

4D13

## NEGF-based Hartree-Fock 法に基づいた分子の電気伝導

### に関する理論的研究

(東大工院) 島崎智実、 山下晃一

【序】近年、分子の電気伝導に関する研究が理論、実験両面から注目を集めている。これは、分子中をどのように電気が流れるかについての理解は、分子を基盤としたエレクトロニクスを実現する上で欠かすことのできないものだからである。我々は、グリーン関数および非平衡グリーン関数(NEGF)と *ab-initio* な量子化学計算を組み合わせることによって研究をおこなった。

【計算方法】分子の電気伝導を取り扱うために、ランダウアの公式を用いた。これは、分子中を電子が通過するときには、ほとんど散乱を受けることのないバリスティックな電気伝導と考えることができるためである。このとき、透過係数はグリーン関数を用いて計算することができる。また、電極に挟まれた分子は従来の量子化学で対象としてきた孤立分子による取扱いができない。これは、分子に接続している電極は分子と比較して無限大の大きさを持つためである。そのため、分子の孤立性と電極の無限性の両方を同時に扱う必要がある。そこで、電極の自己エネルギーと孤立分子のハミルトニアンから系のグリーン関数を求めた。ここで、孤立分子のハミルトニアンは Hartree-Fock (HF)法を用いた。また、Density Matrix は、非平衡グリーン関数を用いて次の式のように求めることができる。

$$D = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} f(E) \sum_{\alpha, \beta} \frac{C_{\alpha}^{\dagger} C_{\alpha}^{+}}{E - \varepsilon_{\alpha}^{*}} \Gamma \frac{C_{\beta} C_{\beta}^{+}}{E - \varepsilon_{\beta}} dE + \int_{-\infty}^{+\infty} \sum_{\alpha}^{occ} C_{\alpha} C_{\alpha}^{\dagger} \delta(E - \varepsilon_{\alpha}) dE$$

Density Matrix および HF 法を組み合わせた NEGF-based HF 法を用いてさらに精密な分子の電気伝導について考察を行った。

**【計算結果】** Benzenedithiol に対して、透過係数ならびに電流電圧特性について計算を行った。さらに、NEGF-based Muliken 電荷を計算した。電荷の計算から、非平衡グリーン関数を用いることによって分子から電極への電荷移動を記述することができ、この電荷移動は電流電圧特性に重要な影響を与えることが分かった。当日は、NEGF-based forces についても考察を行ったので、これについての報告も予定している。

