

Title	Scanning Tunneling Microscopy Study of DNA related Molecules on Solid Surfaces
Author(s)	田中, 裕行
Citation	大阪大学, 1997, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3128840
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

氏名	田中裕行
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第12940号
学位授与年月日	平成9年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科無機及び物理化学専攻
学位論文名	Scanning Tunneling Microscopy Study of DNA related Molecules on Solid Surfaces (走査トンネル顕微鏡による固体表面吸着 DNA 関連分子の研究)
論文審査委員	(主査) 教授 川合 知二 (副査) 教授 森田 清三 教授 笠井 俊夫 教授 京極 好正

論文内容の要旨

本研究は、試料表面の原子ひとつひとつを実空間で直接観察あるいは操作できる能力を有する走査トンネル顕微鏡(Scanning Tunneling Microscope:STM)を用いて様々な固体表面に吸着した DNA 関連分子を系統的に観察し、(1) STM 観察で得られる吸着分子の像形成機構、(2)分子の自己組織化超構造形成機構、及び(3)STM 探針による分子操作の機構を、分子-基板、分子-分子及び分子-STM 探針間それぞれの相互作用の観点から明らかにした。本研究で用いられた固体表面基板は還元チタン酸ストロンチウム表面 ($\text{SrTiO}_3(100)$)、パラジウム表面 ($\text{Pd}(110)$) 及び銅表面 ($\text{Cu}(111)$) であり、それぞれが特徴的な電子状態を有している。また、DNA 関連分子は核酸塩基分子であるアデニン、チミン、グアニン及びシトシン、及び DNA フラグメントである 5 塩基単鎖 DNA オリゴマー (pAAAAA) である。

(1)分子像形成機構: STM による分子識別の観点から実験を行い、同じ固体表面基板上であっても、分子像はアデニン、チミンなどの各核酸塩基分子によって異なることから、STM による核酸塩基の識別が可能であることを示した。また、核酸塩基の孤立吸着分子像は特徴的な電子状態を有する 3 種の基板、即ち、還元 $\text{SrTiO}_3(100)$ 、 $\text{Pd}(110)$ 及び $\text{Cu}(111)$ 表面により大きく異なることが明らかになった。異なる基板上での分子像形成機構は分子-基板間相互作用の強弱で解釈できる。金属基板である $\text{Pd}(110)$ 及び $\text{Cu}(111)$ では、分子-基板間の相互作用は十分強いので、フェルミレベル (E_F) 近傍まで分子に起因する状態密度が STM のバイアス電圧のエネルギー範囲に現れ、分子像は吸着系の分子の電子状態を反映する。一方 $\text{SrTiO}_3(100)$ 基板では分子-基板間の相互作用は弱いので、吸着しても分子の軌道エネルギーは E_F 近傍まで広がらないが、分子の分極により下地基板の仕事関数が低下しトンネル確率が増加する。この場合は分子像は下地基板の仕事関数の減少を反映すると解釈された。

(2)核酸塩基分子の低次元自己組織化現象: $\text{Cu}(111)$ では、他の 2 つの基板とは異なり、分子-基板間相互作用に起因する分子の表面拡散活性化エネルギーは小さく、室温において分子は表面を自由に拡散することができる。その結果、分子間相互作用が支配的となり、分子固有の低次元自己組織化超構造が発現、STM により観察された。この分子間相互作用として考えられるのは核酸塩基分子特有の異方的水素結合であり、その結合エネルギーは $\sim 0.2-0.5\text{V}/\text{bond}$ と、表面拡散活性化エネルギーより大きい。

(3)分子操作(探針による DNA オリゴマーの移動): 加熱蒸着できない試料の新しい蒸着法として「真空噴霧法」を開発した。この方法によって、 $\text{Cu}(111)$ 表面に蒸着された孤立 DNA オリゴマーの STM 観察及び探針による移動操

作を行った。探針をDNA オリゴマーに近づけると両者間に Born 反発相互作用が生じる。下地の Cu(111) 基板表面での分子の表面拡散活性化エネルギーは小さいため、吸着オリゴマーは探針との比較的小さな反発相互作用で表面上を移動を始める。

論文審査の結果の要旨

田中裕行君の博士論文は、1) 走査トンネル顕微鏡装置及び試料調製の新手法開発、2) 固体表面上での吸着核酸塩基分子識別、3) 核酸塩基分子の低次元自己組織化現象の発見と系統的観察、4) DNA オリゴマーの分子操作からなっている。本論文の目的であった核酸塩基分子の識別、自己組織化、分子操作などの実験とそのメカニズムを系統的に明らかにすることに成功しており、これらの成果は固体表面化学の観点から見て意義が大きい。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと認める。