

碳链输运对基团吸附的敏感性分析*

邱 明 张振华[†] 邓小清

(长沙理工大学物理与电子科学学院, 长沙 410114)

(2009 年 10 月 10 日收到; 2009 年 12 月 31 日收到修改稿)

基于局域原子轨道的密度泛函理论和非平衡格林函数方法, 研究了碳链输运特性对分别吸附 7 种常见官能团 NO_2 , CN , CHO , Br , C_6H_5 , $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ 和 NH_2 时的敏感性. 计算表明, 电流对 C_6H_5 和 CHO 的吸附最为敏感, 其次是对 CN 和 $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ 的吸附, 在某些偏压下电流有大幅度的下降, 其值仅为未吸附官能团体系的 1/2, 甚至接近 1/3. 对于吸附官能团为 NO_2 , NH_2 及 Br 时, 电流变化较小. 这种边基对输运的影响是由于基团的吸附使本征通道被强烈抑制、碳链上布居数改变、最高已占分子轨道及最低未占分子轨道的离域性降低以及共振分子轨道的改变所造成.

关键词: 碳链, 输运特性, 密度泛函理论, 非平衡格林函数

PACC: 7115M, 3450D, 7210

1. 引 言

近年来, 基于 C 原子结构的纳米材料(如碳纳米线^[1-5]、石墨烯^[6-9]、碳纳米管^[10-17]等)的许多有趣特性的不断涌现, 引起了人们广泛关注, 并对此进行了深入研究, 这为电子器件的小型化奠定了坚实的基础. 碳链作为一维 π 电子系统, 大量活跃的 π 电子使其具有很强的导电性, 在输运方面的作用非常显著, 一般可以用作纳米器件系统之间的连接导线. 最近人们对其电学特性进行了广泛的探究. 例如, Lang 等^[18]使用密度泛函理论(DFT)研究了不同平行距离双碳链在双电极系统下的输运性质, 展示了碳链间相互作用与其低压电导振荡之间的关系. Pati 等^[19]使用第一性原理的方法并结合 DFT 和朗道理论研究了电子自旋对于碳链输运的影响, 指出碳链在 Co 原子作为接触点的情况下在基态时具有反铁磁性, 同时还分析了碳链的电子结构与其磁性的内在联系, 并为后续研究长碳链打下了很好的理论基础. Khoo 等^[20]结合实验结果, 以加帽(5,5)碳纳米管为电极, 研究了碳链输运与其原子数之间的关系, 展示在该种情况下, 奇数原子碳链的输运电流远强于偶数原子碳链, 而且发现在输

运中存在的负微分电导现象与原子数无关, 并详述了负微分电导的成因. Wang 等^[21]使用格林函数和 DFT 计算了夹在两 Al(100)电极中由 4—9 个 C 原子组成的碳链在低频下的直流和交流电导振荡问题, 指出平均传输系数 T_{av} 才是决定系统动态响应的关键因素.

由以上所述可知, 目前对碳链输运性质的研究中主要集中在碳链中 C 原子数带来的平衡电导的振荡现象、自旋带来的磁电阻及不同接触原子对其磁性的影响等. 但在具体的实验过程中, 由于碳链的活性很强, 很容易吸附不同官能团, 那么这些吸附的官能团对碳链输运稳定性的影响将成为一个亟待研究的问题. 本文采用基于 DFT 和非平衡格林函数(NEGF)的第一性原理的方法, 研究了由 6 个 C 原子组成的碳链及在其上特定位置吸附硝基(NO_2)、氰基(CN)、醛基(CHO)、卤仿基(Br)、苯基(C_6H_5)、吡啶($\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$)和氨基(NH_2)对于碳链输运稳定性的影响, 并在双探针系统中模拟实现. 通过分析吸附不同官能团的碳链的输运性质, 我们发现吸附官能团为 CHO , CN , C_6H_5 和 $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ 时, 碳链的输运电流减弱为未吸附官能团碳链的 1/2 甚至 1/3, 而吸附官能团为 NO_2 和 NH_2 时, 碳链的输运电流在特定电压范围下有略微增强的现象.

