

有機単結晶の接触界面に生じる金属的輸送特性のドナー依存性

(¹ 北大院総化・² 北大院理・³ JST-CREST)

○島田 拓郎¹・高橋 幸裕^{1,2}・長谷川 裕之^{2,3}・原田 潤^{1,2}・稲辺 保^{1,2,3}

Donor dependence of metal-like transfer properties at the contact interfaces between organic single crystals

(¹ Graduate School of Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University.

² Department of Chemistry, Faculty of Science, Hokkaido University.

³ JEST, CREST, Faculty of Science, Hokkaido University.)

○Takuro Shimada¹・Yukihiro Takahashi^{1,2}・Hiroyuki Hasegawa^{2,3}・Jun Harada^{1,2}・Tamotsu Inabe^{1,2,3}

[序]

電子供与性分子TTFと電子受容性分子

TCNQは電荷移動錯体TTF-TCNQを与えるが、結晶中では部分的に酸化及び還元されたTTFとTCNQがそれぞれ1次元伝導カラムを形成

する。その結果、室温で 300 S cm^{-1} という高い電気伝導度と金属的な輸送特性を示す。しかしながら近年、中性のTTF単結晶と中性のTCNQ単結晶の接触界面においても金属的な輸送特性が発現するとの報告がなされた[1]。

我々はこの現象に興味を持ち、接触界面における電子状態の解明を行った。その結果、金属的な輸送特性は接触界面に生成した導電性錯体であるTTF-TCNQの微結晶とTTFからTCNQへの接触界面での電子の移動に起因することが示唆された[2]。そこで本研究では接触時に錯体を形成しない組み合わせにおける高伝導化に注目した。電子ドナーとして

Ni(Pc)を、電子アクセプターとして5種類のTCNQ誘導体を用い、その接触界面における輸送特性を調査した(Fig.1)。その結果、すべての組み合わせで高伝導化が確認され、Ni(Pc)とF₂TCNQの接触界面では金属的な輸送特性

を示す。その結果、すべての組み合わせで高伝導化が確認され、Ni(Pc)とF₂TCNQの接触界面では金属的な輸送特性

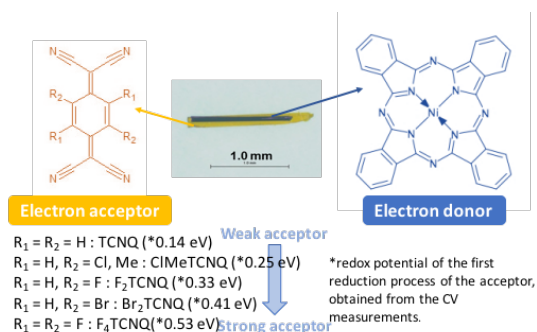


Fig.1. Ni(Pc)と5種類のTCNQ誘導体の接触界面

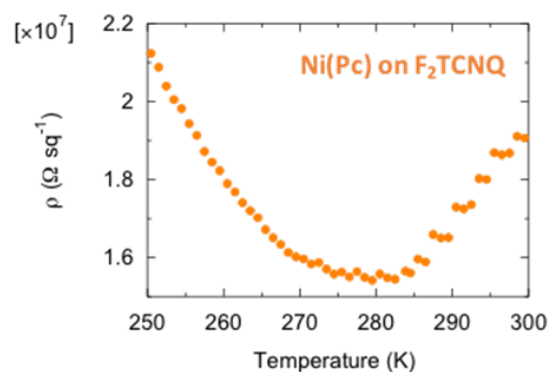


Fig.2. Ni(Pc)/F₂TCNQの接触界面における面抵抗の温度依存性

を示す。その結果、すべての組み合わせで高伝導化が確認され、Ni(Pc)とF₂TCNQの接触界面では金属的な輸送特性

が観測された[3](Fig.2)。さらにNi(Pc) とF₂TCNQの接触界面において面抵抗は最少となり、接触界面におけるキャリア量も5種類のTCNQ誘導体の中で最も多いことが判明した。また、MorpurgoらによってF₂TCNQは他のTCNQ誘導体と異なり、0.8 eVと広い伝導帯のバンド幅を有することが報告されたことから[4]、F₂TCNQの特異性に注目し、ドナー性の異なる7種類のドナーとの接触界面の輸送特性の測定を行い、ドナー依存性について調査した。

