

企画特集 10⁻⁹ INNOVATION の最先端 ~ Life & Green Nanotechnology が培う新技術 ~ 本企画特集は,NanotechJapan Bulletin と nano tech のコラボレーション企画です.

☞ <第 37 回>

ナノ粒子・分子デバイスによるボトムアップエレクトロニクスへの挑戦

東京工業大学 応用セラミックス研究所 教授 真島 豊氏に聞く

集積回路は微細加工技術の進歩により急速な進化を遂げ,今 日のエレクトロニクスを築き,情報化に基づく社会・経済の発 展の基盤となっている.しかし,その微細加工技術が次第に限 界に近づきつつある中で,材料を加工して微細化するトップダ ウン的手法でなく,物質の最小単位である原子や,構造が定義 されている分子からエレクトロニクスを構成するというボトム アップエレクトロニクスが注目されており,それを実現する確 かな手法の模索が続いている.そうした中で,東京工業大学 応用セラミックス研究所の教授 真島 豊氏は独自のナノ粒子・ 分子デバイス構成技術の提案で数々の成果を挙げ,論理機能や メモリー機能などエレクトロニクスの基本機能を確認し,ボト ムアップエレクトロニクスの実現へ挑戦している.今回,横浜 にある同大学のすずかけ台キャンパスの研究室に真島氏を訪 ね,その研究の要旨を伺った.



東京工業大学 応用セラミックス研究所 教授 真島 豊氏

.



研究の想いと研究展開の原点

真島氏は「ナノスケールのデバイスを実用的観点で実 現したいと思っている.ただし,従来の半導体材料を使っ たトップダウン手法ではなく,ナノ粒子,単分子に基づ くデバイスを基本としたボトムアップ手法によってであ る.」と語った.国際半導体技術ロードマップ専門委員 会が公表している Si LSI の微細化動向に基づく将来予測 は,2023年には最小加工寸法(メモリーのハーフピッチ) 8nmの微細加工技術で LSI を作ることになっている.例 えばフラッシュメモリーを考えても,現状の技術による 製造コストは高く,工業的に成り立たなくなると考えら れる.そこで新しい原理に基づくデバイスを用いたメモ リー LSI が候補にあがっている.これには現在,相変化 型とスピン活用型,および分子型メモリーの3種がある. 真島氏はこのうち,分子型メモリーを取り上げて,その 実現に資する研究をやりたいと思っていると語った.

真島氏は,個々の分子の挙動をナノレベルで評価し, その際の分子に出入りする個々の電子の動きを計測する という,計測評価技術の追求と分子機能評価の両方を並 行させることを研究推進の基盤に置いて新技術分野の開 拓に挑戦している.こうした研究の進め方は学生時代の 水面上の単分子膜の変位電流測定[1]に始まり,STM(走 査型トンネル顕微鏡)の探針(プローブ)を振動させる 走査型振動プローブによるシリコンの電荷蓄積,空乏, 極性反転などの内部状況の局所的検出[2]に発展し,ノン コンタクト原子間力スペクトロスコピーによる単一ナノ 粒子の単一電子検出[3]に至った.

プローブ顕微鏡を駆使して,得意とする電気的特性測定 技術を使う研究を進めてきたが,それが STM を活用する 走査トンネル・スペクトロスコピー (STS) によるナノ粒 子や単一分子の評価,デバイスの開発につながっている.



最近,単一分子等の測定に STM ブレークジャンクショ ンという方法が広く使われている.この方法は溶液中に 置かれた単一分子に,一定電圧を加えた探針を結合させ 釣り上げた時の距離の変化に対応する電流を測り,分子 のコンダクタンスなどを評価する.これに対して STS は, 探針の位置を固定して,電圧を変化させて電流の変化を 測る.即ちバイアス電圧に相当するエネルギーを変化さ せることでスペクトロスコピーがとれ,測定物の物性や 機能が分かるという特長がある.

ここで単電子トランジスタを想定した金のナノ粒子の 評価例を紹介する [4]. 図1に STS 測定の探針と金の基板 上に置かれたナノ粒子,および,それが形成する二重バ リアトンネル接合の等価電子回路を示す.