* 国家自然科学基金(批准号:60771059)、湖南省教育厅科研基金(批准号:08A005, 08C110)和长沙理工大学重点学科建设计划资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: cscuzh@163.com

2. 模型和方法

我们以 6 个 C 原子组成的单原子链及在位置 R 处吸附不同官能团组成复合分子,并选用 Au 原子作为金属电极原子,建立了如图 1 所示的电极-分子-电极的三明治夹心结构研究模型. 碳链是由 sp 杂化轨道组成的三键和单键交替出现的炔烃. 选取的基团有 NO_2 , CN , CHO , Br , C_6H_5 , $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ 和 NH_2 共 7 种,包括了吸电子基团和给电子基团. 6 原子碳链与这些基团构成的复合体系分别记为

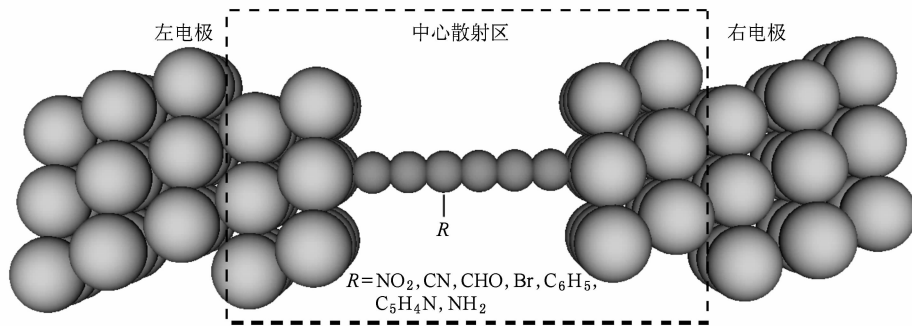


图 1 所研究的器件分子体系结构示意图

在电流模拟计算之初,我们使用了准 Newton 优化算法对模型系统的几何结构进行优化,将系统原子之间的残余应力减少到 0.005 eV/nm 之内. 电子结构以及电流-偏压 (I - V) 特性等的计算利用基于 DFT 和 NEGF 的第一性原理方法 (ATK 软件). C 原子、N 原子、O 原子和 Br 原子的价电子轨道基函数均选为双 ζ 函数加双极化 (DZDP), Au 原子和 H 原子的价电子轨道基函数选为单 ζ 函数加极化 (SZP),并通过 Siesta 局域化数字轨道进行具体运算. 截断能 (mesh cut-off) 主要控制实空间积分时网格划分的大小以及泊松方程的数值求解,其数值越高越接近真实值,但耗时也越长,从多方面考虑,我们取截断能为 $150Ry$. 原子实采用 Troullier Martins 赝势模型,并将 Perdew, Burke 和 Ernzerhof 提出的 PBE 形式^[22]的广义梯度近似 (GGA) 定为电子交换关联势函数. 输运计算中传输方向 (z 方向) 上 K 点取为 500,与传输方向垂直的另外两个方向 (x 方向和 y 方向) 上均取为 1. 在电流和透射谱的计算上,我们的格林函数收敛精度均设为 10^{-5} ,同时在相应二维布里渊区 K 点的选样上,分别取 K 点为 3×3 和 5×5 . 我们使用 Landauer-Büttiker 公式求出模型系统的电流

$\text{C}_6\text{-NO}_2$, $\text{C}_6\text{-CN}$, $\text{C}_6\text{-CHO}$, $\text{C}_6\text{-Br}$, $\text{C}_6\text{-C}_6\text{H}_5$, $\text{C}_6\text{-C}_5\text{H}_4\text{N}$ 和 $\text{C}_6\text{-NH}_2$. 在对双探针系统的设计上,我们选取 Au (111) 作为电子库 (单面 Au 原子结构为 3×3) 模拟半无限长电极与分子间的相互作用,并将其晶格常数 0.288 nm 设定为电极原子之间的距离,端 C 原子化学吸附于 Au 电极表面. 在研究分析过程中,整个双探针系统被分成三个部分,即左电极、右电极和中心散射区 (又称为“器件区”或“中心区”). 中心散射区由器件分子及左电极和右电极靠近器件分子内侧各两层 Au 原子组成,这四层内侧 Au 原子主要是用以屏蔽器件分子的静电势对电极的影响.

$$I = (2e^2/h) \int_{-\infty}^{+\infty} T(E, V_b) [f_L(E - \mu_L) - f_R(E - \mu_R)] dE. \quad (1)$$

这里 μ_L 和 μ_R 分别是左电极和右电极的电化学势, V_b 为施加的偏压, $\mu_R = E_F - V_b/2$, $\mu_L = E_F + V_b/2$, $[\mu_L, \mu_R]$ 为其能量积分区间,一般称其为“偏压窗” (又称为“有效能量积分区间”). 计算中,我们将平均费米能 E_F 设为能量的零点,则 $[-V_b/2, +V_b/2]$ 即为计算中的偏压窗范围, $f_L(E - \mu_L)$ 和 $f_R(E - \mu_R)$ 分别是左电极和右电极的费米分布函数,它们随 μ_L 和 μ_R 的变化而变化. $T(E, V_b)$ 为能量 E 、外加偏压为 V_b 时体系的透射系数,可以表示为 $T(E, V_b) = \text{Tr}[\Gamma_L(E) G^R(E) \Gamma_R(E) G^A(E)]$, 其中 $G^A(E)$ 和 $G^R(E)$ 分别为中心散射区的超前格林函数和延迟格林函数, $\Gamma_{L(R)}$ 为展宽函数. 延迟格林函数 $G^R(E)$ 可表示为

$$G^R = \begin{pmatrix} H_L + \Sigma_L & V_L & 0 \\ V_L^\dagger & H_C & V_R \\ 0 & V_R^\dagger & H_R + \Sigma_R \end{pmatrix}^{-1}, \quad (2)$$

