



Edson Vernek

**Propriedades de transporte de sistemas
nanoscópicos: átomos e moléculas**

Tese de Doutorado

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física do
Departamento de Física da PUC-Rio como requisito parcial para
obtenção Do título de Doutor em Física

Orientador : Prof. Enrique Victoriano Anda
Co-Orientador: Prof. Sergio Eduardo Ulloa

Rio de Janeiro
Março de 2007

Edson Vernek

Propriedades de transporte de sistemas nanoscópicos: átomos e moléculas

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física do Departamento de Física do Centro Técnico Científico da PUC-Rio como requisito parcial para obtenção Do título de Doutor em Física. Aprovada pela Comissão Examinadora abaixo assinada.

Prof. Enrique Victoriano Anda

Orientador

Departamento de Física — PUC-Rio

Prof. Sergio Eduardo Ulloa

Co-Orientador

Departamento de Física — PUC-Rio

Prof. Peter Alexander Bleinroth Schulz

UNICAMP

Prof. Antônio José Roque da Silva

Universidade de São Paulo - USP

Prof. Roberto Bechara Muniz

Universidade Federal Fluminense - UFF

Prof. Maria Augusta Davidovich

Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro - PUC-Rio

Prof. José Eugenio Leal

Coordenador Setorial do Centro Técnico Científico — PUC-Rio

Rio de Janeiro, 15 de Março de 2007

Todos os direitos reservados. É proibida a reprodução total ou parcial do trabalho sem autorização da universidade, do autor e do orientador.

Edson Vernek

Graduou-se em licenciatura em física na Universidade Federal Rural do Rio de Janeiro em 2001, mestrou-se em física pela Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro 2003.

Ficha Catalográfica

Vernek, Edson

Propriedades de transporte de sistemas nanoscópicos: átomos e moléculas / Edson Vernek; orientador: Enrique Victoriano Anda; co-orientador: Sergio Eduardo Ulloa. — Rio de Janeiro : PUC-Rio, Departamento de Física, 2007.

v., 132 f.: il. ; 30 cm

1. Tese (doutorado) - Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Departamento de Física.

Inclui referências bibliográficas.

1. Física – Tese. 2. Sistemas Nanoscópicos. 3. Sistemas Fortemente Correlacionados. 4. Eletrônica Molecular. 5. Pontos Quânticos. 6. Efeito Kondo. 7. Transporte. I. Anda, Enrique Victoriano. II. Ulloa, Sergio Eduardo. III. Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro. Departamento de Física. IV. Título.

CDD: 510

Agradecimentos

A Deus, dono de toda a ciência e conhecimento;

Aos meu orientador, Prof. Enrique Victoriano Anda, pela paciência e atenção dispensada na orientação para este trabalho;

Aos coorientadores e colaboradores Sergio Eduardo Ulloa e Nancy Sandler pelo acolhimento na Universidade de Ohio, pela simpatia de sempre e pela coorientação na realização deste trabalho;

À minha esposa, pelo apoio dispensado em todos os momentos;

Aos meus pais e minha família;

À CAPES, à PUC-Rio e à FAPERJ pelos auxílios concedidos, sem os quais este trabalho não poderia ter sido realizado;

Aos meus colegas da PUC-Rio, que muito contribuíram na realização desse trabalho;

Ao pessoal do departamento de Física da PUC-Rio pelo constante apoio, em particular à Márcia, Giza, Majô e ao Julinho;

Finalmente, ao pessoal do Departamento de Física da Universidade de Ohio, pela recepção e apoio.

Resumo

Vernek, Edson; Anda, Enrique Victoriano; Ulloa, Sergio Eduardo.
Propriedades de transporte de sistemas nanoscópicos: átomos e moléculas. Rio de Janeiro, 2007. 132p. Tese de Doutorado — Departamento de Física, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro.

