

Incorporação de hidrogênio em monocamadas de grafeno depositadas sobre Si

FEIJÓ, T. O. ¹, SOARES, G. V. ²

¹ Taís Orestes Feijó (taisorestes@hotmail.com), Engenharia Física, UFRGS
² Gabriel Vieira Soares, Departamento de Física, UFRGS



INTRODUÇÃO:

Desde a descoberta do grafeno em 2004, diversos estudos foram surgindo nesta área a fim de caracterizar e manipular este material, devido as suas diversas propriedades interessantes. O grafeno é o nome dado à uma monocamada plana de carbono com ligações do tipo sp^2 e estrutura hexagonal (Fig. 1) [1]. Isso permite que ele seja um ótimo condutor elétrico e térmico, extremamente resistente, flexível e transparente à luz visível [2].

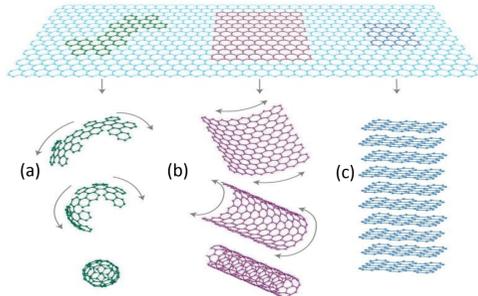


Fig. 1 – Estrutura hexagonal do grafeno, de onde podem ser derivados o (a) fulereno, (b) nanotubo ou (c) grafite [1].

Além disso, alguns estudos mostram que o grafeno pode permitir o armazenamento de hidrogênio para aplicação em células combustível, o que viabilizaria o uso de combustíveis não poluentes em veículos [3]. E em vista da importância de entender a interação do hidrogênio com o grafeno, este trabalho tem por objetivo determinar a quantidade de hidrogênio incorporado em amostras de grafeno sobre óxido de silício sobre silício em função da temperatura.

METODOLOGIA:

Foram usadas amostras de grafeno sobre óxido de silício (com espessura de 285 nm) sobre um substrato de silício e amostras com óxido de silício de 285 nm crescido termicamente sobre silício a fim de comparação. As amostras foram tratadas termicamente em um forno de atmosfera controlada com deutério (é utilizado o deutério (D) porque é um isótopo raro – abundância natural de 0,15% - na natureza, o que permite diferenciá-lo do hidrogênio presente na atmosfera), durante 1 h (Fig. 2). Para cada tipo de amostra, variou-se a temperatura de tratamento entre 100°C e 1000°C.

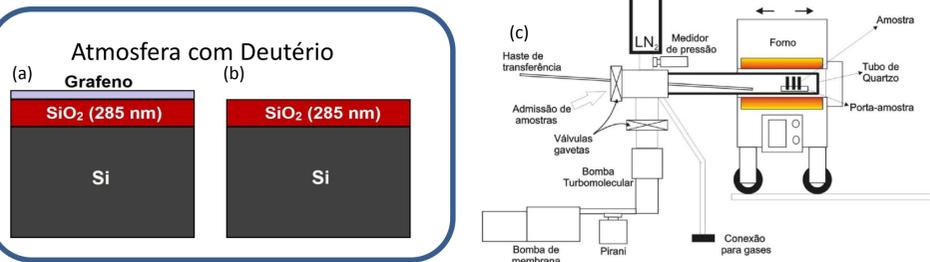


Fig. 2 – Amostras de SiO₂/Si (a) com grafeno e (b) sem grafeno. (c) Esquema dos principais componentes do forno de atmosfera controlada [4].

RESULTADOS:

Primeiramente, foi realizada Análise por Reação Nuclear, a fim de determinar a quantidade de deutério incorporado nas amostras. Na Fig. 3(a) é apresentada a quantidade de D incorporado nas amostras em função da temperatura de tratamento para os dois tipos de amostras. E na Fig. 3(b) é apresentada a diferença de quantidade de D entre amostras com grafeno e sem grafeno, representando a quantidade efetiva de D incorporado no grafeno. Pode-se notar que para as amostras tratadas a 100°C, a quantidade de D está abaixo do limite de detecção. Em 200°C, ocorre a incorporação de D na amostra com grafeno. A partir de 300°C, ocorre uma saturação da quantidade de D incorporado no grafeno. E em 1000°C, ocorre uma queda significativa na quantidade de D presente na amostra com grafeno. Nessa temperatura é provável que ocorra a remoção do grafeno da amostra, e por isso a menor quantidade de D.

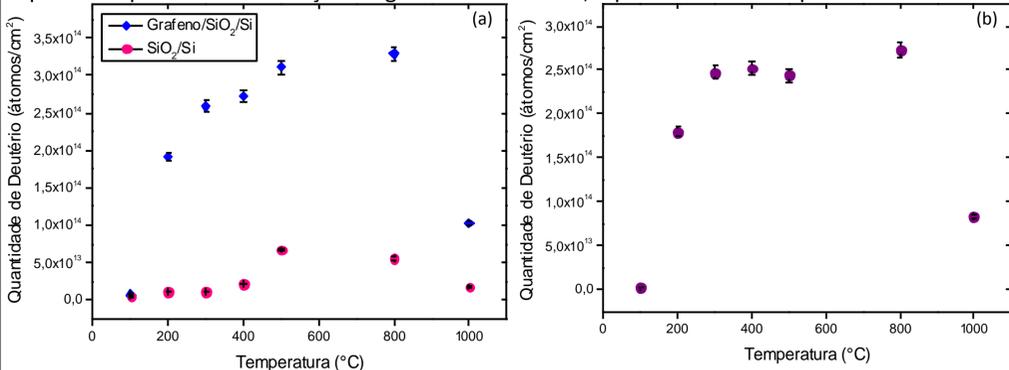


Fig. 3 – (a) Quantidade de D incorporado em função da temperatura para amostras de Grafeno/SiO₂/Si (em azul) e amostras de SiO₂/Si (em rosa). (b) Diferença entre a quantidade de D incorporado nas amostras com grafeno e sem grafeno.

