

ТУННЕЛЬНАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ СИЛЬНОКОРРЕЛИРОВАННЫХ СИСТЕМ

С.Н.Молотков, С.С.Назин, И.А.Рыжкин

*Институт физики твердого тела РАН
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 22 июня 1994 г.

Показано, что при туннелировании между двумя сильнокоррелированными системами кулоновское отталкивание существенно перенормирует туннельный матричный элемент, что приводит при половинном заполнении (в диэлектрической фазе) к запиранию туннельного тока при любом знаке напряжения. При произвольном заполнении туннельная проводимость в диэлектрической фазе имеет место лишь в меру отличия заполнения от половинного. Обсуждаются экспериментальные следствия для СТМ изображений на примере систем EuX с f -оболочками.

При описании сканирующей туннельной микроскопии (СТМ) и спектроскопии исходят из формулы Бардина–Терсофа–Хамана [1, 2], которая для туннельного тока между двумя слабосвязанными подсистемами (иглой и кристаллом) дает

$$I = \frac{2\pi e}{\hbar} \int d\varepsilon |T_{LR}|^2 \rho_L(\varepsilon) \rho_R(\varepsilon) [f_L(\varepsilon) - f_R(\varepsilon)], \quad (1)$$

где T_{LR} – туннельный матричный элемент (условно между левой (L) и правой (R) системами), $\rho_{L,R}(\varepsilon)$ – локальные плотности состояний для систем без учета их взаимодействия между собой, $f_{L,R}$ – фермиевские функции распределения с химпотенциалами $\mu_L - \mu_R = eV$ (V – приложенное напряжение).

В данной работе будет показано, что если туннелирование происходит между системами, где (в одной или обеих) имеется сильное межэлектронное взаимодействие, происходит существенная перенормировка туннельного матричного элемента (кроме изменения плотности состояний по сравнению с одночастичной при учете взаимодействия), которое может приводить к запиранию туннельного тока.

Для описания туннелирования удобно воспользоваться методом сильной связи. Учет межэлектронного взаимодействия будем проводить в рамках метода вспомогательных бозонов ("slave-boson" подхода).

Спектр в изолированных L и R системах будем описывать гамильтонианом Хаббарда [3]

$$\hat{H} = \sum_{i\sigma} \varepsilon_{i\sigma} \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{i\sigma} + \sum_{ij\sigma} t_{ij} \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{j\sigma} + U \sum_i \hat{n}_{i\sigma} \hat{n}_{i-\sigma}. \quad (2)$$

Чтобы не загромождать выкладки, индексы L, R опускаем там, где это не приводит к недоразумению. $\hat{f}_{i\sigma}^+$ – операторы рождения электронов на узлах, $\varepsilon_{i\sigma}$ – узельная энергия, t_{ij} – интеграл перескока внутри L или R систем, U – энергия кулоновского отталкивания на узле.

Туннельная связь между системами описывается гамильтонианом

$$T = \sum_{ij\sigma} (T_{LRij} \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{j\sigma} + \text{э.с.}), \quad (3)$$

где T_{LRij} – туннельный матричный элемент между L и R системами, индекс i относится к узлам L , а j – к узлам R системы.

Оператор туннельного тока имеет стандартный вид

$$\hat{I} = \frac{ie}{\hbar} \sum_{ij\sigma} (T_{LRij} \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{j\sigma} - \text{э.с.}) \quad (4)$$

Для учета взаимодействия удобно воспользоваться одним из вариантов "slave-boson" метода, предложенным в работе [4]. В этом методе для описания четырех атомных состояний узла вводятся вспомогательные бозонные поля. Физические состояния на узлах $|\sigma i\rangle$ получаются действием бозонных и новых фермионных операторов на вакуумные состояния $|vac\rangle$. Физические состояния получаются следующим образом:

- 1) состояния пустого узла $|\sigma i\rangle = \hat{e}_i^+ |vac\rangle$,
- 2) состояния однократно заполненного узла $|\sigma i\rangle = \sum_{\sigma'} \hat{c}_{i\sigma'}^+ \hat{p}_{i\sigma'\sigma}^+ |vac\rangle$,
- 3) состояния двукратно занятого узла $|\uparrow\downarrow i\rangle = \hat{c}_{i\uparrow}^+ \hat{c}_{i\downarrow}^+ \hat{d}_i^+ |vac\rangle$.

Имея в виду дальнейшие приложения к спин-зависящему туннелированию, будем использовать вращательно-инвариантную формулировку "slave-boson" метода [5].