Neste trabalho estudamos o transporte eletrônico em nano-estruturas de átomos e moléculas. Utilizando o método das funções de Green, abordamos o problema das interações elétron-elétron e elétron-fônon e seus efeitos na condutância do sistema. Apresentamos um estudo detalhado do regime onde essas duas interações são simultaneamente importantes e mostramos que elas produzem novos efeitos nas propriedades do sistema. Mostramos que no regime de bloqueamento de Coulomb, o desdobramento de Rabi devido à interação elétron-fônon produz um novo efeito na condutância, que denominamos de *tunelamento Rabi ressonante assistido por fônons*. No regime de Kondo esse desdobramento é responsável por um novo fenômeno, o *efeito Kondo de carga não inteira*.

Palavras-chave

Sistemas Nanoscópicos. Sistemas Fortemente Correlacionados. Eletrônica Molecular. Pontos Quânticos. Efeito Kondo. Transporte.

Abstract

Vernek, Edson; Anda, Enrique Victoriano; Ulloa, Sergio Eduardo.
Transport Properties of Nanoscopic Systems: atoms and molecules. Rio de Janeiro, 2007. 132p. PhD Thesis — Department of Physics, Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro.

In this work we study the electronic transport in atomic and molecular structures. By using the Green's function method, we address the problem of the electron-electron and electron-phonon interactions and their effects on the conductance of the system. We present a detailed study of the regime where these two interactions are simultaneously important and show that they produce new effects on the properties of the system. In the Coulomb blockade regime, the Rabi splitting due to the electron-phonon interaction produces a new effect in the conductance of nanosystem, which we called *Rabi-assisted resonant tunneling*. In the Kondo regime, this splitting is responsible for a new phenomena, the *non integer-charge Kondo effect*.

Keywords

Nanoscopic Systems. Strongly Correlated Systems. Molecular Electronics. Quantum Dots. Kondo Effect. Transport.

Sumário

1	Introdução	14
1.1	Pontos quânticos	15
1.2	Bloqueamento de Coulomb	17
1.3	O efeito Kondo	18
1.4	A interação elétron-fônon em estruturas moleculares	25
1.5	Objetivo	27
2	Modelos de impurezas	29
2.1	Modelo de Anderson não interagente	29
2.2	Modelo de Anderson interagente	34
3	Transporte através de uma molécula diatômica com interação elétron-fônon: Regime Fônon Rabi-assistido	43
3.1	Modelo e método	43
3.2	Resultados numéricos	56
4	Efeito Kondo em pontos quânticos	67
4.1	Ponto quântico simples – U infinito	67
4.2	Além de campo médio	72
4.3	Operadores de Hubbard	76
4.4	Bosons escravos para U finito: única impureza	80
4.5	Regime Kondo de uma molécula de pontos quânticos: Uma abordagem via bosons escravos para U finito	84
5	Interação elétron-fônon e efeito Kondo com carga não inteira	97
5.1	Ponto quântico de dois níveis	98
6	Conclusão	108
6.1	Possíveis avanços	110
A	Método das funções de Green em sistemas de muitos corpos.	119
A.1	Equação de movimento para as funções de Green	119
A.2	Valores esperados	121
A.3	A partícula livre	122
B	Acoplamento antiferromagnético no modelo de Anderson interagente: Transformação de Schrieffer-Wolff	124
C	Funções de Green para uma cadeia linear semi-infinita	129
D	Funções de Green de um ponto quântico com dois níveis interagentes	131