其中 H_L, H_R 和 H_C 分别是左电极、右电极和中心散射区的哈密顿矩阵; $V_L (V_R)$ 是左 (右) 电极与中心散

射区的相关系数. 展宽函数 $\Gamma_{L(R)}$ 可表示为

$$\Gamma_{L(R)}(E) = i[\Sigma_{L(R)}^R(E) - \Sigma_{L(R)}^A(E)], \quad (3)$$

其中 $\Sigma_{L(R)}^R(E)$ 和 $\Sigma_{L(R)}^A(E)$ 为左电极和右电极对散射区的自能函数.

3. 计算结果及讨论

3.1. I - V 特性

图 2 给出了所研究的 7 个吸附体系的 I - V 特性曲线, 为了进行比较, 未吸附官能团体系 (体系 C_6) 的 I - V 曲线也画在图 2 中. 我们取电压范围为 $[0, 2 \text{ V}]$, 以 0.2 V 为计算步长. 从图 2 可以看出: 低偏压区中 8 个体系的 I - V 特性均表现出一定的欧姆特性, 但随着偏压的升高出现了明显的非线性. 再者是碳链吸附官能团后, 体系的电流基本上是降低的, 电流的改变对 C_6H_5 和 CHO 基团的吸附最为敏感, 其次是对 CN 和 C_5H_4N 基团的吸附, 在某些偏压下电流有大幅度的下降, 其值仅为体系 C_6 的 $1/2$, 甚至接近 $1/3$. 其三是对于 NO_2 , NH_2 及 Br 基团的吸附, 输运电流变化较小, 从整体上看有不同程度的减弱, 但在某些特定的偏压范围内 (如 NO_2 吸附时在偏压 $(0.0, 0.4 \text{ V})$ 区间、 NH_2 吸附时在偏压 $(0.8, 1.2 \text{ V})$ 区间) 出现了输运略微增强的现象.

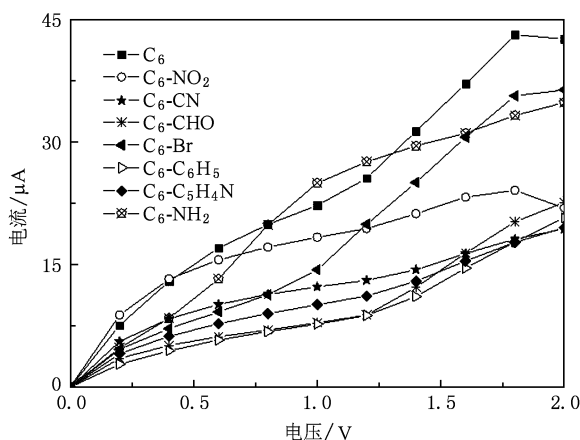


图 2 研究的 8 个体系的 I - V 曲线

上述各体系的 I - V 特性可以通过我们计算得到的本征通道透射谱、总透射系数及分子自洽投影哈密顿本征态 (MPSH) 等给出合理的解释.

3.2. 本征通道透射系数分析

从 Landauer-Büttiker 公式 (1) 可知, 对于双探针

系统, 其输运特性直接由系统总透射系数所决定, 而总透射系数取决于系统的本征通道数及每个本征通道的透射系数^[23]. 图 3 是我们计算得到的 8 个体系在费米能级 ($E_F = 0$) 上且为平衡态时在约化二维布里渊区内沿对角线方向 ($k_A = k_B$) 的本征通道透射谱. 从图 3 可以发现, 对于所研究的 8 个体系都存在 4 个本征通道, 即基团的吸附没有改变碳链的本征通道数, 其中贡献大的两个通道记为 T_1 和 T_2 , 另外两个通道的透射系数极小, 为 10^{-4} — 10^{-6} 数量级, 对输运的贡献基本可以忽略, 在图中未画出. 吸附官能团后, 通道 T_2 的透射受到了强烈的抑制, 特别是体系 C_6-NO_2 (图 3 (b))、体系 C_6-CN (图 3 (c))、体系 $C_6-C_6H_5$ (图 3 (f)) 和体系 $C_6-C_5H_4N$ (图 3 (g)) 尤为明显; 在体系 C_6-NO_2 (图 3 (b)) 中通道 T_1 的透射特性得到明显的加强. 显然, 碳链吸附官能团后引起本征通道透射系数的大幅度变化是其 I - V 特性改变的内在原因.

