

多端耦合量子点分子桥的量子输运特性研究^{*}

尹永琦¹⁾ 李 华^{1,2)} 马佳宁¹⁾ 贺泽龙³⁾ 王选章^{1,2)}

1) 哈尔滨师范大学物理与电子工程学院 哈尔滨 150025)

2) 黑龙江省先进功能材料与激发态重点实验室 哈尔滨 150025)

3) 黑龙江工程学院电子工程系 哈尔滨 150050)

(2008 年 10 月 21 日收到 2008 年 12 月 2 日收到修改稿)

利用非平衡格林函数方法,对五个量子点连结而成的有四个终端的耦合量子点分子桥进行了理论研究和数值模拟,得出了入射电子通过耦合量子点分子桥传输到各个终端的电子隧穿概率的规律.

关键词:耦合量子点分子桥,非平衡格林函数,量子输运

PACC: 7320D, 7335C

1. 引言

分子级电子器件的理论自 1974 年诞生以来^[1],得到了快速发展^[2-4].随着理论研究的不断深入、扫描隧道显微镜 (STM) 和原子力显微镜 (AFM) 等实验技术的进步^[5],纳米级分子器件的理论基础和制造方法日趋成熟^[6].分子线^[7]、纳米级存储器^[8]、分子开关^[9]、逻辑门^[10]、分子二极管^[11]、三极管^[12]和量子点器件^[13,14]等都已经获得成功,而纳米级具有计算功能的分子逻辑门集成模块也已经实验完成^[15].同时,一些相关的研究也取得了很好的成果,如单分子传导^[16]、分子耦合界面的传导特性^[17,18]、单分子开关^[19]等.其中,由几个量子点耦合形成的耦合量子点分子因其有望作为实现量子计算的基本分子器件而得到了广泛的研究^[20-22].到目前为止,有关多终端的耦合量子点桥的研究报道很少,而在纳米电路中多端连接是必须的,因此对多端耦合量子点体系的电子传导特性进行研究是有意义的.本文提出了一个多端耦合量子点分子桥模型,利用非平衡格林函数方法对电子在其中的量子传输特性进行了理论探索.通过数值计算,得出了电子通过多端耦合量子点分子桥随传输电子能量变化的传输概率分布,这一理论结果对于纳米分子电路的理论、实验和制造都有指导意义.

2. 模型与计算方法

本文提出的耦合量子点分子桥模型如图 1 所示,由五个量子点连结而成.1, 2, ..., 5 为量子点编号.量子点 1—4 分别连接四个电极,量子点 5 同其他四个量子点通过量子点电子之间的共振隧穿耦合在一起.我们忽略量子点内部和量子点之间电子的库仑相互作用,所以研究的结构对应于量子点具有较大的电容和相邻量子点间隔较远的体系.同时假设每个量子点中的电子只有一个能级.这样做的结果使得我们能够利用非平衡格林函数方法,给出隧穿电流的一般解析表达式,并且能够从物理上得到电导同体系结构参数之间的关系.尽管考虑的模型比较简单,但是我们仍然获得了一些比较有趣的结果.

根据紧束缚近似以及周期性边界条件,整个系统的哈密顿量可以写为

$$H = \sum_{k, \alpha=1}^4 \epsilon_{k\alpha} C_{k\alpha}^+ C_{k\alpha} + \sum_{i=1}^5 \epsilon_i^0 d_i^+ d_i + \sum_{i=1}^4 (V_{i5} d_i^+ d_5 + h.c.) + \sum_{\alpha=1}^4 (V_{\alpha} C_{\alpha}^+ d_i \delta_{i,\alpha} + h.c.), \quad (1)$$

式中 $C_{k\alpha}^+$ ($C_{k\alpha}$) 和 d_i^+ (d_i) 分别代表电极 α 中波矢为 k 的电子以及量子点 i ($i = 1, 2, 3, 4, 5$) 中电子的产生 (湮灭) 算符; $\epsilon_{k\alpha}$ 和 ϵ_i^0 分别代表电极 α 中的电子能级

^{*} 黑龙江省教育厅科学技术研究基金(批准号:J1531239)和哈尔滨师范大学科学技术研究基金(批准号:KM2006-15)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: limin@126.com

和标号为 i 的量子点中的电子能级 V_α 为电极 α 和与其相连的量子点之间的隧穿耦合强度 V_{i5} 代表标号为 i 的量子点与量子点 5 之间的隧穿耦合强度. 这里, 为了简单起见, 我们略去了自旋脚标, 并且假定每个量子点中只有一对自旋简并能级.

