

ШУМОВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ПОВЕРХНОСТНЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ ПОСРЕДСТВОМ СТМ

С.Н.Молотков

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

Поступила в редакцию 8 октября 1992 г.

Показано, что спектр флуктуаций тока в сканирующем туннельном микроскопе содержит δ -функциональный вклад на частотах локализованных поверхностных возбуждений.

В данной статье обращается внимание на тот факт, что частотный спектр флуктуаций (шума) туннельного тока может служить для определения частоты локализованных поверхностных возбуждений (например, собственных частот адсорбатов или колебательных частот отдельных фрагментов органических молекул). Данное обстоятельство позволяет использовать сканирующий туннельный микроскоп (СТМ) как шумовой спектрометр для определения одновременно частоты и положения на поверхности локализованных возбуждений. К настоящему моменту уже имеются примеры успешного использования СТМ как шумового спектрометра для обнаружения прецессии отдельных спинов на поверхности (см. ^{1,2}).

Рассмотрим следующую систему: кристалл, игла туннельного микроскопа и локализованное на некотором узле (или нескольких узлах) вблизи поверхности кристалла возбуждение. Гамильтониан системы запишем в виде

$$H = H_c + H_t + \sum_{\substack{i, n, \sigma \\ i', n'}} [T_{i'n'\sigma}^{in\sigma} c_{1in\sigma}^+ c_{2i'n'\sigma} + \text{э.с.}] + \\ + \sum_n \hbar \omega_n b_n^+ b_n + \sum_{i, n} [\lambda_{in} b_n^+ c_{1in\sigma}^+ c_{1in\sigma} + \text{э.с.}] \quad (1)$$

Первые два члена описывают спектр невзаимодействующих кристалла и иглы. Третий отвечает за туннелирование между иглой и кристаллом с матричным элементом $\hat{T} = \{T_{i'n'\sigma}^{in\sigma}\}$, который описывает перескоки с орбитали $\varphi_{1n\sigma}(\mathbf{R} - \mathbf{R}_i)$ в кристалле на орбиталь $\varphi_{1n'\sigma}(\mathbf{R} - \mathbf{R}_{i'})$ в игле (n, n' - тип орбиталей - s, p или d ; σ - спиновый индекс), $\hat{c}_{1,2} = \{c_{1,2in\sigma}^+\}$ - операторы рождения электронов (индекс 1 относится к кристаллу, 2-к игле). Два последних члена описывают энергию n -моды локализованного колебания и его взаимодействие с электронами на узлах кристалла.

Наша задача будет сводиться к вычислению коррелятора ток-ток, который содержит информацию о спектре шума. Коррелятор ток-ток определим стандартным образом

$$(e/\hbar)^2 \langle \hat{I}(t) \hat{I}(t') \rangle = \\ = \text{Sp} \langle (\hat{T} \hat{c}_1^+(t) \hat{c}_2(t) - \hat{c}_2^+(t) \hat{c}_1(t) \hat{T}^+) (\hat{T} \hat{c}_1^+(t') \hat{c}_2(t') - \hat{c}_2^+(t') \hat{c}_1(t') \hat{T}^+) \rangle, \quad (2)$$

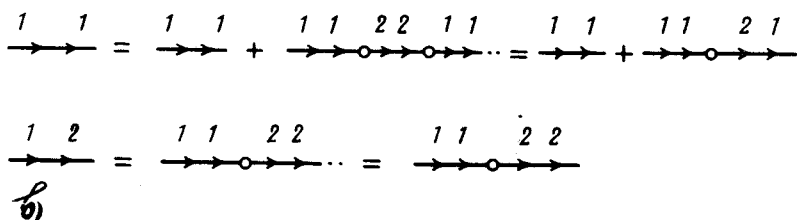
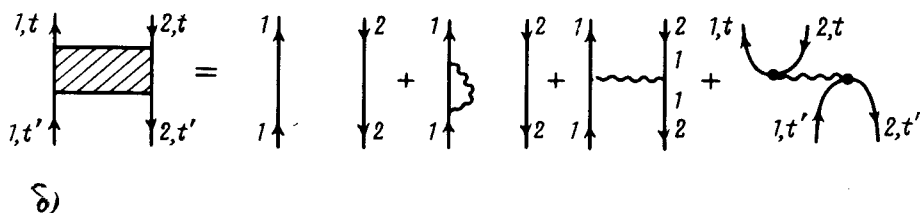
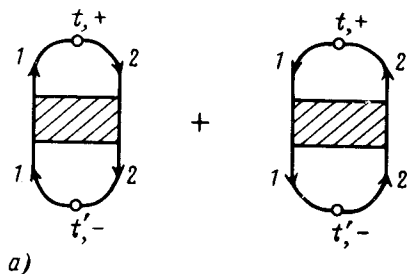
Sp - проводится по всем орбитальным и узельным индексам. Усреднение проводится по состоянию системы с учетом всех взаимодействий (туннельного

