

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月12日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：21310086

研究課題名（和文）単一分子エレクトロニクスの創成に向けて - 理論からの提言

研究課題名（英文）Towards realization of single molecule electronics- Proposal from theory

研究代表者

上羽 弘 (UEBA HIROMU)

富山大学・大学院理工学研究部（工学）・教授

研究者番号：70019214

研究成果の概要（和文）：（単一）分子エレクトロニクスの創成に向けて「理論からの提言」にふさわしい当初の研究計画を上回る成果を得た。

- (1) 一個の水分子と数個の水酸基分子からなる分子鎖で水素原子（プロトン）が走査トンネル顕微鏡からのトンネル電子によるO-H伸縮モードの励起で起こることを見出した実験グループとともにその素過程の解明を行った。
- (2) 水酸基ダイマーのフリップ運動による電流-電圧特性において一つのOHをODで置換すると負性抵抗が出現し、スイッチング機能が発現することを高コンダクタンスと低コンダクタンス状態の可逆的な遷移によるモデルで説明することに成功した。
- (3) 振動励起による単一分子の運動や反応の電圧依存性を解析する一般公式の構築に成功し、2002年にサイエンスで実験グループとともに報告したPd表面に吸着したCO分子の表面ホッピングの実験結果を再現することで、最も鍵となる物理量であるC-O伸縮振動と反応座標モードである束縛並進モードの非調和結合定数を初めて決定できた。
- (4) 最近世界的に精力的な研究がおこなわれている”グラフェン”を取り上げ、その熱伝導の理論を世界に先駆けて構築できた。

研究成果の概要（英文）：

- (1) Elementary processes of H-atom (proton) relay reaction in water-hydroxyl chain was clarified. We found that the shared O-H stretch mode excited by tunneling electrons from a tip of a scanning tunneling microscope plays an indispensable role inducing sequential H-atom relay reaction along the chain.
- (2) We propose a model to describe two-level fluctuations and current-voltage characteristics of nanoscale systems that undergo vibrationally induced switching. The parameters of the model are based on comprehensive density functional calculations of the system's vibrational properties. Thus developed theory has been successfully applied to explain the experimental results associated with a flip motion of hydroxyl dimer on Cu(110). We also explained why the isotopic exchange of H with D leads an appearance of the negative differential resistance of the current-voltage characteristics.
- (3) We have formulated a general and versatile formula of a vibrationally mediated reaction yield of single molecules on metal surfaces.
- (4) We propose a model which allows us to calculate a thermal conductivity of graphene on amorphous SiO₂.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2010年度	4,900,000	1,470,000	6,300,000
2011年度	3,700,000	1,110,000	4,810,000
2012年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学・マイクロ・ナノデバイス

キーワード：分子エレクトロニクス、単一分子、スイッチング素子、負性抵抗、走査トンネル顕微鏡、振動励起、熱伝導

1. 研究開始当初の背景

多彩な高速半導体デバイスを支える基本的な動作原理は Esaki が Ge ダイオードの PN 接合で始めて観測した電子のトンネル効果による NDR を利用したスイッチング機能であるが、今日では様々な先駆的な研究成果が数多く報告されている。量子ドットを代表とする多彩なナノ構造の発現する量子効果を利用した“量子効果デバイス（例えば、クーロン閉塞を利用した単一電子トランジスタ等）に加えて、電極に挟まれた単一分子や少数個の分子から構成されるナノリンク分子を基本構成要素とする”分子エレクトロニクスの設計・開発”に向けた基礎研究が世界的に精力的に進められ、クーロン閉塞[2]、単一電子トランジスタ、負性微分抵抗(NDR)、スイッチング素子などの先駆的研究が報告されている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、分子の特性を生かした新しい動作原理に基づく分子エレクトロニクスの創成に向けて、次の3つの課題を中心に理論からの提言を行うことである。

1) 単一分子の振動励起による反応の解析理論の確立

3) 単一分子の負性微分抵抗(NDR)特性を含めた

新たなスイッチング機構の探索

4) 単一分子の熱伝導

3. 研究の方法

対象とする興味ある現象の素過程の本質を失うことなく、単純化模型による解析的な理論構築を行うとともに、海外研究者との共同研究で単一分子の吸着構造最適化、振動モードの計算などを行う。

4. 研究成果

上記研究成果の概要および下記の発表論文を参照。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件)