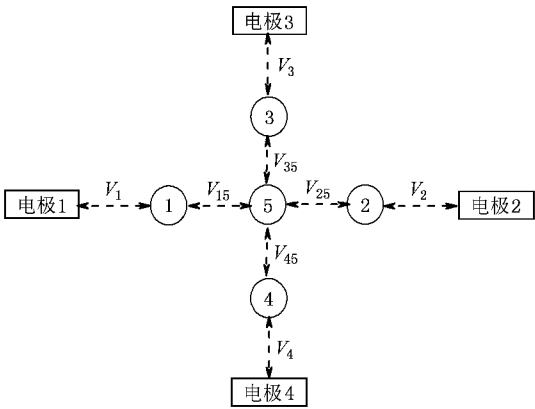


图 1 四端耦合量子点分子桥示意图

为了描述体系的非平衡态, 我们引入如下三个格林函数

$$G_{i,i}^r(t,t') = -i\theta(t-t')\{d_i(t), d_i^+(t')\}, \quad (2)$$

$$G_{i,i}^a(t,t') = i\theta(t'-t)\{d_i(t), d_i^+(t')\}, \quad (3)$$

$$G_{i,i}^<(t,t') = i\{d_i^+(t'), d_i(t)\} \quad (i = 1, 2, \dots, n). \quad (4)$$

若仅考虑稳态, 则格林函数仅依赖于时间的差值 $\Delta t = t - t'$. 通过对 $G_{i,i}(t - t', 0)$ 中的 $\Delta t = t - t'$ 进行傅里叶变换可以得到 $G_{i,i}(\omega)$, 即 $G_{i,i}(\omega) =$

$$\int_{-\infty}^{\infty} G_{i,i}(t, 0) e^{i\omega t} dt.$$

格林函数可以通过其运动方程求解. 为了使格

林函数的运动方程书写更为方便, 我们利用 $\ll A | B \gg^r, a, <$ 来描述傅里叶空间的格林函数, 例如: $G_{j,i}^r(\omega) = \langle \langle d_j | d_i^+ \rangle \rangle^r$. 推迟、超前和“小于”格林函数分别满足运动方程

$$(\omega \pm i0^+) \ll A | B \gg^{\epsilon(a)} = \langle \{A, B\} \rangle + \ll [A, H] | B \gg^{\epsilon(a)}, \quad (5)$$

$$\omega \ll A | B \gg^< = \ll [A, H] | B \gg^<. \quad (6)$$

根据格林函数运动方程以及 Keldysh 闭路积分, 我们得到如下推迟格林函数和“小于”格林函数所满足的迭代方程:

$$G_{i,i}^r(\omega) = g_{i,i}^r \delta_{i,i} + g_{i,i}^r \sum_a G_{a,i}^r(\omega) \delta_{a,i} + g_{i,i}^r \sum_5 G_{5,i}^r(\omega) \quad (i = 1, 2, 3, 4), \quad (7)$$

$$G_{5,i}^r(\omega) = g_{5,5}^r \sum_{51} G_{1,i}^r(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{52} G_{2,i}^r(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{53} G_{3,i}^r(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{54} G_{4,i}^r(\omega), \quad (8)$$

$$G_{i,i}^<(\omega) = g_{i,i}^r [\sum_a G_{a,i}^<(\omega) + \sum_a G_{a,i}^a(\omega)] \delta_{a,i} + g_{i,i}^r \sum_5 G_{5,i}^<(\omega) \quad (i = 1, 2, 3, 4), \quad (9)$$

$$G_{5,i}^<(\omega) = g_{5,5}^r \sum_{51} G_{1,i}^<(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{52} G_{2,i}^<(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{53} G_{3,i}^<(\omega) + g_{5,5}^r \sum_{54} G_{4,i}^<(\omega), \quad (10)$$

