



بررسی خواص الکترونی، اسپینترونیکی و ترموالکتریکی ساختار مولکولی حلقه بنزن محدود شده بین دو نانونوار گرافینی در حضور زیر لایه فرومغناطیس

لیلا اسلامی^۱، فاطمه بوربور^{۲*} و عزیز قربان شیروی زاده

۱- مرکز تحقیقات فناوری های کوانتومی، واحد علوم و تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران، ایران

۲- دانشکده گروه فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد دزفول، خوزستان، تهران، ایران

۳- گروه فیزیک، دانشگاه آزاد اسلامی واحد دزفول، خوزستان، ایران

چکیده:

در این پژوهش، به بررسی و مطالعه خواص الکترونی، اسپینترونیکی و ترموالکتریکی ساختار یک مولکول بنزن و دو لایه مثلثی شکل گرافینی که بین دو نانونوار گرافینی نیمه بینهایت محدود شده اند، پرداخته می‌شود. فرض کرده ایم در اثر وجود یک زیر لایه فرومغناطیس در ناحیه وسط پتانسیل تبادل به الکترون ها اعمال میشود و در نتیجه تبهگنی بین حالت های مختلف اسپینی شکسته می‌شود. همچنین، یک پتانسیل گیت خارجی از بالا بر ناحیه پراکندگی اعمال شده است. فرض شده پتانسیل بایاس بین دو سر نمونه اعمال نشده و در عوض اختلاف دمای ۲۰ کلون بین دو سر ساختار باعث ایجاد جریان خواهد بود. مقاله حاضر با استفاده از روش تنگ بست به بررسی خواص ترموالکتریکی این سیستم اختصاص یافته و نتایج نشان میدهند ضریب سیبک برای هر دو حالت اسپین مقدار قابل توجهی خواهد داشت. ضریب شایستگی برای الکترون های با اسپین بالا و پایین از یکدیگر متفاوت بوده و برای اسپین پایین نسبت به حالتی که پتانسیل تبادل وجود نداشته باشد افزایش ضریب شایستگی تا پانزده برابر نیز مشاهده شد. بر اساس نتایج بدست آمده، جریان الکتریکی وابسته به اسپین بین یک تا دو نانوامپر برای حالت اسپینی بالا و بین هفت تا هشت نانوامپر برای حالت اسپینی پایین خواهد بود. این در حالیست که بدون حضور پتانسیل تبادل جریان وابسته به اسپین تا هزار برابر ضعیفتر است. در مورد جریان عبوری بدون ولتاژ بایاس، نتایج نشان می‌دهند که ساختار پل مولکولی مورد بررسی، در حضور پتانسیل تبادل مغناطیسی، خاصیت فیلتری دارد. این پل مولکولی می‌تواند به عنوان یک فیلتر عمل کند که جریان با اسپین پایین یا بالا را بصورت انتخابی و بسته به ناخالصی معرفی شده عبور می‌دهد. در نتیجه، ساختار مولکولی مورد بررسی به عنوان یک پل ترموالکتریک با خواص منحصر به فرد و قابل تنظیم برای کاربردهای الکترونیکی مورد توجه قرار گرفته است.

واژگان کلیدی: قطعات مولکولی، مولکول بنزن، نانونوار گرافینی، اسپینترونیکی، ترموالکتریک

* fbourbour44@cfu.ac.ir

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۹/۱۴

تاریخ بازنگری: ۱۴۰۲/۱۰/۱۵

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۱/۰۷

تابستان ۱۴۰۳ | شماره ۲ | سال یازدهم

ویژگی های ترابرد بار و همچنین، ویژگی های ترموالکتریکی یک سیستم هیبریدی متشکل از یک نقطه کوانتومی تک حالت و دو رابط که یکی ابررسانا بوده و دیگری فلز فرومغناطیس معمولی بود را بررسی کرده اند [۲۹]. آن ها توان ترموالکتریکی با ضریب شایستگی قابل توجهی بدست آوردند که ناشی از تونل زنی تک الکترونی است.

در نانو ساختارها چنانچه ساختار تحت تاثیر عوامل مغناطیسی قرار داشته باشد. افزون بر انتقال بار، انتقال اسپین هم حائز اهمیت بوده و بررسی آن در برخی موارد به نتایج قابل توجهی منجر می شود [۱۴ و ۲۳ و ۳۰]. مبحث ترموالکتریک اسپینی به تازگی مورد توجه قرار گرفته است که به بررسی ترابرد گرمایی وابسته به اسپین برای توسعه نانوبازارهای دو بعدی با حداقل اتلاف انرژی می پردازد [۱۱ و ۱۴ و ۱۹-۲۱]. به تازگی در سال ۲۰۲۲، یک نقطه کوانتومی متصل بین دو الکترومغناطیسی توسط تروچا و همکارانش مورد مطالعه قرار گرفته است [۳۱]. آن ها به بررسی خواص اسپین ترموالکتریکی پرداختند و ضرایب اسپین سیبک و اسپین پلتیر را برای دو حالت مختلف دافعه کولونی (دافعه محدود و دافعه بی نهایت) درون نقطه کوانتومی محاسبه کردند. آنها با یافتن روابط تحلیلی برای این ضرایب نشان دادند که ضریب سیبک به دما و میدان مغناطیسی اعمالی وابسته است.

عامل مهم دیگری که در ترابرد بار و اسپین و همچنین در خواص ترموالکتریکی سامانه های در ابعاد نانو اهمیت فراوانی دارد جنس و ساختار الکترومغناطیسی متصل به سامانه است. در این زمینه تحقیقات گسترده ای صورت گرفته و انواع مختلفی از الکترومغناطیسی مورد بررسی قرار گرفته اند [۳۲-۳۷].

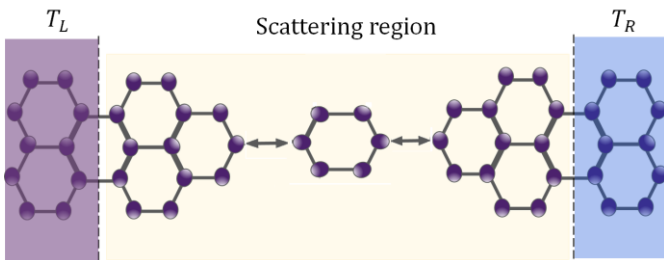
بطور کلی محاسبه ترابرد الکترون در یک ساختار مولکولی به روش های مختلفی از جمله روش تنگ بست و یا روش تابعی چگالی انجام می شود [۳۸-۴۷].