金粒子は表面にアルカンチオール (Alkanethiol) とい う鎖状の分子を保護基として纏わせている.アルカンは CH₃(CH₂)ⁿで,メチレン基 (CH₂)が鎖状に繋がりアルカ ン鎖を形成している.その一端に硫黄 (S)を含む結合基 チオール (SH) が接続されているのがアルカンチオール である.Sは金属に対する親和力が強く,安定な化学結合 を形成する.金粒子にはこのSを介してアルカンチオー ルが結合している.図に示すように,金の基板と上部に



図 1 STS 測定の探針とナノ粒子,および形成される等価電子回路 (出典: Phys. Rev. B. 72, 205441 (2005) [4])

ある探針との間に金粒子1個を置き,探針を金粒子に接 近させて電圧をかけて行くと,探針の先端の原子から, クーロンブロッケードにより1個の電子だけがナノ粒子 に載ることができトンネル電流として流れる.更に電圧 を上げて行くと追加して1個ずつ逐次電子が流れ,クー ロンステアケースと呼ぶ階段状の電流-電圧特性が得られ る.

図1の右の等価回路で, R₁はトンネル抵抗, R₂はナノ 粒子と基板の間のアルカンチオールの一本の鎖のトンネ ル抵抗である.測定条件を変えて測定したクーロンステ アケースから R₁ と R₂を抽出した結果を図2に示す.横 軸のセットポイント電流は測定開始時に設定した電流で ある.

ここで、○はアルカンチオールの鎖の長さがアルカン 8 個の場合,●は6 個の場合,□はアルカン8 個の場合 で探針がよりナノ粒子に近づいてアルカンチオールの先 端より内側に入った場合である. 図から分かることは, R₁はトンネル電流で決まりアルカンチオールの鎖の長さ には関係が無く、探針を近づけた場合は桁数が変わるほ ど大きく変わる.一方, R2はアルカンチオール一本の鎖 の抵抗であり,種々の条件で安定に一定に保たれている. そして、鎖の長さの違い、即ち、アルカン2個分の違い が約1桁の抵抗値の差として現れている.この実験結果 は、STSの探針の先端の1個の原子から流れるトンネル 電流は,一本の分子鎖だけを流れ,また,分子の抵抗は, 安定した、ばらつきの少ないものであることを示してい る.「構造の分かった分子でボトムアップにデバイスを組 みあげることは,結構素性の良い技術に成り得ることを 示唆している.」と真島氏は語った.



図 2 STS によるナノ粒子測定(図 1 の構成)データ例.(a)は図 1 の R₁,(b)は図 1 の R₂の測定値. (出典: Phys. Rev. B. 72, 205441 (2005) [4])



3.1 ナノ粒子単電子トランジスタ構築の戦略

前章の STS による単一ナノ粒子評価の経験を踏まえて, 単電子トランジスタの構築を次のような化学的プロセス を主役として組み上げることを考えた.

目標とするトランジスタ構造は、シリコン(Si) 基板 表面の酸化膜(SiO₂)上に、図3の模式図で平面構造を 示すように,ソース,ドレイン,および二つのゲート電 極層を形成し,ソースとドレインの間の数 nm の金 (Au) のナノ粒子を挿入する.これによりソース,ドレイン間 に前章と同じクーロンブロッケード現象を伴うトンネル 効果による電子のやりとりが行われるようにする.

この構造実現の戦略としては,

(1) 電極形成に当たって, 電極の母構造は電子線リソ グラフィーで作るが, その後は, 無電解メッキを行 い, 極狭の空隙を無電解メッキの自己停止機能で 3nm の電極間隙を実現する.

(2) 金などの金属表面にアルカンチオールを自己組織





図 3 ナノ粒子単電子トランジスタの構造 (出典: Jpn. J. Appl. Phys. 48, 04C180 (2009) [6])



図 4 アルカンチオール自己組織化単分子膜(SAM)(写真左)にアルカンジチオールを混在させ(写真中), 金ナノ粒子と化学結合させた(写真右). アルカンチオールはメチレン基 8 個,アルカンジチオールは 10 基の例. (出典: Jpn. J. Appl. Phys. 48, 04C180 (2009) [6])

化させ,単分子膜で表面を被覆する.この自己組織 化単分子膜は,撥水性があり,汚れを防ぎ,表面を 安定に保つ.

(3)上記自己組織化単分子膜のアルカンチオールの中 に、少数のアルカンジチオール(Alkanedithiol)を 混在させる.アルカンジチオールは、アルカン鎖の 両端にSを含む結合基チオールを配置したもので、 アルカンチオール単分子膜の所々にSが顔をのぞか せる形となる.

これにより,金ナノ粒子の電極との接続は接触による 物理吸着から安定した化学結合となる(図4).なお,ア ルカンジチオールを混入させるプロセスは,アルカンジ チオールの溶液にアルカンチオール自己組織化単分子膜 を被覆した電極を浸すと平衡状態になっていて,アルカ ンチオールの一部がアルカンジチオールに置換わること で実現する.

最初の電子線リソグラフィーで電極の母構造を作ると ころを除けば、後は、化学的組み立てで、極めて安定な 単電子トランジスタが出来ることになる.

3.2 無電解メッキの自己停止機能によるナノ ギャップ電極の形成

ナノギャップ電極の形成技術は単電子トランジスタだ けでなく、今後分子デバイスにおいても基盤となる技術 で、研究のプラットフォームと考えている.

電極の形成は, 先ず, Si の表面の SiO₂ 膜上に Ti (2nm) と Au (10nm)を蒸着し,電子線リソグラフィー(EBL) で図5左写真に示す骨格となるパターンを作る. 続いて 無電解金メッキ(ELGP)で母構造を被覆し,図5右写真 の電極パターンが得られる. このメッキの過程で,自己 停止機能が働いて,数 nm の微細ギャップが形成される という画期的な特徴がある.

この画期的な無電解メッキを始めて見つけたのは 10 年 位前で,2007 年の Applied Physics Letters に発表した [7]. 当時はばらつきも多く,ギャップ幅 3nm 以下が 46% 位 の歩留りであった.その後改良を続け,5nm 以下で 90% を実現している,製作法は単純安全なヨウ素(I)無電解 金メッキである.ヨウドチンキに金箔を溶かし,還元剤



図 5 写真左は電子線リソグラフィーで形成した金電極パターン,写真右はその上に無電解メッキを被せたパターン. 電極ギャップは,写真左 12nm,写真右 3nm.



図6 無電解メッキで寸止めの原理





としてビタミンC(アスコルビン酸 C₆H₈O₆)を加え,加 熱してから上澄液を取り出し,水で 1000 倍に薄めて試 料を入れるだけであると云う.メッキ速度を落として滑 らかな表面を得ている.では,なぜ寸止めができるのか.

金電極表面にアスコルビン酸と金の1価のプラスイオ ンが存在する状態の時,アスコルビン酸が還元剤である ので表面に電子のある状態が形成され,金電極の表面自 己触媒反応により,金イオンが還元されて金となりメッ キされる.ところが,図6の模式断面図に示すように, 電極のギャップの部分が狭くなるとヘルムホルツ層(電 極表面に吸着した溶媒や溶質分子,溶質イオンの層)も あり,金が入って行けない.従ってギャップが狭くなる とメッキが出来なくなる.即ち拡散律速で寸止め状態が 実現する.図7は,ギャップ長形成実験の例である.

さらに、界面活性剤分子を保護基として用いて、交互 嵌合型分子定規無電解金メッキを行うことで、ギャッ プ長を制御できることを見いだした [9][10]. 界面活性 剤としてアルキルトリメチルアンモニウムブロマイド (Alkyltrimethylammonium Bromide (Cn-TAB))を用い、 アルキル鎖長 n を変えることで分子の長さを変えると、 ちょうどアルキル鎖長のところでメッキが止まる. この 電極の表面を覆っているアルキルトリメチルアンモニウ ムブロマイドは金との結合が弱いので、アルカンチオー ルの溶液に浸けると、アルカンチオールに置き換わって しまう. 従って、前節で述べた単電子トランジスタの工 程にそのまま移ることができる. このように無電解メッキによる電極形成技術でナノ領 域の寸法を制御できことが分かったので、このメッキ技 術は、分子デバイスの展開におけるプラットフォームと 位置づけていると真島氏は語った.

3.3 ナノ粒子単電子トランジスタの論理機能を 確認

3.1節の図3に示したナノ粒子単電子トランジスタを 動作させた測定例を図8に示す[11].写真の矢印のとこ ろに直径 5.2nm のナノ粒子が入っている. 右上のグラフ はソース,ドレイン間の電流で,ゲート1に電圧を加え た場合と加えない場合である. 左下の図はドレイン電圧 V_dとゲート1 電圧 V_{g1} を縦軸, 横軸とし, 色はソース・ ドレイン間電流値 I を表している. V_d=0の付近の横方向 に繋がる紫色の電流の流れない領域はクーロンダイヤモ ンドと云われる菱形が繋がった形をしている. この領域 はクーロンブロッケード現象で電流が流れない. 図右下 の色が電流の微分値(dI/dV_d)を表すグラフではクーロン ダイヤモンドがより明瞭に見えている. この菱形の接点 のところは余剰電子の存在確率 50% で電流が流れること になる. V_dの値を菱形の頂点より低く設定して、V_gを横 に掃引すれば、電流Iはオンオフを繰り返す単電子トラン ジスタの独特のクーロンオシレーション特性が得られる. このように単電子トランジスタの基本機能を果たすこと が確認された.



図 8 化学的に組み上げた単電子トランジスタの動作確認 (出典: Appl. Phys. Lett. 100, 033101 (2012) [11])

図9にこのデバイスで各種論理演算機能を実行する例 として、排他論理和(exclusive OR)について示す[12]. 図左上の等高線図は、ゲート1に加える入力Aの電圧 V_{g1} を横軸にし、ゲート2に加える入力Bの電圧 V_{g2}を縦軸 にしたグラフに、V_dを30mVとした時のソース・ドレイ ン間の電流値を色で表現している.赤は電流がピークで、 紫はゼロである.このグラフに白線で描かれた四角の4 つの角をゲート1とゲート2の入力論理0と入力論理1 の組み合わせに対応させれば、図上に記載されている論 理値表のような出力が得られ、exclusive ORの論理演算 が実現する.図右上は、等高線をV_{g2}=0.5V で横断したと きの電流値の変化を示しており,左上図中の横断線上で の○と●に対応する点が記入されている.図左下は,4つ の角におけるソース・ドレイン間の電流 - 電圧特性を示 している.また,図右下は,A,Bの入力電圧波形(青線) と出力電流波形(赤線)である.

図10は否定排他論理和(exclusive NOR)を実行する際の二つのゲートの論理0と1の入力電圧を示している.この論理入力により, exclusive NORの機能を確認している.

また,同様に論理和 (OR), 論理積 (AND) およびそれ らの否定 (NOR, NAND) の論理演算機能の確認もできて いる.



図 9 論理演算機能の排他論理和(exclusive OR)の実行 (出典: ACS Nano 5, 2798 (2012) [12])



図 10 否定排他論理和(exclusive NOR)の実現 (出典:ACS Nano 5, 2798 (2012) [12])

3.4 ナノ粒子の蓄積エネルギーの設計と常温動作 の検討

化学的にボトムアップで組み上げるナノ粒子単電子ト ランジスタが、トップダウン的に作製する単電子トラン ジスタに比べ、より容易に精度よく微細化でき、安定で あり、構造制御技術も整ってきた.実験検討の幅も広が りつつある.その一つとして常温動作の可能性について も検討している.

本研究では金粒子を化学合成で粒径を精度よく製作で きることが特徴の一つである.この金ナノ粒子は共同研 究している京都大学教授 寺西 利治氏のところで合成し ている.

粒径を 6.2nm, 5nm, 3nm と縮小した場合のナノ粒子 のキャパシタンスの縮小とその逆数に比例するチャージ ングエネルギーの増加を求めたのが図 11 である [13]. こ れまで説明した特性測定は全て 9K かそれ以下の低温で 行っているが,常温で動作できるようにしたい. そのた めには,チャージングエネルギーを電子の常温での熱エ ネルギーより大きくする必要がある.現在,160K から 200K まで動作確認が出来るようになってきている. あと 一息で常温で安定に動作するナノ粒子単電子トランジス タが出来ると真島氏は語る.



「分子デバイスの開発を目的としているが、そのために は分子個々の構造・物性・機能を評価する必要があり、 その手段として STS が重要であるとの考えで研究を進め ている.」と真島氏は語る.この章では、他の大学の先生 と共同研究で進めている分子デバイス技術創出のための STS を活用した研究例を紹介する.

4.1 金属内包フラーレンのスイッチング機能の発見

この発見は、フラーレンの研究を行っている名古屋大 学教授 篠原 久典氏との共同研究の成果である. 直径 1nmのフラーレン殻には、テルビウム原子1個を内包さ せ、その固定位置は殻の中心からずれている. テルビウ ムは+3価、フラーレン殻は-3価に帯電しており、双極 子モーメントが生じる. フラーレン殻を回転させて、双 極子の向きを制御できれば単一分子スイッチが実現でき る. この制御を STM で行いその機能を確認した.

図12の右図は基板とSTMの探針との間にフラーレン 殻が置かれ,探針からの電界によって双極子が反転する 様子を示している[14]. この際,金の基板表面に,前述 のアルカンチオール単分子膜を形成しておき,フラーレ ン殻の回転を可能としている.図12の左図は横軸の探針 電圧を振った時の,縦軸のトンネル電流と双極子の向き を示しており,スイッチング現象を説明している.なお, この実験は13Kの温度で行っている.

4.2 分子共鳴トンネル現象の確認 [15]

この研究は京都大学教授 大須 賀篤弘氏との共同研究 で行った.この実験は分子の持つ電子エネルギー準位を 活用した共鳴トンネルによる電子の分子間移動を確認し たものである.

π共役系分子(原子間で電子のp軌道が重なり原子 グループ内に非局在化電子を持つ)のサブポルフィリ ン分子間で、電子のエネルギー準位のHOMO(Highest Occupied Molecular Orbital:最高被占軌道)とLUMO (Lowest Unoccupied Molecular Orbital:最低空軌道)の 間での共鳴トンネル現象を起こさせ、これに基づく負性 抵抗を確認した.即ち、分子による共鳴トンネルダイオー ドを実現したことになる.



図 11 ナノ粒子の粒径によるキャパシタンスとチャージングエネルギーの変化 (出典: Nanotechnology 26, 045702 (2015) [13])

実験は,STM の探針にサブポルフィリンを付着させ, 対向する基板上のサブポルフィリンとの間でトンネル電 流を流させた時の特性を,探針にサブポルフィリン付着 の無い場合と比較して,分子間に共鳴トンネル現象が起 こっていることを明らかにした.

図 13 左図は、探針と基板が左右にあって、その間に挟まれた 2 個のサブポルフィリンの電子準位を示しており、 基板側の HOMO から探針側の LUMO ヘトンネルが起こる 状態を示している.図 13 右図は電流 - 電圧及び電流の 微分値の特性を表している.明瞭な負性抵抗が見られる.

4.3 分子メモリー機能の発見

これは名古屋大学教授 田中 健太郎氏との共同研究の 成果である.ポルフィリンと云う分子は図14 左図に示す 様な分子構造で、4 か所に見える S(硫黄)によって右図 に示すように金の基板に結合させ、室温で STS 計測を行 なった.

図15 左図にその電圧 - 電流特性をリニアスケールとセ ミログスケールで示す. 初めに電圧を +1.8V から -1.8V に掃引し(赤線)次に -1.8V から +1.8V に掃引すると(青 線),電流は中央部では流れないが,その両外側ではヒス テレシス曲線を示し,メモリー機能があることを示して いる.図15 右図は,書き込み,読み出し,消去のパルス 電圧に対する電流の変化を調べたものでメモリー動作が 確認された.

電流のオンオフ比は 2.9 で少ないが,室温で単分子メモ リー効果を発見した意義が大きい.ここで起こっている原 因については,まだ分かっていないが,クーロンブロッケー ド現象の変調が起こっていると考えられるという.