и с локальной модой). Как следует из формулы (2) коррелятор может быть выражен через двухчастичные келдышевские функции Грина (ФГ) ³

$$\hat{K}_1(t, t') = \langle T_c(\hat{c}_1^+(t)\hat{c}_2(t)\hat{c}_2^+(t')\hat{c}_1(t')) \rangle$$

$$\hat{K}_2(t, t') = \langle T_c(\hat{c}_2^+(t)\hat{c}_1(t)\hat{c}_1^+(t')\hat{c}_2(t')) \rangle \quad (3)$$

путем выделения компонент K_1^{+-} , K_2^{+-} (поскольку в (2) отсутствует символ временного упорядочения T_c на временном контуре) и взятия Sp с матрицами туннельного взаимодействия. Этот факт удобно представить в графическом виде (рис.1а).



Свободные линии двухчастичных ФГ замыкаются через матрицу туннельного взаимодействия (кружок на рис.1а). Заштрихованный квадрат содержит

все взаимодействия для туннелирующих электронов. Уравнение для двухчастичной ФГ в низшем порядке по взаимодействию с локальной модой могут быть представлены в виде (рис.1б).

Каждая линия на рис.1б представляет собой матрицу по келдышевским индексам. Волнистая линия соответствует ФГ локальной моды. Для получения коррелятора ток-ток необходимо выделить из диаграмм компоненты с внешними индексами + и - на временном контуре. Обратим внимание на то, что каждая линия представляет собой полную ФГ, в том смысле, что содержит туннельное взаимодействие во всех порядках по \hat{T} (рис.1б).

Первая диаграмма на рис.1б описывает флуктуации тока без учета взаимодействия с локальной модой. Для нас представляет интерес последняя диаграмма, которая дает δ -функциональный вклад в спектр шума на частотах ω_n .

Келдышевская ФГ иглы и кристалла с учетом туннельной связи может быть представлена в виде

$$\hat{G}^{\pm} = \begin{pmatrix} \hat{G}_{11}^{\pm} & \hat{G}_{12}^{\pm} \\ \hat{G}_{21}^{\pm} & \hat{G}_{22}^{\pm} \end{pmatrix} = \frac{\hat{I}}{\hat{I} - \hat{g}^R \hat{T}} \hat{g}^{\pm} \frac{\hat{I}}{\hat{I} - \hat{T} + \hat{g}^A},$$

$$\hat{g}^{R,A} = \begin{pmatrix} g_1^{R,A} & 0 \\ 0 & g_2^{R,A} \end{pmatrix}, \hat{g}_{1,2}^{R,A} = \frac{1}{\omega - \hat{H}_{c,t} \pm i0}, \quad \hat{T} = \begin{pmatrix} 0 & \hat{T} \\ \hat{T}^* & 0 \end{pmatrix}, \quad (4)$$

$$\hat{g}_{1,2}^{\pm}(\omega) = -2\pi i \hat{\rho}_{1,2}^0(\omega) \begin{cases} f_{1,2}(\omega) \\ f_{1,2}(\omega) - 1 \end{cases}, \hat{\rho}_{1,2}^0(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im}\{\hat{g}_{1,2}^R(\omega)\},$$

здесь $\hat{\rho}_{1,2}^0(\omega)$ - матрица парциальных плотностей состояний для невзаимодействующих кристалла и иглы, $f_{1,2}$ - функции распределения для кристалла и иглы, соответственно.

