

МЕТОДИКА РОЗРАХУНКУ ЕНЕРГЕТИЧНОГО СПЕКТРУ ТА ДОСЛІДЖЕННЯ ЕЛЕКТРИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК СИСТЕМ З КВАНТОВИМИ ТОЧКАМИ

Дідух Л.Д., Скоренький Ю.Л., Крамар О.І., Дубик С.О.

Тернопільський національний технічний університет ім. І.Пулюя,
e-mail: skorenkyy@tstu.edu.ua

Для опису електричних та магнітних властивостей сильнокорельованих систем з квантовими точками в роботі [1] було сформульовано нову форму узагальненої *s-d* моделі. Таке узагальнення дозволяє адекватно описати матеріали, унікальність фізичних властивостей яких зумовлена, в основному, саме наявністю вузької зони провідності, сформованої за рахунок процесів непрямого переносу через підсистему локалізованих електронних станів. До таких речовин можуть бути віднесені сполуки типу SmS, тверді розчини типу Sm_{1-x}Re_xS (Re=Ga, Yb, Gd, Nd), системи з важкими ферміонами (CeAl₃, CeCu₂Si, CeCu₆, UPt, UBe₁₃ та інші).

На відміну від стандартної форми *s-d* моделі [2] в узагальненій *s-d* моделі трансляційні параметри $t_0(ij)$, $t_2(ij)$, $t_{02}(ij)$ є інтегралами опосередкованого переносу за участю вузлів з локалізованими електронами (катионна підсистема в сполуках перехідних металів, квантові точки тощо). Величина цих параметрів може суттєво перенормувувати стандартний „зонний” перенос $t(ij)$ і сприяти ефектам локалізації електронів чи „металізації” сполуки. Таким чином в запропонованій моделі в рамках єдиного підходу описано зонний та „гібридизаційний” перенос електронів. У зв’язку із значним перекриттям хвильових функцій електронів на вузлах, які формують зону провідності, не лише опосередкований перенос значно перенормує зонний, але й гібридизаційна обмінна взаємодія характеризується більшим за величиною параметром (порядку t^4/Δ^3), порівняно з прямими обмінними взаємодіями.

Дослідимо більш детально вплив деформації ґратки на електричні властивості системи та делокалізацію носіїв струму. З цією метою включимо в гамільтоніан роботи [1] фононний доданок та пружну енергію ґратки, як це зроблено в роботі [3] та розглянемо систему за відсутності гібридизації зонних та локалізованих станів, але при ненульовій температурі.

$$H = -\mu \sum_{i\sigma} (c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} + d_{i\sigma}^+ d_{i\sigma}) + E_d \sum_{i\sigma} d_{i\sigma}^+ d_{i\sigma} + E_b(\bar{u}) \sum_{i\sigma} c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + \sum_{\bar{q}f} \hbar \omega_f(\bar{q}) b_{\bar{q}f}^+ b_{\bar{q}f} + \frac{1}{2} N V_0 C \bar{u}^2 + H_s + H_{sd}, \quad (1)$$

де

$$H_s = \sum_{ij\sigma} t_{ij}(u) c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma}, \quad (2)$$

$$H_{sd} = V(u) \sum_{i\sigma} (c_{i\sigma}^+ d_{i\sigma} + d_{i\sigma}^+ c_{i\sigma}), \quad (3)$$

описують зонний перенос та гібридизацію зонних і локалізованих рівнів, відповідно, $V(u) = V - gu$, V – параметр *s-d* гібридизації, g – параметр, який

описує вплив відносної деформації ґратки u на процес гібридизації, $n_{i\sigma} = d_{i\sigma}^+ d_{i\sigma}$ – число локалізованих на вузлі електронів. В цій моделі вплив зовнішнього стиску враховано і для положення центру зони $E_b(\bar{u}) = W + S\bar{u}$ (тут \bar{u} – рівноважна відносна деформація ґратки) та зонного переносу $t_{ij}(\bar{u}) = t_{ij} \left(1 + \frac{BV_0 \bar{u}}{2w} \right)$. W – відстань між центром зони та d -рівнем у недеформованому кристалі; U – параметр кулонівської кореляції електронів квантової точки, $2w$ – ширина незбуреної зони провідності.

