

Ренормировки заселенностей триплетных состояний спинового димера в нулевом магнитном поле при квантовом транспорте

В.В. Вальков, С.В. Аксенов

Институт физики им. Л.В. Киренского ФИЦ КИЦ СО РАН, г. Красноярск, 660036, Россия

E-mail: vvv@iph.krasn.ru,

asv86@iph.krasn.ru

Статья поступила в редакцию 12 октября 2018 г., опубликована онлайн 20 декабря 2018 г.

На основе неравновесной техники Келдыша в атомном представлении изучен эффект индуцирования различной заселенности магнитных состояний спинового димера, взаимодействующего с транспортируемыми через устройство электронами, в нулевом магнитном поле. Для нахождения чисел заполнения квантовых состояний устройства в условиях сильной неравновесности методом неравновесной диаграммной техники для операторов Хаббарда получена и решена система кинетических уравнений. Численный анализ этих уравнений позволил выявить неравновесные ренормировки при учете сильных спин-фермионных корреляций.

Ключевые слова: неравновесный квантовый транспорт, спиновый димер, кинетическое уравнение, атомное представление, неупругое рассеяние.

1. Введение

В последнее время активно проводятся исследования, направленные на отыскание эффективных методов управления квантовым транспортом электронов через структуры атомного масштаба с помощью внешних полей. Перспективными представляются системы, содержащие внутренние степени свободы, которые могут участвовать в процессах переноса заряда. Основной мотив применения таких систем связан с тем, что изменение состояния подсистемы внутренних степеней свободы за счет целенаправленного воздействия может повлиять на интенсивность квантового транспорта и, тем самым, модифицировать вольт-амперную характеристику атомной структуры.

Примером подобной системы может служить устройство, содержащее примесные магнитные ионы. Электроны, находящиеся в таком устройстве, за счет $s-d(f)$ -обменного взаимодействия влияют на состояния магнитных ионов. Поэтому электронный транспорт сопровождается процессами неупругого рассеяния, которые могут существенно менять транспортные характеристики устройства. Этот вывод имеет важное значение для практики, поскольку открывает широкие возможности управления электронным транспортом за

счет воздействия внешних полей на внутренние степени свободы [1,2].

Вычисление вольт-амперных характеристик устройств с внутренними степенями свободы — значительная проблема, так как гамильтониан, учитывающий взаимодействия между подсистемами, является недиагональным в обычном представлении фермиевских и бозевских операторов вторичного квантования. Поэтому ряд теории возмущений при обычном подходе содержит большое число затравочных амплитуд рассеяния, что существенно затрудняет суммирование диаграммных рядов.

Вместе с тем необходимо подчеркнуть важность учета таких процессов рассеяния, поскольку они индуцируют переходы устройства в возбужденные состояния. В результате протекание туннельного тока сопровождается перераспределением заселенностей энергетических состояний устройства. При этом итоговое распределение занятости этих уровней может существенно отличаться от исходного равновесного [3]. В настоящей работе на примере устройства с примесными магнитными ионами, формирующими спиновый димер, рассмотрены неравновесные ренормировки состояний магнитной подсистемы, индуцированные электрическим током.

Следует отметить, что, в целом, управление спиновыми состояниями систем атомного масштаба является одной из важных проблем в таких областях, как квантовые вычисления и приложения в области хранения информации [4]. Кроме того, этот аспект существен при анализе фундаментальных процессов и явлений. Один из них — это эффект Кондо, свойства которого, в частности, в значительной мере зависят от величины спинового момента основного состояния системы, взаимодействующей с металлическими контактами [5]. В отсутствие магнитного поля ранее было рассмотрено несколько механизмов, позволяющих влиять на спиновые состояния нульмерных объектов. В квантовых точках такой контроль может осуществляться за счет изменения формы запирающего потенциала, создаваемого электродами затвора. В результате при четном числе электронов в точке возможно наблюдение смены основного состояния с синглетного на триплетное [6]. Известно, что в структурах со спином $S > 1/2$ вырожденность $2S + 1$ состояний может быть снята созданием магнитной анизотропии. В свою очередь, она может быть индуцирована растяжением молекулы [7], спин-орбитальным взаимодействием [8] или влиянием ее окружения [9]. В настоящей работе мы продемонстрируем, что процессы неравновесного неупругого транспорта способны вызывать неодинаковую вероятность реализации спиновых состояний структуры, что можно интерпретировать как действие эффективной магнитной анизотропии. Чтобы описать данный эффект, была получена и решена система кинетических уравнений для чисел заполнения устройства, включающего спиновый димер, и проведен ее численный анализ.

2. Модель устройства со спиновым димером

Для изучения неравновесных характеристик подсистемы спинового димера, находящегося в устройстве и подверженного воздействию протекающих электронов, рассмотрим наиболее существенные взаимодействия, реализующиеся в такой системе, показанном на рис. 1. Связь левого контакта с устройством осуществляется посредством туннелирования электрона из крайнего узла контакта на первый узел в состоянии с

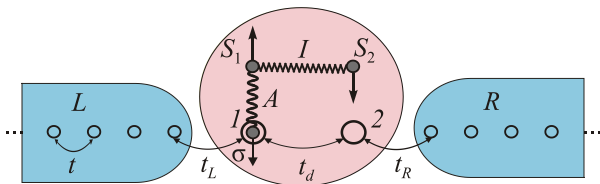


Рис. 1. Модель устройства с двумя узлами и двумя примесными спинами. Левый контакт (t_L) туннельно связан с первым узлом устройства, а правый контакт со вторым узлом (t_R). Электрон, попадая на узел устройства (на рисунке на первый узел), посредством $s-d(f)$ -обменной связи коррелирует с примесным спином.

энергией $\xi_{d\sigma}$. Туннельная связь с правым контактом осуществляется аналогично, но с той лишь разницей, что в процессе туннелирования участвует второй узел устройства. В устройстве присутствует подсистема двух взаимодействующих между собой локализованных спинов. Тогда $s-d(f)$ -обменная связь локализованных спинов с транспортируемыми электронами приводит к возбуждению димера и модификации его характеристик. Реализация такой системы может быть достигнута посредством адсорбирования молекулярных структур в область между контактами. Другая возможность связана с созданием устройства при участии переходных ионов с незаполненной d - или f -оболочкой.

Между локализованными спинами действует гейзенберговское обменное взаимодействие. Ниже предполагается, что это взаимодействие антиферромагнитного типа. Если на устройстве нет электронов, то спиновый димер находится в синглетном состоянии. Уровень энергии триплетного терма отделен от синглетного терма на величину обменной энергии I .

Из-за $s-d(f)$ -обменного взаимодействия электрон, попавший на узел устройства из контакта, сильно коррелирует с состоянием одного из локализованных спинов. Это приводит к тому, что при туннелировании электрона в устройство из контакта, магнитное состояние устройства, вообще говоря, будет изменяться. Это происходит из-за того, что процессы транспорта электронов через устройство будут сопровождаться возбуждениями магнитных степеней свободы. Таким образом, транспорт электронов будет происходить при существенном влиянии процессов неупругого рассеяния электронов на внутренних степенях свободы устройства.

Для решения вопроса об учете влияния процессов неупругого рассеяния электронов на характеристики электронного транспорта устройства воспользуемся методом неравновесных функций Грина, которые построим на основе атомного представления. С этой целью неравновесные функции Грина определяются через операторы Хаббарда. При этом будет показано, что теорию возмущений можно переформулировать так, что только процессы туннелирования будут определять матрицу рассеяния на контуре Келдыша.