Lista de figuras

- 1.1 (a) Junção de amostras de *AlGaAs* e *GaAs* na formação de um gás de elétrons bidimensional. A figura (b) representa o perfil de energia das amostras separadamente e a Fig. (c) mostra como esse perfil é modificado na interface entre as duas amostras quando elas são crescidas uma sobre a outra. 16
- 1.2 Figura esquemática de um ponto quântico vertical. Ao aplicar uma diferença de potencial entre a fonte e o sorvedouro elétrons são impelidos a fluir através da barreira de potencial criada na interface do material. 17
- 1.3 Confinamento de elétrons num gás bidimensional através de eletrodos. Os eletrodos superior e inferior do lado esquerdo e o da direita controlam a barreira de potencial. O do meio controla a posição dos níveis de energia com relação ao nível de Fermi. Fig. obtida de D. Goldhaber-Gordon *et al*, Nature **391**, 156 (1998). 18
- 1.4 Condutância em função do potencial de porta em um ponto quântico para vários valores de temperatura, no regime de bloqueamento de Coulomb. Os picos na condutância são os chamados picos de bloqueamento de Coulomb. Eles são devido ao tunelamento ressonante através dos estados ϵ_d e $\epsilon_d + U$, quando eles se alinham com o nível de Fermi. Na janela interna é mostrada a lagura do pico de em função da temperatura. (D. Goldhaber-Gordon *et al*, Phys. Rev. Lett. **81**, 5225 (1998). 19
- 1.5 Gráfico esquemático da variação da resistência com a temperatura para amostras de liga magnéticas a baixa densidade e temperatura. Devido ao efeito Kondo, abaixo de certa temperatura, a resistência aumenta com a diminuição da temperatura. 20
- 1.6 Verificação experimental do efeito Kondo em um átomo de Cobalto numa superfície de Cobre (111). a) Medida da condutância diferencial dI/dV em função da voltagem aplicada entre a superfície e a ponta do microscópio, para diversas distâncias laterais entre a ponta e o átomo de Cobalto. b) Imagem topográfica obtida pela varredura da superfície, mantendo a corrente constante. c) Medida da condutância diferencial sobre a superfície, mantendo a altura da ponta constante. Nessa figura, da cor escura para a clara refere-se a dI/dV aumento. Ref.[1], H. C. Manoharan, Nature **403**, 512 (2000). 21
- 1.7 Esquema de uma correlação antiferromagnética entre elétrons localizados numa impureza e elétrons itinerantes. 22
- 1.8 Diagrama esquemático da densidade mostrando os picos de bloqueamento de Coulomb e o pico Kondo no nível de Fermi. Fig. obtida de D. Goldhaber-Gordon *et al*, Phys. Rev. Lett. **81**, 5225 (1998), Ref. [2]. 22
- 1.9 Diagrama esquemático da condutância em função da posição do estado localizado ϵ_d . 23

