

رسانش الکترونی یک مولکول خطی سه اتمی در دمای غیر صفر

اشرف السادات شریعتی*^۱، حسن ربانی^{۱،۲}، محمد مردانی^{۱،۲}

^۱گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران

^۲مرکز پژوهشی فناوری نانو، دانشگاه شهرکرد، شهرکرد، ایران

چکیده

در این مقاله رسانش الکترونی مولکول خطی سه اتمی که بین دو هادی نیمه نامتناهی ساده قرار دارد، با استفاده از روش استاندارد تابع گرین در رهیافت تنگ‌بست، به دست می‌آید. با در نظر گرفتن اثر برهم‌کنش الکترون-فونون و تغییرات دما در رژیم بی‌دررو، رسانش الکترونی سامانه مرکزی بررسی می‌شود. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون میزان پراکندگی الکترونی در اثر برخورد با اتم‌های مرتعش افزایش یافته و ضریب عبور برای همه انرژی‌ها به جز در لبه‌های نوار انرژی کاهش می‌یابد. همچنین با کاهش دما ارتعاشات اتمی کمتر و پراکندگی الکترونی در اثر برخورد با این اتم‌ها نیز کمتر می‌شود و بنابراین رسانش الکترونی افزایش می‌یابد.

کلیدواژگان: تابع گرین، تنگ‌بست، دمای غیر صفر، مولکول سه اتمی.

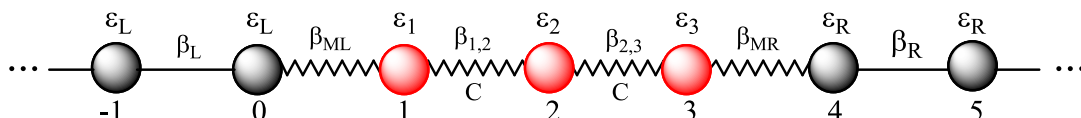
مقدمه

امروزی هم به صورت نظری و هم به صورت تجربی مورد مطالعه قرار گرفته است [۳ و ۲]. الکترونیک مولکولی منجر به تولید نسل جدیدی از قطعات الکترونیک شده است که با وجود اندازه‌های بسیار کوچک، بسیار قوی و کارآمد هستند [۴]. اهمیت مطالعات انجام شده روی رسانندگی الکتریکی و گرمایی که همواره در حال بررسی است [۷-۵]، در کاربرد وسیع آن‌ها در ساخت قطعات ترموالکتریکی، نانو الکترونیک و استفاده از آن‌ها در زمینه‌های کاربردی و تحقیقاتی است [۶]. عواملی همچون نیروهای واداشته، گرادیان دما، برهم‌کنش الکترون-الکترون و الکترون-فونون نقش مهمی در مقدار

امروزه نانو ساختارها و سیم‌های مولکولی جایگزین‌های خوبی برای ادوات الکترونیکی قدیمی شده‌اند. بررسی‌های تجربی در زمینه الکترونیک مولکولی در پایان دهه ۱۹۶۰ و شروع دهه ۱۹۷۰ میلادی آغاز شد. کوهن و همکارانش با ساخت فیلم‌های مولکولی و قرار دادن آن‌ها بین الکترودهای فلزی ترابرد الکترونی آن‌ها را اندازه‌گیری کردند. در اوایل دهه ۱۹۷۰ ترابرد الکترون از میان مولکول‌های آلی به صورت تجربی مورد بررسی قرار گرفت [۱]. این نتایج تجربی به عنوان نقطه شروع الکترونیک مولکولی، امروزه نیز مورد توجه است و موضوعاتی مانند فیزیک مزوسکوپیک، الکترونیک مولکولی، خواص الکتریکی، حرارتی و نوری نانو ساختارها توسط پژوهشگران

*نویسنده مسئول: a.shariatiii@yahoo.com

رسانندگی الکتریکی دارند و اثرات آنها برای برخی نانو ساختارها مورد بررسی قرار گرفته است [۸ و ۹].



شکل ۱. طرحواره یک مولکول سه اتمی مرتعش متصل به دو هادی ساده صلب، فنرها نشان دهنده پیوندهای مرتعش هستند. حروف یونانی معرف پارامترهای تنگبست سامانه هستند و اعداد نیز شماره اتمها را نشان می‌دهند.