Изучение неравновесных свойств спинового димера проведем в рамках гамильтониана

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{T} + \hat{V}. \quad (1)$$

Первое слагаемое

$$\hat{H}_0 = \hat{H}_L + \hat{H}_R + \hat{H}_D \quad (2)$$

соответствует левому и правому контактам

$$\hat{H}_L = \sum_{k\sigma} \xi_{Lk\sigma} c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma}, \quad \hat{H}_R = \sum_{p\sigma} \xi_{Rp\sigma} d_{p\sigma}^+ d_{p\sigma}, \quad (3)$$

а также устройству, которое описывается посредством гамильтониана

$$\hat{H}_D = \sum_{l=1}^2 \left\{ \sum_{\sigma} \xi_{d\sigma} a_{l\sigma}^+ a_{l\sigma} + U n_{l\uparrow} n_{l\downarrow} \right\} + t_d \sum_{\sigma} \left(a_{1\sigma}^+ a_{2\sigma} + a_{2\sigma}^+ a_{1\sigma} \right) + U_{12} n_1 n_2 + \sum_{l=1}^2 \left\{ A (\boldsymbol{\sigma}_l \mathbf{S}_l) - g \mu_B H S_l^z \right\} + I (\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2). \quad (4)$$

Туннельная связь между контактами и устройством описывается оператором

$$\hat{T} = \hat{T}_L + \hat{T}_R + \text{h.c.} = \sum_{k\sigma} t_{Lk} c_{k\sigma}^+ a_{l\sigma} + \sum_{p\sigma} t_{Rp} d_{p\sigma}^+ a_{2\sigma} + \text{h.c.} \quad (5)$$

Оператор \hat{V} учитывает приложенную к системе разность потенциалов. Принимая во внимание неизменность потенциала в контактах и в устройстве, а также связывая начало отсчета потенциала с левым контактом, получим

$$\hat{V} = \sum_{l=1}^2 \sum_{\sigma} (eV/2) a_{l\sigma}^+ a_{l\sigma} + \sum_{p\sigma} (eV) d_{p\sigma}^+ d_{p\sigma}. \quad (6)$$

Выше были использованы обозначения: $c_{k\sigma}$ ($d_{p\sigma}$) — оператор уничтожения электрона в левом (правом) контакте с волновым вектором k (p) и проекцией спина σ ; $\xi_{Lk\sigma} = \varepsilon_{Lk} - g_e \mu_B H \sigma - \mu$, $\xi_{Rp\sigma} = \varepsilon_{Rp} - \sigma g_e \mu_B H - \mu$ — одноэлектронные энергии в левом и правом контакте соответственно, отсчитанные от уровня химпотенциала μ и учитывающие расщепление энергии по проекции спина электрона $\sigma = \pm 1/2$ в магнитном поле; g_e — электронный g -фактор в контактах, μ_B — магнетон Бора. В дальнейшем предполагается, что контакты представляют собой однозонные парамагнитные металлы. Входящие в гамильтониан устройства параметры имеют следующий физический смысл: $\xi_{d\sigma} = \varepsilon_d - g_e \mu_B H \sigma - \mu$ — отсчитанная от химпотенциала спин-зависящая энергия электрона, находящегося на одном из узлов устройства, во внешнем магнитном поле H ; ε_d — затравочная одноэлектронная энергия; $n_{l\sigma} = a_{l\sigma}^+ a_{l\sigma}$ — оператор числа электронов на узле устройства с номером l и проекцией спина σ ; $a_{l\sigma}^+$ ($a_{l\sigma}$) — оператор рождения (уничтожения) электрона в устройстве на узле l с проекцией спина σ ; параметр U характеризует хаббардовское отталкивание двух электронов с противоположными проекциями спинов, находящимися на одном узле. $n_l = n_{l\uparrow} + n_{l\downarrow}$ — оператор полного числа электронов на узле устройства с номером l . Параметр U_{12} определяет интенсивность кулоновского взаимодействия электронов, находящихся на первом и втором узле устройства. Действие магнитного поля на энергетическую структуру подсистемы локализованных спинов с эффективным g -фактором опи-

сывается посредством предпоследнего слагаемого в (4). Взаимосвязь между спиновой степенью свободы транспортируемого электрона и локализованными спинами устройства, осуществляемая через механизм $s-d(f)$ -обменной связи, характеризуется параметром A , при этом \mathbf{S}_l является векторным оператором локализованного спина устройства, а $\boldsymbol{\sigma}_l$ — векторным оператором спина транспортируемого электрона. Как известно, скалярное произведение $\boldsymbol{\sigma} \mathbf{S}$ содержит операторные слагаемые, соответствующие учету спин-флип процессов, когда происходит одновременное изменение проекций у примесных спинов и у электрона.

3. Процессы туннелирования в атомном представлении для устройства

Наличие внутренних степеней свободы устройства приводит к тому, что электрон, находящийся внутри него, будет взаимодействовать как с зарядовыми, так и со спиновыми степенями свободы. Присутствие большого числа различных затравочных амплитуд рассеяния приводит не только к значительному усложнению ряда теории возмущений, но и к проблеме вычисления явного вида фермиевских и спиновых операторов в представлении взаимодействия. Это связано с неэквидистантной структурой спектра фермиевских (или спиновых) возбуждений оператора \hat{H}_D . Поэтому непосредственное применение диаграммной техники в терминах операторов вторичного квантования становится невозможным из-за отсутствия теоремы Вика для средних от произведения таких операторов.

Выход из этого затруднения связан с построением атомного представления и записью в нем гамильтониана устройства, а также оператора туннелирования. С этой целью введем функции $|\Psi_n\rangle$, являющиеся решением уравнения Шредингера для устройства

$$\hat{H}_D |\Psi_n\rangle = E_n |\Psi_n\rangle, \quad n = 1, 2, \dots, N_D. \quad (7)$$

Набор функций $|\Psi_1\rangle, |\Psi_2\rangle, \dots, |\Psi_{N_D}\rangle$ можно рассматривать как базис гильбертова пространства, в котором действуют операторы, относящиеся к устройству. Введем операторы Хаббарда [10,11]

$$X^{nm} = |\Psi_n\rangle \langle \Psi_m|, \quad n, m = 1, 2, \dots, N_D, \quad (8)$$

действующие в гильбертовом пространстве устройства. В частности, действие этих операторов на базисные состояния определяется простым образом: $X^{nm} |\Psi_p\rangle = \delta_{mp} |\Psi_n\rangle$.

Первое преимущество этого представления связано с тем, что переход к нему приводит к диагональной форме гамильтониана H_D :

$$H_D = \sum_{n=1}^{N_D} E_n X^{nn}. \quad (9)$$

Вторая важная особенность атомного представления связана с тем, что явный вид операторов Хаббарда в представлении взаимодействия $X^{nm}(t) = U_0(t)X^{nm}U_0^\dagger(t)$ легко вычисляется. При этом возникает обычная временная зависимость по экспоненциальному закону [10]:

$$X^{nm}(t) = \exp(i(E_n - E_m)t)X^{nm} \equiv \exp(i\alpha Et)X^{nm}.$$

Здесь использована удобная для дальнейшего изложения форма записи: под E понимается N_D -мерный вектор $(E_1, E_2, \dots, E_{N_D})$, а под α — N_D -мерный вектор, i -я компонента которого определяется разностью двух символов Кронекера: $\alpha_i(n, m) = \delta_{in} - \delta_{im}$. Тогда скалярное произведение $\alpha E = E_n - E_m \equiv E_\alpha$, если $\alpha = \alpha_i(n, m)$, т.е. если α соответствует переходу между состояниями Ψ_m и Ψ_n .

Простота временной зависимости операторов Хаббарда в представлении взаимодействия открывает очевидный путь построения теории возмущений с применением диаграммной техники для этих операторов, поскольку для них существует теорема Вика.

Введение матричных элементов операторов уничтожения электрона с проекцией спина σ на первом и на втором узлах,

$$\gamma_{1\sigma}(n, m) = \langle \Psi_n | a_{1\sigma} | \Psi_m \rangle \equiv \gamma_{1\sigma}(\alpha), \quad (10)$$

$$\gamma_{2\sigma}(n, m) = \langle \Psi_n | a_{2\sigma} | \Psi_m \rangle \equiv \gamma_{2\sigma}(\alpha),$$

позволяет в компактном виде выразить фермиевские операторы через операторы Хаббарда

$$a_{1\sigma} = \sum_{\alpha} \gamma_{1\sigma}(\alpha) X^{\alpha}, \quad a_{2\sigma} = \sum_{\alpha} \gamma_{2\sigma}(\alpha) X^{\alpha}, \quad \alpha \equiv \alpha(nm). \quad (11)$$

Здесь и в дальнейшем, для краткости, использована запись суммирования по индексу α , подразумевающая в действительности суммирование по паре индексов n и m атомных состояний устройства.

При использовании атомного представления оператор туннелирования, входящий в матрицу рассеяния, приобретает удобный для построения теории возмущений вид, когда в явной форме присутствуют операторы перехода между атомными состояниями:

$$\begin{aligned} \hat{T}_I(t) = & \sum_{k\sigma, \alpha} t_{Lk}(t) \gamma_{1\sigma}(\alpha) c_{k\sigma}^+(t) X^{\alpha}(t) + \\ & + \sum_{p\sigma, \alpha} t_{Rp}(t) \gamma_{2\sigma}(\alpha) d_{p\sigma}^+(t) X^{\alpha}(t) + \text{h.c.} \end{aligned} \quad (12)$$

Для рассматриваемого нами устройства полное число состояний $|\Psi_m\rangle, m = 1, 2, \dots, N_D$ равно 64. В режиме сильных корреляций параметр хаббардовского отталкивания U и величина межузельного кулоновского взаимодействия U_{12} значительно превосходят значения других энергетических параметров системы. Это позволяет ограничиться только такими состояниями уст-

ройства, которые содержат не более одного транспортируемого электрона. Таких состояний 20.