1.10	Condutância de um PQ em função do potencial de porta para diversas temperaturas. Note que à medida que a temperatura aumenta, o gráfico passa de um platô para uma estrutura de dois picos, correspondendo à passagem do regime Kondo ao de bloqueamento de Coulomb. van der View <i>et al</i> , Science 289 , 2105 (2000), Ref. [3].	23
1.11	Energia total de configuração em função da distância entre os eletrodos. As curvas mostram duas configurações estáveis distintas para a molécula H_2 , dependendo da distância entre os eletrodos. Figura obtida de García <i>et al</i> , Phys. Rev. B 69 041402 (2004).	26
2.1	Densidade de estados constante para elétrons de condução.	33
2.2	Densidade de estados de uma impureza colocada em contato com uma densidade de estados constante. O nível da impureza está fixado em 0.	34
2.3	Densidade de estados em função da energia para diversos valores de temperatura. Note que o pico Kondo vai se extinguindo à medida que a temperatura aumenta. Em unidade de Γ , os parâmetros relevantes são: $D \approx 10^3$, $\epsilon_d = -4$ e $T_K \approx 0.06$.	42
3.1	Representação esquemática do modelo. A interação elétron-fônon conecta os sítios locais ($\epsilon_\alpha < \epsilon_\beta$) via fônons de frequências ω_0 com constante de acoplamento λ .	44
3.2	Esquemas representando as diversas ressonâncias e os níveis envolvidos. As figuras (a), (b,c) e (d) se referem às condições 3.46a, 3.46b e 3.46c respectivamente.	54
3.3	Esquema do desdobramento de Rabi referente à condição de ressonância 3.46a.	55
3.4	a) Demonstração colorida da densidade de estados como função da energia (eixo vertical) e da posição do potencial de porta V_g (eixo horizontal). b) Condutância como função de ϵ_β . Em unidades de $\Delta\epsilon$ os parâmetros são $\hbar\omega_0 = 1.0$, $U = 0.40$ e $\lambda = 0$ (sem interação elétron-fônon).	57
3.5	Demonstração colorida da densidade de estados como função da energia (eixo vertical) e do potencial de porta V_g (eixo horizontal). Em unidades de $\Delta\epsilon$ os parâmetros são: $\hbar\omega_0 = 0.60$ (a), $\hbar\omega_0 = 1.00$ (b) e $\hbar\omega_0 = 1.40$ (c). $U = 0.40$, $\lambda = 0.2$ e $T = 0.0025$ para todas as figuras. No eixo vertical os valores estão deslocados por ϵ_α de modo que o nível ϵ_α apareça sempre em zero.	59
3.6	Condutância em função do potencial de porta V_g . Em unidades de $\Delta\epsilon$ os parâmetros são: $\hbar\omega_0 = 0.60$ (a), $\hbar\omega_0 = 1.00$ (b) e $\hbar\omega_0 = 1.40$ (c). $U = 0.40$ e $T = 0.0025$ para as figuras b e c. Na fig. (a) as curvas para as diversas temperaturas se encontram deslocadas no eixo vertical, por questão de clareza no gráfico..	61
3.7	Densidade de estados em função da energia do potencial de porta V_g . Resultado obtido na aproximação feita na ref. [4]. Em unidades de $\Delta\epsilon$ os parâmetros são: $\hbar\omega_0 = 0.60$, $U = 0.40$ e $T = 0.0025$. No eixo vertical os valores estão deslocados por ϵ_α de modo que o nível α apareça sempre em zero (mesmos parâmetros da figura 3.5a).	62

- 3.8 Carga em função do potencial de porta V_g para diversas temperaturas. Em unidades de $\Delta\epsilon$ os parâmetros são: $\hbar\omega_0 = 0.60$, $U = 0.40$. 63
- 3.9 a) Demonstração colorida da densidade de estados em função da energia (eixo vertical) e da posição do nível β (eixo horizontal). b) Condutância em função de ϵ_β . Em unidades de $\Delta = D/8$ os parâmetros são $\hbar\omega_0 = 1.0$, $U = 0.40$ e $U = 1.4$. 64
- 3.10 a) Representação colorida da densidade de estados em função da energia (eixo vertical) e da posição do nível β (eixo horizontal). b) Condutância como função de ϵ_β . Os parâmetros são os mesmos da figura anterior. Neste caso o nível ϵ_α está um pouco abaixo do nível de Fermi. 65
- 4.1 Representação esquemática de dois pontos quânticos conectados a dois reservatórios de elétrons. 84
- 4.2 Condutância em função do potencial de porta V_g para vários valores de $\Delta\epsilon = \epsilon_\beta - \epsilon_\alpha$, para os QDs em série. A unidade de energia é Γ ; os parâmetros são $U = 12.5$ e $t_{\alpha\beta} = 1$. 90
- 4.3 Condutância em função do potencial de porta V_g para $t_{\alpha\beta} = 0.02t < \Gamma$ (curva preta), $t_{\alpha\beta} = 0.04t = \Gamma$ (curva vermelha), $t_{\alpha\beta} = 0.06t > \Gamma$ (curva verde) e $t_{\alpha\beta} = 0.10t > \Gamma$ (curva azul) para os QDs em série e degenerados ($\Delta\epsilon = 0$). Os parâmetros são $U = 0.5t = 12.5\Gamma$ e $t' = 0.2t$. As linhas contínuas correspondem aos dados obtidos pelo método dos bosons escravos e as linhas tracejadas aos obtidos pelo método do aglomerado embebido. 91
- 4.4 Condutância em função do acoplamento inter-dot, $t_{\alpha\beta}$, para os PQs em série e degenerados ($\Delta\epsilon = 0$). Os parâmetros são $U = 12.5\Gamma$. A linha contínua é a função $(2\Gamma/t_{\alpha\beta})^2/[1 + (\Gamma/t_{\alpha\beta})^2]^2$ (veja Ref. [5]), os círculos (o) são os resultados obtidos com bosons escravos e os triângulos (Δ) com o método do aglomerado embebido. 92
- 4.5 Condutância em função do potencial de porta V_g para vários valores de $t_{\alpha\beta}$, para os QDs em paralelo e degenerados ($\Delta\epsilon = 0$). Os parâmetros são $U = 12.5\Gamma$ e $t' = 0.25t$. 92
- 4.6 Densidade de estados (eixo da esquerda) como função da energia ω para uma configuração em paralelo. Ao longo do eixo da direita estão indicados os diversos valores de V_g/U das diferentes curvas (deslocadas verticalmente). Mesmos parâmetros da Fig. 4.5 com $t_{\alpha\beta} = 2\Gamma$. 94
- 4.7 Condutância para uma configuração em paralelo para o caso não degenerado. Os parâmetros são $U = 12.5\Gamma$, $\Delta\epsilon = 0.075\Gamma$, $t' = 0.1t$ e $t_{\alpha\beta} = 0$. 96
- 5.1 Representação esquemática de um ponto quântico com dois níveis acoplados a elétrons de condução. 98
- 5.2 Densidade de estados em função da energia no regime Kondo. Em unidades de Γ , os valores dos parâmetros são: $V_g = 0$ níveis ϵ_α e ϵ_β são -15.0 e -5.0 respectivamente. A temperatura é $T = 0.005$. Na janela dentro da figura mostramos uma ampliação do pico Kondo. As diversas curvas estão identificadas na legenda dentro da figura. 103

