

مطالعه تحلیلی ترابرد الکترونی یک چندپار پلی‌پارافینیلن در تقریب همسایه دوم

اشرف السادات شریعتی*، عصمت اسمعیلی، حسن ربانی، محمد مردانی

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

چکیده

در این مقاله به مطالعه تحلیلی رسانش الکترونی یک چندپار پلی‌پارافینیلن که بین دو هادی ساده قرار گرفته در رهیافت تنگابست و با در نظر گرفتن پرش الکترون بین همسایه‌های اول و دوم پرداخته شده است. ابتدا هامیلتونی چندپار پلی‌پارافینیلن را به هامیلتونی زنجیره پلی‌استیلن مانند تبدیل کرده و سپس روابط تحلیلی را به کمک روش تابع گرین برای محاسبه ضریب عبور الکترونی به دست می‌آوریم. در نتایج عددی سامانه با در نظر گرفتن پرش به همسایه دوم، تقارن نمودار ضریب عبور الکترونی حول انرژی صفر از بین رفته و اثر تشدید فانو مشاهده شده و تعداد دره‌های ضد تشدید به دلیل اثر تداخل ویرانگر کوانتومی افزایش می‌یابد.

کلیدواژگان: پلی‌پارافینیلن، تابع گرین، تنگابست، همسایه دوم.

مقدمه

در بررسی رسانش الکترونی سیم‌های مولکولی در رهیافت تنگابست معمولاً از تقریب نزدیک‌ترین همسایه استفاده می‌شود و از اثرات پرش الکترون بین همسایه‌های بعدی صرف‌نظر می‌شود، اما از آنجایی که اربیتال‌های p و d نسبت به اربیتال s جایگزیدگی کمتری دارند، در نظر گرفتن همسایه دوم نیز در برخی موارد دارای اهمیت می‌شود [۸]. از طرف دیگر الکترون‌هایی که در پیوند هیبریدی π هستند، به راحتی می‌توانند بین دو اتم جابه‌جا شوند. بنابراین در مقایسه با الکترون‌هایی که در پیوند هیبریدی σ هستند، رسانش الکترونی بیشتری دارند. در این مقاله با استفاده از روش تابع گرین در رهیافت تنگابست به محاسبه تحلیلی ترابرد الکترونی یک چندپار پلی‌پارافینیلن متصل

در دهه‌های اخیر برای طراحی و عرضه قطعات الکترونیکی در اندازه کوچکتر، بازده و کارایی بالاتر تلاش‌های بسیاری شده است. از جمله تحقیقاتی در زمینه بسپارهای همیوگ صورت گرفته [۱ و ۲] که نشان می‌دهد این ساختارها در طراحی سیم‌های مولکولی اهمیت دارند [۳]. امروزه از مولکول‌های منفرد یا سیم‌های مولکولی به عنوان قطعات اصلی در الکترونیک استفاده می‌شود [۴]. برای مثال یک مولکول بنزن که بین دو الکتروود طلا قرار می‌گیرد، در ساخت دیود و ترانزیستور مولکولی به کار گرفته شده است [۵]. همچنین نتایج به دست آمده از آزمایش‌هایی که در آنها یک یا چند مولکول بین الکتروودهای رسانا قرار گرفته، نشان می‌دهد که رسانش مولکولی می‌تواند به ساختار اربیتالی آن وابسته باشد [۶ و ۷].

*نویسنده مسئول: a.shariatiii@yahoo.com

برای این منظور ابتدا محاسبات را برای یک حلقه بنزن انجام داده و سپس آن را به مورد چندپار تعمیم می‌دهیم. برای محاسبه ترابرد در نگرش تابع گرین از معادله شرودینگر حاکم بر توابع موج اتم‌های کربن شروع می‌کنیم:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_s & -\beta_2 & 0 & -\beta_2 & -\beta_d \\ -\beta_s & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_d & -\beta_2 & 0 & -\beta_2 \\ -\beta_2 & -\beta_d & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_s & -\beta_2 & 0 \\ 0 & -\beta_2 & -\beta_s & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_d & -\beta_2 \\ -\beta_2 & 0 & -\beta_2 & -\beta_d & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_s \\ -\beta_d & -\beta_2 & 0 & -\beta_2 & -\beta_s & \varepsilon - \varepsilon_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_1 \\ \psi_2 \\ \psi_3 \\ \psi_4 \\ \psi_5 \\ \psi_6 \end{pmatrix} = 0 \quad (1)$$