Для их описания введем операторы рождения $f_{1\sigma}^+, f_{2\sigma}^+$ и уничтожения $f_{1\sigma}, f_{2\sigma}$ локализованных фермионов с проекцией спина σ на первом и втором узлах устройства.

Тогда сектор гильбертова пространства гамильтониана устройства, не содержащий транспортируемых электронов, соответствует состояниям димерной системы. Синглетное состояние устройства записывается в виде

$$|1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(f_{1\uparrow}^+ f_{2\downarrow}^+ - f_{1\downarrow}^+ f_{2\uparrow}^+) |0\rangle, \quad E_1 = -3I/4, \quad (13)$$

где $|0\rangle$ — вакуумное состояние. Три триплетных состояний этого сектора определяются выражениями

$$|2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(f_{1\uparrow}^+ f_{2\downarrow}^+ + f_{1\downarrow}^+ f_{2\uparrow}^+) |0\rangle, \quad (14)$$

$$|3\rangle = f_{1\uparrow}^+ f_{2\uparrow}^+ |0\rangle, \quad |4\rangle = f_{1\downarrow}^+ f_{2\downarrow}^+ |0\rangle$$

и имеют энергию $E_2 = I/4$. Среди 16 состояний одноэлектронного сектора восемь состояний соответствуют четным и нечетным состояниям с суммарным спином $S_t = 3/2$. Четыре четных состояния представим в виде, позволяющем просто вычислять параметры представления

$$\begin{aligned} |5\rangle &= \frac{a_{1\uparrow}^+ + a_{2\uparrow}^+}{\sqrt{2}} |3\rangle, \quad |6\rangle = \frac{\hat{S}_t^-}{\sqrt{3}} |5\rangle, \\ |7\rangle &= \frac{\hat{S}_t^+}{\sqrt{3}} |8\rangle, \quad |8\rangle = \frac{a_{1\downarrow}^+ + a_{2\downarrow}^+}{\sqrt{2}} |4\rangle, \end{aligned} \quad (15)$$

где

$$\hat{S}_t^- = \sum_{j=1}^2 (f_{j\downarrow}^+ f_{j\uparrow} + a_{j\downarrow}^+ a_{j\uparrow}),$$

$$\hat{S}_t^+ = \sum_{j=1}^2 (f_{j\uparrow}^+ f_{j\downarrow} + a_{j\uparrow}^+ a_{j\downarrow}).$$

Четыре нечетных состояния с $S_t = 3/2$ определяются выражениями

$$\begin{aligned} |9\rangle &= \frac{a_{1\uparrow}^+ - a_{2\uparrow}^+}{\sqrt{2}} |3\rangle, \quad |10\rangle = \frac{\hat{S}_t^-}{\sqrt{3}} |9\rangle, \\ |11\rangle &= \frac{\hat{S}_t^+}{\sqrt{3}} |12\rangle, \quad |12\rangle = \frac{a_{1\downarrow}^+ - a_{2\downarrow}^+}{\sqrt{2}} |4\rangle. \end{aligned} \quad (16)$$

В соответствии с правилом сложения моментов в квантовой механике среди одноэлектронных состояний устройства есть дублетные термы. Два четных (g) и два нечетных состояния (u), с проекцией суммарного спина $S_t^z = 1/2$, относящихся к четным дублетным и нечетным дублетным термам, запишем в виде

$$|1/2, 1/2\rangle_{\pm}^g = \sum_{\sigma} C_{g\sigma}^{\pm} \left(f_{1\sigma}^+ f_{2\bar{\sigma}}^+ a_{1\uparrow}^+ + f_{1\bar{\sigma}}^+ f_{2\sigma}^+ a_{2\uparrow}^+ \right) |0\rangle + C_{gg}^{\pm} \left(a_{1\downarrow}^+ + a_{2\downarrow}^+ \right) f_{1\uparrow}^+ f_{2\uparrow}^+ |0\rangle, \quad (17)$$

$$|1/2, 1/2\rangle_{\pm}^u = \sum_{\sigma} C_{u\sigma}^{\pm} \left(f_{1\sigma}^+ f_{2\bar{\sigma}}^+ a_{1\uparrow}^+ - f_{1\bar{\sigma}}^+ f_{2\sigma}^+ a_{2\uparrow}^+ \right) |0\rangle + C_{uu}^{\pm} \left(a_{1\downarrow}^+ - a_{2\downarrow}^+ \right) f_{1\uparrow}^+ f_{2\uparrow}^+ |0\rangle.$$

Тогда оставшиеся восемь состояний нумеруются следующим образом:

$$|13\rangle = |1/2, 1/2\rangle_{+}^g, \quad |14\rangle = \hat{S}_I^{-} |13\rangle, \quad |15\rangle = |1/2, 1/2\rangle_{-}^g, \quad |16\rangle = \hat{S}_I^{-} |15\rangle, \quad (18)$$

$$|17\rangle = |1/2, 1/2\rangle_{+}^u, \quad |18\rangle = \hat{S}_I^{-} |17\rangle, \quad |19\rangle = |1/2, 1/2\rangle_{-}^u, \quad |20\rangle = \hat{S}_I^{-} |19\rangle. \quad (19)$$

При записи выражений (17) использовались обозначения

$$C_{g\uparrow}^{\pm} = \pm \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{b_g^{\pm}}{Z_g^{\pm}}, \quad C_{g\downarrow}^{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{a_g^{\pm}}{Z_g^{\pm}}, \quad C_{gg}^{\pm} = \pm \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{c_g^{\pm}}{Z_g^{\pm}}, \quad Z_g^{\pm} = \sqrt{\left(a_g^{\pm}\right)^2 + \left(b_g^{\pm}\right)^2 + \left(c_g^{\pm}\right)^2}, \quad (20)$$

$$C_{u\uparrow}^{\pm} = \pm \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{b_u^{\pm}}{Z_u^{\pm}}, \quad C_{u\downarrow}^{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{a_u^{\pm}}{Z_u^{\pm}}, \quad C_{uu}^{\pm} = \pm \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{c_u^{\pm}}{Z_u^{\pm}}, \quad Z_u^{\pm} = \sqrt{\left(a_u^{\pm}\right)^2 + \left(b_u^{\pm}\right)^2 + \left(c_u^{\pm}\right)^2},$$

где

$$\begin{aligned} a_g^{\pm} &= (v_g \mp A)(v_g \mp I \mp 2t_d), & b_g^{\pm} &= (I + 2t_d)(v_g \mp I \mp 2t_d), & c_g^{\pm} &= A(v_g \mp A), \\ a_u^{\pm} &= (v_u \mp A)(v_u \mp I \pm 2t_d), & b_u^{\pm} &= (I - 2t_d)(v_u \mp I \pm 2t_d), & c_u^{\pm} &= A(v_u \mp A), \\ v_g &= \sqrt{(A - I - 2t_d)^2 + A(I + 2t_d)}, & v_u &= \sqrt{(A - I + 2t_d)^2 + A(I - 2t_d)}. \end{aligned} \quad (21)$$

Тогда в рамках принятой нумерации одноэлектронных состояний их энергии записываются как

$$E_{5(9)} = \xi_d + \frac{A+I}{4} \pm t_d, \quad E_{13(15)} = \xi_d - \frac{A+I}{4} \pm \frac{v_g}{2}, \quad E_{17(19)} = \xi_d - \frac{A+I}{4} \pm \frac{v_u}{2}. \quad (22)$$

Учитывая явный вид базисных функций устройства, нетрудно показать, что параметры представления оператора $a_{1\uparrow}$ через операторы Хаббарда определяются следующим образом:

$$\begin{aligned} \gamma_{1\uparrow}(3,5) = \gamma_{1\uparrow}(3,9) &= \frac{1}{\sqrt{2}}, & \gamma_{1\uparrow}(2,6) = \gamma_{1\uparrow}(2,10) &= \frac{1}{\sqrt{3}}, & \gamma_{1\uparrow}(4,7) = \gamma_{1\uparrow}(4,11) &= \frac{1}{\sqrt{6}}, \\ \gamma_{1\uparrow}(1,13(15)) &= \frac{C_{g\uparrow}^{+(-)} - C_{g\downarrow}^{+(-)}}{\sqrt{2}}, & \gamma_{1\uparrow}(1,17(19)) &= \frac{C_{u\uparrow}^{+(-)} - C_{u\downarrow}^{+(-)}}{\sqrt{2}}, \\ \gamma_{1\uparrow}(2,13(15)) &= -\frac{C_{gg}^{+(-)}}{\sqrt{2}}, & \gamma_{1\uparrow}(2,17(19)) &= -\frac{C_{uu}^{+(-)}}{\sqrt{2}}, \\ \gamma_{1\uparrow}(4,14(16)) &= \sqrt{2}\gamma_{1\uparrow}(2,13(15)), & \gamma_{1\uparrow}(4,18(20)) &= \sqrt{2}\gamma_{1\uparrow}(2,17(19)). \end{aligned} \quad (23)$$

Для рассматриваемого нами устройства $|\gamma_{2\uparrow}(\alpha)| = |\gamma_{1\uparrow}(\alpha)|$, причем, для половины переходов $\gamma_{2\uparrow}(\alpha) = -\gamma_{1\uparrow}(\alpha)$. Эти свойства параметров представления будут использованы в дальнейшем при нахождении тока и кинетических уравнений. Параметры $\gamma_{1,2\downarrow}(\alpha)$ вычисляются аналогично.

