

氏名(本籍)	さいのお やす ゆき 道祖尾 恭 之(鳥 取 県)
学位の種類	博 士(工 学)
学位記番号	博 甲 第 3160 号
学位授与年月日	平成 15 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審査研究科	工学研究科
学位論文題目	Study of the Single Molecule Manipulation by Inelastic Tunneling Process (非弾性トンネル過程を利用した単一分子操作に関する研究) — Deployment of Single Molecule Chemistry by STM — (— STMによる単一分子化学の展開—)
主 査	筑波大学教授 P h . D . (工学) 山 本 恵 彦
副 査	筑波大学教授 理学博士 秋 本 克 洋
副 査	筑波大学教授 工学博士 村 上 浩 一
副 査	筑波大学教授 工学博士 重 川 秀 実
副 査	筑波大学助教授 理学博士 中 村 潤 児

論 文 の 内 容 の 要 旨

本研究は、走査トンネル顕微鏡-非弾性トンネル分光法 (STM-IETS) による単一分子の化学の展開を念頭に置き、金属表面に吸着した単一分子のSTM-IETSによる評価、ならびに振動励起による応答反応を積極的に利用した単一分子操作に関する研究である。

パラジウム金属上に吸着した炭化水素の2ブテン (C_4H_8) 分子のシス・トランス幾何構造の違いによる表面への吸着サイトの差異を利用し、これら分子に対してSTM探針から注入される非弾性トンネル電子により選択的な「振動励起」を行って、以下の結果を得た。

- ・まず、2ブテン (C_4H_8) 分子のシス・トランス幾何異性体による吸着サイトの差異を確認し、シス体では、これまでにない新しい吸着構造を取ることを示した。
- ・続いて、STM系で通常流れる弾性トンネル電流のほかに、表面に吸着した分子の振動励起を伴う非弾性トンネル電流を検出することで単一分子レベルでの振動分光STM-IETS (STM-Inelastic Tunneling Spectroscopy) を行い、2ブテン (C_4H_8) 分子のシス・トランス幾何異性体間の振動スペクトルの違いを明らかにした。
- ・更に、注入するトンネル電子のエネルギーを調整することで、シス2ブテン分子に等価なサイトである4つの吸着位置の間を行き来する異なった運動を誘起出来得ることを明らかにし、励起振動モードの同定を行った。
- ・また、振動励起により異分子への化学反応も誘起させうることを見出し、閾値の解析から、上記運動と同じく、励起モードの確認を行った。幾何異性体により、生成物は異なる。特定振動モードの励起による化学反応の制御は、初めて行われたものである。
- ・今後、詳細な解析を可能にすることを目的として、特定振動モードに対する空間マッピングを可能にする手法を開発し、上記分子に対してモードの空間分布を解析することから、吸着構造などを議論することを可能にした。

STM-IETS研究はまだ萌芽期にあり、吸着分子の振動励起を介した非弾性トンネルの微視的過程についての未解

決の問題（トンネル電子の散乱機構と振動モードの対称性，トンネルに關与する吸着子の電子状態の性質，IETS (d^2I/dV^2) スペクトル形状，振動緩和の影響等々）が山積している。さらに，非弾性トンネル電流による分子内振動励起と様々な運動（並進，回転，解離，脱離）に対応する低振動数モード（反応座標）へのエネルギー移動過程の経路を明らかにしなければならない。これらの動的過程は，關与する振動モードのエネルギーとその緩和時間，振動モード間の非調和結合，運動障壁の高さなどが絡み合った複雑な過程であり，困難は多いと予想されるが，分子レベルでの解析・制御を行うためには，今後一層の発展が望まれる。幾何異性体を対象として詳細な解析を行った本研究において，こうした分野を開拓する可能性が示されたものと言える。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は，非弾性トンネル分光技術を用いることにより，特定振動モードの励起で単一分子の反応制御を行うことを初めて示したもので，従来にはない，非常にユニークなものである。また，実験結果については細部に亘って詳細な検討がされており，質，量，共に満足できるものである。

よって，著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。