

بررسی ضریب عبور الکتریکی ملکول بنزن در حضور برهمکنش هابارد^۱

فاطمه مقدسی^۱، محمد مردانی^{۲*}، حسن ربانی^۲

تاریخ ارسال: ۹۴/۱۱/۷

تاریخ تصویب: ۱۳۹۶/۱۲/۲۳

چکیده

در این مقاله ضریب عبور الکترونی یک حلقه بنزنی متصل به دو هادی فلزی را در اتصال‌های پارا و متا، در حضور برهمکنش الکترون-الکترون (مدل هابارد) محاسبه می‌کنیم. برای این منظور از روش تابع گرین و رهیافت تنگ‌بست در تقریب نزدیک‌ترین همسایه بهره می‌جوییم. سپس با توجه به شکل برهمکنش، رسانش را با یک روش عددی خودسازگار به صورت تابعی از انرژی به دست می‌آوریم. نتایج نشان می‌دهد که در حضور برهمکنش الکترون-الکترون، مکان‌های قله‌ها، دره‌ها و تشدیدهای فانو در طیف رسانش جابه‌جا می‌شود. مقدار رسانش در انرژی صفر نیز به تغییرات مقدار پارامتر هابارد وابسته است، که این امر می‌تواند به گذار عایق-فلز در مورد متا بیانجامد. در نظر گرفتن برهمکنش الکترون-الکترون با رهیافت خودسازگار، رویکرد واقع‌بینانه‌تری

^۱ شناسه دیجیتال (DOI): 1022051/jap.2018.8416.1029

^۲ گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه شهرکرد، ایران.

* نویسنده مسئول: moh.mardaani@gmail.com

نسبت به مدل‌هایی دارد که در آن این برهمکنش را به صورت تقریب میدان متوسط لحاظ می‌کنند.

واژه‌های کلیدی: ضریب عبور، تنگ‌بست، بنزن، هابارد.

۱. مقدمه

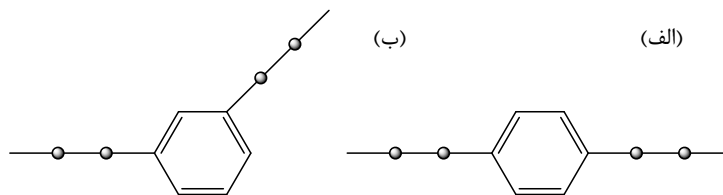
الکترونیک ملکولی چشم‌انداز جدیدی برای ساخت دستگاه‌های الکترونیکی ارائه می‌دهد [۵-۱] و امکان دستیابی به کنترل ترابرد کوانتومی را از یک ملکول منفرد به واقعیت تبدیل می‌کند. این امر باعث تلاش‌های موفقیت‌آمیز زیادی در این زمینه شده است [۸۶]. بعد از آن که بوتیکر و لاندائتر رابطه‌ای برای جریان عبوری از یک ملکول به دست آوردند، در مقاله‌های فراوانی رسانش سامانه‌های مزوسکوپیك از دیدگاه‌های نظری [۹-۱۱] و تجربی [۱۲، ۱۳] بررسی شده است. این مطالعات نه تنها به کوچک‌سازی دستگاه‌های الکترونیکی انجامیده، بلکه امکان بهره‌گیری از خواص فیزیکی جدید را نیز در این سامانه‌ها فراهم کرده است. به طور کلی، در نظر گرفتن اثرات اختلالات خارجی و برهمکنش الکترون-الکترون عوامل کلیدی‌ای هستند که اختلاف میان نتایج نظری و تجربی را کم می‌کنند. معمولاً در محاسبات نظری نقش همبستگی الکترون-الکترون را با مدل هابارد بررسی می‌کنند. این مدل در فیزیک ماده چگال به خصوص در زمینه سامانه‌های همبسته قوی الکترونی، بسیار پرکاربرد بوده و حتی سبب کشف پدیده‌های جالبی نیز شده است [۱۴]. برای مثال، در یک سامانه دو اتمی، افزایش انرژی برهمکنش الکترون-الکترون، مکان تشدید فانو را در نمودار رسانش به سمت انرژی‌های بیشتر منتقل کرده و سرانجام آن را ناپدید می‌سازد [۱۵]. در این مقاله با بهره‌گیری از رابطه لاندائتر-بوتیکر، رسانش کوانتومی ملکول بنزن را به کمک روش تابع گرین محاسبه می‌کنیم و اثر برهمکنش الکترون-الکترون را بر رسانش آن بررسی می‌کنیم. اهمیت این محاسبات در این است که رابطه بین هندسه و نوع اتصال چنین ساختارهایی را با برهمکنش الکترون-الکترون که در بر دارنده اطلاعات مهمی از ویژگی‌های الکترونی سامانه است، به نمایش می‌گذارد. شایان ذکر است رهیافت خودسازگاری که برای حل این مسئله استفاده می‌شود، نگاه واقعی‌تری نسبت به روش‌هایی که در آن برهمکنش الکترون-الکترون را به صورت میدان متوسط در نظر می‌گیرند [۱۶]، ارائه می‌کند.

