

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H03899

研究課題名(和文) 単一分子接合の熱電特性の計測と素子設計指針の導出

研究課題名(英文) Design for thermoelectric properties measurement of single molecule junctions

研究代表者

多田 博一 (Tada, Hirokazu)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授

研究者番号：40216974

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,100,000円

研究成果の概要(和文)：構造の規定された金属接合および単一分子接合の電気伝導度、ゼーベック係数、熱伝導度を精度良く計測する手法を確立し、ナノ領域における熱の輸送機構に関する知見を得た。熱の散逸を防ぐため、微細加工技術を駆使して、宙吊り構造の測定素子を作製した。電極は、エレクトロマイグレーション法で作製し、電極間隔を制御するため、熱膨張によって駆動するアクチュエーターも作り込んだ。金属細線のゼーベック係数は、理論式とよい一致を示し、直径 10 nm の細線で量子化現象を確認した。熱伝導度の温度依存性も理論計算とよい一致を示した。熱伝導度の真空ギャップ間隔依存性の計測にも成功し、近接場効果が現れることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エネルギー問題の解決のひとつとして、廃熱を電気エネルギーに変換する熱電変換技術に期待が寄せられている。実用化に向けてはバルク材料を用いた開発研究が活発化しているが、ナノレベルの熱の輸送機構の解明は学術的にも重要である。ナノ技術の進展により、単一分子やナノ物質の物性計測が可能となっているが、熱の輸送機構の計測は散逸を防ぐ必要があるため、精度のよい計測が難しい。今回開発した宙吊り構造の素子は、アクチュエーターによって電極が動き、細線の太さや真空ギャップ間隔を制御しながら、電気伝導度と熱伝導度を同時計測することを可能とし、ナノ材料の熱輸送に関する理解が深まると思われる。

研究成果の概要(英文)：We have established a method to accurately measure the electrical conductivity, Seebeck coefficient, and thermal conductivity of structurally well-defined metal junctions and single-molecule junctions, which enabled us to discuss about the heat transport mechanism in the nano materials. In order to prevent heat dissipation, we made a suspended devices on SiN using nano lithography techniques. The electrodes were fabricated by the electromigration method, and an actuator driven by thermal expansion was built in to control the gap spacing. The Seebeck coefficient of the metal wire agreed well with the theoretical formula, and the quantization phenomenon was confirmed for a wire with a diameter thinner than 10 nm. The temperature dependence of thermal conductivity also showed good agreement with the theoretical calculation. We also succeeded in measuring the gap spacing dependence of thermal conductivity and found that the near-field effect became dominant for the gap below 2 nm.

研究分野：分子エレクトロニクス

キーワード：ナノ接合 単一分子接合 熱電変換 熱伝導度 ゼーベック係数

1. 研究開始当初の背景

図1に示すような、分子が金属電極間に挿入された構造（単分子接合または単一分子接合とよぶ）の作製技術は飛躍的に進展し、さまざまな分子と金属の組み合わせによるキャリア輸送機構の定量的な議論が可能になっていた。研究対象は、電気伝導特性の解明だけでなく、スピンや熱の輸送についても検討可能になっていた。おりしも、自然エネルギーの利用による発電への期待が高まり、熱電変換素子の開発も無機材料だけでなく有機材料についても国内外で報告が増えつつあった。単一分子接合は、すぐには応用への展開は難しいが、モデルが構築しやすいこともあり、特に理論研究の論文数が急速に増えていた。

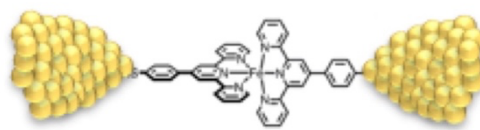


図1. 単一分子接合の模式図。左右は金属電極。挿入されているのは一例で錯体分子。

単一分子接合の熱電変換性能を評価する値として、バルク材料からの類推で下記 (1) 式の無次元性能指数 ZT が使用されている。 σ は電気伝導度、 S はゼーベック係数である。 κ は熱伝導度を表し、添字の el および ph は、キャリアおよびフォノンによる熱の輸送を意味している。

$$ZT = \frac{\sigma S^2}{\kappa_{el} + \kappa_{ph}} T \dots (1)$$

単一分子接合にバイアス電圧 V を加えた時の電流値 $I(V)$ は、式 (2) および式 (3) で与えられる。

$$I(V) = \frac{2e^2}{h} \int_{E_F - \frac{eV}{2}}^{E_F + \frac{eV}{2}} \tau(\epsilon) d\epsilon \dots (2) \quad \tau(\epsilon) = \frac{4\Gamma_L(V)\Gamma_R(V)}{[\Gamma_L(V) + \Gamma_R(V)]^2 + 4\{\epsilon - \epsilon_m\}^2} \dots (3)$$

ここで、 h はプランク定数、 E_F は電極のフェルミ準位である。 $\tau(\epsilon)$ は透過関数とよばれる。 ϵ_m は、伝導に寄与する分子軌道準位であり、通常は HOMO または LUMO の準位となる。 Γ_L および Γ_R は、左側および右側の電極と接続した際のその準位の広がり程度を表し、分子軌道と電極の軌道の混成の度合いに強く依存することから結合係数とよばれる。このようすを図2に示した。 Γ はバイアス電圧 V によっても変化する。