4. Электронный ток и кинетические уравнения

Выражение для тока в левом контакте J следует из его определения

$$J = e\dot{\hat{N}}_L, \quad \hat{N}_L = \sum_{k\sigma} c_{k\sigma}^{\dagger} c_{k\sigma}, \quad (24)$$

где \hat{N}_L — оператор числа электронов в левом контакте. Тогда, пользуясь правилами квантовой механики, получаем

$$J = -\frac{ie}{\hbar} \left\langle \left[\hat{N}_L, \hat{T}_L \right] \right\rangle = -\frac{ie}{\hbar} \sum_{k\sigma} t_{Lk} \left[\left\langle c_{1\sigma}^{\dagger} a_{1\sigma} \right\rangle - \left\langle a_{1\sigma}^{\dagger} c_{1\sigma} \right\rangle \right]. \quad (25)$$

Абсолютная величина заряда электрона обозначена через e . Усреднение проводится с матрицей плотности $\rho(t)$ [12,13], удовлетворяющей уравнению

$$i\hbar\partial\rho(t)/\partial t = [\hat{H}, \rho(t)]. \quad (26)$$

Вычисление возникающих в теории средних проведем с помощью неравновесных функций Грина. Нахождение этих функций связано с применением теории возмущений по методу Келдыша [14]. С этой целью вначале перейдем к матрице плотности $\rho_v(t)$ [15], так что

$$\rho(t) = \hat{U}_v^+ \rho_v(t) \hat{U}_v, \quad \hat{U}_v = \exp(it\hat{V}/\hbar). \quad (27)$$

Новое уравнение движения для $\rho_v(t)$

$$i\hbar\partial\rho_v(t)/\partial t = [\hat{H}_v(t), \rho_v(t)] \quad (28)$$

определяется гамильтонианом $\hat{H}_v(t) = \hat{H}_0 + \hat{T}_v(t)$, в котором оператор тунелирования

$$\hat{T}_v(t) = \sum_{k\sigma} t_{Lk}(t) c_{k\sigma}^+ a_{1\sigma} + \sum_{p\sigma} t_{Rp}(t) d_{p\sigma}^+ a_{2\sigma} + \text{h.c.} \quad (29)$$

имеет явную временную зависимость, определяемую функциями

$$t_{Lk}(t) = t_{Lk} \exp(-iteV/2\hbar), \quad t_{Rp}(t) = t_{Rp} \exp(iteV/2\hbar).$$

Дальнейшее преобразование связано с переходом к представлению взаимодействия:

$$\rho_v(t) = \hat{U}_0^+ \rho_I(t) \hat{U}_0, \quad \hat{U}_0 = \exp(it\hat{H}_0/\hbar). \quad (30)$$

В этом представлении ток определяется выражением

$$J = -\frac{ie}{\hbar} \sum_{k\sigma} \left[t_{Lk}(t) \langle c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) \rangle_I - t_{Lk}^*(t) \langle a_{1\sigma}^+(t) c_{k\sigma}(t) \rangle_I \right], \quad (31)$$

в котором знак I у угловых скобок означает, что среднее вычисляется с матрицей плотности, удовлетворяющей уравнению

$$i\hbar\partial\rho_I(t)/\partial t = [\hat{T}_I(t), \rho_I(t)]. \quad (32)$$

Здесь оператор тунелирования берется в представлении взаимодействия

$$\hat{T}_I(t) = \sum_{k\sigma} t_{Lk}(t) c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) + \sum_{p\sigma} t_{Rp}(t) d_{p\sigma}^+(t) a_{2\sigma}(t) + \text{h.c.} \quad (33)$$

В этом представлении временная зависимость операторов вторичного квантования определяется обычным образом. При этом для операторов контактов

$$c_{k\sigma}(t) = \hat{U}_0^+ c_{k\sigma} \hat{U}_0 = c_{k\sigma} \exp(-it\xi_{Lk\sigma}/\hbar)$$

временная зависимость хорошо известна. Явная зависимость от времени операторов устройства в представлении взаимодействия $a_{1\sigma}(t) = \hat{U}_0^+ a_{1\sigma} \hat{U}_0$ не имеет простого представления. Это усложняет развитие теории на основе использования операторов вторичного квантования для описания взаимодействий в устройстве. Поэтому в дальнейшем для преодоления отмеченной трудности используем атомное представление.

Для применения метода Келдыша введем эволюционный оператор $S(t, -\infty)$, позволяющий установить связь между $\rho_I(t)$ и ρ_0

$$\rho_I(t) = S(t, -\infty) \rho_0 S^+(t, -\infty), \quad \rho_0 = \rho_I(-\infty). \quad (34)$$

Поскольку оператор $S(t, -\infty)$ удовлетворяет уравнению

$$i\hbar\partial S(t, -\infty)/\partial t = \hat{T}_I(t) S(t, -\infty), \quad (35)$$

то его можно представить через T -упорядоченную экспоненту

$$S(t, -\infty) = T_t \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t \hat{T}_I(t) dt\right). \quad (36)$$

Оператор $S(t, -\infty)$ решает поставленную задачу, поскольку

$$\langle c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) \rangle_I = \langle S^+(t, -\infty) c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) S(t, -\infty) \rangle_0. \quad (37)$$

Если в среднее, находящееся в правой части этого уравнения, вставить единичный оператор $S^{-1}(\infty, -\infty) \times S(\infty, -\infty)$, то получим

$$\langle c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) \rangle_I = \langle S^{-1}(\infty, -\infty) S(\infty, t) c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) S(t, -\infty) \rangle_0. \quad (38)$$

Введение контура Келдыша C [13,14,16,17] позволяет записать рассматриваемые средние в удобном для вычисления виде:

$$\langle c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) \rangle_I = \langle T_C c_{k\sigma}^+(t) a_{1\sigma}(t) S_C \rangle_0, \quad (39)$$

где T_C — оператор хронологического упорядочения по времени на контуре Келдыша C , а матрица рассеяния S_C

$$S_C = T_C \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_C \hat{T}_I(\tau) d\tau\right) \quad (40)$$

определяется через оператор тунелирования, в котором область изменения временного аргумента принадлежит тому же контуру.

В представлении операторов Хаббарда для устройства выражение для тока

$$J = -\frac{ie}{\hbar} \sum_{k\sigma, \alpha} \gamma_{1\sigma}(\alpha) \left[t_{Lk}(t) \langle c_{1\sigma}^+(t) X^\alpha(t) \rangle_I - t_{Lk}^*(t) \langle X^{-\alpha}(t) c_{1\sigma}(t) \rangle_I \right] \quad (41)$$

приобретает структуру, позволяющую использовать диаграммную форму теории возмущений, в которой только оператор туннелирования играет роль возмущения. Для формулировки такой теории введем неравновесные функции Грина, построенные на фермиевских операторах, на операторах Хаббарда, а также смешанные функции, содержащие произведение фермиевского оператора и оператора Хаббарда

$$\begin{aligned} G_{Lk\sigma}^{ab}(\tau, \tau') &= -i \langle T_C c_{k\sigma}(\tau_a) c_{k\sigma}^+(\tau'_b) \rangle_0, \\ D_{\alpha,\beta}^{ab}(\tau, \tau') &= -i \langle T_C X^\alpha(\tau_a) X^{-\beta}(\tau'_b) S_C \rangle_0, \\ R_{k\sigma,\alpha}^{ab}(\tau, \tau') &= -i \langle T_C c_{k\sigma}(\tau_a) X^{-\alpha}(\tau'_b) S_C \rangle_0, \\ R_{\alpha,k\sigma}^{ab}(\tau, \tau') &= -i \langle T_C X^\alpha(\tau_a) c_{k\sigma}^+(\tau'_b) S_C \rangle_0, \end{aligned} \quad (42)$$

где индексы $a, b = +, -$ обозначают ветвь контура Келдыша, на которой изменяются времена τ_a и τ'_b соответственно.

