



Title	金属表面における水素原子の吸着状態に関する理論的研究：化学吸着と固体内電子相関
Author(s)	笠井, 秀明
Citation	大阪大学, 1981, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/33209
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏名・(本籍)	笠井秀明
学位の種類	工学博士
学位記番号	第 5500 号
学位授与の日付	昭和 56 年 12 月 25 日
学位授与の要件	工学研究科 應用物理学専攻 学位規則第 5 条第 1 項該当
学位論文題目	金属表面における水素原子の吸着状態に関する理論的研究 —化学吸着と固体内電子相関—
論文審査委員	(主査) 教授 庄司一郎 教授 池田和義 教授 三石明善 教授 橋本初次郎

論文内容の要旨

本論文は金属表面における水素原子の吸着状態を理論的に研究した結果をまとめたものであり、5 章からなっている。

第 1 章序論では、本論文の位置づけ、目的、関連した研究の概要を述べている。そして、金属表面や吸着系を考える場合には金属内の電子間クーロン相互作用を扱い、電子相関（統計的相関と力学的相関）を考慮しなければならないことを指摘している。

第 2 章では、ハバード・ハミルトニアンによって金属表面および吸着系を記述することを提案している。2 時間グリーン関数を使って固体内の電子相関を考慮したハバードの近似方法を対称性の低い表面および吸着系に拡張している。具体的に金属の清浄表面の電子状態密度を求め、電子相関効果が金属の仕事関数と有効なバンド幅をもたらすことを指摘している。

第 3 章では、水素原子を吸着原子とする吸着系の電子状態を求めている。そして、金属基盤の電子状態を特徴づける仕事関数およびバンド幅が水素原子の吸着状態を決定する基本的なものであり、水素原子が比較的のバンド幅が広く、仕事関数の小さい単純金属表面よりも、バンド幅が狭く仕事関数の大きい遷移金属表面に吸着しやすいことを定性的に示している。一般に、吸着状態は金属表面において吸着原子のおかれている局所的環境（表面の幾何学的構造）に依存しているが、エネルギー的にはこの局所的環境の影響は、わずかであり、水素原子が吸着するかしないかという基本的なことは、金属の電子状態がもつ性質によって決められると考えられることを指摘している。また、水素原子の吸着状態にはほとんど被覆率依存性のないことから、水素原子間に働く金属基盤を介した間接相互作用は、吸着エネルギーと比べると非常に小さいと考えられることを示している。

第4章では、ニッケル(111)表面で水素原子が示す2次元構造の規則一不規則転移の説明を試みている。吸着位置によって水素原子の状態が異なることを考慮した2種類の有効な相互作用が水素原子間に働くとすれば、格子気体モデルによって実験結果が説明されることを示している。また、水素原子の吸着構造は表面全体に拡がった理想的なものではなく、ある種のドメイン構造であることをモデルの枠内で考慮しなければならないことを指摘している。

第5章では、以上の研究成果をまとめている。

論文の審査結果の要旨

化学吸着、結晶成長、触媒反応などの固体表面においてみられる様々な現象は実用面で盛んに利用されている。しかし、様々な研究が進められているにもかかわらず、電子論に基づいて統一的にこれらの現象を理解するには至っていない。

本論文は、最も基本的な吸着系である、水素原子を吸着原子とする系に注目し、金属表面における水素原子の吸着状態を電子論に基づいて理論的に調べたものである。その主要な成果を要約すると次のとおりである。

- (1) 金属基盤の電子状態を特徴づける仕事関数およびバンド幅が水素原子の吸着状態を決定する基本的なものであることを指摘し、水素吸着の示す金属基盤に対する選択性、すなわち、水素原子が比較的バンド幅が広く仕事関数の小さい単純金属表面よりも、バンド幅が狭く仕事関数の大きい遷移金属表面に吸着しやすいことを定性的に説明している。
- (2) 水素原子の吸着状態にはほとんど被覆率依存性のないことから、水素原子間に働く金属基盤を介した間接相互作用は、吸着エネルギーと比べると非常に小さいと考えられることを示している。
- (3) ニッケル(111)表面で水素原子が示す2次元構造の規則一不規則転移の説明を試み、吸着位置によって水素原子の状態の異なることを考慮した2種類の有効な相互作用が水素原子間に働くとすれば、格子気体モデルによって実験結果が説明されることを示している。

以上のように本論文は金属表面における水素原子の吸着状態について多くの知見を示し、その成果は、学術面のみならず応用面においても、貢献するところ大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。