که ε_0 انرژی جایگاهی اتم کربن است و بدون از دست دادن کلیت مسأله آن را صفر اختیار می‌کنیم. همچنین β_2 انرژی پرش الکترون بین همسایه‌های دوم، β_s و β_d انرژی‌های پرش الکترون بین پیوندهای یگانه و دوگانه است. نظر به اینکه حلقه‌های بنزن از طریق اتم‌های اول و چهارم با یکدیگر اتصال دارند، برای محاسبه انرژی پرش مؤثر ($\tilde{\beta}$) و انرژی جایگاهی مؤثر ($\tilde{\varepsilon}$) با حذف سطر و ستون اول و چهارم اثر سایر اتم‌ها را روی اتم‌های شماره ۱ و ۴ می‌اندازیم. بدین وسیله تمام ψ ها را برحسب ψ_1 و ψ_4 به دست می‌آوریم:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_d & 0 & -\beta_2 \\ -\beta_d & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_2 & 0 \\ 0 & -\beta_2 & \varepsilon - \varepsilon_0 & -\beta_s \\ -\beta_2 & 0 & -\beta_s & \varepsilon - \varepsilon_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \psi_2 \\ \psi_3 \\ \psi_5 \\ \psi_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \beta_s \psi_1 + \beta_2 \psi_4 \\ \beta_s \psi_4 + \beta_2 \psi_1 \\ \beta_d \psi_4 + \beta_2 \psi_1 \\ \beta_d \psi_1 + \beta_2 \psi_4 \end{pmatrix} \quad (2)$$

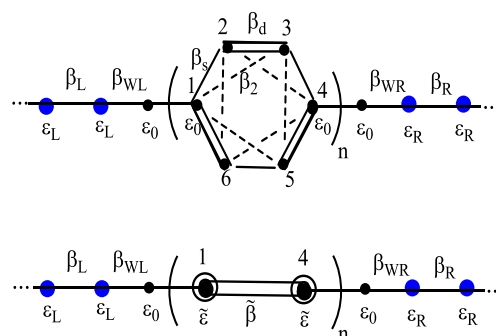
سپس با نوشتن ψ_2 ، ψ_3 ، ψ_5 ، ψ_6 برحسب ψ_1 و ψ_4 و قرار دادن آنها در معادلات زیر:

$$\begin{aligned} (\varepsilon - \varepsilon_0)\psi_1 - \beta_s \psi_2 - \beta_2 \psi_3 - \beta_2 \psi_5 - \beta_d \psi_6 &= 0, \\ (\varepsilon - \varepsilon_0)\psi_4 - \beta_2 \psi_2 - \beta_s \psi_3 - \beta_d \psi_5 - \beta_2 \psi_6 &= 0, \end{aligned} \quad (3)$$

به دو هادی ساده با در نظر گرفتن انرژی پرش الکترون بین همسایه‌های اول و دوم می‌پردازیم.

مدل نظری و فرمولبندی

پلی‌پارافینیلن بسیاری است که از واحدهای تکرار شونده بنزن تشکیل شده است که حلقه‌های بنزن به صورت پارا به یکدیگر متصل شده‌اند. در مولکول بنزن به‌ازاء هر اتم کربن یکی از اربیتال‌های p با اربیتال اتم‌های راست و چپ خود همپوشانی کرده و سه پیوند دوگانه π و سه پیوند یگانه شکل می‌گیرد. در واقع در مولکول بنزن وجود یک پیوند مرکزی به‌جای سه پیوند دوگانه مجزا باعث می‌شود که الکترون‌های غیر مستقر به‌طور یکنواخت روی شش اتم کربن حرکت کنند که این امر لزوم در نظر گرفتن اثر همسایه دوم را آشکار می‌کند. هامیلتونی چندپار پلی‌پارافینیلن با در نظر گرفتن پرش به همسایه اول و دوم (شکل ۱ الف) را می‌توان به هامیلتونی یک زنجیره پلی‌استیلن مانند (شکل ۱ ب) تبدیل کرد.