また、電極間に温度差 ΔT を与えた時に発生する電圧 ΔV によって定義されるゼーベック係数 S は (4) 式で表される。 k_B はボルツマン定数である。

$$S = \frac{\Delta V}{\Delta T} = -\frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \left(\frac{1}{\tau(\epsilon)} \frac{\partial \tau(\epsilon)}{\partial \epsilon} \right) \Big|_{\epsilon=E_F} \dots (4)$$

ゼーベック係数 S は、透過関数の E_F における微分係数に比例する。 S を大きくするためには、伝導に寄与する軌道が E_F に近い位置にあり、 Γ を小さくして微分係数を大きくすればよい。

このように、単一分子接合の σ および S は透過関数 $\tau(\epsilon)$ と密接に関係し、分子設計および接合様式の設計により、 σ および S を制御できることがわかる。

例えば、Bergfield らは、ポリフェニルエーテルを金電極に架橋した系は、透過関数において非常にシャープなピークを持ち、大きな S を示す可能性があることを示している (ACS Nano 2010)。また、Ghosh らは、2-(1H-pyrazol-1-yl)-6-(1H-tetrazole-5-yl)pyridine のスピントスオーバー錯体 (鉄) と強磁性金属電極との接合において、高スピン状態で S 値および ZT 値の増大が見込まれることを示した (Appl. Phys. Lett. 2015)。

単一分子接合の熱伝導度に関しては、理論計算が活発に行われていた。 κ_{el} は、キャリアによる熱の輸送であり、 $\tau(\epsilon)$ を含む関数として表現される。 κ_{ph} は、フォノンの透過関数を用いた表式で表され、温度が高いところでは κ_{el} に対して無視できなことや、いくつかの系で κ_{ph} の低減と ZT の増大に関する指針が示された。

例えば、Klößner らは、アルキル分子を金電極間に挿入し、熱伝導度の計算を行っており、アンカー部位によって熱伝導度が大きく異なることを示した (Phys. Rev. B, 2016)。また、Sadeghi らは、アルカン (C-C 単結合) とオリゴイン (単結合と3重結合が交互に繰り返す構造) を金電極間に架橋した系において、 κ_{el} および κ_{ph} の長さ依存性および温度依存性を計算によって求めた (Nano Lett. 2015)。オリゴインの方が構造が硬く、 κ_{ph} が小さいことと、長さによって、徐々に κ_{ph} が低下することが示されている。 σ と S も計算し、 $ZT = 1.4$ が報告されていた。 $ZT = 1$ は、熱電変換材料の実用化への指標値ともされ、単一分子でもこのような大きな値が得られたことで、単一分子接合の熱輸送研究への期待を膨らませた。

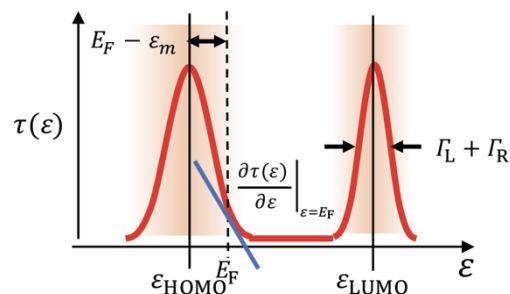


図2. 単一分子接合の電気特性および熱電特性を考察するための透過関数の模式図。

2. 研究の目的

上記の背景を踏まえ、本研究では、接続様式の規定された単一分子接合を研究対象とし、①電気伝導度 σ 、ゼーベック係数 S 、熱伝導度 κ を同時に測定する手法を確立し、 σ 、 S 、 κ を増減させる要因を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

単一分子接合の作製には、通常、走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いる方法 (STM ブレークジャンクション法、STM-BJ) と、図3のように、リン青銅などの上に電極を作製するメカニカルコントラブルブレークジャンクション (MC-BJ) 法が用いられる。前者では、STM の探針を基板に衝突させることと引き離すことを繰り返し行い、ある確率で、探針-分子-基板の単分子接合が形成されることを利用する。後者では、基板をなんども折り曲げることで、電極間隔を制御し、ある確率で、単分子接合が形成される。前者では、探針-基板間の距離を長時間にわたって維持できないが、後者では、数十分から数時間の間、単分子接合を維持できる。一方、熱の輸送特性の計測では、MC-BJ では、基板への熱の散逸が避けられず、STM-BJ の方が、計測は容易であり、当初は、STM-BJ による計測を計画した。

