



Title	Dynamics of Hydrogen-Solid Surface Reactions
Author(s)	Dino, Wilson Agerico Tan
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3155367
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	ディニョ ウィルソン アジェリコ タン Diño, Wilson Agerico Tan
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 4 6 1 3 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 11 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科応用物理学専攻
学 位 論 文 名	Dynamics of Hydrogen-Solid Surface Reactions (水素-固体表面反応のダイナミクス)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 笠井 秀明 (副査) 教 授 川上 則雄 教 授 伊東 一良 教 授 岩崎 裕 講 師 白 永煥

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、金属表面近傍での水素分子の多彩な動的現象の中で、解離吸着、非弾性散乱、会合脱離に注目し、これらの現象における水素分子の回転運動の役割や配向依存性に関する理論的研究を行い、それをまとめたものである。

第 1 章では、本研究の目的と意義を述べている。

第 2 章では、金属表面での水素分子の動的現象に現われる分子の回転／配向に起因する効果を量子論的立場から解明するためのモデルハミルトニアン及びモデルポテンシャルを提案している。

第 3 章では、Cu 表面への水素の解離吸着過程に対する分子回転の効果の量子論的解析を行っている。Cu 表面への水素の解離吸着に対する活性化障壁が分子の配向に強く依存するため、二つの効果が期待できる。その一つは舵取り効果で、もう一つは結合長の伸びに起因する回転から並進へのエネルギー移行効果である。これら二つの効果の競合で、飛来する水素分子の並進エネルギーの値によって解離吸着確率の回転量子数依存性が大きく変化することを示している。さらに、最近観測された回転量子数に対する解離吸着確率の非単調な変化の原因は、これら二つの効果の競合にあることを明らかにしている。また、飛来する分子の回転運動と表面振動とのカップリングを考慮した解析を行い、舵取り効果、回転から並進へのエネルギー移行効果の他に、反跳効果も非弾性散乱及び解離吸着過程に有効的に現われることを示し、解離吸着に対する表面温度の影響を明らかにしている。

第 4 章では、Cu 表面での水素の会合脱離過程に対する分子回転の効果の量子論的解析を行い、会合脱離する水素分子の分子回転軸整列のメカニズムを明らかにしている。また、Cu 表面が動的量子フィルタとして、会合脱離水素分子の並進速度の大きいものにヘリコプタ型の回転をさせ、小さいものにカートホイール型の回転をさせることを理論的に見出している。

第 5 章では、Pd 表面での水素の解離吸着・会合脱離過程に対する分子回転の効果の量子論的解析を行っている。Pd 表面の水素に対する反応性は Cu 表面とは大きく異なるが、Pd 表面での水素分子の解離吸着・会合脱離に関する実験結果も、Cu 表面と同様に上記の舵取り効果、回転から並進へのエネルギー移行効果によって、理解できることを示している。このことから、これら二つの効果は配向依存性を持つ動的表面現象に現われる基本的な効果であることを指摘している。

第 6 章では、本研究を総括し、この分野の今後の展望について述べている。

論文審査の結果の要旨

本研究は、金属表面近傍での水素分子の多彩な動的現象の中で、解離吸着、非弾性散乱、会合脱離に注目し、これらの現象における水素分子の回転運動の役割や配向依存性を理論的に明らかにしたものである。そのため、先ず、金属表面での水素分子の動的現象に現われる分子の回転／配向に起因する効果を量子論的立場から解析するためのモデルハミルトニアン及びモデルポテンシャルを提案している。さらに、提案したモデルハミルトニアン及びモデルポテンシャルを用いて Cu 表面への水素の解離吸着過程とその逆過程である会合脱離過程に対する分子回転の効果に関する量子論的解析、飛来する分子の回転運動と表面振動とのカップリングを考慮した量子論的解析を行っている。また、Pd 表面での水素の解離吸着・会合脱離過程に対する分子回転の効果についても量子論的解析を行っている。本研究成果を要約すると以下の通りである。

- (1) Cu 表面への水素の解離吸着に対する活性化障壁が分子の配向に強く依存するため、二つの効果が現われることを指摘している。その一つは舵取り効果で、もう一つは結合長の伸びに起因する回転から並進へのエネルギー移行効果である。
- (2) 舵取り効果と回転から並進へのエネルギー移行効果の競合が原因となって、飛来する水素分子の並進エネルギーの値によって解離吸着確率の回転量子数依存性が大きく変化することを示し、最近観測された回転量子数に対する解離吸着確率の非単調な変化の原因が、これら二つの効果の競合にあることを明らかにしている。
- (3) Cu 表面に飛来する分子の回転運動と表面振動とのカップリングを考慮した解析によって、舵取り効果、回転から並進へのエネルギー移行効果の他に、反跳効果も非弾性散乱及び解離吸着過程に有効的に現われることを示し、最近観測された解離吸着確率の表面温度依存性を明らかにしている。
- (4) 解離吸着の逆過程である会合脱離過程において、脱離する水素分子の分子回転軸整列のメカニズムを明らかにし、Cu 表面が動的量子フィルタとして、会合脱離水素分子の並進速度の大きいものにヘリコプタ型の回転をさせ、小さなものにカートホイール型の回転をさせることを理論的に見出している。
- (5) 活性化障壁のほとんどない Pd 表面の水素に対する反応性は、活性化障壁のある Cu 表面のそれとは大きく異なるが、Pd 表面での水素分子の解離吸着・会合脱離に対する分子回転の効果に関する実験結果も、Cu 表面と同様に上記の舵取り効果、回転から並進へのエネルギー移行効果によって、理解できることを示している。このことから、これら二つの効果は配向依存性を持つ動的表面現象に現われる基本的な効果であることを指摘している。

以上のように、本論文は、水素分子の Cu 表面、Pd 表面での解離吸着、非弾性散乱、会合脱離をミクロな立場から理論的に調べたもので、基礎的な面のみならず、応用の面でも非常に有益な知見を得ており、応用物理学、特に表面物性工学に寄与するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。