

Эффекты одноэлектронной зарядки в туннельной структуре на металлическом кластере

© В.В. Погосов, Е.В. Васютин, В.П. Курбацкий, А.В. Коротун

Запорожский национальный технический университет,
69063 Запорожье, Украина

E-mail: vpogosov@zntu.edu.ua

(Поступила в Редакцию 18 октября 2005 г.
В окончательной редакции 29 ноября 2005 г.)

Теоретически исследованы эффекты одноэлектронной туннельной зарядки и кулоновской блокады в кластерной структуре (молекулярном транзисторе) с учетом квантования электронных уровней в островковом электроде. Спектр электронов рассчитан для малых кластеров сферической и дискообразной формы. При условии сохранения полной энергии конструкции с учетом контактной разности потенциалов получены уравнения для анализа ее вольт-амперной характеристики. В теорию введены ограничения, связанные с кулоновской неустойчивостью кластера и релаксацией электронов. Для одноэлектронных транзисторов на малых кластерах золота рассчитаны величина щели тока и ее асимметрия по напряжению. С увеличением размера кластера токовая щель меняется немонотонно.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Украины и корпорации Samsung.

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

1. Введение

Интересным объектом физики низкоразмерных систем являются металлические гранулы, связанные слабыми туннельными взаимодействиями (см. работы [1–7] и ссылки в них). Туннельным током между двумя массивными электродами-берегами можно управлять, если между ними поместить кластер-гранулу. На первый взгляд вероятность туннелирования электронов, а следовательно, и ток должны быть значительно выше при наличии гранулы между берегами, чем в случае ее отсутствия. Однако в экспериментах с кластерами почти сферической [8–12] и дискообразной формы [13,14] вблизи нулевого напряжения (вплоть до некоего порога) наблюдается обратная картина: ВАХ содержит плато, на котором ток практически отсутствует (токовая щель).

В работах [10–12] конструкция из двух туннельных переходов (она изображена на рис. 1) представляла собой пленку Au (111) с нанесенным диэлектриком HS(CH₂)₈SH толщиной ~ 10 Å и диэлектрической постоянной $\epsilon \approx 3$, на которой формировались малые кластеры золота, имеющие форму, близкую к сферической. Вольфрамовая игла (малой кривизны поверхности) туннельного микроскопа покрывалась пленкой Au толщиной примерно 10^3 Å. Таким образом, можно считать, что все три электрода (два из них с плоской поверхностью) изготовлены из золота. По измеренной зависимости $I(V)$ с помощью схемотехнического подхода работы [7] в качестве подгоночных параметров подобраны емкости, туннельные сопротивления переходов и „остаточный“ (дробный) заряд Q_0 гранулы.

Подобные измерения были выполнены ранее в работах [13,14]. Отметим отличительные особенности этих экспериментов: объектом исследования были остров-

ки одноатомной высоты $H \approx 0.25$ nm (кластеры дискообразной формы); толщина диэлектрической пленки ~ 1.4 nm, ее $\epsilon \sim 2.7$; острие микроскопа выполнено из Pt/Ir.

В экспериментальных зависимостях $I(V)$ можно выделить следующие характерные особенности.

1) Ширина токовой щели приблизительно пропорциональна обратным радиусам диска (рис. 4 в [13]) и сферы (рис. 2, a и 1, c в [10]), что не позволяет однозначно установить ее классическое или квантовое

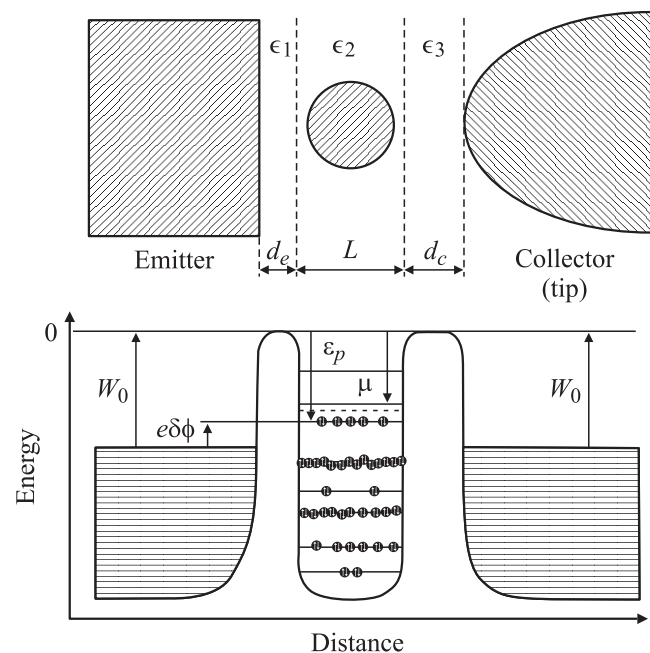


Рис. 1. Энергетическая диаграмма структуры Au/Au₄₀/Au до приложения напряжения.

