

Ni-ベンゼンジチオール-Ni 接合の熱起電力の第一原理計算 First-Principles Study of Thermoelectric Property of the Ni-Benzenedithiol-Ni Junction

阪大院基礎工 ○大戸達彦, Lee See Kei, 山田亮, 多田博一

Σ -Osaka Univ, ○Tatsuhiko Ohto, See Kei Lee, Ryo Yamada and Hirokazu Tada

E-mail: ohto@molelectronics.jp

ナノサイズの分子接合は、界面でのフォノン散乱や分子修飾による電子状態制御の自由度の高さから、高性能な熱電変換素子の候補として注目を集めている。フェルミ準位での透過関数の傾きに比例する熱起電力（ゼーベック係数）は、接合の電子状態による変化の度合いが大きいことが知られており[1]、これまで高い熱起電力を持つ分子の探索が行われてきた[2]。その一方で、接合のフェルミ準位近傍の電子状態には電極と分子の相互作用も大きく影響する[3]。本研究では磁性電極を用いて熱起電力を大きく変化させることが可能であることを示す。

磁性電極を用いた分子接合の研究はあまり例がないため、電極間を架橋する分子としてよく用いられる 1,4-ベンゼンジチオール (BDT) を対象とした。Ni-BDT-Ni 接合に対して非平衡グリーン関数を用いた第一原理計算を行い、図 1 のようにスピン分極した透過係数を得た。BDT 分子と Ni の間でのスピンに依存する相互作用により、BDT の HOMO がフェルミ準位をまたいで分裂する。フェルミ準位での透過係数の傾きから、負の熱起電力が得られる。この結果は、基板の温度を変化させることが可能な STM-ブレイクジャンクション(BJ)法(図 2)を用いた熱起電力測定によって確かめられた。加えて、接合表面の粗さや Ni 電極の磁化方向を変えて計算を行い、熱起電力が Ni 電極では Au 電極の場合よりも表面の粗さに敏感に変化すること、電極の磁化の平行・反平行で 20%程度変化することを明らかにした。これは実験において複数の熱起電力が観測される事実と整合する。

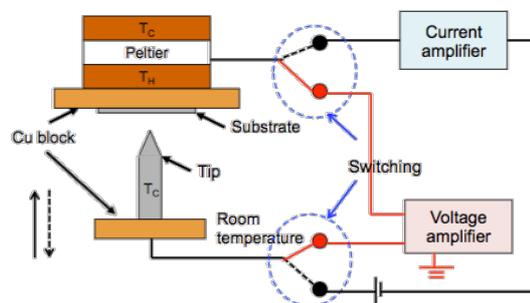
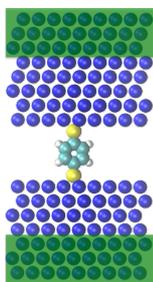
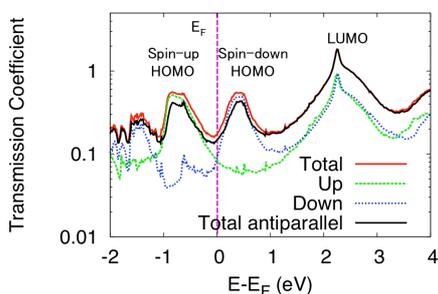


図 1. Ni-BDT-Ni 接合と透過係数。

図 2. 基板温度可変 STM-BJ 装置の模式図。

[1] Papadopoulos *et al.* Phys. Rev. B **74**, 193306 (2006).

[2] Nakamura *et al.* J. Am. Chem. Soc. **135**, 16545 (2013).

[3] Schwoebel *et al.* Nat. Commun. **3**, 953 (2013).