۲. فرمول‌بندی

مدل هابارد به عنوان مدلی مناسب جهت توجیه گذار فاز عایق-فلز بر اساس جمله برهمکنش الکترون-الکترون معرفی می‌شود. در اینجا سعی می‌کنیم با وارد کردن برهمکنش الکترون-الکترون

به هامیلتونی یک بنزن، رسانش الکترونی آن را موقعی که در حالت‌های پارا و متا به دو نیم‌سیم ساده فلزی متصل است، به دست آوریم (شکل ۱). تمام انرژی‌های جایگاهی اتم‌های سامانه را برابر صفر اختیار کرده و هامیلتونی بنزن منزوی را در تقریب تنگ‌بست و در حضور این برهمکنش به صورت زیر می‌نویسیم [۱۶]،

$$H_W = U \sum_{i=2}^5 (n_{i+1} + n_{i-1}) |i\rangle \langle i| + U(n_1 + n_2 + n_5 + n_6) + \left(\sum_{i=1}^5 \beta_{i,i+1} |i\rangle \langle i+1| + \beta_{1,6} |1\rangle \langle 6| + h.c. \right), \quad (1)$$



شکل ۱ اتصال دو نیم‌سیم ساده فلزی به یک حلقه بنزن شامل پیوندهای یگانه و دو گانه در حالت‌های (الف) پارا و (ب) متا.

که در آن، $b_{i,i+1}$ انرژی پرش الکترون در پیوند بین اتم i و $i+1$ ، U پارامتر هابارد نشان‌دهنده قدرت برهمکنش الکترون-الکترون و بالاخره n_i عدد اشغال الکترون در اتم i در حلقه بنزن است [۱۷]. لازم به ذکر است که در این رابطه بدون از دست دادن کلیت مسئله، انرژی جایگاهی الکترون اتم‌های کرین برابر با صفر اختیار شده است. هامیلتونی کل سامانه که شامل ملکول بنزن، نیم‌سیم‌ها و اتصالات است، چنین نوشته می‌شود:

$$H = H_L + H_{WL} + H_W + H_{WR} + H_R, \quad (2)$$

که در آن، H_L ، $H_{WL(R)}$ و H_{WR} به ترتیب هامیلتونی‌های ملکول بنزن، اتصال چپ (راست) و نیم‌سیم سمت چپ (راست) هستند. اگر اتم‌های سامانه را از چپ به راست شماره‌گذاری کنیم، به گونه‌ای که اتم‌های نیم‌سیم چپ از $-N$ تا صفر و اتم‌های نیم‌سیم راست از 1 تا N برچسب بخورند، آنگاه هامیلتونی‌های نیم‌سیم‌ها و اتصالات در تقریب نزدیکترین همسایه با روابط زیر داده می‌شوند:

$$H_L = \beta_L \sum_{i=-\infty}^{-1} (|i\rangle \langle i+1| + |i+1\rangle \langle i|), \quad (3)$$

$$H_R = \beta_R \sum_{i=1}^{\infty} (|i\rangle \langle i+1| + |i+1\rangle \langle i|), \quad (4)$$

$$H_{WL} = \beta_{WL} (|0\rangle \langle 1| + |1\rangle \langle 0|), \quad (5)$$

$$H_{WR}^{para(meta)} = b_{WR} (|4(5)\rangle\langle 7| + |7\rangle\langle 4(5)|), \quad (6)$$

که در آن‌ها، $b_{L(R)}$ انرژی پرش الکترون بین اتم‌ها در نیم‌سیم سمت چپ (راست) و $b_{WL(R)}$ انرژی پرش الکترون در اتصال چپ (راست) هستند. با استفاده از تعریف تابع گرین و با توجه به شکل هامیلتونی‌های بالا، عناصر وارون ماتریس تابع گرین ملکول در حضور نیم‌سیم‌ها از رابطه زیر به دست می‌آید:

$$\left(\frac{1}{G^{para(meta)}} \right)_{i,j} = \langle i | \varepsilon I - H_W | j \rangle - \sum_L \delta_{1,j} - \sum_R \delta_{4(5),j}, \quad (7)$$

که در آن، e انرژی الکترون ورودی، I ماتریس همانی و $d_{i,j}$ تابع دلتای کرونگر است. همچنین $\hat{a}_{L(R)}$ خودانرژی این حلقه به دلیل وجود هادی چپ (راست) است که توسط هامیلتونی‌های مربوطه به صورت زیر محاسبه می‌شود [۸]:

$$\sum_{L(R)} = \frac{\beta_{WL(R)}^2}{2\beta_{L(R)}^2} \left(\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - 4\beta_{L(R)}^2} \right), \quad (8)$$

در نهایت، ضریب عبور الکترونی سامانه با توجه به فرمول فیشرلی [۱۸]، به صورت تابعی از انرژی الکترون ورودی در حالت‌های پارا و متا چنین است:

$$T^{para(meta)}(\varepsilon) = 4 \operatorname{Im} \sum_L \operatorname{Im} \sum_R \left| G_{1,4(5)}^{para(meta)} \right|^2. \quad (9)$$

در پایان متذکر می‌شویم که ضریب عبور الکترونی به صورت خودسازگار از همین روابط محاسبه می‌گردد. زیرا با توجه به رابطه (۱) هامیلتونی شامل n_i است که خود باید توسط عناصر قطری تابع گرین مسئله محاسبه شود [۱۷]:

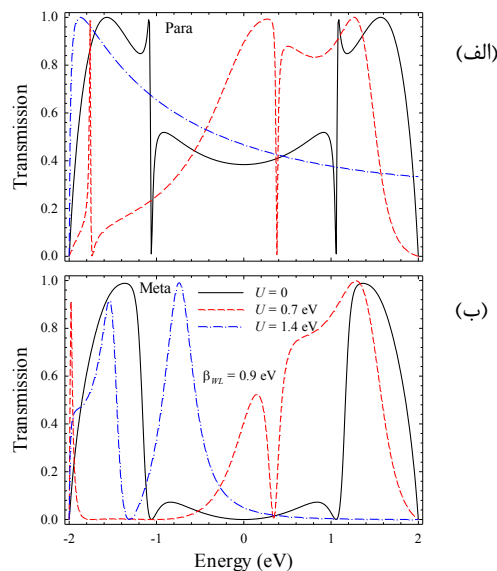
$$n_i = -\frac{2}{\pi} \int_{-2\beta_L}^{\varepsilon} \operatorname{Im} G_{i,j}^{para(meta)}(\varepsilon') d\varepsilon'. \quad (10)$$

بدیهی است که بر اساس رابطه (۱۰) عدد اشغال n_i بستگی به نوع اتصال پارا و متا دارد که از قرار دادن بالانویس برای این کمیت اجتناب کرده‌ایم، در حالی که باید به این نکته توجه داشت.

