Study of electronic transmission coefficient of a benzene molecule in the presence of Hubbard interaction

Fatemeh Moghadasi[1]
Mohammad Mardaani[1]*
Hassan Rabani[1]

Received: 2016-01-27
Accept: 2018-03-14

Abstract
In this paper, we calculate the electronic transmission coefficient of a benzene ring connected to two metallic leads via the para and meta contacts in the presence of electron-electron interaction (Hubbard model). For this purpose, we use the Green's function technique and the nearest neighbor tight-binding approach. Then, we obtain the electronic conductance as a function of energy by a numerical self-consistent method due to the shape of interaction. The result show that in the presence of the electron-electron interaction, the positions of peaks, dips and Fano resonances which are appeared in the conductance spectra will be shifted. Moreover, the value of the conductance at zero energy strongly depends on variation of the Hubbard parameter value; which leads to the metal-insulator transition in the meta case. Considering the electron-electron interaction within the self-consistent approach gives a realistic viewpoint with respect to the models, in which this interaction is considered by the mean field approximation.

Keywords: *Transmission coefficient, Tight-binding, Benzene, Hubbard.*

[1] Department of Physics, Faculty of Science, Shahrekord University, Shahrekord, Iran.
* Corresponding Author; E-mail: moh.mardaani@gmail.com

مجلهٔ فیزیک کاربردی دانشگاه الزهرا(س)
سال هفتم، پیاپی ۱۲، بهار و تابستان ۱۳۹۶

بررسی ضریب عبور الکتریکی ملکول بنزن در حضور برهمکنش هابارد[۱]

فاطمه مقدسی[۲]، محمد مردانی[۲*]، حسن ربانی[۲]

تاریخ ارسال: ۹۴/۱۱/۷
تاریخ تصویب: ۱۳۹۶/۱۲/۲۳

چکیده

در این مقاله ضریب عبور الکترونی یک حلقهٔ بنزنی متصل به دو هادی فلزی را در اتصال‌های پارا و متا، در حضور برهمکنش الکترون‌ـالکترون (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 الکترون‌ـالکترون، 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 عایق‌ـفلز در مورد متا بیانجامد. در نظر گرفتن برهمکنش الکترون‌ـالکترون با رهیافت خودسازگار، رویکرد واقع‌بینانه‌تری

---

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

[۲] گروه فیزیک، دانشکدهٔ 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

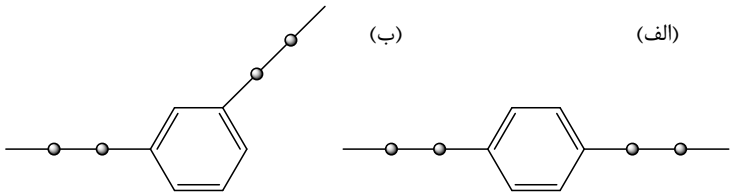
الکترونیک ملکولی چشم‌انداز جدیدی برای ساخت دستگاه‌های الکترونیکی ارائه می‌دهد [۱ـ۵] و امکان دستیابی به کنترل ترابرد کوانتومی را از یک ملکول منفرد به واقعیت تبدیل می‌کند. این امر باعث تلاش‌های موفقیت‌آمیز زیادی در این زمینه شده است [۶ـ۸]. بعد از آن که بوتیکر و لاندائر رابطه‌ای برای جریان عبوری از یک ملکول به دست آوردند، در مقاله‌های فراوانی رسانش سامانه‌های مزوسکوپیک از دیدگاه‌های نظری [۹ـ۱۱] 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 الکترون‌ـالکترون عوامل کلیدی‌ای هستند که اختلاف میان نتایج نظری و تجربی را کم می‌کنند. معمولاً در محاسبات نظری نقش همبستگی الکترون‌ـالکترون را با مدل هابارد بررسی می‌کنند. این مدل در فیزیک ماده چگال به خصوص در زمینهٔ سامانه‌های همبستهٔ قوی الکترونی، بسیار پرکاربرد بوده و حتی سبب کشف پدیده‌های جالبی نیز شده است [۱۴]. برای مثال، در یک سامانهٔ دو اتمی، افزایش انرژی برهمکنش الکترون‌ـالکترون، 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 رابطهٔ لاندائرـبوتیکر، رسانش کوانتومی ملکول بنزن را به کمک روش تابع گرین محاسبه می‌کنیم و اثر برهمکنش الکترون‌ـالکترون را بر رسانش آن بررسی می‌کنیم. اهمیت این محاسبات در این است که رابطهٔ بین هندسه و نوع اتصال چنین ساختارهایی را با برهمکنش الکترون‌ـالکترون که در بر دارندهٔ 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 الکترون‌ـالکترون را به صورت میدان متوسط در نظر می‌گیرند [۱۶]، ارائه می‌کند.

