



|              |  |
|--------------|--|
| Title        | Studies on Charge Transport of Single Molecule Junctions Using a Scanning Tunneling Microscope   |
| Author(s)    | Lee, See Kei   |
| Citation     | 大阪大学, 2013, 博士論文   |
| Version Type |  |
| URL          | <a href="https://hdl.handle.net/11094/26262">https://hdl.handle.net/11094/26262</a>  |
| rights       |  |
| Note         | やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href=" <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> ">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## Synopsis of Thesis

Title: Studies on Charge Transport of Single Molecule Junctions Using a Scanning Tunneling Microscope

(走査型トンネル顕微鏡を用いた単分子接合の電荷輸送に関する研究)

Name of Applicant Lee See Kei

Molecular electronics emerged from the suggestion of using the molecule as an electronic component in the 1970s. This idea seemed impossible at that time. However, rapid advancement has been made in this field these days due to the development of instruments capable of handling small objects, even in single molecular scale. Many things have to be investigated carefully before this idea can be implemented in daily application. In this thesis, I have investigated two important issues, (i) conduction mechanisms in the molecule and (ii) effects of the electronic coupling on the electronic structure of the molecular junction by using the scanning tunneling microscope (STM).

Firstly, the temperature dependence of electrical conductance of molecular junctions was investigated to clarify the conduction mechanism in the molecule by using the home-built STM. The transport mechanism is known to change from tunneling to hopping as the molecule becomes longer. In this work, it was found that the crossover of the charge transport mechanism occurs not only because of molecular length but also temperature.

Secondly, thermoelectric voltage of the molecular junction was investigated to probe the electronic structure of the molecular junctions. A ferromagnetic electrode, Ni, was used because it can lift the spin degeneracy of the molecule absorbed on it. Benzenedithiol (BDT) was chosen as a model molecule. BDT junctions with nickel electrodes were found to show a negative Seebeck coefficient whereas that with gold electrodes showed a positive Seebeck coefficient. Theoretical calculation of the transmission function suggests that the observed negative Seebeck coefficient is evidence of the spin split highest occupied molecular orbital (HOMO) state. The spin splitting of the molecular orbital can open new applications in the field of spintronics.

It was also found that the dominating molecular orbital for oligothiophene and fullerene molecules was HOMO and lowest unoccupied molecular orbital (LUMO), respectively, when gold was used as electrodes.

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

|         |                      |       |
|---------|----------------------|-------|
|         | 氏　名　　(　Lee See Kei　) |       |
|         | (職)                  | 氏　名   |
| 論文審査担当者 |                      |       |
| 主　查     | 教　授                  | 彌田　博一 |
| 副　查     | 教　授                  | 松本　和彦 |
| 副　查     | 教　授                  | 吉田　博  |

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、電極間に架橋した単一分子の電気伝導機構と電子状態を実験的に明らかにしたものである。

ひとつの分子を利用し、電子素子を作製する単分子エレクトロニクスは、近年、大きな進歩をとげている分野である。単分子接合の電気伝導度を決定する実験的手法はほぼ確立されつつあるものの、実験的な困難さから電荷輸送機構を知る上で不可欠な温度依存性に関する研究は十分に行われていなかった。これに対し、本論文では、温度可変の測定装置を自作し、種々の長さのオリゴチオフェン分子の電気伝導度の温度依存性を系統的に測定した。その結果、分子の長さが長くなるとトンネル伝導から熱励起型の電気伝導へ変化することを明らかにした。また、両機構が切り替わる長さの分子では、温度が上昇するにつれトンネル型から熱励起型に変化することをはじめて見いだした。

さらに、電気伝導を担う電荷担体を明らかにするため、単分子接合の熱起電力を測定する装置を作製し、測定に成功した。単分子接合の熱起電力測定は、世界でも数グループからの報告しかない最先端の新しい計測方法である。熱起電力測定から、前出のオリゴチオフェン分子では正孔が電荷担体であることを明らかにした。さらに、強磁性電極を用いた単分子接合の電子状態の解明を試み、ベンゼンジチオールを用いた単分子接合のゼーベック係数が、金電極を用いた場合には正、ニッケル電極を用いた場合には負となることを明らかにした。理論家との共同研究により、電子状態の計算が行われ、この現象は分子がニッケルと結合することにより生じたスピントリニクス応用だけでなく、界面電子状態によって説明できることが明らかとなった。この結果は、単分子接合のスピントリニクス応用だけでなく、界面電子状態を利用した有機熱電素子の開発においても重要な成果といえる。このほかにも、金属内包フラーレンが通常のフラーレンに比べ倍近い熱電変換特性を示すことを明らかにするなど、有機エレクトロニクスの観点からも興味深い成果が報告された。

本論文で報告されたこれらの成果は、単分子エレクトロニクスの学術的理解に貢献しただけでなく、導電性高分子など、より幅広い有機エレクトロニクス分野全般において重要な設計指針となる要素を含むものであり、当該分野における基礎学理の進展に寄与することが大きいことが認められ、審査委員全員一致で博士（理学）の学位を授与するに値すると判断した。