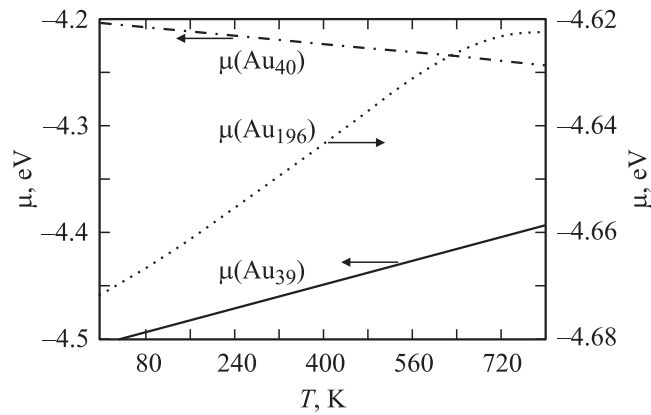


Рис. 2. Температурная зависимость химических потенциалов немагического Au₃₉ и магических Au₄₀, Au₁₉₆ сферических кластеров золота.

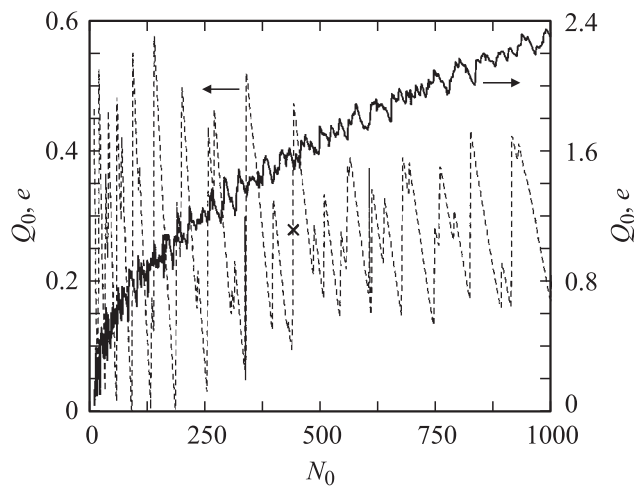


Рис. 3. Размерная зависимость „остаточного“ заряда Q_0 (6) для сфер (штриховая линия) и дисков (сплошная линия). Для примера крестиком помечено значение Q_0 , соответствующее магической сфере Au₄₃₉.

происхождение. С другой стороны, помимо плато ВАХ для дисков четко видна ступень квантовой лестницы (рис. 3 в [13] и рис. 1, *b* в [14]).

2) Ширина щели для диска немонотонно менялась с изменением расстояния коллектор–кластер при фиксированном расстоянии эмиттер–кластер, т.е. в определенной степени зависела от фракции напряжения (рис. 3 в [14]).

Возможность прохождения дробного заряда при туннелировании обсуждалась в обзоре [15]. В перколяционных системах предполагается солитонное происхождение заряда Q_0 на каждой грануле, численному расчету которого посвящен ряд работ (см. [16,17] и ссылки в них). Проблема, возможно, имеет отношение к дробному квантованию (дробной статистике), когда разделение квантовых чисел заряда и спина электрона является важным [18]. Этому вопросу, происхождению

плато ВАХ, ее асимметрии, а также роли дискретности электронного спектра гранулы в туннелировании электронов уделено недостаточно внимания.

Цель настоящей работы — построение аналитической модели экспериментов [10–14] и расчет токовой щели на ВАХ трехэлектродной структуры, центральным электродом которой являются металлические кластеры разных размеров и формы.

2. Предварительный анализ и постановка задачи

Рассматриваются сферические кластеры Au в диапазоне радиусов $R \simeq 7\text{--}14 \text{ \AA}$, $R = N_0^{1/3} r_s$, т.е. $N_0 \simeq 100\text{--}600$ ($r_s = 3.01 a_0$ — среднее расстояние между электронами, a_0 — боровский радиус). Аналогично для дисков одноатомной толщины $2R \simeq 10\text{--}85 \text{ \AA}$, $N_0 \simeq 14\text{--}10^3$. Введем характерную зарядовую энергию $\tilde{E}_C = e^2/C$, C — электрическая емкость [19]. Для сфер и дисков соответственно получим $\tilde{E}_C \simeq 1.82\text{--}1.06$ и $3.2\text{--}0.42 \text{ eV}$. Рассматриваются температуры системы $T < 30 \text{ K}$. Определим спектр электронов в сферических и цилиндрических ямах конечной глубины (см. Приложение). Расчет для указанных размеров в обоих случаях дает близкие величины дискретности спектра вблизи верхнего занятого уровня ε^{HO} при $T = 0$: $\Delta\varepsilon_p \simeq 1.2\text{--}0.3 \text{ eV}$. Таким образом, экспериментам [10–13] для всего диапазона R в области щели тока соответствует режим заметного квантования уровней в кластере

$$\tilde{E}_C \approx \Delta\varepsilon_p \gg k_B T. \quad (1)$$

Однако, как показывают измерения в [20], для молекулярных систем дискретность уровней на ВАХ фактически не проявляется. Мало заметна квантовая лестница и в экспериментах со сферическими частицами [8,10–12]. С другой стороны, о ее наблюдении в мелких квантовых точках сообщается в обзоре [2]. По мнению авторов настоящей работы, она определяет щель ВАХ структур, исследованных в [10–14].

