

Einleitung

Mit Entwicklung der Ultrahochvakuum-Technologie in den 60er Jahren konnte die Wechselwirkung von Teilchen mit Metalleinkristallobereflächen reproduzierbar untersucht werden. Erst jetzt konnten die Experimente unter Ausschluß von Restgas-Einflüssen durchgeführt werden. Bereits die ersten Arbeiten des damit begründeten Bereiches der Oberflächenphysik beschäftigten sich mit der Adsorption von Wasserstoff (H_2). Ziel ist dabei eine möglichst umfassende Charakterisierung der energetischen und kinetischen Eigenschaften der Adsorbatphasen unter besonderer Berücksichtigung der geometrischen Oberflächenstruktur. Bis heute werden Teilgebiete der Wasserstoff-Adsorption kontrovers diskutiert. Dazu zählt u.a. auch die H_2 -Dissoziation an Katalysatormetallen.

Die Untersuchungen sind zur Aufklärung einer Vielzahl technologischer Prozesse von Interesse. So ist Wasserstoff häufig Edukt oder Produkt heterokatalytischer Synthesen, wie z.B. der Fischer-Tropsch-Synthese, oder aber durch Diffusion in Reaktor- oder Tankmäntel für eine Materialversprödung verantwortlich. Mit der Entwicklung der Brennstoffzellen-Technologie kommt das Interesse an der Generierung von Wasserstoff in Methan- oder Methanol-Reformern bzw. an der Wasserstoff-Speicherung hinzu [Chr88].

Da Palladium und Nickel bekannte Katalysatormaterialien sind, existieren bereits eine Vielzahl von Arbeiten über die H_2 -Adsorption auf verschiedenen Einkristallobereflächen dieser beiden Elemente. Dabei wurde, wie für Übergangsmetalle zu erwarten, immer eine spontan dissoziative Adsorption in atomare Zustände beobachtet. Auf einfachen und edlen Metallen ist die Dissoziation inhibiert. Nur wenn das Molekül z.B. an einer Glühkathode prädissoziiert wird, erfolgt eine atomare Adsorption. Ansonsten geht das Molekül nur eine schwache Van-der-Waals-Wechselwirkung mit dem Metall ein und physisorbiert molekular [Chr88]. Dieses unterschiedliche Adsorptionsverhalten von Wasserstoff auf Übergangsmetallen bzw. einfachen und edlen Metallen wurde in einem Dissoziationsmodell von Harris und Andersson auf der Grundlage der unterschiedlichen Besetzung der d-Bänder mit der sogenannten Pauli-Repulsion erklärt [Har88].

Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen zur Wechselwirkung von Wasserstoff mit der offenen fcc(210)-Oberfläche der beiden Elemente Palladium und

Nickel wurde neben der bekannten atomaren Adsorption auch eine nach dem Harris-Andersson-Modell nicht zu erwartende molekulare Chemisorption beobachtet. Dieser Zustand konnte mittels Helium-Kühlung der Probe bei einer relativ hohen Temperatur von etwa 50K stabilisiert werden. In der Literatur findet sich bisher nur ein weiteres Beispiel eines stabilen H₂-Chemisorptionszustandes auf einer Übergangsmetall-oberfläche: die Untersuchung von Anne-Sofie Mårtensson zur Wechselwirkung von Wasserstoff mit einer gestuften Ni(100)-Oberfläche, der Ni(510)-Oberfläche [Mår88].

„The theorist who has never *caught on the wrong leg* is not doing his job properly! So with this attitude established, I make some suggestions for further experimental work...there is no doubt, that low-temperature studies provide information about a low-barrier systems, this requires helium cooling of the substrate, which seems not to be everybody idea of a fun thing to do...”

J. Harris, Appl. Phys. A47 (1988) 63

In der vorliegenden Arbeit sollen mit Hilfe einer kombinierten Spektrenanalyse aus den zur Verfügung stehenden Methoden Aussagen zur Adsorptionsenergetik der untersuchten Systeme gemacht werden. Außerdem werden mögliche Adsorptionsplätze sowohl der H-Atome als auch der H₂-Moleküle diskutiert. Auf der Basis dieser Diskussion wird der H₂-Dissoziationsprozeß allgemein erörtert.

Es werden zunächst die zur Diskussion der experimentellen Ergebnisse notwendigen Grundlagen vorgestellt und anschließend die verwendete Apparatur beschrieben und Meßmethoden erläutert (Kapitel 1 und 2).

Im Anschluß daran werden anhand der Ergebnisse der Thermodesorptionsspektren (TDS), Austrittsarbeitsänderungsmessungen ($\Delta\Phi$) und Elektronenenergieverlustspektren (HREELS) das H₂/Pd(210)- und H₂/Ni(210)-Adsorptionssystem bei 100K und 50K diskutiert (Kapitel 3). Kapitel 4 konzentriert sich auf das Besetzungsverhältnis der atomaren und molekularen Wasserstoff-Zustände. Dazu werden H₂/D₂-Austauschexperimente und Photoemissionsspektren (UPS) vorgestellt.

Es folgen weitere Untersuchungen zur Wasserstoffabsorption auf der Pd(210)-Oberfläche sowie zur Koadsorption von Wasserstoff und Kohlenmonoxid (Kapitel 5 und 6). Abschließend werden die Ergebnisse zusammenfassend diskutiert (Kapitel 7).