اسلامی و همکارانش در سال ۲۰۲۳، نتایج حاصل از بررسی تئوری ضریب اسپین سیبک، ضریب شایستگی و جریان ناشی از گرادیان دمایی را برای یک مولکول فنالین که به الکترودهایی از جنس گرافین متصل شده است را به چاپ رساندند [۱۴]. آن ها دو پیکربندی موازی و متعامد را برای الکترودها مورد بررسی قرار دادند. نتایج حاصل از این مقاله نشان داد که وجود زیرلایه فرومغناطیس تاثیر بسزایی بر کارایی این ساختار ترموالکتریکی

امروزه یافتن منابع جدید و تجدیدپذیر انرژی و کاهش اتلاف آن یکی از مهمترین دغدغه های بشر می باشد. همواره دانشمندان پیشنهاد های مختلفی برای رسیدن به این هدف ارائه کرده اند. یکی از این روش های پیشگیری از اتلاف انرژی، تبدیل انرژی گرمایی تولید شده در سیستم به انرژی الکتریکی است. اثر ترموالکتریک به فرایندی گفته می شود که تحت شرایطی بتوان اختلاف دمای بین دو سر نمونه را به ولتاژ الکتریکی تبدیل کرد [۱]. مواد مختلفی در این زمینه مورد بررسی قرار گرفته اند [۲-۵]. نانو ساختارها از مهمترین کاندیداها در بررسی خواص ترموالکتریکی هستند. زیرا این ساختارها برخلاف نمونه های معمول توده ای به دلیل وجود پراکندگی های فونونی و کم بودن سهم فونون ها در رسانندگی گرمایی، شاخص شایستگی بالاتری را نشان می دهند [۶-۹].

در سال های اخیر، تحقیقات قابل توجهی در مورد خواص ترموالکتریکی نانو ساختارها انجام شده است [۱۰-۲۱] هرگاه ابعاد سامانه به منظور بهبود سرعت و عملکرد آن به مقیاس نانو کوچک می شود، کارایی افزایش می یابد و باعث افزایش اهمیت آن در مبحث ترمودینامیک خواهد شد. به همین دلیل مطالعه ساختارهای مولکولی در زمینه ترابردی کوانتومی و ترموالکتریک به تازگی مورد توجه پژوهشگران قرار گرفته است [۲۲ و ۲۳].

واحدهای مولکولی مورد استفاده در ساخت قطعات مولکولی بسته به نوع کاربرد و ماهیت انتقال بار می توانند از مواد آلی یا معدنی انتخاب شوند [۲۴ و ۲۵]. آویرام و رانتر در سال ۱۹۷۴، نخستین کسانی بودند که یک قطعه الکترونیکی ساخته شده از مولکول آلی را به عنوان یکسوساز ارائه کردند [۲۶]. پس از آن در سال ۱۹۹۷ رسانندگی یک ساختار مولکولی تشکیل شده از مولکول بنزن با رابط های از جنس طلا را مورد مطالعه قرار دادند [۲۷]. آن ها ترابرد بار از مولکول را بطور مستقیم مشاهده کردند. بعدها در سال ۲۰۰۷ ردی و همکارانش، ترموالکتریک را در اتصالات مولکولی مورد مطالعه قرار دادند [۲۸]. آن ها یک مولکول را بین دو الکترومغناطیسی از جنس طلا محصور کردند و ضریب سیبک را برای مولکول های بنزن دی تیول، دی بنزن دی تیول و تری بنزن دی تیول بدست آوردند. در سال ۲۰۱۷ تورچا و همکارانش،



شکل ۱: ساختار طرح‌واره یک مولکول بنزن و دو لایه مثلثی شکل گرافینی که بین دو نانونوار گرافینی نیمه بی‌نهایت قرار گرفته اند.

هامیلتونی سیستم کامل با رابطه (۱) توصیف می‌شود [۳۸-۴۱].

$$H = H_c + \sum_{q=L,R} H_q + H_{exc} \quad (1)$$

که در آن H_c بیانگر هامیلتونی کانال یا ناحیه پراکندگی می‌باشد:

$$H_c = H_b + H_{gf} + H_{int} \quad (2)$$

که در آن H_b و H_{gf} به ترتیب ماتریسهای هامیلتونی مربوط به مولکول بنزن، قسمت های مثلثی شکل اتصال دهنده بنزن به دو الکتروود نیمه بی‌نهایت هستند. همچنین اتصال بین مولکول و نانونوارهای گرافینی توسط جمله H_{int} توصیف می‌شود. با استفاده از نظریه تنگ بست می‌توان جملات مختلف هامیلتونی را بازنویسی کرد. به‌طوریکه در آن

$$H_b = \sum_n (\epsilon_n + V_b) d_{n\alpha}^\dagger d_{n\alpha} + \sum_{\langle n,m \rangle, \alpha} t_{nm} d_{n\alpha}^\dagger d_{m\alpha} \quad (3)$$

است. همچنین، در رابطه (۳) ϵ_n و t_{nm} به ترتیب انرژی های جایگاه و جهش هستند. $d_{n\alpha}^\dagger$ ($d_{n\alpha}$) عملگر خلق (نابودی) الکترون در جایگاه n ام با حالت اسپینی α در ناحیه پراکندگی می‌باشد. در این مولکول مقادیر صفر و $2/5$ eV به ترتیب برای انرژی‌های جایگاه و جهش تنظیم شده اند [۴۲].

$$H_{gf} = \sum_{i\alpha} (\epsilon_i + V_b) c_{i\alpha}^\dagger c_{i\alpha} + \sum_{\langle i,j \rangle, \alpha} t_{ij} c_{i\alpha}^\dagger c_{j\alpha} \quad (4)$$

در معادله (۴) $t_{ij} = 2/66$ eV انرژی جهش بین نزدیکترین اتم های همسایه است. $c_{i\alpha}^\dagger$ ، $c_{i\alpha}$ عملگرهای خلق و نابودی

دارد. بطوریکه در حضور زیرلایه فرومغناطیس ضریب سیبک و ضریب شایستگی و همچنین، جریان ناشی از گرادیان دمایی افزون بر اسپینی بودن از نظر مقدار بزرگی هم افزایش می‌یابند. در این پژوهش، نتایج حاصل از محاسبات عددی بر روی ترابرد بار و اسپین الکترون‌ها در یک ساختار مولکولی متشکل از یک مولکول بنزن که بین دو نانونوار گرافینی ساندویچ شده است، ارائه شده است. همچنین، در این پژوهش فرض شده است که اختلاف دمایی ۲۰ درجه کلون بین نانونوار چپ و راست وجود داشته باشد و به دنبال آن خواص ترموالکتریکی و اسپینی سیستم بررسی خواهد شد.

