

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 鈴木 涼

金属表面での水素の吸着状態および表面から内部への吸収過程は、金属表面における触媒反応や水素吸蔵の基礎過程としてさらなる理解が求められている。表面に吸着した水素の吸着状態については、水素原子核が量子的に非局在化する可能性が理論的に指摘されているが、基底状態に関して実験的に立証されて例はない。また表面に吸着した水素が内部へと吸収される過程については、吸収経路や速度が明らかにされた例はほとんどない。このような背景のもと、本研究は、表面近傍に存在する水素の振動状態および深さ分布を調べることが可能な共鳴核反応法を用いて、水素の非局在化と水素吸収過程を調べた研究の成果である。

本論文は6章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景、従来の研究成果と本研究を進めるに至った動機および目的が述べられている。

第2章では、本研究を遂行するにあたって利用した実験手法の原理、理論的枠組みを概説している。特に、本研究では水素の測定のために、加速器を用いた共鳴核反応法を利用しており、その詳細を述べている。共鳴核反応法では、ドップラー効果を利用して表面に吸着した水素の量子的零点振動を直接測定すること、表面から内部へ吸収された水素の深さ分布を高分解能で測定することが可能であり、その原理と実験方法が述べられている。

第3章では、本研究で用いた実験装置について記述している。清浄な表面を準備し確認するための超高真空設備、核反応のための高速イオンビームをえるための加速器とビーム光学系、核反応の計測系について詳述している。

第4章には、本研究における実験結果が詳述されている。実験内容は主に清浄 W(110)表面における吸着水素の零点振動測定と、W(110)上に作成した単結晶 Y 薄膜の水素化過程の観測からなる。いずれも、共鳴核反応法を利用することで以下のような新しい知見を得た。

W(110)表面における吸着水素の零点振動

低速電子線回折を併用することで水素の曝露量を調整し、2種類の水素被覆率について、イオンビームの入射角を変えて共鳴核反応プロファイル測定を行った。実験結果の解析から、表面に垂直な方向の零点振動が 80meV であること、表面に平行な方向の零点振動が [1-10]方向と[001]方向でいずれも~70meV であることを明らかにした。

Y 薄膜の水素化

膜厚 20nm の Y 薄膜に水素を曝露したときの核反応共鳴プロファイルの変化、および水素を曝露したときの水素吸収量変化の基盤温度依存性を測定した。共鳴プロファイル測定から、曝露量を変えても薄膜中の平均水素濃度が深さによらないことを見いだした。続き

て水素を曝露する温度を変化させて水素吸収速度を詳しく調べ、250K 以下では 相の成長が起こらないことを明らかにした。さらに薄膜成長温度を 300 600K の間で変化させると、成長温度が高くなるにつれて水素吸収速度が大きく低下することを見いだした。

第 5 章では、第 4 章で述べた実験結果に対する考察を行っている。

W(110)表面における水素吸着

低速電子線回折で見られる超周期構造に対応する水素被覆率の見積もりを行った。さらに本研究で得られた零点振動エネルギーと、従来報告されている電子エネルギー損失分光の結果とを合わせて考察することで、水素吸着状態の表面垂直方向には調和振動子近似が成立することを明らかにした。また、これまで論争となってきた水素の非局在化は基底状態では起こっていないことを論じた。

Y 薄膜の水素化

Y の 相形成において、実験結果の解析から、表面へ入射する水素の数（入射分子数を原子数に換算したもの）に対して内部へと吸収される確率が~1%であることを見積もった。500K 以下で成長させた Y 薄膜の 相形成速度が、水素曝露時の温度にほとんど依らないことから、このときの水素化過程は水素の表面吸着過程が律速となると論じた。一方、600K 以上で成長させた Y 薄膜の水素化は、 相形成速度が律速となると議論した。成長温度の違いは、薄膜内の結晶粒径や欠陥密度に影響しており、これらが 相形成速度に大きく影響していると議論した。

第 6 章は、本研究の結論が要約されている。

以上を要するに、本研究は、共鳴核反応法を利用して、 W(110)表面上の水素の零点振動エネルギーを直接測定し、水素の吸着状態に関する新たな知見を得、 Y 薄膜を水素曝露した際の共鳴プロファイルと水素曝露量依存性測定から、Y 薄膜中の水素分布および水素吸収確率の絶対値測定に成功し、金属水素化に関する新たな知見を得たものである。表面科学として有意義な貢献をなしたばかりでなく、金属の水素吸蔵基礎過程を明らかにした点から工学的にも寄与する所は大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。