شکل ۱. الف) طرح‌واره یک سامانه مرکزی شامل یک چندپار پلی‌پارافینیلن و دو اتم که به دو هادی ساده متصل است. ب) باز بهنجارش این ساختار به یک زنجیره پلی‌استیلن مانند.

که در آن $\beta_{WL(R)}$ انرژی پرش بین سامانه مرکزی و هادی سمت چپ (راست)، $\beta_{L(R)}$ انرژی پرش بین جایگاه‌های متوالی هادی سمت چپ (راست)، $\mathcal{E}_{L(R)}$ انرژی جایگاهی اتم‌ها در هادی سمت چپ (راست) است. با تبدیل انرژی جایگاهی دو اتم انتهایی به $\tilde{\mathcal{E}}$ ، می‌توان جملات اضافه را در خود انرژی وارد کرد. به این ترتیب خودانرژی بهنجار شده از رابطه زیر تبعیت می‌کند

$$\tilde{\Sigma}_{L(R)} = \Sigma_{L(R)} + \mathcal{E}_0 - \tilde{\mathcal{E}}. \quad ۸$$

ضریب عبور الکترونی توسط رابطه زیر محاسبه می‌شود [۱۱].

$$T(\mathcal{E}) = 4 \text{Im} \tilde{\Sigma}_L \text{Im} \tilde{\Sigma}_R |G_{1N}|^2, \quad ۹$$

در اینجا $N = 2n + 2$ نشان دهنده تعداد اتم‌های بازبهنجار شده در سامانه مرکزی و n تعداد حلقه‌های بنزن است. G_{1N} عنصر سطر اول و ستون N ام ماتریس گرین است که به صورت زیر با درمینان وارون ماتریس تابع گرین، \tilde{D}_N ، رابطه دارد:

$$G_{1N} = \frac{1}{\beta_W \tilde{D}_N(\mathcal{E}, \tilde{\sigma}_L, \tilde{\sigma}_R)}, \quad ۱۰$$

که در آن β_W یک در نظر گرفته شده است. همچنین درمینان وارون ماتریس تابع توسط رابطه زیر محاسبه می‌گردد:

$$11$$

$$\begin{aligned} \tilde{D}_N(\mathcal{E}, \tilde{\sigma}_L, \tilde{\sigma}_R) = & D_N(\xi) \left(1 - \frac{\tilde{\sigma}_L + \tilde{\sigma}_R}{\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}}} \right) - 4\tilde{\sigma}_L \tilde{\sigma}_R \nu D_{N-4}(\xi) \\ & + D_{N-2}(\xi) \left(\tilde{\sigma}_L \tilde{\sigma}_R - \frac{\tilde{\sigma}_L + \tilde{\sigma}_R}{\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}}} (\nu - 1)^2 \right), \end{aligned}$$

توابع موج اتم‌های ۱ و ۴ به هم ربط داده می‌شوند که با مقایسه معادلات جدید با معادلات مربوط به یک مولکول دو اتمی:

$$(\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}})\psi_1 - \tilde{\beta}\psi_4 = 0.$$

$$(\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}})\psi_4 - \tilde{\beta}\psi_1 = 0.$$