- 5.3 Valores esperados por spin em função do potencial de porta V_g . Em unidades de Γ , os valores dos parâmetros são $T = 0.001$ e as posições originais dos níveis são $\epsilon_\alpha^0 = -15.0$ e $\epsilon_\beta^0 = -5.0$. As diversas curvas estão identificadas na legenda dentro da figura 104
- 5.4 Esquema representando a posição nos níveis em relação ao nível de Fermi para o regime Kondo de carga não inteira. 104
- 5.5 Densidade de estados em função da energia. Para $V_g = 6.0$ os níveis ϵ_α e ϵ_β tem valores -9.0 e 1.0 respectivamente. A identificação das diversas curvas está mostrada na figura. Na janela do gráfico está mostrada uma ampliação do pico Kondo. As energias são dadas em unidades de Γ 105
- 5.6 Pico Kondo no regime de Kondo de carga não inteira, para diversos valores da temperatura. Os parâmetros são os mesmos usados na Figura 5.5, Na legenda da figura, as temperaturas são dadas em unidade de Γ . 106
- 5.7 . Densidade de estados no regime de desdobramento de Rabi para diferentes potenciais de porta V_g . Para $V_g = 7.0$, painel (a), ambos os picos secundários estão por cima do nível de Fermi. Para $V_g = 2.0$, painel (b), apenas o nível secundário inferior está por baixo de ϵ_F . A linha vertical em $V_g = 0$ está sobre o nível de Fermi com um guia visual. Note que em ambos os casos não se desenvolve o pico no nível de Fermi. Os demais parâmetros são os mesmos usados na Figura 5.5, Na legenda da figura, as temperaturas são dadas em unidade de Γ . 107
- C.1 Representação de uma cadeia linear semi-infinita no modelo tight-binding. 129
- C.2 Diagrama de renormalização da cadeia linear semi-infinita. 129

Lista de tabelas

- 2.1 Estados eletrônicos de uma impureza de Anderson. As energias são para o caso de ausência de campo magnético. 35

Tendo o homem adquirido qualquer conhecimento e não se esforçado em compartilhar o que aprendera, de maneira nenhuma terá cumprido plenamente o seu papel como cidadão.

E. Vernek