

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	金電極に架橋したBDT分子の構造と電子状態の解析法の開発及び電子伝導性の解明
Title(English)	Development of system to analyze atomic and electronic structure for elucidation of electron transport property of BDT molecule bridging between Au electrodes
著者(和文)	松下龍二
Author(English)	Ryuji Matsushita
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10072号, 授与年月日:2016年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:木口 学,大島 康裕,西野 智昭,沖本 洋一,河合 明雄,北島 昌史
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10072号, Conferred date:2016/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻:	化学	専攻	申請学位 (専攻分野):	博士	(理学)
Department of			Academic Degree Requested	Doctor of	
学生氏名:	松下 龍二		指導教員 (主):	木口 学	
Student's Name			Academic Advisor(main)		
			指導教員 (副):	西野 智昭	
			Academic Advisor(sub)		

要旨 (和文 2000 字程度)

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

分子接合は分子エレクトロニクス応用への観点から注目を集めて盛んに研究されている。分子接合の特徴の一つは物性値 (電気伝導度など) が多様な値をとることである。物性値の多様さは原子構造及び電子構造の揺らぎに起因する。ダイナミクスにおいて発現する物性値の起源を理解するには、原子構造・電子構造の解析をその場で行うことが必要である。本研究では、原子構造・電子構造解析をその場で解析するための計測システムを構築した。計測対象としては金/1,4-ベンゼンジチオール(BDT)分子接合 (金/BDT 接合) を選んだ。これは本接合に関する先行研究が実験・理論の両面から多く存在し、本研究によって得られる実験結果の詳細な理解を可能にするためである。論文は以下の 7 章から構成される。

Chapter 1. General introduction では原子・分子接合研究の歴史に言及しつつ、接合の基礎的性質を特に電子伝導特性に着目して説明している。そのうえで、原子構造・電子構造の解析を合わせて実施することの意義・目的を述べている。

Chapter 2. Methods to analyze atomic and electronic structure では原子構造・電子構造解析手法を説明している。原子構造解析手法として表面増強ラマン分光法 (SERS)・非弾性トンネル分光法 (IETS) を、電子構造解析手法として IV 特性計測・熱電能計測を説明している。

Chapter 3. Analysis of atomic structure of 1,4-benzenedithiol molecule bridging between Au electrodes by surface enhanced Raman spectroscopy では金電極間に作製したナノギャップに架橋した BDT 分子について、IV 特性と SERS 計測を行った結果に関して述べている。計測の結果、ナノギャップ付近におけるラマン信号強度の増強が観測された。また振動エネルギーの低波数シフトが観測され、分子-金電極間電荷移動に起因すると考察している。加えて、バルク結晶のラマンスペクトルでは観測されない B2 対称性振動モードがナノギャップで観測されることがあった。分子が電極と相互作用することで B2 対称性振動モードが観測されたと考察している。

Chapter 4. Development of system to measure thermopower and electrical conductance simultaneously では熱電能-電気伝導度同時計測システムの構築に関して述べている。

Chapter 5. Measurement of thermopower of single Au atomic junction では、Chapter 4. で構築したシステムを用いて室温において金単原子接合の熱電能を計測した結果を述べている。計測から金単原子接合の熱電能が正負両方の値をとることが観測された。この結果は透過率関数のフェルミ準位における傾きが 0 程度の値をとりやすい一方で、原子構造の揺らぎに伴い透過率関数形状が揺らぐことに起因すると考察している。また、熱電能の揺らぎが接合温度増加により減少することが明らかになった。加熱による熱電能揺らぎの減少は結晶性向上による金単原子接合の構造変化によると考察している。

Chapter 6. Analysis of atomic and electronic structure of 1,4-benzenedithiol molecule bridging between Au electrodes では金/BDT 接合に対して熱電能・IV 特性・IETS 計測を実施した結果について述べている。室温での熱電能計測の結果、金/BDT 接合は正負両方の熱電能が観測され、正の熱電能平均値は先行研究の結果と一致した。また、低温 (20 ~ 50 K) での熱電能計測中に IV 特性・IETS 計測を行った。IV 特性計測から伝導軌道-フェルミ準位間エネルギー差はおよそ 1 eV であると見積った。加えて IETS 計測により BDT 分子架橋を確認した接合に関して、電気伝導度と熱電能の時間変化の間に負の相関が観測され、原子構造と電子構造を実験的にその場で解析することに成功した。観測された相関は吸着角変化に伴う電子構造の変化に起因すると考察している。

Chapter 7. Concluding remarks では本論文の総括と今後の展望に関して述べている。

以上要約すると、本研究では、原子構造・電子構造のその場解析のシステムを構築して、金/BDT 接合の原子・電子構造情報を詳細に得ることができた。本研究において提案した手法は接合の物性探索に寄与しうるものである。

備考: 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意: 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻：	化学	専攻
Department of		
学生氏名：	松下 龍二	
Student's Name		

申請学位 (専攻分野)：	博士	(理学)
Academic Degree Requested	Doctor of	
指導教員 (主)：	木口 学	
Academic Advisor(main)		
指導教員 (副)：	西野 智昭	
Academic Advisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)
Thesis Summary (approx.300 English Words)

One of the characteristics of the molecular junction is the diversity of the physical property. The diversity is originated from the fluctuation of the atomic and electronic structure. To understand the origin of the physical property in the dynamics, it is necessary to analyze the atomic and electronic structure in situ. In this study, measurement systems were constructed to analyze the atomic and electronic structure of the junction in situ. Au/BDT (1,4-benzenedithiol) junctions were chosen as the object of this study. First, Raman spectra were measured with the measurement of the IV characteristics for Au/BDT junctions. The number of the molecules and electronic structure of the junctions were determined by the IV characteristics. The Raman spectra were different from that of the bulk crystal. The difference was thought to be originated from the interaction between gold and BDT molecule in the junction. The basic knowlegde of the atomic and electronic structure of the Au/BDT junctions were obtined in this measurement. Next, the system for the simultaneous measurement of thermopower and conductance was constructed to obtain the information of the slope of the transmission curve at the Fermi level. After the construction, thermopower measurements were performed for the single gold atomic junctions to elucidate the thermoelectric property. I found that the deviation of the thermopower decreased in the higher temperature region. The behavior can be explained by the improvement of the crystallinity around the junction via heating of the junctions. Finally, thermopower measurements were performed for the Au/BDT junctions. In addition to the thermopower measurement, IETS (inelastic electron tunneling spectroscopy) and IV characteristics were also measured at low temperature in situ to elucidate the atomic and electronic structure comprehensively in the dynamics. The simultaneous measurements at low temperature revealed negative correlations between the electrical conductance and the thermopower of the single molecular junction. The correlations were thought to reflect the changes in the orientation of the BDT molecule in the single molecular junction. In this study, in situ measurement systems were constructed to analyze the atomic and electronic structure of the junctions. The system will contribute to the search for the novel property of the junction.

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。
Note：Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).