

*А. А. Джигоев, Д. С. Косов*

## Неравновесный транспорт электронов через открытые квантовые системы

В настоящее время исследование транспорта электронов через наноразмерные квантовые системы (молекулы, углеродные нанотрубки, квантовые точки и т. д.) является одной из наиболее быстро развивающихся и перспективных областей физики конденсированного состояния. Интерес к этой тематике связан, прежде всего, с продолжающейся миниатюризацией электронных устройств и с возможностью создания базовых элементов нанoeлектроники (диодов, транзисторов) на основе отдельных молекул или их ансамблей. Транспорт электронов, помимо прикладного, представляет и значительный теоретический интерес, так как является примером неравновесного квантового процесса, для описания которого необходимо применять методы неравновесной статистической механики.

Представленная на рис. 1 общая схематическая модель электронного транспорта состоит из коррелированной квантовой системы (центральная область), связанной туннельным взаимодействием с двумя макроскопическими невзаимодействующими электродами (правым и левым), которые играют роль бесконечных электронных резервуаров. Вся система приводится в неравновесное состояние при помощи внешнего напряжения, которое сдвигает химические потенциалы электродов относительно друг друга и поддерживает транспорт (ток) электронов через центральную область. Задача заключается в вычислении тока как функции приложенного напряжения. При отсутствии корреляций внутри системы, т. е. при отсутствии неупругого рассеяния, ответ дается теорией Ландауэра. Корреляции внутри системы, обусловленные электрон-электронным или

*A. A. Dzghioev, D. S. Kosov*

## Nonequilibrium Electron Transport through Open Quantum Systems

Nowadays, study of the electron transport through nanoscale quantum systems (molecule, carbon nanotubes, quantum dots, etc.) is one of the most active and perspective areas of condensed matter physics. The attention to this subject is primarily due to miniaturization of electronic devices and the prospects of developing basic nanoelectronic devices (diodes, transistors) using single molecules or their ensembles. Electron transport is also a problem of great theoretical interest because it provides an example of a nonequilibrium quantum process whose description requires the application of nonequilibrium statistical mechanics methods.

The general schematic model for the electron transport problem (Fig. 1) consists of a correlated quantum system

(central region) connected by the tunneling interaction to a couple of noninteracting macroscopic electrodes, left and right, serving as infinite electron reservoirs. The whole system is brought into a nonequilibrium state by applying the external voltage, which shifts relative chemical potential of the electrodes and supports electron transport (current) through the central region. The problem is to determine the current as a function of the applied voltage. In the absence of correlations in the system, i.e., when there is no inelastic scattering, the problem can be solved by the Landauer theory. Correlations caused by the electron-electron or electron-phonon interaction make it necessary to deal with many-body nonequilibrium problem.

электрон-фононным взаимодействием, приводят к необходимости решения многочастичной неравновесной задачи.

В настоящее время основным теоретическим подходом, использующимся при изучении транспорта электронов через наносистемы, является метод неравновесных функций Грина и его объединение с методом функционала плотности. Несмотря на свои достоинства, метод функций Грина чрезвычайно затратен с точки зрения вычислительных ресурсов при проведении самосогласованных расчетов, гарантирующих выполнение законов сохранения. Кроме того, комбинация неравновесных функций Грина с методом функционала плотности предсказывает значения тока, протекающего через молекулу, на порядок превышающие экспериментальные значения. В работах [1–4] разработан альтернативный подход к теоретическому изучению неравновесного транспорта электронов.

Рис. 1. Общая схематическая модель электронного транспорта

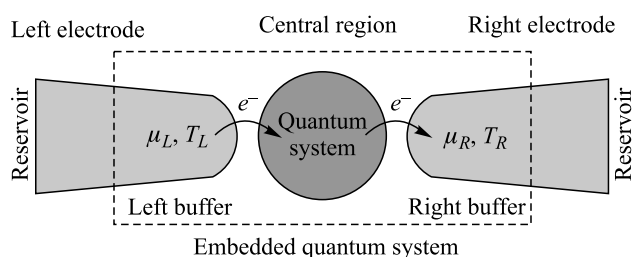


Fig. 1. A general schematic model for the electron transport problem

Today the main theoretical tool for studying the electron transport through nonosystems is the method of nonequilibrium Green's functions and its combination with the density functional theory. Computationally, despite its advantages, the nonequilibrium Green's functions method is extremely demanding when performing self-consistent calculations which implement conservation laws. Moreover, the nonequilibrium Green's function method combined with the density functional theory predicts current through a molecule which is systematically an order of magnitude larger than the experimental one. An alternative theoretical approach to treat nonequilibrium electron transport was developed in papers [1–4].