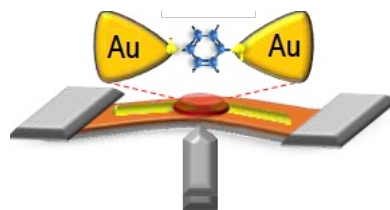


図3. MC-BJ 法 の概念。

2019 年に、ミシガン大学および IBM のグループが、それぞれ独立で、Nature 誌 (L. Cui et al., Nature 572, 628-633(2019)および Nano Lett 誌 (N. Mosso et al., Nano Lett. 19, 7614-7622 (2019)) に STM-BJ を用いた単一分子接合の熱伝導度計測に関する実験結果を発表した。前者では、探針側にヒーターを組み込み、後者では基板側にヒーターを組み込み、単一分子接合を介した熱流を計測している。前述のように、STM-BJ では、単一分子接合を長時間にわたって維持できないため、数百回の計測を行なって分子が架橋された時とされていない時の熱伝導を比較している。この発表は、2つの点で、本研究計画の変更を余儀なくした。ひとつは、STM-BJ では、安定な接合を保持できず、統計的な処理が必要となる。単一分子接合の電気電動度は、分子と電極の接合様式によって大きく異なることが知られている。にもかかわらず、熱伝導はほとんど影響を受けていない実験結果は、再検証が必要である。もうひとつは、この問題が顕在化している状況で、STM-BJ 法で実験を行なっても、新しい知見を得にくいことである。

その解決には、単一分子接合を安定に維持できる MC-BJ 法が有用と思われるが、前述のように、MC-BJ 法で、基板への熱の散逸が問題となる。そこで、新しく基板の無い、すなわち宙に浮いた構造の BJ 法を設計することとした。

4. 研究成果

(1) 素子の設計および作製

図4に、測定用素子の設計図と実際に作製した素子の走査電子顕微鏡像を示す。素子全体は、SiN 基板上に電子ビームリソグラフィ技術を駆使して、宙吊り構造となっている。細い部分はいずれも金でできている。中央には、分子を架橋するためのナノギャップ電極が作製されている。この電極の微細化には、後述のようにエレクトロマイグレーション法を利用している。電極を挟んで、左右にジグザグ構造を作製している。図の左側は、ヒーターとして使用し、電力を印加することで、発熱し、ナノギャップ電極部分に熱が注入される。右側は、温度計として使用し、この部分の抵抗値が温度によって変化することで、温度上昇を検知する。さらに、この素子の特徴として、ジグザグ構造の外側に、斜め方向に梁を配置している。この部分に電流を流すことにより、梁が熱膨張し、斜め方向への伸長は、ナノギャップ電極の距離を縮める方向の力となる。この電流量を調整することで、ナノギャップ電極の間隔を制御でき、アクチュエーターとして機能し、いわゆるブレークジャンクションとして動作する。この素子を用いることで、電気伝導度、ゼーベック係数、熱伝導度の計測が可能となる。

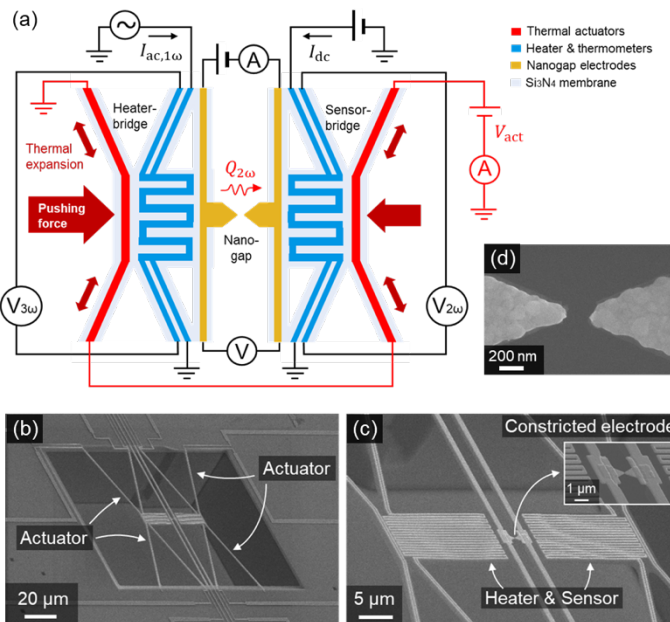


図4. 宙に浮いた素子の作製：(a) 素子の概要、(b-d) 電子顕微鏡像、(b) 全体像、(c) 拡大図、(d) ナノギャップ電極。

この部分に電流を流すことにより、梁が熱膨張し、斜め方向への伸長は、ナノギャップ電極の距離を縮める方向の力となる。この電流量を調整することで、ナノギャップ電極の間隔を制御でき、アクチュエーターとして機能し、いわゆるブレークジャンクションとして動作する。この素子を用いることで、電気伝導度、ゼーベック係数、熱伝導度の計測が可能となる。

(2) エレクトロマイグレーション法によるナノギャップ電極の作製

エレクトロマイグレーション (EM) とは、金属中を流れる電子と金属原子の間で運動量の移動が起こり、金属原子が動く現象であり、集積回路での配線の劣化の原因となることが知られている。この方法を用いて、金属線を細くし、さらには、ナノギャップを形成することができる。MC-BJ では、基板にくびれをもった金属細線をリソグラフィによって作製し、抵抗値をモニターしながら通電し、細線の太さやギャップの大きさを制御する。細線が細くなるにつれ、抵抗値が大きくなり、ジュール熱が発生する。通常は、この熱は、基板にすみやかに散逸されるが、今回の素子では、電極部分が宙に浮いているため、ジュール熱の発生により、電極の温度が急激に上昇し破断につながるということが問題となった。そこで、抵抗変化をもとに通電量（実際には印加電圧）を制御するのではなく、抵抗の電圧微分を指標として、印加電圧を制御することで、電極の破断を抑えることが可能となり、太さにして数原子の細線まで作製することに成功した。

