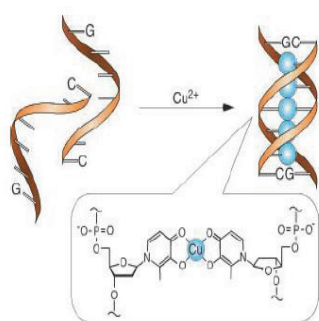
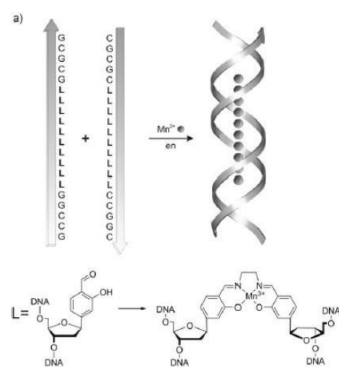


弾性散乱グリーン関数法による人工 Metal-DNA の電気伝導性の評価

(阪大院・理*, 兵庫県立院・生理**) ◦中西 康之*, 松井 亨*, 北河 康隆*, 重田 育照**, 齋藤 徹*, 片岡 祐介*, 川上 貴資*, 奥村 光隆*, 山口 兆*

【1】序論

Fig. 1 H-Cu²⁺-H structureFig. 2 S-Cu²⁺-S structure

フォトリソグラフィによる微細加工技術の限界により半導体デバイスに代わり分子をエレクトロニクス分野に応用する研究が盛んに行われている。このような分子素子を実現する上で、分子の量子輸送に関する詳細な知見を与えることは非常に重要である。本研究では最近報告された人工 Metal-DNA に焦点を当てた。この系は人工核酸塩基であるヒドロキシピリドンを用いてDNAを構築し、さらにその中に金属(Cu²⁺)を導入した

系(人工 Metal-DNA, 以下 **H-Cu²⁺-H**)で強磁性体になることがすでに実験的に報告されている(Fig.1)[1]。また、サレンを核酸塩基に用いた人工 Metal-DNA も報告された(**S-Cu²⁺-S**)(Fig.2)[2]。DNA は核酸塩基間のπスタッキングによる電気伝導性が期待されており実験, 理論の双方で盛んに研究がされている。人工 Metal-DNAは金属を有しているため天然のDNAより伝導性が期待でき、またスピンも持っているためスピントロニクス材料にも応用できる可能性がある。この系の磁性に関する研究はすでに行った[3]。そこで今回の私の研究テーマは人工 Metal-DNA の電気伝導性を理論的に評価し、DNA 分子ワイヤーをもつ分子デバイスの設計指針の提案を目的とする。特にスピンを有した系の電気伝導計算の例は少なくスピントロニクスへの知見を与える上でも本研究は重要である。

【2】理論

人工 Metal-DNA の電気伝導性に関する研究は実験および理論の双方でまだされていない。従って、定性的に大まかな性質を調べた後定量的に本系の物性を調査した方が良いと思われる。電気伝導の計算はバリスティック伝導下での Landauer の公式を適用した Luo らの方法による弾性散乱グリーン関数法を用いる[4]。電圧 V_D を印可した時の静的なキャリア伝導 i_{SD} は線形応答理論の範囲内では次式で近似される。

$$i_{SD} = \sum_{\eta} \frac{emk_B T}{2\pi^2 \hbar^3} \int_{eV_D}^{\infty} dE |T(E)|_{\eta}^2 \left\{ \ln \left[1 + \exp \left(\frac{E_f + eV_D - E}{k_B T} \right) \right] - \ln \left[1 + \exp \left(\frac{E_f - E}{k_B T} \right) \right] \right\}$$

この理論は比較的簡単に計算することができ本系を計算する上で最適だと考える。本理論モデルの透過係数中 ($T(E)$) には分子と電極との相互作用を表す γ 定数が含まれており、この定数が伝導性を決定する上で重要な因子となる。特に本系はスピンを有した系で High スピン状態 (HS) および Broken-symmetry (BS) 解での Low スピン状態があり、それぞれの状態で伝導性がどのように変化するかを調べる。