Спектр флуктуаций без учета взаимодействия с локальной модой после фурье-преобразования может быть представлен в виде

$$\langle \hat{I}\hat{I} \rangle_{\omega} = -(e/\hbar)^2 \int \text{Sp}\{\hat{T}\hat{G}_{11}^+(\epsilon + \omega)\hat{T}^+ \hat{G}_{22}^-(\epsilon) + \hat{T}\hat{G}_{11}^-(\epsilon + \omega)\hat{T}^+ \hat{G}_{22}^+(\epsilon)\} d\epsilon / 2\pi. \quad (5)$$

В отсутствие приложенного напряжения ($f_1 = f_2 = f$), формула (8) упрощается и дает

$$\langle \hat{I}\hat{I} \rangle_{\omega} = -(e/\hbar)^2 \int \text{Sp}\{\hat{T}\hat{\rho}_{11}^+(\epsilon + \omega)\hat{T}^+ \hat{\rho}_{22}^-(\epsilon)\} [2 - f(\epsilon) - f(\epsilon + \omega) + f(\epsilon)f(\epsilon + \omega)] d\epsilon / 2\pi \simeq$$

$$\simeq (e/\hbar)^2 \text{Sp}\{\hat{T}\hat{\rho}_{11}^+(\epsilon_F)\hat{T}^+ \hat{\rho}_{22}^-(\epsilon_F)\} \text{cth}(\omega/2T), \quad (6)$$

$$\hat{\rho}_{11,22}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \{\hat{G}_{11,22}^R(\omega)\},$$

ϵ_f - энергия ферми системы (считалось, что $\omega \ll \epsilon_F$). При наличии внешнего напряжения V , в формулах (5), (6) необходимо провести замену $f_1(\epsilon) \rightarrow f_1(\epsilon + eV)$. Выражение (6) представляет собой, по существу, формулу Найквиста. Величина в фигурных скобках является проводимостью туннельного промежутка.

Вклад в спектр флуктуаций от последней диаграммы (рис.1б) может быть приведен к виду

$$\delta < \hat{I} \hat{I} >_{\omega} =$$

$$i(e/\hbar)^2 \text{Sp} \{ 2\hat{T}\hat{\Pi}_{11,21}^{+-}(\hat{D}^+(\omega) + \hat{D}^-(\omega))\hat{T}^+ \hat{\Pi}_{11,21}^{+-} + 2[\hat{T}\hat{\Pi}_{11,21}^{+-}\hat{D}^+(\omega)\hat{T}^+ \hat{\Pi}_1 + \\ + \hat{T}\hat{\Pi}_2\hat{D}^+(\omega)\hat{T}^+ \hat{\Pi}_{11,12}^{+-}] + [\hat{T}\hat{\Pi}_{11,21}^{+-}\hat{D}^A(\omega)\hat{T}^+ \hat{\Pi}_1 - \hat{T}\hat{\Pi}_2\hat{D}^R(\omega)\hat{T}^+ \hat{\Pi}_{11,12}^{+-}] + \\ + \hat{T}\hat{\Pi}_2\hat{D}^+(\omega)\hat{T}^+ \hat{\Pi}_1 + (\text{замена } \hat{\Pi}_{11,21} \rightarrow \hat{\Pi}_{21,11}, \hat{\Pi}_{11,12} \rightarrow \hat{\Pi}_{12,11}) \}, \quad (7)$$

где введены обозначения

$$\hat{\Pi}_1 = \hat{\Pi}_{11,21}^{+R} + \hat{\Pi}_{11,21}^{A-} + \hat{\Pi}_{11,21}^{AR}, \quad \hat{\Pi}_2 = -\hat{\Pi}_{11,12}^{+A} - \hat{\Pi}_{11,12}^{R-} + \hat{\Pi}_{11,12}^{RA}.$$

Поляризационные операторы определены таким образом

$$\hat{\Pi}_{11,21}^{+-} = \int \hat{G}_{11}^+(\epsilon) \hat{\lambda} \hat{G}_{21}^-(\epsilon + \omega) d\epsilon / 2\pi, \quad \hat{\Pi}_{11,12}^{AR} = \int \hat{G}_{11}^A(\epsilon) \hat{\lambda} \hat{G}_{12}^R(\epsilon + \omega) d\epsilon / 2\pi \\ \hat{\Pi}_{11,21}^{+R} = \int \hat{G}_{11}^+(\epsilon) \hat{\lambda} G_{21}^R(\epsilon + \omega) d\epsilon / 2\pi. \quad (8)$$

