

## パルスレーザー堆積法を用いた ZrH<sub>2</sub> 薄膜の作製：水素不定比の制御

### Pulsed-laser deposition of ZrH<sub>2</sub> films: control of the hydrogen nonstoichiometry

東工大物質理工学院<sup>1</sup>, 元素戦略<sup>2</sup> ○西 暁登<sup>1</sup>, 吉松 公平<sup>1</sup>, 大友 明<sup>1,2</sup>

Tokyo Tech., Dept. Chem. Sci. Eng.<sup>1</sup>, MCES<sup>2</sup>, ○Akito Nishi<sup>1</sup>, Kohei Yoshimatsu<sup>1</sup>, Akira Ohtomo<sup>1,2</sup>

E-mail: nishi.a.ab@m.titech.ac.jp

【はじめに】金属水素化物は、高温超伝導体 [1] やヒドリド伝導体 [2] の発見を契機に近年注目されている。しかしながら、物性研究はこれまでバルク体が主な対象であり、薄膜については合成条件の検討から始めなければならない。これまで我々はパルスレーザー堆積法 (PLD) を用いた TiH<sub>2</sub> や ZrH<sub>2</sub> の薄膜作製を報告してきた [3,4]。本研究では、水素雰囲気下で定比組成の δ-ZrH<sub>2</sub> 薄膜を作製することを目的とした。幅広い水素不定比性と非平衡条件下の水素組成の制御性について明らかにしたので報告する。

【実験】金属 Zr ターゲットを用いて、PLD により α-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (0001) 基板上に ZrH<sub>2±x</sub> 薄膜を作製した。基板温度と水素分圧をパラメータとした。X 線回折により薄膜の結晶構造を評価し、回折ピーク位置と昇温脱離ガス分析法 (TDS) から薄膜中の水素量を評価した。

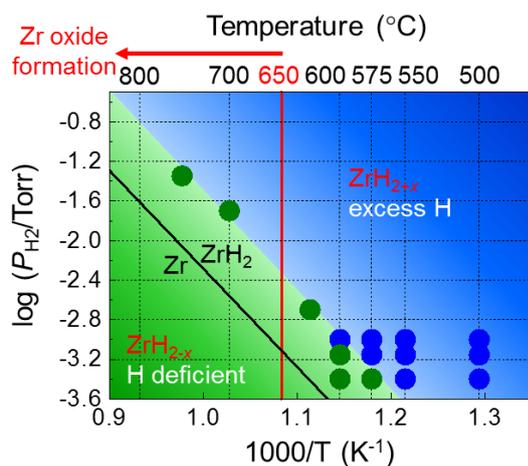
【結果と考察】基板温度と水素分圧を変化させることで、定比組成の δ-ZrH<sub>2</sub> に対応する回折ピーク、ならびにその低角度側や高角度側に回折ピークを示す多数の ZrH<sub>2±x</sub> 薄膜を作製した。基板温度 650 °C 以上で作製した薄膜では、ZrO<sub>x</sub> に対応する回折ピークも観測された。また、TDS 測定により、低角度側に回折ピークを示した薄膜は ZrH<sub>2+x</sub>、高角度側に回折ピークを示した薄膜は ZrH<sub>2-x</sub> と同定された。Fig. 1 に水素欠損および水素過剰の薄膜が得られた条件をまとめる。低温では薄膜中に水素が過剰に取り込まれて格子体積が膨張し、高温では水素よりもはるかに親和性の高い酸素 (残留酸素) が影響したことが示唆される。中程度の温度では、定比組成の δ-ZrH<sub>2</sub> 薄膜が得られるとともに、幅広い水素不定比を有する ZrH<sub>2±x</sub> 薄膜を作り分けられることが明らかとなった。

【謝辞】TDS 測定にご協力いただきました東京工業大学 細野秀雄教授、神谷利夫教授、飯村壮史助教に深く感謝いたします。

[1] A. P. Drozdov *et al.*, *Nature* **525**, 73 (2015). [2] G. Kobayashi *et al.*, *Science* **351**, 1314 (2016).

[3] 西 他, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 15p-311-6 (2017).

[4] 西 他, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 17p-C103-8 (2018).



**Fig. 1.** Growth diagram showing stoichiometric (ZrH<sub>2</sub>), hydrogen excess (ZrH<sub>2+x</sub>), and hydrogen deficient (ZrH<sub>2-x</sub>) regions as a function of hydrogen pressure and temperature. The ZrH<sub>2-x</sub> and ZrH<sub>2+x</sub> regions are represented by green and blue shades, respectively. The circles represent the conditions used to fabricate samples. The black line represents a boundary of Zr/ZrH<sub>2</sub> for bulk.