

## Теорија микроскопског неравнотежног временски нехомогеног транспорта кроз молекул у линеарном одзиву у Хартри-Фоковој апроксимацији

М. Дражић, В. З. Церовски и Р. Жикић

*Институт за физику, Прегревица 118, 11080 Београд*

*e-mail: viktor.cerovski@gmail.com*

**Апстракт.** Добијен је израз за временски променљиву струју која протиче кроз молекул/квантну тачку постављену између две електроде на коначном напону. Електроде су додатно изложене утицају временски променљивих поља. Техником неравнотежних Гринових функција добијен је самоусаглашени систем једначина којим се одређује временски зависан потенцијал у молекулу, у Хартри-Фоковој апроксимацији, где је временски-хомогена компонента Кулонове интеракције одређена Теоријом Функционала Густине (ТФГ), а затим изведен израз за наизменичну струју кроз молекул/квантну тачку.

### 1. УВОД

Један од главних изазова у опису електронског транспорта кроз квантни систем јесте третман Кулонове интеракције. Теорија функционала густине (ТФГ), проблем решава тако што интерагујући систем електрона мапира на систем Кон-Шамових квазиелектрона, где је интеракција изражена кроз утицај средњег поља просторно-временски локалног ефективног потенцијала које садржи Хартријев и изменско-корелациони допринос [1]. Електронска густина одређена Кон-Шамовим орбиталама једнака је густини реалног интерагујућег система. Електронска густина се може добити и из НГФ-ија, где се електронски транспорт описује  $j$ -ном кретања лесер НГФ [2]. Израз за електронску струју садржи НГФ-ије као и доприносе који долазе од контаката између молекула и електрода [3]. Лесер НГФ  $G^<$  је функција времена у две тачке, чија експанзија на временски хомогене и временски нехомогене делове омогућава употребу ТФГ за одређивање хомогеног доприноса, док се нехомогене величине линеаризацијом  $j$ -на кретања НГФ изражавају преко хомогених [4]. Задржавањем хомогених величина у изразу за укупну струју добија се једносмерна, док укључивање нехомогених даје временски променљиву струју.

## 2. ТЕОРИЈСКА ПОСТАВКА

Хамилтонијан система електрода-молекул-електрода је дат стандардним обликом  $H=H_L+H_R+H_D+H_{LD}+H_{RD}$ , где су Хамилтонијани леве и десне електроде, молекула и контактних области молекула и електрода:  $H_{L/R} = \sum_{k\alpha} \epsilon_{k\alpha}(t) c_{k\alpha}^\dagger c_{k\alpha}$ ,  $H_D = \sum_{nm} \epsilon_{nm} d_n^\dagger d_m + \frac{1}{2} \sum_{nmik} W_{nmik} d_n^\dagger d_m^\dagger d_k d_i$ ,  $H_{L/R,D} = \sum_{k\alpha,n} (V_{k\alpha,n} c_{k\alpha}^\dagger d_n + h.c.)$ , респективно. Временски-зависни потенцијали електрода у свакој тачки простора имају исту вредност. Хамилтонијани су добијени у базису Блохових стања електрода и ортогоналном базису молекула. Кулонова интеракција у молекулу је репрезентована матричним елементима  $W$ , а интеракција између молекула и електрода са  $V$ , док је временско уређење НГФ на Келдишевој контури [2]. Ј-на кретања НГФ молекула, поред кинетичког даје два интеракциона доприноса. Један долази од развоја двочестичне НГФ, дајући интеракциону само-енергију (енг. self-energy) услед Кулонове интеракције. Временски нехомогена компонента интеракционе само-енергије одговара временски зависном потенцијалу који се генерише у молекулу. Други допринос (контактна само-енергија) настаје услед контакта молекула и електрода и његов облик је аналитички егзактно одредив, кроз везу са НГФ оног дела електроде који је непертурбован контактом са молекулом [6]. Такође је претпостављено да електроде не интерагују међусобно. Само-енергија услед Кулонове интеракције се може представити као сума временски локалног, ХФ дела, и временски нелокалног доприноса који укључује корелационе ефекте интеракције [2]. Фуријеов трансформ хомогеног решења ј-не кретања НГФ (Дајсонове ј-не), доводи до тога да се НГФ препозна као резолвента ефективног Хамилтонијана молекула. Линеаризацијом ј-не кретања НГФ, добија се Дајсонова ј-на и за нехомогену НГФ, чија нехомогеност потиче од временски нехомогених само-енергија: контактне, која се добија из линеарног развоја НГФ непертурбованог дела електрода по њиховим временским потенцијалима, и интеракционе, за чији се нехомогени допринос узима ХФ члан. За централни регион, тзв. проширени молекул који чине молекул и пертурбовани део електрода, захтева се да буде електронеутралан, што је испуњено за добро проводне електроде [4].