مواد و روشها

در شکل ۱، طرحواره‌ای از یک مولکول سه اتمی که بین دو هادی صلب با طول بی‌نهایت قرار گرفته، ارائه شده است. جرم هر یک از اتمها در سامانه مرکزی که بوسیله فنرهایی با ثابت C به هم متصل شده‌اند، برابر با M_0 فرض می‌شود. ابتدا به حل معادلات حرکت کلاسیکی برای اتمهای مرتعش می‌پردازیم. با توجه به اتمهای ابتدایی و انتهایی که به دو هادی صلب متصل هستند شرایط مرزی بسته را لحاظ کرده و جابجایی اتم i ام از مکان ترازمندی‌اش در سه مد فونونی به صورت زیر به دست می‌آید

$$\begin{aligned} u_{i,1} &= 1/\sqrt{2} \sin(\pi i/4), \\ u_{i,2} &= 1/\sqrt{2} \sin(2\pi i/4), \\ u_{i,3} &= 1/\sqrt{2} \sin(3\pi i/4), \end{aligned} \quad 1$$

همچنین بسامدهای ویژه، برای مدهای فونونی با برابر صفر قرار دادن دترمینان ماتریس دینامیکی به صورت زیر حاصل می‌شود:

$$\begin{aligned} \omega_1 &= 2\omega_0 |\sin \pi/8|, \\ \omega_2 &= 2\omega_0 |\sin 2\pi/8|, \\ \omega_3 &= 2\omega_0 |\sin 3\pi/8|, \end{aligned} \quad 2$$

که در آن $\omega_0 = \sqrt{C/M_0}$ بسامد نوعی اتمها در مولکول و از مرتبه 10^{12} Hz است. هامیلتونی الکترونی کل سامانه به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$H = H_L + H_{ML}^m + H_M^m + H_{MR}^m + H_R, \quad 3$$

مطالعه فونونها به دلیل نقش مهمی که بر پراکندگی الکترونی داشته و از این طریق بر رسانش الکتریکی و خواص گرمایی مواد تأثیر می‌گذارند دارای اهمیت زیادی است [۲]، برای بررسی اثر برهم‌کنش الکترون-فونون در تراپرد الکتریکی از روش‌های متفاوت استفاده می‌شود گاهی سهم رسانش کشسان و ناکشسان جداگانه در نظر گرفته می‌شود [۱۰ و ۱۱]. بررسی تأثیر برهم‌کنش الکترون-فونون و تغییرات دما بر رسانش در مولکول‌هایی با اثر تداخل کوانتومی، بیانگر حساسیت بیشتر رسانش این مولکولها در مقایسه با مولکول‌های بدون اثر تداخل کوانتومی است [۱۲ و ۱۳].

در این پژوهش سعی بر این است که با استفاده از روش استاندارد تابع گرین در رهیافت تنگبست و با در نظر گرفتن تقریب نزدیکترین همسایه، رسانش الکترونی مولکول‌های خطی در دمای غیرصفر و در حضور برهم‌کنش الکترون-فونون بررسی شود. محاسبات خود را در دمای مختلف و رژیم بی‌دررو انجام داده و فرض می‌کنیم که هادی‌های چپ و راست صلب بوده و دارای طول بی‌نهایت هستند و در واقع اثر دمای غیرصفر و برهم‌کنش الکترون-فونون را فقط بر سامانه مرکزی در نظر می‌گیریم.

که در آن $\beta_{L(R)}$ و $\varepsilon_{L(R)}$ به ترتیب انرژی‌های پرش و جایگاهی الکترون در هادی چپ (راست) هستند. بنابراین تابع گرین مولکول برای مدهای مختلف توسط رابطه زیر به دست می‌آید:

$$G_M^m = (\varepsilon I - H_M^m - \Sigma_L^m - \Sigma_R^m)^{-1}, \quad 8$$

که در آن ε انرژی الکترون ورودی و $\Sigma_{L(R)}^m$ خود انرژی مولکول به دلیل وجود هادی‌های چپ (راست) بوده و توسط روابط زیر داده می‌شود:

$$\Sigma_{L(R)}^m = \frac{(\beta_{ML(R)}^m)^2}{\beta_{L(R)}} e^{-i\theta_{L(R)}}, \quad 9$$

