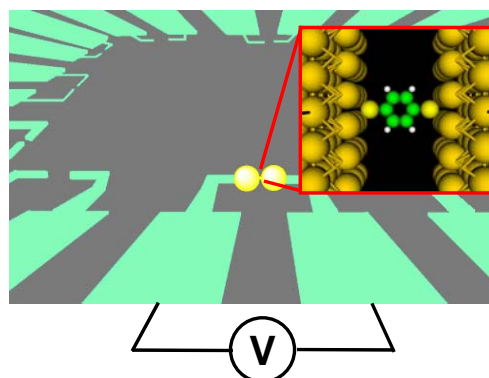


ディビジョン番号	3
ディビジョン名	理論化学・情報化学・計算化学

大項目	1. 理論化学
中項目	1-1. 電子状態
小項目	1-1-17. 分子素子

概要（200字以内）

分子素子構築の一環として、様々な分子について電極/単一分子/電極というナノ接合体の電気特性計測がなされている。しかし、その計測データの再現性は不十分で、分子素子の実現には至っていない。そこで、単一分子の量子輸送特性の理解に向けて、非平衡状態における電子状態計算が行われており、多くの知見が得られてきている。非平衡電子状態計算が導き出す量子輸送現象の根本理解が今後の分子素子実現の鍵を握っている。

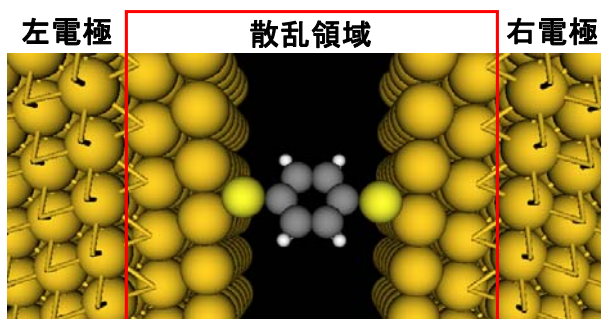


電極/単一分子/電極ナノ接合体によって構成される電子素子の想像図

現状と最前線

単一の分子をスイッチ・メモリ・導電性ワイヤ等の電子素子として利用する分子素子の可能性が指摘され、これまでに様々な分子について電極/単一分子/電極というナノ接合体の電気特性計測がなされている。しかしながら、分子素子実現への道のりは険しく、多くの課題が未解決のままである。その一つに電気特性計測によって得られる単一分子伝導特性の再現性の低さ（実験グループによって異なる計測データ）という問題がある。これに関して、非平衡電子状態計算が導いた結果は分子吸着サイトと伝導特性の相関であり、同計算手法は今後も分子素子実現に向けての重要な研究手段の一つとなるであろう。

では右図のような接合体に電圧が印加された非平衡状態における電子状態計算法を紹介する。これまで多くの成功を取っている計算手法は大きく2つに分けるとグリーン関数法と波動関数法である[1]。どちらの手法においても計算対象となる系を左電極/散乱領域/右電極の



電子状態計算を行う際の電極/単一分子/電極ナノ接合体の領域分割の例

3つの領域に分割する。グリーン関数法では電極のグリーン関数を求めた後、電極との相互作用を自己エネルギーにより取り込み、両電極に印加される電圧の影響を含んだ非平衡グリーン関数を計算する。この非平衡グリーン関数から求まる電子密度を用い自己無撞着計算が実行される。一方、波動関数法では電極の波動関数を求めた後、散乱領域の波動関数と電極の波動関数とを印加電圧も考慮した上でなめらかに接続する条件のもとに自己無撞着計算が実行される。どちらの手法も、得られる非平衡電子状態は同一のものであり、それゆえ単一分子の量子輸送特性としても同一の結果が得られる。

これまで、上記両手法において密度汎関数法等の平均場近似を用いた計算が多く行われており、同近似の枠内における計算値の信頼性は高まってきているが、実験値との定量的比較においてはまだ不十分であり、電子相関効果、非弾性散乱効果、有限温度効果等の取り込みが今後の重要な課題とされている。

[参考文献]

[1] G. Cuniberti, G. Fagas, and K. Richter, *Introducing Molecular Electronics*, Letc. Notes Phys. 680; Springer, Berlin Heidelberg, 2005.

将来予測と方向性

- ・ 5年後までに解決・実現が望まれる課題
 - 定常電流の計算値と実験値との定量的比較の行える計算手法の開発（1. 電子相関効果の取り込み、2. 非弾性散乱効果の取り込み、3. 有限温度効果の取り込み、4. 溶媒効果の取り込み）（注：1と2に関しては既に複数のグループによって開発が進められている）
 - 非定常電流（電流の動的ゆらぎ）に関する理論、計算手法の開発
- ・ 10年後までに解決・実現が望まれる課題
 - 定常電流計算法の高速化（非平衡開放系電子状態の計算は分子や結晶の計算よりも膨大な計算時間を必要とするので、何らかの高速な計算アルゴリズムの開発が望まれる。電子相関効果、非弾性散乱効果等の計算に関してもやはり、高速な計算アルゴリズムの開発が必要である。）
 - 非定常電流計算における高効率な計算手法の開発

キーワード

・分子素子 ・分子デバイス ・量子輸送 ・非平衡グリーン関数 ・散乱波

(執筆者： 多田 朋史)