

平成20年3月31日現在

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2006～2009

課題番号：18340085

研究課題名（和文） 電子・振動励起による単一吸着分子ダイナミックスの理論

研究課題名（英文） Theory of single adsorbate dynamics induced by electronic and vibrational excitation

研究代表者

上羽 弘 (UEBA HIROMU)

富山大学・大学院理工学研究部（工学）・教授

研究者番号：70019214

研究分野：表面物性理論

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：走査トンネル顕微鏡, 振動励起, 電子励起, 吸着, フェムト秒, 表面反応

1. 研究計画の概要

金属表面やその上に吸着した原子や分子の構造および電子状態を原子スケールで調べることができる走査トンネル顕微鏡(STM)によるトンネル電子や超短レーザーパルスによる電子・振動励起で誘起される単一分子ダイナミックスの素過程を理論的に調べる。

2. 研究の進捗状況

①当初の計画以上に進展している。単一吸着分子の非弾性トンネル電流(非弾性トンネル電圧)に関する二次微分(非弾性トンネルスペクトル)がピークを示す場合とデップを示す場合があることが多く、先駆的な実験で報告されてきたが、その成分と正しい寄与を非弾性トンネル電流の競合によるこの算を今まで発表してきただけでなく、透視率で明らかにした。さらには、電子・振動励起による誘起される吸着分子の運動モードの結果が重要な役割を果たすことを理論的に明らかにした。

また、フェムト秒レーザーパルス励起で金属内に作られた過渡的なホットエレクトロンからの熱移動によって、吸着分子の振動温度が過渡的に上昇し、吸着分子運動が誘起される“表面フェムト秒光化学反応”の分野で従来考えられてきた熱移動方程式が実は吸着分子の運動に関するポテンシャルが調和振動と考えるにすぎず、電子系解析的に明らかになることを示すダイナミックスを調べるために運動に関する非調和ポテンシャルにおける振動は導関数をあからさまに考慮する必要があることを示し、この新たな理論に基づいた具体的な計算を行った。さらに、フェムト秒レーザーパルス励起で誘起される吸着分子運動でも、金属内のホットエレクトロンと強く結合するモードと運動に関する反応座標モードとの相互作用

が重要な役割を果たすことを白金表面における一酸化炭素分子のホッピング運動について明らかにした。これらの研究成果を発表した論文の中でPhysical Review Bに掲載された4編の論文はいずれも同誌各号に掲載された論文で注目の論文のみが厳選されるアメリカ物理学会が出版するバーチャルジャーナルにも掲載された。

3. 現在までの達成度

研究計画で想定した以上の成果を順当に挙げることができた。

4. 今後の研究の推進方策

新たに構築できたフェムト秒励起で生成された金属表面のホットエレクトロンからの熱移動による表面吸着分子の超高速運動に関する最近の実験結果の解析に適用する。特に、金属表面に吸着した一酸化炭素分子のレーザー励起表面ホッピングにおいて、その束縛回転モードと束縛並進モードとの相互作用が重要な役割を果たすことを理論的に明らかにしたい。

また、非弾性トンネル電子による振動励起に加えて、振動励起状態からのトンネル過程で発現する単一吸着子の表面反応の理論構築を行ない、この可能性を示唆した実験結果の解析を試みる。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計11件)

1) Unified Description of Inelastic Propensity Rules for Electron Transport through Nanoscale Junctions,
M. Paulsson, T. Frederiksen, H. Ueba,
N. Lorente, M. Brandbyge, Physical Review Letters **100** 226604 (4 pages)

2008.

2) **Heat transfer between adsorbate and laser-heated hot electrons**, H. Ueba and B.N.J. Persson, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **20**, 224016 (11pp) 2008

3) **Heating of adsorbates by vibrational mode coupling**, H. Ueba and B.N.J. Persson, *Physical Review B* **77**, 035413 (5 pp) 2008.

4) **Adsorbate hopping via vibrational mode coupling induced by femtosecond laser pulses**, H. Ueba, M. Hayashi, M. Paulsson and B.N. J. Persson, *Physical Review B* **78**, 113408 (4 pp) 2008.

5) **Theory of inelastic tunneling spectroscopy of a single molecule -Competition between elastic and inelastic current-** H. Ueba, T. Mii and S. G. Tikhodeev, *Surface Science* **601**, 5220-5225, 2007.

6) **Adsorbate motions induced by vibrational mode coupling**, H. Ueba, *Surface Science*, **601**, 5212-5219, 2007.

7) **Action spectroscopy for single-molecule motion induced by vibrational excitation with a scanning tunneling microscope**, * H. Ueba and B.N.J. Persson, *Physical Review B* **75**, 041403(R) (4 pp) 2007

8) **Heat transfer at surfaces exposed to short-pulsed laser fields**, B. N. Persson and H. Ueba, *Physical Review B* **76**, 125401(4 pp) 2007.

[学会発表] (計 6 件)

1) **Action spectroscopy of single molecule motion** H. Ueba (招待講演), 54th American Vacuum Society International Symposium (2007. 10. 15, シアトル, アメリカ)

2) **Heat transfer at surfaces** H. Ueba, 12th International Conference on Vibrations at Surfaces (2007. 7. 24, エリーチェ, イタリア)

3) **Theory of single molecule motions induced by vibrational excitation with STM**, H. Ueba (招待講演) 232th American Chemical Society National Meeting, (2006, September 10-14, San Francisco)

4) **Theory of single molecule motion induced by vibrational excitation**,

H. Ueba (招待講演)

CREST Workshop on Physics of a single molecules, 2006, May 16-18, Kanagawa, Japan.

[図書] (計 2 件)

1) **Inelastic Tunneling Current-Driven Motions of Single Adsorbates**, H. Ueba, S.G. Tikhodeev and B.N.J. Persson " to be published in *Current-Driven Phenomena in Nanoelectronics*, Editor: T. Seideman, Pan Stanford Publishing, 2009.

2) **Inelastic tunneling spectroscopy of single surface adsorbed molecules**, S.G. Tikhodeev, H. Ueba, *International Series of Monographs on Physics "Problems of Condensed Matter Physics"* 323-347, 2008, Oxford Science Publications.

[産業財産権]

○出願状況 (計 件)
無し

○取得状況 (計 件)
無し

[その他]

特に無し