(3) アクチュエーターの動作確認

図 5 に、梁部分に電圧を印加した時のナノギャップ電極間に流れる電流を測定した結果を示す。横軸は時間であり、12000秒でアクチュエーターが焼き切れてしまったため（図の矢印）、それ以降のデータはない。縦軸右側は、電圧を表しており、0.7 V から 1.6V 前後の電圧をノコギリ刃型に印加している。縦軸左側は、その時に流れる電流量である。

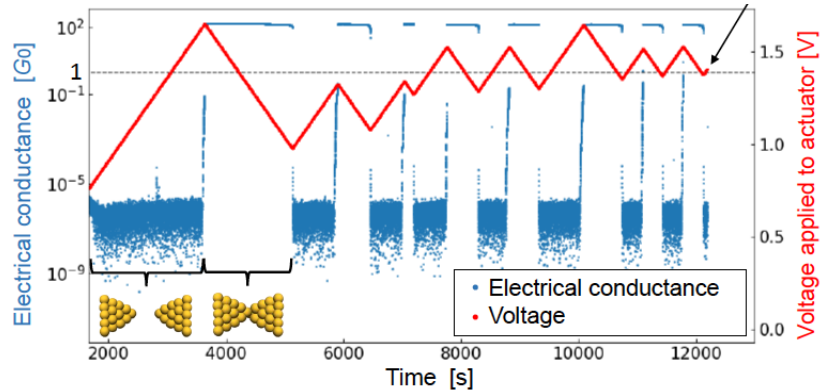


図 5. アクチュエーターの動作確認。アクチュエーターに加える電圧(右軸)を増減させると、電極間に流れる電流(伝導度)(左軸)が変化する。電流値は電圧に比例せず、急激に上昇および減少する。

3700秒くらいまで、電圧を少しずつ上昇させると、 $10^{-6} G_0$ 程度であった伝導度が、急に $10^2 G_0$ まで上昇している。これは、電極が接触したことを意味している。次に、5100秒くらいまで、電圧を下げると、急に伝導度が $10^{-6} G_0$ 程度に下がる。これは、電極が引き伸ばされて、あるところで急に破断していることを表している。この測定では、8回の接触と破断が確認できた。

(4) 金原子鎖の熱伝導度の計測

フォノンの平均自由行程と物質のサイズが拮抗した場合の熱の輸送現象については古くから理論的考察が行われてきた。量子化熱伝導度 κ_0 は、 k_B をボルツマン定数、 h をプランク定数、 T を絶対温度として、(5) 式で表される (Pendry, J. Phys. A16, 2161, 1983)。2000年に Schwab らは、SiN の微細加工により、0.6 K の極低温環境下で (5) 式の実証に初めて成功した (Nature 404, 974, 2000)。2017年に Cui らは、走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いたブレークジャンクション (BJ) 法で、Au 原子鎖において、 κ_0 と量子化電気伝導度 $\sigma_0 (= 2e^2/h)$ の間に (6) 式が成り立つことを報告した (Science 355, 1192, 2017)。 e は電気素量である。

$$\kappa_0 = \frac{\pi^2 k_B^2}{3h} T \quad (5),$$

$$\frac{\kappa_0}{\sigma_0} = LT \quad (6)$$

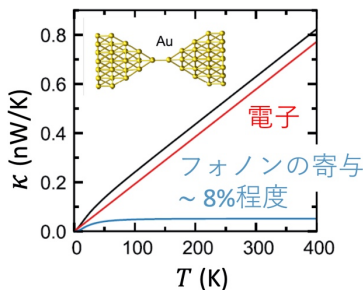


図 6. Au 原子鎖の熱伝導度の温度依存性の理論計算 (Phys. Rev. B96, 205405, 2017 より)。

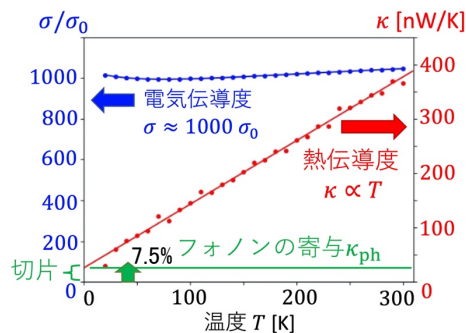


図 7. 直径 13nm 程度の Au 細線の電気伝導度および熱伝導度の温度依存性。

(6) 式は、物質の熱伝導度 κ と電気伝導度 σ の比が温度に比例する ($\kappa/\sigma = LT$) ことを示したもので、ウィーデマン・フランツ則とよばれる。比例定数 L はローレンツ数である。バルク金属ではこの法則が成り立つことが知られているが、量子構造でも成立することを示した意義は大きい。この実験は室温で行われたが、コンスタンツ大学の Klöckner らは、第一原理計算により、広い温度範囲で、Au だけでなく Pt および Al の原子鎖の電気伝導度および熱伝導度を計算している (Phys. Rev. B96, 205405, 2017)。図 6 に Au 線に対する計算結果を示す。