این مقاله، به صورت زیر ارائه شده است. در بخش ۲، پیوندگاه بنزنی را نشان داده و مدل نظری بر پایه‌ی روش تابع گرین ارائه شده است. در بخش ۳، نتایج عددی حاصل از حضور میدان تبدالی و گرادیان دمایی بر خواص اسپینترونیکی و ترموالکتریکی در سامانه مولکولی بررسی می‌شود. در نهایت، در بخش ۴ جمع‌بندی یافته‌ها ارائه می‌شود

۲- محاسبات

همانطور که در شکل ۱ نشان داده شده است، دستگاه مولکولی پیشنهادی شامل یک مولکول بنزن است که بین دو بخش مثلثی گرافینی ساندویچ شده است. ناحیه ای که شامل بنزن و دو قسمت مثلثی گرافینی است را ناحیه پراکندگی یا ناحیه کانال می‌نامیم و مولکول بنزن را در مرکز ناحیه کانال در نظر می‌گیریم. فرض می‌کنیم بخش های مثلثی به دو نانونوار گرافینی نیمه بی‌نهایت به نام‌های رابطهای چپ و راست خارجی متصل هستند. الکترون‌ها از سمت چپ وارد کانال شده از سمت راست خارج می‌شوند. همچنین، میدان مغناطیسی تبدالی روی ناحیه کانال اعمال شده است.

ترموالکترونیک قطعه مولکولی طراحی شده در یک ناحیه با پاسخ خطی هستیم. بنابراین باید پارامترهای ترموالکترونیک [مانند ضریب هدایت الکتریکی و توان حرارتی (ضریب سیبک)] بدست بیایند. این مقادیر می‌توانند به کمک انتگرال لاندائو، L_n^α بصورت زیر بیان شوند [۴۳ و ۴۴]

$$L_n^\sigma(\mu, T) = -\frac{1}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[(\varepsilon - \mu)^n \frac{\partial f(\varepsilon, \mu, T)}{\partial \varepsilon} T^\sigma(\varepsilon) \right] d\varepsilon \quad (11)$$

که μ پتانسیل شیمیایی، T دمای تعادل، h ثابت پلانک و $f(\varepsilon, \mu, T)$ توزیع فرمی دیراک در حالت تعادل است. هدایت الکتریکی می‌تواند با رابطه زیر محاسبه شود [۴۵]

$$G^\sigma = 2e^2 L_1^\sigma \quad (12)$$

که e نماد بار الکترون است. بنابراین، در یک ناحیه با پاسخ خطی، ضریب سیبک وابسته به اسپین با رابطه زیر بدست می‌آید [۴۲]

$$S^\sigma = \frac{1}{eT} \frac{L_2^\sigma}{L_0^\sigma} \quad (13)$$

برای محاسبه ضریب سیبک باری و اسپینی باید مقادیر سیبک اسپین بالا و پایین به ترتیب با یکدیگر جمع و از هم کم شوند بطوریکه $S_s = (S^\uparrow - S^\downarrow)/2$ و $S_c = (S^\uparrow + S^\downarrow)/2$

هستند. در نهایت جریان وابسته به اسپین می‌تواند توسط رابطه زیر بدست آید [۳۸]

$$I^\sigma(\mu, T) = \frac{e}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} \tau^\sigma(\varepsilon) [f_L(\varepsilon, T_L) - f_R(\varepsilon, T_R)] d\varepsilon \quad (14)$$

که $f_{L(R)}$ و $T_{L(R)}$ به ترتیب دما و تابع توزیع فرمی دیراک لیدهای راست (چپ) می‌باشند. افزون بر این، تغییر دمای لیدهای راست و چپ نیز بصورت $\Delta T = T_L - T_R$ نمایش داده می‌شود. راندمان مواد ترموالکترونیک می‌تواند با پارامتر بدون بعد

الکترون ها روی اتم جایگزیده α با اسپین در اتم های کربن صفحات گرافین فرض می‌شود.

$$H_{int} = \sum_i \sum_n t_{in} (c_{i\alpha}^\dagger d_{n\alpha} + d_{n\alpha}^\dagger c_{i\alpha}) \delta_{i,il} \delta_{n,ni} \quad (5)$$

هامیلتونین H_{int} برای محاسبه برهمکنش بین مولکول و رابط های گرافینی بکار میرود که در آن عدد nl بیانگر محل اتمی n از مولکول متصل شده در محل $i = ni$ از گرافین می باشد. علاوه بر این $t_{in} = t_{ij}$ در نظر گرفته شده است.

هامیلتونین مربوط به میدان مغناطیسی تبدلی (H_{sx}) می تواند بصورت زیر نوشته شود:

$$H_{sx} = M \sum_{i\alpha} a_{i\alpha}^\dagger \sigma_z a_{i\alpha}, \quad (6)$$

که در آن M میزان قدرت میدان تبدلی بکار رفته را نشان می‌دهد. $a_{i\alpha}^\dagger, a_{i\alpha}$ عملگرهای خلق و فنا در محل α با اسپین σ می باشند. همچنین σ_z بیانگر ماتریس اسپین پاولی است [۳۹ و ۴۰]. تابع گرین وابسته به اسپین پس رونده (پیش رونده) بصورت زیر بیان می‌شود [۳۸ و ۴۱]:

$$G^{r\sigma} = [G^{a\sigma}(E)]^\dagger = \left((E + i\eta)I - H_C - \sum_L^\sigma - \sum_R^\sigma \right)^{-1} \quad (7)$$

که در آن انرژی الکترون و η عددی بسیار کوچک و مثبت می باشد. $\sum_L^\sigma, \sum_R^\sigma$ به ترتیب ماتریس های خودانرژی مربوط به اتصال های منطقه کانال به الکترودهای راست و چپ می باشد. ماتریس های خودانرژی بصورت

$$\sum_{L(R)}^\sigma = H_{cq}^\dagger g_q^r H_{cq}, \quad (8)$$

نوشته می‌شوند که در آن H_q ($q=L,R$) هامیلتونی مربوط به الکترودهای نیمه بی‌نهایت چپ و راست می باشد و g_q^r را می‌توان بصورت عددی با روش بازگشتی محاسبه کرد [۴۱].

ضریب عبور وابسته به اسپین می‌تواند بصورت زیر محاسبه گردد:

$$T^\sigma(\varepsilon) = Tr[\Gamma_L G_C \Gamma_R G_C^\dagger]^\sigma \quad (9)$$

که T^σ نماد مجموع آرایه های قطری است. همچنین طبق رابطه

$$\Gamma_{L(R)}^\sigma = Im[\sum_{L(R)}^\sigma(\varepsilon) - \sum_{L(R)}^\sigma(\varepsilon)^\dagger] \quad (10)$$

ماتریس های انتشار وابسته به اسپین رابط های چپ و راست قابل محاسبه هستند. ما به دنبال مشاهده خواص انتقالی

شایستگی که بصورت ZT^σ تعریف می شود، با رابطه زیر محاسبه شود [۴۱]

$$ZT^\sigma = \frac{G^\sigma S^{\sigma 2} T}{K^\sigma} \quad (15)$$

که $K^\sigma = K_{el}^\sigma + K_{ph}^\sigma$ رسانندگی گرمایی وابسته اسپین ساختار که در آن

$$K_{el}^\sigma = \frac{2 \left(L_2^\sigma - \frac{L_1^{\sigma 2}}{L_0^\sigma} \right)}{T} \quad (16)$$

رسانندگی گرمایی الکترون است.

