УДК 535.14

КВАНТОВЫЕ ОСЦИЛЛЯЦИИ В АНИЗОТРОПНЫХ МЕЗОСКОПИЧЕСКИХ КОЛЬЦАХ В ВИХРЕВОМ ЭЛЕКТРОСТАТИЧЕСКОМ ПОЛЕ

А. К. Звездин

Исследованы квантовые свойства малого проводящего кольца (или кольцевой молекулы), пронизанного магнитным полем, линейно зависящим от времени. Показано, что в случае, когда длина окружности кольца меньше длины свободного пробега электрона и энергия электрона в кольце является периодической функцией азимутального угла, магнитное поле возбуждает в кольце квантовые осцилляции тока (и магнитного момента) блоховского типа, частота которых типично порядка $10^9 - 10^{11}$ Гц, в зависимости от радиуса кольца и скорости изменения магнитного поля.

Квантовые свойства металлических и полупроводниковых колец микронных и субмикронных размеров издавна привлекают к себе большое внимание [1 – 15]. К этому же типу объектов относятся и кольцевые молекулы, например, бензол [17]. Из недавних впечатляющих открытий отметим гигантское молибденовое колесо – нанокластер, содержащий 154 атома Mo и обладающий симметрией D_{7d} [18].

Основная проблема, которая волновала физиков в этой области, – существование спонтанных токов в металлических кольцах микронных размеров при низких температурах. Хотя успешные эксперименты были произведены уже сравнительно давно (см. [16] и приведенную там литературу), в последние годы интерес к этой проблематике снова возрос – возникли новые идеи и планы новых экспериментов, центральным пунктом которых является макроскопическая квантовая когерентность (МКМ), т.е. когерентность волновой функции вдоль всей окружности образца (или молекулы).

Металлические кольца и аналогичные молекулы могут быть интересны также с точки зрения квантовой информатики как кандидаты на роль материальных носителей квантовой информации.

Целью настоящей работы является исследование когерентных квантовых явлений в анизотропных металлических кольцах и кольцевых молекулах, происходящих под действием электростатического вихревого поля. Последнее создается с помощью внешнего магнитного поля, пронизывающего кольцо и растущего (или убывающего) линейно пропорционально времени. Анизотропия кольца, в данном контексте, означает, что энергия электрона в кольце периодически зависит от азимутального угла φ, например, как $\cos 2\varphi$. Основанием для такой постановки задачи является то, что нарастающее (спадающее) поле создает вращающий момент, действующий на орбитальный момент образца, и таким образом индуцирует новые квантовые особенности в поведении проводящих колец.

Рассмотрим сначала невзаимодействующие электроны в тонком металлическом кольце. Предполагается, что электроны могут двигаться только вдоль окружности кольца, т.е. кольцо является одномерным. Предполагается также, что длина свободного пробега электрона l превышает длину окружности кольца (баллистический режим). Последнее условие не является экзотическим для искусственных образцов (не говоря уже о молекулах), т.к. при низких температурах некоторые металлы и полупроводники ($2D$ электронный газ) имеют $l \gg 10^{-4}$ *см*. Пусть $\mathbf{B} = (0, 0, B(t))$ есть внешнее магнитное поле, ось z декартовой системы координат направлена по нормали к плоскости кольца. Представим $B(t)$ в виде

$$B(t) = B_1 \frac{t}{\tau}, \tag{1}$$

где B_1 и τ – характеристики процесса возрастания поля. Согласно уравнению Максвелла $\mathrm{rot}\mathbf{E} = -\frac{1}{c}\dot{\mathbf{B}}$, поле $B(t)$ создает азимутальное поперечное поле

