

論文審査の結果の要旨

論文提出者氏名 十河真生

1. 序

本論文は8章からなり、第1章で研究全般の背景と目的、第2, 3章で実験の原理と方法が記された後、第4章から7章で金属表面および有機-金属界面の実験結果と考察が述べられ、最後に第8章で本論文の結論が提示されている。

2. 論文内容

最近、機能性有機分子と金属基板の相互作用に関する研究は、実験・理論両面から盛んに行われている。その背景には、有機ELと呼ばれる発光素子や有機太陽電池など実用デバイスの開発が精力的に行われるようになったこと、金属電極に有機分子を架橋した系の電荷輸送特性などナノサイズの計測手法が進展し、そこで展開される基礎科学に大きな関心が寄せられていることなどが挙げられる。論文提出者の研究テーマは、有機分子と金属基板界面の電子状態、とりわけ電荷輸送現象に決定的な役割を果たすフェルミ準位近傍の電子状態(状態密度や波動関数の漸近特性など)を電子分光実験や理論解析を通して明らかにすることである。準安定原子電子分光という固体表面最外層の情報が鋭敏に捉えられる手法を駆使して、下記の成果を挙げた。

1) 白金基板に結合したC₆₀の電子状態(4章)

最近、Pt電極に架橋されたC₆₀分子は、ゼロバイアス下で、0.7 G₀と極めて高い電気伝導度を示すことが発見された。本論文の目的のひとつは、電子分光実験および理論解析(共同研究)を通して、この特異的な現象を価電子状態の立場から明らかにすることである。超高真空中でPt(111)表面に蒸着したC₆₀分子を対象として、系統的な研究を行ない、下記の結果が見出された。

- (1) Pt 5d バンドと C₆₀ LUMO 間などの相互作用により、Pt-C 間で共有結合が生じる。
- (2) フェルミ準位直下に吸着誘起準位が形成される。
- (3) 吸着誘起状態は、Pt-C₆₀ の接触部位だけでなく、C₆₀ 分子全体に広がる。

さらに(2)、(3)の特徴が、Pt-C₆₀-Pt 架橋系における高電気伝導度をもたらすと結論された。

2) 金属基板に結合したフェナントロリン誘導体の電子状態(6章)

BCPと呼ばれるフェナントロリン誘導体は、有機太陽電池や有機ELにおいて、電子輸送材料としてよく用いられている。本論文では、Au多結晶基板、K蒸着基板上的BCPを取り上げ、ギャップ準位の生成機構、有機-金属界面における電子準位接続を解明することを目指している。種々の電子分光実験から、Au基板上では、弱い化学吸着によって金属的な電子構造をもつギャップ準位がフェルミ準位直下に形成されること、またそのギャップ状態がAu-BCP接触界面に局在していることを明らかにした。また、K蒸着基板上では、K-BCP間での錯体形成に伴い、ギャップ準位がBCP薄膜全体に分布していることを実験的に明らかにした。このようなギャップ準位の空間分布は、金属電極

から有機薄膜への電荷注入障壁や電荷移動過程を支配するため、デバイスのパフォーマンスに重大な影響を及ぼすと結論された。

3) 白金基板に結合したベンゼンの電子状態(5章)

最も単純な共役系の1つであるベンゼンを素材として、Pt(111)およびK蒸着面に吸着した系を取り上げ、界面誘起準位の有無、ベンゼン層上でK原子のクラスター形成、ベンゼン層内へのK原子の熱拡散などについて新しい現象を見出した。

4) 金基板における準安定原子の脱励起過程(7章)

Au(111)表面における $\text{He}^*(2^3\text{S}, 2^1\text{S})$ 準安定原子の脱励起過程を詳細に調べ、古典的なモデルが一部破綻することを見出した。密度汎関数理論に基づく計算、Pt(111)表面との比較などから、金属表面から真空にしみ出した波動関数の漸近特性が準安定原子の脱励起過程を支配していることを示した。

3. 結び

本論文の4, 6, 7章の成果をまとめた3編の論文は、現在、国際誌に投稿中である。これらは共同研究によるものであるが、論文提出者が主体となって実験・解析を行なったものであり、提出者の寄与は十分であると判断される。また、5章の成果についても、現在、論文を執筆中であり、国際誌に公表する予定である。従って、本審査委員会は博士(学術)の学位を授与するに相応しいものと認定する。