

Annual Meeting of the Japan Society of Vacuum and Surface Science 2021

中性子非弾性散乱による Pd ナノ薄膜中水素の振動状態の解析

○小澤 孝拓^{1*}, 古府 麻衣子², 中村 充孝², 飯田 一樹³, 大友 季哉⁴, 山室 修⁵,
清水 亮太⁶, 一杉 太郎⁶, 福谷 克之^{1,7}¹東大生研,²原子力機構 J-PARC セ,³総合科学研究機構,⁴高エネ研,⁵東大物性研,⁶東工大物質理工学院,⁷原子力機構先端研

Analysis of vibrational states of H in Pd nanofilm by inelastic neutron scattering

○Takahiro Ozawa^{1*}, Maiko Kofu², Mitsutaka Nakamura², Kazuki Iida³, Toshiya Otomo⁴, Osamu Yamamuro⁵, Ryota Shimizu⁶, Taro Hitosugi⁶ and Katsuyuki Fukutani^{1,6}¹Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, ²J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency, ³Neutron Science and Technology Center, Comprehensive Research Organization for Science and Society, ⁴Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK), ⁵Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, ⁶School of Materials and Chemical Technology, Tokyo Institute of Technology, ⁷Advanced Science Research center, Japan Atomic Energy Agency

水素化物の電子物性は水素原子の振動状態や電子状態と密接に関わっており、それらは水素の格子位置や濃度に依存する。特に表面近傍では、バルクと異なる電荷分布や格子歪みに起因してバルク中とは異なるサイトに水素が吸蔵される可能性があり[1]、また次元性や空間反転対称性に関連して表面やナノ薄膜それ自体が特有な物性を示し得ることから、表面近傍やナノ薄膜水素化物では新奇な物性が期待されている。これまで我々は、Pd ナノ薄膜において水素吸蔵に伴う近藤効果の発現を示唆する電気抵抗極小現象を発見した[2]。バルク Pd では八面体(O)サイトに水素が吸蔵されることで知られるが、ナノ粒子では一部の水素が四面体(T)サイトを占有することが中性子回折や非弾性散乱実験により報告されている[3,4]。しかし基板とナノ薄膜の散乱強度の問題からナノ薄膜の中性子散乱実験はほとんど行われおらず、二次元表面近傍の水素サイトや振動状態に関する知見は依然として乏しい。本研究では、非干渉性散乱断面積の小さいAl箔を基板として用い、J-PARCの大強度中性子ビームを用いることでPdナノ薄膜中水素の振動準位の観測に成功したので報告する。

試料は10~12 μm のアルミ箔両面にマグネトロンスパッタによって成膜した8 nmの多結晶Pdナノ薄膜を用いた。AlとPdの総量はそれぞれ約10 g, 65 mgである。中性子非弾性散乱実験はJ-PARCのBL-01 (4SEASONS)で行った。試料の水素化はその場での水素ガス曝露によって行った。Fig. 1にPdH_{0.19}とPdH_{0.73}の非弾性散乱スペクトルを□と○で示す。入射エネルギー E_i はそれぞれ(a)168 meV, (b)332 meVである。水素濃度によらず60meVと135 meVあたりに明瞭な散乱ピークが観測された。これらはOサイトにおける水素の第一および第二振動励起に対応し、Oサイト占有の水素が存在することを示している。特に100 meV以下の振動ピークの形状はナノ粒子とよく似ていることがわかった。一方、ナノ粒子において160 meVあたりに見られたTサイト水素の存在を示す振動ピークは観測されず、高エネルギー領域の振動状態はバルクと似ていることがわかった。本講演では格子緩和やポテンシャル形状の観点からPdの二次元表面近傍の水素の振動状態について議論する。

- [1] T. Ishimoto *et al.*, J. Phys. Chem. Lett. 7 (2016) 736.
 [2] T. Ozawa *et al.*, 2019年日本表面真空学会学術講演会 (2019).
 [3] H. Akiba *et al.*, J. Am. Chem. Soc. 138 (2016) 10238.
 [4] M. Kofu *et al.*, Phys. Rev. B 96 (2017) 054304.

*E-mail: t-ozawa@iis.u-tokyo.ac.jp

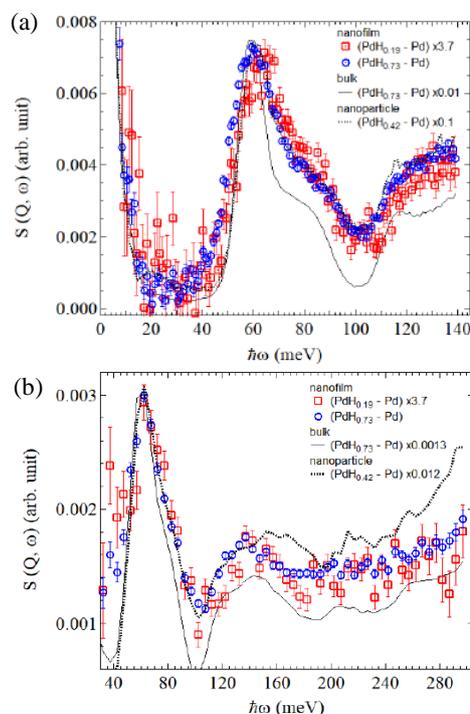


Fig. 1. PdH_{0.19}およびPdH_{0.73}ナノ薄膜の非弾性散乱スペクトル。(a) $E_i = 168$ meV, (b) $E_i = 332$ meV. 点線はバルクとナノ粒子を用いた先行研究の結果[4].