今回作製した素子の最初の適用として、Au 細線の熱伝導度の計測を試みた。Au 細線 (太さ約 13 nm) において、4 K から室温の温度範囲で、電気伝導度と熱伝導度を同時に計測した。図 7 に示すように、電気伝導度は温度依存性を示さず、弾道的な伝導特性である。極低温においても全熱伝導度に対するフォノンの寄与は 7.5 % 程度であり、図 6 に示した理論計算を再現することが見出された。

(5) ナノギャップの熱伝導度の計測

ナノメートルスケールの真空ギャップ間の熱の輸送は、単一分子接合の熱輸送を議論する上でも考慮すべき課題であるが、その機構については未解明の部分が多い。今回作製した素子では、ナノスケールのギャップの電気伝導度と熱伝導度を同時計測できる利点を有する。

図 8 は、室温、真空中で、電極間の距離を変化させながら、電気伝導度と熱伝導度を同時に計測した結果である。ギャップ距離が十分大きいところでは、熱伝導度は一定で、この領域では輻射による伝導が主であると考えられる。距離が小さくなり 2 nm を切ると、電気伝導度は変化しないのに対し、熱伝導度が 2 桁ほど上昇しているのがわかる。これは、理論 (T. Tokunaga et al., Phys Rev B 2021) でも予測されている近接場効果によるものと考察される。さらに、距離が小さくなると、電気伝導度も大きくなり、熱伝導度とも一定となる。この領域では、トンネル電流が流れ、熱も電子の輸送によると考えられる。

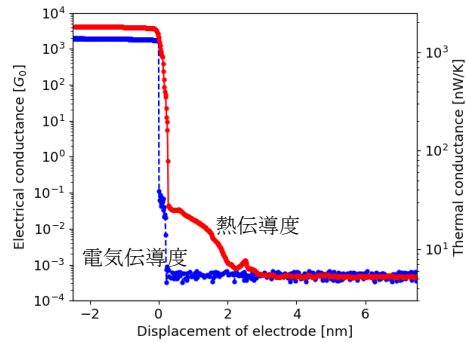


図 8. ナノギャップにおける電気伝導度および熱伝導度の同時計測。

(6) 金量子細線のゼーベック係数の計測

量子化されたゼーベック係数は、 N をチャンネル数として、(7)式で表される。

$$S_N = -\frac{k_B \ln 2}{e \left(N + \frac{1}{2}\right)} \approx -\frac{59.78}{N + \frac{1}{2}} [\mu\text{V}/\text{K}] \quad (7)$$

これまで、STM を用いて金属細線のゼーベック係数を測定した例があるが、接合様式が不安定であることや、熱の散逸を防ぐことが十分で無いため、正確な計測が難しいことが指摘されていた。

今回作製した素子を用いて、エレクトロマイグレーションを繰り返して金線を細くしながら、電気伝導度とゼーベック係数を測定した。図 9 に示すように、十分細かい領域 (500 G_0 以下) では、(7) 式を満たす直線関係が得られることが見出された。これは、直径 10 nm の細線に相当し、この太さにおいてもゼーベック係数の量子化が確認されたことは興味深く、今後、他の材料においても検証をすすめることは意義深い。