The main idea of the approach consists in replacing the infinite system in Fig. 1 by a finite open quantum system. To this end, each electrode is partitioned into two parts: the macroscopically large reservoir and the finite buffer zone between the central region and the reservoir. Taken together, the central region and the buffer zones form a so-called

Основная идея этого подхода состоит в замене бесконечной системы, изображенной на рис. 1, на конечную открытую квантовую систему. Для этого каждый электрод делится на две части: макроскопический резервуар и конечную буферную зону между центральной областью и резервуаром. Центральная область вместе с правой и левой буферной зонами образуют так называемую вложенную квантовую систему. Эта система является открытой, так как взаимодействует с резервуаром. Для описания транспорта через открытую систему мы используем уравнение Линдблада для матрицы плотности  $\rho(t)$  вложенной системы:

$$\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [H, \rho(t)] + i\Pi\rho(t).$$

Здесь  $H$  — это гамильтониан вложенной системы, а  $\Pi\rho(t)$  — неэрмитов диссипатор. Полученное уравнение описывает временную эволюцию открытой квантовой системы. Открытые граничные условия задаются диссипатором  $\Pi\rho(t)$ , который зависит от температуры и химических потенциалов правого и левого резервуаров. Уравнение Линдблада становится точным в стационарном режиме,  $t \rightarrow \infty$ , и при достаточно больших буферных зонах. Наличие больших буферных зон необхо-

embedded system. The embedded system is an open system which exchanges electrons with the reservoirs. To describe electron transport through the open quantum system the Lindblad master equation for the density matrix  $\rho(t)$  of the embedded system is applied,

$$\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = [H, \rho(t)] + i\Pi\rho(t).$$

Here  $H$  is the Hamiltonian of the embedded system, and  $\Pi\rho(t)$  is the non-Hermitian dissipator. The Lindblad master equation describes the time evolution of an open quantum system. Open boundary conditions are taken into account by the non-Hermitian dissipative part,  $\Pi\rho(t)$ , which depends on the temperature and the chemical potentials in the left and right reservoirs. We have demonstrated that the Lindblad master equation is exact in the steady-state regime,  $t \rightarrow \infty$ , provided the buffer zones are large enough to cure the deficiencies of the Born–Markov approximation for treating the interface between the reservoirs and the embedded system.

To find the solution of the Lindblad master equation, we employ the formalism of superoperators in the Liouville–Fock space. In the Liouville–Fock space the density

димо для выполнения борн-марковского приближения, использовавшегося при выводе уравнения Линдблада.

Для нахождения решения уравнения Линдблада мы используем формализм супероператоров в пространстве Лиувилля–Фока. В этом пространстве матрица плотности является вектором, а само уравнение Линдблада приобретает вид уравнения Шредингера. Матрица плотности неравновесного стационарного состояния является решением уравнения  $L|\rho\rangle = 0$ . Здесь  $L$  — это неэрмитов супероператор (лиувиллиан), который выражается через фермионные супероператоры рождения и уничтожения. Зная решение этого уравне-

ния, ток через открытую квантовую систему можно выразить в виде матричного элемента

$$J = \langle I | \hat{J} | \rho \rangle.$$

Здесь  $\hat{J}$  — супероператор тока, а вектор  $\langle I |$  соответствует обычному единичному оператору.

Для приближенного решения уравнения  $L|\rho\rangle = 0$  можно применять стандартные методы квантовой теории многих тел, такие как метод среднего поля, теория возмущений и др. Однако неэрмитовость супероператора  $L$  и неравновесный характер задачи вносят свою специфику в ее решение перечисленными методами.