۲. فرمول‌بندی

مدل هابارد به عنوان مدلی مناسب جهت توجیه گذار فاز عایق‌ـفلز بر اساس جملهٔ برهمکنش الکترون‌ـالکترون معرفی می‌شود. در اینجا سعی می‌کنیم با وارد کردن برهمکنش الکترون‌ـالکترون

به هامیلتونی یک بنزن، رسانش الکترونی آن را موقعی که در حالت‌های پارا و متا بـه دو نـیم‌سـیمِ سادهٔ فلزی متصل است، به دست آوریم (شکل ۱). تمام انرژی‌هـای جایگـاهی اتـم‌هـای سـامانه را برابر صفر اختیار کرده و هامیلتونی بنزن منزوی را در تقریب تنگ‌بست و در حضور این برهمکنش به صورت زیر می‌نویسیم [۱۶]،

$$H_W = U\sum_{i=2}^{5}(n_{i+1}+n_{i-1})|i\rangle\langle i| + U(n_1+n_2+n_5+n_6) + \left(\sum_{i=1}^{5}\beta_{i,i+1}|i\rangle\langle i+1| + \beta_{1,6}|1\rangle\langle 6| + h.c.\right), \qquad (۱)$$



شکل ۱ اتصال دو نیم‌سیمِ سادهٔ فلزی به یک حلقهٔ بنزن شامل پیوندهای یگانه و دوگانه در حالت‌های (الف) پارا و (ب) متا.

کـه در آن، $b_{i,i+1}$ انـرژی پـرش الکتـرون در پیونـد بـین اتـم i و $i+1$ام، U پـارامتر هابـارد نشان‌دهندهٔ قدرت برهمکنش الکترون‌ـالکترون و بالاخره n_i عدد اشغال الکترون در اتم کربن iام در حلقهٔ بنزن است [۱۷]. لازم به ذکر است که در این رابطـه بـدون از دسـت دادن کلیـت مسـئله، انرژی جایگاهی الکترون اتم‌های کربن برابر با صفر اختیار شده اسـت. هـامیلتونی کـل سـامانه کـه شامل ملکول بنزن، نیم‌سیم‌ها و اتصالات است، چنین نوشته می‌شود:

$$H = H_L + H_{WL} + H_W + H_{WR} + H_R, \qquad (۲)$$

که در آن، H_W، $H_{WL(R)}$ و $H_{L(R)}$ به ترتیب هامیلتونی‌های ملکول بنزن، اتصال چـپ (راسـت) و نیم‌سیم سمت چپ (راست) هستند. اگر اتم‌های سامانه را از چپ به راست شماره‌گذاری کنیم، بـه گونه‌ای که اتم‌های نیم‌سیمِ چپ از ¥ - تا صفر و اتم‌های نیم‌سیمِ راست از ۷ تـا ¥+ برچسـب بخورند، آنگاه هامیلتونی‌های نیم‌سیم‌ها و اتصال‌ها در تقریب نزدیکترین همسایه با روابط زیـر داده می‌شوند:

$$H_L = \beta_L \sum_{i=-\infty}^{-1}(|i\rangle\langle i+1| + |i+1\rangle\langle i|), \qquad (۳)$$

$$H_R = \beta_R \sum_{i=7}^{\infty}(|i\rangle\langle i+1| + |i+1\rangle\langle i|), \qquad (۴)$$

$$H_{WL} = \beta_{WL}(|0\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 0|), \qquad (۵)$$

$$H_{WR}^{\text{para(meta)}} = b_{WR}\left(\left|4(5)\right\rangle\left\langle 7\right| + \left|7\right\rangle\left\langle 4(5)\right|\right), \tag{۶}$$

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 رابطهٔ زیر به دست می‌آید:

$$\left(\frac{1}{G^{para(meta)}}\right)_{i,j} = \left\langle i\right|\varepsilon I - H_W\left|j\right\rangle - \sum_L \delta_{1,j} - \sum_R \delta_{4(5),j}, \tag{۷}$$

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

$$\sum_{L(R)} = \frac{\beta_{WL(R)}^2}{2\beta_{L(R)}^2}\left(\varepsilon + \sqrt{\varepsilon^2 - 4\beta_{L(R)}^2}\right), \tag{۸}$$

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:

$$T^{para(meta)}(\varepsilon) = 4\,\mathrm{Im}\sum_L \mathrm{Im}\sum_R \left|G_{1,4(5)}^{para(meta)}\right|^2. \tag{۹}$$