[実験・考察]

F₂TCNQの単結晶と7種類のドナー

(Fig.3)の単結晶を接触させ、接触界面における輸送特性の測定を行った。Fig.4に電気伝導度測定の結果を示す。as-grownのF₂TCNQと比較してすべての接触界面において高伝導化が確認された。接触界面の面抵抗値は固体状態のイオン化ポテンシャル(I_s)にある程度相関が見られ、伝導度の温度変化では、Ni(Pc)、Co(Pc)、ET、Piceneとの接触界面において金属的な輸送特性も観測された。金属的な輸送特性の発現メカニズムを明らかにするために、単結晶X線構造解析による接触面の分子配向の特定や重なり積分の計算を行い、金属的挙動の発現との相関を調査したが、現在までのところ明確な相関は見られていない。当日は、これらの結果に加え、熱電能測定による接触面での優勢キャリアの特定や、AFMによる表面状態と金属的輸送特性の発現との相関に関する調査結果についても報告する。

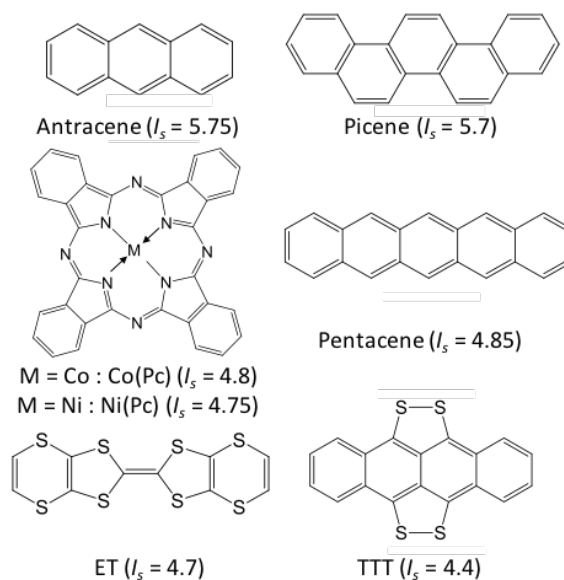


Fig.3. 本研究で用いた

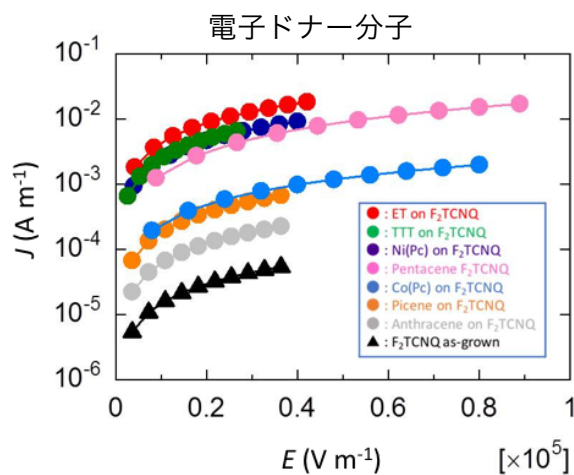


Fig.4. J - E plot

[1] H. Alves, A. S. Molinari, H. Xie and A. F. Morpurgo, *Nature Mater.*, **7**, 574-580 (2008).

[2] Y. Takahashi, K. Hayakawa, T. Naito, and T. Inabe, *J. Phys. Chem. C.*, **116**, 700-703 (2012).

[3] Y. Takahashi, K. Hayakawa, K. Takayama, S. Yokokura, J. Harada, H. Hasegawa, and T. Inabe, *Chem. Mater.*, **26**, 993-998 (2014).

[4] Y. Krupskaya, M. Gibertini, N. Marzari, and A. F. Morpurgo, *Adv Mater.*, **27**, 2453-2458 (2015).