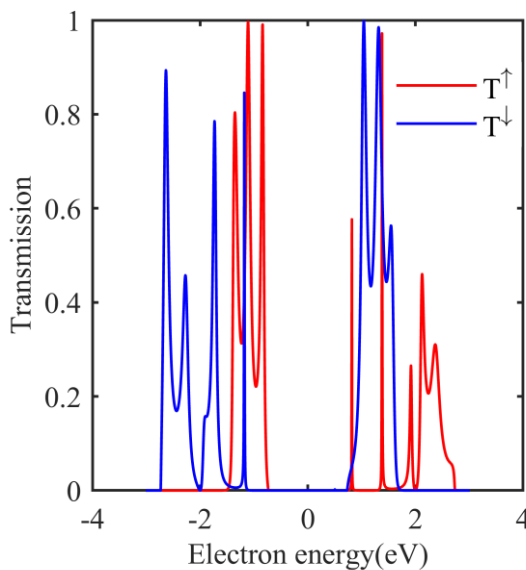
باتوجه به محاسبات ارائه شده توسط گالپرین و همکارانش در سال ۲۰۰۷، سهم فونونی (K_{ph}^σ) در ابزارهای مولکولی می تواند با توجه به شرایط مختلف بسیار کم اهمیت و یا بسیار با اهمیت باشد [۴۸]. آن ها نشان دادند که قدرت جفت شدگی الکترونها به مولکول و اختلاف دمایی بین دو سر نمونه عوامل تاثیرگذار در رسانندگی گرمایی الکترون ها و فونون ها هستند. با این وجود در این پژوهش از محاسبات فونونی صرف نظر شده است و مقدار مربوط به ضریب شایستگی الکترونی ($ZT_e^\sigma = \frac{G^\sigma S^{\sigma 2} T}{K_{el}^\sigma}$) محاسبه و در بخش نتایج ارائه شده است.

۳- بحث و بررسی نتایج

در این قسمت، نتایج حاصل از محاسبات عددی بر روی تراپرد بار و اسپین الکترونها و خواص ترموالکتریک ساختار مورد مطالعه ارائه شده است. فرض کرده ایم یک پتانسیل خارجی با قدرت $V_b = 1t (= 0.266 \text{ eV})$ در ناحیه پراکندگی، که شامل مولکول بنزن و دو قسمت مثلثی متصل به الکترونها می شود، اعمال شده است. همانطور که فرقدان و همکارانش همچنین قدرت میدان تبدیلی اعمال شده بر ناحیه پراکندگی را $M=t (= 2/66 \text{ eV})$ در نظر گرفته ایم.

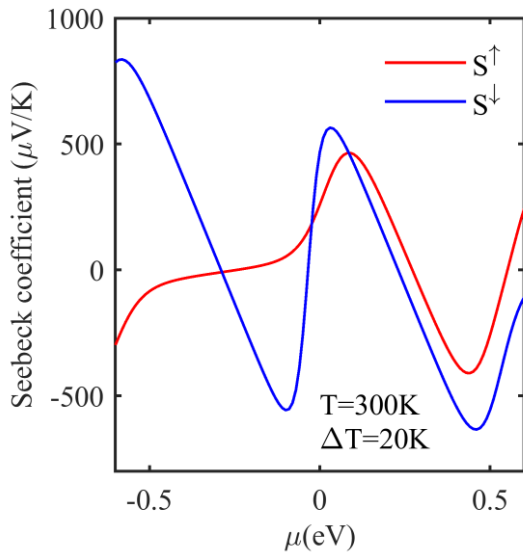
در شکل ۲، ضریب عبور الکترون ها برحسب انرژی الکترون ورودی برای الکترون های با اسپین بالا و پایین رسم شده است. به ازای انرژی الکترون ها در محدوده -0.7 eV تا 0.7 eV هیچ الکترونی اجازه عبور از این ساختار را ندارد. در حالیکه با افزایش

انرژی الکترون ها در مقادیر مثبت یا مقادیر منفی رفتار الکترون ها تغییر کرده و احتمال عبور الکترون از سیستم افزایش خواهد یافت. همچنین، وجود زیرلایه فرومغناطیسی که پتانسیل تبدیلی مغناطیسی در سیستم ایجاد می کند باعث می شود الکترون های با اسپین بالا و پایین از یکدیگر مجزا شده و ضرایب عبور یکسانی را نشان ندهند. بطور مثال، به ازای انرژی 1 eV ، برای الکترون های با اسپین پایین، احتمال عبور از سیستم غیر صفر بوده در حالیکه برای الکترون های با اسپین بالا این ضریب انتقال صفر خواهد بود. همچنین، رفتار مشابهی در انرژی 1 eV در سیستم وجود دارد به نحوی که برای الکترون های با اسپین بالا، با انرژی 1 eV ضریب عبور وجود خواهد داشت در حالیکه برای الکترون های با اسپین پایین و انرژی 1 eV دارای احتمال عبور صفر هستند. این الگو در انرژی های مختلف با توجه به شکل تکرار می شود.



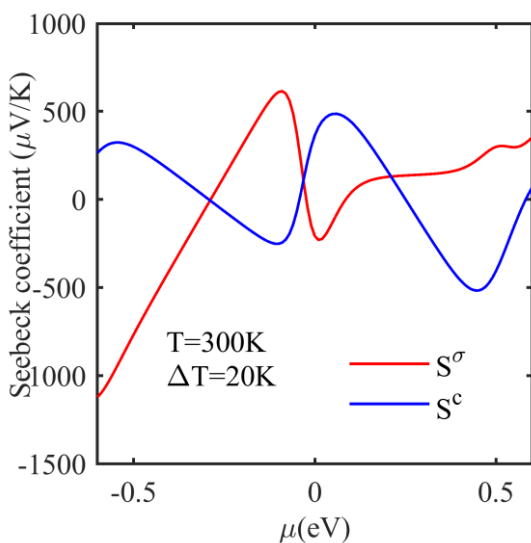
شکل ۲: نمودار ضریب عبور الکترون برحسب انرژی الکترون ورودی در حضور پتانسیل تبدیلی

در شکل ۳، نمودار ضریب سیبک برای حامل های با اسپین بالا و پایین برحسب پتانسیل شیمیایی رسم شده است. با توجه به این شکل، به ازای پتانسیل های شیمیایی در اطراف پتانسیل شیمیایی صفر، ضریب سیبک عدد نسبتاً کوچکی است در حالیکه افزایش پتانسیل شیمیایی در هر دو جهت مثبت و منفی منجر به افزایش ضریب سیبک خواهد شد. بطور کلی ضریب سیبک بیانگر