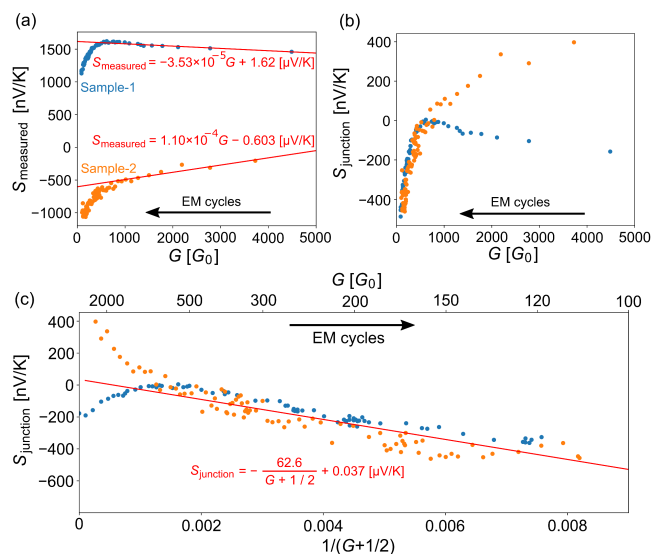


図 9. 金量子細線 (2 個の試料) の電気伝導度に対するゼーベック係数のプロット: (a) 素子全体、(b) (c) 接合部分のみ、(b) と (c) では横軸が異なる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計16件（うち査読付論文 16件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ryo Yamada, Issei Nomura, Yuki Yamaguchi, Yosuke Matsuda, Yoshikazu Hattori, Hirokazu Tada, Akira Ono, and Yoshiyuki Tanaka	4. 巻 39
2. 論文標題 Electrical conductance measurement of HgII-mediated DNA duplex in buffered aqueous solution	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nucleosides, Nucleotides & Nucleic Acids	6. 最初と最後の頁 1083-1087
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/15257770.2020.1755044	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shreyam Chatterjee, Tatsuhiko Ohto, Hirokazu Tada, Seihou Jinnai, and Yutaka Ie	4. 巻 8
2. 論文標題 Correlation between the Dipole Moment of Nonfullerene Acceptors and the Active Layer Morphology of Green-Solvent Processed P3HT-based Organic Solar Cells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Sustain. Chem. Eng.	6. 最初と最後の頁 19013-19022
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.0c07114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yutaka Ie, Yuji Okamoto, Takuya Inoue, Takuji Seo, Tatsuhiko Ohto, Ryo Yamada, Hirokazu Tada, and Yoshio Aso	4. 巻 143
2. 論文標題 Improving Intramolecular Hopping Charge Transport via Periodical Segmentation of π -Conjugation in a Molecule	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Am. Chem. Soc.	6. 最初と最後の頁 599-603
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.0c10560	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tatsuhiko Ohto, Aya Tashiro, Takuji Seo, Nana Kawaguchi, Yuichi Numai, Junpei Tokumoto, Soichiro Yamaguchi, Ryo Yamada, Hirokazu Tada, Yoshio Aso, and Yutaka Ie	4. 巻 17
2. 論文標題 Single-Molecule Conductance of a π -Hybridized Tripodal Anchor while Maintaining Electronic Communication	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2006709-8pages
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202006709	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Grace Redhyka, Yuki Hanamura, Ryo Yamada, and Hirokazu Tada	4. 巻 60
2. 論文標題 Two-dimensional Binary-coded Coordinate Markers for Fabricating Nanodevices	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys	6. 最初と最後の頁 080702-3pages
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac138a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 大戸達彦、山田亮、冨田博一	4. 巻 76
2. 論文標題 単一分子ダイオードの設計と創製	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 68-74
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/butsuri.76.2_68	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Handayani Murni, Tanaka Hirofumi, Katayose Shinichi, Ohto Tatsuhiko, Chen Zhijin, Yamada Ryo, Tada Hirokazu, Ogawa Takuji	4. 巻 11
2. 論文標題 Three site molecular orbital controlled single-molecule rectifiers based on perpendicularly linked porphyrin imide dyads	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 22724 ~ 22729
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9NR07105A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohto Tatsuhiko, Inoue Takuya, Stewart Helen, Numai Yuichi, Aso Yoshio, Ie Yutaka, Yamada Ryo, Tada Hirokazu	4. 巻 10
2. 論文標題 Effects of cis-trans Conformation between Thiophene Rings on Conductance of Oligothiophenes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 5292 ~ 5296
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.9b02059	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tamaki Takashi, Minode Keigo, Numai Yuichi, Ohto Tatsuhiko, Yamada Ryo, Masai Hiroshi, Tada Hirokazu, Terao Jun	4. 巻 12
2. 論文標題 Mechanical switching of current-voltage characteristics in spiropyran single-molecule junctions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 7527 ~ 7531
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0NR00277A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ie Yutaka, Okamoto Yuji, Inoue Takuya, Tone Saori, Seo Takuji, Honda Yasushi, Tanaka Shoji, Lee See Kei, Ohto Tatsuhiko, Yamada Ryo, Tada Hirokazu, Aso Yoshio	4. 巻 10
2. 論文標題 Highly Planar and Completely Insulated Oligothiophenes: Effects of π -Conjugation on Hopping Charge Transport	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 3197 ~ 3204
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.9b00747	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ie Yutaka, Okamoto Yuji, Inoue Takuya, Seo Takuji, Ohto Tatsuhiko, Yamada Ryo, Tada Hirokazu, Aso Yoshio	4. 巻 143
2. 論文標題 Improving Intramolecular Hopping Charge Transport via Periodical Segmentation of π -Conjugation in a Molecule	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 599 ~ 603
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.0c10560	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohto Tatsuhiko, Tashiro Aya, Seo Takuji, Kawaguchi Nana, Numai Yuichi, Tokumoto Junpei, Yamaguchi Soichiro, Yamada Ryo, Tada Hirokazu, Aso Yoshio, Ie Yutaka	4. 巻 17
2. 論文標題 Single Molecule Conductance of a π -Hybridized Tripodal Anchor while Maintaining Electronic Communication	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2006709 ~ 2006709
