06

Влияние перегрева электронов на туннельный ток молекулярного транзистора

© В.В. Погосов, Е.В. Васютин, А.В. Бабич

Запорожский национальный технический университет, Украина
E-mail: vpogosov@zntu.edu.ua

Поступило в Редакцию 5 декабря 2006 г.

Исследовано влияние перегрева электронной подсистемы на кулоновскую блокаду в структуре на металлической грануле-молекуле со счетным количеством атомов. Вычислен спектр электронов в квантовых гранулах цилиндрической и сферической формы. ВАХ туннельных структур рассчитана для разных температурных режимов. Повышение температуры электронной подсистемы кластера приводит к исчезновению токовой щели и сильной сглаженности квантовых и кулоновских ступенек на ВАХ структуры, что и наблюдается в экспериментах.

PACS: 72.20.Fr, 73.22.Dj, 73.23.Hk

Перспективным объектом нанотехнологий являются островковые пленки, содержащие мелкие металлические гранулы [1–3]. В туннельных структурах в результате зарядки гранулы возникает „кулоновская блокада“ тока и на достаточно низком фоне тепловых флуктуаций на ВАХ проявляются ступени „кулоновской лестницы“ (см., например, [4]).

Элементарная туннельная конструкция схематически представляет собой своеобразный сэндвич [1,3]: массивную пленку золота (эмиттер) с нанесенным диэлектриком, постоянная которого $\kappa \approx 3$; на диэлектрической пленке формируются островки одноатомной высоты [1] (кластеры дискообразной формы) и слегка сфероидальные [3] кластеры золота; в качестве третьего электрода (коллектора) использовалась игла туннельного микроскопа.

Некоторые из особенностей экспериментальных ВАХ исследованы в [5], однако неясным остается тот факт, что при низких температурах электродов (термостата) ступени на ВАХ для гранулы-молекулы, состоящей из десятков атомов, т. е. с квантованным спектром, являются значительно сглаженными. Это является характерным для подобных молекулярных структур [6]. В работе [1] также обнаружено, что при повышении температур от 5 до 300 K токовая щель для структуры на диске $2R \approx 4$ nm фактически исчезает (см. рис. 2 в этой работе).

В данном сообщении эта сглаженность ВАХ объясняется перегревом электронной подсистемы гранулы-молекулы за счет релаксации в ней электронов проводимости.

Рассмотрим монослойные островки-гранулы дискообразной формы, радиусы которых находятся в диапазоне $2R \cong \{1, 8.5\}$ nm, что соответствует числу атомов в кластере $N_0 \cong \{14, 10^3\}$. Аналогично для сферических гранул золота, радиусы которых находятся в диапазоне $2R \cong \{1.4, 2.8\}$ nm $\Rightarrow N_0 \cong \{100, 600\}$. Для данных размеров выполняется условие $L \gg R$, где L — длина свободного пробега электронов в массивном металле. Расчет спектра электронов в цилиндрических и сферических ямах конечной глубины для указанных размеров дает разные величины расстояний между уровнями в магических кластерах $\Delta\varepsilon_p = \varepsilon^{\mathrm{LU}} - \varepsilon^{\mathrm{HO}}$ (рис. 1). В немагических кластерах энергии низшего незанятого и высшего занятого состояний совпадают ($\varepsilon^{\mathrm{LU}} = \varepsilon^{\mathrm{HO}}$).