شکل ۳: نمودار ضریب سبیک برحسب پتانسیل شیمیایی برای دو حالت اسپین بالا و اسپین پایین

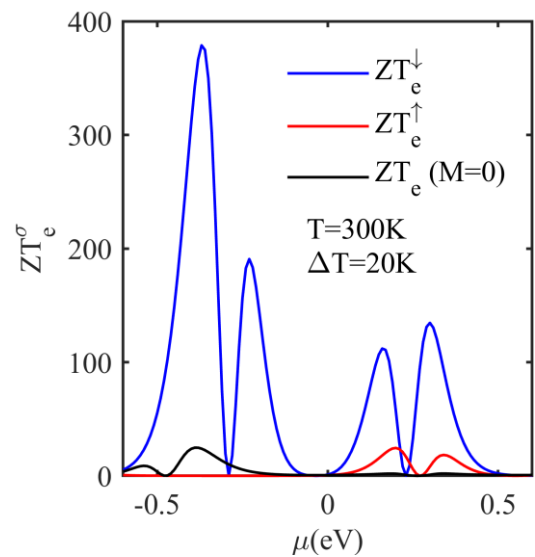
در شکل ۴، ضریب سبیک اسپین و بار بر حسب پتانسیل شیمیایی رسم شده است. ضریب سبیک اسپینی حاصل اختلاف ضرایب سبیک اسپین بالا و پایین می‌باشد و ضریب سبیک بار برابر مجموع ضرایب سبیک اسپینی بالا و پایین است. با توجه به این شکل، ضریب سبیک اسپینی بین $-1100 \mu\text{V/K}$ تا $600 \mu\text{V/K}$ تغییر می‌کند در حالیکه ضریب سبیک بار بین حدودا $500 \mu\text{V/K}$ تا $480 \mu\text{V/K}$ متغیر است. همچنین می‌توان نواحی از پتانسیل‌های شیمیایی یافت که به ازای آنها ضریب سبیک اسپینی صفر بوده ولی ضریب سبیک بار مقداری غیر صفر باشد و بالعکس.



شکل ۴: نمودار ضریب سبیک اسپین و بار برحسب پتانسیل شیمیایی

پتانسیل الکتریکی القایی به سیستم ناشی از اختلاف دمای بین دو رابط است. اختلاف دما در این مقاله مقدار 20K لحاظ شده است. بدین ترتیب بالا بودن ضریب سبیک در حقیقت نشان دهنده آن است که به ازای اختلاف دمای ثابت، احتمال ایجاد جریان الکتریکی در سیستم افزایش خواهد یافت که این جریان الکتریکی ناشی از وجود باتری یا پتانسیل الکتریکی خارجی سیستم نبوده و تنها ناشی از اختلاف دما است. با توجه به شکل ۳، زمانیکه پتانسیل شیمیایی دارای مقادیر مثبت (منفی) است به آن معنی است که ناخالصی تزریق شده به سیستم از نوع n (p) است. همچنین، ضریب سبیک منفی (مثبت)، بیانگر این است که حامل‌های بار در این سیستم از نوع الکترون‌ها (حفره‌ها) هستند. وقتی هیچ ناخالصی‌ای به سیستم تزریق نشده به ازای هر دو حالت اسپینی ضریب سبیک مثبت است. این به آن معناست که بدون تزریق ناخالصی حامل‌های اکثریت در این ساختار حفره‌ها هستند. در برخی از مقالات وضعیت مشابهی مشاهده شده است. یعنی ماده بطور ذاتی و بدون وجود هیچ ناخالصی از نوع p و یا نوع n بوده است. این وضعیت پیشتر هم در اتصالات مولکولی و هم در سایر نانو ساختارها گزارش شده است [۴۹-۵۱]. وقتی به سیستم ناخالصی تزریق می‌شود، گاهی ناخالصی نوع n (p) می‌تواند حامل بار از نوع حفره (الکترون) داشته باشد. بطور مثال به ازای $\mu = +0.2 \text{ eV}$ مقادیر سبیک برای اسپین بالا و پایین به ترتیب برابر $250 \mu\text{V/K}$ و $100 \mu\text{V/K}$ بوده که نشان دهنده حامل‌های بار از نوع حفره است. از طرفی، به ازای -0.2 eV $\mu =$ مقادیر سبیک برای اسپین بالا و پایین به ترتیب برابر $7 \mu\text{V/K}$ و $-297 \mu\text{V/K}$ بوده که نشان دهنده حامل‌های بار از نوع حفره برای اسپین بالا و الکترون برای اسپین پایین است.

در شکل ۵، نمودار ضریب شایستگی وابسته به اسپین بر حسب پتانسیل شیمیایی در اختلاف دمای ۲۰ درجه کلون و دمای محیط ۳۰۰ درجه کلون برای الکترون‌های با اسپین بالا و پایین رسم شده است. همچنین برای بررسی اهمیت وجود زیرلایه مغناطیسی، ضریب شایستگی در زمانیکه زیر لایه وجود نداشته باشد هم در شکل رسم شده است. با توجه به این شکل، وجود زیرلایه مغناطیسی در حالت اسپینی پایین اثر قابل توجهی بر ضریب شایستگی دارد. به طوری که در پتانسیل شیمیایی $\mu = -0.4 \text{ eV}$ مقدار ضریب شایستگی برای حالت اسپین پایین برابر ضریب شایستگی در زمانیست که زیرلایه مغناطیسی وجود ندارد. هرچند نتایج نشان می‌دهند وجود پتانسیل تبدالی مغناطیسی تاثیر چندانی بر ضریب شایستگی به ازای حامل‌های بار با اسپین بالا ندارد.



شکل ۵: نمودار ضریب شایستگی وابسته به اسپین بر حسب پتانسیل شیمیایی

بدین ترتیب می‌توان نتیجه گرفت که این ساختار مولکولی برای کاربردهای ترموالکتریکی بسیار مفید بوده به نحوی که ضریب شایستگی آن با تنظیم پتانسیل شیمیایی تا مقادیر بسیار بالایی بدست می‌آیند. همچنین به ازای مقادیر ضریب پتانسیل شیمیایی منفی شاهد حالتی خواهیم بود که در آن ضریب شایستگی برای حالت اسپینی بالا کاملاً صفر بوده و برای حالت اسپینی پایین حتی تا مقدار قابل توجه ۳۰۰ هم خواهد رسید.