其中 $g_{i,i}^r = (\omega - \epsilon_i + i\eta)^{-1}$ 是各量子点的自由粒子格林函数; $\sum_{ij}$ 代表相邻量子点之间的自能. 此外, $\sum_a^{r,a,<}(\omega) = V_a^2 g_{ha}^{r,a,<}(\omega)$ 表示与电极和量子点之间的隧穿耦合相关的自能项. 其中 $g_{ha}^{r,a,<}(\omega)$ 为电极中自由电子格林函数, 其定义为 $g_{ha}^r(\omega) = 2\pi i f_a(\omega) \delta(\omega - \epsilon_{ha})$ 和 $g_{ha}^r(\omega) = [g_{ha}^a(\omega)]^* = [\omega - \epsilon_{ha} + i\eta]^{-1}$, $f_a(\omega)$ 是电极 α 的费米分布函数, 它由 $f_a(\omega) = [e^{\beta(\hbar\omega - \mu_a)} + 1]^{-1}$ 给出, 其中 $\beta = 1/kT$, μ_a 为电极 α 的化学势. 由方程 (7)–(10), 我们得到

$$G_{1,i}^r = \frac{1}{\omega - \epsilon_1^0 - \sum_1^r - \frac{V_{15}^2}{\omega - \epsilon_5^0 - \frac{V_{25}^2}{\omega - \epsilon_2^0 - \sum_2^r} - \frac{V_{35}^2}{\omega - \epsilon_3^0 - \sum_3^r} - \frac{V_{45}^2}{\omega - \epsilon_4^0 - \sum_4^r}}}, \quad (11)$$

$$G_{5,i}^r = \frac{V_{51}}{\omega - \epsilon_5^0 - \frac{V_{25}^2}{\omega - \epsilon_2^0 - \sum_2^r} - \frac{V_{35}^2}{\omega - \epsilon_3^0 - \sum_3^r} - \frac{V_{45}^2}{\omega - \epsilon_4^0 - \sum_4^r}} G_{1,i}^r, \quad (12)$$

$$G_{i,i}^r = \frac{V_{i5}}{\omega - \epsilon_i^0 - \sum_a^r \delta_{a,i}} G_{5,i}^r \quad (i = 2, 3, 4), \quad (13)$$

以及

$$G_{1,i}^< = i \sum_{\alpha=1}^4 f_{\alpha}(\omega) \Gamma^{\alpha}(\omega) |G_{i,1}^r|^2 \delta_{\alpha,i}, \quad (14)$$

其中, $\Gamma^{\alpha}(\omega) = 2\pi |V_{\alpha}|^2 \rho_{\alpha}(\omega)$ 称为线宽函数, 用来描述电极和与之连接的量子点之间的耦合强度. 利用以上格林函数的表达式可以将通过体系的电流表示为

$$J_L = \frac{2e}{h} \int \left\{ \sum_{\alpha=2}^4 [f_{\alpha}(\omega) - f_1(\omega)] T_{1\alpha} \right\} d\omega \quad (15)$$

其中

$$T_{1\alpha}(\omega) = \Gamma^1(\omega) \Gamma^{\alpha}(\omega) |G_{i,1}^r|^2 \delta_{\alpha,i}. \quad (16)$$

这是一个与 Landauer-Büttiker 公式相似的电流公式, 当电极中的电子态密度为常数时, 通过电极 1 与其他电极之间的隧穿系数 $T_{1\alpha}(\omega)$ 正比于能量为 ω 的电子的透射几率.

进行下一步数值计算之前, 先对之前得到的公式进行简要分析. 与单个量子点相比, 电子通过耦合的多量子点体系时的隧穿呈现出更为复杂的行为. 这是因为多量子点体系为电子提供了更多的费曼路径. 如果耦合量子点体系的尺度小于或者接近电子的相位相干长度, 那么通过不同费曼路径的电子波之间的干涉就会起到很大的作用. 当电极的费米面与耦合量子分子的本征能级对齐时, 所有费曼路径之间的“相长”干涉就会导致电导谱的共振峰. 相反, 不同费曼路径之间的“相消”干涉则会导致电导零点, 即“反共振点”. 而通过(16)式可知, 线性电导即隧穿系数的零点对应出现在格林函数的零点. 而通过公式(11)–(13)可以很容易的看出, 对于耦合量子点体系与两个电极或三个电极相连的两终端或三终端体系, 格林函数的零点只能出现在悬挂量子点(不与电极相连的量子点)的单量子点能级处. 因此悬挂量子点是“反共振”现象产生的关键.

