

Pt ナノドット修飾グラフェン水素センサへのイオン液体被膜の影響

Impact of Ionic Liquid Coating on Sensitivity of Pt-Functionalized Graphene H₂ Sensor

慶應大理工¹, 九州大 先導研²

○山知 亮介¹, 下川 慶久¹, 横山 誉宗¹, 斎藤 雄太¹, 田中 貴久¹, 高橋 綱己^{1,2}, 内田 建¹

Faculty of Science & Tech., Keio Univ.¹, Institute for Materials Chem. and Eng., Kyushu Univ.²

°R. Yamachi¹, Y. Shimokawa¹, T. Yokoyama¹, Y. Saito¹, T. Tanaka¹, T. Takahashi^{1,2}, and K. Uchida¹

E-mail: yamachi@ssn.elec.keio.ac.jp, uchidak@elec.keio.ac.jp

【背景および目的】近年、水素・燃料電池の普及が期待されるに伴い、水素漏洩を検知するためのセンサの需要が高まっている。グラフェンは、表面積体積比や移動度が高いことからセンサ材料として期待されている。また、Pt は水素分子を解離する一方で、水素化合物が形成され難いことから、水素センサ用の触媒として注目されている。しかし、アンモニア[1]をはじめとして、エタノールなどの揮発性有機化合物 (VOC) にも作用することが知られており、水素のみを透過するフィルタとの併用が選択性の高い水素センサを実現するためには重要である。本研究では Pt ナノドット修飾グラフェンセンサのチャンネルにイオン液体を滴下し、イオン液体が水素のセンシング特性に及ぼす影響を調べた。

【実験方法】単層の CVD グラフェンをチャンネルとしたバックゲート型トランジスタを作製した。完成したトランジスタ上に電子線蒸着によって Pt を 0.5 nm 蒸着し、400 °C、30 分 N₂ 雰囲気下のアニールで凝集化させ[1]、Pt ナノドット修飾グラフェンセンサを作製した。その後、チャンネル上にイオン液体を滴下した(図 1)。イオン液体は疎水性である 1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムヘキサフルオロホスファート ([EMIM][PF₆]) と親水性である 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメチルスルホニル)イミド ([EMIM][TFSI]) を用いた。センサ特性の測定は合計で 15 分間行い、最初と最後の 5 分間は窒素に曝し、中間の 5 分間は標的である水素 500 ppm を含む窒素に曝した。測定の際に外部ヒーターを用いて基板温度を室温、50 °C、100 °C に保った。

【結果と考察】[EMIM][PF₆]を滴下したデバイスと[EMIM][TFSI]を滴下したデバイスの水素センシング結果を図 2 に示す。水素含有窒素を吹きかける直前の抵抗を R_0 とし、水素雰囲気下での抵抗値の変化率 $(R - R_0) / R_0$ を感度として定義した。[EMIM][PF₆]を滴下したデバイスでは、どの測定温度でも 20 % 以上の大きな感度を確認できた。[EMIM][TFSI]を滴下したデバイスではどの温度でも 2 % 以下の低い感度を示すことが確認できた。これはイオン液体がガスのフィルタとして作用しており[2]、水素を溶解しにくい[EMIM][TFSI]では、グラフェンまで水素が到達せず感度が減少したと考えている。イオン液体滴下前後の温度と感度の関係を図 3 に示す。イオン液体の無いセンサと[EMIM][PF₆]滴下後のセンサでは水素感度の温度依存性が逆になっており、高温で水素を溶解しにくくなるイオン液体の特性[3]がセンサ全体の特性を決定していると言える。

【結論】Pt を修飾したグラフェン上に疎水性の[EMIM][PF₆]と親水性の[EMIM][TFSI]を滴下し、水素感度を調べた。水素透過膜としては疎水性の[EMIM][PF₆]が優れていることが確認された。今後、アンモニアなどの他ガスに対する選択性なども調べる予定である。

謝辞：本研究は、JST-CREST の支援（グラント番号 JPMJCR1331）を受けたものである。

[1] M. Gautam et al., *J. Appl. Phys.*, **111**, 094317 (2012).

[2] A. Inaba et al., *Int. Conf. on Micro Electro Mechanical Systems*, 326 (2014).

[3] J. Jacquemin et al., *Fluid Phase Equilib.*, **240**, 87 (2006).

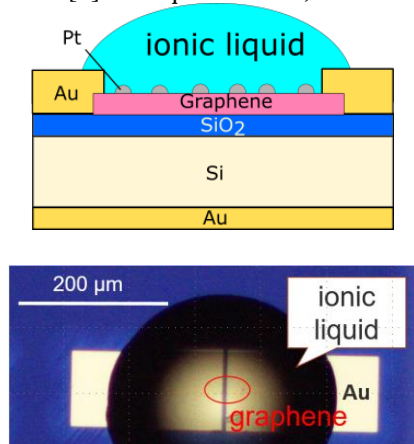


図 1 デバイス構造

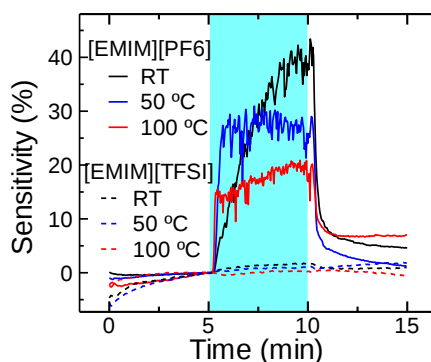


図 2 イオン液体滴下後の水素センシング結果

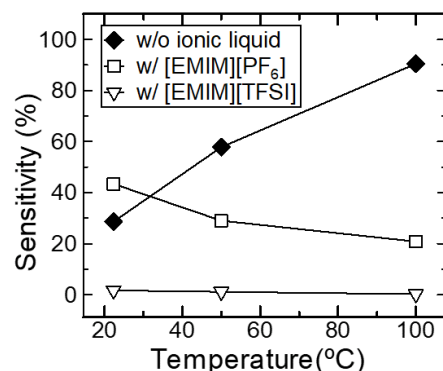


図 3 イオン液体滴下前後の水素センシングの温度依存性