В результате формула для тока принимает следующий вид:

$$J = \frac{e}{\hbar} \sum_{k\sigma,\alpha} t_{Lk} \gamma_{1\sigma}(\alpha) \left\{ e^{ieVt/2} R_{Lk\sigma,\alpha}^{++}(t, t+\delta) - e^{-ieVt/2} R_{\alpha,Lk\sigma}^{++}(t, t+\delta) \right\}, \delta \rightarrow +0. \quad (43)$$

Записывая диаграммный ряд для смешанных функций (см. детали в работах [18,19]), можно показать, что электронный ток зависит от фурье-образов неравновесных затравочных функций Грина левого контакта $G_{L(R)k\sigma}^{ab}(\omega \pm eV / (2\hbar))$ и полных функций Грина устройства $D_{\alpha,\beta}^{ab}(\omega)$,

$$J = \frac{e}{h} \sum_{k\sigma} \sum_{\alpha\beta} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega t_{Lk}^2 \gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{1\sigma}(\beta) \left[G_{Lk\sigma}^{+-} \left(\omega + \frac{eV}{2\hbar} \right) D_{\alpha\beta}^{+-}(\omega) - G_{Lk\sigma}^{+-} \left(\omega + \frac{eV}{2\hbar} \right) D_{\alpha\beta}^{-+}(\omega) \right], \quad (44)$$

где

$$G_{Lk\sigma}^{++}(\omega) = \frac{n_{Lk\sigma}}{\omega - \xi_{Lk\sigma} - i\delta} + \frac{1 - n_{Lk\sigma}}{\omega - \xi_{Lk\sigma} + i\delta}, \quad G_{Lk\sigma}^{--}(\omega) = -\frac{n_{Lk\sigma}}{\omega - \xi_{Lk\sigma} + i\delta} - \frac{1 - n_{Lk\sigma}}{\omega - \xi_{Lk\sigma} - i\delta}, \quad (45)$$

$$G_{Lk\sigma}^{+-}(\omega) = 2\pi i n_{Lk\sigma} \delta(\omega - \xi_{Lk\sigma}), \quad G_{Lk\sigma}^{-+}(\omega) = 2\pi i (n_{Lk\sigma} - 1) \delta(\omega - \xi_{Lk\sigma}),$$

$$n_{Lk\sigma} = \left\{ 1 + \exp \left[\frac{\varepsilon_{Lk\sigma} - \mu}{T} \right] \right\}^{-1}.$$

Фурье-образы неравновесных затравочных функций Грина правого контакта $G_{Rp\sigma}^{ab}(\omega)$, а также соответствующая функция Ферми–Дирака определяются аналогично. Неравновесные функции Грина устройства, $D_{\alpha\beta}^{ab}(\tau - \tau') = -i \langle T_C X^\alpha(\tau_a) X^{-\beta}(\tau'_b) \tilde{S}_C \rangle_0$, находятся из решения уравнения Дайсона (см. детали в работах [18,19]), получаемого на основе ренормированной матрицы рассеяния,

$$\tilde{S}_C = T_C \exp \left\{ -i \int_C d\tau_1 \int_C d\tau_2 \sum_{\alpha\beta} \tilde{V}_{\alpha\beta}(\tau_1 - \tau_2) X^{-\alpha}(\tau_1) X^\beta(\tau_2) \right\}, \quad (46)$$

где

$$\tilde{V}_{\alpha\beta}(\tau_1 - \tau_2) = \sum_{k\sigma} \gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{1\sigma}(\beta) t_{Lk}^2 e^{i\frac{eV}{2}(\tau_1 - \tau_2)} G_{Lk\sigma}(\tau_1 - \tau_2) + \sum_{p\sigma} \gamma_{2\sigma}(\alpha) \gamma_{2\sigma}(\beta) t_{Rp}^2 e^{-i\frac{eV}{2}(\tau_1 - \tau_2)} G_{Rp\sigma}(\tau_1 - \tau_2). \quad (47)$$

Таким образом, после проведения ряда математических преобразований получаем окончательное общее выражение, описывающее электронный ток через устройство атомного масштаба,

$$J = 4 \frac{e}{h} \sum_{\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{\left[L_{12}^{\sigma}(\omega - eV/2) \right]^2}{\Delta_{\sigma}(\omega - eV/2)} \Gamma_1(\omega) \Gamma_2(\omega) [n_2(\omega - eV) - n_1(\omega)], \quad (48)$$

где

$$\begin{aligned} L_{12(11)}^{\sigma}(\omega) &= \sum_{\alpha} b_{\alpha} \gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{2(1)\sigma}(\alpha) / \omega_{\alpha}, \quad b_{\alpha} = N_n + N_m, \omega_{\alpha} = \omega + E_{\alpha}, \\ \Gamma_1(\omega) &= \pi \sum_k t_{Lk}^2 \delta(\omega - \xi_{Lk\sigma}), \quad \Gamma_2(\omega) = \pi \sum_p t_{Rp}^2 \delta(\omega - eV - \xi_{Rp\sigma}). \end{aligned} \quad (49)$$

В дальнейшем воспользуемся приближенным описанием контактов как широкозонных металлов. Тогда $\Gamma_{1,2} = \text{const}$, а знаменатель в выражении (48) может быть представлен в виде

$$\Delta_{\sigma}(\omega) = \left[1 - \Gamma_1 \Gamma_2 \left(\left[L_{11}^{\sigma}(\omega) \right]^2 - \left[L_{12}^{\sigma}(\omega) \right]^2 \right) \right]^2 + \Gamma^2 \left[L_{11}^{\sigma}(\omega) \right]^2, \quad (50)$$

где $\Gamma = \Gamma_1 + \Gamma_2$.

Из выражений (48)–(50) следует, что ток зависит от чисел заполнения состояний устройства, N_m ($m = 1, 2, \dots, N_D$), которые могут быть найдены из решения системы кинетических уравнений следующего общего вида:

$$N_m \equiv \langle X^{mm} \rangle = \int \frac{d\omega}{2\pi i} D_{\alpha\alpha}^{+-}(\omega) = \sum_{\sigma} \int d\omega \frac{b_{\alpha}^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\pi} \frac{K_{\alpha}(\omega)}{\omega_{\alpha}^2 \Delta_{\sigma}(\omega)}, \quad (51)$$

где

$$K_{\alpha} = \Gamma_1 n_1 + \Gamma_2 n_2 + \Gamma_1 \Gamma_2 (\Gamma_1 n_2 + \Gamma_2 n_1) \left[L_{11}^{\sigma} - \Theta_{12}^{\sigma}(\alpha) L_{12}^{\sigma} \right]^2, \quad \Theta_{12}^{\sigma}(\alpha) = \text{sign}[\gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{2\sigma}(\alpha)]. \quad (52)$$

5. Транспортные свойства устройства с димерной молекулой

В предыдущем параграфе было приведено кинетическое уравнение (51), которое в общем виде выражает зависимость чисел заполнения состояний системы спиновый димер + электрон от интенсивностей переходов между этими состояниями, температуры, характеристик контактов и напряжения смещения.

