

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 梅野 顕憲

様々な分子の中では、量子力学的によく記述された軌道やスピンの多彩な機能を発現している。この様々な機能を有する分子をエレクトロニクスに応用する試みが近年注目を集めている。その中で最も重要な技術的課題の一つが、ナノ領域の分子が発現する機能を電気抵抗の変化として読み出すための電極形成技術である。分子の大きさは、典型的には数 nm 以下であるため、原子レベルで精密に制御されたギャップを有する電極を形成する必要がある。本論文は、「精密なナノギャップ電極作製技術の提案とその分子接合への応用」と題し、間隔が 1 nm もしくはそれ以下の極微小な電極対を精密に作製する技術の確立と、その分子接合作製への応用について記しており、6 章より構成されている。

第 1 章は序論であり、まず、量子ナノ構造における伝導現象の基本となる 1 次元電子系の伝導度、および量子ドットを介した単一電子トンネル現象について、その物理を解説している。さらに、現在までになされた分子を介した電気伝導現象の研究の背景と歴史について解説するとともに、本研究の目的について述べている。また、最後に本論文の構成を示して、各章の概略を示している。

第 2 章では、原子レベルで制御された金電極を可逆的に作製する技術として、ナノ領域でのめっき技術を提案している。従来、金メッキは青酸化合物など極めて毒性の強い物質を用いて行われてきたが、本論文ではヨードチンキという市販の医薬品を用いた電気めっきによるナノギャップ作製技術を提案している。実際にヨードチンキとビタミン C から調製した簡単な金めっき溶液を用いてナノめっきを行い、電極対間抵抗のその場測定によって、電極先端の接触に伴う明瞭な抵抗の量子化を観察し、提案した技術によって原子スケールの電極対作製が行えることを示している。さらに、めっき反応の極性反転により、原子スケールでの接合断裂も可能であることを示している。このような簡単に扱いやすい薬品を用いたナノめっき法の実証を踏まえ、分子接合に応用する手法として微小流体システムとの融合を提案している。

第 3 章では、微細加工による静電駆動機構(MEMS)の研究グループとの共同研究により、MEMS 技術を用いた機械可動ナノギャップ電極の伝導特性の評価について論じている。まず、MEMS 試料駆動時の電極対抵抗の変化を精密に測定し、電極先端どうしを機械的に接触・分離する過程で明瞭な抵抗の量子化が観察されることをから、MEMS 技術を用いて原子レベルでの電極間隔の制御が可能であることを示している。また、電極の接近過程に於いて、トンネル領域、クーロン引力領域、金属結合形成領域が明瞭に現れることを見出している。さらに、MEMS 技術を用いてベンゼンジチオール分子の分子接合の作製を試み、少数のベンゼンジチオール分子によって電極間が架橋された接合が作製できることを示すと同時に、分子接合の断裂の素過程として、架橋分子が電極である金原子を引き剥がすという断裂様式が存在することを示している。

第 4 章では、分子接合の作製に近年最も多く用いられている極微金属接合の通電断線法について、ナノギャップの形成位置とギャップ間隔の再現性を格段に向上させる手法について論じている。通電断線法とは、あらかじめわずかに重なりを持つ金属電極対に通電することにより断線させ、ナノギャップを作製する方法であるが、ナノギャップが形成される位置や形成されたギャップの大き

さに再現性が乏しいと言う問題がある。本論文では、まず、断線の素過程であるエレクトロマイグレーションの物理を根拠に、非対称ナノ接合を用いたナノギャップ形成位置の再現性向上を提案している。この手法は、弱い金接合を形成するときの金の結晶粒界構造を制御することにより、断線位置の特定を行うものであり、その有効性を電子顕微鏡観察により確認している。さらに、通電断線過程において、極微金電極対の伝導度を精密にその場測定し、エレクトロマイグレーションの素過程に関する考察を行っている。その結果、接合の伝導度を監視しながら通電の強さを制御する手法により、爆破的な断線を防ぎ、分子接合の作製に不可欠な原子レベルのギャップ形成の歩留まりをほぼ100%近くに飛躍的に高めることに成功している。

第5章は、第4章で確立した通電断線法によるナノギャップ電極作製法を用いて、実際にフラーレン分子を塗布して、分子接合の作製を試みた結果を論じている。作製した接合のうち、いくつかは液体ヘリウム温度近傍で単一電子トランジスタ的な特性を示した。現在のところクーロン島になっている物質を特定するまでには至っていないが、クーロンピークが出現するゲート電圧の大きさより、フラーレン分子がクーロン島の作用をしている可能性が高いと結論づけており、本論文で提案・開発した手法が分子接合を作製するために有効であることを示している。

第6章は、結論であり、本論文で得られた主要な成果をまとめている。

以上のように、本論文は、多彩な機能分子をエレクトロニクスに応用するために不可欠な技術であるナノギャップ電極形成技術について、ナノめっきやMEMS等による新規な方法を提案するとともに、エレクトロマイグレーション法による電極形成技術についても、その素過程を深く考察することにより、ナノギャップ形成の再現性を格段に高めることに成功し、さらにそれらの方法を分子伝導の評価にも応用しており、単一分子デバイスの実現可能性に大きく道を拓くものであり、電子工学に貢献するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。