

اثر ناخالصی بر تراپرد الکترونی از طریق مولکول C_{60} : بررسی نقش تک و چند اتصالی

عربی دره در، مهوش^۱؛ شاهطهماسبی، ناصر^۱

^۱دانشکده علوم دانشگاه فردوسی، خیابان وکیل آباد، مشهد

چکیده

در مقیاس نانو حتی تغییر تک اتم در ساختار به طور قابل توجهی می تواند ویژگی ها و از این رو فضای کاربرد را تغییر دهد. ما این رفتار نانومواد را با استفاده از فولرین به عنوان ساختار مدلی توضیح می دهیم. همچنین اثر هندسه های اتصالی مختلف بر تراپرد کوانتومی از طریق مولکول C_{60} و آلائیده شده با نیتروژن را با استفاده از تکنیک تابع گرین مطالعه می کنیم. نشان داده شده است که تعداد نقاط تماس بین الکترودهای قطعه و مولکول می تواند نقش مهمی در رسانندگی الکترون داشته باشد. انتقال زمانی که الکترودها به مولکول از طریق تک اتم کربن متصل می شوند، به علت تونل زنی تشدید می شود. در مورد چند اتصالی اثرات فصل مشترکی مسئول تغییر انتقال از طریق C_{60} و $C_{59}N$ است.

Effect of impurity on electron transport through a C_{60} molecule: study of the role of single and multiple contacts

Arabi dare dor, Mahvash¹; Shahtahmassebi, Nasser¹

¹ Department of Sciences, University of Ferdowsi, Mashhad

Abstract

At the nanoscale, even a single atom change in the structure can noticeably alter the properties, and therefore, the application space of materials. We examine this behavior of nanomaterials using fullerene as a model structure. Also, the effect of different contact geometries on quantum transport through a pure C_{60} molecule and doped with nitrogen are studied by Green's function technique. It is shown that the number of contact points between the device electrodes and the molecule can play an important role in the electron conduction. The transmission is due to the resonant tunneling when the electrodes are contacted to one carbon atom of the molecule. In the case of multiple contacts, the interference effects are responsible for the change of the transmission through the C_{60} and $C_{59}N$.

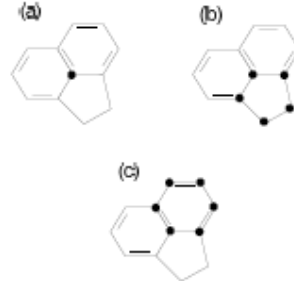
PACS No. 72

این نوع مولکولها به عنوان اجزای سازنده الکترونیک مولکولی را می دهد. قبل از این که ما استفاده از این نوع مولکولها در قطعات نانوالکترونیک را به حساب آوریم، به فهمیدن این نیاز داریم که چگونه عملکرد این مولکولها هنگامی که به الکترودهای فلزی

مقدمه

درک ما از ویژگی های ساختاری و الکترونیکی نانولوله های کربنی فولرین ها و دیگر مولکول هایی که از آلائیدن فولرین ها بدست می آیند، به ما اجازه پیش بینی آینده ای نوید بخش برای استفاده از

اتصال فلز-مولکول-فلز انجام شده است [2] و همچنین تحقیقاتی نیز الکترودها را به صورت زنجیره اتمی فلزی در نظر گرفته اند [3]. هنگامی که دو الکتروده به مولکول متصل می‌شوند، تعداد نقاط اتصال به جهت گیری مولکول بستگی خواهد داشت. از این رو تک اتصال یا چند اتصال ممکن است اتفاق بیفتد. هدف این مقاله مطالعه نقش چند اتصالی (به شکل 1 نگاه کنید) در انتقال کوانتومی همدوس از طریق مولکول $C_{59}N$ و C_{60} بر اساس مدل تنگ‌بست و روش تابع گرین غیر تعادلی است.