$$\mathbf{E}_\varphi = -\frac{a}{2c\tau} B_1 \mathbf{1}_\varphi, \tag{2}$$

где $\mathbf{1}_\varphi$ – единичный вектор цилиндрической системы координат, направленный по касательной к кольцу. Следует подчеркнуть, что поле $\mathbf{E}_\varphi$ является вихревым ($\mathrm{div}\ \mathbf{E}_\varphi = 0$) и статическим, поэтому величину $\mathbf{j}_m = \frac{1}{4\pi\tau} B_1$ называют иногда "магнитным током", что оправдывается известным принципом перестановочной дуальности уравнений Максвелла [21]. Кроме того, будем считать, что кольцо является в отмеченном выше смысле анизотропным. Потенциальная энергия анизотропии $U_A(\varphi)$ может быть создана при помощи подходящего распределения электрического поля. В случае кольцевых молекул она может быть результатом взаимодействия молекулы с анизотропной подложкой. Интересна возможность создания электрически управляемой анизотропии. Суть этого предложения сводится к следующему. Металлическое кольцо делится на два полукольца с туннельной связью между ними. Разность потенциалов на полукольцах обеспечивает необходимую анизотропию

$$U(\varphi) = \begin{cases} 0 & \text{при } 0 < \varphi < \pi, \\ U & \text{при } 0 < \pi < \varphi < 2\pi. \end{cases}$$

Особенно интересно было бы реализовать эту возможность для $1D$ электронного газа.

Итак, одноэлектронный Лагранжиан имеет вид

$$\mathcal{L} = \frac{J\dot{\varphi}^2}{2} - U_A(\varphi) + \frac{ea^2}{2c}B(t)\dot{\varphi}, \tag{3}$$

где $J = ma^2$, m – масса электрона, a – радиус кольца. Последнее слагаемое в (3) представляет собой вклад энергии взаимодействия электрона с вихревым электрическим полем $\delta U = -\frac{e}{c}\dot{\mathbf{r}}\mathbf{A}$, где вектор-потенциал $\mathbf{A} = \frac{1}{2}[\mathbf{Br}]$, $\mathbf{r}$ – радиус-вектор электрона. Легко видеть, что с точностью до полной производной по времени лагранжиан (3) может быть представлен в ином виде

$$\mathcal{L} = \frac{J\dot{\varphi}^2}{2} - U_A(\varphi) - \frac{ea^2B_1}{2\tau c}\varphi. \tag{4}$$

Следует специально отметить, что переменная φ определена здесь на множестве $\mathcal{P}$ вещественных чисел ($\varphi \in R^1$). Последнее в данной задаче представляет собой тривиальное расслоение пространства $S^1(0 \leq \varphi < 2\pi)$, которое является базой этого расслоенного пространства $\mathcal{P}$. Это замечание представляется важным в данном контексте, так как наличие поля $\mathbf{E}_\varphi$ нарушает симметрию относительно преобразования $\varphi \to \varphi + 2\pi n$, где n – целое число, поэтому обычно используемое в подобных задачах пространство S^1 должно быть расширено до $\mathcal{P}$.

Системы с потенциальной энергией типа "стиральной доски" $U(x) = U_1(x) + bx$, где $U_1(x)$ – периодическая функция x, b – константа, а именно таковой является потенциальная энергия в (4), ранее уже исследовались. В качестве примеров можно указать движение электрона в кристалле в постоянном электрическом поле [20] или динамику перехода Джозефсона при протекании через него постоянного электрического тока

[22]. Поэтому можно ожидать проявления некоторых свойств рассматриваемых в данной работе анизотропных колец и кольцевых молекул, пронизываемых "магнитным током", аналогичных свойствам приведенных выше систем. Одним из таких характерных свойств являются блоховские осцилляции [20][1].

Рассмотрим этот вопрос подробнее. Обобщенный импульс, соответствующий координате φ, который является в данном случае моментом количества движения, равен $p_\varphi = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot\varphi} = J\dot\varphi$. Тогда, гамильтониан системы $\mathcal{H} = p_\varphi \dot\varphi - \mathcal{L}$ можно представить в виде

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2J}\left(P_\varphi - \frac{ea^2}{2c}B\right)^2 + U_A(\varphi), \tag{5}$$

