

極限精密光計測研究部門（分子制御レーザー開発研究センター）

松 本 吉 泰（教授）（2003 年 4 月 1 日～2007 年 3 月 31 日）＊）

A-1) 専門領域：表面科学、分子分光学

A-2) 研究課題：

- a) 時間分解第二高調波発生による固体表面核波束ダイナミックスの研究
- b) 金属表面上での反応の時間・空間発展に関する研究
- c) 和周波顕微分光装置の試作とその応用
- d) チタニア表面での金ナノクラスターの構造と反応

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 本研究グループは金属表面上に吸着した原子の振動をコヒーレントに励起でき（振動核波束の生成）、その振動核波束のダイナミックスをフェムト秒領域でのポンプ・プローブ表面第二高調波発生により研究している。本年度は振動核波束の生成がどのような電子状態間の遷移によって誘起されるのかについて集中して実験をした。注目した吸着系は Cu(111) 表面に吸着したナトリウムである。この吸着系の表面電子状態は実験、計算ともよく研究されている。励起光のエネルギーを変えながらコヒーレントフォノンに基づく振動の初期強度を測定したところ、この作用スペクトルは基板である銅の吸収スペクトルに極めて近いことが分かった。したがって、コヒーレント振動励起の初期過程は表面近傍の基板の電子励起であることが明らかとなった。
- b) 表面反応は不均一反応の典型的な例であり、巨視的に平均化された反応速度論的な知見と共に、どのように空間的に反応が進行するかを研究することが必要である。本研究課題では、Ag(110) 表面上に準備した擬一次元化合物である AgO 鎖と水との反応がどのように時間・空間発展するかを走査型トンネル顕微鏡によって観測した。その結果、この反応はある誘導時間の後に、突如、反応が迅速に起きる反応フロントが出現し、これが表面上を移動するという極めて珍しい空間発展を捉えることができた。
- c) 可視・赤外和周波は、中心対称性が崩れた場所で発生するため、これを利用した分光法は表面や界面に鋭敏な振動分光として、また、不整炭素を持つキラルな分子への応用など幅広い応用が考えられる。そこで、より局所的なプローブとしてこの分光法を用いるために和周波顕微分光装置を開発、試作した。本年度は、これを用いて、金属メッシュ試料における和周波信号の空間分布をイメージングし、また、赤外光と可視光パルスが遅延させることにより、和周波信号の遅延時間依存性を測定した。
- d) チタニア表面上の金ナノクラスターは CO の酸化反応などにおいて触媒能を示すことで注目されている。佃グループとの共同研究によりサイズ選択されたアルカンチオールを保護基とした金ナノクラスターをチタニア単結晶表面にコートし、これを真空中で酸素、および、水素プラズマエッチングにより保護膜を除去して、金ナノクラスターを準備した。また、これを酸素エッチングにより酸化した試料に紫外光を照射すると酸化物が容易に還元されることを見出した。

B-1) 学術論文

T. MATSUMOTO, P. NICKUT, T. SAWADA, H. TSUNOYAMA, K. WATANABE, T. TSUKUDA, K. AL-SHAMERY and Y. MATSUMOTO, “Deposition and Fabrication of Alkanethiolate Gold Nanocluster Films on TiO₂(110) and the Effects of Plasma Etching,” *Surf. Sci.* **601**, 5121–5126 (2007).

T. MATSUMOTO, P. NICKUT, H. TSUNOYAMA, K. WATANABE, T. TSUKUDA, K. AL-SHAMERY and Y. MATSUMOTO, “Thermal and Photochemical Reactivity of Oxygen Atoms on Gold Nanocluster Surfaces,” *Surf. Sci.* **601**, 5226–5231 (2007).

H. TSUNOYAMA, P. NICKUT, Y. NEGISHI, K. AL-SHAMERY, Y. MATSUMOTO and T. TSUKUDA, “Formation of Alkanethiolate-Protected Gold Clusters with Unprecedented Core Sizes in the Thiolation of Polymer-Stabilized Gold Clusters,” *J. Phys. Chem. C* **111**, 4153–4158 (2007).

Y. MATSUMOTO, “Photochemistry and Photo-Induced Ultrafast Dynamics at Metal Surfaces,” *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **80**, 842–865 (2007).

O. NAKAGOE, N. TAKAGI, K. WATANABE and Y. MATSUMOTO, “Explosive Evolution of Hydrogen Abstraction of Water on Oxidized Ag(110) Surfaces Studied by Scanning Tunnelling Microscopy,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **9**, 5274–5278 (2007).