Рассмотрим задачу в несколько этапов и введем обозначения.

2.1. Структура до приложения разности потенциалов. Левый и правый электроды (эмиттер и коллектор) представляют собой резервуары электронов с непрерывными энергетическими спектрами, занятыми в соответствии с фермиевской функцией распределения

$$f(\varepsilon^{e,c} + W_0^{e,c}) = \{1 + \exp[(\varepsilon^{e,c} + W_0^{e,c})/k_B T]\}^{-1}, \quad (2)$$

где $W_0 > 0$ — работа выхода электронов из полубесконечного металла. Во всех случаях энергии отсчитываются от вакуумного уровня.

Химический потенциал электронов кластера μ в квантовом случае находится из условия нормировки

$$\sum_{p=1}^{\infty} f(\varepsilon_p - \mu) = N, \quad (3)$$

где суммирование проводится по всем одночастичным состояниям, N — полное число термализованных (с учетом избыточных или недостающих) электронов проводимости в грануле,

$$f(\varepsilon_p - \mu) = \{1 + \exp[(\varepsilon_p - \mu)/k_B T]\}^{-1}. \quad (4)$$

Если спектр состояний известен, из уравнения (3) можно определить химический потенциал нейтральных кластеров Au_N . Энергия Ферми немагических кластеров совпадает с реальным уровнем в кластере. Для магических она располагается в запрещенных промежутках между термами. Температурная зависимость энергии Ферми (рис. 2), как и ожидалось, является слабой и полностью определяется систематикой уровней в ямах, а также числом электронов. Вычисления показывают, что температурный градиент химического потенциала может быть как положительным, так и отрицательным, а при некоторых температурах меняет знак. Похожие зависимости $\mu(R, T)$ для магических кластеров Na_N были рассчитаны в [21].

Между кластером и электродами возникает контактная разность потенциалов (см. рис. 1)

$$\delta\phi = (W_0 + \mu)/e. \quad (5)$$

Равновесие будет достигаться путем зарядки кластера, так как его емкость конечна. Если $|\mu| < W_0$, кластер заряжается положительно с зарядом $Q_0 = -e(N' - N_0) > 0$, где N' определяется решением уравнения (3) с заменой $\mu \rightarrow -W_0$ и спектром ε_p , сдвинутым на $-e\delta\phi$ в соответствии с теоремой Купменса (см. комментарии к формуле (38) в [22]). Таким образом, получим, что

$$Q_0 = C\delta\phi. \quad (6)$$

Это выражение отличается от определения Q_0 в ортодоксальной теории [6]. В квазиклассическом приближении ($W_0 + \mu(R) = \mu_1/R$, $\mu_1 = 1.9 \text{ eV} \cdot a_0$) имеем $Q_0 \simeq +0.07e$ для всех металлов [19]. Дробность заряда поясняется тем, что в структурах с проницаемыми барьерами волновые функции электронов не являются хорошо локализованными и электроны не могут трактоваться как классические частицы, поэтому фракция электрона (и его заряда) может быть обнаружена в другом электроде [1,15].

Значение $Q_0 \approx +0.5e$ лучше всех остальных соответствует эксперименту [8] (см. рис. 2, *в* в [8]), в котором измерялась ВАХ структуры, сформированной из двух крайних электродов (сплав Pb) и гранулы In радиуса $R = 100 \text{ nm}$ разделенных окисными пленками. Интересно оценить Q_0 по (6). Поскольку работа выхода

сплава неизвестна, используя соответственно 4 и 3.8 eV для Pb и In, получим значительно отличающуюся величину $Q_0 \approx +13.6e$. Однако, если принять правильной величину $Q_0 \approx +0.5e$, можно решить обратную задачу и найти работу выхода сплава свинца, используемого в эксперименте: 3.8012 eV (вместо 4 eV для Pb).

