

## 審査の結果の要旨

氏名 坂田 修一

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、活性層となる分子の振動や電極に対する配置に大きく依存するが、定量的な理解はなされてこなかった。本論文は、"Effect of Molecular Vibration, Orbital, and Rotation on Electron Transport in Single and Double Molecule Transistors"（「単一および二重分子トランジスタの電気伝導における分子振動と軌道、回転の効果に関する研究」）と題し、主に C60 分子、H2TPP 分子を活性層とするトランジスタの量子輸送現象に関して論じたものである。論文は7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。さらに、2000年の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が、分子系特有の伝導現象の理解が重要であると述べている。

第2章では、単一分子トランジスタの動作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（Franck-Condon 効果）について説明している。

第3章では、まず金属ナノ接合を通電断線法によりナノギャップ電極に加工するための実験系の説明がなされている。単一分子トランジスタの作製においては、その作製プロセスが統計的な過程を含むため、多くの試料を試す必要がある。そのため、FPGA による高速フィードバック回路を作製し、ナノギャップ電極加工に要する時間を約 30 秒（従来の約 1/60）に短縮することに成功している。また得られた単一分子トランジスタ試料の測定の高速化も行い、直流信号に加えて、電流の微分信号も高速に取り込むことができる測定系を構築している。

第4章では、通電断線過程の基礎となるエレクトロマイグレーションの素過程について議論を行っている。特に、LSI の配線材料として重要な銅について検討を行い、数十原子以下に狭窄された銅バリスティック接合では、エレクトロマイグレーションの臨界電圧が約 0.35 V であること、さらに臨界電流密度が普遍的な式で表せ、 $10 \text{ GA/cm}^2$  のオーダーになることを示している。また、高速通電断線加工時における過渡現象について

も議論を行い、高い精度でナノギャップ電極を作製するために考慮すべき重要な要素であると述べている。

第5章では、金/C60分子トランジスタにおける分子振動と電子伝導の相互作用について詳しく議論されている。C60分子は金電極に吸着すると、その表面で重心運動する。特に電極からC60分子に電子が注入されると分子振動の平衡位置がシフトするため、Franck-Condon則に従う分子振動(vibron)の励起が観測される。本論文では、特にC60分子が2個直列につながった二重分子トランジスタの伝導について実験と理論の両面から議論されており、クーロン安定化ダイアグラムに電流が抑制された領域が広がるとともに、高次のvibron励起に伴う励起スペクトルが観測されること、さらにC60分子間のトンネルにおいて、非弾性トンネルの効果が重要であることを述べている。

第6章では、H2TPP分子を活性層とする単一分子トランジスタにおいて、電気的なストレスを印加することにより、単一分子トランジスタの伝導度が少数の安定な値の間をスイッチングする現象を観測している。クーロン安定化ダイアグラムの詳細な解析から、この伝導度のスイッチング現象は、金ナノギャップ電極間でH2TPP分子が回転し、電極と異方性分子軌道の相対的な配置が変化することにより発生することを明らかにした。この現象は分子を用いたナノメカニカルなメモリースイッチが実現可能であることを示している。さらに分子の回転により、分子内の軌道エネルギーも影響を受けることを見いだしている。

第7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、単一分子トランジスタの伝導現象の理解を目指して、分子素子の作製・評価プロセスの最適化を行うとともに、超高速の分子振動や分子配置の変化というナノメカニカルな効果が単一分子トランジスタの電子伝導に与える影響について明らかにしたものであり、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。