حال ضریب عبور الکترونی در مد m بر حسب انرژی و موقعیت اتمی به صورت زیر به دست می‌آید:

$$T_m = 4 \text{Im} \Sigma_L^m \text{Im} \Sigma_R^m | (G_M^m)_{1,3} |^2, \quad 10$$

که در آن $(G_M^m)_{1,3}$ عنصر سطر اول و ستون سوم از ماتریس تابع گرین با مد m است. با میانگین گیری حرارتی از رابطه ۱۰، در رژیم بی‌دررو و آنسامبل کانونیک، ضریب عبور در مد m و تنها بر حسب انرژی الکترون به دست می‌آید

$$\langle T_m(\varepsilon) \rangle = \frac{\text{tr}(T_m \exp(-\beta H_{ph}^m))}{\text{tr}(\exp(-\beta H_{ph}^m))}, \quad 11$$

که در آن β با دما رابطه عکس داشته $(1/k_B T)$ از این رو ضریب عبور تابعی وابسته به دما می‌شود، H_{ph}^m هامیلتونی فونونی سامانه در مد m است که به صورت زیر تعریف می‌شود:

$$H_{ph}^m = (a_m^\dagger a_m + 1/2) \hbar \omega_m \quad 12$$

به ترتیب عملگرهای خلق و فنا فونونی در مد m است. نهایتاً ضریب عبور الکترونی کل سامانه با میانگین گیری روی مدهای مختلف چنین به دست می‌آید:

$$T_{tot} = \frac{1}{3} (\langle T_1(\varepsilon) \rangle + \langle T_2(\varepsilon) \rangle + \langle T_3(\varepsilon) \rangle). \quad 13$$

که در آن $H_{L(R)}$ هامیلتونی هادی سمت چپ (راست)، H_M^m و $H_{ML(R)}^m$ به ترتیب هامیلتونی مولکول و هامیلتونی اتصال مولکول با هادی سمت چپ (راست) در مدهای مختلف است. سپس تأثیر برهم کنش الکترون-فونون با به کار بردن مدل سو-شریفر-هیگر، به صورت اختلالی در انرژی‌های پرش هامیلتونی‌های الکترونی وارد می‌شود [۱۶ و ۱۷]. بنابراین هامیلتونی مولکول و اتصال مولکول با هادی‌ها چنین به دست می‌آید:

$$H_M^m = \sum_{i=1}^3 \varepsilon_i c_i^\dagger c_i + \sum_{i=1}^2 \beta_{i,i+1}^m (c_i^\dagger c_{i+1} + c_i c_{i+1}^\dagger) \quad 14$$

$$H_{ML(R)}^m = \beta_{ML(R)}^m (c_0 c_1^\dagger + c_1 c_0^\dagger + c_3 c_4^\dagger + c_4 c_3^\dagger)$$

c_i و c_i^\dagger به ترتیب عملگرهای خلق و فنا الکترونی، ε_i انرژی جایگاهی الکترون در جایگاه i ام و $\beta_{i,i+1}^m$ انرژی پرش الکترون بین اتم‌های مجاور در مد ارتعاشی m است که برای اربیتال‌های s گونه با تغییرات مکان اتم‌ها چنین است:

$$\beta_{i,i+1}^m = \beta_{i,i+1} (1 - \lambda(u_{i+1,m} - u_{i,m})), \quad i=1,2 \quad 15$$

که در آن $\beta_{i,i+1}$ انرژی پرش الکترون بین اتم‌های مجاور در غیاب برهم کنش الکترون-فونون است. همچنین $\beta_{ML(R)}^m$ انرژی پرش الکترون در اتصال چپ (راست) است که با رابطه زیر بیان می‌شود:

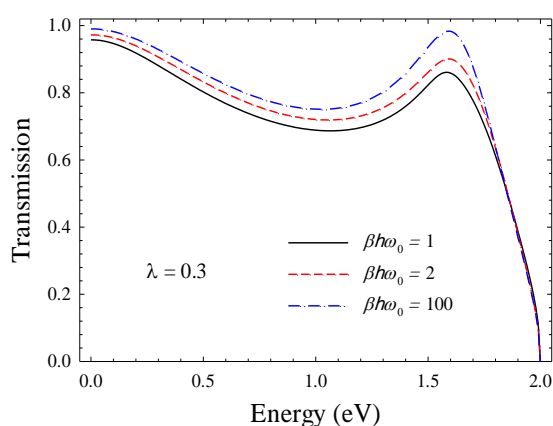
$$\beta_{ML}^m = \beta_{ML} (1 - \lambda u_{1,m}), \quad 16$$

$$\beta_{MR}^m = \beta_{MR} (1 - \lambda u_{3,m}),$$

که λ ثابت جفت‌شدگی الکترون-فونون و $\beta_{ML(R)}$ انرژی پرش در غیاب برهم کنش الکترون-فونون است. هامیلتونی هادی سمت چپ (راست) چنین است:

$$H_{L(R)} = \sum_{i=-\infty(4)}^{0(+\infty)} \varepsilon_{L(R)} c_i^\dagger c_i + \sum_{i=-\infty(4)}^{-1(+\infty)} \beta_{L(R)} (c_i^\dagger c_{i+1} + h.c.) \quad 17$$

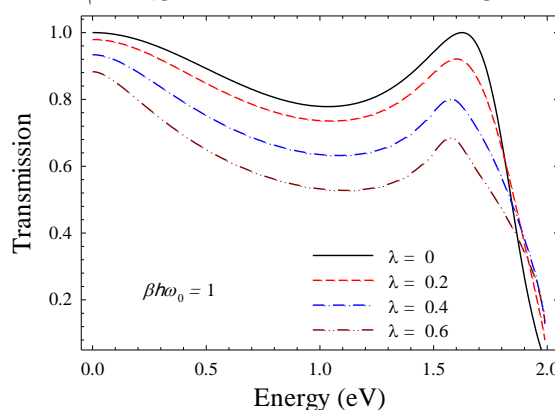
در این سامانه برهم کنش الکترون-فونون تنها در سامانه مرکزی و اتصالها وجود دارد و محاسبات در دمای مختلف و رژیم بی دررو انجام می شود. در بخش بعد با استفاده از روابط به دست آمده به بررسی تأثیر دمای غیر صفر و قدرت برهم کنش الکترون-فونون بر رسانش الکترونی این مولکول به صورت عددی می پردازیم.



شکل ۳. تغییرات ضریب عبور برحسب انرژی برای یک زنجیره ۳ اتمی مرتعش در حضور برهم کنش الکترون-فونون برای چند دمای متفاوت.

سامانه مرکزی، مولکول سه اتمی بوده که در حالت منزوی دارای سه ویژه مقدار انرژی خواهد بود. زمانی که آن را به هادیها متصل می کنیم، نمودار ضریب عبور برحسب انرژی، حول نقاطی که انرژی الکترون ورودی با ویژه مقادیر انرژی سامانه برابر است از خود رفتار تشدیدی نشان می دهد. بنابراین در نمودارهای رسانش سه قله حول انرژیهای 1.65 eV و 0 و -1.65 مشاهده می شود. با توجه به آن که ضریب عبور نسبت به انرژی تابعی زوج بوده و نمودار نسبت به نقطه ای با انرژی صفر متقارن است، تنها قسمت انرژیهای مثبت آن را رسم می کنیم. بدیهی است که در بلورهای ایده آل طبق قضیه بلوخ رسانندگی بی نهایت است و در مورد زنجیرهها، کوآنتیده و مضربی از $2e^2/h$ است. در واقع دور شدن ساختار از حالت ایده آل و منظم رسانندگی را کاهش می دهد. مثلاً وجود ناخالصیها، نقصهای شبکه ای و دما باعث پراکندگی

در این سامانه برهم کنش الکترون-فونون تنها در سامانه مرکزی و اتصالها وجود دارد و محاسبات در دمای مختلف و رژیم بی دررو انجام می شود. در بخش بعد با استفاده از روابط به دست آمده به بررسی تأثیر دمای غیر صفر و قدرت برهم کنش الکترون-فونون بر رسانش الکترونی این مولکول به صورت عددی می پردازیم.



شکل ۴. تغییرات ضریب عبور برحسب انرژی برای یک زنجیره سه اتمی مرتعش در حضور برهم کنش الکترون-فونون برای چند مقدار متفاوت قدرت برهم کنش الکترون-فونون.