3. 数值结果与讨论

在这一部分, 我们分别给出该体系在两终端、三终端以及四终端情况下, 电极 1 和其他电极之间的隧穿系数 $T_{1\alpha}(\omega)$ 在各种单量子点能级组合以及点间耦合强度取不同值时的详细计算结果并对所得到的结果进行比较. 这里, 两终端体系的结果可以通过和四个电极中的两个电极解耦(例如: 令 $\Gamma^3 = \Gamma^4 = 0$)得到, 同样地, 可以通过同四个电极中的一个电极解耦(例如: 令 $\Gamma^3 = 0$ 或 $\Gamma^4 = 0$)来得到三终端体系

的结果. 为了简单起见, 假定每个电极的电子态密度是一个常数, 并且采用宽带近似, 即线宽函数 $\Gamma^{\alpha}(\omega)$ 是与能量无关的常数, 这样有 $\Sigma_{\alpha}^r(\omega) = -(i/2)\Gamma^{\alpha}$. 在数值计算中, 假定 $\Gamma^{\alpha} = \Gamma$ 并且取 Γ 来作为能量单位.

图 2 和图 3 给出了两端体系($\Gamma^1 = \Gamma^2 = \Gamma$ 以及 $\Gamma^3 = \Gamma^4 = 0$)的隧穿系数 $T_{12}(\omega)$ 的计算结果. 此时的体系相当于一个三量子点线(称之为主链)悬挂两个量子点的情况. 图 2 给出五个量子点的单量子点能级完全匹配时的情况(即 $\epsilon_i^0 = \epsilon_0 = 0$). 为了便于比较, 我们先给出了一个两端三量子点线的隧穿系数的计算结果, 这可以通过令 $V_{35} = V_{45} = 0$ 来实现. 此时, 随着电子能量的变化, 电子通过耦合量子点分子桥的几率呈现振荡的变化: 三个共振峰($T_{12} = 1$)对应三个量子点分子能级, 其中一个位于单量子点能级 ϵ_0 处, 其余两个对称地分布在其两侧(如图 2(a)所示), 其他能量的电子不能通过分子桥. 这与文献[23]报道的结果相同. 当 $V_{35} = V_{45} \neq 0$ 时(如图 2(b)(c)(d)所示), 当电极中的电子能量取单量子点能级 ϵ_0 时, 对应的电子隧穿系数为零, 即没有电子可以通过体系, 我们称这一现象为反共振现象. 这与单独的一个三量子点线的隧穿性质在该点完全相反. 位于单量子点能级两侧的两个共振能级仍然存在, 只是随着悬挂量子点与主链之间的耦合的不断增强, 逐渐远离 ϵ_0 . 这一现象我们认为可以这样来解释: 当量子点与电极断开而且相邻量子点之间不存在电子的隧穿时, 所有的量子点中的电子能级都是简并的, 即 $\epsilon_i^0 = \epsilon_0$; 当相邻量子点之间存在电子的隧穿时, 相当于形成了一个新的耦合量子点“分子”, 此时电子的能级重新组合, 形成新的分子能级, 即能级简并被逐渐的消除; 悬挂量子点与主链量子点之间的耦合增大时, 电子能级的劈裂程度相应增大, 在图中表现为远离单量子点能级. 当所有的量子点之间的耦合系数都相等($V_{ij} = V_0$)时, 两个共振峰正好出现在 $\omega = \pm 2V_0$ 处. 为了进一步考察反共振的现象, 我们计算了主链中的三个量子点的单量子点能级相等($\epsilon_1^0 = \epsilon_2^0 = \epsilon_3^0 = \epsilon_0 = 0$)时, 悬挂量子点的单量子点能级变化对隧穿系数的影响. 结合图 2 和 3 我们得到如下结论: 当两端三量子点线存在一个与主链量子点单量子点能级 ϵ_0 相匹配的悬挂量子点时, 在 ϵ_0 处就会出现反共振现象, 这同之前分析隧穿系数表达式所得到的结果是一致的.

