

金属表面上のC<sub>60</sub>に関するファン・デル・ワールス密度汎関数を用いた研究

A van der Waals density functional study of C<sub>60</sub> on metal surfaces

濱田幾太郎

Ikutaro Hamada

東北大学原子分子材料科学高等研究機構

WPI-Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577

フラーレン (C<sub>60</sub>) はJoachimとGimzewskiによる単一分子増幅器[1]やParkらによる単一分子トランジスター[2]などの報告により、分子エレクトロニクスデバイスの構成要素として注目を集めており、単一C<sub>60</sub> トランジスターにおいてクーロンブロッケード、フランク・コンドンブロッケード、近藤効果など興味深い現象が数多く報告されている。このような単一分子トランジスターにおける現象を理解するためには電極表面とC<sub>60</sub>の界面構造と界面電子状態の知見が不可欠である。本研究では金属表面上の分子吸着において重要なファン・デル・ワールス (vdW) 力を正確に記述できるファン・デル・ワールス密度汎関数[3,4]を用いて、金 (111) 表面上に吸着したC<sub>60</sub>の吸着構造と電子状態のシミュレーションを行った。一般にC<sub>60</sub>は金表面に物理吸着していると考えられているが、我々のシミュレーションにより、vdW力により吸着したC<sub>60</sub>の最低非占有分子軌道と基板波動関数が混成を起し、弱い共有結合様の界面準位が形成されていることが明らかになった[5]。さらにゲート電圧印加により帯電した表面上のC<sub>60</sub>の計算方法を提案し、金電極上のC<sub>60</sub>に適用した[6]。その結果、負に帯電したC<sub>60</sub>は斥力的相互作用により中性のものに比べて電極表面から離れることが分かった。これは帯電した分子が鏡像力により金属表面に近づくという直感的な描像と相反するものである。電子状態の解析の結果、負に帯電したC<sub>60</sub>と金属表面の斥力的相互作用は、過剰電子が金属とC<sub>60</sub>で構成される界面状態の非結合性軌道を部分的に占有することによるパウリ反発に由来することが分かった。この結果は物理吸着だと考えられている金表面上のC<sub>60</sub>の吸着状態においても軌道混成の効果が重要であることを示している。

[1] C. Joachim and J. K. Gimzewski, Chem. Phys. Lett. **265**, 353-357 (1997).

[2] H. Park, J. Park, A. K. Lim, E. H. Anderson, A. P. Allvisatos, P. L. McEuen, Nature **407**, 57 (2000).

[3] M. Dion, H. Rydberg, E. Schröder, D. C. Langreth, and B. I. Lundqvist, Phys. Rev. Lett. **92**, 246401 (2004).

[4] I. Hamada and M. Otani, Phys. Rev. B **82**, 153412 (2010).

[5] I. Hamada and M. Tsukada, Phys. Rev. B **83**, 245437 (2011).

[6] I. Hamada, M. Araidai, and M. Tsukada, Phys. Rev. B Rapid Commun. (accepted).