

電子構造研究部門（客員研究部門）

松本吉泰（教授）

A-1) 専門領域：表面科学

A-2) 研究課題：

- a) 固体表面上でのレーザー誘起反応ダイナミクス
- b) メタンの活性化
- c) 銀酸素表面における光化学
- d) 多光子光電子分光による表面電子状態の研究

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 金属および半導体表面上に単分子層吸着した分子種に紫外レーザー光を照射することにより多様な非熱的過程を誘起することができる。本研究グループは、これらの表面上の物理吸着種の光反応に注目して研究を行なっている。本年度は昨年度に引き続き、Si(100)表面に吸着した稀ガス(Xe, Kr)の光刺激脱離について研究を行なった。特に、この表面をN₂Oで表面第一層のみを酸化させた表面に注目して研究を行った。この表面でも稀ガスは物理吸着するが、清浄表面にくらべてより高い効率でこれらの吸着種が近赤外から紫外に至る広い波長範囲の光の照射によって脱離した。光反応断面積の波長依存性や脱離種の並進速度分布を測定した。特に興味深い点は最も早い速度成分をもつ脱離チャンネルが光子エネルギー3.5 eV以上で開くことである。また、その並進速度分布は極めて非熱的であり、励起状態の失活速度が吸着種の表面からの距離に大きく依存していることがわかった。
- b) メタンは豊富に存在する天然資源であるが極めて反応性に乏しい。従って、これを活性化し、より有用な物質に変換することが望まれている。本研究では昨年度に引き続き、遷移金属表面上での表面光化学によりメタンを活性化し、励起メカニズムをより明らかにすることを試みた。Pt(111)表面ではメタンの光化学反応が共吸着したCsによって大きく失活されることがわかった。励起メカニズムと仕事関数との関連について考察を行った。また、今まで研究を行ってきたPt(111)やPd(111)ではすべてメタンは解離か脱離をするのみであったが、Cu(111)面ではC-C結合反応が光化学的に起こり、エチレンが生成されることを見出した。
- c) Ag(110)表面を酸化すると表面には(nx1)の銀酸素鎖からなる超構造が形成される。この表面に紫外光を照射すると酸素が消失することが報告されていた。しかし、そのメカニズムはまったく不明である。そこで、本研究ではXPS、TPDを用いてこの点を明らかにすることを目的として研究を行った。まだ、測定は初期的なものであるが、光照射によって酸素被覆率が減少すること、波長依存性があることなどを確認した。しかし、反応効率は低く、また、表面の準備方法によっても変化するため、これらの原因について検討を加えている。
- d) 表面光化学における励起メカニズムを明らかにする目的で、多光子光電子分光による吸着種の電子励起状態の研究を行なっている。本年度は、フェムト秒チタンサファイアレーザーの2倍波と、これをXeセルに集光することによって得られた真空紫外光を用いたポンプ・プローブ2光子光電子分光の装置を製作した。従来の可視光のみを用いる2光子光電子分光ではフェルミ準位に近い非占有状態の観測が困難であるが、この方法では真空紫外光をプローブ光に用いることによりこの欠点を補うことができる。Pt(111)表面およびそれへの吸着種系について検討を進め、まず清浄Pt(111)表面において、これらの2光子の相関スペクトルをとることに成功した。また、Pt(111)

表面における sp バンド由来の表面状態や鏡像準位が Xe を吸着させることによりどのような影響を受けるかについて測定を行った。

B-1) 学術論文

K. WATANABE, Y. MATSUMOTO, M. KAMPLING, K. AL-SHAMERY and H-J FREUND, "Photochemistry of methane on Pd/Al₂O₃ model catalysts: Control of photochemistry on transition metal surfaces," *Angew. Chem., Int. Ed. Engl.* **38**, 2192 (1999).

B-4) 招待講演

Y. MATSUMOTO, "Photochemistry of Physisorbed Molecules: From Single Crystal Surfaces to Clusters," NEDO Symposium on "Frontiers in Electronically Induced Surface Processes," Hayama (Japan), February 1999.

Y. MATSUMOTO, "Excitation Mechanisms and Dynamics of Surface Photochemistry," The 6th International Workshop on Femtosecond Technology, FST'99, Chiba (Japan), July 1999.

B-6) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本化学会東海支部代議員(1993-1994).

日本学術振興会学術参与(1999-).

学会の組織委員

第 1 回日米分子科学若手ワークショップ組織代表者(1991).

第 8 回化学反応討議会プログラム委員(1992).

第 51 回岡崎コンファレンス組織委員(1994).

分子研研究会「分子 - 表面ダイナミクス」組織委員(1995).

大阪大学 50 周年記念シンポジウム「固体表面動的過程」組織委員(1995).

IMS International COE Conference 組織委員(1997).

分子構造総合討論会プログラム委員(1997).

Ninth International Conference on Vibrations at Surfaces 組織委員(1997).

NEDO Symposium on "Frontiers in Electronically Induced Surface Processes" 組織代表者(1999).

科学研究費の研究代表者、班長等

グループ研究「光科学の新展開」研究代表(1997-1999).

C) 研究活動の課題と展望

現在は主に「固体表面上でのレーザー誘起反応ダイナミクス」の研究課題のもとで金属や半導体の清浄表面に吸着した分子種の光誘起過程に関する研究をおこなってきた。今後もさらに、吸着種の幾何学的・電子的構造を明らかにすることにより、光誘起過程の機構と動的挙動に関する分子論的な理解を深めることに研究の主眼を置く。更に、固体表面上に超薄膜やクラスターを形成し、このようなナノ構造物質上での反応、光誘起過程、電子状態についての研究に発展させていく。