How Vibrationally Assisted Tunneling with STM Affects the Motions and Reactions of Single Adsorbates
S. G. Tikhodeev and H. Ueba, Physical Review Letters **102**, 246101 (2009)

Lateral hopping of CO molecules on Pt(111) surface by femtosecond laser pulses
M. Hayashi, T. Ootsuka, M. Paulsson, B.N.J. Persson, and H. Ueba, Physical Review B **80**, 245409 (2009)

Inelastic tunneling spectroscopy of alkanethiol molecules: High-resolution spectroscopy and theoretical simulations
N. Okabayashi, M. Paulsson, H. Ueba, Y. Konda, T. Komeda
Physical Review Letters **104**, 077801(2010)

Comment ‘Diffusion and dimer formation of CO molecules induced by femtosecond laser pulses’
H. Ueba, B.N.J. Persson
Physical Review Letters **104**, 239601 (2010)

Site selective inelastic electron tunneling spectroscopy probed by isotope labeling
N. Okabayashi, M. Paulsson, H. Ueba, Y. Konda, and T. Komeda

Nano Letters. **10**, 2950 (2010.)

Insight into action spectroscopy for single molecule motion and reactions through inelastic electron tunneling

K. Motobayashi, Y. Kim, H. Ueba, and M. Kawai

Phys. Rev. Lett. **105**, 076101(2010)

Lateral hopping of CO on Cu(111) induced by femtosecond laser pulses

H. Ueba, Y. Ootsuka, M. Paulsson, B.N.J. Persson

Physical Review B **82**, 121411(R) (2010)

Heat transfer between weakly coupled systems: Graphene on α -SiO₂

B.N.J. Persson and H. Ueba

Europhysics Letters, **91**, 56001(2010)

Heat transfer between graphene and amorphous SiO₂

B.N.J. Persson, H. Ueba

Journal of Physics: Condensed Matter **22**, 462201 (2010)

Phononic heat transfer across an interface: thermal boundary resistance

B.N. J. Persson, A. I. Volokitin, H. Ueba

Journal of Physics: Condensed Matter **23**, 045009 (2011)

Vibrationally induced flip motion of a hydroxyl dimer on Cu(110)

Y. Ootsuka, T. Frederiksen, H. Ueba, M. Paulsson

Physical Review B **84**, 193403 (2011)

H-atom relay reactions in real space

T. Kumagai, A. Shiotari, H. Okuyama, S. Hatta, T. Aruga, I. Hamada, T. Frederiksen, H. Ueba

Nature Materials **11**, 167 (2012)

Modifying current-voltage characteristics of a single molecule junction by isotope substitution: OHOD dimer on Cu(110)

H. Okuyama, A. Shiotari, T. Kumagai, S. Hatta, T. Aruga, Y. Ootsuka, M. Paulsson, H. Ueba

Physical Review B **85**, 205424 (2012)

Analysis of lateral hopping of a single CO molecule on Pd(110)

H. Ueba

Physical Review B **86**, 035440 (2012)

Lateral hopping and desorption of a single CO molecule on a Cu(110) surface induced by femtosecond laser pulses

H. Ueba and Y. Ootsuka

Physical Review B **87**, 205403 (2013)

[学会発表] (計 1 件)

“Single molecule reactions in real space and in real time” in International Workshop on “Controlled Atomic Dynamics on Solid Surfaces: Atom and Molecular Manipulation”(Invited talk) , San Sebastian, Spain, May 16, 2013.

[図書] (計 2 件)

Time-Resolved Investigation of Electronically Induced Diffusion Processes J. Guedde, M. Bonn, H. Ueba, and U. Hofer

Chapter 18 in "Dynamics at Solid State Surface and Interfaces Vol. 1: Current Developments" Edited by U. Bovensiepen, H. Petek, M. Wolf, 2011 WILEY-VCH Verlag Gmb H & Co. Weinheim

Inelastic Tunneling Current-Driven

Motions of Single Adsorbates in

“Current-driven phenomena in nanoelectronics”, edited by T. Seidemann, Pan Stanford Publishing Ltd, 2012

[産業財産権]

○出願状況 (計 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年月日 :

国内外の別 :

○取得状況 (計 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

取得年月日 :

国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上羽 弘 (UEBA HIROMU)

富山大学・大学院理工学研究部 (工学)・教授

研究者番号 : 70019214

(2) 研究分担者

()

研究者番号 :

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :