انتقال الکترونیکی از طریق پل مولکولی $C_{۶۰}N$:بررسی اثر یک سوسازی الکترونیکی و نقش تک و چند اتصالی

عربی دره در،مهوش[۱]؛شاهطهماسبی،ناصر[۱]؛رضایی رکن آبادی،محمود[۱]

[۱]دانشکده علوم دانشگاه فردوسی ،خیابان وکیل آباد ، مشهد

چکیده

با استفاده از فرمول‌بندی لانداور _ بوتیکر اثرات هندسه‌های اتصالی مختلف برانتقال الکترونی از طریق مولکول $C_{۶۰}N$، بر اساس روش تابع گرین مطالعه می‌شود. همچنین در مشخصه ولتاژ_جریان مولکول $C_{۶۰}N$ یک‌سوسازی الکتریکی دیده می‌شود. تحلیل‌های تئوری نشان می‌دهد که اوربیتال مولکولی نیمه پر مولکول $C_{۶۰}N$ و جابجایی نامتقارن تراز فرمی مولکول هنگامی که مولکول باردار شود مسئول یک سوسازی مولکولی است.

Electronic transport through a $C_{۶۰}N$ molecular bridge: Study of electronic rectification and the role of single and multiple contacts

Arabi dare dor ,Mahvash[۱];Shahtahmassebi,Nasser[۱];Rezaei rokn abadi,mahmood[۱]

[۱] *Department of Sciences, University of Ferdowsi, Mashhad*

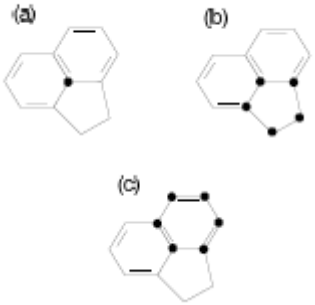
Abstract

The effects of different contact geometries on quantum transport through a $C_{۶۰}N$ molecule are studied by the Landauer-B¨uttiker formula based on the Green's function technique..also in Voltage_current of $C_{۶۰}N$ molecule electric rectification is observed. Theoretical analyses show that the half-occupied molecular orbital of the $C_{۶۰}N$ molecule and the asymmetric shift of the molecular Fermi level when the molecule is charged are responsible for the molecular rectification.

PACS No ٦١,٤٠

مقدمه

الکترونیک مولکولی با استفاده کردن از تک مولکول به عنوان عنصر فعال یک مفهوم فنی نوید بخشی است که به سرعت در حال رشد است [۱،۲]. پیشرفت های جدید در دستکاری تک مولکول یا تعداد کمی از مولکول‌ها به ما اجازه می‌دهد که مولکول ها را به الکترودهای فلزی متصل کنیم وویژگی‌های انتقال الکترون



. شکل۱ :سه راه مختلف برای جفت شدگی بین مولکول $C_{۶۰}N$ و الکترودهای تک بعدی استفاده شده در کار

را اندازه گیری کنیم [۳- ۶]. انتقال الکترونی از طریق تک مولکول ها به طور قوی به ماهیت و کیفیت اتصالات با الکترودها بستگی دارد. در چنین ساختاری انرژی‌های اوربیتال‌های مولکولی به ویژه بالاترین اوربیتال مولکولی اشغال شده (HOMO) و پایین ترین اوربیتال مولکولی اشغال نشده (LUMO) اهمیت حیاتی برای انتقال الکترونی از طریق تک مولکول‌های آلی دارند. در میان انواع زیادی از مولکول‌ها فو لرین $C_{۶۰}$ پل مولکولی مناسبی است. زیرا LUMO آن در انرژی‌های نسبتاً پایین‌تری در مقایسه با دیگر مولکول‌های آلی است [۷] . به همین دلیل در این مقاله قصد بررسی $C_{۵۹}N$ را داریم که همان $C_{۶۰}$ است که یک اتم N به جای C نشسته است. طیف I_V تونل‌زنی گاف غیر صفری را در اطراف بایاس صفر به علت اثرات تونل‌زنی تک‌الکترونی مانند محاصره کولمبی و پلکانی کولمبی نشان می‌دهد.

مولکول $C_{۶۰}$ شامل ۱۲ پنج‌ضلعی و ۲۰ شش‌ضلعی است. به علت دو پارشی (فرآیندی است که طی آن دو مولکول به هم پیوند داده می‌شوند.) پیوندهای C_C در مولکول طول‌های مختلفی را دارند $r_۱$=۱,۴۶ A° برای پیوند های یگانه (پیوند ها در پنج‌ضلعی‌ها)و $r_۲$=۱,۴۰ A° برای پیوندهای دوگانه (پیوندها در شش‌ضلعی‌ها که سهمی در پنج‌ضلعی‌ها ندارند). هنگامی که دوالکترود به مولکول متصل می‌شوند ،تعداد نقاط اتصال به جهت‌گیری مولکول بستگی خواهد داشت. از این‌رو تک اتصال یا چند اتصال ممکن است اتفاق بیفتد. هدف این مقاله مطالعه نقش چند اتصالی (به شکل ۱ نگاه کنید) در انتقال کوانتومی همدوس از طریق مولکول $C_{۵۹}N$ بر اساس مدل تنگ‌بست و روش تابع گرین غیر تعادلی است.

مدل و روش

ما فرض می‌کنیم که یک سیستم شامل مولکول $C_{۵۹}N$ است که به الکترودهای فلزی یک‌بعدی چسبانده شده است. هامیلتونی سیستم در تقریب تنگ‌بست با یک اوربیتال در هر اتم شرح داده می‌شود:

$$\hat{H} = \hat{H}_M + \hat{H}_S \qquad (۱)$$

که $\hat{H}_M$ هامیلتونی مولکول $C_{۶۰}$ است که به صورت زیر تعریف می‌شود [۸]:

$$\hat{H}_M = \sum_i \varepsilon_i \hat{c}_i^+ \hat{c}_i - \sum_{\langle ij \rangle} t_{ij} \hat{c}_i^+ \hat{c}_i \qquad (۲)$$

و $\hat{H}_S$ هامیلتونی مربوط به وارد کردن اتم نیتروژن است و به این صورت است :

$$\hat{H}_S = V_k^S \hat{b}_k^+ \hat{b}_k - \sum_l t'_{kl} \hat{b}_k^+ \hat{b}_l \qquad (۳)$$

که در آن پتانسیل موضعی V_k^S پتانسیل موضعی متناظر با اتم نیتروژن در جایگاه kام است. $\hat{b}_{k\sigma}^+ \left(\hat{b}_{k\sigma}\right)$ عملگرهای خلق (نابودی)اتم نیتروژن مربوط به k امین مکان است. t'_{kl} عنصر ماتریس پرش بین مکان k که نیتروژن در آن قرار گرفته است و نزدیک ترین همسایه ها که در مکان l هستند .

ε_i انرژی در سایت است و صفر قرار داده می شود به جز در ناحیه گیت که برابر با eV_G است. $\hat{c}_{i\sigma}^+ \left(\hat{c}_{i\sigma}\right)$ عملگر خلق(نابودی) برای تک الکترون در مکان i ام و t_{ij}عنصر ماتریس پرش بین مکان های i و j نزدیک‌ترین همسایه‌ها است. شدت پرش در مولکول $C_{۶۰}$ به طول پیوند C_C بستگی دارد. بنابراین ما عناصر ماتریسی پرش مختلفی را در نظر می گیریم :$t_۱$ برای پیوند های یگانه و $t_۲$ برای پیوندهای دوگانه است. در مورد دوپارشی پیوندی استفاده از $t_2 \cong \left(r_1 / r_2\right)^2 t_1$ [۹] منطقی است.

تابع گرین مولکول $C_{۵۹}N$ که به دو الکترود فلزی جفت شده است (چشمه و چاهک) در حضور ولتاژ بایاس به این صورت است:

$$\hat{G}_C(\varepsilon,V_a)=\left[\varepsilon\hat{1}-\hat{H}_C-\sum_L(\varepsilon)-\sum_R(\varepsilon+V_a)\right]^{-1} \quad (٤)$$

که $\hat{H}_C$ هامیلتونی مولکول در غیاب الکترودهااست و $\sum_L$ و $\sum_R$ ماتریس‌های خودانرژی است. این‌ها می‌توانند این گونه بیان شوند [۱۰]:

$$\sum_{L,R}=\frac{-\hat{\tau}^2}{t_0}\exp\left(i\left|\arccos\left(1-\frac{E-A}{2t_0}\right)\right|\right) \quad (٥)$$

که در آن τ انتگرال بین مولکول و الکترودها، t انتگرال انتقال در طول رشته الکترود و E انرژی الکترون و A ثابت اختیاری است.

از آنجایی که هامیلتونی کل (معادله (۱)) شامل پراکندگی‌های غیر کشسان نمی‌شود،جریان از فرمول لانداور محاسبه می‌شود [۱۱، ۱۲]:

$$I=\frac{2e}{h}\int_{-\infty}^{\infty}T(\varepsilon,V_a)\left[f(\varepsilon)-f(\varepsilon+V_a)\right]d\varepsilon \quad (٦)$$

که f تابع فرمی و $T(\varepsilon,V_a)$ تابع ترابرد وابسته به انرژی و ولتاژاست که به این صورت داده می‌شود :

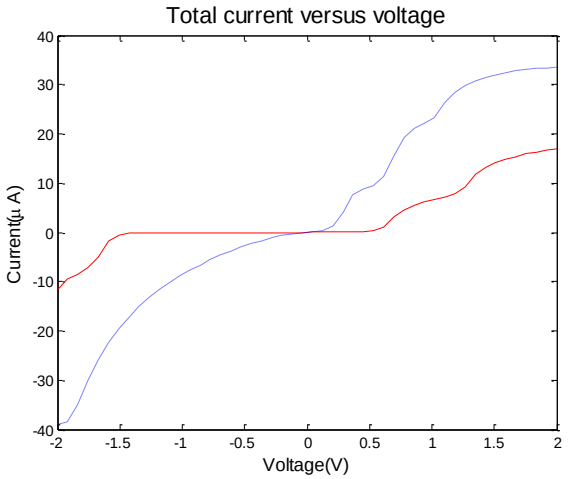
$$T(\varepsilon,V_a)=Tr\left[\hat{\Gamma}_L(\varepsilon)\hat{G}_C(\varepsilon,V_a)\times\hat{\Gamma}_R(\varepsilon+eV_a)\hat{G}_C^{+}(\varepsilon,V_a)\right] \quad (٧)$$

ماتریس های جفت شدگی $\hat{\Gamma}_{L,R}$ از طریق معادله زیر به خود-انرژی مربوط می‌شوند: :

$$\hat{\Gamma}_{L,R}=i\left[\sum_{L,R}-\sum_{L,R}^{+}\right] \quad (٨)$$

نتایج و بحث

فرمول بندی حاضر می‌تواند برای سیستم‌هایی که در آن‌ها تعداد دلخواهی از اتم‌های کربن مولکول $C_{۶۰}N$ می‌توانند به الکترودهای فلزی تک‌بعدی جفت شوند مورد استفاده قرار گیرند .برای این منظور سطح مقطع الکترودها را محدود در نظر می‌گیریم. در این مطالعه ،جفت‌شدگی از طریق یک و پنج اتم کربن به الکترودها فرض خواهد شد (به شکل ۱ نگاه کنید) این موارد از میان بیشترین احتمال تجربی انتخاب می‌شوند [۱۳]. در محاسبات عددی ما t_1=۲,۵eV [۱٤] , t_2= ۱,۱t_1 [۹]و E_F=۰.۰eV و T=۳۰۰K قرار می‌دهیم.



شکل ۲ مشخصه‌های جریان براساس ولتاژ برای اتصالات مختلف ، تک اتصالی (خط قرمز) و پنج اتصالی (خط چین آبی)

همان‌طور که در فرمول لاندا ورـبوتیکر دیده می‌شود. ضریب ترابرد نقش مهمی در محاسبه جریان دارد پس برای بررسی منحنی جریان _ولتاژ در اتصالات مختلف می توان از ضریب ترابرد صحبت کرد. اتصال دادن مولکول به الکترودها حالت گسسته مولکول را پهن و جابجا می‌کند. پهن‌شدگی حالت‌ها به شدت جفت‌شدگی به اتصالات بستگی دارد. بنابراین می‌توان رفتارهای مختلفی برای ضریب ترابرد (TC) سیستم‌ها در موارد تک و چند اتصالی انتظار داشت. در انتقال همدوس ،فرض می‌شود که تابع موج الکترون به طور همدوس در عرض تمام سیستم گسترده می‌شود. برهمین روال،هنگامی که انرژی الکترون تقریباً برترازهای مولکولی منطبق شود الکترون به طور تشدیدی از طریق مولکول انتقال می‌یابد و ضریب ترابرد بزرگی را موجب می‌شود و از این‌رو همان‌طور که در شکل ۲ دیده می‌شود جریان در پنج اتصالی بیشتر است.

همان‌طور که در شکل ۲ دیده می‌شود . اثر یک‌سوسازی به وضوح مشاهده شده است. ولتاژ آستانه مثبت در تک اتصال ۰,۵V است

در حالی که ولتاژآستانه منفی در حدود ۱٫۵V است،که با مقدار تجربی مطابقت دارد [۱۵].تحلیل های تئوری نشان می دهد که اوربیتال مولکولی نیمه پر مولکول $C_{۶۰}N$ و جابجایی نامتقارن تراز فرمی مولکول هنگامی که مولکول باردار شود مسئول یک‌سوسازی مولکولی است[۱۵]. هنگامی که تعداد اتم‌های کربن در جفت-شدگی بین مولکول و الکترود افزایش می یابد، مشخصه I-V رفتار اهمی در ولتاژهای پایین به کار رفته نشان می‌دهد. چنین موقعیتی به این علت است که هیبریدشدن با الکترودها قوی‌تر است و مسیرهای بیشتری برای الکترودها در عبور از فلز به مولکول وجود دارد [۱۶].

نتیجه گیری ها

با استفاده از روش تابع گرین غیرتعادلی و تئوری لاندا ور ما اثرات هندسه های اتصالی مختلف بر انتقال الکترونی از طریق مولکول $C_{۶۰}N$ ساندویچ شده بین دو الکترود فلزی را بررسی می‌کنیم. به علت ساختار نامتقارن این مولکول عدم تقارن در منحنی I_V مشاهده می‌شود که منجر به یک‌سوسازی می‌شود و در دیودها کاربرد دارد.

مراجع

[۱]."*An Introduction to Molecular Electronics"*, edited by M.C. Petty and M. Bryce (Oxford University Press, New York, ۱۹۹۵).

[۲].C. Joachim, J. K. Gimzewski, and A. Aviram,; -"*Electronics using hybrid -molecular and mono-molecular devices*"Nature(London) ٤٠٨, ٥٤١ (٢٠٠٠); A. Nitzan, Annu. "*Electron transmission through molecules and molecular interfaces*";Rev. Phys.Chem. ٥٢, ٦٨١ (٢٠٠١)

[۳].M. A. Reed, C. Zhou, C. J. Muller, T. P. Burgin, and J. M. Tour; *" Conductance of a molecular junction*" , Science ٢٧٨, ٢٥٢ (١٩٩٧).

[٤].C. Kergueris, J.P. Bourgoin, D. Esteve, C. Urbina, M. Magoga,and C. Joachim"*Electron transport through a metal-molecule-metal junction*", Phys. Rev. B ٥٩, ١٢٥٠٥ (١٩٩٩).

[٥]D. Porath, A. Bezryadin, S. de. Vries, and C. Dekker, Nature; "*Direct measurement of electrical transport through DNA molecules*" ٤٠٣, ٦٣٥ (٢٠٠٠)

[٦]J. Reichert, R. Ochs, D. Beckmann, H. B. Weber, M.Mayor, and H. v. L¨ohneysen, "*Driving current through single Organic molecules*"Phys. Rev. Lett. ٨٨, ١٧٦٨٠٤ (٢٠٠٢)

[٧]S. Nakanishi and M. Tsukada, "*Quantum loop current in a $C_{٦}$ molecular . bridge*" Phys. Rev. Lett. ٨٧, ١٢٦٨٠١ (٢٠٠١)

[٨] .Alireza Saffarzadeh;"*Electronic transport through a $C_{٦}$,molecular bridge:The role of single and multiple contacts"*;arXiv:cond-mat.٠٨٠٨,١٣٥٢٧١(٢٠٠٨).

[٩]E. Manousakis, "*Electronic stracture of $C_{٦}$. within the thight-binding approximation*" Phys. Rev. B ٤٤, ١٠٩٩١ (١٩٩١);

"Erratum:Morphological instability of a terrace edge during step-flow growth"; Phys. Rev. B. ٤٨, ٢٠٢٤ (١٩٩٣).

[١٠]S. Datta, "*Quantum Transport: Atom to Transistor"* (Cambridge University Press, Camberige, ٢٠٠٥).

[١١]R. Landauer"*Spatial variation of currents and fields due to localized in metallic conduction*", IBM J. Res. Dev. ١, ٢٢٣ (١٩٥٧).

[١٢]Y. Meir and N.S. Wingreen"*Landauer formula for the current through an interacting electron region"*, Phys. Rev. Lett. ٦٨, ٢٥١٢ (١٩٩٢).

[١٣]T. Hashizume, et al., "*Intramolecular structures of $C_{٦٠}$ molecules adsorbed on the Cu(١١٠)-(١×١) surface*" Phys. Rev. Lett. ٧١, ٢٩٥٩ (١٩٩٣).

[١٤]M. Paulsson, and S. Stafstr¨om, *"Conductance manipulation at the molecular level"* J. Phys.: Condens. Matter ١١, ٣٥٥٥ (١٩٩٩)

[١٥]J.zhao;"*Singe $C_{٥٩}N$ molecule as a molecular rectifier"*; Phys.Rev. Lett.٩٥,٤٥٥٠٢(٢٠٠٥)..

[١٦]]. Palacios, A.J. P´erez-Jim´enez, E. Louis, and J.A. Verg´es, "*Electronic transport through $C_{٦٠}$ molecules*" Nanotechnology ١٢, ١٦٠ (٢٠٠١).