2.2. Структура под напряжением. Рассмотрим центральный электрод-гранулу во внешнем электрическом поле. Между эмиттером и коллектором приложено напряжение V . Решая отдельно электростатическую задачу для структуры, показанной на рис. 1, когда между гранулой и эмиттером находится слой диэлектрика толщиной d_e с диэлектрической проницаемостью ϵ , имеем для фракции

$$\eta = \frac{\epsilon_2 \epsilon_3 (d_e + \epsilon_1 L / 2 \epsilon_2)}{\epsilon_1 \epsilon_2 d_c + \epsilon_1 \epsilon_3 L + \epsilon_2 \epsilon_3 d_e} \equiv \eta^+, \quad (7)$$

где $L \equiv 2R$ или H для сферы радиуса R и диска толщиной H соответственно, $\epsilon_1 \equiv \epsilon$, $\epsilon_2 = \epsilon_3 = 1$. В квазиклассическом приближении выражение для энергии заряженной гранулы во внешнем электрическом поле приобретает вид

$$\begin{aligned} \tilde{E} = & \tilde{E}_{00} + \mu \Delta N - e \Delta N \eta V + (\Delta N)^2 \tilde{E}_C / 2 \\ & - \alpha V^2 / 2 (d_e + L + d_c)^2, \end{aligned} \quad (8)$$

где \tilde{E}_{00} — энергия в отсутствие поля и зарядки, α — поляризуемость кластера [23]. Для удобства в дальнейшем будем использовать обозначение $n \equiv \Delta N$.

В результате зарядки возникающие внутренние механические напряжения могут приводить к кулоновской нестабильности (и даже к кулоновскому взрыву). Для уединенного „сферического“ кластера в отсутствие поля эта задача рассмотрена в [19]. Обобщая эти результаты, для максимального электронного или ионного избыточного заряда в квазиклассическом приближении получим выражение

$$\mp \{(-\mu_{e,i} + |e\eta V|)R/e + e/2\}. \quad (9)$$

Например, для положительной ветви ($V > 0$) ВАХ в пределах 0–2 V имеют место следующие варианты:

а) $\eta \ll 1$. Переходы электронов между эмиттером и кластером происходят чаще, чем между кластером и коллектором, поэтому на кластере накапливаются электроны. В этом режиме максимально возможное их число

$$n_{\max} \simeq W_e R / e^2 + 1/2,$$

где $W_e = W_{e0} - \mu_{e1}/R$, $n_{\max} \simeq +(2.5-6.5)$.

б) $\eta \approx 1$. Переходы электронов между кластером и коллектором происходят чаще, чем между кластером и эмиттером, поэтому на кластере наблюдается недостаток электронов. Это число находится через работу выхода ионов

$$n_{\min} = -(W_i + |e\eta V|)R/e^2 - 1/2,$$

где $W_i = W_{i0} - \mu_{i1}/R$, $n_{\min} \approx -(4-11)$.

Аналогично и в остальных случаях. При вычислении тока целые числа n_{\max} и n_{\min} ограничивают сумму, входящую в приведенную далее формулу (22). Учет квантования уровней может изменить эти числа не более чем на ± 1 в соответствии с первым неравенством в (1) [19].

Эффективная частота столкновений возбужденных (нетермализованных) электронов в кластере определяется как

$$\tau_e^{-1} = \tau^{-1} + v_F R^{-1}, \quad v_F = (\hbar/mr_s)(9\pi/4)^{1/3}, \quad (10)$$

где τ — время релаксации в металле, обусловленное электрон-электронными столкновениями ($\tau \cdot 10^{14} = 6.23$ с для Au при $T = 75$ К [24]), а v_F — скорость фермиевских электронов в металле. Оценка в [25] дает преимущественное рассеяние электронов на стенках ямы и $\tau_e \simeq R/v_F$, что приводит к $\tau_e \Delta \varepsilon \simeq (0.52 - 0.17)\hbar$, т.е. к уширению уровней. Только условие низкой температуры (второе из неравенств (1)), когда распределение электронов близко к ступенчатому, дает возможность проявления дискретности спектра при резонансном протекании тока. Термализация „новых высокоэнергетических“ электронов в кластере происходит гораздо быстрее, чем акты туннелирования, они пополняют число собственных электронов кластера, меняя их распределение и соответственно химический потенциал. Это состояние будет стартовым для следующего акта туннелирования.

3. Основные энергетические и кинетические соотношения

Установим связь между энергией электрона в кластере, которая будет фигурировать в процессах переноса, и энергией того же электрона в одном из электродов. В качестве начального состояния системы выберем то, при котором на кластере присутствует n избыточных электронов. Будем считать, что при туннелировании полная энергия всех трех электродов \tilde{E} не изменяется. Используя (8), для перехода δN электронов с эмиттера на гранулу ($\delta N = 1$) имеем

$$\delta \tilde{E} = (-\delta N) \vec{\varepsilon}^e + (+\delta N) \varepsilon_p + \frac{(-e)^2}{2C} [(n + \delta N)^2 - n^2] - e \delta N \eta V = 0. \quad (11)$$

Это выражение записано в результате цикла: суммируются энергии ионизации электрона с уровня $\vec{\varepsilon}^e$ на эмиттере (электрическая емкость которого равна бесконечности) и энергии прилипания его на уровень ε_p в грануле емкости C , на которой уже находятся n электронов. Стрелкой сверху обозначаются энергии, которые находятся в результате соответствующих переходов согласно расположению электродов на рис. 1.