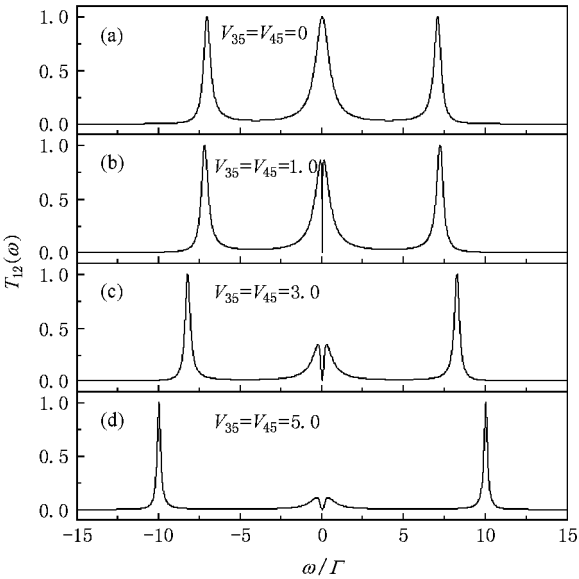


图2 五个量子点单量子点能级完全匹配时,两端体系的 $T_{12}(\omega)$ - ω 关系曲线 $\epsilon_i^0=0, V_{15}=V_{25}=5$ (a) $V_{35}=V_{45}=0$ (b) $V_{35}=V_{45}=1.0$ (c) $V_{35}=V_{45}=3.0$ (d) $V_{35}=V_{45}=5.0$

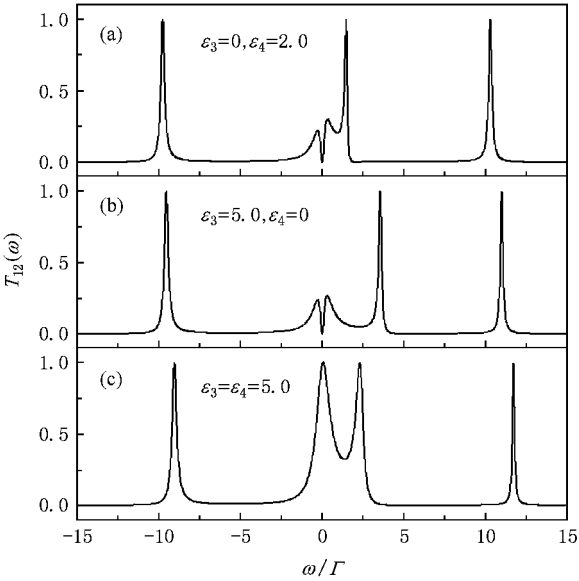


图3 悬挂量子点单量子点能级变化时,两端体系的 $T_{12}(\omega)$ - ω 关系曲线 $\epsilon_1^0=\epsilon_2^0=\epsilon_5^0=0, V_{ij}=5$ (a) $\epsilon_3=0, \epsilon_4=2.0$ (b) $\epsilon_3=5.0, \epsilon_4=0$ (c) $\epsilon_3=\epsilon_4=5.0$

图4给出了电子通过三端体系($\Gamma^1=\Gamma^2=\Gamma^3=\Gamma$ 以及 $\Gamma^4=0$)的隧穿系数的计算结果.由于结构的对称性, $T_{12}(\omega)$ 和 $T_{13}(\omega)$ 的结果完全相同,因此只需给出 $T_{12}(\omega)$ 的曲线即可.电子通过分子桥的几率仍然表现出振荡的特征,当存在一个与主链单量子点能级的悬挂量子点时,反共振的现象再一次出现

在主链的单量子点能级处.此外,图中的隧穿几率峰值的大小表明由电极1进入到耦合量子点分子桥中的电子并不能像在两端体系中那样完全通过,而是有一部分将沿着原路返回电极1.

