

雰囲気光電子分光法によるパラジウム-金合金の水素吸蔵過程のリアルタイム観測

○小板谷 貴典^{1,2*}, 山本 達³, 松田 巖⁴, 吉信 淳⁴, 横山 利彦¹

¹分子科学研究所, ²JST さきがけ, ³東北大学国際放射光イノベーション・スマート研究センター, ⁴東京大学物性研究所

Real-time observation of hydrogen absorption in palladium-gold alloys by ambient-pressure X-ray photoelectron spectroscopy

○Takanori Koitaya^{1,2*}, Susumu Yamamoto³, Iwao Matsuda³, Jun Yoshinobu⁴ and Toshihiko Yokoyama¹

¹Institute for Molecular Science, ²JST PRESTO, ³SRIS, Tohoku University, ⁴ISSP, The University of Tokyo

パラジウム系合金試料は水素吸蔵材料としてよく知られており、試料表面および内部への水素吸脱着過程は幅広く研究されている。その中でも、パラジウム-金(Pd-Au)合金は水素吸蔵材料としてのみならず、水素センサー¹⁾や不均一触媒²⁾など、様々な分野で応用が期待されている。また、パラジウムに金を添加すると純パラジウムよりも水素吸収が促進されることも知られている³⁾。水素が関わる現象に対する合金化の効果の起源を明らかにするには、その機能が発現している条件下でオペランド分光測定を行うことが非常に重要となる。そこで我々は雰囲気光電子分光法(AP-XPS)を用いて、Pd-Au 合金への水素吸脱着過程における電子状態変化をリアルタイムで測定し、パラジウム合金と水素間の相互作用など、水素吸脱着過程に関わる重要な知見を明らかにすることを目指した。

実験は SPring-8 高輝度軟 X 線ビームライン BL07LSU に設置してある軟 X 線 AP-XPS 装置を用いて行った。⁴⁾ 圧力変化に伴う水素吸脱着過程の追跡を可能にするために、まず軟 X 線雰囲気光電子分光装置の改良を行った。それにより従来は圧力上限が 20 mbar であったのが、100 mbar 程度の気相雰囲気中で十分なシグナル強度およびエネルギー分解能で AP-XPS 測定が可能となった。

装置改良後に Pd-Au 試料を用いて実験を実施した。Fig. 1(a), (b)には気相水素を線形昇圧制御 ($\beta = 0.01$ mbar/s) しながら測定した Pd 3d, Au 4f AP-XPS スペクトル、およびピーク位置の圧力依存性を示す。水素圧力が 20 mbar 程度まで上がると水素吸収が起こり、それに伴ってそれぞれの内殻ピークスペクトルも変化が起こることが分かった。また Fig. 1(b)を見ると、状態変化が起こる水素圧力は吸蔵 (昇圧) 過程と脱離 (降

圧) 過程で明確に異なっている (ヒステリシス)。この結果は水素雰囲気中で金属-水素化物相転移が起こり、それが各元素の化学状態変化を引き起こしていることを示唆している。

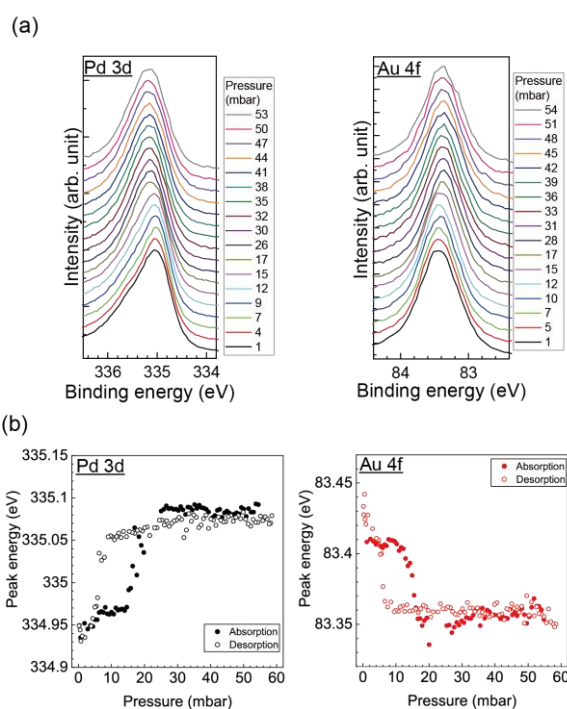


Fig. 1. (a) 昇圧過程の Pd-Au 合金試料(Au: 12 at%)の Pd 3d, Au 4f AP-XPS スペクトル ($h\nu = 1600$ eV, $\beta = 0.01$ mbar/s). (b) メインピーク位置の水素圧力依存性。

文 献

- 1) C. Wadell et al., *Nano Lett* **15**, 3563 (2015).
- 2) Y. He et al., *Catal. Today* **339**, 48 (2020).
- 3) K. Namba et al., *Proc. Natl. Acad. Sci.* **115**, 7896 (2018).
- 4) T. Koitaya et al., *Top. Catal.* **59**, 526 (2016).

*E-mail: koitaya@ims.ac.jp