3.3. 体系的透射谱分析

在双探针系统中, 由于分子轨道与电极轨道的耦合作用, 导致器件区中分子的电子结构发生变化, 使得分子的电子态与电极的电子态发生一定程度的杂化. 杂化的过程起到了将器件区中的分子轨道和电极中的电子轨道进行耦合的作用, 即将器件分子和电极电子库进行连通. 在偏压的作用下, 那些具有特定能量的电子按照一定的透射概率从电极的一端途经器件区到达另一端, 形成了电流. 在分子前线轨道理论中, 我们把透射谱中低于费米能的第一个隧穿峰认为是最高已占分子轨道 (HOMO) 隧穿峰, 高于费米能的第一个隧穿峰认为是最低未占分子轨道 (LUMO) 隧穿峰, 这些隧穿峰的峰值指的是在特定偏压下具有某一入射能量的电子具有的穿透中间散射区的透射概率. 同时从 Landauer-Büttiker 公式上也可以看出, 透射谱中的透射系数是电流大小的重要决定性因素, 积分限 (偏压窗) 内的透射系数越大, 电流也越大, 亦即电流的大小取决于透射曲线在偏压窗内的面积大小. 而且, 透射系数又是分子轨道离域性的强弱以及分子和电极之间的离域波函数杂化程度的一个数值反映; 它也可以被认为是分子和电极耦合的直接体现. 为此, 我们选取了其中 4 个具有代表性的体系 (体系 C_6 , C_6-NO_2 , C_6-NH_2 和 $C_6-C_6H_5$), 并在图 4 中画出了它们在偏压分别为 $0.2, 1.0$ 和 1.8 V 的透射谱, 以表征