Энергия зарядки гранулы $\widetilde{E}_C = e^2/C$, где e — элементарный положительный заряд, C — собственная электрическая емкость уединенной гранулы в вакууме (в случае диска емкость оценивается как для сплюснутого сфероида того же объема). Как показали вычисления в [5], этого представления недостаточно для значений ширины токовой щели. Особенно это заметно для дисков, так как диск почти половиной площади своей поверхности находится в контакте с диэлектрической пленкой. Поэтому для этих гранул мы используем замену $C \Rightarrow (1+\kappa)C/2$. Следует отметить, что емкость чувствительна к форме поверхности гранулы и небольшое отклонение от сферичности заметно меняет ее емкость. Взаимные емкости невозможно оценить простым путем и они

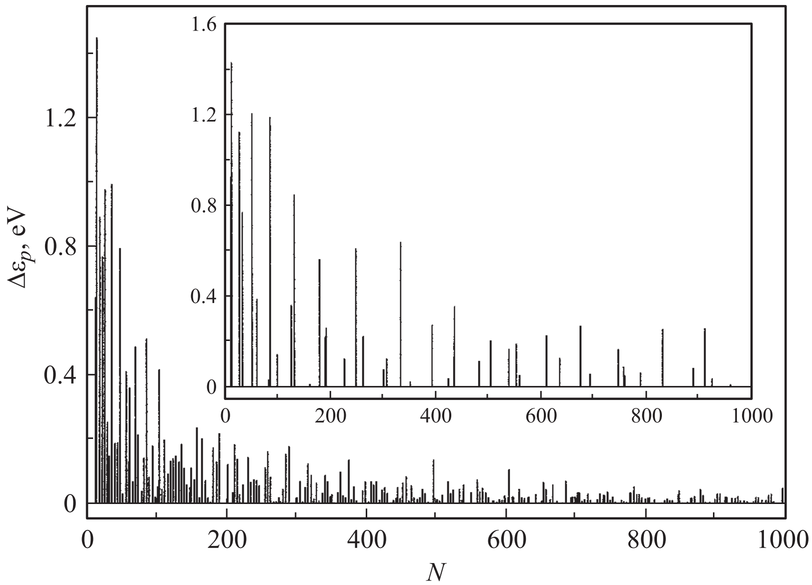

Рис. 1. Спектр электронов в нейтральных дисках Au_{N_0} (и сферах на вставке).

нами не учитываются. $\widetilde{E}_C \cong \{1.6, 0.21\}$ и $\{1.82, 1.06\}$ eV для дисков и сфер соответственно.

Следствием деформации фононного спектра гранул является ослабление электрон-фононного взаимодействия в них, $\vartheta_\mathrm{F}/R \gg \omega_\mathrm{D}$, где ϑ_F — скорость фермиевских электронов, а ω_D — дебаевская частота. Это взаимодействие может быть подавлено настолько, что электрон-электронное взаимодействие оказывается основным механизмом рассеяния вводимой в частицу энергии (ток $I \sim 1$ pA обеспечивается количеством электронов $\sim 10^6$ в единицу времени). Эта энергия приводит к перегреву электронной подсистемы, которая описывается фермиевской статистикой с некоторой эффективной (повышенной) температурой, а температура ионной подсистемы меняется незначительно [7]. С ростом напряжения смещения V количество электронов, релаксирующих в грануле, значительно увеличивается, так как в сторону одного из электродов (рис. 2) увеличивается „поток“ туннельных электронов из

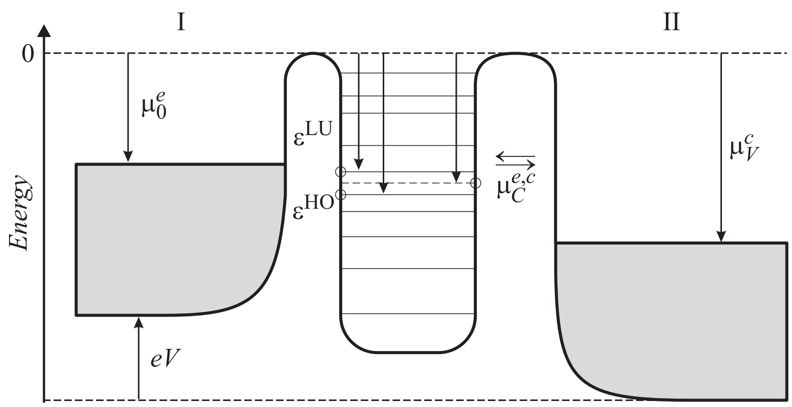

Рис. 2. Энергетическая диаграмма структуры на прямой ветке ВАХ: I — эмиттер, II — коллектор.

