

Title	遷移金属表面及びその水素吸着の電子構造
Author(s)	田邊, 哲朗
Citation	大阪大学, 1978, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/848">https://hdl.handle.net/11094/848</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

[67]

氏名・(本籍)	田 邊 哲 朗
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	第 4 1 6 8 号
学位授与の日付	昭 和 53 年 2 月 22 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題目	遷移金属表面及びその水素吸着の電子構造
論文審査委員	(主査) 教 授 井本 正介 (副査) 教 授 佐野 忠雄 教 授 塙 輝雄

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、遷移金属表面の電子構造と、その表面に水素が吸着した場合の電子状態とを解明することを目的とし、Hartree-Fock-Slaterの $X\alpha$ 法を用いてクラスタ模型の分子軌道計算を行ったもので、6章よりなっている。

第1章では、本研究の目的と意義とを述べている。

第2章では、先ず本研究で採用したHartree-Fock-Slaterの理論を述べ、次に数値計算法として使用したDiscrete-Variational(DV)法及びSelf-Consistent-Charge(SCC)近似とを解説している。

第3章では、このSCC-DV- $X\alpha$ 法を使用して $Ni_9$ クラスタについて分子軌道計算を行った結果を詳述し、これが他の分子軌道計算に比べ格段に信頼性の高いものであることを示すとともに、この方法が表面に関する各種の実験結果を解析する上で非常に有用な理論的研究の一つであることを示している。

第4章では、SCC-DV- $X\alpha$ 法を $Ni_9$ ,  $Pd_9$ ,  $Pd_{19}$ ,  $W_9$ の各クラスタに適用した結果を述べている。得られた結果を光電子分光による実験結果やバンド理論による結果と比較した所、9この電子から成るクラスタではよく表面の電子状態と対応する結果を、 $Pd_{19}$ ではバンド理論と一致する結果を得ている。これより、この方法による計算は、適当な大きさのクラスタを用いることにより、表面の電子状態の解析に非常に適したものであるとしている。

第5章では、 $Ni_9$ ,  $Pd_9$ ,  $W_9$ の各クラスタに1この水素原子を吸着させた $H \cdot Ni_9$ ,  $H \cdot Pd_9$ ,  $H \cdot W_9$ の各クラスタについて同様の計算を行った結果を述べている。水素吸着によってValence state

の底部に結合軌道が、励起状態に反結合軌道が形成し、そのエネルギー差は $H \cdot Ni_9$ ではEELSによる実験結果とよく一致することを示すとともに、光電子スペクトルを理論的に解析できることを事例を挙げて説明している。

第6章では本研究の成果を総括し、さらに今後の研究方向及び期待される結果などについて述べている。

### 論文の審査結果の要旨

本論文はNi, Pd, Wなど実用的に水素との相互作用が重要な遷移金属と、これらに水素が吸着した表面とについて、クラスタモデルに対して分子軌道計算を行った結果をまとめたものである。計算手法としてはab initioなHartree-Fockとほぼ同程度の精度を持つHartree-Fock-Slater( $X\alpha$ )法を用い、これにDiscrete Variational法による近似とSelf-Consistent-Charge近似とを適用している。その結果、金属表面については9コの原子から成るクラスタによって、水素吸着をした表面についてはこのクラスタに1この水素原子を加えた $H \cdot M_9$  ( $M=Ni, Pd, W$ )によってよく表面の電子状態があらわされてことを、UPSスペクトルと計算結果との対応を通して明らかにしている。また、NiとPdとの水素挙動の違いも、計算結果から導かれるOrbital population及びOverlap populationの差から説明できることを示している。

以上のように本論文は、各種原子力材料と水素との相互作用に関連して金属表面及び水素吸着表面の電子構造を、微視的構造によく対応し、しかも精度の高い計算方法を用いて理論的研究を行ったもので、この方法のすぐれた適用性を、計算結果と実験結果との比較により明らかにしている。これらは原子力工学の発展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。