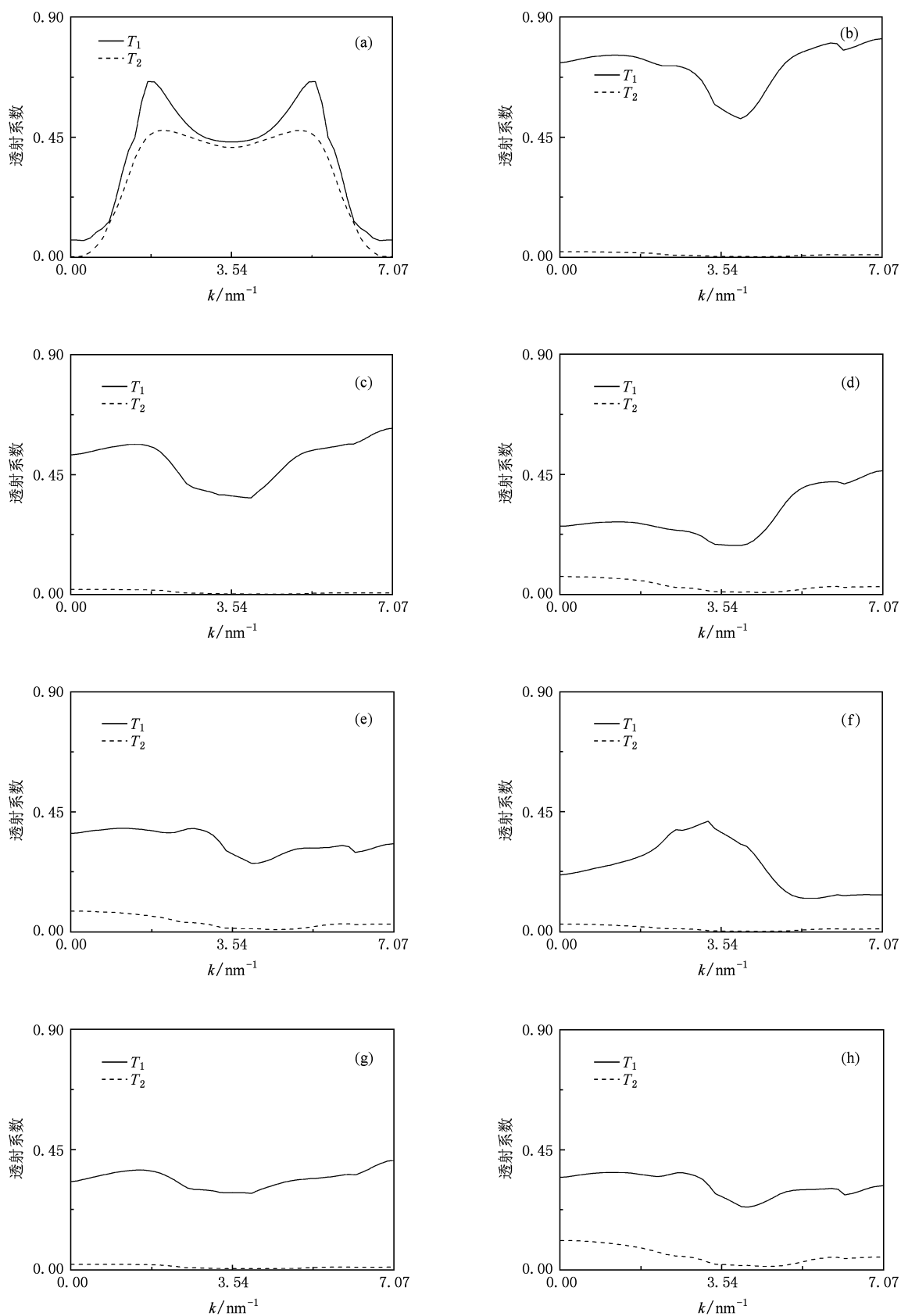


图3 所研究的8个体系平衡态时在约化二维布里渊空间内沿对角线方向(即 $k_x = k_y$)的本征通道传输谱 (a)体系 C_6 , (b)体系 $C_6\text{-NO}_2$, (c)体系 $C_6\text{-CN}$, (d)体系 $C_6\text{-CHO}$, (e)体系 $C_6\text{-Br}$, (f)体系 $C_6\text{-C}_6\text{H}_5$, (g)体系 $C_6\text{-C}_5\text{H}_4\text{N}$, (h)体系 $C_6\text{-NH}_2$

本文所探究的双探针夹心系统的输运特征. 我们将入射电子能量范围定为 $[-2, 2 \text{ eV}]$. 对于体系 C_6 (图 4(a)), HOMO 透射峰普遍很高, 说明其 HOMO 能级电子的离域性很强, HOMO 透射峰靠近费米能级, 是对器件输运有主要贡献的分子能级. 随着偏压的升高, HOMO 透射峰有远离费米能级的趋势. 布居数分析表明: 在 0.2, 1.0 和 1.8 V 的情况下碳链相对平衡状态时失去的电子电荷分别为 $-0.07e$, $-0.1243e$ 和 $-0.1774e$, 其中两端碳原子失去的电子电荷分别为 $-0.2761e$, $-0.3034e$ 和 $-0.3224e$. 由此可见, 电荷亏损使得 HOMO 能级相对费米能级下移. 对于吸附基团为 NO_2 的情况 (图 4(b)), HOMO 透射峰一直在偏压窗外, 对输运的贡献很小, 而 LUMO 透射峰是电流的决定因素, 在 0.2 V 时, LUMO 峰已在偏压窗内, 体系发生了明显的共振隧穿效应, 而后随着偏压的升高逐渐远离费米能级. 布居数分析表明: 在 0.2, 1.0 和 1.8 V 的情况下碳链 (包括 NO_2) 相对平衡状态时得到的电子电荷分别为 $0.3993e$, $0.4381e$ 和 $0.4439e$, 两端碳原子

布居数增量为 $0.1663e$, $0.1806e$ 和 $0.1837e$. 很明显, 在 NO_2 基团的作用下, 有一定数量的电子从电极两端转移到器件区, 使 LUMO 能级相对费米能级上移. 对于图 4(c), 即吸附基团为 NH_2 时, 在低偏压下 LUMO 轨道对输运起主要贡献, 随着偏压的增加 HOMO 透射峰和 LUMO 透射峰 (在 0.2, 1.0 和 1.8 V 的情况下器件分子总的布居数增量为 $0.1918e$, $0.2000e$ 和 $0.2101e$, 两端碳原子布居数增量为 $0.1803e$, $0.1844e$ 和 $0.1878e$) 都同时进入到偏压窗内, 在 1.0 V 时, 可以观察到明显的输运相对体系 C_6 增强的现象. 对于吸附基团是 C_6H_5 (图 4(d)), 低偏压下偏压窗内的面积相对较小, 器件分子的输运能力较弱, 随着偏压的升高, LUMO 远离费米能级 (在 0.2, 1.0 和 1.8 V 的情况下器件分子总的布居数增量为 $0.3012e$, $0.3350e$ 和 $0.3437e$, 两端碳原子布居数增量为 $0.1629e$, $0.1750e$ 和 $0.1793e$), 使 LUMO 能级相对费米能级上移, 而且 LUMO 透射峰峰值不高, 这正符合本文的电流-电压变化特性.