Для упрощения процедуры вычисления интеграла, стоящего в правой части уравнения (51), сделаем ряд замечаний. Из вида параметров представления (23) следует, что $\gamma_{1\sigma}(\alpha)$ и $\gamma_{2\sigma}(\alpha)$ могут отличаться только знаком. Следовательно, функция $K_{\alpha}(\omega)$ не зависит от корневого вектора α . Далее, пусть имеется p переходов из N , для которых $\Theta_{12}^{\sigma}(\alpha) = +1$. Тогда, избавляясь от затравочных полюсов в исходном кинетическом уравнении (51), получим два варианта записи последнего в зависимости от типа перехода α :

$$1) \gamma_{1\sigma}(\alpha) = \gamma_{2\sigma}(\alpha), \quad N_m = \sum_{\sigma} \int d\omega \frac{b_{\alpha}^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\pi} \frac{\Pi_{\alpha 1}^2(\omega) K_2(\omega)}{\Delta_{\sigma 0}(\omega)}, \quad (53)$$

$$2) \gamma_{1\sigma}(\alpha) = -\gamma_{2\sigma}(\alpha), \quad N_m = \sum_{\sigma} \int d\omega \frac{b_{\alpha}^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\pi} \frac{\Pi_{\alpha 2}^2(\omega) K_1(\omega)}{\Delta_{\sigma 0}(\omega)},$$

где

$$\Delta_{\sigma 0} = \left[\Pi - 4\Gamma_1 \Gamma_2 \sum_{\alpha=1}^{N-p} b_{\alpha} \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \Pi_{\alpha 1} \sum_{\beta=N-p+1}^N b_{\beta} \gamma_{1\sigma}^2(\beta) \Pi_{\beta 2} \right]^2 + \Gamma^2 \left[\sum_{\alpha=1}^N b_{\alpha} \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \Pi_{\alpha} \right]^2, \quad (54)$$

$$\Pi = \prod_{v=1}^{N-p} \omega_v \prod_{v=N-p+1}^N \omega_v \equiv \Pi_1 \Pi_2, \quad \Pi_{\alpha} = \Pi / \omega_{\alpha}, \quad \Pi_{\alpha 1(2)} = \Pi_{1(2)} / \omega_{\alpha},$$

$$K_{1(2)} = (\Gamma_1 n_1 + \Gamma_2 n_2) \Pi_{1(2)}^2 + 2\Gamma_1 \Gamma_2 (\Gamma_1 n_2 + \Gamma_2 n_1) \left[\sum_{\alpha=1}^{N-p} b_{\alpha} \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \Pi_{\alpha 1(2)} \right]^2.$$

Из вида уравнений (53) и определений (54) следует, что в случае туннельной связи молекулы с контактами и низких температур, $\Gamma_{1,2}, T \ll E_{\alpha}$, основной вклад в интегралы в правых частях уравнений находится в окрестности энергии перехода α , $\omega = -E_{\alpha}$. Принимая во

внимание этот факт, перепишем линейные пропагаторы $L_{11,12}^{\sigma}$ в следующем виде:

$$L_{11(12)}^{\sigma} \approx B_{\alpha 11(12)}^{\sigma} / \omega_{\alpha} + \sum_{v: E_v \neq E_{\alpha}} \frac{b_v \gamma_{1\sigma}(v) \gamma_{1(2)\sigma}(v)}{E_v - E_{\alpha}}, \quad (55)$$

где $B_{\alpha 11(12)}^\sigma = b_\alpha \gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{1(2)\sigma}(\alpha) + \sum_\beta b_\beta \gamma_{1\sigma}(\beta) \gamma_{1(2)\sigma}(\beta)$.

Заметим, что при выводе (55) было учтено наличие в системе переходов с одинаковой энергией. В результате во множителях $B_{\alpha 11(12)}^\sigma$ суммирование идет по корневым векторам β , отвечающим условию $E_\beta = E_\alpha$. Подставляя выражения (55) в кинетическое уравнение, получим

$$N_m \approx \sum_\sigma \int d\omega \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\pi} \frac{\Gamma_1 n_1 + \Gamma_2 n_2}{\omega_\alpha^2 + (\kappa_\alpha^\sigma)^2}, \quad (56)$$

где $\kappa_\alpha^\sigma = \sqrt{(\Gamma_1^2 + \Gamma_2^2)(B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + 2\Gamma_1 \Gamma_2 (B_{\alpha 12}^\sigma)^2}$.

Решение уравнения (56) имеет вид

$$N_m \approx \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\kappa_\alpha^\sigma} \left\{ \frac{\Gamma}{2} + \frac{\Gamma_1}{\pi} \arctg\left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) + \frac{\Gamma_2}{\pi} \arctg\left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) \right\}. \quad (57)$$

Действуя аналогичным образом, находим уравнение для N_n ,

$$N_n \approx \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)}{\kappa_\alpha^\sigma} \left\{ \frac{\Gamma}{2} - \frac{\Gamma_1}{\pi} \arctg\left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) - \frac{\Gamma_2}{\pi} \arctg\left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) \right\}. \quad (58)$$

При этом решения системы кинетических уравнений должны удовлетворять условию полноты, т.е. $\sum_{i=1}^{20} N_i = 1$.

Как видно из формул (48) и (49), суммарный электронный ток формируется вкладами от различных переходов, $J = \sum_{\alpha,\beta} J_{\alpha\beta}$. В режиме туннельной связи и низ-

ких температур диагональные компоненты $J_{\alpha\alpha}$, а также недиагональные $J_{\alpha\beta}$, для которых $E_\alpha = E_\beta$, являются определяющими:

$$J_{\alpha\alpha} \approx 4e\Gamma_1\Gamma_2 \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^4(\alpha)}{h\kappa_\alpha^\sigma} \left\{ \arctg\left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) - \arctg\left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) \right\}, \quad (59)$$

$$J_{\alpha\beta} \approx 4e\Gamma_1\Gamma_2 \Theta_{12}^\sigma(\alpha) \Theta_{12}^\sigma(\beta) \frac{b_\alpha b_\beta \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \gamma_{1\sigma}^2(\beta)}{h\kappa_\alpha^\sigma} \left\{ \arctg\left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) - \arctg\left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\kappa_\alpha^\sigma}\right) \right\}.$$

Соответствующие вклады в дифференциальную проводимость, $\partial J / \partial V$, имеют вид

$$G_{\alpha\alpha} \approx 2G_0\Gamma_1\Gamma_2 \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^4(\alpha)}{h} \left\{ \frac{1}{(E_\alpha + eV/2)^2 + (\kappa_\alpha^\sigma)^2} + \frac{1}{(E_\alpha - eV/2)^2 + (\kappa_\alpha^\sigma)^2} \right\}, \quad (60)$$

$$G_{\alpha\beta} \approx 2G_0\Gamma_1\Gamma_2 \Theta_{12}^\sigma(\alpha) \Theta_{12}^\sigma(\beta) \frac{b_\alpha b_\beta \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \gamma_{1\sigma}^2(\beta)}{h} \left\{ \frac{1}{(E_\alpha + eV/2)^2 + (\kappa_\alpha^\sigma)^2} + \frac{1}{(E_\alpha - eV/2)^2 + (\kappa_\alpha^\sigma)^2} \right\},$$

где $G_0 = e^2/h$ — квант проводимости. Из формулы (60) видно, что максимальные значения этих вкладов реализуются при $eV = \pm 2E_\alpha$. В случае симметричного транспортного режима ($\Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma/2$) они равны

$$G_{\alpha\alpha}^{\max} \approx G_0 \frac{b_\alpha^2 \gamma_{1\sigma}^4(\alpha)}{(B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + (B_{\alpha 12}^\sigma)^2} \left[1 + \frac{\Gamma^2 \left((B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + (B_{\alpha 12}^\sigma)^2 \right)}{4E_\alpha^2} \right], \quad (61)$$

$$G_{\alpha\beta}^{\max} \approx G_0 \frac{\Theta_{12}^\sigma(\alpha) \Theta_{12}^\sigma(\beta) b_\alpha b_\beta \gamma_{1\sigma}^2(\alpha) \gamma_{1\sigma}^2(\beta)}{(B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + (B_{\alpha 12}^\sigma)^2} \left[1 + \frac{\Gamma^2 \left((B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + (B_{\alpha 12}^\sigma)^2 \right)}{4E_\alpha^2} \right].$$

Остановимся на примере, когда в системе реализуется лишь небольшое число переходов. При этом будем придерживаться следующего соотношения между энергетическими параметрами: $t, t_d \gg A \gg I$. Таким образом, меняя поле на затворе, можно контролировать вид основного состояния устройства — с электроном или без электрона. При расчетах все энергетические величины измеряются в единицах t . В частности, $\mu = 0$. Дополнительно будем рассматривать симметричное соединение устройства с контактами. Следовательно, имеет место равенство

$$\kappa_\alpha^\sigma = \Gamma \sqrt{(B_{\alpha 11}^\sigma)^2 + (B_{\alpha 12}^\sigma)^2} / \sqrt{2}.$$

