が存在すると凝集体の構造が変化することが示唆された。さらに、 $Q > 0.1 \text{ \AA}^{-1}$ の Q 範囲において、湿度の上昇に伴い散乱強度が増加した。これは、グラフェン内に含まれる水の量を反映しており (水中の水素からの非干渉性散乱)、Fig. 1a に示した GO とは異なり、還元 GO の凝集体内に水が取り込まれていることを示唆するものである。現在、高 Q 領域で観測された構造変化の解析と、今回得られた結果をもとに、観測された水蒸気雰囲気における構造変化のメカニズムについて行う。

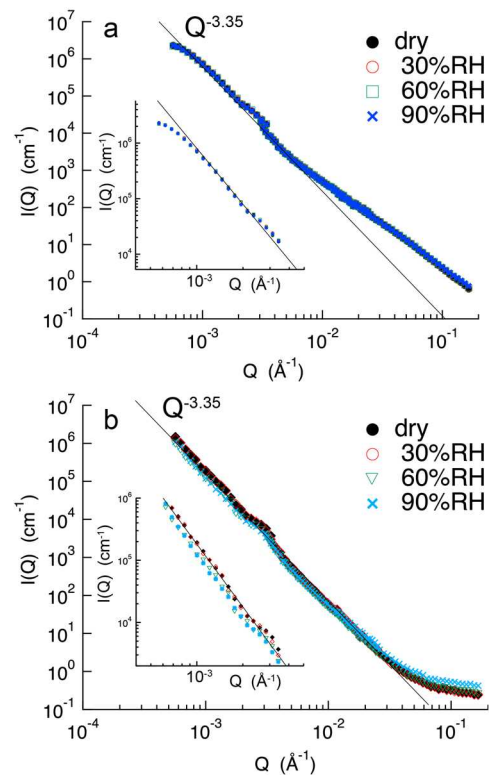


Fig. 1. (a) 酸化グラフェン (GO)、(b) 還元 GO 膜の散乱プロファイルの湿度依存性 (H₂O 加湿). 挿入図は集光型 SANS 測定により得ら