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202006709	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ogawa Shiori, Chattopadhyay Swarup, Tanaka Yuya, Ohto Tatsuhiko, Tada Tomofumi, Tada Hirokazu, Fujii Shintaro, Nishino Tomoaki, Akita Munetaka	4. 巻 12
2. 論文標題 Control of dominant conduction orbitals by peripheral substituents in paddle-wheel diruthenium alkynyl molecular junctions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 10871 ~ 10877
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1SC02407H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Redhyka Grace Gita, Hanamura Yuki, Yamada Ryo, Tada Hirokazu	4. 巻 60
2. 論文標題 Two-dimensional binary-coded coordinate markers for fabricating nanodevices	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 080702 ~ 080702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac138a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Park Sohyun, Jo Jeong Woo, Jang Jiung, Ohto Tatsuhiko, Tada Hirokazu, Yoon Hyo Jae	4. 巻 22
2. 論文標題 Thermopower in Transition from Tunneling to Hopping	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 7682 ~ 7689
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.2c03083	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計47件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Grace Gita Redhyka, Yuki Hanamura, Ryo Yamada, Hirokazu Tada
2. 発表標題 Wiring Individual Carbon Nanotubes by Utilizing Simple Coordinate
3. 学会等名 第11回分子アーキテクトニクス研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 飛永諒介、大戸達彦、多田博一
2. 発表標題 金 - ベンゼンジチオール - 金架橋構造の破断過程における幾何学的解析
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 懸垂型電極のエレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成と熱伝導度の計測
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 エレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成と熱伝導度の温度依存性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 エレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成過程におけるゼーベック係数の計測
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Andika Rachmat、 Ryo Yamada、 Hirokazu Tada
2. 発表標題 Magnetoresistance in Au/1,6-hexanedithiol/Au junctions at room temperature
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Grace Gita Redhyka、 Ryo Nakanishi、 Ryo Yamada、 Masahiro Yamashita、 Hirokazu Tada
2. 発表標題 Magnetic Field Induced Shift of Coulomb Blockade Oscillation in Carbon Nanotube Quantum Dots Filled with Single-Molecule Magnets
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Yamada, T. Ohto, Y. Ie and H. Tada
2. 発表標題 Single-Molecule Conductance of a p-Hybridized Tripodal Anchor while Maintaining Electronic Communication
3. 学会等名 2nd Edition of Webinar on Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Rachmat Andika、 Ryo Yamada、 Hirokazu Tada
2. 発表標題 Magnetoresistance effect on single-molecule junction of Au/benzene-dithiol/Au at room temperature
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大戸達彦、山田亮、多田博一
2. 発表標題 分子軌道論を活用した多機能単一分子素子の創製
3. 学会等名 2021年 日本表面真空学会 学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Tada
2. 発表標題 Magnetoresistance in Single Molecules and Molecular Aggregates
3. 学会等名 Pacifichem 2021（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Grace Gita Redhyka、Ryo Yamada、Hirokazu Tada
2. 発表標題 Constriction induced thermo-electric voltage in a mesoscopic single metal wire
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松山 幸太郎、Thi-Mai Huong Duong、佐伯 凌、多田 博一
2. 発表標題 有機-無機ハイブリットペロブスカイト単結晶の熱伝導率測定
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 花村 友喜、山田 亮、多田 博一
2. 発表標題 単一分子接合の熱伝導率計測に向けたサブミクロンスケールの熱電対の開発
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飛永諒介, 大戸達彦, 多田博一
2. 発表標題 分子動力学法を用いた金ナノワイヤーの破断シミュレーションによる 2次元コンダクタンスヒストグラムの作成と接点構造による分類
3. 学会等名 第10回分子アーキテクニクス研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飛永 諒介、大戸 達彦、多田 博一
2. 発表標題 強束縛近似力場を用いた金ナノワイヤーの破断シミュレーション：引っ張り距離に対する電気伝導度ヒストグラムの計算
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Satria Rusdiputra, Thi-Mai Huong Duong, Kotaro Matsuyama, Hirokazu Tada
2. 発表標題 Seebeck Coefficient of Two Dimensional Hybrid Perovskites
3. 学会等名 第10回分子アーキテクニクス研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松山 幸太郎、Thi-Mai Huong Duong、佐伯 凌、多田博一
2. 発表標題 有機-無機ハロゲン化ペロブスカイト単結晶の熱輸送機構
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 ナノ接合の熱伝導度測定のための懸垂型素子の開発
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Thi-Mai Huong Duong, Kotaro Matsuyama, Satria Rusdiputra, Ryo Saeki and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Thermoelectric properties of single crystals of organic-inorganic hybrid perovskites
3. 学会等名 Joint 5th International Symposium on Frontiers in Materials Science & 3rd International Symposium on Nano-materials, Technology and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Song Toan Pham and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Resistive switching memory phenomena in CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite thin films
3. 学会等名 Joint 5th International Symposium on Frontiers in Materials Science & 3rd International Symposium on Nano-materials, Technology and Applications (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Thi Mai Huong Duong, Ryo Saeki, Kotaro Matsuyama, Satria Rusdiputra, Hirokazu Tada