Для знаходження енергетичного спектру, в рівняннях для функцій Гріна зонних та локалізованих електронів приймемо:

$$[c_{p\uparrow}; H_{sd}] = \sum_i \varepsilon_{pj} d_{j\uparrow}; \quad [d_{p\uparrow}; H_{sd}] = \sum_j \xi_{pj} c_{j\uparrow}. \quad (4)$$

Щоб замкнути систему рівнянь, приймемо, в дусі наближення середнього поля [3,4]

$$\langle\langle n_{p\downarrow} d_{p\uparrow} | d_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle \cong \langle n_{p\downarrow} \rangle \langle\langle d_{p\uparrow} | d_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle \quad (5)$$

та аналогічні замикання в рівняннях для функцій $\langle\langle c_{p\uparrow} | d_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle$ та $\langle\langle d_{p\uparrow} | c_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle$.

Таким чином, отримуємо системи рівнянь, з яких знаходимо спектр d – підсистеми

$$E_{1,2} = -\mu + \frac{E_b(u)}{2} + \frac{U \langle n_{p\downarrow} \rangle}{2} + \frac{t_{\bar{k}}(u)}{2} \mp \frac{1}{2} \sqrt{\left(E_d - E_b(u) + U \langle n_{p\downarrow} \rangle - t_{\bar{k}}(u) \right)^2 + 4(V(u))^2}. \quad (4)$$

В точці переходу, де гібридизація відсутня, спектр складається з окремих d -рівнів з енергією

$$E_1 = -\mu + E_d + U \langle n_{p\downarrow} \rangle \quad (5)$$

та s -зони з енергією

$$E_2 = -\mu + E_b(u) + t_{\bar{k}}(u). \quad (6)$$

Критерій переходу метал-діелектрик при цілому значенні концентрації електронів в системі:

$$\Delta E = E_2(-w) - E_1 = 0, \quad (7)$$

звідки маємо

$$E_b(u) - E_d - U \langle n_{p\downarrow} \rangle = w(u) \quad (8)$$

Як ширина s -зони, так і положення центра зони $E_b(u)$ можуть суттєво змінюватися при прикладанні зовнішнього тиску, що відкриває перспективи створення пристроїв на основі систем з квантовими точками з контрольованими електричними властивостями.

Рівноважне значення відносної деформації ґратки знаходимо з умови мінімуму потенціалу Гіббса (за умови нехтування гібридизації локалізованих та зонних станів)

$$G = F + PV = F + NPV_0(1 + \bar{u}). \quad (9)$$

де за початок відліку енергії вибираємо рівень електронів локалізованих на квантових точках $E_d = 0$.

В наближенні середнього поля [4] маємо

$$\frac{\partial F}{\partial \bar{u}} = \left\langle \frac{\partial H}{\partial \bar{u}} \right\rangle = \frac{\partial E_b(\bar{u})}{\partial U} \sum_{i\sigma} \langle c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle + \sum_{ij\sigma} \frac{\partial t_{ij}(\bar{u})}{\partial \bar{u}} \langle c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma} \rangle + NV_0 C \bar{u}. \quad (10)$$

З умови мінімуму потенціалу Гіббса рівноважна деформація може бути виражена як

$$\bar{u} = -\frac{1}{V_0 C} \left(\frac{S}{N} \sum_{k\sigma} \langle c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} \rangle + \frac{BV_0}{2w} \frac{1}{N} \sum_{k\sigma} t_{\vec{k}} \langle c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} \rangle \right) - \frac{PV_0}{CV_0}, \quad (11)$$

де $\langle c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dE J^s(E) = \sum_{\vec{k}} \int_{-\infty}^{\infty} dE J_{\vec{k}}^s(E)$ визначається спектральною інтенсивністю функції Гріна $\langle\langle c_{p\uparrow} | c_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle_{\vec{k}}$, з „зонним” спектром

$$E_2(\vec{k}) = -\mu + E_b(\bar{u}) + t_{\vec{k}}(\bar{u}). \quad (12)$$

Хімічний потенціал визначаємо, фіксуючи концентрацію електронів в системі:

$$\frac{1}{N} \sum_i \left(\langle d_{k\sigma}^+ d_{k\sigma} \rangle + \langle c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle \right) = \langle n \rangle, \quad (13)$$

Рівняння для функції Гріна $\langle\langle d_{p\uparrow} | d_{p\uparrow}^+ \rangle\rangle$ локалізованих електронів розв’язуємо, застосовуючи процедуру проектування (4)-(5).

У підсумку, енергетичний спектр складається із зони та рівнів, показаних на рис. 1.

