

КОРРЕЛЯЦИОННЫЙ МЕХАНИЗМ ОТРИЦАТЕЛЬНОГО ДИФФЕРЕНЦИАЛЬНОГО СОПРОТИВЛЕНИЯ В МОЛЕКУЛЯРНОЙ ПРОВОЛОКЕ

Д. А. Маслов, Ю. Б. Кудасов

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

В результате достаточно быстрого развития молекулярной наноэлектроники в последние годы в руках исследователей оказались инструменты для изучения электронного транспорта через одиночные молекулы и кластеры. Заметную роль при исследовании этих процессов играет сканирующая туннельная микроскопия и развитие устройств с наноконтактами.

При протекании электрического тока через молекулу возникает ряд новых явлений, и, в частности, отрицательное дифференциальное сопротивление (ОДС) [1]. На основе этого эффекта могут быть построены различные устройства молекулярной электроники, такие как транзисторы, коммутаторы, элементы памяти и логические элементы. Очень важным обстоятельством является то, что этот эффект наблюдается при комнатных температурах, а характерная величина напряжения может составлять 1 В [1].

В настоящее время последовательное объяснение эффекта ОДС отсутствует. Рассматриваются различные механизмы его возникновения: деформация молекулы, изменение электронного спектра молекулы под действием сильного внешнего электрического поля и т. д. [2].

Электронные состояния молекулы, присоединенной к наноконтактам, сравнительно слабо связаны с электронами проводимости наноконтактов. В этих условиях, сила кулоновских корреляций при транспорте заряда через молекулу оказывается значительно выше, чем в металле, поэтому существование участков вольт-амперной характеристики с ОДС может быть объяснено наличием сильных электронных корреляций.

В предыдущей работе [3] для анализа протекания тока в режиме сильных корреляций была предложена модель молекулы, состоящая из двух уровней, вырожденных по спину. Гамильтониан изолированной молекулы имел вид

$$H_M = \sum_{\substack{i=1,2 \\ \sigma=\uparrow,\downarrow}} \varepsilon_i n_{i\sigma} + U \sum_{i=1,2} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + V \sum_{\sigma,\sigma'=\uparrow,\downarrow} n_{1\sigma} n_{2\sigma'}, \quad (1)$$

где ε_i – энергия i -ого уровня, $n_{i\sigma}$ – оператор числа частиц на i -ом уровне со спином σ , U и V – параметры кулоновского взаимодействия. Функцию Грина (ФГ), соответствующую данному молекулярному гамильтониану (1), можно вычислить точно посредством метода уравнений движения [4, 5].

Затем, в статье [3] был применен феноменологический прием, заключающийся в том, что функция Грина системы «молекула + контакты» была опреде-

лена при помощи стандартной теории возмущений, где оператор взаимодействия молекулы с контактами рассматривался как возмущение к невозмущенному состоянию молекулы, определяемому выражением (1). Однако, одним из условий применимости стандартной теории возмущений для функций Грина является требование квадратичности гамильтониана по операторам рождения и уничтожения, которое здесь явно не выполняется.

В настоящей работе для описания эффекта ОДС используется модель магнитной молекулы, предложенная в статье [6]. Здесь гамильтониан системы имеет вид

$$H = \sum_{\sigma} \varepsilon_{\sigma} n_{\sigma} + U n_{\uparrow} n_{\downarrow} + \sum_{\sigma, \mathbf{k} \in L, R} \varepsilon_{\mathbf{k}\sigma} c_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} c_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\sigma, \mathbf{k} \in L, R} \left(t_{\mathbf{k}\sigma} c_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} d_{\sigma} + \text{H.c.} \right), \quad (2)$$

где две последние суммы – гамильтониан контактов и оператор взаимодействия молекулы с контактами, соответственно: волновые вектора электронов проводимости \mathbf{k} относятся к левому или правому контакту (индексы L и R).

Модель (2) представляет собой простейшую двухуровневую систему: оба уровня невырождены. Ее можно рассматривать как модель магнитной одноуровневой молекулы (состояния с разными спинами имеют разные значения энергии и разные интегралы переноса заряда из молекулы в контакт). При этом число возможных состояний оказывается в 4 раза меньше, чем в [3], что существенно упрощает решение.

Для системы с гамильтонианом (2) имеется приближенное решение [6] для ФГ системы, полученное путем пренебрежения функциями Грина более высокого порядка. Важным аспектом задачи является то, что ФГ явно зависит от чисел заполнения молекулярных уровней. Однако, для их нахождения равновесная функция распределения неприменима ввиду неравновесности самой ситуации пропускания тока через систему. Методом последовательного дифференцирования ФГ молекулы по первому и второму аргументам были получены тождества, связывающие ее с ФГ контактов, считающихся равновесными. На основе полученных тождеств записана квазиравновесная функция распределения электронов в молекуле.

Построение вольт-амперной характеристики было выполнено в рамках формулы Ландауэра [6, 7, 8].

Таким образом, в рамках простой двухуровневой модели [6], с различной связью уровней с контактами, можно исследовать корреляционный механизм ОДС. Следует отметить, что здесь, также как и в работе [3], необходимым условием возникновения ОДС является различие в интегралах переноса заряда для различных спинов ($t_{k\uparrow} \neq t_{k\downarrow}$), т. е. один из уровней является почти локализованным, а другой сильно связан с контактами. Локализованный уровень должен находиться по энергии дальше от невозмущенного уровня Ферми контактов, чем делокализованный.

Работа поддержана РФФИ (проекты 08-02-97018-р-поволжье-а и 08-02-00508-а), МНТЦ (проект 3501) и ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России». Один из авторов (Д. А. М.) выражает признательность фонду «Династия».

Литература

1. Cheng J., Wang W., Reed M. A. et al. Room-temperature negative differential resistance in nanoscale molecular junctions // *Applied Physics Letters*. 2000. Vol. 77. P. 1224.

2. Datta S. Electrical resistance: an atomistic view // *Nanotechnology*. 2004. Vol. 15. P. S433.

3. Кудасов Ю. Б. Корреляционный механизм отрицательного дифференциального сопротивления при протекании туннельного тока через проволоку // *Известия РАН. Серия физическая*. 2008. Т. 72. С. 189.

4. Зубарев Д. Н. Двухвременные функции Грина в статистической физике // *УФН*. 1960. Т. LXXI. С. 71.

5. Hubbard J. Electron correlations in narrow energy bands // *Proceedings of the Royal Society of London*. 1963. Vol. 276. P. 238.

6. Meir Y., Wingreen N. S., Lee P. A. Transport through a strongly interacting electron system: theory of periodic conductance oscillations // *Physical Review Letters*. 1991. Vol. 66. P. 3048.

7. Meir Y., Wingreen N. S. Landauer formula for the current through an interacting electron region // *Physical Review Letters*. 1992. Vol. 68. P. 2512.

8. Jauho A. P., Wingreen N. S., Meir Y. Time-dependent transport in interacting and noninteracting resonant-tunneling system // *Physical Review B*. 1994. Vol. 50. P. 5528.