## 3. РЕЗУЛТАТИ И ДИСКУСИЈА

Систем ј-на је добијен успостављањем везе између нехомогене ХФ само-енергије и лесер НГФ. Келдишева ј-на [2] успоставља релацију између лесер НГФ и ретардираних и авансираних нехомогених НГФ, које су кроз линеаризовану Дајсонову ј-ну изражене преко нехомогене ХФ само-енергије. Ретардирани, авансирани као и лесер облик коришћених величина добијен је аналитичким продужењем са Келдишеве контуре на реалну временску осу [6]. Линеарни одговор на екстерну побуду успоставља везу између нехомогених и хомогених

ретардираних, авансираних и лесер контактних само-енергија  $\sigma^{\text{R,A},<}(t, t') = -i \sum_{\alpha} \int_{t'}^t v_{\alpha}(\tau) d\tau \Sigma_{\alpha}^{\text{R,A},<}(t - t')$ , где се сумира по доприносима од електрода, док је подинтегрална функција временски-променљиви потенцијал електрода.

Линеаризоване Дајсонова и Келдишева j-на су, респективно,

$$G^{\text{R,A}}(t, t') = \int dt_1 dt_2 G^{\text{R,A}}(t - t_1) [\sigma^{\text{R,A}}(t_1, t_2) + \sigma^{\text{int}}(t_1, t_2)] G^{\text{R,A}}(t_2 - t'),$$

и

$$\begin{aligned} G^{<}(t, t') = & \int dt_1 dt_2 [G^{\text{R}}(t, t_1) \Sigma^{<}(t_1 - t_2) G^{\text{A}}(t_2 - t') \\ & + G^{\text{R}}(t - t_1) \sigma^{<}(t_1, t_2) G^{\text{A}}(t_2 - t') \\ & + G^{\text{R}}(t - t_1) \Sigma^{<}(t_1 - t_2) G^{\text{A}}(t_2, t')], \end{aligned}$$

док ХФ апроксимација уводи везу

$$\sigma_{nm}^{\text{int}}(t_1, t_2) = -i\delta(t_1 - t_2) \sum_{jk} [2W_{nj;mk} - W_{nj;km}] G_{kj}^{<}(t_1, t_2).$$

Генерални израз за струју је [3,6]

$$\begin{aligned} I_{\alpha}(t) = e \int_{-\infty}^t dt' \text{Tr} [ & G^{\text{R}}(t, t') \Sigma_{\alpha}^{<}(t, t') + G^{<}(t, t') \Sigma_{\alpha}^{\text{A}}(t, t') - \Sigma_{\alpha}^{\text{R}}(t, t') G^{<}(t, t') \\ & - \Sigma_{\alpha}^{<}(t, t') G^{\text{A}}(t, t') ], \end{aligned}$$

где НГФ и само-енергије садрже и хомогене и нехомогене величине. Развојем до линеарних нехомогених доприноса добијају се једносмерна и временски променљива струја. Док се прва може одредити уз помоћ ТФГ, друга зависи и од хомогених величина и од нехомогених али и од индукованог потенцијала у молекулу, који је овде самоусаглашено укључен.

