

論文の内容の要旨

論文題目 **Fabrication of single molecule transistors with ferromagnetic leads and their quantum transport**

(強磁性電極を用いた単一分子トランジスタの作製とその量子輸送現象)

氏 名 吉田 健治

ナノギャップ電極間に単一有機分子を挟んだ構造を持つ単一分子トランジスタ (SMT) は、その極小サイズを生かした集積回路の高密度化や分子スピンを利用した量子情報処理への展開が期待されており、近年注目を集めている。SMTの特性は、用いる分子材料とその分子と結合する電極材料という2つの材料の自由度によって決定されたため、分子と電極材料の組合せによって多様な機能が発現することが期待されている。本研究は、単一分子素子のスピントロニクスへの応用を鑑みて、電極材料に強磁性体を用いたSMTの輸送特性を評価することを目的とした。そこで、強磁性体であるNi電極を材料として用いた際のSMT作製プロセスの最適化を行った。さらに、C₆₀分子にNi電極を作製したSMTの輸送特性を評価し、単一C₆₀分子におけるスピン依存伝導を調べた。

本論文は、7つの章で構成される。第1章は序章であり、本研究分野における研究動向を踏まえて本研究の背景及び研究目的を述べた。第7章は、本論文の結論について述べた。以下では、本論文の本論である第2章から第6章までの要旨を述べる。

第2章では、SMTで発現する伝導特性について単一電子トランジスタ (SET) の伝導モデルを基に概説した。分子がクーロン島として振舞うSMTで特異に観測される、分子内振動やナノギャップ電極間での分子の空間的振動に起因した励起準位の発現機構について説明した。

第3章では、Niを電極材料として用いた際の通電断線法適用条件について検討した。最初に、従来の汎用リソグラフィ技術を用いた金属ナノワイヤの作製プロセスについて述べ、単一分子と同程度の寸法の空隙を有するナノギャップ電極の作製法である通電断線法に関して説明した。特に電圧印加時におけるナノワイヤの伝導度を印加電圧にフィードバックさせることで段階的な通電断線工程が可能なフィードバック通電断線法の制御アルゴリズムを説明した。次に、化学的に活性であるNiにおける通電断線法の適用環境に関して検討を行った。その結果、大気解放条件下で適用した場合、Ni電極表面に付着した大気由来の水分を介した陽極酸化反応が起こり、電極の酸化による変質が生じることを示した。これより、化学的に活性な金属材料の通電断線法適用環境の必要条件は無水環境であることを見出した。さらに、Ni原子接合が通電断線する際の断線電圧を統計化した結果、断線電圧がNiの表面拡散ポテンシャル E_D と一致することを示した。これは、Ni原子接合の通電断線機構においても、1電子が金属原子に E_D に相当するエネルギーを与えることで、原子が接合部から外れるという通電断線機構が妥当であることを確認したものである。さらに、Ni原子接合への印加電圧が E_D/e 未満であれば、 10^{10} A/cm²という高電流密度を印加した場合でも断線が生じないことを示した。このことは、原子接合を利用した超微細素

子が、 E_D/e 以下の印加電圧で駆動されれば安定であることを示している。

第4章では、SMTの作製歩留りの向上を目的としたSMT作製プロセスの最適化を行った。SMTは、通常、分子を塗布した金属ナノワイヤに通電断線法を施すことでナノギャップを形成し、そのナノギャップ間に分子が捕縛されることで実現される。一方で、分子のナノギャップ間への捕縛は偶然に依拠したものであるため、SMT作製歩留りは数%に留まっているという課題があった。本研究では、従来の作製プロセスでは2つの事象によって、ナノギャップ近傍に存在する分子数の減少が生じる事を考察した。第一に、通電断線過程に生じるジュール熱によって分子がナノワイヤ表面から脱離する、または分子が熱的に分解するため、ナノギャップ形成時点にナノギャップ近傍に残存する分子数が減少することである。もう一方は、分子はナノワイヤ表面上に存在するため、通電断線法によって生じるナノワイヤを構成する金属原子のエレクトロマイグレーション (EM) に伴い、分子がナノワイヤ表面から移動する可能性が考えられる。これらの問題を解決するため、ナノワイヤに対し通電断線法を適用し、ナノワイヤを量子ポイントコンタクト (QPC) 状態まで狭窄後、分子を塗布し、再び通電断線法を適用しナノギャップを作製するプロセスを開発した。実際に本プロセスを用いて、SMTを作製した結果、90%以上の素子で、分子がナノギャップ間に捕縛された際に特徴的な伝導特性である単一電子トンネリング特性が観測されることを確認した。以上から、本工程がSMT作製歩留り向上に高い効果を有することを示した。

第5章では、不純物原子が吸着したNi QPCに通電断線法を適用して作製した2~3原子幅のNi QPCで、近藤効果が発現することを示した。観測された近藤効果に起因する伝導度の上昇幅は $2e^2/h$ 程度とこれまで報告されてきた強磁性ナノ接合における近藤効果で観測された値よりも高く、さらに、伝導度がゲート電圧によって変調可能であることを確認した。これらの結果は、強磁性体の寸法が原子レベルまで縮小した系においては、伝導電子のスピンとNi原子の局在スピントが反強磁性的に結合することを示したものである。

第6章では、Niナノギャップ電極を用いて作製した C_{60} をクーロン島としたSMTの伝導特性について検討した。本研究において、第3章で述べた工程を用いることで、Ni電極を用いたSMT作製に成功し、明瞭なクーロンダイヤモンド (CD) 特性を世界で初めて観測した。Ni電極を用いたSMTでは、これまでに報告されたAuを用いたSMTや他の材料系を用いたSETでは見られなかった励起準位のゲート電圧依存性を確認した。この結果について、Ni- C_{60} 間で電子軌道の混成によって、ゲート電極との結合が異なるいくつかの分子軌道が伝導に寄与している可能性について議論した。また、SMTの磁気抵抗効果を測定した結果、外部磁場によって抵抗が最大で100倍以上、変調可能であることを確認した。この結果から、強磁性電極を用いたSMTは磁気記録素子や磁気センサーとしても極めて有望であることを示した。