где $P_\varphi = \frac{\hbar}{i}\frac{\partial}{\partial\varphi}$. Калибровочное преобразование $\Psi_1(\varphi) \to \Psi(\varphi)e^{\theta(\varphi,t)}$, где $\theta = \frac{i}{\hbar}\frac{ea^2}{2c\tau}B_1 t\varphi$, приводит уравнение Шредингера к виду

$$i\hbar\dot\Psi = \left[\frac{\hat p_\varphi^2}{2J} + U_a(\varphi) + \frac{ea^2}{2c\tau}B_1\varphi\right]\varphi. \tag{6}$$

Собственными состояниями гамильтониана (4) являются функции Блоха

$$\Psi_s(\varphi + 2\pi) = e^{i\pi m}\Psi_s(\varphi), \tag{7}$$

где m – произвольное вещественное число, s – номер энергетической полосы. Параметр m естественно назвать квазимоментом, (ср. с квазиимпульсом для зонного электрона). По аналогии с термином "зарядовые состояния", используемым для характеристики подобных состояний в теории эффекта Джозефсона, можно определить (7) как "непрерывные орбитальные состояния". Известно, что проекция орбитального момента ограниченной квантовой системы на выделенное направление квантуется. В рассматриваемой ситуации "квазимомент" является произвольным вещественным числом ($m \in R^1$)[2]. Различие между этими двумя типами состояний может быть пояснено следующим образом. Квантованные орбитальные состояния заданы в пространстве S^1 $(0 \le \varphi < 2\pi)$, при

[1]В работах [19] отмечена возможность наблюдения блоховских осцилляций в малом кольце, пронизанном линейно изменяющимся во времени магнитным полем. В отличие от рассматриваемой в настоящей работе ситуации (кольца с искусственной анизотропией $U_A(\varphi)$), авторы [19] указали на "обычные" блоховские осцилляции, обусловленные периодичностью кристаллической структуры. Очевидно, что их значительно более трудно наблюдать на эксперименте.

[2]Волновые функции (7) и спектр (8, 9) формально близки к таковым из [16]. Однако, вместо координаты φ в [16] фигурирует поток магнитного поля Φ, пронизывающий кольцо, а вместо квазимомента m величина $2\Phi/\Phi_0$, где $\Phi_0 = \frac{2\pi\hbar}{e}$ – квант магнитного потока.

этом квантование орбитального момента естественно связано с симметрией квантовой задачи относительно поворота системы координат на 2π вокруг оси z, другими словами, с граничными условиями $\Psi(\varphi + 2\pi) = \Psi(\varphi)$. Отсутствие же этой симметрии в динамической группе симметрии лагранжиана (3) отменяет квантование орбитального момента[3]. Вместо этого в расслоенном пространстве $\mathcal{P}(\infty < \varphi < \infty)$ реализуются "непрерывные орбитальные состояния", т.е. функции Блоха (5).

Пусть $U_A(\varphi) = (1/2)K \cos 2\varphi$, где K – константа. Тогда уравнение Шредингера для гамильтониана (5) сводится к уравнению Матье, из теории которого следует, что энергетический спектр Гамильтониана (5) имеет зонную структуру, т.е. собственные значения (5) $E_n(m)$ есть функции, определенные в соответствующих зонах Бриллюэна. При $K \approx 0$ зонная структура соответствует приближению свободных электронов

$$E_s(m) = \frac{\hbar^2 m^2}{2J} \tag{8}$$

с запрещенными зонами на границах зон Бриллюэна: $m_B = s$ $(s = \ldots - 2, -1, 0, 2, \ldots)$. В частности, вблизи края первой зоны Бриллюэна функции $E_s(m)(m \sim -1)$ имеют вид:

$$E_s(m) = \frac{\hbar^2}{2J}\left(\frac{m^2 + (m+2)^2}{2} \pm \sqrt{\frac{m^2 - (m+2)^2)^2}{4} + \frac{K^2 J^2}{4\hbar^4}}\right). \tag{9}$$

При $m_B = \pm 1$ запрещенные зоны равны

$$E_g = \frac{K}{2}. \tag{10}$$

Уравнения (8), (9) определяют с достаточной точностью энергетический спектр для гармонической анизотропии в пределе двух первых зон Бриллюэна. В общем случае можно воспользоваться известными в теории твердого тела формулами, например, для одномерной модели Кронига–Пенни.