нижележащих уровней, вовлекая в релаксации значительное число электронов проводимости гранулы. В это число попадают все электроны, лежащие в интервале $e\eta V$ ниже уровня Ферми гранулы (ηV — фракция или часть напряжения смещения, которая приходится на гранулу). При этом возникают каналы потерь, связанные с генерацией дырок на заполненных уровнях и их последующей рекомбинацией и возбуждением плазменных колебаний. Энергия, выделяющаяся при рекомбинации дырок, может быть излучена в виде кванта света или передана ионной подсистеме (или подложке) возбуждением колебательных степеней свободы. При значительном перегреве электронной подсистемы гранула не фрагментируется, так как ВАХ структуры воспроизводится при циклическом изменении напряжения смещения [1,3]. Отвод тепла, по-видимому, осуществляется через диэлектрическую пленку, с которой гранула (особенно „плоский диск") находится в непосредственном контакте. Эта пленка может рассматриваться как сток и источник фононов. В работе [8] такой фононный резервуар рассматривался в качестве необходимого условия сохранения импульса и энергии при туннельных переходах электронов между разными энергетическими уровнями гранул: цепочка гранул разного размера была упакована в ДНК, а ДНК была закреплена на подложке.

Оценка энергии ($\sim 0.2,\ 0.3\,\mathrm{eV}$), которая заканчивается электронами проводимости в гранулы островковых пленок, сделана в [9–11]. Из сказанного следует, что экспериментам [1,3] для всего диапазона R и разумных величин T^{g}_{eff} в области щели тока соответствует режим

$$\widetilde{E}_C > \Delta\varepsilon_{\mathrm{F}} \geqslant k_B T^{e,c,g},$$

где $\Delta\varepsilon_{\mathrm{F}}$ — разница между дискретными уровнями вблизи энергии Ферми в грануле. Для сравнения с результатами работы [1,3] расчеты проведены для температур эмиттера и коллектора, равных температуре термостата, $T^e = T^c = 5,\ 30,\ 300\,\mathrm{K}$, а также $T^{g}_{eff} = T^e$, $3000\,\mathrm{K}$.

В соответствии с простой моделью [5,12] представим эмиттер и коллектор в виде резервуаров электронов с континуальными энергетическими спектрами, занятыми в соответствии с фермиевской функцией распределения:

$$f(\varepsilon^{e,c} - \mu_0^{e,c}) = \left\{1 + \exp[\varepsilon^{e,c} - \mu_0^{e,c})/k_B T^{e,c}]\right\}^{-1}, \tag{1}$$

где $\mu_0^{e,c}$ — химический потенциал электронов проводимости в полубесконечном металле, $-\mu_0^{e,c} = W_0^{e,c}$, $W_0^{e,c}$ — работа выхода электронов из полубесконечного металла ($W_0 = 5.13\,\mathrm{eV}$ для Au). Во всех случаях энергии отсчитываются от вакуумного уровня. Химический потенциал электронов гранулы μ^g в квантовом случае находится из условия нормировки при T^{g}_{eff}:

$$\sum_{p=1}^{\infty}\left\{1 + \exp[(\varepsilon_\rho - \mu^g)/k_B T^{g}_{eff}]\right\}^{-1} = N. \tag{2}$$

Суммирование в (2) проводится по всем одночастичным состояниям, в которых находится N — среднее число электронов проводимости в грануле, включая валентные и избыточные электроны. Спектр состояний рассчитывается заранее, поэтому из уравнения (2) можно определить химический потенциал нейтральных гранул Au_{N_0} и его температурную зависимость. При $T^{g}_{eff} = 0$ уровень Ферми немагических кластеров совпадает с дискретным частично заполненным уровнем $\varepsilon^{\mathrm{HO}}$ в кластере, для магических — он располагается посередине между термами $\varepsilon^{\mathrm{LU}}$ и $\varepsilon^{\mathrm{HO}}$.