Для прямой ветви ВАХ с учетом контактной разности потенциалов (5), руководствуясь правилом (11) и выражением (8), имеем

$$\vec{\varepsilon}^e = \varepsilon_p + \tilde{E}_C(n + 1/2) - e\eta V, \quad (12)$$

где $\varepsilon_p \equiv \varepsilon_p - e\delta\phi$. Полагаем, что $n = n(V)$ и $n = 0$ при $V = 0$. При этом гранула имеет заряд Q_0 . Поэтому будем трактовать n как число, обусловленное приложенным напряжением.

Если же электрон переходит из гранулы в эмиттер, то в результате ионизации n -го избыточного электрона гранулы и прилипания его к эмиттеру имеем

$$\vec{\varepsilon}^e = \varepsilon_p + \tilde{E}_C(n - 1/2) - e\eta V. \quad (13)$$

Аналогично для переходов гранула–коллектор и коллектор–гранула

$$\overleftarrow{\varepsilon}^c = \varepsilon_p + \tilde{E}_C(n \mp 1/2) + e(1 - \eta)V, \quad (14)$$

где верхние/нижние знаки слева согласуются со знаками справа. Независимо от величины n соблюдаются соотношения

$$\vec{\varepsilon}^e - \overleftarrow{\varepsilon}^e = \tilde{E}_C = \overleftarrow{\varepsilon}^c - \vec{\varepsilon}^c,$$

которые и подтверждают наличие циклов ионизации и прилипания по аналогии с известным соотношением $IP - EA = \tilde{E}_C$ для кластеров (см. например, [19]). Выражения (12)–(14) отражают „золотое правило“ переходов. Ранее при построении аналогичных теорий наличие контактной разности потенциалов не принималось во внимание (см., например, [26]).

Туннелирование отдельного электрона через барьер является всегда случайным событием, протекающим с определенной скоростью Γ — вероятностью в единицу времени. Туннельные скорости переходов из состояний эмиттера/коллектора в состояние на грануле зависят от геометрии переходов и фракции напряжения η . Их вычисление в общем случае является далеко не тривиальной задачей [2,15]. Будем считать, что они малы [2], а температура является не слишком низкой, т.е.

$$k_B T > \hbar(\Gamma^e + \Gamma^c) \ll \min\{\Delta\varepsilon_p, \tilde{E}_C\}. \quad (15)$$

Если условия (15) выполняются, динамика туннелирования описывается управляющим уравнением.

По аналогии с теорией [6] введем парциальные скорости туннелирования (с электродов) на гранулу

$$\vec{\omega}_n^e = 2 \sum_p \Gamma(\vec{\varepsilon}^e) f(\vec{\varepsilon}^e + W_V^e) [1 - f(\vec{\varepsilon}^e - \vec{\mu}_C^e)], \quad (16)$$

$$\overleftarrow{\omega}_n^c = 2 \sum_p \Gamma(\overleftarrow{\varepsilon}^c) f(\overleftarrow{\varepsilon}^c + W_V^c) [1 - f(\overleftarrow{\varepsilon}^c - \overleftarrow{\mu}_C^c)] \quad (17)$$

и с гранулы на электроды

$$\overleftarrow{\omega}_n^e = 2 \sum_p \Gamma(\overleftarrow{\varepsilon}^e) [1 - f(\overleftarrow{\varepsilon}^e + W_V^e)] f(\overleftarrow{\varepsilon}^e - \overleftarrow{\mu}_C^e), \quad (18)$$

$$\overrightarrow{\omega}_n^c = 2 \sum_p \Gamma(\overrightarrow{\varepsilon}^c) [1 - f(\overrightarrow{\varepsilon}^c + W_V^c)] f(\overrightarrow{\varepsilon}^c - \overrightarrow{\mu}_C^c), \quad (19)$$

где множитель 2 обусловлен спиновым вырождением уровней в электродах. С учетом приложенного напряжения (и зарядки для гранулы) спектры (см. (12)–(14)) автоматически сдвигаются в распределениях (2) и (4) для коллектора и гранулы; соответственно сдвигаются и химические потенциалы:

$$W_V^e \equiv W_0^e, \quad \overleftarrow{\mu}_C^e = \mu - e\delta\phi + \tilde{E}_C(n \mp 1/2) - e\eta V,$$

$$\overrightarrow{\mu}_C^c = \mu - e\delta\phi + \tilde{E}_C(n \pm 1/2) + e(1 - \eta)V,$$

$$W_V^c = W_0^c + eV.$$

В первом приближении теории возмущений [22] (при малых V) μ будет определяться не только формальным сдвигом глубины ямы, но и числом электронов проводимости в данном состоянии ($N = N_0 = n_q$, в n_q входит также и Q_0). Использование химических потенциалов справедливо в квазиравновесном (метастабильном) состоянии, т.е. в промежутках между актами туннелирования, когда время релаксации гранулы много меньше этих промежутков. Предполагается также, что внешнее поле и кулоновская блокада (зарядка кластера) не снимают вырождения уровней. Обозначим полные скорости переходов электронов на гранулу и обратно на электроды как

$$\omega_n^{\text{in}} = \overrightarrow{\omega}_n^e + \overleftarrow{\omega}_n^c, \quad \omega_n^{\text{out}} = \overleftarrow{\omega}_n^e + \overrightarrow{\omega}_n^c.$$