۳. نتایج محاسبات عددی

در این بخش با انجام محاسبات عددی اثر قدرت برهمکنش الکترون-الکترون را در رسانندگی الکتریکی یک حلقه بنزن متصل به دو نیم‌سیم ساده فلزی بررسی می‌کنیم. در محاسبات خود مقادیر عددی مربوط به انرژی‌های پرش الکترون را در هادی‌ها برابر با ۱ eV و در پیوندهای یگانه و دوگانه کربن-کربن به ترتیب برابر با 0.8 eV و 1.2 eV اختیار کرده‌ایم [۱۹]. انتخاب مقادیر

نوعی در کارهای نظری معمول است و انجام از کلیت مسئله نخواهد کاست و فیزیک مسئله را حفظ خواهد کرد. شکل های ۲(الف) و ۲(ب) رفتار رسانش الکتریکی این ساختار را بر حسب انرژی الکترون به ترتیب برای دو حالت پارا و متا و به ازای چند مقدار مختلف $U = 0, 0.7, 1.4 \text{ eV}$ نشان می دهد. در اینجا انرژی پرش الکترون در اتصالها $b_{WL} = b_{WR} = 0.9 \text{ eV}$ انتخاب شده است. دیده می شود که وجود برهمکنش الکترون-الکترون علاوه بر بهم زدن تقارن نمودار حول انرژی صفر، باعث تغییر مکان ترازهای انرژی حلقه بنزن و در نتیجه جابه جا شدن مکان های قله ها، دره ها و تشدیدهای فانو (افزایش و کاهش متوالی رسانش) در طیف رسانش می شود. منشأ از بین رفتن تقارن نمودار حول انرژی صفر به متفاوت شدن انرژی جایگاهی اتم ها نسبت به هم در حضور پارامتر هابارد بر می گردد. با تغییر مقدار قدرت برهمکنش الکترون-الکترون قله های منحنی رسانش جابه جا شده و مقدار رسانش نیز در انرژی صفر تغییر می یابد. تغییرات رسانش بر حسب پارامتر هابارد در انرژی صفر برای مورد اتصال متا به گونه ای است که می توان از آن به گذار فاز عایق-فلز یاد کرد. مقایسه نمودارهای مربوط به موارد اتصال های پارا و متا نیز نشان می دهد که در هر دو مورد، اثر وجود این برهمکنش باعث افزایش مقدار رسانش در انرژی صفر می شود. تنها تفاوتی که بین حالت های پارا و متا دیده می شود، این است که در انرژی های منفی مکان قله ها و دره های نمودار در مورد متا بیشتر تحت تأثیر این برهمکنش جابه جا شده است.



شکل ۲ نمودار ضریب عبور الکترونی بر حسب انرژی برای حلقه بنزن متصل به دو نیم سیم (شکل ۱) در اتصال‌های (الف) پارا و (ب) متا برای چند مقدار متفاوت U .

۴. نتیجه گیری

در این مقاله با استفاده از رهیافت تنگ‌بست و به کمک روش تابع گرین، رسانندگی الکترونی یک ملکول بنزن را که در حالت‌های پارا و متا به دو نیم سیم ساده فلزی متصل شده است، در حضور برهمکنش الکترون-الکترون (مدل هابارد) به صورت خودسازگار به دست آوردیم. نتایج نشان می‌دهد که وجود برهمکنش الکترون-الکترون باعث تغییر مکان ترازهای انرژی حلقه بنزن و در نتیجه جابه‌جا شدن مکان‌های قله‌ها، دره‌ها و تشدیدهای فانو در طیف رسانش می‌شود. مقدار رسانش در انرژی صفر نیز به پارامتر هابارد حساس بوده و به خصوص برای مورد اتصال متا سبب ایجاد گذار فاز عایق-فلز می‌شود. مقایسه نتایج مربوط به موارد پارا و متا نشان می‌دهد که در انرژی‌های منفی، مکان‌های قله‌ها و دره‌های نمودار رسانش، در مورد متا بیشتر تحت تأثیر برهمکنش الکترون-الکترون جابه‌جا می‌شود.