Предположим, что к устройству приложено такое поле затвора, что в нем отсутствует электрон при $V = 0$. Тогда синглетное состояние $|1\rangle$ является основным. Выше по энергии располагаются вырожденные одноэлектронные уровни, которым отвечают волновые функции $|19, 20\rangle$. Далее следуют триплетные состояния димера $|2\rangle, |3\rangle, |4\rangle$, когда электрон в устройстве снова отсутствует. В результате возможны по три перехода для $\sigma = \uparrow$ и $\sigma = \downarrow$ между следующими парами состояний устройства: $(1, 19), (2, 19), (4, 20)$ и $(1, 20), (2, 20), (3, 19)$ соответственно. Поскольку в отсутствие магнитного поля переходы для электронов с противоположной проекцией спина эквивалентны, то в дальнейшем будем анализировать кинетические уравнения для переходов с $\sigma = \uparrow$. Кроме того, поскольку интенсивности переходов пропорциональны $\gamma_{i\sigma}^2(\alpha)$ ($i = 1, 2$) и исходя из (23), $\gamma_{i\uparrow}^2(1, 19) = \gamma_{i\uparrow}^2(1, 20)$, $\gamma_{i\uparrow}^2(4, 20) = \gamma_{i\uparrow}^2(3, 19)$, то предположим, что $N_3 = N_4$ и $N_{19} = N_{20}$. Для последующего обсуждения важно, что энергии переходов в триплетные состояния димера одинаковы, $E_{2,19} = E_{4,20}$. Одновременно с этим $\gamma_{i\uparrow}^2(4, 20) = 2\gamma_{i\uparrow}^2(2, 19)$. Тогда получаем $B_{(1,19)11}^\uparrow = B_{(1,19)12}^\uparrow = b_{(1,19)}\gamma_{i\uparrow}^2(1, 19)$, а также $B_{(2,19)11}^\uparrow = B_{(4,20)11}^\uparrow = -B_{(2,19)12}^\uparrow = -B_{(4,20)12}^\uparrow = (b_{(2,19)} + 2b_{(4,20)})\gamma_{i\uparrow}^2(2, 19)$. В результате кинетические уравнения (57) и (58) приобретают следующий вид:

$$N_m \approx \frac{b_\alpha^2 \gamma_{i\uparrow}^2(\alpha)}{2B_{\alpha 11}^\uparrow} \left\{ 1 + \frac{1}{\pi} \arctg \left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow} \right) + \frac{1}{\pi} \arctg \left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow} \right) \right\}, \quad (62)$$

$$N_n \approx \frac{b_\alpha^2 \gamma_{i\uparrow}^2(\alpha)}{2B_{\alpha 11}^\uparrow} \left\{ 1 - \frac{1}{\pi} \arctg \left(\frac{E_\alpha - eV/2}{\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow} \right) - \frac{1}{\pi} \arctg \left(\frac{E_\alpha + eV/2}{\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow} \right) \right\}. \quad (63)$$

Поскольку $\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow \ll 1$, то из уравнений (62) и (63) следует, что $\frac{1}{\pi} \arctg \left(\frac{E_\alpha \pm eV/2}{\Gamma B_{\alpha 11}^\uparrow} \right) \rightarrow \frac{1}{2} \text{sign}(E_\alpha \pm eV/2)$.

Кроме того, условие полноты приводит к дополнительной связи $N_1 + N_2 + 2N_4 + 2N_{19} = 1$.

Рассмотрим решение системы кинетических уравнений для трех случаев: I — $eV/2 < |E_{1,19}|, E_{2,19}$ (слабое напряжение); II — $|E_{1,19}| < eV/2 < E_{2,19}$ (промежуточное напряжение); III — $eV/2 > |E_{1,19}|, E_{2,19}$ (сильное напряжение). При слабом напряжении решение уравнений (62) и (63) дает $N_2 = N_4 = N_{19} = 0$, т.е. из условия полноты следует, что заселено только синглетное состояние димера, $N_1 = 1$. В режиме промежуточного напряжения уравнение (62), записанное для $\alpha = (1, 19)$, приводит к соотношению $N_1 = N_{19}$. В свою очередь, уравнение (63) в случаях $\alpha = (2, 19)$ и $\alpha = (4, 20)$ имеет следствием $N_2 = 0$ и $N_4 = 0$ соответственно. В результате получаем $N_1 = N_{19} = N_{20} = 1/3$. В режиме сильных напряжений также получаем равенство $N_1 = N_{19}$. Следовательно, $b_{(2,19)} + 2b_{(4,20)} = 1$. Это позволяет записать два уравнения $(N_2 + N_{19})^2 - 2N_2 = 0$ и $(N_4 + N_{19})^2 - N_4 = 0$. Решение этих уравнений с учетом условия полноты дает

$$N_2 = \frac{7}{2} - 2\sqrt{3}, N_1 = N_{19} = \sqrt{2N_2} - N_2, \quad (64)$$

$$N_3 = N_4 = \frac{1}{2} - N_{19} - \frac{1}{2} \sqrt{1 - 4N_{19}}.$$

На рис. 2(а) приведена зависимость чисел заполнения состояний системы от энергии электрического поля исток–сток. Величины N_i существенно отличаются в трех различных областях eV : I, II и III. В частности, в области III, согласно (64), наблюдается неодинаковая заселенность триплетных уровней димера (сравните пунктирную и штрихпунктирную кривые). На рис. 2(б) представлена ВАХ для того же набора параметров. Кривая тока имеет два скачка между областями I, II и III соответственно. Каждая из этих ступенек сигнализирует о включении в транспорт новых, ранее не заселенных состояний. Это видно из сопоставления рис. 2(а) и 2(б). Из формул (59) следует, что высота ступенек существенно зависит от $\gamma_{i\sigma}^2(\alpha)$. В частности, значительная разница высот скачков на рис. 2(б) объясняется тем, что $\gamma_{i\uparrow}^2(2, 19), \gamma_{i\uparrow}^2(4, 20) \gg \gamma_{i\uparrow}^2(1, 19)$. Подчеркнем, что переходы между различными возбужденными состояниями системы проявляются в транспортных характеристиках лишь в том случае, если при самосогласованном решении системы кинетических уравнений учитывается неравновесная заселенность уровней. В противоположной ситуации в ВАХ наблюдаются только ступеньки, соответствующие переходам из основного состояния (см. пунктирную кривую на рис. 2(б)).

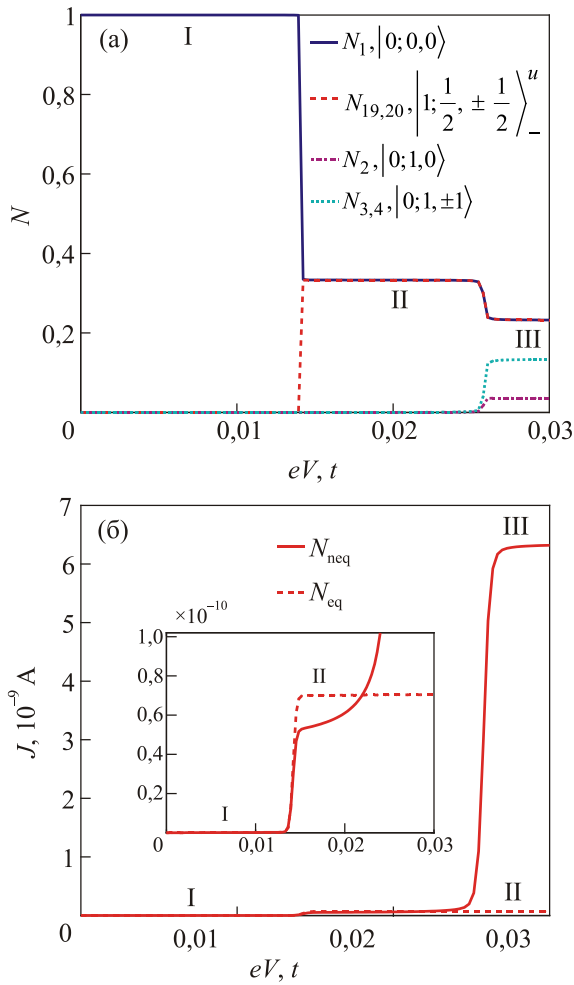


Рис. 2. Зависимость чисел заполнения состояний системы димер + электрон (а) и тока (б) от энергии электрического поля смещения. Вставка: скачок тока, вызванный активацией переходов в одноэлектронные состояния системы. Параметры: $t_d = 1$, $\xi_d = 1,145$, $A = 0,3$, $I = 0,02$.

Если условно предположить, что $\gamma_{i\uparrow}^2(4, 20) = \gamma_{i\uparrow}^2(2, 19)$, тогда из (63) вытекает равенство $\sqrt{2N_2} - N_2 = \sqrt{2N_4} - N_4$. Пользуясь условием полноты, можно показать, что единственно возможным решением системы кинетических уравнений в таком случае является $N_2 = N_3 = N_4 = 1/18$ и $N_1 = N_{19} = N_{20} = 5/18$. Таким образом, если напряжение исток–сток достаточно сильное для активации переходов в триплетные состояния димера, то заселенность состояний с проекцией спина $S^z = 0$ и $S^z = \pm 1$ неодинакова вследствие отличия интенсивностей переходов.