Бозонные операторы \hat{e}^+ , \hat{p}^+ , \hat{d}^+ подчиняются коммутационным соотношениям, а новые фермионные \hat{c}^+ – антикоммутационным. Для исключения лишних состояний и сохранения эквивалентности гамильтониана в новом представлении исходному гамильтониану вводятся дополнительные связи на бозонные и фермионные операторы, которые имеют вид [5]

$$\hat{Q} = \hat{e}_i^+ \hat{e}_i + \text{tr}(\hat{p}_i^+ \hat{p}_i) + \hat{d}_i^+ \hat{d}_i, \quad (5)$$

$$\text{tr}(\hat{\tau}_\mu \hat{p}_i^+ \hat{p}_i) + 2\delta_{\mu,0} \hat{d}_i^+ \hat{d}_i = \sum_{\sigma\sigma'} \hat{c}_{i\sigma}^+ \hat{\tau}_\mu^{\sigma\sigma'} \hat{c}_{i\sigma'},$$

где $\hat{\tau}_\mu$ – базисные матрицы размером 2×2 (единичная ($\mu = 0$) и три матрицы Паули $\mu = 1, 2, 3$).

В "slave-boson" представлении исходные гамильтонианы становятся квадратичными по новым фермионным операторам

$$\hat{H} = \sum_{i\sigma} \epsilon_{i\sigma} \hat{c}_{i\sigma}^+ \hat{c}_{i\sigma} + \sum_{ij\sigma\sigma'\sigma_1} t_{ij} (\hat{c}_{i\sigma}^+ \hat{Z}_{i\sigma\sigma_1}^+) (\hat{Z}_{j\sigma_1\sigma'} \hat{c}_{j\sigma'}) + U \sum_i \hat{d}_i^+ \hat{d}_i. \quad (6)$$

Оператор туннельного тока приобретает следующий вид

$$\hat{I} = \frac{ie}{\hbar} \sum_{ij\sigma\sigma_1\sigma'} [T_{LRij} (\hat{c}_{i\sigma}^+ \hat{Z}_{i\sigma\sigma_1}^+) (\hat{Z}_{Rj\sigma_1\sigma'} \hat{c}_{j\sigma'}) - \text{э.с.}]. \quad (7)$$

Операторы $\hat{Z}_{i,j\sigma_1\sigma}$ вводятся для сохранения эквивалентности операторов в новом представлении и имеют вид [4,5]

$$\hat{Z}_i = [(1 - \hat{d}_i^+ \hat{d}_i) \hat{\tau}_0 - \hat{p}_i^+ \hat{p}_i]^{-1/2} (\hat{e}_i^+ \hat{p}_i + \hat{p}_i^+ \hat{d}_i) [(1 - \hat{e}_i^+ \hat{e}_i) \hat{\tau}_0 - \hat{p}_i^+ \hat{p}_i]^{-1/2}. \quad (8)$$

Числитель описывает сохранение числа бозонов при перескоках с узла на узел и определяется однозначно (не содержит никакого операторного произвола). Первое слагаемое отвечает процессу "однократно занятый узел → пустой

узел", второе – процесс "двукратно занятый узел → однократно занятый узел". Нормировочные множители содержат операторный произвол и определяются таким образом, чтобы "slave-boson" метод давал точный ответ в приближении свободных электронов ($U = 0$) и для изолированных центров (атомный предел – $t_{ij} = 0$, U при этом произвольное).

Туннельный ток вычисляется как среднее от оператора тока (7). Физические средние даются формулой

$$\langle \dots \rangle = \int [D\hat{c}^+] [D\hat{c}] [D\hat{p}_\mu] [D\hat{e}] [D\hat{d}] [D\lambda^{(1)}] [D\lambda_\mu^{(2)}], \quad (9)$$

$$(\dots) \exp \left\{ i \int_K dt [L_L(t) + L_R(t) - H_L(t) - H_R(t) - T(t)] \right\},$$

для краткости введены обозначения $[D\hat{c}^+] \equiv [D\hat{c}_L^+] [D\hat{c}_R^+]$, и т.д., $\lambda^{(1)}$ и $\lambda_\mu^{(2)}$ – лагранжевы множители, которые учитывают связи (5) (см. детали в [4,5]). $\hat{L}_{L,R}(t)$ – лагранжианы невзаимодействующих L и R систем, которые имеют вид

$$\hat{L}_{L,R}(t) = \sum_{i\sigma\sigma'} \hat{c}_{L,Ri\sigma}^+(t) \left\{ \left[i \frac{\partial}{\partial t} - \mu_{L,R} + \lambda_{i0}^{(2)} \right] \delta_{\sigma\sigma'} + \lambda_i^{(2)} \hat{\tau}_\mu^{\sigma\sigma'} \right\} \hat{c}_{L,Ri\sigma'}(t). \quad (10)$$