در نهایت انرژی پرش مؤثر و انرژی جایگاهی مؤثر به صورت زیر به دست می‌آیند

$$\tilde{\mathcal{E}} = \mathcal{E} - \frac{\mathcal{E}^3 - 2\mathcal{E}^2\beta_2 + 2\beta_2(\beta_2^2 - \beta_d\beta_s) - \mathcal{E}(\beta_2^2 + \beta_d^2 + \beta_d\beta_s + \beta_s^2)}{(-\beta_s^2 + (\mathcal{E} + \beta_d)(\mathcal{E} + \beta_s))(\mathcal{E}^2 - \beta_2^2 + \beta_d\beta_s - \mathcal{E}(\beta_d + \beta_s))} \times ((\mathcal{E} + \beta_2)^2 - \beta_d^2 + \beta_d\beta_s - \beta_2^2), \quad \mathcal{E}$$

$$\tilde{\beta} = \frac{(\beta_d + \beta_s)(2\mathcal{E}\beta_2 - \beta_2^2 + \beta_d\beta_s)((\mathcal{E} + \beta_2)^2 - \beta_d^2 + \beta_d\beta_s - \beta_s^2)}{(-\beta_s^2 + (\mathcal{E} + \beta_d)(\mathcal{E} + \beta_s))(\mathcal{E}^2 - \beta_2^2 + \beta_d\beta_s - \mathcal{E}(\beta_d + \beta_s))}, \quad \mathcal{E}$$

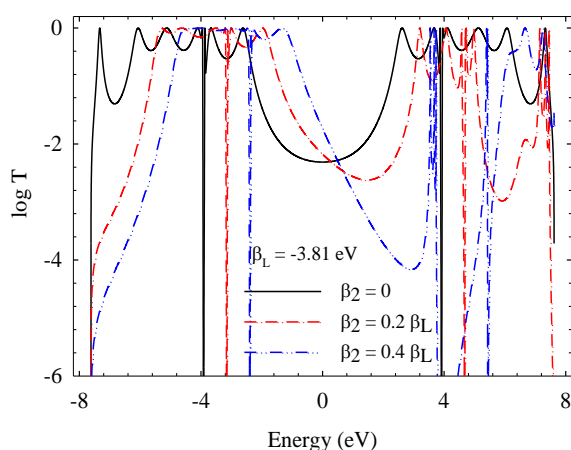
تا این مرحله توانستیم سامانه مرکزی را به یک زنجیره پلی‌استیلین مانند با انرژی جایگاهی مؤثر $\tilde{\mathcal{E}}$ و دو اتم در هر دو انتهای زنجیره با انرژی جایگاهی \mathcal{E}_0 تبدیل کنیم. در ادامه با استفاده از روش تابع گرین به مطالعه تحلیلی سامانه نشان داده شده در شکل ۱ ب می‌پردازیم. عناصر وارون ماتریس تابع گرین برای چندپار پلی‌پارافینیلن که به یک زنجیره پلی‌استیلین مانند بهنجار شده، به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$(G_W^{-1})_{ij} = ((\mathcal{E} - \mathcal{E}_0 - \Sigma_L)\delta_{i,1} + (\mathcal{E} - \mathcal{E}_0 - \Sigma_R)\delta_{i,N} + (\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}})) \times \delta_{i,j} - (\beta_s(\delta_{2i-1,2j} + \delta_{2i,2j-1}) + \tilde{\beta}(\delta_{2i+1,2j} + \delta_{2i,2j+1}))\delta_{i,j},$$

که در آن $\Sigma_{L(R)}$ خودانرژی سامانه مرکزی به خاطر وجود هادی سمت چپ (راست) است که با در نظر گرفتن تقریب نزدیک‌ترین همسایه به صورت زیر به دست می‌آید [۹ و ۱۰]

$$\Sigma_{L(R)}(\mathcal{E}) = \frac{\beta_{WL(R)}^2}{\beta_{L(R)}} \left(\frac{\mathcal{E} - \mathcal{E}_{L(R)}}{2\beta_{L(R)}} + \sqrt{\frac{(\mathcal{E} - \mathcal{E}_{L(R)})^2}{4\beta_{L(R)}^2} - 1} \right), \quad ۷$$

متقارن بوده اما با در نظر گرفتن آن تقارن از بین رفته و گاف انرژی به سمت انرژی‌های بالاتر جابجا شده و پدیده تونل‌زنی الکترون سخت‌تر می‌شود. همچنین با افزایش β_2 ، حول نقطه $\mathcal{E} = 5.5\text{eV}$ پدیده تشدید فانو ظاهر گشته که به صورت یک افزایش و کاهش ناگهانی در نمودار رسانش قابل مشاهده است.