یکی دیگر از خواص مورد توجه در ساختارهای مولکولی جریان عبوری از ساختار در شرایطی است که هیچ ولتاژ بیایسی بر

سیستم اعمال نشود. شکل ۶ نشان دهنده جریان عبوری از سیستم برای حالتی که (الف) زیرلایه فرو مغناطیس وجود نداشته باشد، (ب) زیرلایه فرو مغناطیس وجود داشته باشد، بر حسب پتانسیل شیمیایی رسم شده است. همانطور که در شکل ۶ (الف)، نشان داده شده است وقتی پتانسیل تبدالی وجود ندارد جریان بسیار ناچیزی از سیستم عبور می‌کند. درحالی که وقتی پتانسیل تبدالی به سیستم اعمال می‌شود جریان عبوری برای اسپین‌های بالا و پایین از یکدیگر جدا می‌شوند. همچنین، علیرغم اینکه برای هر دو حالت اسپینی افزایش جریان نسبت به شکل ۶ (الف)، مشهود است، در شکل ۶ (ب)، به وضوح جریان اسپین پایین قویتر از جریان اسپین بالا دیده می‌شود که با توجه به ضعیفتر بودن ضریب سیبک و بخصوص ضریب شایستگی برای حالت اسپین بالا این پدیده قابل پیش‌بینی بود (نمودار شکل ۵ را ببینید). پدیده قابل توجه دیگری که نمودار ۶ (ب) نشان می‌دهد، خاصیت فیلتری این سیستم است. همانطور که شکل ۶ (ب) نشان می‌دهد، به ازای پتانسیل شیمیایی‌های کوچکتر از صفر همواره جریان خالص با اسپین پایین از سیستم عبور می‌کند و هیچ جریان اسپین بالایی نخواهیم داشت. از طرف دیگر به ازای $\mu = +0.23 \text{ eV}$ فقط جریان اسپینی بالا از سیستم عبور خواهد کرد. به این ترتیب پل مولکولی پیشنهاد شده در این مقاله نه تنها خاصیت تولید جریان بدون وجود پتانسیل خارجی را دارد بلکه با انتخاب درست ناخالصی می‌تواند مانند یک فیلتر که فقط الکترون‌های با اسپین پایین یا بالا را عبور می‌دهد عمل کند.

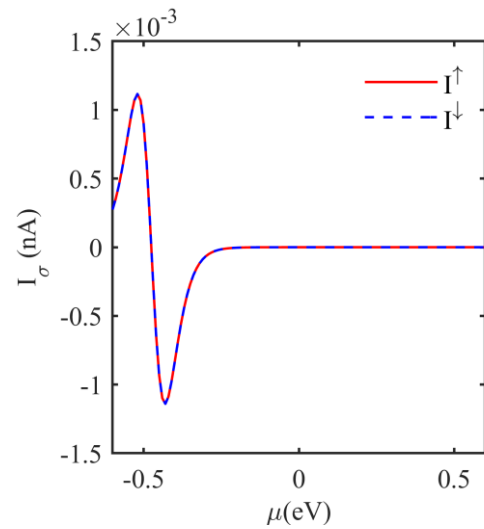
لازم به ذکر است در این پژوهش اثر همزمان دو عامل پتانسیل تبدالی و پتانسیل گیت که هر دو بر ناحیه پراکندگی اعمال شده اند بررسی شده است. همانطور که ایلدرآبادی و همکاران در سال ۲۰۱۹ برای یک ابزار مولکولی متشکل از زنجیره کربنی و الکترودهای گرافینی نشان دادند [۱۳] وجود پتانسیل گیت خارجی بر کلیه نتایج تاثیر زیادی دارد. در پژوهش حاضر ما با در نظر گرفتن همزمان پتانسیل مغناطیسی تبدالی و پتانسیل گیت در واقع باعث شدیم نه تنها تبهگنی بلکه تقارن بین الکترون‌های با اسپین پایین و بالا شکسته شود و شرایط برای الکترون‌های اسپین پایین بهبود داده شود و الکترون‌های اسپین بالا از پنجره رسانش دور شوند و ماده تقریباً بصورت یک عایق برای این حالت اسپینی عمل کند. نتایج بررسی ما نشان داد چنانچه قدرت

شایستگی در حضور زیرلایه فرو مغناطیس نسبت به زمانیکه زیرلایه وجود ندارد برای حالت اسپین پایین افزایش چشمگیری داشته و برای حالت اسپین بالا تغییر چشمگیری ندارد. در نهایت جریان ناشی از اختلاف دمای دوسر نمونه بررسی شد. نتایج نشان داد در عدم حضور پتانسیل تبادلی جریان بسیار ضعیف است. درحالیکه وجود پتانسیل تبادلی برای هر دو حالت اسپینی جریان را تقویت می کند. هرچند افزایش جریان برای اسپین پایین بسیار شدیدتر از حالت اسپین بالاست. نتایج نشان می دهند این ساختار مولکولی در طراحی ادوات اسپینی با مصرف بهینه انرژی بسیار مفید خواهد بود.

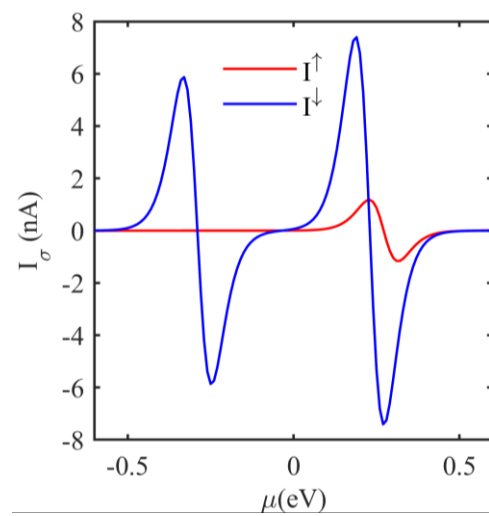
مراجع

- [1] Koumoto K, and Mori T. Thermoelectric Nanomaterials, Materials Design and Applications. Springer Series in Materials Science, 2013.
- [2] Mamur H, and Ahiska R. A review of Thermoelectric generators in renewable energy. International Journal Renewable Energy research, 2014;4(1):128–136. DOI: 10.20508/ijrer.v4i1.1040.g6256
- [3] Bell L E. Cooling, heating, generating power, and recovering waste heat with thermoelectric systems. Science 2008; 321(5895):1457–1461. DOI: 10.1126/science.1158899
- [4] Hossain M S, Al-Dirini F, Hossain F M, and Skafidas E. High performance graphene nano-ribbon thermoelectric devices by incorporation and dimensional tuning of nanopores. Scientific Reports 2015;5:11297. DOI: 10.1038/srep11297
- [5] Snyder G J, and Toberer E S. Complex thermoelectric materials. Nature Materials 2008;7: 105–114. DOI: 10.1038/nmat2090
- [6] Kim W, and Kim K. Prediction of very large values of magnetoresistance in a graphene nanoribbon device. Nature Nanotechnology 2008; 3: 408-412. DOI: 10.1038/nnano.2008.163
- [7] Diez-Perez I, Li Z, Hihath J, Li J, Zhang C, Yang X, Zang L, Dai Y, Feng X, Muellen K, Tao N. Gate-controlled electron transport in coronenes as a bottom-up approach towards graphene transistors. Nature Communications 2010;1:31. DOI: 10.1038/ncomms1029
- [8] Hong X, Kuang Y, Qian C, Tao Y, Yu H,

پتانسیل تبادلی منفی مقدار کنونی باشد، شرایط برای دو حالت اسپینی تغییر کرده و نتایج اسپین بالا و اسپین پایین با یکدیگر عوض می شود.