M. FUYUKI, K. WATANABE, D. INO, H. PETEK and Y. MATSUMOTO, “Electron–Phonon Coupling at an Atomically Defined Interface: Na Quantum Well on Cu(111),” *Phys. Rev. B* **76**, 115427 (4 pages) (2007).

B-4) 招待講演

Y. MATSUMOTO, “Ultrafast dynamics of coherent phonons at metal surfaces covered by alkali metals,” DIET XI, Berlin (Germany), March 2007.

松本吉泰, 「超高速非線形分光による吸着種の振動ダイナミクス」, 物性研究所短期研究会「物性化学のフロンティア2007」, 千葉, 2007年11月.

渡邊一也, 「表面における超高速分光」, 第27回表面科学講演大会, 東京, 2007年11月.

B-6) 受賞、表彰

松本吉泰, Hanse Wissenschaftskolleg (Fellow of Hanse Institute for Advanced Studies), Germany (2002).

松本吉泰, 日本化学会学術賞 (2006).

B-7) 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).

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回化学反応討論会プログラム委員 (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 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).
 2000環太平洋国際化学会議組織委員 (2000).
 第2回表面エレクトロニクス研究会実行委員長 (2000).
 第2回分子科学研究会シンポジウム組織委員 (2003).
 10th Interanational Workshop on Desorption Induced Electronic Transition プログラム委員 (2004).
 分子構造総合討論会運営委員会幹事 (2004-2006).
 5th Symposium on Ultrafast Surface Dynamics 組織委員長 (2004-2006).
 The tenth ISSP International Symposium (ISSP-10) on Nanoscience at Surfaces 組織委員 (2005-2006).
 分子科学研究会幹事 (2005-2006).
 第22回化学反応討論会実行委員長 (2005-2006).
 文部科学省、学術振興会等の役員等
 日本学術振興会学術参与 (1999-2004).
 科学技術・学術審議会学術分科会科学研究費補助金審査部会理工系委員会委員 (2003-2005).
 日本学術振興会科学研究費専門委員 (2006).
 科学技術振興機構「戦略的創造研究推進事業」領域アドバイザー (2006-).
 日本学術会議連携会員 (2006-).
 科学研究費の研究代表者、班長等
 総合研究大学院大学グループ研究「光科学の新展開」研究代表 (1997-1999).
 その他
 総合研究大学院大学光科学専攻長 (1999-2001).
 総合研究大学院大学先導科学研究科科長 (2001-2005).

B-9) 学位授与

冬木正紀, “Coherent surface phonon dynamics at alkali-metal-covered surfaces,” 2007年3月, 博士(理学).

B-10) 外部獲得資金

基盤研究(A)(2), 「表面ナノ構造物質を用いた反応制御」, 松本吉泰 (1999年-2001年).
 特別研究員奨励費, 「金属表面上の自己組織化膜におけるフェムト秒電子移動ダイナミクス」, 松本吉泰 (2001年-2002年).
 基盤研究(B)(2), 「表面光反応の2次元サブナノマッピング」, 松本吉泰 (2002年-2003年).
 特定領域研究(A)(2), 「金属酸化物単結晶・色素吸着系における電子ダイナミクス」, 松本吉泰 (2001年-2004年).
 特定領域研究(A)(2), 「チタニア表面上での金ナノ構造物質の電子状態と電子ダイナミクス」, 松本吉泰 (2005年-2006年).
 基盤研究(S), 「時空間マッピングによる固体表面反応機構の解明」, 松本吉泰 (2005年-2010年).
 特定領域研究(A), 「表面フォノンによる表面反応制御機構の解明」, 松本吉泰 (2007年).

C) 研究活動の課題と展望

表面科学反応研究としては「固体表面上でのレーザー誘起反応ダイナミックス」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に従事してきた。これをさらに発展させる方向で、2光子光電子分光、表面第2高調波発生などの非線形分光により固体表面における超高速現象の解明、表面コヒーレントフォノンの実時間観測と制御など、新しい観点から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いている。また、原子・分子レベルの分解能を持つ走査型トンネル顕微鏡による実空間観測により、吸着種の幾何学的構造と固体表面における反応の空間・時間発展を明らかにすることも主要な研究課題の一つである。さらに、和周波発生分光などを用いた化学種を識別する能力を持った時間・空間分解スペクトロスコピーやマイクロコピーの手法を新たに開発し、不均一反応の根源的な理解を促進する。

＊) 2007年4月1日京都大学大学院理学研究科教授、分子科学研究所教授兼任