

非対称な分子-電極界面構造を有する単分子接合の電流-電圧特性

(東工大院・理)○小本祐貴,藤井慎太郎,木口学

Current-voltage characteristics of a single-molecule junction with asymmetric molecule-electrode contacts

(Tokyo Tech.)○Yuki Komoto, Shintaro Fujii, Manabu Kiguchi

【序】

単分子接合は 2 つの金属電極間に単一の分子が架橋した系である。単分子接合に素子機能を付加した分子素子を作製できれば、素子の微細化が期待できる。分子素子の実現を目標に、単分子接合の研究が盛んに行われている[1,2]。分子接合の研究の始まった当初から、素子機能の 1 つとしてダイオード機能が提案されてきた。単分子接合の 2 つの分子-電極界面において、分子-電極間相互作用の大きさが異なる非対称な分子では整流特性が発現し得る。しかしながら、単分子接合では、計測中の微細な構造揺らぎにより伝導度がばらついてしまうため、単分子接合の整流特性の評価は困難であった。そこで本研究では、非対称な分子-電極界面構造を形成する分子接合について、構造揺らぎの影響を排した単分子接合の整流特性の解明を目的とした。この目的のために、我々がこれまでに開発した、単分子接合の電流-電圧 (I - V) 特性計測法[3]を用いて、非対称な分子-電極界面を形成する分子接合の I - V 特性計測を繰り返し行い、その統計的な解析を行った。

【実験】

金電極に対して、非対称な分子-電極界面構造を形成する 4-アミノベンゼンチオール(ABT)分子を用いた。1mM の ABT 分子含有エタノール溶液を金蒸着マイカ上に滴下し、自己組織化膜を成膜することによりサンプル基板を調製した。分子接合作製法には、Scanning Tunneling Microscope-Break Junction(STM-BJ)法を用い、ABT の分子接合作製した。STM-BJ 法は、STM 金探針と金基板の間の金ナノ接合を破断することで、金ナノ電極を作製し、その電極間に分子を架橋させることで分子接合を形成させる方法である。STM-BJ 法による伝導度測定から単分子伝導度を決定した。破断過程において ABT が架橋した際にバイアス電圧を掃引することにより、Au-ABT 分子接合の電流-電圧特性計測を行った。比較のために、2 つの同一のアンカー基をもつ 1,4-ベンゼンジチオール(BDT)に関しても同様の実験を行った。

【結果と考察】

図 1 に STM-BJ 法により得られた Au-ABT 接合の定電圧での伝導度ヒストグラムを示す。2 つの単分子伝導度ピークが $5mG_0$ と $13mG_0$ ($G_0 = 2e^2/h$) に観測された。このことから、ABT 単分子接合は分子配向、または接合構造の違いから異なる伝導度を示すと考えられる。単分子接合が整流特性を示す場合には、2 種類の分子配向に応じた伝導度を示す。また、金電極に対して ABT

分子のチオール基が複数の吸着構造を持つ場合も、吸着構造に応じた伝導度を示す。

単分子接合の I - V 特性は 2 種の伝導状態の起源が配向であるか、構造の差であるかを決定する有力な情報を持つ。ABT の I - V ヒストグラムと整流比ヒストグラムを図 2 に示す。 I - V ヒストグラムから ABT 単分子接合の I - V は幅広く分布し、複数の伝導状態を示すことがわかる。しかし、整流比ヒストグラムは整流比 1 にピークをもち、ABT 単分子接合は接合の構造は非対称であるが、整流特性を示さないことが明らかとなった。このことから、単分子伝導度測定で見られた 2 つのピークは配向の違いによるものでないと考えられる。比較のために、BDT についても同様の単分子伝導度計測と I - V 計測を行った。STM-BJ 法による単分子伝導度計測では BDT は複数の伝導状態を示し、 I - V 特性は整流比 1 であった。BDT の複数の伝導状態は DFT 計算との比較から吸着サイトの差に起因するものであると結論付けた。チオール基は金電極への吸着構造の差から、複数の伝導状態を示すことが明らかになった。BDT の結果を踏まえると、チオール基により金電極と接合を形成する ABT が 2 つの伝導状態を示す起源として分子の電極への吸着構造の差異が考えられる。

本研究は、非対称な分子-電極界面構造を形成する ABT 単分子接合が、2 つの単分子伝導度を有することを明らかにした。また、ABT 単分子接合の I - V 測定を統計的に行い、ABT-Au 接合が対称な I - V 特性を示すことを明らかにした。BDT の結果との比較から、ABT はチオール基の吸着構造の差により複数の伝導状態を示すことが明らかになった。

【参考文献】

- [1] Y. Komoto, *et al.*, *J. Phys. Chem. C*, **117**, 24277(2013)
- [2] S. Kaneko, Y. Komoto, M. Kiguchi *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **138**, 1294(2016)
- [3] Y. Komoto, *et al.*, *Sci. Rep.* **6**, 26606,(2016)

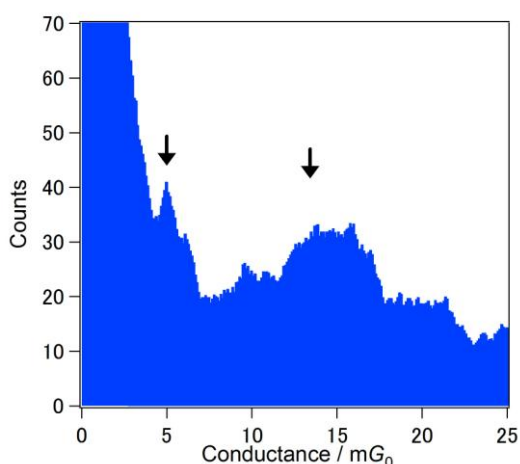


図 1 Au-ABT 接合の伝導度ヒストグラム

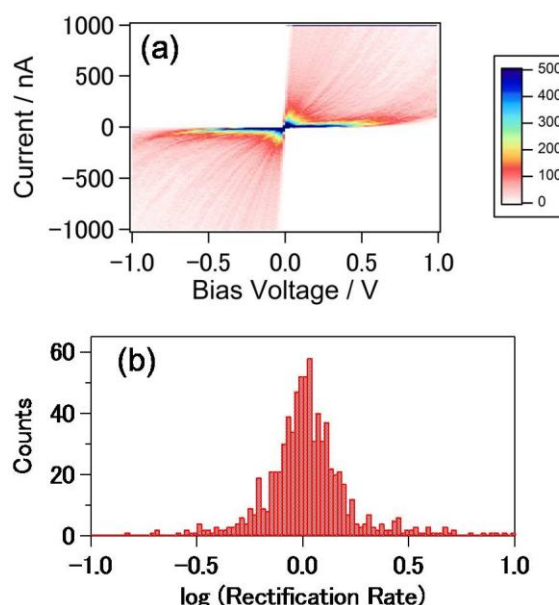


図 2 Au-ABT 接合の(a) I - V 特性ヒストグラム、(b)整流比ヒストグラム