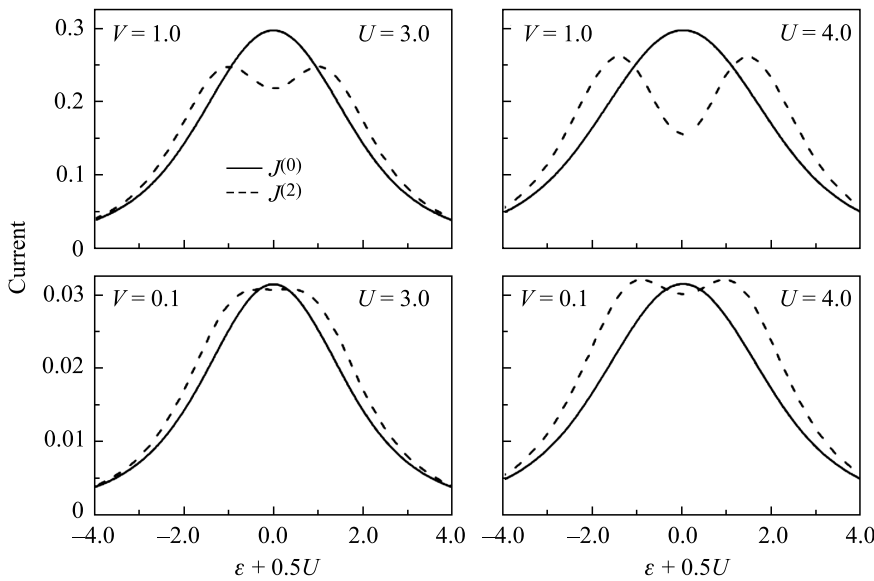


Рис. 2. Результаты расчета тока через модельную систему, описывающую одночастичный уровень с энергией  $\varepsilon$  и параметром кулоновского взаимодействия  $U$  (модель Андерсона)

Fig.2. The current through the model system which describes an electronic level with energy  $\varepsilon$  and the Coulomb interaction parameter  $U$  (the so-called Anderson model)

matrix is a vector, and the Lindblad master equation takes a Schrödinger-like form. The nonequilibrium steady-state density matrix obeys the equation  $L|\rho\rangle = 0$ . Here  $L$  is the non-Hermitian superoperator (Liouvillian) expressed in terms of fermionic creation and annihilation superoperators. Once the solution of this equation is found, the steady-state current through the open quantum system can be computed as the following matrix element:

$$J = \langle I | \hat{J} | \rho \rangle,$$

where  $\hat{J}$  is the current superoperator, and the vector  $\langle I |$  correspond the ordinary unit operator.

To find an approximate solution of the equation  $L|\rho\rangle = 0$ , we can apply methods of quantum many-body theory such as the mean-field approximation, the perturbation theory, etc. However, the nonhermiticity of the Liouvillian and the nonequilibrium character of the problem introduce some special features when applying many-body methods.

An example of application of the approach is given by calculation of the current through the model system (Fig. 2) which describes an electronic level with energy  $\varepsilon$  and the Coulomb interaction parameter  $U$  (the so-called Anderson model). The current was calculated within the mean-field approximation and within the second-order perturbation theory which takes into account the nonequilibrium correlations in the system. As it follows from our calculations, nonequilibrium correlations are most significant in the resonance regime, i.e., when the electron level is close to the chemical potentials of electrodes. Moreover, it is evident from the figure that nonequilibrium correlations diminish with decreasing the applied voltage  $V$ .

For the further development of the suggested approach and its subsequent application to real physical systems, it is essential to combine it with the powerful many-body methods used in quantum chemistry such as, for example, the configuration interaction and coupled cluster methods. The first step in this direction was done in recent paper [5].

Как пример применения предложенного подхода приведем результаты расчета тока через модельную систему (рис. 2), описывающую одночастичный уровень с энергией и параметром кулоновского взаимодействия (модель Андерсона). Ток был рассчитан в приближении среднего поля, а также во втором порядке теории возмущений, учитывающей неравновесные электронные корреляции в системе. Как следует из наших расчетов, неравновесные корреляции наиболее сильно проявляют себя в резонансном режиме, когда положение электронного уровня близко к химическим потенциалам электродов. Кроме того, как видно из рисунка, уменьшение напряжения  $V$  приводит к уменьшению роли неравновесных корреляций.

Дальнейшее развитие предлагаемого подхода связано с его объединением с методами квантовой химии (методом взаимодействующих конфигураций, методом связанных кластеров) и применением этого подхода к физике транспорта электронов в реальных системах. Первый шаг в этом направлении принят в работе [5].

### Список литературы / References

1. *Dzhioev A.A., Kosov D.S. // J. Chem. Phys. 2011. V. 134. P. 044121-12.*
2. *Dzhioev A.A., Kosov D.S. // Ibid. P. 154107-7.*
3. *Dzhioev A.A., Kosov D.S. // Ibid. V. 135. P. 174111-7.*
4. *Dzhioev A.A., Kosov D.S. // J. Phys.: Condens. Matter. 2012. V. 24. P. 225304-12.*
5. *Dzhioev A.A., Kosov D.S. arXiv: 1302.6469 [cond-mat].*