شکل ۲. لگاریتم ضریب عبور الکترونی سامانه باز بهنجار شده با چهار حلقه بنزن برای مقادیر مختلف انرژی پرش الکترون به همسایه دوم.

نتیجه‌گیری

در این مقاله با استفاده از رهیافت تنگابست خواص ترابرد الکترونی یک چندپار پلی‌پارافینیلن را که بین دو هادی نیمه نامتناهی ساده قرار دارد، با در نظر گرفتن انرژی‌های پرش الکترون بین همسایه‌های اول و دوم در حلقه بنزنی، مورد بررسی قرار دادیم. ابتدا به روش حذفی، هامیلتونی زنجیره پلی‌پارافینیلن را به هامیلتونی یک زنجیره پلی‌استیلن مانند تبدیل کرده و سپس به کمک روش تابع گرین، یک رابطه تحلیلی برای ضریب عبور الکترونی به صورت تابعی از انرژی الکترون ورودی و پارامترهای تنگابست سامانه، به دست آوردیم. نتایج محاسبات نشان می‌دهد که نمودار

که در آن $\tilde{\sigma}_{L(R)}$ خودانرژی بهنجار شده بدون بعد، $D_N(\xi) \equiv \tilde{D}_N(\xi, 0, 1)$ و $v = (\tilde{\beta} - \beta_s) / (\tilde{\beta} + \beta_s)$ بوده که تنها به پارامترهای مرکزی در غیاب هادی‌ها وابسته هستند و به شکل زیر به دست می‌آید [۱۲]

$$D_l(\xi) = (1-v^2)^l \frac{\eta^{l+1} - \eta^{-l-1}}{\eta - \eta^{-1}}, \quad (12)$$

در نهایت η و ξ را مطابق روابط زیر محاسبه کردیم

$$\eta = \xi + \sqrt{\xi^2 - 1}, \quad (13)$$

$$\xi = \frac{(\mathcal{E} - \tilde{\mathcal{E}})^2 - 2(v^2 + 1)}{2(1-v^2)}. \quad (14)$$

نتایج و بحث

در این بخش ضریب عبور الکترونی چندپار پلی‌پارافینیلن با ۴ حلقه بنزن به اضافه دو اتم در دو انتهای آن برحسب انرژی الکترون ورودی را برای چند مقدار متفاوت β_2 با استفاده از روابط به دست آمده، رسم می‌کنیم. در این نمودار مقادیر انرژی‌های پرش به صورت $\beta_s = -3.29\text{eV}$ ، $\beta_d = -4.3$ و $\beta_{WL(R)} = 0.8\beta_L$ و $\beta_{L(R)} = (\beta_s + \beta_d) / 2$ تمام انرژی‌های جایگاهی برای اتم‌های سامانه صفر در نظر گرفته می‌شود [۱۳]. با توجه به شکل ۲ با تنها لحاظ کردن پرش الکترون به همسایه اول، نمودار ضریب عبور الکترونی نسبت به $\mathcal{E} = 0$ تقارن دارد و به علت ساختار حلقوی بنزن، پدیده‌های ضد تشدید در نمودار سیاهرنگ مشاهده می‌شود. وجود برهم‌کنش همسایه دوم سبب افزایش تعداد حلقه‌ها و مسیرهای موجود نسبت به حالت وجود فقط برهم‌کنش همسایه اول می‌شود. بنابراین تداخل ویرانگر کوانتومی توابع موج الکترون افزایش یافته و تعداد پدیده‌های ضد تشدید در نمودارهای مربوط به همسایه دوم بیشتر می‌گردد. گاف انرژی در غیاب برهم‌کنش همسایه دوم

Experiment. World Scientific Publishing Company (2010).

