

九州シンクロトン光研究センター 県有ビームライン利用報告書

課題番号：2308049T

BL 番号：BL7

(様式第 5 号)

酸化グラフェンを用いた機能性ダイヤモンド創出 English Development of functional diamonds based on graphene oxide

関根 良博・田川 龍太
Yoshihiro Sekine, Ryuta Tagawa

熊本大学大学院先導機構・熊本大学大学院自然科学教育部
Kumamoto University

- ※ 1 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後 2 年以内に研究成果公開〔論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表〕が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※ 2 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※ 3 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より 1 人以上）。

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

ドーピングダイヤモンドは、高温超電導や高感度磁気センサーなどへの応用が期待される機能性材料である。例えば、電気抵抗がゼロになる超伝導体は、大幅な省エネルギー化による低炭素化につながる未来材料である。さらに、窒素ドーピングダイヤモンドは、点欠陥である窒素—空孔（NV）センターに由来して高感度な磁気検出を室温で可能な発光磁気センサーへの展開が期待されているが、機能向上のためにはドーピング量制御手法の確立が求められていた。本研究課題では、合成法確立を目指すために作成した試料の同定を試みた。

（English）

Doped diamond is a functional material with promising applications in high-temperature superconductors and highly sensitive magnetic sensors. For example, superconductors with zero electrical resistance represent future materials that could lead to low-carbon societies through significant energy savings. Furthermore, nitrogen-doped diamond holds promise for development into luminescent magnetic sensors capable of high-sensitivity magnetic detection at room temperature, originating from the nitrogen-vacancy (NV) center point defect. However, establishing doping control techniques was essential for enhancing functionality. This research project aims to establish a synthesis method.

2. 背景と目的

ダイヤモンドは、 sp^3 炭素骨格へのドーピングにより、バンド構造制御やスピン制御に基づく特異な機能性が期待できることから、イノベーションをもたらす材料として極めて大きな可能性を有している。真の有用な材料としてエネルギーデバイスや触媒の技術革新が渴望されているなか、ダイヤモンドの機能開拓や材料開発に関する研究に対して非常に関心が高まってきている。

強い絶縁性を示すダイヤモンドは、ホウ素や窒素などをドーピングすることで半導体となり、ボロンドープダイヤモンド（BDD）は、超伝導転移を示すことが発見された（ $T_c = 12$ K, Ekimov, 2004 *Nature*）。さらにレーザー溶融法による Quenched Carbon（Q-カーボン）は強磁性の性質を示し、ホウ素ドーピングの Q-カーボンは超伝導転移を示すことが確認された（ $T_c = 36$ K, Narayan, 2017 *ACS NANO*）。

本研究では、窒素ドーパダイヤモンドの合成条件を見出し、特異な電気的性質を明らかにする。そのため、窒素ドーパ還元型酸化グラフェンを用いて高压条件下で合成したダイヤモンドの同定するため高輝度X線を用いた回折実験を行う。

3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

測定試料は、Re基板(サイズ：4.5 mm×4.5 mm×200 μm)中心の貫通孔(サイズ：φ100 μm)に高压条件下で合成されたものを使用した。試料の結晶構造は、ダイヤモンド型構造(格子定数 $a \sim 3.6$ Å程度)に似通ったものと予想するが、詳細(結晶構造、結晶性、配向性など)は不明である。このRe基板を石英板(サイズ：25 mm×25 mm)中心の貫通孔(サイズ：φ2 mm)部分に張り付け固定し、図2のようなレイアウトで測定した。具体的には、多軸回折装置(HUBER)中心に試料を設置し、入射X線エネルギー：25 keV、室温条件にてX線を照射した。試料を透過した回折像は2次元検出器(PILATUS 100K)で検出した。

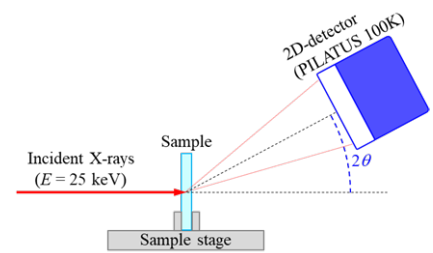


図 1. 測定方法のレイアウト

4. 実験結果と考察

図 2 に X 線回折で得られた結果を示す。10° ~ 30° の領域を測定した結果、幾つかの顕著なピークが観測された。これは試料周辺の Re 基板に由来するものと考えられる。ダイヤモンド由来のピークは図 2 の赤矢印で示す部分において観測されると考えられるが、Re 基板のピークと重複する部分であり、また仮にダイヤモンドが存在するとしても、ごく微量であることから検出強度が極めて弱く、Re 由来のピークにマスクされた可能性が高く、観測ピークがダイヤモンド由来であるとの断定はできなかった。

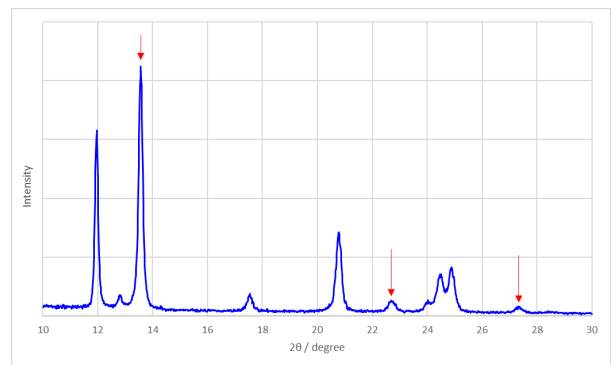


図 2. 25 keV における X 線回折スペクトル

5. 今後の課題

本測定によって、現状の合成方法が抱える課題を明らかにすることができた。今後は、合成方法を見直し、試料と基板との関係を踏まえた手法によって、目的とする物質合成に取り組んでいく。

6. 参考文献

Crystallization of Diamond from Graphene Oxide Nanosheets by a High Temperature and High Pressure Method

M. Fukuda, M. S. Islam, Y. Sekine, T. Shinmei, L. F. Lindoy, S. Hayami

ChemistrySelect, 6, 3399-3402 (2021).

7. 論文発表・特許（注：本課題に関連するこれまでの代表的な成果）

該当なし

8. キーワード（注：試料及び実験方法を特定する用語を 2～3）

酸化グラフェン、炭素材料

9. 研究成果公開について（注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文（査読付）発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末（2021年3月31日）となります。）
長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

② 研究成果公報の原稿提出

（提出時期：2023年 3月）