(الف)



(ب)

شکل ۶ نمودار جریان وابسته به اسپین برحسب پتانسیل شیمیایی

۴- نتیجه گیری

در این مطالعه، یک اتصال مولکولی ساندویچ شده بین دو الکتروود از جنس گرافین بررسی شد. سیستم در ناحیه وسط تحت پتانسیل تبادلی مغناطیسی قرار گرفته است. ضریب سیبک ناشی از گرادیان دما، و همچنین جریان‌های اسپینی محاسبه شدند. نتایج نشان می‌دهد که پتانسیل تبادلی ضریب سیبک را برای حالت‌های اسپین مختلف جدا می‌کند. با توجه به نتایج، ضریب

J Electron Mater. 2023;52:4644-4654. DOI:

10.1007/s11664-023-10392-z

[18] Kuo D M. Effects of metallic electrodes on the thermoelectric properties of zigzag graphene nanoribbons with periodic vacancies. *Journal of Physics: Condensed Matter* 2023;35:305301. DOI: 10.1088/1361-648X/accdac

[19] Zhou B, Yuan J, and Zhou X, and Zhou B. Even-odd effect of spin-dependent transport and thermoelectric properties for ferromagnetic zigzag phosphorene nanoribbons under an electric field. *Journal of Physics: Condensed Matter* 2020;32:435502. DOI: 10.1088/1361-648X/aba676

[20] Kalami R, and Ketabi S A. Spin-dependent thermoelectric properties of a magnetized zigzag graphene nanoribbon. *Progress in Physics of Applied Materials* 2021;1:1-6. DOI: 10.22075/PPAM.2021.23053.1004

[21] Ildarabadi F, Farghadan R. Spin-thermoelectric transport in nonuniform strained zigzag graphene nanoribbons. *Phys Rev B*. 2021;103(11):115424. DOI: 10.1103/PhysRevB.103.115424

[22] Chakraborty S, Maiti SK. Possible routes for efficient thermo-electric energy conversion in a molecular junction. *ChemPhysChem*. 2019;20(6):848. DOI: 10.1002/cphc.201900030

[23] Farshchi N, Elahi SM, Esmaeilzadeh M, Eslami L, Darabi E. Pure spin and spin-polarized currents in a Y-shape phenalene molecular junction. *Physica E*. 2020;118:113944. DOI: 10.1016/j.physe.2019.113944

[24] Mahan GD, Sofo JO. The best thermoelectric. *Proc Natl Acad Sci USA*. 1996;93(15):7436-7439. DOI: 10.1073/pnas.93.15.7436

[25] Liu YS, Zhang X, Feng JF, Wang XF. Spin-resolved Fano resonances induced large spin Seebeck effects in graphene-carbon-chain junctions. *Appl Phys Lett*. 2014;104(24):242412. DOI: 10.1063/1.4884424

[26] Aviram A, Ratner M. Molecular rectifiers. *Chem Phys Lett*. 1974;29(2):277-283. DOI: 10.1016/0009-2614(74)85031-1

[27] Reed MA, Zhou C, Muller CJ, Burgin TP, and Tour J M. Conductance of a molecular

Zhang D, et al. Axisymmetric All-Carbon Devices with High-Spin Filter Efficiency, Large-Spin Rectifying, and Strong-Spin Negative Differential Resistance Properties. *J Phys Chem C*. 2016;120:668-676. DOI: 10.1021/acs.jpcc.5b09180

[9] Han M, Ozyilmaz B, Zhang Y, Kim P. Energy Band-Gap Engineering of Graphene Nanoribbons. *Phys Rev Lett*. 2007;98(20):206805. DOI: 10.1103/PhysRevLett.98.206805

[10] Rincón-García L, Evangeli C, Rubio-Bollinger G, Agraït N. Thermopower measurements in molecular junctions. *Chem Soc Rev*. 2016;45(15):4285-4306. DOI: 10.1039/C6CS00141F

[11] Liu Y, Chen X, Yang X. Spin thermoelectricity in dual-hydrogenated zigzag silicene nanoribbons with surface adsorptions. *Phys Lett A*. 2019;383(21):2492-2498. DOI: 10.1016/j.physleta.2019.05.010

[12] Farghadan R, Ildarabadi F. Gate-voltage-induced giant spin Seebeck effect in phosphorene nanoribbons. *Phys Rev B*. 2020;102(3):035430. DOI: 10.1103/PhysRevB.102.035430

[13] Ildarabadi F, Farghadan R. Carbon atomic chains in a spin thermoelectric device. *J Magn Magn Mater*. 2020;497:165980. DOI: 10.1016/j.jmmm.2019.165980

[14] Eslami L, Farshchi N, Maiti SK, Ahmadi S. Spin dependent molecular junction with graphene electrodes as a thermoelectric nanodevice. *J Appl Phys*. 2023;133(10):104301. DOI: 10.1063/5.0131642

[15] Ajeel FN, Ahmed AB. Tuning the thermoelectric properties of graphene nanoribbons by vacancy defect with Ge-doping. *Chem Phys Impact*. 2023;7:100367. DOI: 10.1016/j.chphi.2023.100367

[16] He SY, Shi HL, Yang J, Ren YH, Han QZ, Gong LJ, Jiang ZT. A comparative investigation into the thermoelectric properties of doped graphene nanoribbons in different doping manners. *Diamond Relat Mater*. 2023;135:109889. DOI: 10.1016/j.diamond.2023.109889

[17] Kalami R, Ketabi SA. Role of Linear Defects on the Electronic, Transport, and Thermoelectric Properties of Armchair Edge Silicene Nanoribbons.