[6] C. Kerguegris, J.P. Bourgoin, S. Palacin, D. Esteve, C. Urbina, M. Magoga, C. Joachim, Electron transport through a metal-molecule-metal junction. *Physical Review B* 59 (1999) 12505-12513.

[7] S.V. Aradhya, L. Venkataraman, Single-molecule junctions beyond electronic transport. *Nature Nanotechnology* 8 (2013) 399-410.

[8] E.G. Emberly, G. Kirczenow, Theoretical study of electrical conduction through a molecule connected to metallic nanocontacts. *Physical Review B* 58 (1998) 10911-10920.

[9] S. Datta, Electronic Transport in Mesoscopic Systems, Cambridge University Press, Cambridge, (1997).

[1۰] M. Mardaani, H. Rabbani, A. Esmaili, An analytical study on electronic density of states and conductance of typical nanowires. *Solid State Communications* 151 (2011) 928-932.

[۱۱] D.S. Fisher, P.A. Lee, Relation between conductivity and transmission matrix. *Physical Review B* 23 (1981) 6851-6854.

[۱۲] M. Mardaani, K. Esfarjani, Analytical results on ballistic transport in a periodic molecular wire. *Chemical Physics* 317 (2005) 43-48.

[۱۳] B. E. Kohler, A simple model for linear polyene electronic structure, *Chemical Physics* 93 (1990) 5838-5842.

ضریب عبور الکترونی برحسب انرژی در حضور پرش الکترون بین فقط همسایه‌های اول متقارن است. در حالیکه در نظر گرفتن پرش الکترون بین همسایه‌های دوم در حلقه‌های بنزنی باعث از بین رفته این تقارن می‌شود. همچنین در نظر گرفتن این برهم‌کنش باعث افزایش تعداد دره‌های ضد تشدید به دلیل بیشتر شدن تعداد مسیرها برای حرکت الکترون و وقوع اثر تداخل ویرانگر کوانتومی، می‌گردد. افزایش مقدار انرژی پرش همسایه دوم حتی منجر به وقوع پدیده تشدید فانو در طیف رسانش خواهد شد.

مراجع

[1] A.J. Heeger, S. Kivelson, J.R. Schrieffer, W.P. Su, Solitons in conducting polymers. *Reviews of Modern Physics* 60 (1998) 585-781.

[2] M. Paulsson, S. Stafstorm, Theoretical study of electron transport along self assembled graphitic nanowires. *Condensed Matter* 12 (2000) 9433-9440.

[3] 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.

[4] V.J. Goldman, D.C. Tsui, J.E. Cunningham, Evidence for LO-phonon-emission-assisted tunneling in double-barrier heterostructures, *Physical Review B* 36 (1987) 7635-7637.

[5] J.C. Cuevas, E. Scheer, Molecular Electronics: An Introduction to Theory and

Analytical study of the electronic transport of poly-para-phenylene at the second neighbor approximation

Ashrafalsadat Shariati*, Esmat Esmaili, Hassan Rabani, Mohammad Mardaani

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

Abstract

In this paper, we study the electronic conductance of a poly-para-phenylene oligomer which is embedded between two simple metallic leads within the tight-binding approach and by considering the nearest and next neighbor electron hopping energies. At the first, the Hamiltonian of the poly-para-phenylene oligomer is converted to the Hamiltonian of a polyacetylene-like chain. Then, with the help of Green's function method, an analytic formula is given in order to calculate the electronic transmission coefficient. The numerical results show that the second neighbor interaction destroys the symmetry of the electron transmission as a function of energy with respect to zero energy. Moreover, due to the destructive quantum interference effect, in the conductance spectra we see more anti-resonances, and also a Fano resonance will be observed.

Keywords: poly-para-phenylene, Green's function, tight-binding, next neighbor.

* Corresponding Author: a.shariatii@yahoo.com