Умножение в формулах (8) понимается в матричном виде. Келдышевские ФГ локального возбуждения имеют вид

$$\hat{D}^+(\omega) = -2\pi i [\hat{\sigma}(\omega) N(\omega) + \hat{\sigma}(-\omega)(N(\omega) + 1)], \quad \hat{D}^-(\omega) = \hat{D}^+(-\omega),$$

$$\hat{\sigma}(\omega) = \left\{ \sum_n A_i^n \delta(\omega - \omega_n) A_j^{n*} \right\},$$

$$\hat{D}^{R,A}(\omega) = \frac{1}{2\omega_n} \sum_n A_i^n \left\{ \frac{1}{\omega - \omega_n \pm i0} - \frac{1}{\omega + \omega_n \pm i0} \right\} A_j^{n*} \quad (9)$$

$$N(\omega) = 1/(e^{\omega/T} - 1),$$

здесь $\hat{\sigma}_{ij}(\omega)$ – спектральная плотность фононных состояний, A_i^n – дает амплитуду на узле n от собственной моды с частотой ω_n .

Окончательное выражение для поправки к коррелятору может быть приведено к виду

$$\delta < \hat{I} \hat{I} >_{\omega} \propto \text{Sp} \{ \hat{T} \hat{\Lambda} \sigma(\omega) \hat{\Lambda}^+ \hat{T}^+ \} \text{cth}(\omega/2T)$$

$$\hat{\Lambda} = \int \hat{\rho}_{11}(\epsilon) \hat{\lambda} \hat{\rho}_{11}(\epsilon + \omega) \hat{T}^+ \hat{\rho}_{22}(\epsilon + \omega) f(\epsilon) [1 - f(\epsilon + \omega)] d\epsilon / 2\pi. \quad (10)$$

Таким образом, в спектр шума имеется вклад, который пропорционален спектральной плотности состояний локальной моды. Данная добавка пропорциональна T^4 и быстро убывает при отводе иглы от места локализации колебания на поверхности из-за экспоненциальной зависимости матричного элемента туннелирования от расстояния. Кроме того, как следует из формулы (10) $\delta < \hat{I} \hat{I} >_{\omega}$ отличен от нуля только тогда, когда частота совпадает с одной из собственных частот колебаний локальной моды.

Подчеркнем, что данная добавка к коррелятору не означает выхода за рамки флуктуационно-диссипативной теоремы ⁴. Поскольку в теореме фигурирует мнимая часть функции отклика системы с учетом всех взаимодействий.

Проявление особенности в спектре флуктуаций на частоте внутренней собственной моды не является удивительным. Достаточно вспомнить классический пример с флуктуациями тока в колебательном контуре, спектр которых имеет максимум на собственной частоте контура $\omega_n = 1/(LC)^{1/2}$.

Данный вклад в спектр флуктуаций тока может быть назван когерентным и интерпретирован следующим образом. Флуктуации тока (для определенности считаем, что внешнее напряжение $V = 0$ и средний ток отсутствует) представляют собой туннелирование электронов из иглы в кристалл и обратно. Последняя диаграмма на рис.16 описывает процессы когерентного туннелирования пары электронов. При туннелировании из иглы в кристалл электрон испускает (поглощает) фонон, следующий электрон при туннелировании из кристалла в иглу поглощает (испускает) фонон испущенный первым электроном. Таким образом, процессы туннелирования пары электронов оказываются скоррелированными через взаимодействие с колебаниями среды. Динамика этих колебаний проявляется напрямую как δ -функциональный вклад в спектре шума.

Отметим, что вклад таких процессов должен проявляться в динамической проводимости туннельного промежутка, а также при туннелировании через квантовые ямы и квантовые точки (для точек эффект должен быть более сильным), где электроны взаимодействуют с локализованными оптическими фононами.

-
1. Y.Manassen, R.J.Hamers, J.E.Demuth, and A.J.Castellank, Jr., Phys. Rev. Lett., **62**, 2531 (1989).
 2. S.N.Molotkov, Surf. Sc. **264**, 235 (1992).
 3. Л.В.Келдыш, ЖЭТФ **47**, 1515 (1964).
 4. Л.Д.Ландау, Е.М.Лифшиц, Статистическая физика, М.: Наука **5**, 1976.