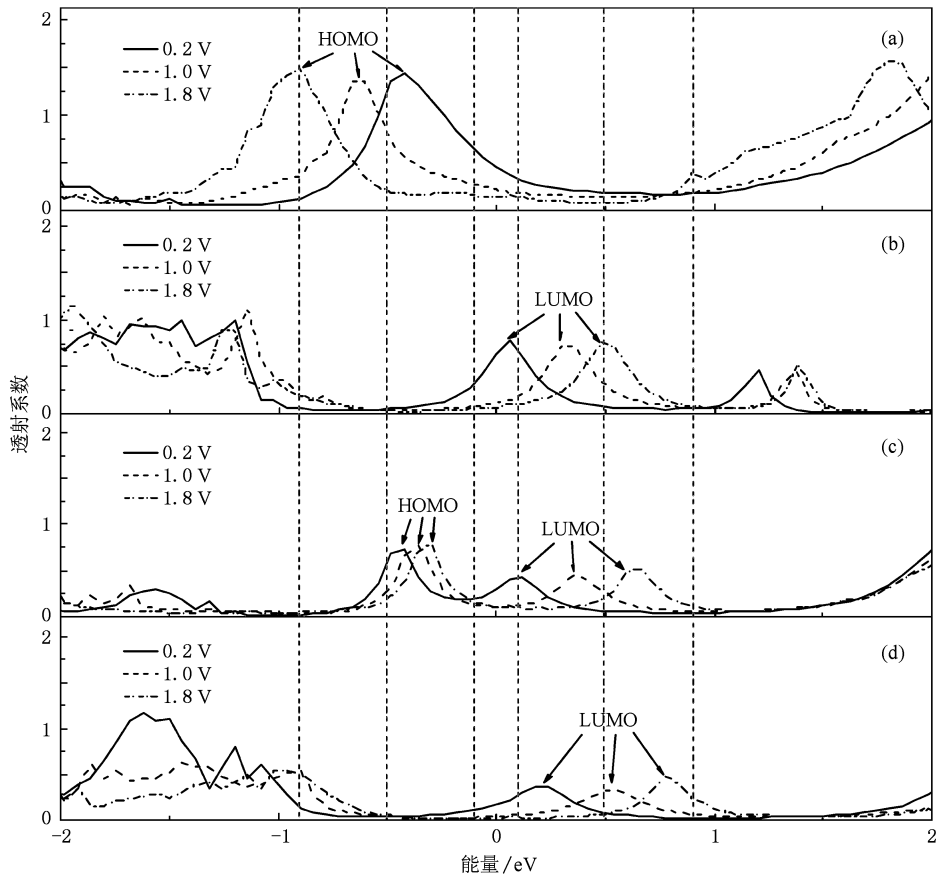


图 4 4 个代表性体系在偏压分别为 0.2, 1.0 和 1.8 V 时的透射谱. 入射电子能量范围为 $[-2, 2 \text{ eV}]$, 图中的垂直虚线分别对应三个偏压窗的位置. (a) 体系 C_6 , (b) 体系 $C_6\text{-NO}_2$, (c) 体系 $C_6\text{-NH}_2$, (d) 体系 $C_6\text{-C}_6\text{H}_5$

3.4. 体系的 MPSH 分析

体系的本征态是类似于布洛赫波函数在空间分布的一种散射态,它在器件区的分布描述的是电子从一个电极途经中心散射区后到达另一个电极的通道.同时,它也是电子透射系数大小的空间表征.从 HOMO 和 LUMO 的空间分布,我们能够很好了解分子与电极的耦合程度、各原子对共振隧穿的贡献等. MPSH 是系统的自洽哈密顿量在分子上的

投影,与自由分子的哈密顿量相比,它包含了左右电极对分子轨道的影响.为了重点分析整个开放系统中分子的 HOMO 和 LUMO 能级的空间分布,并形象表述碳链模型在吸附官能团后电流输运稳定性减弱的根本原因,我们计算了代表性体系 C_6 , C_6-NO_2 , C_6-NH_2 和 $C_6-C_6H_5$ 在平衡态下的 MPSH,结果如图 5 所示.

