



Title	Development of Scanning Probe Approaches for Nanoscale Molecular Properties Based on Molecular Orbital Alignment
Author(s)	中山, 優弘
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/105647
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (中山 優 弘)

論文題名

Development of Scanning Probe Approaches for Nanoscale Molecular Properties Based on Molecular Orbital Alignment
(分子軌道アライメントを指針とした走査プローブ手法によるナノスケール分子物性の開拓)

論文内容の要旨

分子が有する固有の電子状態は、ナノスケールにおける電子機能の最小単位として重要な研究対象であり、分子物性物理、表面科学、分子エレクトロニクスといった広範な分野において長年注目されてきた。これまで、走査トンネル顕微鏡 (STM) および走査トンネル分光 (STS) の発展により、吸着分子の分子軌道を実空間で直接観測することが可能となり、軌道対称性や空間分布、節構造に関する理解は理論計算との比較を通じて大きく理解が進んできた。このことは、分子軌道を基礎とした電子状態理解を確立する上で決定的な役割を果たしてきた。一方で、これらの成果の多くは平衡状態における静的な電子状態の可視化に基づくものであり、分子が外場や電子注入に応答してどのように電子機能を発現するのかという、より動的かつ機能的な側面については未解明な点が多く残されている。

特に、少数分子系や分子デバイス構造を想定した系では、電極—分子界面における電圧分配や分子軌道エネルギー準位が界面構造や測定条件に強く依存するため、従来の分光手法のみからこれらを定量的に評価することは困難であった。このことは、どの分子軌道が電子伝導に寄与しているのか、また外場印加や電子注入によって電子状態がどのように変調されるのかといった、分子電子機能の本質に関わる問いに対する実験的検証を制限してきた。

本研究では、走査プローブ顕微鏡を単なる局所観測手法としてではなく、外場を精密に印加・制御し、その応答を検出できる実験基盤として再定義することで、分子軌道アライメントを指標とした新たな測定手法を構築した。静電気力顕微鏡とトンネル分光を融合したプローブ手法により、多層膜中に配置された分子に対して、エネルギー準位位置、電圧分配比、分極率を非破壊かつ実空間で同時に決定することを可能とした。これは、従来のスペクトロスコピーが与える平均的・間接的情報を超え、局所的かつ実効的な電子物性を実験的に抽出できる点で本質的な進展である。

さらに、探針による間欠接触を利用して分子膜に局所的な力学変形を与えることで、分子軌道を介した電子移動が誘起されることを明らかにし、力学刺激と電子状態が強く結合した新たな摩擦帯電現象を実証した。また、外場としての電子注入に着目し、デバイス構造を想定した面内電流分布および静電気力スペクトルを同時に画像化する新規プローブ手法を開発することで、電子注入に伴う電流変化を空間的に可視化することに成功した。

これらから本研究は、分子軌道を静的に規定される固定量としてではなく、外場応答によって連続的に変調される能動的自由度として捉え、その振る舞いを非平衡条件下で実空間的に評価する方法論を確立した点にある。従来の分光法が「どこに準位があるか」を問うものであったのに対し、本研究は「その準位がどのように機能へと結びつくか」を実験的に検証可能とした。本成果は、分子集合体における電子機能発現を構造・外場・電子状態の相互作用として統一的に理解する枠組みを提供し、走査プローブ顕微鏡をナノスケール分子物性研究における方法論的基盤として新たな段階へと発展させるものである。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 （ 中 山 優 弘 ）		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教授 松本 卓也
	副 査	教授 赤井 恵
	副 査	教授 中澤 康弘
	副 査	教授 大岩 顕

論文審査の結果の要旨

物性物理、表面科学、分子エレクトロニクスといった広範な分野において、分子が有する固有の電子状態は電子機能の最小単位として重要である。これまで、走査トンネル顕微鏡（STM）および走査トンネル分光（STS）の発展により、表面吸着分子の分子軌道を実空間で直接観測することが可能となり、軌道対称性や空間分布に関して理論計算との比較を通じて大きく理解が進んできた。

一方で、これらの成果の多くは平衡状態における静的な電子状態の可視化に基づくものであり、分子が外場や電子注入に応答してどのように電子機能を発現するのかについて、より動的かつ機能的な側面については未解明な点が多く残されている。特に単一・少数分子の電子機能は、電極-分子界面の構造や電場環境に強く依存するばかりでなく、電子やホールが注入されたときの物性は中性状態と大きく異なるので、一般的な分光学的手法による議論は困難である。

本研究では、走査プローブ顕微鏡を単なる局所観測手法としてではなく、外場を精密に印加・制御し、その応答を検出できる実験基盤として再定義することで、分子軌道アライメントに着目した新たな測定手法を構築した。静電気力顕微鏡とトンネル分光を融合したプローブ手法により、多層膜中に配置された分子に対して、エネルギー準位位置、電圧分配比、分極率を非破壊かつ実空間で同時に決定することを実現した。これは、従来のスペクトロスコーピーが与える平均的・間接的情報を超え、局所的かつ実効的な電子物性を実験的に抽出できる点で本質的な進展である。

また、探針による間欠接触を利用して分子膜に局所的な力学変形を与えることで、分子軌道を介した電子移動が誘起されることを発見し、力学刺激と電子状態が強く結合した現象を明かにして、摩擦帯電現象の研究に新たな局面を開いた。

さらに、多電極平面構造を有する電子デバイスを対象として、電子注入による面内電流経路とそれに沿った静電気力スペクトルを画像化する新規プローブ手法を開発して、注目を集めている神経型物理演算素子の内部動作を明らかにする手法開発に挑戦した。

これらの研究は、「どこに準位があるか」を問う従来の分光学的方法論から脱して「その準位がどのように働くか」を実験的に検証するオペランド計測の考え方を走査プローブ顕微鏡に持ち込むものであり、走査プローブ顕微鏡を用いたナノスケール分子物性研究において新たな局面を開くものである。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。