

論文審査の結果の要旨

氏名 清水 皇

本論文は、Pt(997)表面における一酸化炭素(CO)の吸着状態と電荷移動、Pt(997)およびPt(111)表面におけるテトラシアフルバレン(TTF)の吸着状態と電荷移動について、高分解能電子エネルギー損失分光(HREELS)、低速電子回折(LEED)、高分解能X線光電子分光(HR-XPS)、走査トンネル顕微鏡(STM)を用いた研究について述べられている。論文は6章からなり、第1章は本研究の背景と目的、第2章は実験装置と実験方法、第3章はPt(997)表面におけるCOの吸着と電荷移動、第4章はPt(997)表面におけるTTF分子の多様な吸着状態と電荷移動、第5章はPt(111)表面におけるTTF分子の多様な吸着状態と電荷移動、第6章は結論である。

第1章では、ドナー分子とアクセプター分子を概観し、表面におけるエネルギー準位アラインメントについて提案されているモデルを紹介した後に、CO分子とTTF分子の性質について述べている。最後に本研究の目的を設定した。

第2章では、本研究に用いたHREELS、HR-XPS、STM-IRAS実験装置について簡略に説明している。また、単結晶Pt表面の清浄化と、CO分子の吸着およびTTFの蒸着について記述した。

第3章は、Pt(997)表面におけるCOの吸着状態と電荷移動をHR-XPSを用いて詳細に研究した結果について述べられている。ステップのオントップサイト(S0サイト)のみにCO吸着した表面、S0サイトとテラスのオントップサイト(T0サイト)にCOが吸着した表面、S0サイトT0サイトそしてテラスブリッジサイト(TBサイト)にCOが吸着した表面を作製し、それぞれの吸着面のC 1sとPt 4f_{7/2}のHR-XPS測定を行った。C1sではTBサイト、S0サイト、T0サイトに吸着したCOに帰属されるピークが観測された。Pt(111)c(4x2)-CO表面のC 1sと比較することにより、サイトごとの吸着量を見積もった。一方、それぞれの吸着面におけるPt 4f_{7/2}スペクトルから、COがどのサイトに吸着した場合でも、Pt 4f_{7/2}ピークは高結合エネルギー側に化学シフトすることがわかった。すなわち、どの場合でも表面Pt原子からCOに対して電荷移動が生じている。さらに、CO分子がS0サイトのみ吸着した場合、ステップのPt原子だけでなくテラスのPt原子からも電荷移動が生じていることを示す初めての結果が得られた。

第4章は、Pt(997)表面におけるTTF分子の吸着状態と電荷移動を表面振動分光(HREELSとIRAS)、C 1s、S 2p、Pt 4f_{7/2}のHR-XPSおよびSTMで研究した。吸着量の小さい領域の振動スペクトルから、TTFのC=C二重結合がC-C単結合に再混成し、Pt-C結合が形成されたことがわかった。さらに吸着量を増やすと、TTF分子の中央C=Cと表面との相互作用が

弱い吸着種が出現する。飽和単層膜では、低被覆率で観測された振動モードに加えて、 sp^2 を示唆する ν_{CC} および ν_{CH} が観測された。一方、S 2p スペクトルには4つの成分が有り、そのうち3つはPt-S 共有結合を示唆している。これらを勘案して5種類の吸着構造モデルを提案し、C 1s スペクトルから、それぞれの相対被覆率を見積もった。Pt 4f_{7/2} スペクトルはTTFの吸着により、PtからTTFへ電荷が移動することを示した。

第5章はPt(111)表面におけるTTF分子の吸着状態と電荷移動について述べている。第4章と同様の実験により、Pt(111)表面でTTFは複数の吸着状態をとることがわかった。TTF分子の炭素原子や硫黄原子はPt-CおよびPt-S 共有結合を形成し、再混成されることが分かった。相違点としては、S 2pのHR-XPSによると、Pt(997)に吸着したTTFの方が基板からの電荷移動がやや多いことが判明した。

第6章では、全体のまとめと今後の展望について述べられている。特に、Ptのように化学的活性が強い金属基板の場合、吸着状態はドナー・アクセプターという電荷移動の概念だけでは説明できず、金属と分子の化学結合を考えることが重要であることを結論した。

以上のように、清水皇氏は、Pt(111)平滑および階段状表面におけるCOおよびTTFの吸着状態と電荷移動について、様々な分光学的手段を駆使して詳細な研究を行った。

なお、本論文の第3章は、小坂谷貴典、則武宏幸、向井孝三、吉本真也、吉信淳との共同研究、第4章は小坂谷貴典、向井孝三、吉本真也、吉信淳との共同研究であるが、論文提出者が主体となって、実験の遂行、分析および検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上 1973 字