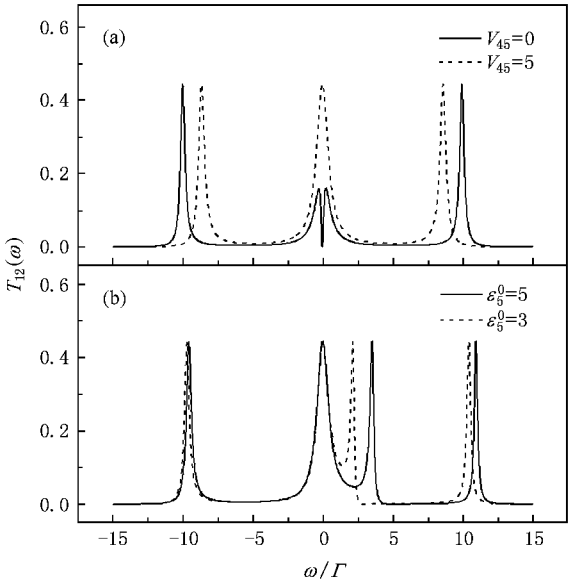


图4 三端体系的 $T_{12}(\omega)$ - ω 关系曲线 (a) $\epsilon_i^0=0, V_{15}=V_{25}=V_{35}=5$ (b) $V_{15}=5, \epsilon_1^0=\epsilon_2^0=\epsilon_3^0=\epsilon_5^0=0$

四端体系的电子隧穿系数的计算结果由图5给出.当体系中所有的量子点单量子点能级以及量子点5和各量子点之间的耦合都相同时,当电极电子能量取 $0, \pm 2V$ 时,有 $T_{12}=T_{13}=T_{14}=0.25$,三者的

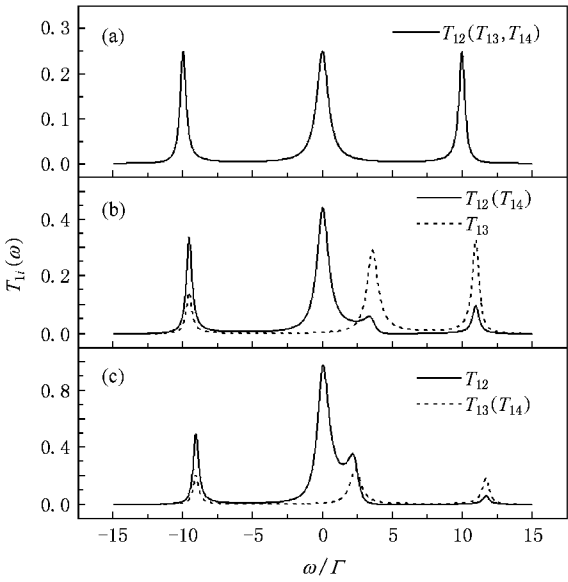


图5 四端体系的 $T_{1i}(\omega)$ - ω 关系曲线 $\epsilon_1^0=\epsilon_2^0=\epsilon_5^0=0, V_{ij}=5$ (a) $\epsilon_3=0, \epsilon_4=0$ (b) $\epsilon_3=5.0, \epsilon_4=0$ (c) $\epsilon_3=\epsilon_4=5.0$

和不等于 1,即通过入射电极进入耦合量子点体系的电子的隧穿几率不能达到 1,一部分电子要通过原路隧穿回入射电极,这一特点与两终端情况不同.然而,当考虑通过“电极 1—量子点 1—量子点 5—量子点 2—电极 2”这条支路的电子隧穿概率时,我们同时改变量子点 3 和 4 的单量子点能级则可使具有量子点 1、2、5 的单量子点能级相等能量的电子的隧穿概率达到 1.

4. 结 论

本文通过对由五个量子点耦合形成的多量子点体系同两个、三个、四个电极相连形成的多终端体系的电子隧穿系数进行了研究.研究结果清楚地显示出,不论对于几个终端的耦合量子点分子桥,电子通过多终端的耦合量子点分子桥的几率是与电极中电子的能量紧密相关的.随着电子能量取值的变化,电

子通过分子桥的几率呈现振荡的形式,这与电子通过普通导体时的状态是完全不同的.首先,当两端或三端体系存在悬挂量子点时,当电极电子的能级与单量子点能级对齐时,会出现“反共振”隧穿.反共振现象具有很高的器件应用价值,例如在有限的偏压下会产生多个负微分电导区等.其次,在三端和四端体系的隧穿系数曲线中,我们看到通过入射电极进入耦合量子点体系的电子并不能百分之百的通过量子点体系进入到其他电极,而是有一部分“回波”出现.为了克服这样的问题,可以调节体系中量子点的单量子点能级的相对取值,而使得隧穿系数达到百分之百.随着自组织生长方法的成熟以及 STM 和 AFM 技术的发展,本文所讨论的耦合量子点分子桥的制备并不是遥不可及的事情.因此本文的研究结果对于耦合量子点分子桥的设计构型和实验应用将会有所帮助.

