

平成 27 年度工学系共通経費による顕彰と研究助成 成果報告書

所 属	材料工学専攻
研究者 (ふりがな)	春本 高志 (はるもと たかし)
タイトル	Pd 極薄膜の水素化 in-situ XRD 観察
助 成 名	新任助教研究助成
採択金額	700,000 円

研究の背景

水素ガスは、水素自動車が販売されたことをうけ、これまで以上に次世代燃料として注目されている。しかし、空気との混合比 4% 以上では爆発を起こす可能性があり、危険なガスである。そのため、水素を安全に使用するためには、水素の漏れを検出する水素センサが重要である。そこで、本研究では、Pd 薄膜型水素センサの高性能化・高耐久化を目指すべく、Pd 極薄膜における水素化・脱水素化過程を in-situ XRD 観察することを試みた。

結果と考察

水素化過程の in-situ XRD 観察を実現するために、(1) 高配向 Pd 極薄膜の作製、(2) 2D-XRD 法による高感度・高速測定 の 2 つのステップにより実験を行った。詳細は、以下の通りである。

(1) 高配向 Pd 極薄膜の作製

極薄膜では、回折に寄与する結晶子が小さく かつ 少ないので、回折ピークを検出できないことが多い。本研究においても、基板上に Pd (10 nm) のみを堆積した試料では、ピークはノイズに埋もれてしまっていた (図 1)。そこで、AlN/Pd バッファ層を下地層として導入することにより、配向性制御を試みた。その結果、Pd(111) 回折ピークが強烈に観察される高配向 Pd 薄膜を作製することができた。

(2) 2D-XRD 法による高感度・高速測定

一般的な X 線回折装置を用いて実験を行うと、1 回の測定に最低でも 10 分は必要であった。そこで、2 次元位置敏感型検出器法 (2D-XRD 法) を用いて高感度かつ高速に測定を行った。その

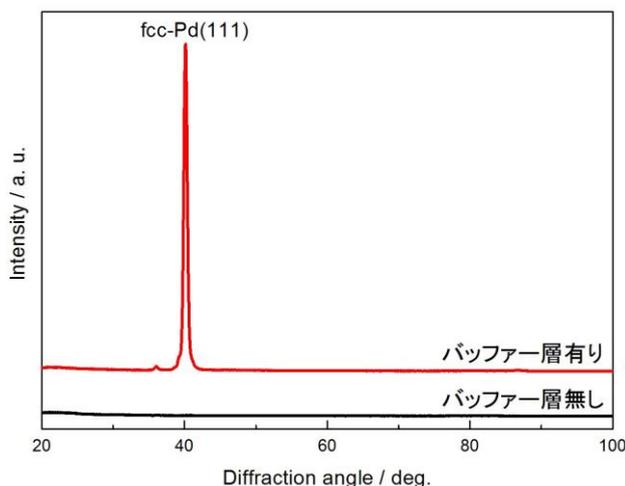


図 1 Pd(10 nm) 極薄膜の XRD 測定結果

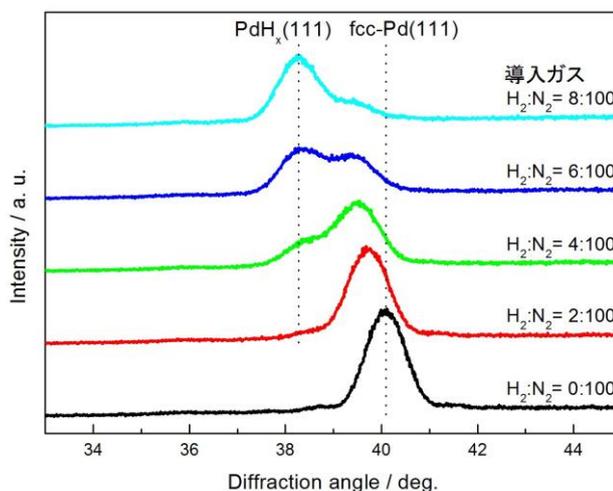


図 2 Pd 極薄膜の水素化過程と PdH_x 相 (β 相) 形成

結果、解析に耐え得るプロファイルを2分30秒毎に取得できようになった。

図2は、各種水素濃度におけるPd(111)ピークを示す。水素濃度が4%を超えたあたりでPdH_x相(β相)が出現しfcc-Pd相との共存を経て、最終的にPdH_x単相へと至る様子が観察されている。また、図3は、2%水素ガスを導入したときのPd格子の膜面垂直方向への変形をin-situ観察した結果である(縦軸は、バルクPdの格子定数を用いて正規化済)。水素化による格子膨張、脱水素化による格子収縮が明瞭に観察されている。また、脱水素化過程は水素化過程に比べ遅い反応であることが分かるが、この傾向は、本薄膜の水素センサ特性と概ね一致している。よって、応答性の良い水素センサを得るには、短時間で格子の伸縮が起こるような構造を実現する必要があるといえる。

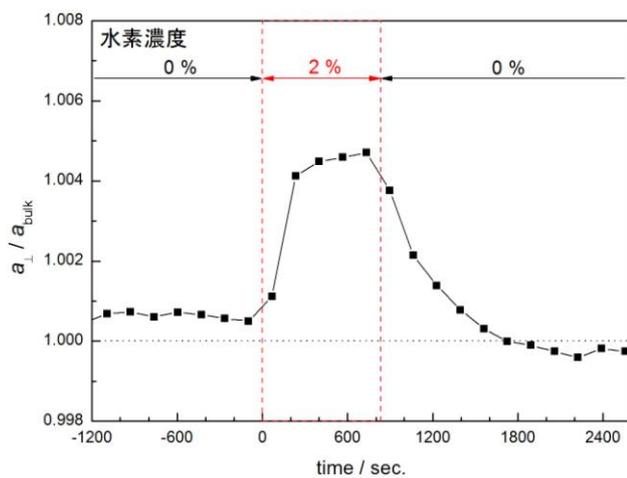


図3 2%水素ガス導入時におけるPd極薄膜の格子膨張 in-situ観察

結論と今後の課題

高配向薄膜作製技術と2D-XRD法を組み合わせることにより、膜厚10nmのPd極薄膜における水素化・脱水素化過程をin-situ XRD観察することができた。その結果、極薄膜においてもfcc-Pd相とPdH_x相(β相)の二相共存を経て水素化する、また、脱水素化過程は水素化過程に比べると遅い反応であると判明した。今後は、更に詳細な測定、及び、回折プロファイル解析を行うことにより、極薄膜における水素化過程の全容を解明すると共に、得られた知見を活用して高性能なPd薄膜型水素センサの実現を試みる予定である。なお、今後の課題として、2D-XRD法により得られる膨大な結果を短時間で効率的に解析する手法の構築が挙げられる。

使用内訳書

費目	内訳	金額
備品1	マスフローコントローラー	399,600
備品2		0
消耗品	Pdターゲット他	236,400
旅費		0
その他	分析機器使用料	64,000
合計		700,000

記入上の注意:

備品は、品名ごとに記入。
 差額が生じた場合は、消耗品で調整。
 消耗品を購入しなかった場合は、経費の差額と補填した予算科目名を合計額の内訳欄に記入。