Введем вероятность P_n нахождения n избыточных электронов на островке. Она определяется на основании решения уравнения Паули для матрицы плотности [27] или управляющего уравнения (master equation) [3,4]

$$\frac{\partial P_n}{\partial t} = \omega_{n+1}^{\text{out}} P_{n+1} + \omega_{n-1}^{\text{in}} P_{n-1} - (\omega_n^{\text{in}} + \omega_n^{\text{out}}) P_n$$

$$\equiv \frac{1}{-e} (I_{n+1}^e + I_{n+1}^c) P_{n+1} + \frac{1}{-e} (I_{n-1}^e + I_{n-1}^c) P_{n-1}$$

$$- \frac{1}{-e} (I_n^e + I_n^c - I_n^c - I_n^c) P_n, \quad (20)$$

где \overrightarrow{I}^e и \overleftarrow{I}^c — электрические токи через оба туннельных перехода на гранулу, $\overleftarrow{I}^e, \overrightarrow{I}^c$ — в обратных направлениях. Условие стационарности $\partial P_n / \partial t = 0$ приводит к рекуррентному соотношению

$$P_{n+1} = P_n \frac{\omega_n^{\text{in}}}{\omega_{n+1}^{\text{out}}}. \quad (21)$$

Постоянный ток, текущий через квантовую гранулу (с ограничением на ее неустойчивость (9)), определяется как

$$I = -e \sum_{n_{\text{min}} < 0}^{n_{\text{max}} > 0} P_n (\overrightarrow{\omega}_n^e - \overleftarrow{\omega}_n^e) = -e \sum_{n_{\text{min}} < 0}^{n_{\text{max}} > 0} P_n (\overrightarrow{\omega}_n^c - \overleftarrow{\omega}_n^c). \quad (22)$$

Рассмотрим экзотический случай „сильного“ квантования электронного спектра в грануле [6]

$$\Delta\varepsilon_p \gg \tilde{E}_C.$$

Такой режим гипотетически достигается сильным увеличением емкости кластера (форму кластера необходимо изменить на игло- или дискообразную) при условии сохранения его объема (см., например, [19]). При этом остаточный заряд Q_0 в (6), обеспечивающий контактную разность потенциалов, пропорционален емкости и может быть очень большим. При приложении напряжения на фоне Q_0 поступающие дополнительно электроны в этом режиме не влияют на энергетику кластера. Тогда в (12)–(14) членами $\sim \tilde{E}_C$ можно пренебречь. В этом случае при низких температурах $k_B T \ll \{\Delta\varepsilon_p, \tilde{E}_C\}$ теоретическая ВАХ представляет собой квантовую лестницу. На самом же деле такой режим не удастся достичь даже на цепочке атомов [19]. Тем не менее он полезен с методической точки зрения для анализа щели тока на ВАХ.

В качестве допущения будем полагать туннельные скорости фиксированными при энергии Ферми электронов в эмиттере. Это справедливо для малых напряжений в структуре. Используя выражения (12)–(14) и (4), найдем разности

$$\overrightarrow{\omega}_n^e - \overleftarrow{\omega}_n^e = \Gamma^e \left[2 \sum_p f(\varepsilon^e + W_0^e) - N \right], \quad (23)$$

$$\overrightarrow{\omega}_n^c - \overleftarrow{\omega}_n^c = \Gamma^c \left[N - 2 \sum_p f(\varepsilon^c + W_0^c) \right], \quad (24)$$

где $N = N_0 + n_q$. Подставим эти выражения в (22), используя нормировку

$$\sum_n P_n = 1, \quad (25)$$

имеем

$$\frac{2}{\Gamma^e + \Gamma^c} \sum_n P_n \sum_p [\Gamma^e f(\varepsilon^e + W_0^e) + \Gamma^c f(\varepsilon^c + W_V^c)]$$

$$= \sum_n P_n N = N_0 + \langle n_q \rangle. \quad (26)$$

Заменяя N в (23) на $N_0 + \langle n_q \rangle$, а затем возвращаясь к (22), получим

$$I = I_0 \sum_p [f(\varepsilon^e + W_0^e) - f(\varepsilon^c + W_V^c)], \quad (27)$$

где $I_0 = 2e\Gamma^e\Gamma^c / (\Gamma^e + \Gamma^c)$. При $T \rightarrow 0$ выражение (27) удобно представить в виде комбинации ступенчатых функций.