شکل 1: سه راه مختلف برای جفت شدگی بین مولکول $C_{59}N$ و الکترودهای تک بعدی استفاده شده در کار

مدل و روش

ما فرض می‌کنیم که یک سیستم شامل مولکول C_{60} است که به الکترودهای فلزی یک‌بعدی چسبانده شده است. هامیلتونی سیستم با وجود اتم نیتروژن به عنوان ناخالصی در تقریب تنگ-بست با یک اوربیتال در هر اتم شرح داده می‌شود:

$$\hat{H} = \hat{H}_M + \hat{H}_S \quad (1)$$

که \hat{H}_M هامیلتونی مولکول C_{60} است که به صورت زیر تعریف می‌شود [4]:

$$\hat{H}_M = \sum_i \varepsilon_i \hat{c}_i^+ \hat{c}_i - \sum_{\langle ij \rangle} t_{ij} \hat{c}_i^+ \hat{c}_j \quad (2)$$

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

$$\hat{H}_S = V_k^S \hat{b}_k^+ \hat{b}_k - \sum_l t'_{kl} \hat{b}_k^+ \hat{b}_l \quad (3)$$

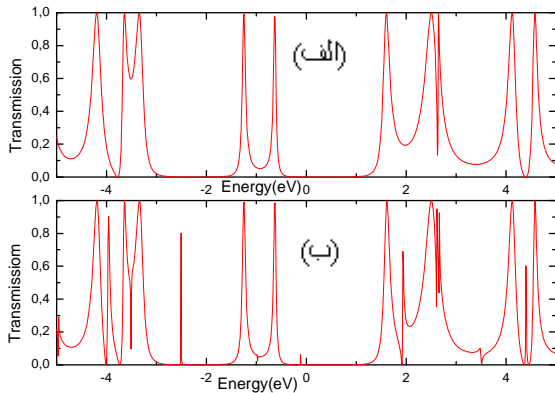
که در آن پتانسیل موضعی V_k^S پتانسیل موضعی متناظر با اتم نیتروژن در جایگاه k است. $\hat{b}_{k\sigma}^+$ ($\hat{b}_{k\sigma}$) عملگرهای خلق (نابودی) اتم نیتروژن مربوط به k امین مکان است. t'_{kl} عنصر ماتریس پرش بین مکان k که نیتروژن در آن قرار گرفته است و نزدیک ترین همسایه‌ها که در مکان l هستند.

ε_i انرژی در سایت است و صفر قرار داده می‌شود به جز در ناحیه گیت که برابر با eV_G است. $\hat{c}_{i\sigma}^+$ ($\hat{c}_{i\sigma}$) عملگر خلق (نابودی) برای تک الکترون در مکان i ام و t_{ij} عنصر ماتریس پرش بین مکان

متصل می‌شوند را بدانیم. رسانندگی سیستم اولیه یعنی مولکول+الکترودهای فلزی اساساً با ساختار الکترونیکی مولکولی

که بین دو الکتروده قرار داده می‌شود تعیین می‌شود. در میان انواع زیادی از مولکول‌ها فولرین C_{60} پل مولکولی مناسبی است. زیرا LUMO (پایین‌ترین اوربیتال مولکولی اشغال نشده) آن در انرژی‌های نسبتاً پایین‌تری در مقایسه با دیگر مولکول‌های آلی است [1]. همچنین به دلیل اهمیت و کاربردی که این مولکول در قطعات نانو الکترونیکی دارد در این مقاله قصد بررسی این مولکول و همچنین اثر وجود ناخالصی در این فولرین را داریم. مولکول C_{60} شامل 12 پنج‌ضلعی و 20 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 $r_1 = 1.46 \text{ \AA}$ برای پیوند های یگانه (پیوند ها در پنج‌ضلعی ها) و $r_2 = 1.40 \text{ \AA}$ برای پیوندهای دوگانه (پیوندها در شش‌ضلعی ها که سهمی در پنج‌ضلعی‌ها ندارند). ساختار هندسی مولکول و نحوه قرار گرفتن مولکول نسبت به الکترودهای فلزی خیلی مهم است و این اهمیت به این علت است که کانال های جدیدی را برای عبور الکترون بیشتر از کانال هایی که مولکول برای عبور الکترون ایجاد می‌کند را به وجود می‌آورد. خواه این مولکول ها کانال های شیمیایی یا مکانیکی را ایجادکنند یا ترابرد در حوزه سدکولنی یا حوزه بالستیک باشد این رسانندگی فقط با نوع هندسه اتصال می‌تواند تفسیر شود. تحقیقات گسترده تئوری در زمینه انواع مختلف

