

氏 名 (本 籍)	八 木 一 寿 (長 野 県)		
学 位 の 種 類	理 学 博 士		
学 位 記 番 号	博 甲 第 642 号		
学位授与年月日	平成元年 3 月 25 日		
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 1 項該当		
審 査 研 究 科	物理学研究科		
学 位 論 文 題 目	Angle Resolved Photoemission Studies of Palladium : Pd (110) clean and oxygen adsorbed c (2×4) - O/Pd (110) surfaces (パラジウムの角度分解光電子分光法による研究 : Pd (110) 清浄表面及び c (2×4) -O/Pd (110) 酸素吸着面)		
主 査	筑波大学教授	理学博士	阿 部 聖 仁
副 査	筑波大学教授	理学博士	檜 原 良 正
副 査	筑波大学教授	理学博士	中 尾 憲 司
副 査	筑波大学助教授	理学博士	福 谷 博 仁
副 査	筑波大学助教授	理学博士	舩 本 泰 章

## 論 文 の 要 旨

鉄, 白金のような遷移金属は化学合成上の触媒物質として重要な位置を占めている。触媒反応は金属表面上での化学反応であり, 初期過程としての遷移金属表面への気体の吸着について電子状態を明らかにすることは, 反応素過程のミクロな機構の解明を目的とした表面物性研究にとって欠かすことのできない課題である。しかし, これ迄に光電子分光法, 低速電子線エネルギー損失分光法, 昇温脱離法により鉄, 銅, ニッケル等の低指数結晶面に対する研究が報告されているにすぎない。

本論文は, 金属表面の電子状態の把握に関して信頼度の高い角度分解光電子分光法を使って, 今迄殆ど研究されたことのないパラジウム Pd の特に反応性が大い期待される (110) 表面について, 1) 清浄面及び 2) 酸素を吸着した c (2×4) 表面の研究結果をまとめたものである。

論文は 3 つの主要部分より構成されている。

### 1) 試料調整法の確立

本研究の進展には試料の清浄表面の確保が必須の条件である。著者は,  $10^{-10}$  Torr 以下の超高真空中で  $\text{Ar}^+$  イオン衝撃と焼鈍処理の反復を行うことで再現性のよい清浄表面を作成する方法を見出した。酸素吸着面についても安定な c (2×4) 超格子表面の作成法を確立し, 信頼度の高い測定値を得る事に成功した。

### 2) (110) 清浄表面の角度分解光電子分光法による研究

角度分解光電子分光法を利用すると、電子状態のエネルギーの運動量依存性（分散）を知ることができる。光遷移の終状態として、自由電子エネルギー帯を仮定し、始状態のエネルギー分散関係、及びスペクトルの偏光依存性よりエネルギー準位の対称性を確定した。実験結果は理論計算とよい一致を示し、この方法の有効性を示した。

### 3) c (2 × 4) -O/Pd (110) 酸素吸着面の角度分解光電子分光法による研究

Pd (110) 表面に O<sub>2</sub> を約 1 ～ 3 ラングミュアー露出させると、O<sub>2</sub> は解離吸着し c (2 × 4) 超格子構造を示す表面が得られ、吸着酸素原子の関与する表面準位ができる。角度分解光電子スペクトルより、表面準位のエネルギー分散、準位の対称性を決定した。特に O (p<sub>z</sub>) 準位は、表面ブリルアン域の中心から離れるに従い、エネルギーが減少し、ブリルアン域境界では約 1 eV 低下することが見出された。このことは、Fe (110), Ni (110) -O 表面等で得られた結果と異なり、吸着原子と結晶表面の Pd 原子との相互作用の重要性を示すものである。実験結果の定量的解析に必要な酸素吸着面の原子配列の情報がないため、著者は種々のモデル構造を仮定して、LCAO 計算を行い、酸素原子の吸着位置として 4 配位のフォローサイトが最も確からしいと指摘し、相互作用の大きさの見積り及び吸着に伴う Pd の d 電子伝導帯の変化を定性的に説明できる事を明らかにした。

## 審 査 の 要 旨

著者は初めて反応性の高い Pd (110) 表面について

- 1) 清浄表面の作成法を確立し、
  - 2) Pd 固体電子エネルギー帯の分散及び
  - 3) 酸素吸着 c (2 × 4) -O/Pd (110) 系の表面電子準位のエネルギー分散に関する有用な知見を得た。特に酸素吸着系に関しては、Pd 原子と O 原子間相互作用の重要性を指摘し、LCAO 計算を行って相互作用の大きさ及び吸着サイトの同定を行ったことは固体の表面物性研究の分野に大きく寄与したものと高く評価できる。
- よって、著者は理学博士の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。