- [37] Gholami Z, Khoeini F. Vacancy tuned thermoelectric properties and high spin filtering performance in graphene/silicene heterostructures. *Sci Rep.* 2021;11(1):15320. DOI: 10.1038/s41598-021-94842-w
- [38] Jayasekera T, Mintmire JW. Transport in multiterminal graphene nanodevices. *Nanotechnology.* 2007;18:424033. DOI: 10.1088/0957-4484/18/42/424033
- [39] Li H, Chen Y, Xie Y, Zhong J. Spin transistor based on T-shaped graphene junctions. *J Appl Phys.* 2011;110(3):033701. DOI: 10.1063/1.3615951
- [40] Farghadan R. Edge magnetism in triangular silicene quantum dots. *J Magn Magn Mater.* 2018;466:301-305. DOI: 10.1016/j.jmmm.2018.07.004
- [41] Lopez Sancho MP, Lopez Sancho JM, Rubio J. Quick iterative scheme for the calculation of transfer matrices: Application to Mo (100). *J Phys F: Metal Phys.* 1984;14:1205-1215. DOI: 10.1088/0305-4608/14/5/016
- [42] Patra M, Maiti SK. Modulation of circular current and associated magnetic field in a molecular junction: A new approach. *Sci Rep.* 2017;7:43343. DOI: doi.org/10.1038/srep43343
- [43] Sivan U, Imry Y. Multichannel Landauer formula for thermoelectric transport with application to thermopower near the mobility edge. *Phys Rev B.* 1986;33(2):551-558. DOI: 10.1103/PhysRevB.33.551
- [44] Onsager L. Reciprocal relations in irreversible processes: II. *Phys Rev.* 1931;38(12):2265-2279.
- [45] Li J, Wang B, Xu F, Wei Y, Wang J. Spin-dependent Seebeck effects in graphene-based molecular junctions. *Phys Rev B.* 2016;93(19):195426. DOI: 10.1103/PhysRevB.93.195426
- [46] Shokri A, Esrafilian M, Salami N. Quantum transport of tunnel field effect transistors based on bilayer-graphene nanoribbon heterostructures. *Physica E.* 2020;119:113908. DOI: 10.1016/j.physe.2019.113908
- [47] Rodin AS, Carvalho A, Castro Neto AH. Strain-induced gap modification in black phosphorus. *Phys Rev Lett.* 2014;112(17):176801. DOI: 10.1126/science.278.5336.252
- [28] Reddy P, Jang SY, Segalman RA, Majumdar A. Thermoelectricity in molecular junctions. *Science.* 2007;315(5818):1568-71. DOI: 10.1126/science.1137149
- [29] Trocha P, Barnas J. Spin-dependent thermoelectric phenomena in a quantum dot attached to ferromagnetic and superconducting electrodes. *Phys Rev B.* 2017;95(16):165439. DOI: 10.1103/PhysRevB.95.165439
- [30] Kalami R, Ketabi SA. Effect of vertical magnetic field on the electronic and transport properties of armchair silicene nanoribbons. *J Adv Mater Eng.* 2023;42:41-52.
- [31] Trocha P, Siuda E. Spin-thermoelectric effects in a quantum dot hybrid system with magnetic insulator. *Sci Rep.* 2022;12(1):5348. DOI: 10.1038/s41598-022-09105-z
- [32] Wang H, Wang M, Qian C, Hong X, Zhang D, Liu YX, Yang X. Spin thermoelectric effects in organic single-molecule devices. *Phys Lett A.* 2017;381(20):1738-1744. DOI: 10.1016/j.physleta.2017.03.024
- [33] Rai D, Hod O, Nitzan A. Magnetic field control of the current through molecular ring junctions. *J. Phys. Chem. Lett.* 2011;2(17):2118-2124. DOI: 10.1021/jz200862r
- [34] Ahmadi Fouladi A, Ketabi SA, Elahi SM, Sebt SA. Tunnel magnetoresistance of the heterocyclic molecular junctions: A Green's function approach. *J Supercond Novel Magn.* 2012;25:1965-1970. DOI: 10.1007/s10948-012-1544-y
- [35] Liu Y, Zhang X, Feng J, Wang X. Spin-resolved Fano resonances induced large spin Seebeck effects in graphene-carbon-chain junctions. *Appl Phys Lett.* 2014;104(24):242412. DOI: 10.1063/1.4884424
- [36] Hines T, Diez-Perez I, Hihath J, Liu H, Wang Z, Zhao J, et al. Transition from tunneling to hopping in single molecular junctions by measuring length and temperature dependence. *J Am Chem Soc.* 2010;132(33):11658-11664. DOI: 10.1021/ja1040946

DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.176801

[48] Galperin M, Nitzan A, Ratner MA. Heat conduction in molecular transport junctions. *Phys Rev B*. 2007;75(15):155312. DOI: 10.1103/PhysRevB.75.155312

[49] Ahmadi S, Raeisi M, Eslami L, and Rajabpour A. Thermoelectric Characteristics of Two-Dimensional Structures for Three Different Lattice Compounds of B–C–N and Graphene Counterpart BX (X = P, As, and Sb) Systems. *J. Phys. Chem. C* 2021;125(27):14525–14537. DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c03460

[50] Li J, Niquet YM, and Delerue C. Spin Seebeck effect and thermal properties of zigzag graphene nanoribbons with edge magnetism. *Phys Rev B*. 2023;107(24):245417.

[51] _Dekkiche H, Gemma A, Tabatabaei F, Batsanov AS, Niehaus T, Gotsmann B, and Bryce MR. Electronic conductance and thermopower of single-molecule junctions of oligo (phenyleneethynylene) derivatives. *Nanoscale*, 2020; 12(36): 18908-18917. DOI: 10.1039/D0NR04413J



Investigation of Electronic, Spintronic, and Thermoelectric Properties in a Graphene Nanoribbon-Constrained Benzene Molecule in the presence of ferromagnetic substrate

L.Eslami¹, F.Bourbour^{2*}, A. Ghorban Shiravizadeh³

1. Quantum Technologies Research Center (QTRC), Science and Research Branch, Islamic Azad University, Tehran
2. Department of Physics Education, Farhangian University, P.O. Box 14665-889, Tehran, Iran
3. Physics Department, Islamic Azad University, Dezfoul Branch, Khoozestan

Abstract:

In this research, we investigate and study the electronic, spintronic, and thermoelectric properties of a benzene molecule and two triangular graphene flakes confined between two semi-infinite graphene nanoribbons. We assume that the presence of a ferromagnetic sublayer in the middle of the structure induces an exchange potential, which in turn affects electron conductance by breaking the spin degeneracy between different spin states. We assume no bias potential is applied between the two ends of the sample; instead, a temperature difference of 20 K between the two ends of the structure generates a current. This article based on tight binding model focuses on the thermoelectric properties of this system, and the results show that the Seebeck coefficient for both spin states will have a significant value. The Seebeck coefficient for electrons with up and down spins differs from each other, and it exhibits a significant increase for the down spin state compared to a case with no exchange potential. It is observed that the spin-dependent electrical current ranges from one to two nanoamperes for the up-spin state and from seven to eight nanoamperes for the down spin state, while without the presence of the exchange potential, the current would be much weaker.

Keywords: Molecular devices, Benzene Molecule, Graphene Nanoribbon, Spintronics, Thermoelectric