کربن به الکترودها فرض خواهد شد (به شکل 1 نگاه کنید) این موارد از میان بیشترین احتمال تجربی انتخاب می‌شوند [7]. در محاسبات عددی ما $t_1 = 2.5eV$, $t_2 = 1.1t_1$ [5] و $E_F = 0.0eV$ و $T = 300K$ قرار می‌دهیم.



شکل 2: تابع ترابرد (احتمال ترابرد) مربوط به حالت تک اتصال (الف) مربوط به مولکول C_{60} (ب) مربوط به مولکول C_{59N}

همان طور که از شکل 2 (ب) دیده می‌شود با وارد کردن اتم نیتروژن به مولکول فولرین قله‌های جدیدی در نمودار تابع ترابرد دیده می‌شود و به دلیل این که، هنگامی که انرژی الکترون تقریباً برتزازهای مولکولی منطبق شود الکترون به طور تشدید از طریق مولکول انتقال می‌یابد و ضریب ترابرد بزرگی را موجب می‌شود. در نتیجه حضور قله‌های جدید به معنی به وجود آمدن ترازهای جدید در اثر وارد کردن اتم نیتروژن است.

(الف)

(ب)

های i و j نزدیک‌ترین همسایه‌ها است. شدت پرش در مولکول C_{60} به طول پیوند $C-C$ بستگی دارد. بنابراین ما عناصر ماتریسی پرش مختلفی را در نظر می‌گیریم: t_1 برای پیوند های یگانه و t_2 برای پیوندهای دوگانه است. در مورد دوپارشی پیوندی استفاده از $t_2 \cong (r_1 / r_2)^2 t_1$ [5] منطقی است.

تابع گرین مولکول که به دو الکترودها فلزی جفت شده است

(چشمه و مخزن) در حضور ولتاژ بایاس به این صورت است:

$$\hat{G}_C(\varepsilon) = [\varepsilon \hat{1} - \hat{H}_C - \Sigma_L(\varepsilon) - \Sigma_R(\varepsilon)]^{-1} \quad (4)$$

که \hat{H}_C هامیلتونی مولکول در غیاب الکترودها است و Σ_R و Σ_L ماتریس‌های خودانرژی است. این‌ها می‌توانند این گونه بیان شوند [6]:

(5)

$$\Sigma_{L,R} = \frac{-\hat{t}^2}{t_0} \exp\left(i \arccos\left(1 - \frac{E-A}{2t_0}\right)\right)$$

که در آن τ انتگرال بین مولکول و الکترودها، t_0 انتگرال انتقال در

طول رشته الکترون و E انرژی الکترون و A ثابت اختیاری است.

$T(\varepsilon)$ تابع ترابرد وابسته به انرژی و ولتاژ است که به این صورت داده می‌شود:

$$T(\varepsilon) = Tr \left[\hat{\Gamma}_L(\varepsilon) \hat{G}_C(\varepsilon) \times \hat{\Gamma}_R(\varepsilon) \hat{G}_C^+(\varepsilon) \right] \quad (6)$$

ماتریس‌های جفت شدگی $\hat{\Gamma}_{L,R}$ از طریق معادله زیر به خود-

انرژی مربوط می‌شوند:

$$\hat{\Gamma}_{L,R} = i \left[\Sigma_{L,R} - \Sigma_{L,R}^+ \right] \quad (7)$$

نتایج و بحث

فرمول بندی حاضر می‌تواند برای سیستم‌هایی که در آن‌ها تعداد دلخواهی از اتم‌های کربن مولکول‌های C_{60} و C_{59N} که 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