Приложенное напряжение считаем включенным в химпотенциалы $\mu_{L,R}$, так что $\mu_L - \mu_R = eV$. Интегрирование в экспоненте ведется по замкнутому временному контуру [6–9]

$$\int_K dt \approx \int_{-\infty}^{+\infty} dt + \int_{+\infty}^{-\infty} dt = \eta_\alpha \int_{-\infty}^{+\infty} dt_\alpha$$

где $\alpha = 1, 2$, $\eta_1 = 1$, $\eta_2 = -1$.

Разлагая экспоненту до первого порядка по оператору туннелирования между системами, находим для туннельного тока

$$I = \frac{e}{\hbar} \sum_{\substack{ij\sigma\sigma_1\sigma' \\ i'j'\sigma_2\sigma_3\sigma_4}} \int ds T_{LRij} T_{RLj'i'} [G_{\substack{Lii' \\ \sigma\sigma_1 \\ \sigma_3\sigma_4}}^{+-}(t, s) G_{\substack{Rjj' \\ \sigma_1\sigma' \\ \sigma_2\sigma_3}}^{-+}(s, t) - \text{э.с.}]; \quad (11)$$

верхние индексы у функций Грина (ФГ) относятся к временным контурам, сами ФГ определены следующим образом:

$$G_{\substack{Lii' \\ \sigma\sigma_1 \\ \sigma_3\sigma_4}}^{+-}(t, s) = - \langle \hat{c}_{Lis}^+(t) \hat{Z}_{Lis\sigma_1}^+(t) \hat{Z}_{Li'\sigma_3\sigma_4}(s) \hat{c}_{Li'\sigma_4}(s) \rangle, \quad (12)$$

$$G_{\substack{Rjj' \\ \sigma_1\sigma' \\ \sigma_2\sigma_3}}^{-+}(s, t) = \langle \hat{Z}_{Rj\sigma_1\sigma}(t) \hat{c}_{Rj\sigma}(t) \hat{c}_{Rj'\sigma_2}^+(s) \hat{Z}_{Rj'\sigma_2\sigma_3}^+(s) \rangle.$$

Формула (11) может быть записана в более компактном виде

$$I = \frac{e}{\hbar} \int ds \text{tr} \{ \hat{T}_{RL} \hat{G}_L^{+-}(t, s) \hat{T}_{LR} \hat{G}_R^{-+}(s, t) - \text{э.с.} \}, \quad (13)$$

где tr означает суммирование по всем индексам. В приближении седловой точки по бозонным переменным фурье-образы ФГ могут быть представлены в виде

$$G_{\substack{Lii' \\ \sigma\sigma_1 \\ \sigma_3\sigma_4}}^{\pm\mp}(\epsilon) = 2\pi i \rho_{\substack{Lii' \\ \sigma\sigma_4}}(\epsilon) (Z_{Lis\sigma_1}^+ Z_{Li'\sigma_3\sigma_4}) \left\{ \frac{f_1(\epsilon)}{f_1(\epsilon) - 1} \right\}, \quad (14)$$

$$\rho_{\sigma\sigma_4}^{Lii'}(\epsilon) = \frac{1}{\pi} \text{Im} \{ G_{\sigma\sigma_4}^{R,ii'}(\epsilon) \}.$$

Матрица плотности $\hat{\rho}$ и запаздывающая ФГ \hat{G}_R определяются из решения эффективного одночастичного гамильтониана (6), в котором бозонные операторы заменены на их средние в седловой точке. Запаздывающая ФГ \hat{G}_R содержит только новые фермионные операторы. Окончательная формула для туннельного тока приобретает вид

$$I = \frac{e}{\hbar} \int d\epsilon \text{tr} \{ \hat{T}_{RL} \hat{\rho}_L(\epsilon) \hat{T}_{LR} \hat{\rho}_R(\epsilon) \} [f_L(\epsilon) - f_R(\epsilon)], \quad (15)$$

где введены обозначения

$$\hat{T}_{LRij}^{\sigma\sigma'} = \sum_{\sigma_1} Z_{Li\sigma\sigma_1}^+ T_{LRij} Z_{Rj\sigma_1\sigma'}$$

Формула (15) имеет такой же вид, как и в одночастичной задаче (см. также [10]) (1), но вместо исходных туннельных матричных элементов сюда входят их перенормированные значения. Плотности состояний также зависят от бозонных переменных через спектр.

