

審査の結果の要旨

氏名 吉田健治

単一分子に電極で電氣的にアクセスし、分子の持つ多彩な機能をエレクトロニクスに応用しようという取り組みが、近年注目を集めている。単一分子トランジスタの特性は、用いる分子と電極材料という2つの自由度によって決定されるが、これまで強磁性などを示す遷移金属で単一分子トランジスタを作製することは極めて困難であった。本論文は、"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」）と題し、主に強磁性金属であるNiの通電断線法によるナノギャップ電極作製の最適化とC60分子/Ni電極単一分子トランジスタの量子輸送現象について論じたものである。論文は6章より構成されており、英文で記されている。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べられている。分子エレクトロニクスは1974年に提唱され、走査プローブ顕微鏡や機械的断線法により分子のダイオード特性が研究されてきた。しかし、2000年のエレクトロマイグレーションを利用した通電断線法による単一C60分子トランジスタの実現は、分子デバイスの可能性を大きく拓いた。しかし、これまでの研究は金を電極に用いたものがほとんどであり、強磁性や超伝導を示す金属の特徴を素子に付加し、新たな機能の開拓をすることが必要だと述べている。

第2章では、単一分子トランジスタの動作特性を理解する上で重要な単一電子トランジスタの伝導機構とその特徴について概説している。単一分子トランジスタでは分子がクーロン島の役割を果たし、単一電子トランジスタとして動作する場合が多い。特に、単一分子トランジスタに特徴的に観測される分子振動に起因した励起準位の発現機構について説明している。

第3章では、まず強磁性金属であるNiを電極材料として用いる場合の通電断線を行う環境について論じ、Niのように化学的に活性な金属材料の通電断線を行う場合には、無水環境であることが必要であることを見いだしている。さらに、バリスティック伝導領域において、Ni原子接合の原子移動の臨界電圧を統計化した結果、臨界電圧の最頻値がNiの表面拡散ポテンシャルと一致することを示した。このことにより、Ni原子接合の通電断線機構において、1電子が金属原子に表面拡散ポテンシャル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機構が妥当であることを確認している。さらに、Ni原子接合への印加電圧が表面拡散ポテンシャル未満であれば、 10^{10} A/cm²という高い電流密度を印加した場合でも断線が生じないことも示している。

第4章では、単一分子トランジスタの作製歩留りの向上を目的とした素子作製プロセスの最適化について述べている。単一分子トランジスタは、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獲され

ることで作製される。しかし、分子のナノギャップ間への捕獲は偶然によるものであり、単一分子トランジスタの作製歩留りは数%に留まっているという課題があった。従来の作製プロセスでは、第一に通電断線過程において生じるジュール熱によって分子が熱的に分解・脱離する可能性があるため、第二に通電断線法による金属原子のエレクトロマイグレーションに伴い、分子が金属接合部表面から移動するため、ナノギャップ部にある分子数が減少する可能性がある。これらの問題を解決するため、金属電極にまず通電断線法を適用し、金属電極をバリスティック伝導領域となる数十原子まで狭窄後、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。本プロセスを用いて、単一分子トランジスタを作製した結果、90%以上の確率で、クーロン梯子特性が観測される単一分子接合を作製できることを確認し、本プロセスが単一分子トランジスタ作製歩留り向上に極めて有効であることを示した。

第5章では、C60分子をクーロン島とした強磁性電極単一分子トランジスタの伝導特性について論じている。本研究において、第5章で述べた新しいプロセスを用いることで、Ni電極を用いた単一分子トランジスタの作製に成功し、明瞭なクーロンダイヤモンド特性を世界で初めて観測している。さらに、Ni電極を用いた単一分子トランジスタでは、これまでに報告された金電極を用いた試料では見られなかった分子軌道のゲート電圧依存性を確認し、反応性の高いNi原子とC60分子の混成の重要性について述べている。さらに、Ni/C60単一分子トランジスタが非常に大きな磁気抵抗変化を示すことを見だし、強磁性電極単一分子トランジスタが、メモリーや磁気センサーとして有望であることを示している。

第6章は結論であり、博士論文全体を通してのまとめが記されている。

以上のように本論文は、単一分子のスピン트로ニクスへの応用を目指して、強磁性体金属の通電断線過程を詳細に調べ、フィードバック通電断線法を用いた単一分子トランジスタの作製プロセスの最適化を行うことにより、非常に高い歩留まりで強磁性電極単一分子トランジスタを作製することに成功するとともに、強磁性原子-分子接合に起因する特異な単一電子伝導やスピン依存伝導の観測について報告したものであり、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。