-
- [1] Aviram A , Ratner M A 1974 *Chem . Phys . Lett .* **29** 277
 - [2] Aviram A , Ratner M A 1998 *Molecular Electronics* (New York : Annals of New York Academy of Sciences)
 - [3] Joachim C , Gimzewski J K , Aviram A 2000 *Nature* **408** 541
 - [4] Nitzan A , Ratner M A 2003 *Science* **300** 1384
 - [5] Morita S , Wiesendanger R , Meyer E 2002 *Noncontact Atomic Force Microscopy* (Berlin : Springer) p11—46
 - [6] Mathur N 2002 *Nature* **419** 573
 - [7] Smit R H M , Noat Y , Untie C , Lang N D , van Hemert M C , van Ruitenbeek J M 2002 *Nature* **419** 906
 - [8] Aviram A 1988 *J . Am . Chem . Soc.* **110** 5687
 - [9] Ramachandran G K , Hopson T J , Rawlett A M , Nagahara L A , Primak A , Lindsay S M 2003 *Science* **300** 1413
 - [10] Bachtold A , Hadley P , Nakanishi T , Dekker C 2001 *Science* **294** 1317
 - [11] Cui Y , Lieber C M 2001 *Science* **291** 851
 - [12] Tans S J , Verschueren A R M , Dekker C 1998 *Nature* **393** 49
 - [13] Zhao J G , Shao B , Wang T H 2002 *Acta Phys . Sin.* **51** 1355 (in Chinese) [赵继刚、邵 彬、王太宏 2002 物理学报 **51** 1355]
 - [14] Zhu Y , Wang T H 2003 *Acta Phys . Sin.* **52** 677 (in Chinese) [竺 云、王太宏 2003 物理学报 **52** 677]
 - [15] Huang Y , Duan X , Lieber C M 2001 *Science* **294** 1313
 - [16] Bumm L A , Arnold J J , Cygan M T , Danbar T D , Bargin T P , Jones II L , Allara D L , Tour J M , Weiss P S 1996 *Science* **271** 1705
 - [17] Reed M A , Zhou C , Muller C J , Bargin T P , Tour J M 1997 *Science* **278** 252
 - [18] Tagami K , Wang L , Tsukada M 2004 *Nano . Lett.* **V4** 209
 - [19] Chen J , Reed M A , Rawlett A M , Tour J M 1999 *Science* **286** 1550
 - [20] Chen X W , He D J , Wu S Q , Song K H 2006 *Acta Phys . Sin.* **55** 4287 (in Chinese) [谌雄文、贺达江、吴绍全、宋克慧 2006 物理学报 **55** 4287]
 - [21] Li S S , Xia J B 2007 *Chin . Phys .* **16** 0001
 - [22] Song H Z , Zhang P , Duan S Q , Zhao X G 2006 *Chin . Phys .* **15** 2130
 - [23] Shangguan W Z , Yeung T C Au , Yu Y B , Kam C H 2000 *Phys . Rev . B* **63** 235323

Quantum transport of multi-terminal
coupled-quantum-dot-molecular bridge^{*}

Yin Yong-Qi¹⁾ Li Hua^{1,2)†} Ma Jia-Ning¹⁾ He Ze-Long³⁾ Wang Xuan-Zhang^{1,2)}

1) *College of Physics and Electronic Engineering, Harbin Normal University, Harbin 150025, China*

2) *Heilongjiang Key Laboratory for Advanced Functional Materials and Excited State Processes, Harbin 150025, China*

3) *Department of Electronic Engineering, Institute of Heilongjiang Engineering, Harbin 150050, China*

(Received 21 October 2008 ; revised manuscript received 2 December 2008)

Abstract

The characteristics of quantum transport through a four-terminal coupled-quantum-dot-molecular bridge are investigated theoretically by nonequilibrium Green's function. The transmission probabilities of the electrons transported through the molecular bridge to every terminal are obtained.

Keywords : coupled-quantum-dot-molecular bridge , nonequilibrium Green's function , quantum transport

PACC : 7320D , 7335C

^{*} Project supported by the Research Foundation of Education Bureau of Heilongjiang Province ,China(Grant No.11531239)and the Resarch Fund of Harbin Normal University , China(Grant No. KM2006-15).
[†] Corresponding author. E-mail :limjn@126.com