مراجع

- [1] G. Joachim, J. K. Ginzewski and A. Aviram, "Electronics using hybrid-molecular and mono-molecular devices", *Nature* **408** 541-548 (2000).
- [2] A. Nitzan, "Electron transmission through molecules and molecular interfaces", *Annu. Rev. Phys. Chem.* **52** 681-750 (2001).
- [3] A. Nitzan and M. A. Ratner, "Electron transport in molecular wire junctions", *Science* **300** 1384-1389 (2003).
- [4] J. R. Heath and M. A. Ratner, "Molecular electronics", *Phys. Today* **56** 43-49 (2003).
- [5] F. Chen, J. Hihath, Z. Huang, X. Li, and N. J. Tao, "Measurement of single-molecule conductance", *Annu. Rev. Phys. Chem.* **58** 535-564 (2007).
- [6] A. Aviram and M. A. Ratner, "Molecular rectifiers", *Chem. Phys. Lett.* **29** 277-283 (1974).
- [7] M. A. Reed, C. Zhou, C. J. Muller, T.P. Burgin, and J. M. Tour, "Conductance of a molecular junction", *Science* **278** 252-254 (1997).
- [8] G. Cuniberti, G. Fagas and K. Richter (eds), *Introducing Molecular Electronics*, Springer, Berlin (2005).
- [9] H. Rabani and M. Mardaani, "Exact analytical results on electronic transport of conjugated polymer junctions: renormalization method", *Solid State Commun.* **152** 235-239 (2012).

- [10] N. Tao, "Electron transport in molecular junctions", *Nat. Nanotech.* **1** 173-181 (2006).
- [11] S. Yeganeh, M. A. Ratner, M. Galperin and A. Nitzan, "Transport in State Space: Voltage-Dependent Conductance Calculations of Benzene-1,4-dithiol", *Nano Lett.* **9** 1770-1774 (2009).
- [12] L. Venkataraman, J. E. Klare, C. Nuckolls, M. S. Hybertsen, and M. L. Steigerwald, "Dependence of single-molecule junction conductance on molecular conformation", *Nature* **442** 904-907 (2006).
- [13] A. V. Danilov, S. Kubatkin, S. Kafanov, P. Hedegård, N. S. Hansen, K. M. Poulsen and T. Bjørnholm, "Electronic transport in single molecule junctions: control of the molecule-electrode coupling through intramolecular tunneling barriers", *Nano Lett.* **8** 1-5 (2008).
- [14] S. K. Maiti, "Magnetic response in mesoscopic Hubbard rings: A mean field study", *Solid State Commun.* **150** 2212-2217 (2010).
- [15] A. Goker, "Tunable Fano resonance in a ferromagnetic diatomic molecular transistor", *phys. status solidi (b)* **247** 129-133 (2010).
- [16] S. Datta, *Quantum transport: atom to transistor*, Cambridge University Press (2005).
- [17] M. Mardaani and H. Rabani, "A solvable model for electronic transport of a nanowire in the presence of effective impurities", *Superlattice. Microst.* **59** 155-162 (2013).
- [18] D. S. Fisher and P. A. Lee, "Relation between conductivity and transmission matrix", *Phys. Rev. B* **23** 6851(R) (1981).
- [19] D. Nozaki, H. M. Pastawski, and G. Cuniberti, "Controlling the conductance of molecular wires by defect engineering", *New J. Phys.* **12** 063004 (2010).