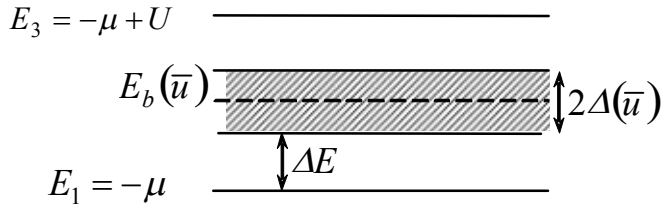


Рис. 1 – Структура енергетичного спектру моделі

Енергетична щілина ΔE у спектрі зникає за умови

$$W + S\bar{u} = w_c \left(1 + \frac{BV_0}{2w_c} \bar{u} \right). \quad (14)$$

Звідси для точки переходу маємо $\bar{u} = -\frac{W - w_c}{S - \frac{BV_0}{2}} < 0$.

Розрахунок кореляційних функцій при нульовій температурі можна провести з прямокутною модельною густиною станів. Для парамагнітного випадку отримуємо систему рівнянь для числового розрахунку рівноважного значення відносної деформації ґратки та хімічного потенціалу

$$\bar{u} = \frac{1}{CV_0} \left(\frac{S}{aw} \ln \left| \frac{e^{-b-aw} + 1}{e^{-b+aw} + 1} \right| - \frac{BV_0}{2w^2} \int_{-w}^w \frac{\varepsilon d\varepsilon}{e^{b+a\varepsilon} + 1} - pV_0 \right), \quad (15)$$

$$\langle n \rangle = -\frac{1}{aw} \ln \left| \frac{e^{-b-aw} + 1}{e^{-b+aw} + 1} \right| + 2 \left[\left(e^{\frac{-\mu}{\theta}} + 1 \right) \left(1 + \frac{1}{e^{\frac{-\mu}{\theta}} + 1} - \frac{1}{e^{\frac{-\mu+U}{\theta}} + 1} \right) \right]^{-1} \quad (16)$$

де $a = \frac{1}{\theta} \left(1 + \frac{BV_0}{2w} \bar{u} \right)$; $b = \frac{1}{\theta} (-\mu + E_b(\bar{u}))$.

Слідуючи роботі [3], виберемо такі значення параметрів $CV_0=20$ еВ; $BV_0=-3$ еВ; $S=0,4$ еВ; $W=2,2$ еВ; $w=2$ еВ; $U=5$ еВ, та отримуємо залежності характеристик системи від зовнішніх впливів, зокрема залежності рівноважного значення деформації ґратки та хімічного потенціалу системи від температури. Залежності ширини енергетичної щілини від температури при різних значеннях

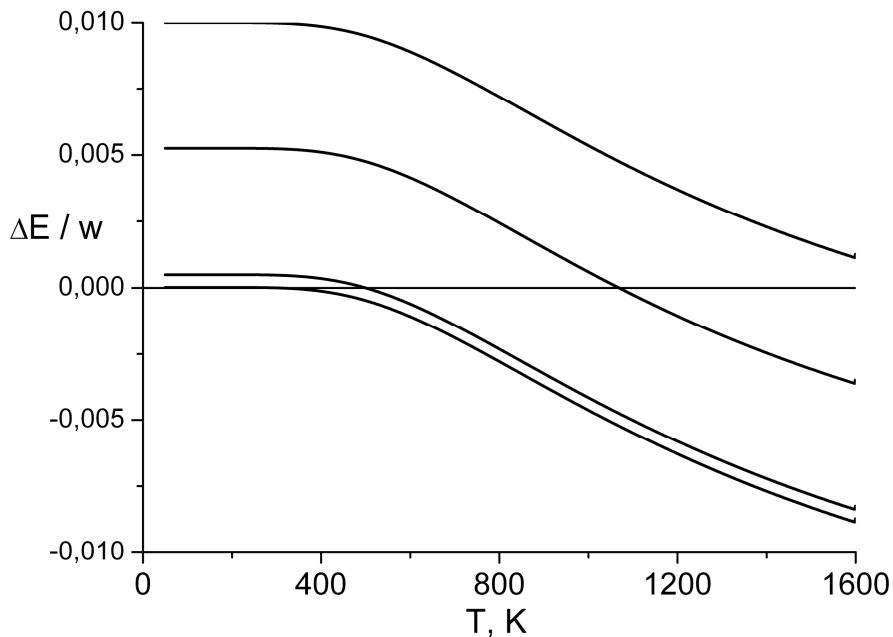


Рис. 2 – Залежність ширини енергетичної щілини від температури. Криві зверху вниз відповідають параметрам: $\frac{pV_0}{w} = 2,00; 2,05; 2,10; 2,105$.