Следует заметить, что в случае, если переход α невырожден по энергии, то при $eV > 2|E_\alpha|$ уравнения (62) и (63) приводят к равенству $N_n = N_m$, поскольку $B_{\alpha 11}^\sigma = b_\alpha \gamma_{1\sigma}^2(\alpha)$. Следовательно, при включении магнитного поля и высоких напряжениях, когда все возможные переходы будут активированы, расщепление заселенностей триплетных состояний димера, подобное

эффекту от создания легкоосной магнитной анизотропии, должно исчезнуть [18]. При этом величина магнитного поля не может быть сколь угодно малой, так как приближенная запись линейных пропагаторов в виде

$$L_{11(12)}^\sigma \approx b_\alpha \gamma_{1\sigma}(\alpha) \gamma_{1(2)\sigma}(\alpha) / \omega_\alpha + \sum_{\nu: E_\nu \neq E_\alpha} \frac{b_\nu \gamma_{1\sigma}(\nu) \gamma_{1(2)\sigma}(\nu)}{E_\nu - E_\alpha}$$

возможна, только если $|E_\nu - E_\alpha| \gg \Gamma, T$.

Таким образом, из представленных результатов следует, что в неравновесном режиме имеется возможность управлять спиновыми состояниями димерной молекулы без приложения внешнего магнитного поля.

6. Заключение

Представлены результаты решения задачи о влиянии протекающего через устройство тока на состояние примесной подсистемы. В качестве такой подсистемы выступают два примесных магнитных иона. Между спиновыми моментами этих ионов действует обменное взаимодействие антиферромагнитной природы.

При протекании в системе тока электроны, взаимодействуя с магнитными примесными ионами, индуцируют переходы в возбужденные состояния спинового димера. Наличие таких процессов приводит к значительному усложнению описания электронного транспорта через рассмотренную систему. С другой стороны, наличие внутренних степеней свободы позволяет управлять электронным транспортом посредством воздействия на примесную подсистему. Последний аспект имеет важное практическое значение.

Существенным является и обратный эффект, когда протекающий ток способен изменять магнитные характеристики примесной подсистемы. В работе на конкретном примере проанализировано изменение заселенности состояний спинового димера за счет транспортируемых электронов. Особенность эффекта связана с тем, что такое изменение происходит в нулевом магнитном поле.

Для описания отмеченного явления в работе на основе современных методов исследования неравновесных процессов развита теория электронного транспорта через систему с произвольной неэквидистантностью уровней энергии устройства, обусловленной присутствием нескольких взаимодействий между его внутренними степенями свободы.

Активную роль в решении отмеченной задачи сыграло введение атомного представления для гамильтониана устройства на основе операторов Хаббарда. Такой подход обеспечил возможность точного учета всех взаимодействий в устройстве и записи соответствующего гамильтониана в диагональном виде. При этом в качестве возмущения выступает только оператор тунелирования.

Применение неравновесной диаграммной техники для операторов Хаббарда в сочетании с методом Келдыша позволило получить общее выражение для тока, а также кинетические уравнения в случае, когда левый и правый контакты туннельно связаны с разными узлами устройства. Поскольку при этом использовались функции Грина, найденные с учетом процессов многократного рассеяния электронов, то полученная система кинетических уравнений пригодна для описания случая сильной ренормировки чисел заполнения вследствие взаимодействия транспортируемых частиц с внутренними спиновыми степенями свободы устройства. Это позволило описать эффект расщепления триплетных состояний спинового димера в нулевом магнитном поле.

Работа выполнена при поддержке Программы фундаментальных исследований Президиума РАН №32 «Наноструктуры: физика, химия, биология, основы технологий», Российского фонда фундаментальных исследований (гранты #16-02-00073, #18-32-00443), Правительства Красноярского края, Красноярского краевого фонда науки в рамках научных проектов: «Связанные майорановские фермионы в наноматериалах с сильными электронными корреляциями и квантовый транспорт электронов в устройствах на их основе» (№ 17-42-240441), «Проявление кулоновских взаимодействий и эффектов ограниченной геометрии в свойствах топологических краевых состояний наноструктур со спин-орбитальным взаимодействием» (№ 18-42-243017). С.А. выражает благодарность гранту Президента РФ МК-3722.2018.2.

1. H. Ueba, T. Mii, and S.G. Tikhodeev, *Surf. Science* **601**, 5220 (2007).
2. П.И. Арсеев, Н.С. Маслова, *УФН* **180**, 1197 (2010).
3. S. Loth, K. von Bergmann, M. Ternes, A.F. Otte, C.P. Lutz, and A.J. Heinrich, *Nature Phys.* **6**, 340 (2010).
4. L. Bogani and W. Wernsdorfer, *Nat. Mater.* **7**, 179 (2008).
5. O. Ujsaghy and A. Zawadowski, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 80 (2005).
6. A. Kogan, G. Granger, M.A. Kastner, D. Goldhaber-Gordon, and H. Shtrikman, *Phys. Rev. B* **67**, 113309 (2003).
7. J.J. Parks, A.R. Champagne, T.A. Costi, W.W. Shum, A.N. Pasupathy, E. Neuscamman, S. Flores-Torres, P.S. Cornaglia, A.A. Aligia, C.A. Balseiro, G.K.-L. Chan, H.D. Abruña, and D.C. Ralph, *Science* **328**, 1370 (2010).
8. D. Ganyushin and F. Neese, *J. Chem. Phys.* **125**, 024103 (2006).
9. N. Tsukahara, K. Noto, M. Ohara, S. Shiraki, N. Takagi, Ya. Takata, J. Miyawaki, M. Taguchi, A. Chainani, S. Shin, and M. Kawai, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 167203 (2009).
10. Р.О. Зайцев, *ЖЭТФ* **68**, 207 (1975); там же **70**, 1100 (1976).
11. Н.М. Плакида, Л. Антон, С. Адам, Г. Адам, *ЖЭТФ* **124**, 367 (2003).

12. Д.Н. Зубарев, *Неравновесная статистическая термодинамика*, Наука, Москва (1971).
13. Д.Н. Зубарев, В.Г. Морозов, Г. Репке, *Статистическая механика неравновесных процессов*, Физматлит, Москва (2002).
14. Л.В. Келдыш, *ЖЭТФ* **47**, 1515 (1964).
15. D. Rogovin and D.J. Scalapino, *Ann. Phys. (N.Y.)* **86**, 1 (1974).
16. Р.О. Зайцев, *Введение в современную кинетическую теорию: Курс лекций*, КомКнига, Москва (2006).
17. П.И. Арсеев, *УФН* **185**, 1271 (2015).
18. В.В. Вальков, С.В. Аксенов, Е.А. Уланов, *ЖЭТФ* **146**, 144 (2014).
19. В.В. Вальков, С.В. Аксенов, *ТМФ* **194**, 277 (2018).

Ренорміровки заселеності триплетних станів спінового димера в нульовому магнітному полі при квантовому транспорті

В.В. Вальков, С.В. Аксенов

На підставі нерівноважної техніки Келдыша в атомному підході вивчено ефект індукування різної заселеності магнітних станів спиного димера, який взаємодіє з електронами, що транспортуються через пристрій, у нульовому магнітному полі. Для знаходження чисел заповнення квантових станів пристрою в умовах сильної нерівноважності методом нерівноважної діаграмної техніки для операторів Хаббарда отримано та вирішено систему кінетичних рівнянь. Чисельний аналіз цих рівнянь дозволив виявити нерівноважні ренормування з урахуванням сильних спин-ферміонних кореляцій.

Ключові слова: нерівноважний квантовий транспорт, спіновий димер, кінетичне рівняння, атомне уявлення, непружне розсіяння.

Renormalization of triplet populations of spin dimer in zero magnetic field with quantum transport

V.V. Val'kov and S.V. Aksenov

Based on the non-equilibrium Keldysh technique in the atomic representation, the effect of different population of magnetic states of a spin dimer interacting with electrons transported through such a device in zero magnetic field has been studied. To find the filling numbers of the quantum states of the device under strong non-equilibrium conditions, a system of kinetic equations has been obtained and solved using the nonequilibrium diagram technique for the Hubbard operators. Numerical analysis of these equations revealed non-equilibrium renormalizations due to strong spin-fermion correlations.

Keywords: nonequilibrium quantum transport, spin dimer, kinetic equation, atomic representation, inelastic scattering.