Фуријеов трансформ од  $I_{\alpha}$  има четири сабирка:

$$i_{\alpha}(\omega) = \frac{e}{2\pi} \int \text{Tr} [i_{\alpha}^{(1)} + i_{\alpha}^{(2)} + i_{\alpha}^{(3)} + i_{\alpha}^{(4)}] dE$$

који се могу груписати у две врсте процеса: (1) и (3) представљају трансфер електрона из електроде у молекул и њима обрнутих сценарија (2) и (4):

$$i_{\alpha}^{(1)} = (G^{\text{R}}(E + \omega) - G^{\text{A}}(E)) \sigma_{\alpha}^{<}(E + \omega)$$

је корелисана инјекција електрона из електроде  $\alpha$  на енергијама  $E$  и  $E + \omega$ , док

$$i_{\alpha}^{(3)} = G^{\text{R}}(E + \omega, E) \Sigma_{\alpha}^{<}(E) - \Sigma_{\alpha}^{<}(E + \omega) G^{\text{A}}(E + \omega, E)$$

описује инјекцију електрона из електроде у молекул при том мењајући густину стања у молекулу. Стога ова два процеса описују трансфер електрона из електроде у молекул, док трансфер електрона из молекула у электроду описују

$$i_{\alpha}^{(2)} = (\Sigma_{\alpha}^{\text{A}}(E) - \Sigma_{\alpha}^{\text{R}}(E + \omega)) G^{<}(E + \omega, E),$$

$$i_{\alpha}^{(4)} = G^{<}(E + \omega) \sigma_{\alpha}^{\text{A}}(E + \omega, E) - \sigma_{\alpha}^{\text{R}}(E + \omega, E) G^{<}(E).$$

Генералан израз за струју у размотреној ХФ-ТФГ апрокс. је изведени у [7], док овде разматрамо специјалан случај наизменичне струје нултог напона, у стандардној апроксимацији широке проводне траке, где се претпоставља да је густина стања у електродама константна и знатно већа него у молекулу. Овај захтев поништава допринос четвртог сабирка, и израз за струју постаје

$$i_{\alpha}(\omega) = \frac{e}{2\pi} \int (f(E) - f(E + \omega)) \Gamma_{\alpha} G^R(E + \omega) \times \\ \left[ i(U(\omega) - V_{\alpha}(\omega)) + \frac{V_{\alpha}(\omega) - V_{\beta}(\omega)}{\omega} \right] G^A(E),$$

где је  $f(E) - f(E + \omega)$  разлика Ферми расподела, а ширина густине стања у молекулу до које долази због пертурбовања електродом  $\alpha$  је  $\Gamma_{\alpha}$  и представља меру нестационарности стања. У изразу експлицитно фигуришу потенцијал електрода,  $\alpha \neq \beta$ , као и потенцијал индуован у молекулу,  $U(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int \sigma^{\text{int}}(E + \omega, E) dE$ . Део струје који потиче од овог потенцијала је фракција укупне струје померања која је придружена одговарајућој електроди тј. њеној струји честица. Струја мора бити очувана као последица ХФ апроксимације [5], што је и експлицитно показано за овде представљену теорију у [7].

## ЗАХВАЛНИЦА

Овај рад је спроведен уз подршку Министарства за просвету, науку и технолошки развој Републике Србије, пројекати ОИ171033 и ИИИ 41028.

## ЛИТЕРАТУРА

- [1] Walter Kohn, Rev. Mod. Phys. **71**, 1253 (1999)
- [2] Pawel Danielewicz, Annals of Physics **152**, 239 (1984)
- [3] M. P. Anantram and S. Datta, Phys. Rev. B **51**, 7632 (1995)
- [4] M. Brandbyge, J. L. Mozos, P. Ordejón, J. Taylor, and K. Stokbro, Phys. Rev. B **65**, 165401 (2002)
- [5] Gordon Baym, Phys. Rev. **127**, 1391 (1962)
- [6] A.-P. Jauho, N. S. Wingreen, and Y. Meir, Phys. Rev. B **50**, 5528 (1994)
- [7] M. Dražić, V. Cerovski i R. Žikić, *submitted for publication*..