Ток, текущий через квантовую гранулу (с ограничением на ее кулоновскую неустойчивость [5,12]) определяется как

$$I^e \equiv -e\sum_{n_{\min}}^{n_{\max}} P_n(\overrightarrow{\omega_n^e} - \overleftarrow{\omega_n^e}) = -e\sum_{n_{\min}}^{n_{\max}} P_n(\overrightarrow{\omega_n^c} - \overleftarrow{\omega_n^c}) \equiv I^c, \tag{3}$$

где P_n (вероятность нахождения „в среднем" n избыточных электронов на островке) определяется решением управляющего уравнения для стационарного случая. Фактически рассчитывается приведенный ток $\tilde{I} \equiv I/(eP_0\Gamma^{e,c})$, где $\Gamma^{e,c}$ — туннельные скорости, а для нахождения величин $P_{n\neq 0}/P_0$ используются рекуррентные соотношения $P_{n+1} = P_n\omega_n^{in}/\omega_{n+1}^{out}$. Суммарные „потоки" электронов с крайних электродов на гранулу и обратно

$$\omega_n^{in} = \overrightarrow{\omega_n^e} + \overleftarrow{\omega_n^c}, \qquad \omega_n^{out} = \overleftarrow{\omega_n^e} + \overrightarrow{\omega_n^c}$$

выражаются через парциальные потоки:

$$\overrightarrow{\omega_n^e} = 2\Gamma^e \sum_p f(\overrightarrow{\varepsilon^e} - \mu_V^e)\left[1 - f(\overrightarrow{\varepsilon^e} - \overrightarrow{\mu_C^e})\right], \tag{4}$$

$$\overleftarrow{\omega_n^c} = 2\Gamma^c \sum_p f(\overleftarrow{\varepsilon^c} - \mu_V^c)\left[1 - f(\overleftarrow{\varepsilon^c} - \overleftarrow{\mu_C^c})\right], \tag{5}$$

$$\overleftarrow{\omega_n^e} = 2\Gamma^e \sum_p \left[1 - f(\overleftarrow{\varepsilon^e} - \mu_V^e)\right] f(\overleftarrow{\varepsilon^e} - \overleftarrow{\mu_C^e})], \tag{6}$$

$$\overrightarrow{\omega_n^c} = 2\Gamma^c \sum_p \left[1 - f(\overrightarrow{\varepsilon^c} - \mu_V^c)\right] f(\overrightarrow{\varepsilon^c} - \overrightarrow{\mu_C^c})]. \tag{7}$$

На прямой ветке ВАХ, полагая на эмиттере $V = 0$ и рассматривая переход электрона из эмиттера на гранулу/или обратно, можно определить энергетические резонансы, которые фигурируют в процессах переноса заряда. В результате ионизации электрона эмиттера и перехода его на гранулу/или обратно, на которой уже находятся n избыточных электронов:

$$\overset{\leftrightarrows}{\varepsilon^e} = \varepsilon_p' + \widetilde{E}_C(n \mp 1/2) - e\eta^+ V, \tag{8}$$

где верхние/нижние стрелки слева согласуются с соответствующими знаками справа. Аналогично и для переходов гранула-коллектор и коллектор-гранула:

$$\overset{\rightleftarrows}{\varepsilon^c} = \varepsilon'_p + \widetilde{E}_C(n \mp 1/2) + e(1-\eta^+)V, \tag{9}$$