[3] 結果

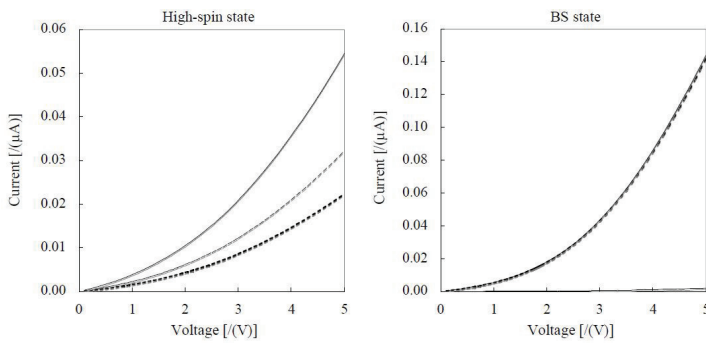


Fig. 3 I - V curves of $[\mathbf{H-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{H}]_2$ structure in HS and BS states at 300 K temperature. (dash: α orbital, dot: β orbital, solid: $\alpha + \beta$)

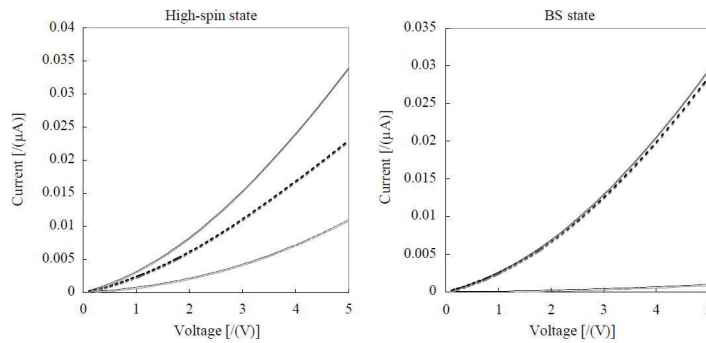


Fig. 4 I - V curves of $[\mathbf{S-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{S}]_2$ structure in HS and BS states at 300 K temperature. (dash: α orbital, dot: β orbital, solid: $\alpha + \beta$)

$\mathbf{H-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{H}$ の 5V での各軌道における (HS) での電流値 (i) は $i_{\alpha} = 0.0322 \mu\text{A}$ と $i_{\beta} = 0.0224 \mu\text{A}$ になり α 軌道と β 軌道の和は $i_{\alpha+\beta} = 0.0546 \mu\text{A}$ になった。各軌道の γ 定数の値はそれほど差異がないことが分かった。このことから $\mathbf{H-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{H}$ の伝導性は site-orbital overlap matrix element の大きさで決まることが分かった。一方、 $\mathbf{S-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{S}$ の 5V での各軌道における HS での電流値 (i) は $i_{\alpha} = 0.0110 \mu\text{A}$, $i_{\beta} = 0.0230 \mu\text{A}$ および $i_{\alpha+\beta} = 0.0340 \mu\text{A}$ になり、各軌道に関する γ 定数の差異も小さく $\mathbf{H-Cu}^{2+}\text{-}\mathbf{H}$ の結果とほとんど同じであることが分かった。BS 状態での電気伝

導性は HS の結果と両系とも異なる結果を示した。このことから外部磁場などによりスピンの方向を変化させることで伝導性を変化させることが期待できる。結果の詳細は当日報告する。

[4] 参考文献

- [1] K. Tanaka, et. al. *Science*, **299**, 1212 (2003)
- [2] GH. Clever, et. al. *Angew. Chem. Int. Ed.* **46**, 250, (2007)
- [3] Y. Nakanishi, et. al., *Polyhedron*, **28**, 1714, (2009) ; **28**, 1945, (2009)
- [4] C. Wang, et. al. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **3**, 5017 (2001)