由图 5 可见:平衡态下 4 个体系的 HOMO 和 LUMO 都定域在碳链的骨架上.相比而言,体系 C_6

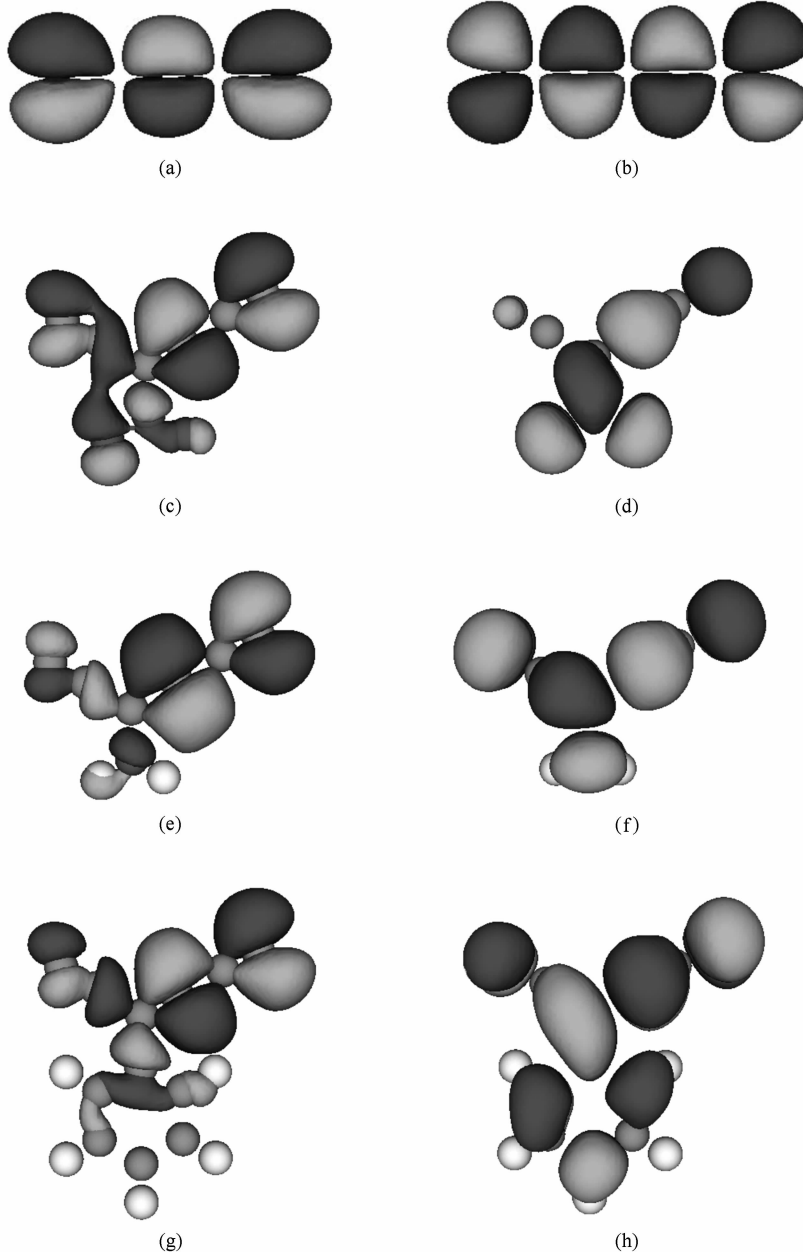


图 5 平衡态下 4 个代表性体系在 HOMO 和 LUMO 上的 MPSH 分布 (a) 体系 C_6 的 HOMO, (b) 体系 C_6 的 LUMO, (c) 体系 C_6-NO_2 的 HOMO, (d) 体系 C_6-NO_2 的 LUMO, (e) 体系 C_6-NH_2 的 HOMO, (f) 体系 C_6-NH_2 的 LUMO, (g) 体系 $C_6-C_6H_5$ 的 HOMO, (h) 体系 $C_6-C_6H_5$ 的 LUMO

的 HOMO 比 LUMO 离域性要强. 从以上分析可知, HOMO 是决定体系共振隧穿的分子轨道, 所以体系 C_6 有较大的电流. 而体系 C_6-NO_2 和 $C_6-C_6H_5$, 由 LUMO 负责共振隧穿, 但它的非定域性比体系 C_6 明显要弱, 从而导致电流变小. 对于 C_6-NH_2 体系, HOMO 和 LUMO 的非定域性比体系 C_6 弱, 所以隧穿电流较小, 但在某偏压范围内 HOMO 和 LUMO 对共振隧穿均有贡献, 从而导致电流比体系 C_6 的电流稍大.

4. 结 论

本文计算了由 6 个碳原子组成的碳链模型, 并考虑在其上分别吸附 7 种常见官能团—— NO_2 , CN ,

CHO , Br , C_6H_5 , C_5H_4N 和 NH_2 , 分析其对运输稳定性的影响. 通过输运特性分析发现, 电流的改变对 C_6H_5 和 CHO 的吸附最为敏感, 其次是对 CN 和 C_5H_4N 的吸附, 在某些偏压下输运电流有大幅度下降, 其值仅为 C_6 体系的 1/2, 甚至接近 1/3. 对于 NO_2 , NH_2 及 Br 吸附, 输运电流变化较小, 从整体上看有不同程度的减弱, 但在某些特定的偏压范围内, 如 NO_2 吸附时在偏压 (0.0, 0.4 V) 区间和 NH_2 吸附时在偏压 (0.8, 1.2 V) 区间出现了输运电流略微增强的现象. 通过本征通道透射谱、总透射谱和投影哈密顿本征态分析发现, 官能团的吸附使本征通道被强烈抑制、碳链上布居数改变、HOMO 和 LUMO 的离域性降低及共振分子轨道的改变是输运电流减弱的内在原因.