прикладеного зовнішнього тиску показані на рис.2. Як видно із графіків, енергія активації залишається сталою у досить широкому інтервалі температур, проте починає швидко зменшуватися при температурах, вище від певної критичної, якій відповідає ініціація самотискання ґратки. Контролювати величину цього значення, а отже, і характер електричної провідності, можна за допомогою величини зовнішнього тиску та легування ґратки, яке приводить до зміни ширини зони провідності. Це відкриває перспективи створення датчиків тиску на основі ефекту індукованої зовнішнім тиском активації носіїв струму. Дані чисельного розв'язування системи рівнянь (15)-(16) дозволяють на основі умови (14) побудувати фазову діаграму (див. рис. 3) переходу метал-діелектрик в матеріалі з квантовими точками. Зниження критичної температури із прикладанням тиску є практично лінійним (до певного порогового значення, при якому відбувається різкий перехід у металічний стан), що може дозволити будувати прецизійні прилади із лінійною шкалою.

Таким чином, електричні властивості систем із квантовими точками можуть бути суттєвим чином модифіковані шляхом легування матриці або

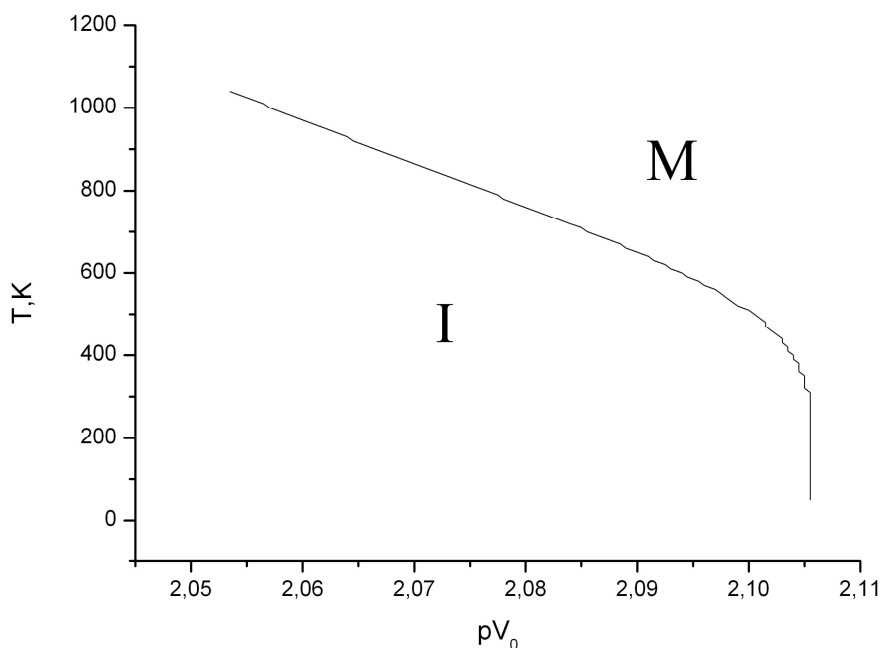


Рис. 3 – Фазова діаграма переходу метал-діелектрик в моделі

прикладання зовнішнього тиску. Запропонована процедура розрахунку енергетичного спектру та рівноважного значення відносної деформації ґратки дозволяє пояснити зміни електричних властивостей під дією зовнішніх впливів та прогнозувати нові фізичні ефекти у перспективних матеріалах.

1. Дідух Л.Д. Ефективний гамільтоніан періодичної моделі Андерсона для опису систем з квантовими точками / Л.Д. Дідух, О.І. Крамар, Ю.Л. Скоренький, Ю.М. Довгоп'ятий, Ю.В. Дрогобицький // Вісник Тернопільського національного технічного університету.– 2010. – Т.15, № 4.– С. 168-177.
2. Ирхин В.Ю., Ирхин Ю.П. Электронная структура, физические свойства и корреляционные эффекты в *d*- и *f*-металлах и их соединениях. – Екатеринбург: УрО РАН, 2004. – 472 с.
3. Григорчук Р.А. Электрон-деформационное взаимодействие и сжатие решетки в кристаллах, описываемых моделью Хаббарда / Р.А. Григорчук, И.В. Стасюк // Укр. физ. журн.- 1980.- Т. 25, № 3.- С. 404-410.
4. Amadon J.C. Metallic ferromagnetism in a single-band model: effect of band filling and Coulomb interactions / J.C. Amadon, J.E. Hirsch // Phys. Rev. B.- 1996.- vol. 54, No.9.- P.6364-6375.