Уравнение (6) изоморфно уравнению, описывающему динамику блоховского электрона в электрическом поле.

---

[3]Для того, чтобы обеспечить эрмитовость оператора P_φ можно использовать, как известно, "периодические" граничные условия на бесконечности (т.е. в данном случае для достаточно больших значений угловой переменной $N2\pi$, а затем устремить N к бесконечности). С другой стороны, из условий, что P_φ квантуется на кольце с длиной окружности, равной $L = 2\pi a N$, при отображении этого большого кольца величина кванта становится порядка $2\pi a/L$ и при $L \to \infty$ обращается в 0. Это и означает снятие квантования орбитального момента в S^1.

Рассмотрим динамику орбитального момента p_φ для случая, когда "магнитный ток" $j_m = \frac{1}{4\pi\tau}B_1$ достаточно мал, т.е. магнитное поле изменяется адиабатически медленно:

$$\left|\frac{ea^2}{2c\tau}B_1\right| \ll K. \tag{11}$$

Чтобы описать динамику орбитального момента под влиянием "магнитного тока", рассмотрим волновой пакет, составленный из блоховских функций (7). Пусть $\bar{m}$ и $\bar{\varphi}$ означают средние значения квазимомента и координату центра пакета, а значения Δm, $\Delta\varphi\,(\Delta m \cdot \Delta\varphi \sim 1)$ определяют соответствующие неопределенности. Под влиянием "магнитного тока" j_m сформированный при $t = 0$ волновой пакет смещается к границе (например, правой, т.е. $m_B = 1$) зоны Бриллюэна, отражается от нее, его групповая скорость изменяет знак, затем распространяется до левой границы зоны Бриллюэна ($m_B = -1$), отражается от нее и т.д. При этом происходит периодическое изменение дисперсии Δm и ширины пакета $\Delta\varphi$. Этот процесс называют блоховскими осцилляциями. Математически он описывается следующими уравнениями для средних значений $\bar{m}$ и $\bar{\varphi}$:

$$\dot{\bar{m}} = -\frac{ea^2}{2\hbar c\tau}B_1, \tag{12}$$

$$\dot{\bar{\varphi}} = \frac{1}{\hbar}\frac{\partial E_s(\bar{m})}{\partial \bar{m}}.$$

В этом (адиабатическом) процессе система остается в состоянии с заданным s и наблюдаемые физические величины, например, магнитный момент кольца, являются осциллирующими функциями времени с частотой

$$f_{Bloch} = \frac{ea^2B_1}{2\hbar c\tau}. \tag{13}$$

Если внешнее магнитное поле имеет, кроме линейного вклада, еще гармоническую составляющую, т.е.

$$B = B_1 t/\tau + b\sin 2\pi f t, \tag{14}$$

тогда возможны резонансы на частоте $f = f_{Bloch}$ и $f = r f_{Bloch}$, где r – рациональное число (резонансы Штарка).

При возрастании "магнитного тока".

$$\left|\frac{ea^2}{2c\tau}B_1\right| \gtrsim K \tag{15}$$

возникает туннельный эффект Зинера между соседними зонами. В частности, вероятность туннельного перехода между зонами с $s = 1$ и $s = 2$ равна

$$P = f_{Bloch} e^{-\beta}, \tag{16}$$

где $\beta = \frac{\pi K^2 \tau}{\hbar^2 \gamma B_1}$, $\gamma = \frac{e}{mc}$.

На этом одноэлектронный анализ задачи можно закончить. На следующем этапе, пользуясь рассмотренными здесь одноэлектронной волновой функцией и спектром электрона в кольце, нужно рассчитать наблюдаемые макроскопические характеристики: ток, магнитный момент, корреляционные функции и т.д. Для этого нужно вычислить плотность состояний, термодинамический потенциал, по возможности, учесть столкновения электрона с фононами и дефектами, а также электрон-электронные взаимодействия.