[2] Joachim C et al, " *Electronic Transparence of a Single C₆₀ Molecule* " *Phys. Rev. Lett.* **74** 2102(1995)

[3] Cuevas J C et al, " *Microscopic Origin of Conducting Channels in Metallic Atomic-Size Contacts* "

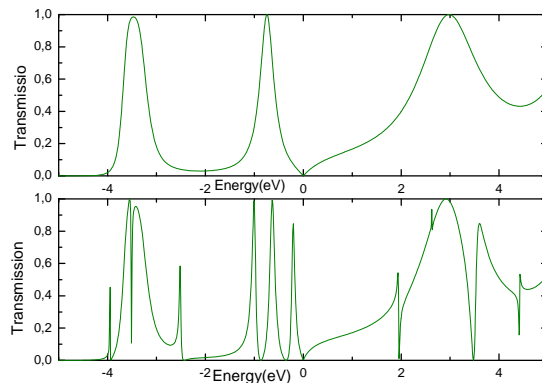
[4] Alireza Saffarzadeh, " *Electronic transport through a C₆₀ molecular bridge: The role of single and multiple contacts* ", *J. Appl. Phys.* **103**, 083705 (2008).

[5] E. Manousakis, " *Electronic structure of C₆₀ within the tight-binding approximation* " *Phys. Rev. B* **44**, 10991 (1991); " *Erratum: Morphological instability of a terrace edge during step-flow growth* "; *Phys. Rev. B.* **48**, 2024 (1993).

[6] S. Datta, " *Quantum Transport: Atom to Transistor* " (Cambridge University Press, Camberge, (2005).

[7] T. Hashizume, et al., " *Intramolecular structures of C₆₀ molecules adsorbed on the Cu(111)-(1×1) surface* " *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2959 (1993).

[8] M. Paulsson, and S. Stafstrom, " *Conductance manipulation at the molecular level* " *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 3555 (1999)



شکل 3: تابع ترابرد مربوط به حالت پنج اتصالی (الف) مربوط به مولکول C₆₀ (ب) مربوط به مولکول C₅₉N

نمودار (3-الف) خیلی شبیه نتایج مرجع [4] است. در شکل 3 به وضوح دیده می‌شود که تعداد قله‌ها کم می‌شود. همچنین در نمودارهای شکل 3 دیده می‌شود که پهنای قله‌ها نسبت به مورد تک اتصالی افزایش می‌یابد که به این علت است که در ترابرد کوانتومی، پهنای تشدیدهای ترابرد به شدت به جفت‌شدگی الکترون/مولکول بستگی دارد. در الکترودهای تک بعدی، فقط تک اتم (آخرین مکان) به اتم‌های کربن جفت می‌شود. بنابراین اگرما تعداد اتم‌ها در سطح الکترودها را با انتخاب الکترودهایی با سطح مقطع محدود افزایش دهیم. بنابراین پهنای تشدیدها به طور قابل توجهی برای مورد پنج اتصال اتمی پهن تر می‌شود.

نتیجه گیری

با استفاده از روش تابع گرین غیرتعادلی ما اثرات هندسه‌های اتصالی مختلف بر انتقال الکترونی از طریق مولکول‌های C₅₉N و C₆₀ ساندویچ شده بین دو الکترودهای فلزی را بررسی می‌کنیم. نتیجه گرفتیم که حضور اتم نیتروژن تاثیر مهمی بر ترابرد الکترون دارد همچنین این که تاثیرات تک اتصالی و چند اتصالی بر ترابرد الکترون به دلیل اثرات فصل مشترک است.

مراجع

[1] S. Nakanishi and M. Tsukada, " *Quantum loop current in a C₆₀ molecular bridge* " *Phys. Rev. Lett.* **87**, 126801(2001)