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

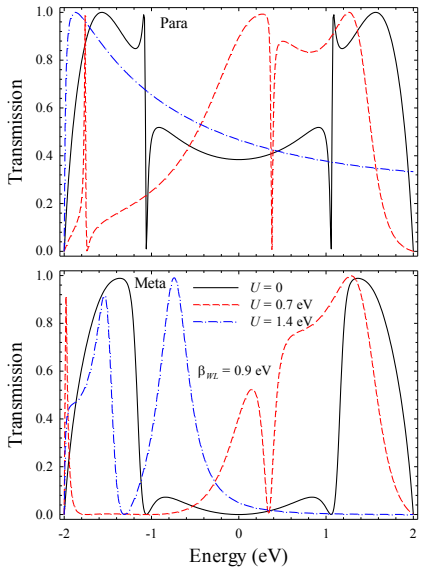
$$n_i = -\frac{2}{\pi}\int_{-2\beta_L}^{\varepsilon} \mathrm{Im}\,G_{i,i}^{para(meta)}(\varepsilon')d\varepsilon'. \tag{۱۰}$$

بدیهی است که بر اساس رابطهٔ (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 الکترون‌ـالکترون را در رسانندگی الکتریکی یک حلقهٔ بنزن متصل به دو نیم‌سیم سادهٔ فلزی بررسی می‌کنیم. در محاسبات خود مقادیر عددی مربوط به انرژی‌های پرش الکترون را در هادی‌ها برابر با $1\,\mathrm{eV}$ و در پیوندهای یگانه و دوگانهٔ کربن‌ـکربن به ترتیب برابر با $0.8\ \mathrm{eV}$ و $1.2\,\mathrm{eV}$ 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. شکل‌های ۲(الف) و ۲(ب) رفتار رسانش الکتریکی این ساختار را بر حسب انرژی الکترون به ترتیب برای دو حالت پارا و متا و به‌ازای چند مقدار مختلف $U = 0, 0.7, 1.4\,\text{eV}$ نشان می‌دهد. در اینجا انرژی پرش الکترون در اتصال‌ها $b_{WL} = b_{WR} = 0.9$ eV انتخاب شده است. دیده می‌شود که وجود برهمکنش الکترون‌ـالکترون علاوه بر برهم زدن تقارن نمودار حول انرژی صفر، باعث تغییر مکان ترازهای انرژی حلقهٔ بنزن و در نتیجه جابه‌جا شدن مکان‌های قله‌ها، دره‌ها و تشدیدهای فانو (افزایش و کاهش متوالی رسانش) در طیف رسانش می‌شود. منشأ از بین رفتن تقارن نمودار حول انرژی صفر به متفاوت شدن انرژی جایگاهی اتم‌ها نسبت به هم در حضور پارامتر هابارد بر می‌گردد. با تغییر مقدار قدرت برهمکنش الکترون‌ـالکترون قله‌های منحنی رسانش جابه‌جا شده و مقدار رسانش نیز در انرژی صفر تغییر می‌یابد. تغییرات رسانش برحسب پارامتر هابارد در انرژی صفر برای مورد اتصال متا به گونه‌ای است که می‌توان از آن به گذار فاز عایق‌ـفلز یاد کرد. مقایسهٔ نمودارهای مربوط به موارد اتصال‌های پارا و متا نیز نشان می‌دهد که در هر دو مورد، اثر وجود این برهمکنش باعث افزایش مقدار رسانش در انرژی صفر می‌شود. تنها تفاوتی که بین حالت‌های پارا و متا دیده می‌شود، این است که در انرژی‌های منفی مکان قله‌ها و دره‌های نمودار در مورد متا بیشتر تحت تأثیر این برهمکنش جابه‌جا شده است.



(الف)

(ب)

شکل۲ نمودار ضریب عبور الکترونی بر حسب انرژی برای حلقهٔ بنزن متصل به دو نیم‌سیم (شکل ۱) در اتصال‌های (الف) پارا و (ب) متا برای چند مقدار متفاوت U.

٤. نتیجه‌گیری

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 نیم‌سیمِ سادهٔ فلزی متصل شده است، در حضور برهمکنش الکترون‌ـالکترون (مدل هابارد) به صورت خودسازگار به دست آوردیم. نتایج نشان می‌دهد که وجود برهمکنش الکترون‌ـالکترون 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 عایق‌ـفلز می‌شود. مقایسهٔ 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 الکترون‌ـالکترون 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. Cuniberti1, "Controlling the conductance of molecular wires by defect engineering", *New J. Phys*. **12** 063004 (2010).