Такой анализ мы оставим на будущее, а сейчас ограничимся численными оценками. Полагая $a = 10^{-4}$ *см*, $K \sim \frac{\hbar v_F}{2\pi a} \sim 10^{-3} - 10^{-4}$ *эВ*, $B_1/\tau = 10^{11}$ *Э/с* (эти величины представляются вполне реальными), получим $f_{Bloch} = 10^{10}$ *Гц*. При этом условие адиабатичности (11) выполняется с большим запасом. Для $2D$ электронного газа в $GaAs$ длина свободного пробега электрона достигает 10 *мкм*, а в некоторых металлах и полуметаллах даже больше (например, при низких температурах в $Bi\, l \sim 1$ *мм*), откуда следует, что возможность наблюдения квантовых осцилляций блоховского типа в таких материалах не выглядит фантастичной. Наконец отметим, что, хотя в данной работе рассмотрена ситуация $\dot{B} = \text{const}$, некоторые ее фрагменты могут быть справедливы – в кратковременных эпизодах – для произвольных зависимостей $B(t)$.

Автор благодарен А. М. Игнатову за дискуссии.

Работа поддержана РФФИ (проект N 99–02–17830), МНТП (97– 1071).

ЛИТЕРАТУРА

[1] L o n d o n F. J. Phys., Paris, **8**, 379 (1937).

[2] H u n d F. Annl. Phys. (Leipzig), **32**, 102 (1938).

[3] B y e r s N. and Y a n g C. N. Phys. Rev. Lett., **7**, 46

[4] B l o c h F. Phys. Rev. Lett., **137**, A787 (1965); **166**, 415 (1968).

[5] A r o n o v A. G. and S h a r v i n Yu. V. Rev. Mod. Phys., **59**, 755 (1987).

[6] C h a k r a b o r t y T. and P i e t l ä i n e n P. Phys. Rev., B **50**, 8460 (1994).

[7] W e n d l e r L. and F o m i n V. M. Phys. Stat. Solidi (b), **191**, 409 (1995).

[8] L e v y L. P. et al., Phys. Rev. Lett., **64**, 2074 (1990).
[9] C h a n d r a s e k h a r Y. et al., Phys. Rev. Lett., **67**, 3578 (1991).
[10] M a i l y D., C h a p e l i e r C., and B e n o i t M. Phys. Rev. Lett., **70**, 2020 (1993), 387 (1995).
[11] M o r p u r g o A. F. et al., Phys. Rev. Lett., **80**, 1050 (1998).
[12] L o r k e A. et al., Phys. Rev. Lett., **84**, 2223 (2000).
[13] S c h u s t e r R. et al., Nature (London), **385**, 417 (1997).
[14] L a n d a u e r R. and B ü t t i k e r M. Phys. Rev. Lett., **54**, 2049 (1985).
[15] A l' t s h u l e r B. L., A r o n o v A. G., and S p i v a k B. L. Sov. Phys. JETP Lett., **33**, 94 (1985).
[16] E c k e r n U. and S c h w a b P. Advances in Physics, **44**, 387 (1995).
[17] K e k u l é A. Bull. Soc. Chem. Fr., **3**, 98 (1865).
[18] M ü l l e r A. and B e n g h o l t C. Nature, **383**, 296 (1996).
[19] B ü t t i k e r M., I m r y I., and L a n d a u e r R. Phys. Lett., **96 A**, 365 (1983); G e f e n Y., I m r y Y., and A z b e l M. Ya. Phys. Rev. Lett., **52**, 129 (1984); W e b b R. A., W a s b u r n S., U m b a c h C. P., and L a i b i w i t z R. B. Phys. Rev. Lett., **54**, 26 (1985).
[20] B l o c h F. Phys. Rev. Lett., **21**, 1241 (1968).
[21] М и л л е р М. А. УФН, **142**, 147 (1984).
[22] А в е р и н М. А., З о р и н А. Б., Л и х а р е в К. К. ЖЭТФ, **88**, 692 (1985).
[23] S c h ö n G. and Z a i k i n A. D. Phys. Reports, **198**, 237 (1999).

Институт общей физики РАН

Поступила в редакцию 19 сентября 2000 г.