Рассмотрим туннелирование между металлом, где взаимодействие отсутствует (R -система), и металлом (L -система) с половинным заполнением, где велико межэлектронное взаимодействие. В этом случае $Z_R = 1$, а Z_L имеет вид [4]

$$Z_L = \frac{(ep_\sigma + dp_{-\sigma})}{[(p_\sigma^2 + e^2)(p_{-\sigma}^2 + d^2)]^{1/2}}, \quad Z_L = 8d^2(1 - 2d^2).$$

Вблизи поверхности Z_L слегка отличаются от их значений в объеме для однородной системы, но это обстоятельство несущественно для качественного вывода. При половинном заполнении при некотором критическом значении взаимодействия [4,11] $U = U_c$ (U_c порядка ширины зоны в исходной металлической фазе, для кубической решетки $U_c = 8t$) происходит фазовый переход металл-изолятор. Вблизи перехода со стороны металлической фазы имеет место соотношение [11]

$$d^2 = \frac{1}{4} \left(1 - \frac{U}{U_c}\right), \quad Z_L = 1 - \left(\frac{U}{U_c}\right)^2.$$

Туннельный ток обращается в нуль в точке перехода и остается нулевым в диэлектрической фазе (при половинном заполнении) при любом знаке напряжения. В диэлектрической фазе ($U > U_c$) множители, перенормирующие туннельный матричный элемент, принимают вид [11]

$$Z_L = 2\delta \sqrt{\frac{U/U_c}{U/U_c - 1}},$$

где δ - отклонение заполнения от половинного. Туннельная проводимость имеет место в диэлектрической фазе лишь в меру отклонения заполнения от половинного. При бесконечно большом отталкивании вероятность двукратного заполнения (так же как и пустых узлов) равна нулю. Однако при отклонении заполнения от половинного ширина зоны (и соответственно величина

туннельного матричного элемента) отлична от нуля и имеет порядок $t \cdot \delta$. Проводимость осуществляется либо дырками ($\delta < 0$), либо электронами ($\delta > 0$).

Туннелирование в хаббардовский изолятор принципиально отличается от туннелирования в обычный зонный диэлектрик. В случае зонного изолятора при положительном напряжении на игле (рис.1a) происходит туннелирование из заполненной валентной зоны в пустые состояния выше уровня Ферми в игле. При отрицательном напряжении на игле (рис.1b) туннелируют электроны из-под уровня Ферми в игле в пустые состояния в зоне проводимости.

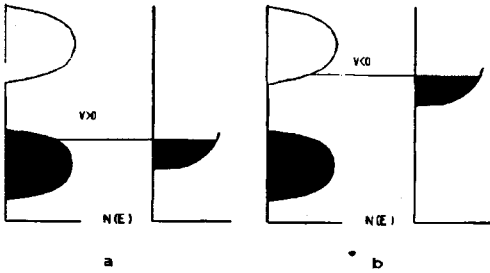


Рис.1

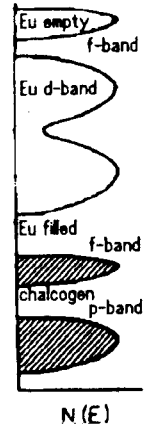


Рис.2

Формально туннелирование в хаббардовский изолятор выглядит таким же образом, если под валентной зоной и зоной проводимости понимать расщепленную кулоновским отталкиванием наполовину заполненную исходную зону. Однако такая простая картина не учитывает перенормировку туннельного матричного элемента, которая по-существу отражает следующее. Хорошими квазичастицами (в "slave-boson" методе) являются "новые одночастичные фермионы" (описываемые операторами $\hat{c}_{i\sigma}$). Туннелирует реальная частица (фермион, описываемый операторами $\hat{f}_{i\sigma}$), которая является комбинацией "slave-boson" и "одночастичного фермиона". При туннелировании вместе с "одночастичным фермионом" должны протуннелировать и бозонные степени свободы. Именно это обстоятельство учитывается перенормированным туннельным матричным элементом.

Качественно причина запираания туннельного тока состоит в следующем. При туннелировании в пустую хаббардовскую зону необходимо создание двукратно заполненного узла, вероятность такого процесса мала. В случае туннелирования из заполненной зоны в хаббардовском изоляторе необходимо создание пустого узла (поскольку, как видно из формул (12), (13), усреднение проводится по равновесному состоянию двух не взаимодействующих L - и R -систем). Создание пустого узла автоматически означает создание в каком-то месте системы двукратно заполненного узла. Поэтому туннельный ток заперт и при туннелировании из заполненной зоны. В случае неполноинного заполнения туннельная проводимость отлична от нуля лишь в меру отклонения заполнения от точно половинного.