4.4 分子デバイスについての今後の展開

以上述べたように、STS による分子のデバイスとしての



図 12 STM による金属内包フラーレン双極子モーメントによるスイッチの確認 (出典:Nano. Lett., 5, 1057 (2005) [14])



図 13 分子による共鳴トンネルダイオード (出典:JACS, 135, 14159 (2013) [15])

評価を進めているが,この先に向けて,現在次のような 検討を進めている.

- (1) STS によりメモリー機能を確認した分子をナノ ギャップ構造の電極に入れて安定なデバイス構造で の評価を進める.
- (2) ナノギャップの電極構造は分子デバイス研究開発のプラットフォームとして、一貫して活用して行くことを考えており、その改良を図っていく、分子の評価に当たって、ゲート電極を備えたトランジスタ構造は分子のより詳細な物性の評価を可能とする. そのゲートの効果を高めるためには、ソース・ドレインの電極幅を細くして、ギャップ内の分子とゲート電極の距離を近くすることが望まれる.これまで60nmであった電極幅を、図5に示したように40nmまで細めることができている.また実験的にはゲートを上下に挟む試みも行っている.下は基板の金であり、上は電極を橋渡しする形をとっている.
- (3) ナノメートルレベルの微細構造では材料特性も変わる.温度安定性の考慮を含めて、金以外の材料や、メッキ法の改善を検討する.

真島氏は「このプラットフォームを使って,これまで 種々発表されている分子トランジスタとは違い,常温で 安定した動作が保証され,誰もが納得する分子トランジ スタを作ることを一つの目標とした研究開発を進めてい る.」と語った.

2節に紹介したように、分子がナノ電子デバイスとし て機能を発揮する二つの現象の活用が考えられる.一つ は分子が持つ電子のエネルギー準位を活用した共鳴トン ネル現象の活用であり、もう一つは、分子中の電荷に基 づくクーロンブロッケード的現象の活用である。後者の 場合、例えば電界により分子中のイオン価数が変わる等 の構造変化が起こり、それがクーロンブロッケードのエ ネルギーの変化として電界除去後も保たれれば、単分子 メモリーとなる.分子デバイスには極めて様々な可能性



図 14 STS による分子のメモリー機能の検出 (出典: Appl. Phys. Lett., 100, 053101 (2012) [16])



図 15 分子メモリーの機能評価 (出典:Appl. Phys. Lett., 100, 053101 (2012) [16])

があると思われるが,ボトムアップエレクトロニクスと して真っ先に実用に結びつくのは,単分子メモリーであ ろうと真島氏は推測している.



真島氏は STS 解析とボトムアップ手法によるナノ ギャップ電極を武器として,ナノレベルの分子の評価に よる,分子デバイスの可能性追求を一貫して続けており, そこで評価する分子に関して各方面の専門グループと共 同研究を行い,成果を挙げてきた.今後もその方針で研 究を展開すると云う.また,ナノギャップ電極については, 分子デバイス用だけではない他のアプリケーション,例 えば量子情報やセンサー応用等への広がりもあり得ると している.

将来,集積規模の大きいLSIに分子デバイスが適用される場合でも、単分子のデバイスとしての徹底的評価と 完成度向上が不可欠との信念で未知の領域の開拓に邁進 している.様々な共同研究から生まれる成果は、分子デ バイスによるボトムアップエレクトロニクスの基盤を確 立し、新たな産業の発展に結びつくものと期待される.



本文中の図は、全て真島氏より提供されたものである.

- Mitsumasa Iwamoto, Yutaka Majima, Haruhiko Naruse, Tetsuya Noguchi & Hiromasa Fuwa, "Generation of Maxwell displacement current across an azobenzene monolayer by photoisomerization", Nature Vol. 353, p. 645 (1991).
- [2] Yutaka Majima, Yutaka Oyama, and Mitsumasa Iwamoto, "Measurement of semiconductor local carrier concentration from displacement currentvoltage curves with a scanning vibrating probe", Physical Review B Vol. 62, p. 1971 (2000).
- [3] Yasuo Azuma, Masayuki Kanehara, Toshiharu Teranishi, and Yutaka Majima, "Single Electron on a Nanodot in a Double-Barrier Tunneling Structure Observed by Noncontact Atomic-Force Spectroscopy", Physical Review Letters, Vol. 96, p. 016108 (2006).
- [4] H. Zhang, Y. Yasutake, Y. Shichibu, T. Teranishi, an Y. Majima, "Tunneling resistance of double-barrier tunneling structures with an alkanethiol-protected Au nanoparticle", Physical Review B, Vol. 72, p. 205441 (2005).
- [5] 真島 豊, "ボトムアップ手法で作製する単電子ト ランジスター", パリティ, Vol. 28, No.5, pp. 42-45

(2013).