Após foram realizadas análises de Espectroscopia de Fotoelétrons Induzidos por Raios-X (XPS), a fim de determinar o tipo de ligações químicas realizadas pelo grafeno em função da temperatura. A componente marcada com a linha vertical na Fig. 4 corresponde à energia de ligação referente à ligação C-C, que neste caso representam as ligações do próprio grafeno. Componentes presentes à esquerda da ligação C-C (energia de ligação maior) podem ser relacionadas com ligações do carbono com oxigênio e componentes presentes à direita da componente C-C (energia de ligação menor) podem ser relacionadas com ligações do carbono com hidrogênio. Na Fig. 4, é possível observar que com tratamentos térmicos, o grafeno começa a reagir com o deutério e com o SiO₂. Com o aumento da temperatura, as áreas das componentes à direita se tornam maiores em proporção à componente do C-C, o que indica que, a partir de 500°C, há um número maior de ligações do grafeno com o deutério em relação a temperaturas menores.

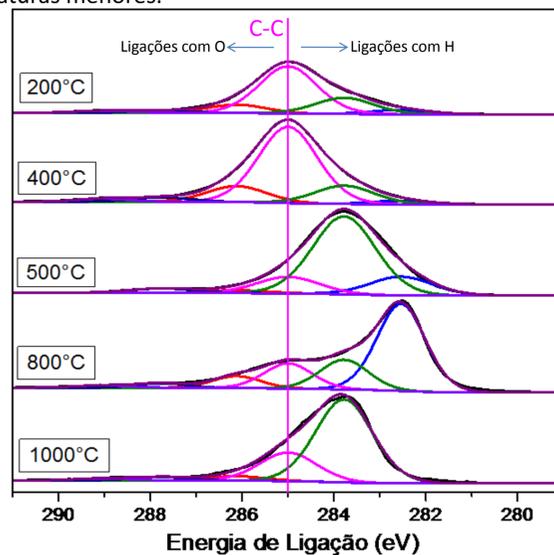


Fig. 4 – Análise de XPS de amostras de Grafeno/SiO₂/Si em função da temperatura referente às ligações realizadas pelo carbono.

Por fim, foram realizadas análises de Espectroscopia Raman, a fim de obter informações da estrutura do grafeno presente nas amostras. Na Fig. 5, são apresentados os espectros obtidos das análises em função da temperatura para amostras tratadas (a) em vácuo e amostras tratadas (b) em deutério. Para ambos os casos, foi observado que há um aumento na desordem estrutural do grafeno (relacionada ao alargamento dos picos entre 1250 cm^{-1} e 1600 cm^{-1}) com o aumento da temperatura. Apenas em 1000°C existe uma diferença entre os tipos de tratamento, onde a amostra tratada em D apresenta uma remoção do grafeno, pois apenas em alguns dos pontos medidos foram detectados sinais referentes ao grafeno.

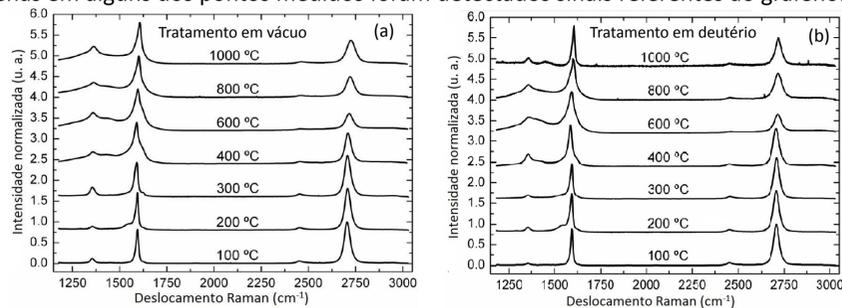


Fig. 5 – Análise de Espectroscopia Raman de amostras de Grafeno/SiO₂/Si tratadas em (a) vácuo e amostras tratadas em (b) deutério em função da temperatura.

CONCLUSÃO:

Com estes resultados, foi possível concluir que há incorporação de deutério no grafeno, onde amostras de SiO₂/Si com grafeno apresentam maior quantidade de D do que amostras sem grafeno, e a quantidade de D aumenta com a temperatura. A temperatura também interfere na ordem estrutural do grafeno. Além disso, foi possível concluir que, a partir de 300°C, ocorre a saturação dessa incorporação de D no grafeno, e para temperaturas maiores, há maior proporção de ligações de grafeno com o deutério.

AGRADECIMENTOS:



REFERÊNCIAS:

- Geim, A. K.; Novoselov, K. S. *The rise of graphene*. Nature Materials, 6, 183-91 (2007).
- Zhu, Y.; Murali, S.; Cai, W.; Li, X.; Suk, J. W.; Potts, J. R.; Ruoff, R. S. *Graphene and graphene oxide: synthesis, properties, and applications*. Advanced Materials, Vol. 22, pp. 3906-3924 (2010).
- Burruss, J. W.; Gadipelli, S.; Ford, J.; Simmons, J. M.; Zhou, W.; Yildirim, T. *Graphene Oxide Framework Materials: Theoretical Predictions and Experimental Results*. Angew. Chem. Int. Ed. 2010, 49, 8902-8904.
- SOARES, G. V. *Propriedades físico-químicas e características elétricas de estruturas dielétrico/SiC*. Tese (Doutorado em Microeletrônica) - Universidade Federal do Rio Grande do Sul (2009).



MODALIDADE DE BOLSA

BIC/UFRGS