

# Kapitel 1

## Einleitung

Wasserstoff repräsentiert in formaler Hinsicht das „erste“ und einfachste Element des Periodensystems. Er kann auf vielfältige Weise mit Metallen wechselwirken. So besteht für ihn z. B. die Möglichkeit, auf der Metalloberfläche u. a. dissoziativ atomar gebunden zu werden. Das Verständnis dieser Reaktion steht ebenso im Mittelpunkt meiner Arbeit wie Aussagen zu Problemen der Energetik und Kinetik der Wasserstoffadsorption auf ausgewählten Übergangsmetallen. Dazu gehören selbstverständlich auch Informationen über strukturelle Fragen.

Gerade die systematische Erforschung der Geometrie und der elektronischen Struktur von Wasserstoff-Metall-Systemen ist außerordentlich reizvoll. So existieren viele profunde Untersuchungen über die „grabenartigen“ (110)-Oberflächen von fcc-Metall-Wasserstoff-Systemen (z. B. H/Ni(110), H/Pd(110) [20]), jedoch ist bisher nur wenig über hcp-Metall-Wasserstoff-Systeme bekannt, die ebenfalls eine „grabenartige“ Oberflächenstruktur ((10 $\bar{1}$ 0)-Oberfläche) aufweisen. In der Arbeitsgruppe wurde in diesem Kontext bereits das Verhalten von Wasserstoff auf den (10 $\bar{1}$ 0)-Oberflächen der hcp-Kristalle Co und Ru untersucht ([48] u. [91]). Im Sinne einer systematischen Fortsetzung dieser Arbeiten liegt deswegen ein besonderer Schwerpunkt dieser Dissertation im Studium der geometrischen und elektronischen Struktur der (10 $\bar{1}$ 0)-Oberfläche des Rheniums (ebenfalls hcp-Kristallstruktur). Zur näheren Erläuterung sei hier lediglich gesagt, daß Wasserstoffadsorption auf Metallen häufig zu Strukturveränderungen führen kann. Es können sich Relaxationen (charakterisiert durch vom Volumenwert abweichende Lagenabstände in der Nähe der Oberfläche) und Rekonstruktionen (periodisch-statische Auslenkungen einzelner Substratome lateral, aber auch senkrecht zur Oberfläche) zeigen.

Darüber hinaus stellt sich die Frage, wo genau sich die Wasserstoffatome auf der Einkristall-Oberfläche anlagern. So könnten entweder hochkoordinierte Adsorptionsplätze (z. B. dreifach koordinierte) oder niedriger koordinierte (z. B. zweifach koordinierte, sog. Brückenplätze) besetzt werden. Dieser zweite Fall wurde bisher nur selten beobachtet, z. B. beim System (H/W(100)) [132]. Sollte man einen derartigen Wasserstoffadsorptionsplatz auch bei der

von uns untersuchten  $\text{Re}(10\bar{1}0)$ -Oberfläche finden, so wäre dieses Ergebnis überraschend.

Schließlich hat der Wasserstoff wegen seiner geringen Größe zumindest theoretisch die Möglichkeit, sich nicht nur auf der Oberfläche anzulagern, sondern auch in den Kristall einzudringen. Dieses Verhalten wurde z. B. bei  $\text{H}/\text{Cu}(110)$  [131] und bei  $\text{H}/\text{Pd}(110)$  [9] beobachtet. Diese beiden Einkristall-Oberflächen besitzen „grabenartigen“ Charakter. Diese im Gegensatz zu (100)- oder (111)-orientierten fcc-Oberflächen eher „offene“ Morphologie begünstigt anscheinend eine solche **A**bsorption von Wasserstoff. Auch diesem Aspekt wurde in der vorliegenden Dissertation nachgegangen, und zwar am Beispiel einer Palladium-(210)-Oberfläche. Diese besitzt selbst im wohlgeordneten Zustand eine sehr zerklüftete Oberflächenmorphologie. „Höhlenartige“ Vertiefungen dieser Oberfläche könnten die Wasserstoffaufnahme deutlich begünstigen. Auch eine massive, durch Wasserstoff verursachte Rekonstruktion dieser Oberfläche und damit verbunden eine Öffnung von Eintrittskanälen in die Oberfläche ist denkbar. Diese Kanäle könnten einen möglichen Diffusionspfad für die Wasserstoff-**a**bsorption darstellen.

Für derartige Untersuchungen bietet sich das Metall Palladium deshalb besonders an, weil bekannt ist, daß Palladium die bemerkenswerte Fähigkeit besitzt, das 600-fache seines Volumens an Wasserstoff aufzunehmen [75]. Dies kann praktisch-technisch dazu ausgenutzt werden, metallisches Palladium als potentiellen Wasserstoffspeicher einzusetzen. Dieser könnte in Fahrzeugen aller Art Verwendung finden, um erfolgreich die umweltverträgliche Brennstoffzelle, in der Wasserstoff elektrochemisch oxidiert wird, zur Fortbewegung zu nutzen.