

コンダクタンスと熱起電力の同時計測による単分子接合の電子状態評価

Evaluation of molecular orbital level alignment in single-molecule junctions by conductance and thermopower measurements

○筒井真楠, 森川高典, 有馬彰秀, 谷口正輝 (阪大産研)

○M. Tsutsui, T. Morikawa, A. Arima, and M. Taniguchi (ISIR, Osaka Univ.)

E-mail: tsutsui@sanken.osaka-u.ac.jp

【はじめに】我々の研究グループでは、熱エネルギーを直接電気エネルギーに高効率で変換することを可能にする単一分子熱電素子の開発研究を行ってきており、これまでに1分子熱電性能評価に向けた、温度センサー/マイクロヒーター組込み型 MCBJ (Mechanically-Controllable Break Junction) デバイスを開発し、金原子サイズ接合における量子化熱起電力の観測などを報告してきた[1]。今回は、接合の形成・破断を繰り返しながら、その電気伝導度と熱起電力を同時に計測する手法を応用し、金-アルカンジチオール-Au 単分子接合の熱電特性測定によるその電子状態評価を試みたので、その結果について報告を行う。

【実験方法】マイクロヒーター組込み型 MCBJ は次のプロセスにより作製した。まず、ポリイミド膜で被覆したリン青銅基板上に、フォトリソグラフィ法を用いて電極パターンを描画したあと、高周波マグネトロンスパッタ法により Cr/Au (厚さ 3nm/30nm) を蒸着した上でリフトオフすることでマイクロ電極を作製した。次に、電子線描画法およびスパッタ法を用いて、 Al_2O_3 層を作製した。その後、更に同プロセスを用いて、 Al_2O_3 上に、中央に幅約 100nm の狭窄部を有する Cr/Au 接合と Pt 細線ヒータを作製した。最後に、反応性イオンエッチング法を用いてポリイミドを掘削することで、free-standing な Cr/Au 接合構造を得た。こうして作製したナノ接合をアルカンジチオールの 1,2,4-トリクロロベンゼン溶液中にて破断させ、その破断面に分子を吸着させた上で真空排気を行った。このアルカンジチオールを吸着させた MCBJ 素子を用いて、ヒータを通電加熱した上で、自己破断接合法 [2] により室温・真空中にてアルカンジチオール単分子接合の形成・破断を繰り返しながら、その電気伝導度と熱起電力の測定を行った。

【実験結果】接合の機械的破断過程において計測した 1,6-ヘキサンジチオール(HDT)分子接合のコンダクタンスと熱起電力の結果をもとに作成した2次元ヒストグラムを図1に示す。 $1G_0 (=2e^2/h)$ 以上の領域では、金原子サイズ接点がある正の熱起電圧が得られた[1]。これは、金原子サイズ接点の1次元バンド構造を反映した熱起電力であると考えられる。一方、HDT 単分子接合の形成を示唆する $0.002G_0$ 以下の領域では、概ね負の熱起電圧が得られた。この結果より HDT 単分子接合は、平均的に正のゼーベック係数を持つことが分かった。これは過去の報告値[3]と良い一致をみる結果である。講演では、本計測結果から導出できる単分子接合の電子状態についても発表する。本成果は SCOPE (122107001) の委託研究に基づくものである。

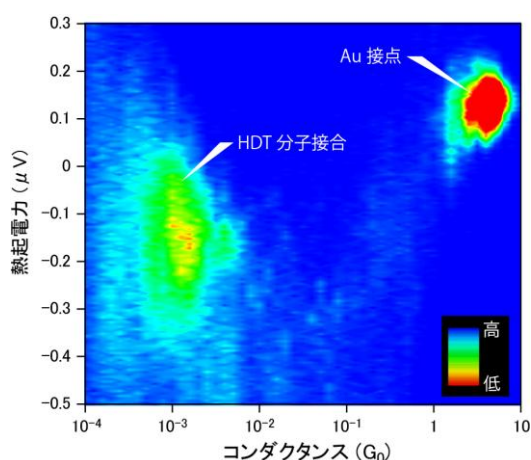


図1. Au-ヘキサンジチオール-Au 分子接合の熱起電力-接合電気伝導度2次元ヒストグラム。

[1] Tsutsui et al., *Sci. Rep.* 3, 3326 (2013). [2] Tsutsui et al., *Nano Lett.* 8, 345 (2008). [3] Malen, et al., *Nano Lett.* 9, 1164 (2009).