- [1] Lang N D, Avouris P 1999 *Phys. Rev. Lett.* **84** 358
- [2] Senapati L, Pati R, Mailman M, Nayak S K 2005 *Phys. Rev. B* **72** 064416
- [3] Ravagnan L, Piseri P, Bruzzi M, Miglio S, Bongiorno G, Baserga A, Casari C S, Li Bassi A, Lenardi C, Yamaguchi Y, Wakabayashi T, Bottani C E, Milani P 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 216103
- [4] Chen W, Andreev A V, Bertsch G F 2009 *Phys. Rev. B* **80** 085410
- [5] Ravagnan L, Manini N, Cinquanta E, Onida G, Sangalli D, Motta C, Devetta M, Bordononi A, Piseri P, Milani P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 245502
- [6] Li G Q, Cai J 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 6453 (in Chinese) [李桂琴、蔡 军 2009 物理学报 **58** 6453]
- [7] Zhang Y B, Joshua P, William V, Philip K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 73104
- [8] Standley B, Bao W Z, Zhang H, Bruck J, Lau C N, Bockrath M 2008 *Nano Lett.* **8** 3345
- [9] Lin Y M, Jenkins K A, Valdes-Garcia A, Small J P, Farmer D B, Avouris P 2009 *Nano Lett.* **9** 422
- [10] Zhang Z H, Peng J C, Zhang H 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3515
- [11] Zhang Z H, Peng J C, Huang X Y, Zhang H 2002 *Phys. Rev. B* **66** 085405
- [12] Zhang Z H, Peng J C, Chen X H, Zhang H 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1150 (in Chinese) [张振华、彭景翠、陈小华、张 华 2001 物理学报 **50** 1150]
- [13] Mei L W, Zhang Z H, Ding K H 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 1971 (in Chinese) [梅龙伟、张振华、丁开和 2009 物理学报 **58** 1971]
- [14] Li X F, Chen K Q, Wang L L, Long M Q, Zou B S 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 133511
- [15] Dionne M, Coulombe S, Meunier J L 2009 *Phys. Rev. B* **80** 085429
- [16] Berber S, Tomanek D 2009 *Phys. Rev. B* **80** 075427
- [17] Santos H, Chico L, Brey L 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 086801
- [18] Lang N D, Avouris P 2000 *Phys. Rev. B* **62** 7325
- [19] Pati R, Mailman M, Senapati L, Ajayan P M, Mahanti S D, Nayak S K 2003 *Phys. Rev. B* **68** 014412
- [20] Khoo K H, Neaton J B, Son Y W, Cohen M L, Louie S G 2008 *Nano Lett.* **8** 2900
- [21] Wang B, Yu Y J, Zhang L, Wei Y D, Wang J 2009 *Phys. Rev. B* **79** 155117
- [22] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [23] Brandbyge M, Sorensen M R, Jacobsen K W 1997 *Phys. Rev. B* **56** 014956

Analysis on transport sensitivity for a carbon atomic wire attached with side groups^{*}

Qiu Ming Zhang Zhen-Hua[†] Deng Xiao-Qing

(School of Physics and Electronic Science, Changsha University of Science and Technology, Changsha 410114, China)

(Received 10 October 2009; revised manuscript received 31 December 2009)

Abstract

Based on the local atomic-orbital density functional theory plus the nonequilibrium Green's function approach, we study the transport sensitivities of a carbon atomic wire attached, respectively with seven kinds of commonly seen side-groups NO_2 , CN , CHO , Br , C_6H_5 , $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$, NH_2 . The calculated results show that the transport current is most sensitive to attached C_6H_5 and CHO groups, less sensitive to attached CN and $\text{C}_5\text{H}_4\text{N}$ groups. Under certain bias values, the currents have a substantial decline and would reached to 1/2, or even 1/3 the magnitude as the unattached system C_6 . But the transport of the carbon atomic wire is little influenced by the attached NO_2 , NH_2 , and Br . The intrinsic origins of side-group effects on the transport current in the wire are the suppression of the transmission eigen-channel, change of the Mulliken population, diminution of the delocalization of highest occupied molecular orbital or lowest unoccupied molecular orbital, and alteration of the resonant molecular orbital.

Keywords: carbon atomic wire, transport property, density functional theory, non-equilibrium Green's function

PACC: 7115M, 3450D, 7210

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60771059), the Scientific Research Foundation of the Education Bureau of Hunan Province, China (Grant Nos. 08A005, 08C110) and the Leading Academic Discipline Program of Changsha University of Science and Technology, China

[†] Corresponding author. E-mail: cscuzzh@163.com