Выход за рамки приближения седловой точки по бозонным степеням свободы (учет флуктуаций) приведет, по-видимому, к отличной от нуля проводимости в меру этих флуктуаций и при строго половинном заполнении.

Для экспериментальной проверки существуют удобные объекты – полупроводники EuX ($X=\text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$), зонная структура которых качественно изображена на рис.2. Валентная зона образована из p -состояний халькогена, пустая зона проводимости – из d -состояний Eu . В запрещенной зоне находится наполовину заполненная хаббардовская зона, образованная f -состояниями Eu [12]. Атомы Eu можно рассматривать как кондо-решетку в среде атомов халькогена (в этом случае $Z_L \simeq \exp(-U/t)$ [13]). При позиционировании иглы туннельного микроскопа над атомами халькогена туннельный ток и изображение атомов должны наблюдаться при положительном напряжении на игле. В случае позиционирования иглы над атомами Eu туннельный ток и изображение атомов Eu будут отсутствовать как при положительном, так и отрицательном напряжении. Таким образом, должен отсутствовать контраст СТМ изображений характерный для одночастичного туннелирования (как, например это имеет место на поверхности $\text{GaAs}(110)$).

Полученный результат может быть пояснен таким образом. При сильном хаббардовском отталкивании вблизи половинного заполнения удобно переписать гамильтониан, спроектировав действие операторов на состояния без двукратно заполненных узлов. Такой подход применялся при описании RVB-состояния (Baskaran, Zou, Anderson [14]). Слагаемые в гамильтониане, описывающие перескоки ($t_{ij} \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{j\sigma}$) преобразуются в $t_{ij}(1 - \hat{n}_{i-\sigma}) \hat{f}_{i\sigma}^+ \hat{f}_{j\sigma}(1 - \hat{n}_{j-\sigma})$. При точно половинном заполнении усреднение дает эффективный интеграл перескока ($t_{ij}^{eff} = t_{ij} \delta$), что согласуется с нашим результатом.

Вычисление туннельной проводимости для RVB-состояния в работе Anderson, Zou [15] показывает, что последняя пропорциональна приложенному напряжению (туннельный ток пропорционален квадрату напряжения) и осуществляется за счет неупругого распада квазичастиц (holon, spinon) в доступный фазовый объем при туннелировании, пропорциональный напряжению. Поэтому туннельная проводимость при $V \rightarrow 0$, обычно понимаемая как $\sigma = dI/dV|_{V \rightarrow 0}$, стремится к нулю, то есть имеет место запираение тока.

Один из авторов (С.Н.М.) благодарит С.В.Иорданского и Ю.В.Копеева за полезные дискуссии.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках проекта 94-02-04843 и Международному научному фонду, грант № RE 8000.

-
1. J.Bardeen, Phys. Rev. Lett. 6, 57 (1961).
 2. J.Tersoff and D.R.Hamann, Phys. Rev. Lett. 50, 1998 (1983).
 3. J.Hubbard, Proc. Roy. Soc. A276, 238 (1963).
 4. G.Kotliar and A.F.Ruckenstein, Phys. Rev. Lett. 57, 1362 (1986).
 5. T.Li, P.Wölfle, and P.J.Hirshfeld, Phys. Rev. B40, 6817 (1989).
 6. J.Schwinger, J. Math. Physics 2, 407 (1961).
 7. P.M.Bakshi and K.T.Mahanthappa, J. Math. Physics 4, 1 (1963); 4, 12 (1963).
 8. Л.В.Келдыш, ЖЭТФ 47, 1515 (1964) (Sov. JETP 20, 1018 (1965)).
 9. L.Y.Chen and C.S.Ting, Phys. Rev. B43, 2097 (1991).
 10. C.Caroli, R.Combescot, P.Nozieres, and D.Saint-James, J. Phys. C (Solid State Phys.) 5, 21 (1972).
 11. M.Lavagna, Int. J. Mod. Phys. 6&7, 885 (1991).
 12. E.Kaldis, A.Schlegel, P.Wachter, and C.Zurcher, J. Magn. and Magnet. Mat. 3, 1 (1976).
 13. V.Dorin, P.Schottman, Phys. Rev. B46, 10 800 (1992).
 14. G.Baskaran, Z.Zou, and P.W.Anderson, Solid State Commun. 63, 973 (1987).
 15. P.W.Anderson and Z.Zou, Phys. Rev. Lett. 60, 132 (1988).