

論文審査の結果の要旨

氏名 中西 祥介

本論文は4章および補遺から構成される。

1章は過去の実験のレビューと本論文の目的を述べた序論である。2章は計算に用いたモデルの概要および計算手法の説明である。3章ではさまざまな分子架橋モデルに対するコンダクタンスおよび分子内電流の計算結果とその解釈を述べ、「量子ループ電流」とそれに伴う磁気モーメントの発現を予測する。4章は結語である。また補遺では、本論文中で用いたいくつかの式の導出、ならびに簡単な1次元モデルを用いて量子ループ電流を議論している。

1982年のG. Binnig博士, H. Rohrer博士らによる走査トンネル顕微鏡の発明以来、いわゆる走査プローブ顕微鏡は急激な発展を遂げ、今や原子スケールでの表面局所構造解析、表面局所スペクトロスコーピー、さらには表面の原子操作が現実のものとなった。それに伴い最近では、有機分子の多様性や自己組織化を生かした分子素子の開発が、基礎研究だけでなく応用研究のテーマとして取り上げられるようになってきている。そのような背景の元、本研究は、たとえば π 電子共役鎖がループをつくる分子（ベンゼン環のような分子）を電極間にはさんで架橋構造を作ることにより、新しい特性が発現する可能性を、理論的に予測したものである。

分子架橋のモデルとしては、 π 軌道のみを扱うタイトバインディング模型を用い、ゼロバイアスでのコンダクタンスと分子内の原子（軌道）間を流れる内部電流を計算した。計算には伝送行列法（+固有チャンネル分解）とグリーン関数法を併用し、問題に応じて数値的・解析的に計算を行った。

計算対象とした分子は、(1)結合したベンゼン環を持つ平面分子(3種)、(2)フラレン C60、(3)立方体分子、(4)フラットバンド系として知られる田崎模型から切り出した分子である。また電極は単純立方格子または1次元鎖を用いている。軌道間の共鳴積分は、分子内と電極内ではすべて共通の値 t とし、電極と分子のコンタクト部分では t' として、結果の t' 依存性まで調べた。

計算および理論解析の結果、縮重準位を持った分子にソース・ドレイン電極を非対称に接続し、縮重準位付近のエネルギーをもった電子を注入した場合、上記モデル(1)~(4)いずれの場合もソース・ドレイン間を流れる電流にくらべて桁違いに大きな分子内ループ電流が生じることが見いだされた。著者らはこれを「量子ループ電流」と命名した。また量子ループ電流の向きは縮重準位エネルギーの直下と直上で逆転することが見いだされた。その大きさは、分子のエネルギー準位の共鳴幅を決める t' にも依存し、 $t' \sim t/2$ 付近で最大にな

る。田崎模型から切り出した分子では、その高い縮重度から期待されるように、とくに大きな量子ループ電流が見つかった。

この量子ループ電流に伴い、大きな磁気モーメントが現れると考えられ、これは局所磁場に敏感な測定方法（たとえば NMR）によって観測できる可能性がある。フラレン C60 の例では、この磁気モーメントの向きに関して興味深い性質が見いだされた。すなわち、ソース（ドレイン）電極の位置を固定し、ドレイン（ソース）電極の位置を任意に選んだ場合、磁気モーメントはある平面上に固定される。これは3重縮重準位をもつ分子では一般的な現象であることが示された。

以上のように、本論文では数種類の分子架橋モデルに対して数値計算と解析的計算を行い、一般に縮重分子軌道がつくる「量子ループ電流」が存在して磁気モーメントを生ずることを予言した。電子間相互作用や有限バイアスの効果を無視していることから、本論文の結果は現実の系の定量的な予言ではない。また量子ループ電流が作る磁気モーメントが小さいことから、実験による観測にも何らかの工夫が必要と思われるものの、分子素子の新たな可能性を示す研究として高く評価されるものである。

なお本論文は塚田 捷教授、田村 了博士、小林伸彦博士、Mads Brandbyge 博士との共同研究であるが、論文提出者が主体となって理論を構築したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断された。したがって審査員全員により、博士（理学）の学位を授与できると認めた。