- [6] Xinheng Li, Yuhsuke Yasutake, Keijiro Kono, Masayuki Kanehara, Toshiharu Teranishi and Yutaka Majima, "Au Nanoparticles Chemisorbed by Dithiol Molecules Inserted in Alkanethiol Self-Assembled Monolayers Characterized by Scanning Tunneling Microscopy", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 48, No. 4S, p. 04C180 (2009).
- [7] Yuhsuke Yasutake, Keijiro Kono, Masayuki Kanehara, Toshiharu Teranishi, Mark R. Buitelaar, Charles G. Smith and Yutaka Majima, "Simultaneous Fabrication of Nanogap Gold Electrodes by Electroless Gold Plating using a Common Medical Liquid", Applied Physics Letters, Vol. 91, p. 203107 (2007).
- [8] Victor M. Serdio V., Yasuo Azuma, Shuhei Takeshita, Taro Muraki, Toshiharu Teranishi and Yutaka Majima, "Robust nanogap electrodes by selfterminating electroless gold plating", Nanoscale, The Royal Society of Chemistry, Vol. 4, p. 7161 (2012).
- [9] 戦略的創造研究推進事業 (CREST) 研究領域「ナノ科 学を基礎とした革新的製造技術の創成」研究課題「高 精度にサイズ制御した単電子デバイスの揮発」研究 終了報告書 研究期間 平成 20 年 10 月~平成 26 年 3 月.
- [10] Victor M. Serdio V, Taro Muraki, Shuhei Takeshita, Daniel E. Hurtado S, Shinya Kano, Toshiharu Teranishi and Yutaka Majima, "Gap separation-controlled nanogap electrodes by molecular ruler electroless gold plating", RSC Advances, Vol. 5, p. 22160 (2015).
- [11]Norio Okabayashi, Kosuke Maeda, Taro Muraki, Daisuke Tanaka, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, and Yutaka Majima, "Uniform charging energy of single-electron transistors by using sizecontrolled Au nanoparticles", Applied Physics Letters, Vol. 100, p. 033101 (2012).
- [12]Kosuke Maeda, Norio Okabayashi, Shinya Kano, Shuhei Takeshita, Daisuke Tanaka, Masanori Sakamoto, Toshiharu Teranishi, Yutaka Majima, "Logic Operations of Chemically Assembled Single-Electron Transistor", ACS Nano, Vol. 5, p. 2798 (2012).
- [13]S. Kano, D. Tanaka, M. Sakamoto, T. Teranishi, Y. Majima, "Control of charging energy in chemically assembled nanoparticle single-electron transistors", Nanotechnology, Vol. 26, p. 045702 (2015).
- [14] Yuhsuke Yasutake, Zujin Shi, Toshiya Okazaki, Hisanori Shinohara and Yutaka Majima, "Single Molecular Orientation Switching of an Endohedral Metallofullerene", Nano Letters, Vol. 5, p. 1057 (2005).

[15]Yutaka Majima, Daisuke Ogawa, Masachika Iwamoto, Yasuo Azuma, Eiji Tsurumaki, and Atsuhiro Osuka, "Negative Differential Resistance by Molecular Resonant Tunneling between Neutral Tribenzosubporphine Anchored to a Au(111) Surface and Tribenzosubporphine Cation Adsorbed on to a Tungsten Tip", Journal of the American Chemical Society, Vol.135, p.14159 (2013).

[16]Shinya Kano, Yasuyuki Yamada, Kentaro Tanaka, Yutaka Majima, "Room-Temperature Single Molecular Memory", Applied Physics Letters, Vol. 105, p. 053101 (2012).

(向井 久和)