2. 発表標題 Thermoelectric Properties of Lead Halide Perovskites Single Crystals
3. 学会等名 The 7th International Workshop on Nanotechnology and Application (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kotaro Matsuyama, Thi Mai Huong Duong, Hirokazu Tada
2. 発表標題 Thermal Conductivity of Organic-Inorganic Hybrid Perovskite Single Crystals
3. 学会等名 MRS Spring Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飛永諒介、大戸達彦、多田博一
2. 発表標題 金 - ベンゼンジチオール - 金架橋構造の破断過程における幾何学的解析
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 懸垂型電極のエレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成と熱伝導度の計測
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森山 紘平、Thi-Mai Huong Duong、大戸達彦、多田博一
2. 発表標題 第一原理計算を用いた有機無機ペロブスカイト派生一次元結晶における系統的有機カチオン変化に伴う電子状態の比較
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 エレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成と熱伝導度の温度依存性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 花村友喜、山田亮、多田博一
2. 発表標題 エレクトロマイグレーションによるナノ接合の形成過程におけるゼーベック係数の計測
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Andika Rachmat、 Ryo Yamada、 Hirokazu Tada
2. 発表標題 Magnetoresistance in Au/1,6-hexanedithiol/Au junctions at room temperature
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Grace Gita Redhyka、Ryo Nakanishi、Ryo Yamada、Masahiro Yamashita、Hirokazu Tada
2. 発表標題 Magnetic Field Induced Shift of Coulomb Blockade Oscillation in Carbon Nanotube Quantum Dots Filled with Single-Molecule Magnets
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畠田 博一
2. 発表標題 単分子接合のキャリア・スピン・熱輸送
3. 学会等名 日本化学会第99春季年会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 花村 友喜、山田 亮、畠田 博一
2. 発表標題 ナノ材料の熱物性の計測に向けたマイクロスケール熱電対の開発
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 沼井優一、井上拓也、美濃出圭悟、徳本潤平、山田 亮、大戸達彦、家裕隆、安蘇芳雄、畠田博一
2. 発表標題 三脚末端基を含む単分子接合のアンカー形状：電流-電圧特性による数値解析
3. 学会等名 第9回分子アーキテクトニクス研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Helen Stewart, 沼井優一, 井上拓也, 山田 亮, 大戸達彦, 家裕隆, 安蘇芳雄, 多田博一
2. 発表標題 オリゴチフェン単分子接合の電気伝導度
3. 学会等名 第9回分子アーキテクトニクス研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大戸達彦, 岡本祐治, 井上拓也, 利根紗織, 瀬尾卓司, 家 裕隆, 本田 康, 田中彰治, 沼井優一, Helen Stewart, See Kei Lee, 山田 亮, 安蘇芳雄, 多田博一
2. 発表標題 被覆型長鎖オリゴチフェンの電気伝導度の理論計算
3. 学会等名 第9回分子アーキテクトニクス研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 花村 友喜, Redhyka Grace, 山田 亮, 多田 博一
2. 発表標題 ナノ材料の電気特性計測のための二次元バーコード座標マーカ基板の作製
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryosuke Tobinaga, Tatsuhiko Ohto, and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Classical molecular dynamics simulations of Au break junctions
3. 学会等名 International Symposium on Emerging Materials 2019, Hanoi (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Hanamura, Ryo Yamada, Hirokazu Tada
2. 発表標題 Preparation of micro-thermocouples for thermal transport measurements of nano-materials
3. 学会等名 International Symposium on Emerging Materials 2019, Hanoi (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jun Takigawa, Yuki Hanamura, Kotaro Matsuyama and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Membrane-based AC calorimetry for thermal conductivity measurement
3. 学会等名 International Symposium on Emerging Materials 2019, Hanoi (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Hanamura, Grace Gita Redhyka, Ryo Yamada, and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Preparation of 2D Bar Code Labeled Substrates for Nanowire Devices
3. 学会等名 The 2018 MRS Fall Meeting, Boston (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Ryo Yamada, Tatsuhiko Ohto and Hirokazu Tada
2. 発表標題 Current and spin transport in single molecule junctions
3. 学会等名 The 9th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology, Ninh Binh, Vietnam (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hirokazu Tada
2. 発表標題 Carrier and Spin Transport in Single-molecule Diodes
3. 学会等名 International Conference on Emerging Advanced Nanomaterials (ICEAN) 2018, Newcastle (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大戸 達彦、Sohyun Park、Jeong Woo Jo、Jiung Jang、Hyo Jae Yoon、多田 博一
2. 発表標題 トンネル-ホッピング共存領域における単分子デバイスの熱起電力を記述する理論モデルの構築
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 本宮 遼河、大戸 達彦、山田 亮、多田 博一、谷 洋介
2. 発表標題 電気伝導度が有効共役長に依存しない単分子ワイヤ
3. 学会等名 第83回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 花村 友喜、山田 亮、多田 博一
2. 発表標題 懸架膜型素子を利用した金ナノギャップ電極間の熱輸送の近接場効果の計測
3. 学会等名 第83回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大戸達彦、山田亮、多田博一
2. 発表標題 分子軌道論を活用した多機能単一分子素子の創製
3. 学会等名 日本表面真空学会 学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Yamada, T. Ohto, Y. Ie and H. Tada
2. 発表標題 Single-Molecule Conductance of a p-Hybridized Tripodal Anchor while Maintaining Electronic Communication
3. 学会等名 2nd Edition of Webinar on Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>大阪大学 大学院基礎工学研究科 物質創成専攻 未来物質領域 多田研究室 http://moelectronics.jp 大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻未来物質領域多田研究室 http://moelectronics.jp 大阪大学 大学院基礎工学研究科 物質創成専攻 未来物質領域 多田研究室 http://www.moelectronics.jp</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	山田 亮 (Yamada Ryo) (20343741)	大阪大学・基礎工学研究科・准教授 (14401)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	大戸 達彦 (Ohto Tatsuhiko) (90717761)	大阪大学・基礎工学研究科・助教 (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
韓国	Korea University,			