

論文審査の結果の要旨

氏名 西森 慶彦

本論文は5章からなり、第1章では研究の背景および目的、第2章では表面上逐次錯形成反応の樹状型ワイヤーへの拡張性の検討および錯体ワイヤーからなる膜中での電子移動機構の解明、第3章では金属錯体連結ワイヤーの長距離電子輸送能の検討、第4章では単一ワイヤー中に異種金属や架橋配位子を組み込んだワイヤーおよび樹状構造を持つワイヤーの電子輸送特性、第5章では全体の総括が述べられている。以下に各章の概要を記す。

第1章では、研究の背景について述べている。現在に至るまで数十年にわたり半導体ベースのデバイスは微細化することにより高機能化を果たしてきた。しかしながら現在デバイス作製に用いられている技術は大きな材料から小さなデバイスを作製するトップダウン的な考え方に基いており、その手法による微細加工技術は近い将来に理論的、実質的な限界が訪れると考えられている。そこで、これに代わる方法論として原子や分子を組み上げることによりデバイスを組み上げる、ボトムアップ法が注目を集めている。高度な機能を有するデバイスを作製するには、定量的かつ規則的に分子を配列させて機能の発現を実現することが求められる。そこで本研究では、金属錯体を規則的に連結させたワイヤーの逐次的かつ定量的錯形成による作製と、その錯体連結ワイヤーの電子伝導特性の研究を行った。

第2章においては、直線状および枝分かれを持ったテルピリジン架橋配位子を用いた金表面上逐次錯形成により錯体を直線状および樹状に連結した金属錯体連結ワイヤーの作製を行った。電気化学測定、STM測定、接触角測定の結果より表面上に1次元状ワイヤーおよび樹状型ワイヤーの構築が確認された。またそれらの金属錯体ワイヤーからなる膜中での電子移動機構の解析をクロノアンペロメトリーにより行い、その結果をシミュレーションによって再現することによって、これらの錯体ワイヤー膜中での電子移動が分子鎖内で起こることを明らかとした。

第3章では、 π 共役錯体連結ワイヤーを介した長距離電子輸送に関して述べている。具体的には、長さの異なる錯体ワイヤーの末端にレドックス活性基を固定し、そのレドックス活性基と電極間の電子移動速度の距離依存性から長距離電子輸送能の評価を行った。錯体ワイヤーの長距離電子輸送能を支配する要素を明らかとするため、測定条件、電極固定用配位子、末端レドックス活性基、架橋配位子の架橋部位、錯体の酸化還元電位、錯体の中心金属の種類による特性の違いの検討を行った。その結果、長距離電子輸送能は架橋配位子の架橋部位および錯体の中心金属により制御が可能であることが示された。更にコバルト錯体連結ワイヤーは距離に対して電子移動速度の減衰がほとんど起きない極めて高い長距離電子輸送能を持つことが明らかとなった。

第4章においては、異種金属を組み込んだワイヤー、ワイヤー内にポテンシャル勾配を持つワイヤー、樹状型ワイヤーを介した長距離電子輸送能について述べている。異種金属を組み込んだワイヤーではワイヤー中の金属イオンの順序によって電子移動特性が異なることが明らかとなった。ポテンシャル勾配を持つワイヤーは、ポテンシャル勾配を持たな

いワイヤーと比較して電子移動速度が減衰しないという結果が得られ、ポテンシャル勾配を持つワイヤーは高い長距離電子輸送能を持つことが示された。樹状型ワイヤーは、電極から錯体に電子を流しやすく、逆方向には電子を流しにくいという構造に由来する整流作用を持つことが明らかとなった。

第5章では、以上の結果を総括し、今後の研究展望を述べている。

以上、本論文では、表面上逐次的錯形成反応の汎用性を示すとともに作製される錯体連結ワイヤーが優れた伝導特性を持つこと、またワイヤー中の金属イオンの順序や架橋配位子の組み合わせ、ワイヤーの構造により伝導性を変化させることが可能であることを記述している。本博士論文において示された π 共役錯体連結ワイヤーの高い長距離電子輸送能およびその構造との相関は高度に機能化された分子電子素子の実現に道筋をつけるものであり、分子科学の新領域開拓に大きく貢献するものと期待される。なお、本論文第2章は金井塚勝彦、村田昌樹、西原 寛との共同研究、第3章は、金井塚勝彦、栗田知周、長津聡明、瀬川 祐、利光史行、邨次 智、宇津野充弥、久米晶子、村田昌樹、西原 寛との共同研究であり、一部は既に学術雑誌として出版されたものであるが、論文提出者が主体となって実験および解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。