نتایج و بحث

در این بخش تغییرات ضریب عبور یک مولکول خطی سه اتمی را که بین دو هادی فلزی قرار دارد، برحسب انرژی الکترون ورودی برای چند مقدار متفاوت قدرت برهم کنش الکترون-فونون و دما بررسی می کنیم. ابتدا توسط رابطه ۱۰ ضریب عبور الکترون را با وارون کردن ماتریس تابع گرین و استفاده از عنصر سطر اول و ستون آخر آن، برحسب انرژی و موقعیت اتمی به دست می آوریم. سپس میانگین حرارتی آن در آنسامبل کانونیک، توسط رابطه ۱۱، ضریب عبور برای هر مد و تنها برحسب انرژی را نتیجه می دهد. نهایتاً با استفاده از رابطه ۱۳، ضریب عبور الکترونی کل سامانه با میانگین گیری روی مدهای مختلف محاسبه می شود. بنابراین مقدار عددی ضریب عبور با جایگذاری مقادیر عددی پارامترهای تنگبست، دما و قدرت برهم کنش

مرتعش (فونون‌ها) نیز کمتر می‌شود. در واقع کاهش دما منجر به کاهش ارتعاشات اتمی و یا کم شدن سهم حالت‌های برانگیختگی اتم‌های مرتعش (که تعداد فونون‌ها را می‌دهد) می‌شود.

نتیجه گیری

در این مقاله تأثیر دما و قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون به‌طور مجزا بر رسانش الکترونی یک مولکول خطی سه اتمی که بین دو هادی ساده قرار دارد، در رژیم بی‌دررو مورد بررسی قرار گرفت. برای این منظور از روش تابع گرین در رهیافت تنگ‌بست با در نظر گرفتن تقریب نزدیکترین همسایه بهره گرفتیم. نتایج نشان می‌دهد که با افزایش قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون و یا افزایش دما پراکندگی الکترون ناشی از ارتعاشات اتمی افزایش می‌یابد و ضریب عبور برای همه انرژی‌ها به‌جز در لبه‌های نوار انرژی کاهش می‌یابد.

مراجع

- [1] A.M. Aviram, A. Ratner, Molecular rectifiers . *Chemical Physics Letters* 29 (1974) 277-283.
- [2] S. Datta, *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*, Cambridge University Press, Cambridge, (1997).
- [3] G. Cuniberti, G. Fagas, K. Richter, *Introducing Molecular Electronics*, Springer, Berlin Heidelberg, (2005).
- [4] M. Ratner, A brief history of molecular electronics. *Nature Nanotechnology* 8 (2013) 378-381.
- [5] Y. Sungtaek, Phonon Heat Transport in Silicon Nanostructures. *Applied Physics Letters* 87 (2005) 153106-153109.

الکترون از ناخالصی‌ها، نقص‌ها و اتم‌های مرتعش شده و همین امر کاهش رسانش را در پی خواهد داشت. در شکل ۲ مشاهده می‌شود که با افزایش قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون، میزان پراکندگی الکترونی در اثر برخورد با اتم‌های مرتعش افزایش یافته و ضریب عبور برای همه انرژی‌ها به‌جز در لبه‌های نوار انرژی کاهش می‌یابد. در لبه‌های نوار انرژی با افزایش قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون ضریب عبور افزایش یافته است. در اینجا به نظر می‌رسد که فونون‌ها به رسانش الکترونی کمک می‌کنند. این پدیده که در اصطلاح به «رسانش در تعامل با فونون» (Phonon-assisted conductance) مشهور است، پدیده‌ای است که می‌تواند در ابررساناها و ساختارهای نانو مقیاس رخ دهد [۱۷]. در اینجا وقوع چنین پدیده‌ای را می‌توان به ایجاد شبه ترازهای جدید الکترونی در لبه‌های نوار انرژی سامانه مرکزی توسط برهم‌کنش الکترون-فونون مربوط ساخت.

برای یک مقدار مشخص قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون، با توجه به این نکته که سرعت گروه الکترون تابع نزولی از انرژی است، بنابراین با افزایش انرژی در لبه‌های نوار انرژی، سرعت گروه کاهش یافته و در نتیجه پراکندگی الکترونی افزایش یافته و به تبع آن رسانش کاهش می‌یابد. لازم به ذکر است که سرعت گروه برحسب انرژی الکترون به‌صورت

$$V_g = a\hbar^{-1} \sqrt{4\beta_L^2 - (\varepsilon - \varepsilon_L)^2}$$

به دست می‌آید [۸].