где $\varepsilon'_p \equiv \varepsilon_p - e\delta\phi$, η^+ — фракция напряжения на прямой ветке ВАХ. Еще до приложения поля между гранулой и эмиттером возникает контактная разность потенциалов $\delta\phi = (\mu^g - \mu^e)/e$, которая приводит к зарядке гранулы остаточным зарядом $Q_0^{eff} = C\delta\phi$. Величина этого эффективного заряда является дробной. Дробность заряда поясняется тем, что в структурах с проницаемыми барьерами волновая функция электрона может распределяться между электродами, влияя на энергетическую картину. Спектр ε_p и μ^g рассчитаны для уединенной гранулы в отсутствие зарядки и внешнего поля. Предполагается, что внешнее поле и кулоновская блокада не снимают вырождение уровней. С учетом приложенного напряжения и зарядки гранулы спектры в грануле и спектр в коллекторе сдвигаются:

$$\mu_V^e \equiv \mu_0^e, \quad \overset{\leftrightarrows}{\mu_C^e} = \mu^g - e\delta\phi + \widetilde{E}_C(n \mp 1/2) - e\eta^+ V,$$

$$\overset{\leftrightarrows}{\mu_C^c} = \mu^g - e\delta\phi + \widetilde{E}_C(n \pm 1/2) + e(1-\eta^+)V, \quad \mu_V^c \equiv \mu_0^c - eV.$$

Обратную ветку ВАХ легко рассчитать, поменяв полярность: на левом электроде $V > 0$ (теперь это как бы „коллектор“), а на правом $V = 0$ (теперь это „эмиттер“). При таком построении „новая“ фракция напряжения $\eta^- = 1 - \eta^+$.

Расчетные ВАХ приведены на рис. 3. Ширина щели тока $\Delta V_g = V_{0+} + |V_{0-}|$ определяется пороговым напряжением V_{0+}/V_{0-} из условия равенства нулю коллекторного/эмиттерного тока на прямой/обратной ветках ВАХ. В низкотемпературном пределе $(k_B T_{eff}^g \ll \Delta\varepsilon_{\mathrm{F}})$ для щели получено аналитическое выражение

$$\Delta V_g = \left(\frac{1}{2e}\,\widetilde{E}_C + \frac{1}{e}\,\Delta\varepsilon\right)\left[\frac{1}{2-\eta^+} + \frac{1}{2-\eta^-}\right], \tag{10}$$

где $\Delta\varepsilon \equiv \varepsilon^{\mathrm{HO}} - \mu^g \geqslant 0$. Расчетные значения ΔV_g хорошо согласуются с экспериментальными значениями для структур на сферических и дискообразных кластерах.

