

金－ベンゼンジチオール－金架橋構造の 破断過程における幾何学的解析

Analysis of conformation changes in breaking processes of Au-Benzendithiol-Au junctions

阪大院基礎工 〇(M2) 飛永 諒介, 大戸 達彦, 多田 博一

Σ-Osaka Univ., °Ryosuke Tobinaga, Tatsuhiko Ohto, Hirokazu Tada

E-mail: tobinaga@molelectronics.jp

分子デバイスの設計において、電極－分子界面の局所構造の違いは電気伝導性に大きな影響を与え、デバイスの性能を決定づける。例えば金－BDT－金架橋構造において最大 2 桁以上の電気伝導度の差が測定されているが[1]、電極－分子界面の接合構造に関する理論計算はなく、金電極と接合する S 原子の吸着サイトの違いに起因するであろうという推測にとどまっている。本研究では、REAX 力場[2]を用いた金－BDT－金架橋構造の分子動力学シミュレーションにより、破断過程における Au-S 接合の構造遷移を統計的に考察した。

図(a)に示すような金－BDT－金架橋構造のモデルを作成し、実験的なブレイクジャンクション法を模した破断シミュレーションを行った。金－BDT 接合において REAX 力場が用いられた例は無く、原子間の角度やねじれによるポテンシャル差を再現するパラメータを新たに開発し、従来の力場では見られなかった hollow サイトや bridge サイトへの吸着を実現した。破断過程における Au-S 接合構造の変化の一例を図(b)に示す。縦軸は Au-S 接合本数を表し、破断過程において S 原子の吸着サイトが遷移することを示している。初期構造を変化させた 500 回の破断シミュレーションにより、hollow サイトから on top サイトへ 16 % (80/500)の確率で遷移することが分かった。on top サイトは図(c)に示すヒストグラムから約 2Å のプラトーを持つ。電極間距離の伸長に伴い、伝導度のスイッチの後、2Å 程度のプラトーが生じるという計測が報告されている[3]。今回の計算結果は、それが吸着サイトの遷移で説明できることを示唆している。さらに on top サイトへ遷移したすべての構造は、破断直前に左右電極が hollow/on top の非対称の吸着サイトを持つことが分かった。以上の結果は、実験的に制御が困難であった電極－分子界面の局所構造についてより明確な理解を深め、分子デバイスの実用化・性能向上の重要な指針となる。

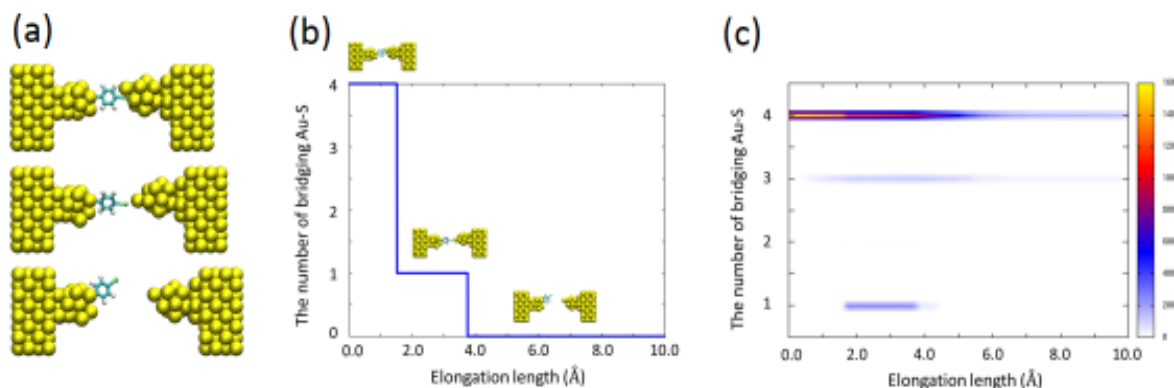


図 (a)金－BDT－金架橋構造の破断シミュレーションのスナップショット(上から、初期状態、400 ps 後、800 ps 後)、(b)破断中の Au-S 接合本数の変化の例、(c)500 回の破断シミュレーションによる Au-S 接合本数の変化のヒストグラム。

[1] Yuki Komoto et al., *Scientific Reports*, (2016) **6**, 26606.

[2] Kimberly Chenoweth et al., *Journal of Physical Chemistry A*, (2008) **112**, 1040-1053.

[3] Christopher Bruot et al., *Nature Nanotechnology*, (2012) **7**, 35-40.