Напомним, что выражения в данном разделе записаны для прямой ветви напряжения на ВАХ. Обратную ветвь можно получить, установив на коллекторе $V = 0$, а на эмиттере $V > 0$. Тогда

$$\eta^- = 1 - \eta^+.$$

При таком построении, например, величина I_0 в (27) будет различной на прямой и обратной ветвях, так как отношение туннельных скоростей и потоков будет другим.

В общем случае для вычисления ВАХ (22) необходимо знать вероятности P_n . Их статистическое определение является сложной задачей [28]. В экспериментальных ситуациях форма, размер кластеров и их местоположение известны лишь приблизительно, поэтому выполнение трудоемких расчетов в этих случаях нецелесообразно. Для нахождения P_n можно использовать аналитическую процедуру и рекуррентные соотношения.

4. Результаты вычислений и их обсуждение

До приложения поля кластер заряжен положительно. На рис. 3 приведена размерная зависимость заряда $Q_0(N_0)$ (6) для исследуемых кластеров золота. Для сферических кластеров на всем интервале размеров $Q_0 < e$. Для дискообразных кластеров вследствие их постоянной (одноатомной) толщины и переменного радиуса Q_0 может принимать значения, большие e . Середины скачков зависимостей $Q_n(N_0)$ соответствуют магическим кластерам. Величина Q_0 фактически близка к критическому заряду [19], поэтому дополнительная зарядка кластера по сравнению с Q_0 может привести к кулоновской блокаде или „взрыву“ кластера.

На основе приведенного выше анализа нетрудно сделать вывод, что при увеличении разности потенциалов на прямой ветви токовой щели ВАХ происходит: 1) возвращение электронного заряда на кластер, так что он „в среднем“ является нейтральным в том случае, если находится вблизи эмиттера, т.е. $\eta^+ \ll 1$; 2) дальнейшее стекание электронного заряда с кластера, если он находится вблизи коллектора, т.е. когда реализуется режим $\eta^+ \leq 1$.

Затем вступает в действие первое из неравенств (1). Если $\tilde{E}_C < \Delta \epsilon_p$, то размер щели от кулоновской блокады должен зависеть слабо и определяться только решением (27). Слагаемые в (27) являются конкурирующими. Особенно эта конкуренция заметна для магических кластеров (из-за положения химического потенциала электронов гранулы).

Задавая $d_c, \beta = \Gamma^e/\Gamma^c$ и используя рекуррентные соотношения (21), можно вычислить приведенный ток $\tilde{I} \equiv I/(eP_0\Gamma^e)$ для любой кластерной структуры по общей формуле (22). Мы не проводим отдельно вычисления пороговых напряжений, в наших расчетах они находятся автоматически.

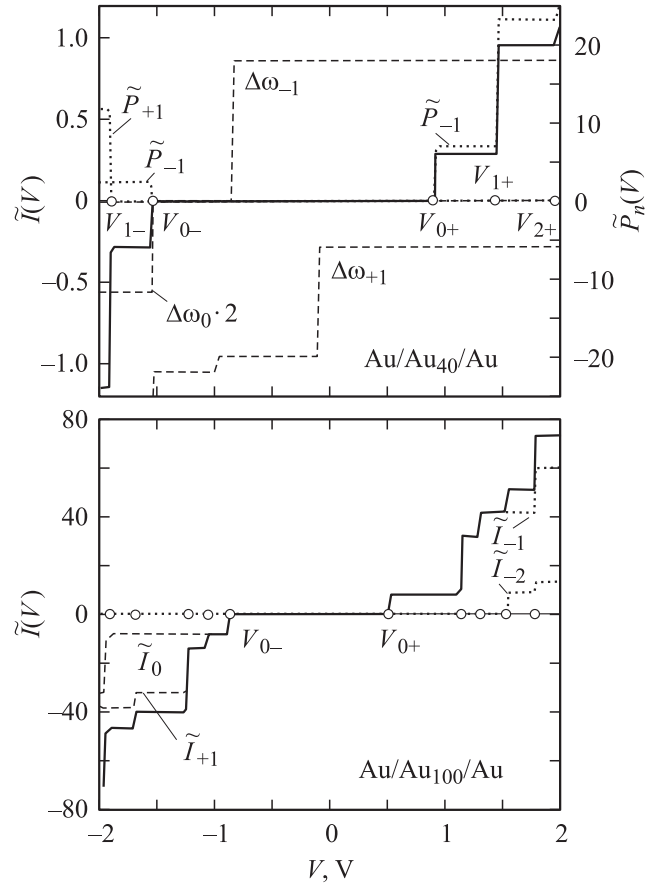


Рис. 4. Расчетные зависимости тока $\tilde{I}(V)$ (сплошные линии) и его компонент в (22) для структур на сферах. $\beta = 1$, $\eta^+ = 0.1$, $T = 30$ К. $\Delta\omega_n(V)$ приведены в единицах Γ^e .