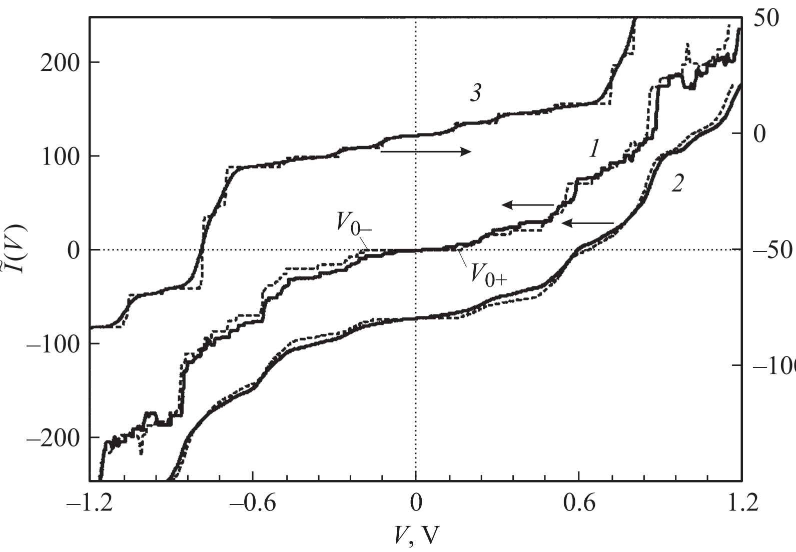

Рис. 3. Расчетные ВАХ туннельных структур на магических диске Au_{230} и сфере Au_{256}. *1* — Au_{230}: пунктир — $T^{e,c,g} = 5\,K$, сплошная линия — $T^{e,c} = 5\,K$ и $T^{g}_{eff} = 3000\,K$. *2* — Au_{230}: пунктир — $T^{e,c,g} = 300\,K$, сплошная линия — $T^{e,c} = 300\,K$ и $T^{g}_{eff} = 3000\,K$. *3* — Au_{256}: пунктир — $T^{e,c} = 300\,K$ и $T^{g}_{eff} = 3000\,K$, сплошная линия — $T^{e,c} = 300\,K$ и $T^{g}_{eff} = 3000\,K$.

В случае $k_B T^{g}_{eff} \geqslant \Delta\varepsilon_F$, когда в процессе переноса заряда задействована часть спектра гранулы большая, чем $\delta\varepsilon_F$, расчет ВАХ и щели тока может быть сделан только численно.

Расчет показывает на явную зависимость сглаженности ВАХ от температуры электронной подсистемы гранул. Однако для согласования с измеренными ВАХ необходимо предположить, что электроны в эмиттере и коллекторе тоже разогреты до некоторой $T^{e,c}_{eff}$, большей, чем температура термостата. Для демонстрации этого предположения приведен расчет для сферы при $T^{e,c}_{eff} = 300\,K$ и $T^{g}_{eff} = 3000\,K$. Только таким способом удается объяснить сглаженность ВАХ металлических кластерных структур при низких температурах термостата. С ростом напряжения смещения протекание тока происходит на фоне роста температуры электронного газа.

Список литературы

[1] *Wang B., Xiao X., Huang X., Sheng P., Hou J.C.* // Appl. Phys. Lett. 2000. V. 77. B 8. C. 1179–1181.

[2] *Otero R., Vazquez de Parga A.L., Miranda R.* // Phys. Rev. 2002. V. B 66. 115401.

[3] *Ohgi T., Sakotsubo Y., Ootuka Y., Fujita D.* // Appl. Phys. Lett. 2004. V. 84. N 4. P. 604–606.

[4] *Погосов В.В.* Введение в физику зарядовых и размерных эффектов. Поверхность, кластеры, низкоразмерные системы. М.: Физматлит, 2006. 328 с.

[5] *Погосов В.В., Васютин Е.В., Курбацкий В.П., Коротун А.В.* // ФТТ. 2006. Т. 48. № 10. С. 1849–1857.

[6] *Солдатов Е.С., Ханин В.В., Трифонов А.С., Губин С.П., Колесов В.В., Преснов Д.Е., Яковенко С.А., Хомутов Г.Б., Коротков А.Н.* // УФН. 1998. Т. 168. № 2. С. 217–219.

[7] *Маслов К.В., Шкловский В.А.* // ЖЭТФ. 1976. Т. 71. № 4. С. 1514–1519.

[8] *Semrau S., Schoeller H., Wenzel W.* // Phys. Rev. 2005. V. B 72. 205443.

[9] *Томчук П.М., Федорович Р.Д.* // ФТТ. 1966. Т. 8. № 2. С. 276–278.

[10] *Борзяк П.Г., Кулюпин Ю.А., Непийко С.А., Томчук П.М.* // Изв. АН СССР. Сер. Физ. 1976. Т. 40. № 12. С. 2609–2615.

[11] *Fedorovich R.D., Naumovets A.G., Tomchuk P.M.* // Phys. Rep. 2000. V. 328. N 2–3. P. 73–179.

[12] *Pogosov V.V., Vasyutin E.V.* // Nanotechnology. 2006. V. 17. P. 3366–3374.