

4P085

金属/半導体電極に挟まれた単一分子コンダクタンスの理論と第一原理計算
(東大院工) ○伊藤 徳祐, 中村 恒夫, 山下 晃一

【序】

現在のコンピュータの軽量化・高密度化はトランジスタの微細化によるところが大きい。しかし、その微細化にもいずれ限界が来るであろうことが示唆されている。そのため、次々世代の電子デバイスとして、単一分子を用いるナノ電子デバイスが注目されている。

ナノ電子デバイスを実現するには、単一分子電気伝導特性の詳細を明らかにすることが非常に重要である。そのため、近年、単一分子電気伝導に関する研究が実験、理論の両方の立場から多くなされている。実験的には、Reed

らによって金電極に挟まれたベンゼンジチオレート単一分子の電気伝導が測定され、図1に示すような電流-電圧特性が得られている^[1](単調に増加している曲線が電流であり、コンダクタンスは電流の電圧に対する微分によって計算される)。そこで、多くの理論研究がこの系を扱っている。

他方、新規のデバイス開発に向けたSi(100)表面上への有機分子の吸着に関する研究も盛んに行われている。無機半導体表面上への有機分子の吸着による、有機材料の特性と無機材料の特性を併せ持った複合デバイスの作成が期待されているためである。また、幸いなことにSi(100)表面上にはダングリングボンドと呼ばれる化学反応性の高い原子軌道が並んでいるため、種々の化学反応によって有機分子をその表面に吸着させることが可能であることも研究が盛んに行われている理由の一つである^[2]。

以上のような背景から、本研究ではSi(100)表面電極に挟まれた様々な分子種の電気伝導に関する第一原理計算を行い、ナノ電子デバイス構築に相応しい特性を示す分子種の探索を行うことを目的とする。

【計算方法】

電子状態計算には密度汎関数理論(DFT)に基づくLCAO基底バンド計算プログラムSIESTAを用いた。基底関数には二倍分極基底関数系(DZP)を選択し、交換相関ポテンシャルは、Perdew-Burke-Ernzerhof(PBE)で表される密度勾配近似(GGA)によって記述した。内殻電子の記述には改良型Troullier-Martinsによるノルム保存型擬ポテンシャルを用いた。

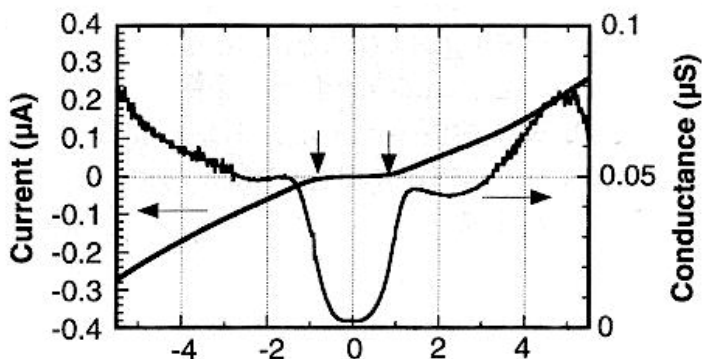


図1 ベンゼンジチオレートの電流-電圧特性
(M. A. Reed *et al.* 1997)

【結果と考察】

1. 電極系の構築

Siのbulk, 表面での電子状態計算を行い、LCAO基底をSi系に用いる妥当性について検証した。

まず Si(100)-2×2 表面の表面構造を第一原理計算により求めた。こうして求めた表面構造の妥当性を調べるために、ダイマー一つ当たりの理想表面の全エネルギー E_{ideal} と構造最適化された表面の全エネルギー E_{opt} の差 ΔE_{tot} を文献値^[3]と比較する。今回の計算結果で求められた ΔE_{tot} は $\Delta E_{tot} = -1.804$ であり、文献値の ΔE_{tot} は $\Delta E_{tot} = -1.708$ である。引用文献の結果に対し、今回の計算結果は安定化エネルギー ΔE_{tot} 及びダイマー構造をよく再現している。よって、今回求めた下の構造は妥当なものであると判断出来る。

こうして得られた Si(100)-2×2 表面のバンド構造と Si bulk のバンド構造を図2, 図3に表す。

図2の結果から bulk 構造でのバンドギャップを求めると 0.554 eV である。Si bulk のバンドギャップの実験値は 1.17 eV であるが、DFT ではバンドギャップが過小評価されることが知られており、バンド計算による Si bulk のバンドギャップは 0.4~0.6 eV 程度であると言われている。このことから、今回の bulk 構造のバンド計算は DFT の枠内では妥当と言える。

次に、図3から Si(100)-2×2 表面のバンドギャップを見てみると、0.149 eV のバンドギャップがある。ここで、DFT を用いた Si(100)-2×2 表面のバンド計算を行った文献^[3]によると、この表面でのバンドギャップは 0.1 eV である。このことから、Si(100)-2×2 表面でのバンド計算も充分妥当と考えられる。

以上のことから、Si(100)表面の電子状態計算に関しては、過去の文献との比較から相応の結果が得られていることが分かる。そこで、この計算結果から、今後用いる半導体電極の構築を行うことにする。

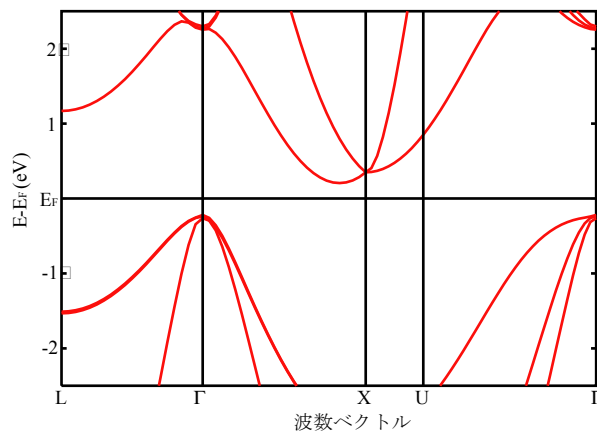


図2 Si bulk のバンド構造

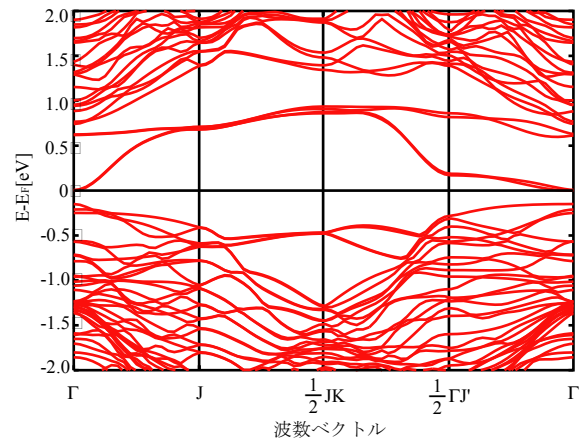


図3 Si(100)-2×2 表面のバンド構造

2. 電気伝導計算

上記の電極計算を基に電極-分子-電極系を構築し、Si電極を用いた際の電気伝導計算を行った。詳細は当日発表する。

【参考文献】

- [1] M. A. Reed, C. Zhou, C. J. Muller, T. P. Burgin, and J. M. Tour, Science **278**, 252 (1997)
- [2] Stacey F. Bent, Surface Science **500**, 879(2001)
- [3] Jurgen Fritsch, Pasquale Pavone, Surface Science **344**, 159(1995)