

Title	金属表面における水素分子の解離散乱に関する理論的研究
Author(s)	福井, 篤
Citation	大阪大学, 2001, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/42310">https://hdl.handle.net/11094/42310</a>
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、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

氏名	福井篤
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 16205 号
学位授与年月日	平成13年3月23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	金属表面における水素分子の解離散乱に関する理論的研究
論文審査委員	(主査) 教授 笠井 秀明  (副査) 教授 岩崎 裕 教授 川上 則雄 教授 後藤 誠一 助教 播磨 弘

### 論文内容の要旨

本論文は、金属表面における水素分子の解離散乱過程に現れる電子波の干渉効果や金属内の電子相関効果に着目し、解離散乱確率の分子配向依存性に関する理論的研究を行った成果をまとめたものであり、以下の7章より構成されている。

第1章では、金属表面における水素分子の解離散乱過程に関する研究の重要性について述べ、本研究の位置付けを明らかにしている。

第2章では、水素分子と金属表面間の電子遷移過程について調べている。その結果、分子を構成する2つの水素原子それぞれと金属表面間に存在する2つの電子遷移経路の間に生じる位相差により、電子波が干渉することを示している。

第3章では、中性水素分子が金属表面で2つの中性水素原子に解離散乱される確率の分子配向依存性について調べている。散乱後生じる2原子の重心運動エネルギーを変数として解離散乱確率を計算した結果、水素分子と金属表面間の電子遷移過程で生じる位相差が分子配向に依存するため、水素分子の解離散乱確率に分子配向優位性が生じ、表面にほぼ垂直な分子配向の場合に解離散乱確率が最も大きくなることを示している。

第4章では、金属内の電子相関効果が水素分子の解離散乱に及ぼす影響について調べている。その結果、電子相関効果によるフェルミ面近傍での電子-正孔対励起が原因となり、解離散乱後の重心運動エネルギー分布の高エネルギー領域で解離散乱確率が増加し、その領域では、表面に平行な分子配向の場合に解離散乱確率が最も大きくなることを示している。

第5章では、分子を構成する2原子間距離が水素分子の解離散乱に及ぼす影響について調べている。散乱後生じる2原子の相対運動エネルギーを変数として解離散乱確率を計算した結果、散乱前の2原子間距離に依存して解離散乱確率の分子配向優位性が大きく変化することを示している。さらに、実験結果に現れている解離散乱確率の分子配向依存性と定性的に一致する計算結果を得ている。

第6章では、イオン対が生じる場合の解離散乱確率の分子配向依存性について調べている。その結果、イオン対が生じる場合には、分子を構成する2原子の相対運動に束縛状態の存在することが原因となり、2つの中性水素原子が生じる場合に現れる解離散乱確率の表面に平行な分子配向優位性が抑えられることを示している。

第7章では、本論文の結論を述べ総括を行っている。

## 論文審査の結果の要旨

金属表面近傍の水素の動的過程は、表面で進行する様々な原子・分子の反応過程を理解する上で基礎となる重要な研究課題である。本研究では、水素分子の動的過程の中でも、水素分子と金属表面間の電子遷移の影響が顕著に現れる水素分子の解離散乱過程に着目し、電子波の干渉効果や金属内の電子相関効果が、この過程に及ぼす影響について詳しく調べている。本研究成果を要約すると以下のとおりである。

- (1)金属表面における水素分子の解離散乱過程において重要な役割を果たす水素分子と金属表面間の電子遷移過程について調べ、電子波が水素分子と金属表面間を遷移する過程で干渉することを見出している。
- (2)水素分子と金属からなる系に対するモデルハミルトニアンを導入し、水素分子内の電子系の励起確率を摂動計算で求めることで、水素分子の解離散乱確率を評価している。散乱後生じる2原子の重心運動エネルギーを変数として解離散乱確率を計算した結果、水素分子と金属表面間の電子遷移過程で生じる位相差が分子の配向に依存するため、水素分子の解離散乱確率に分子配向優位性が生じ、解離散乱後の重心運動エネルギー分布の全エネルギー領域で、表面に垂直な分子配向の場合に解離散乱確率が最も大きくなることを見出している。
- (3)金属内の電子間クーロン相互作用が大きくなるにつれて、フェルミ面近傍に励起される電子-正孔対の数が増加する。この電子-正孔対数の増加により、水素分子と金属表面間の電子遷移に関与できる金属内の電子状態の数が増加し、解離散乱後の重心運動エネルギー分布の高エネルギー領域で、水素分子の解離散乱確率が増加することを見出している。さらに、解離散乱確率が増加した領域では、大きな波数を持つ電子が分子へ遷移することが原因となり、解離散乱確率の分子配向優位性が変化し、表面に平行な分子配向の場合に解離散乱確率が最も大きくなることを見出している。
- (4)散乱後生じる2原子の相対運動エネルギーを変数として解離散乱確率を計算した結果、水素分子と金属表面間の電子遷移過程で生じる位相差が2原子間距離に依存するため、散乱前の2原子間距離に依存して解離散乱確率の分子配向依存性が大きく変化することを見出している。また、実験結果に現れている解離散乱確率の分子配向依存性と定性的に一致する計算結果を得ている。
- (5)2つの中性水素原子が生じる場合とイオン対が生じる場合の解離散乱確率に現れる分子配向依存性の違いを調べた結果、イオン対が生じる場合には、分子を構成する2原子の相対運動に束縛状態が存在することが原因となり、2つの中性水素原子が生じる場合の解離散乱確率に現れる表面に平行な分子配向優位性が抑えられることを見出している。このことから、分子を構成する2原子に作用するポテンシャルエネルギーの原子間距離依存性が解離散乱確率の分子配向依存性に大きな影響を及ぼすことを指摘している。

以上のように、本論文は、電子論に基づく微視的な立場から金属表面における水素分子の解離散乱過程を理論的に調べたもので、基礎的な面のみならず、応用の面でも有益な知見を得ており、応用物理学、特に理論物性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。