در شکل ۳ ضریب عبور این مولکول سه اتمی برحسب انرژی الکترون ورودی در دماهای مختلف برای یک مقدار ثابت قدرت برهم‌کنش الکترون-فونون (۰/۳) نشان داده شده است. با توجه به شکل دیده می‌شود که مقدار ضریب عبور الکترونی با کاهش دما افزایش می‌یابد. زیرا با کاهش دما ارتعاشات اتمی کمتر و پراکندگی الکترونی در اثر برخورد با این اتم‌های

- magnetoresistance. *Journal of Physics: Condens Matter* 26 (2014) 345304-345319.
- [12] S. Ballmann, R. Hartle, P.B. Coto, M. Mayor, M. Elbing, M.R. Bryce, M. Thoss, H.B. Weber, Experimental Evidence for Quantum Interference and Vibrationally Induced Decoherence in Single-Molecule Junctions. *Physical Review Letter* 109 (2012) 056801.
- [13] T. Markussen, K.S. Thygesen, Temperature effects on quantum interference in molecular junctions. *Physical Review B* 89 (2014) 085420.
- [14] W.P. Su, J.P. Schrieffer, A.J. Heeger, Soliton excitations in polyacetylen. *Physical Review B* 22 (1980) 2099.
- [15] A. Nitzan, Electron Transmission through Molecules and Molecular Interfaces. *Annual Review of Physical Chemistry* 52 (2001) 681-750.
- [16] M. Mardaani, H. Rabani, A solvable model for electronic transport of a nanowire in the presence of effective impurities, *Superlattices and Microstructures* 59 (2013) 155-162.
- [17] L.J. Challis, Electron-phonon Interactions in Low-dimensional Structures, Oxford University Press (2003).
- [6] D.L. Nika, E.P. Pokatilov, A.S. Askerov, A.A. Balandin, Phonon thermal conduction in graphene: Role of Umklapp and edge roughness scattering. *Physical Review B* 79 (2009) 155413.
- [7] J.T. Lu, H. Zhou, J.W. Jiang, J.Sh. Wang, Effects of electron-phonon interaction on thermal and electrical transport through molecular nano-conductors, *AIP Advances* 5 (2015) 0532044-0532348.
- [8] M. Mardaani, H. Rabani, Coherent electronic conductance of a nanowire in the presence of electron-phonon interaction. *Physica Status Solidi B* (2014) 1-6.
- [9] M. Mardaani, H. Rabani, E. Esmaili, A. Shariati, The effect of driven electron-phonon coupling on the electronic conductance of a polar nanowire. *Journal of Applied Physics* 118 (2015) 054306-054311.
- [10] L.E.F. Foa Torres, H.M. Pastawski, S.S. Makler, Tuning a Resonance in the Fock Space: Optimization of Phonon Emission in a Resonant Tunneling Device. *Physical Review B* 64 (2001) 193304.
- [11] C.J. Cattena, L.J. Fernandez-Alcazar, R.A. Bustos-Marun, D. Nozaki, H.M. Pastawski, Generalized multi-terminal decoherent transport: recursive algorithms and applications to SASER and giant

Electronic conductance of a linear triatomic molecule at nonzero temperatures

Ashrafalsadat Shariati^{1,*}, Hassan Rabani^{1,2}, Mohammad Mardaani^{1,2}

¹Department of Physics, Faculty of Science, University of Shahrekord, Shahrekord

²Nanotechnology Research Center, University of Shahrekord, Shahrekord

Abstract

In this paper, we obtain electronic transport of a linear triatomic molecule which is located between two semi-infinite simple leads by using the standard Green's function at the tight binding approach. Also, we investigate the effect of electron–phonon interaction and temperature on electronic transport of molecule in the adiabatic regime. The results show that by increasing the strength of e-ph interaction, the rate of the electron scattering increases due to the vibration of atoms so the transmission coefficient decreases for all energies except the edges of the energy band. Also, by decreasing the temperature and reducing in atomic vibration, electron scattering declines, then while electron conductance increases.

Keywords: Green's function, tight-binding, nonzero temperature, linear triatomic molecule.