На рис. 4 представлена рассчитанная ВАХ структуры $\text{Au}/\text{Au}_{N=40}/\text{Au}$ на сферическом кластере. Для удобства анализа приведены также зависимости вероятностей $\tilde{P}_n(V) \equiv P_n/P_0$ и $\Delta\omega_n = \overrightarrow{\omega}_n^e - \overleftarrow{\omega}_n^e$ от напряжения. Химический потенциал электронов магического кластера Au_{40} не совпадает с реальным уровнем. При нулевом напряжении после выравнивания химических потенциалов кластера и электродов верхний занятый уровень ϵ^{HO} при $T = 0$ лежит ниже химического потенциала электродов. На данном интервале напряжений ненулевыми оказываются только вероятности $\tilde{P}_0, \tilde{P}_{-1}, \tilde{P}_{+1}$. Первый скачок тока на обратной ветви ВАХ возникает при пороговом напряжении V_{0-} и полностью определяется скачком потока $\Delta\omega_0$. Следующий скачок тока при напряжении V_{1-} обусловлен изменением вероятности P_{+1} .

На прямой ветви ВАХ первый скачок при $V = V_{0+}$ определяется только $\tilde{P}_{-1}(V)$. В зависимости от n зарядка приводит к сдвигу спектра либо вверх, либо вниз по шкале энергий в соответствии с (12)–(14). При этом в процессе переноса задействуются разные части спектра — либо ниже-, либо вышележащие — с различной дистанцией между уровнями (наиболее это заметно для больших кластеров).

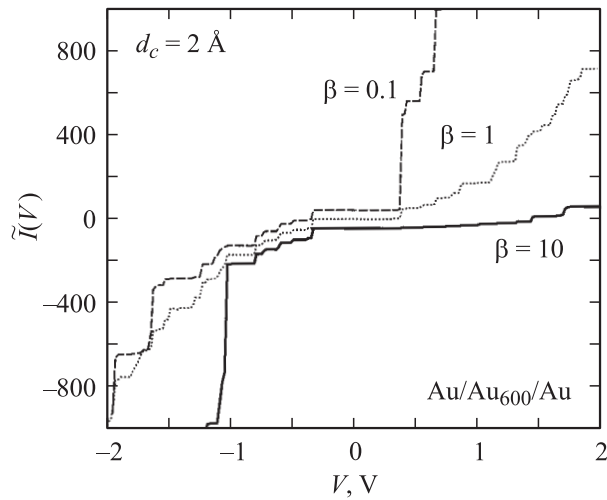


Рис. 5. Расчетная зависимость $\tilde{I}(V, \beta)$ при $T = 30$ К для структур на сферических кластерах. Для наглядности кривые слегка сдвинуты по вертикали.

На рис. 4 представлен также аналогичный расчет для структуры на сферическом кластере Au_{100} . Для выяснения причин возникновения скачков ток $\tilde{I}(V)$ удобно представить как $\sum_n \tilde{I}_n(V)$ в соответствии с (22).

С увеличением размера кластера влияние вероятностей $P_{|n|>1}$ на скачки тока вне токовой щели становится более заметным.

Принято считать, что на положительной ветви в области щели тока всегда доминирует вероятность P_{+1} , тогда как в наших расчетах независимо от размера кластера при $V = V_{0\pm}$ скачки тока определяются значениями $n = 0, -1$. Это связано с тем, что поток электронов с гранулы на коллектор может происходить с уровней, лежащих ниже химического потенциала электронов, поэтому поток электронов гранула–коллектор больше, чем поток эмиттер–гранула и гранула заряжена положительно (т.е. $n = -1$). Величину щели тока $\Delta V_g = V_{0+} + |V_{0-}|$ можно выразить как

$$|V_{0\pm}| = \frac{\tilde{E}_c/2 + \Delta\epsilon}{(2 - \eta^\pm)},$$

где $\Delta\epsilon = \{-\epsilon^{\text{LU}} + \mu_p; 0\}$ для магических и немагических кластеров соответственно.

На рис. 5 изображена ВАХ структуры $\text{Au}/\text{Au}_{600}/\text{Au}$ при различных значениях параметра β и постоянном $d_c = 2 \text{ \AA}$, что соответствует экспериментальным значениям $\eta^+ \simeq 0.5$. Оказалось, что величины скачков тока практически не зависят от d_c , но сильно зависят от величины параметра β , который в свою очередь не влияет на значения пороговых напряжений. При $\eta^+ = 0.5$ для всех кластеров щели тока симметричны относительно $V = 0$.

На рис. 6 представлены рассчитанные по (22) зависимости $\Delta V_g(N, V)$ для сферических и дискообразных кластеров. Наибольшие величины ΔV_g соответствуют

магическим кластерам, для которых $\Delta\epsilon \neq 0$. Сплошными линиями обозначены щели, рассчитанные для режима „сильного“ квантования (27) спектра. В этом случае размер токовой щели немагических кластеров равен нулю. Это обусловлено несовпадением фермиевского уровня в эмиттере с дискретным уровнем в грануле. Сравнение двух зависимостей показывает, что зарядка приводит к росту щели.

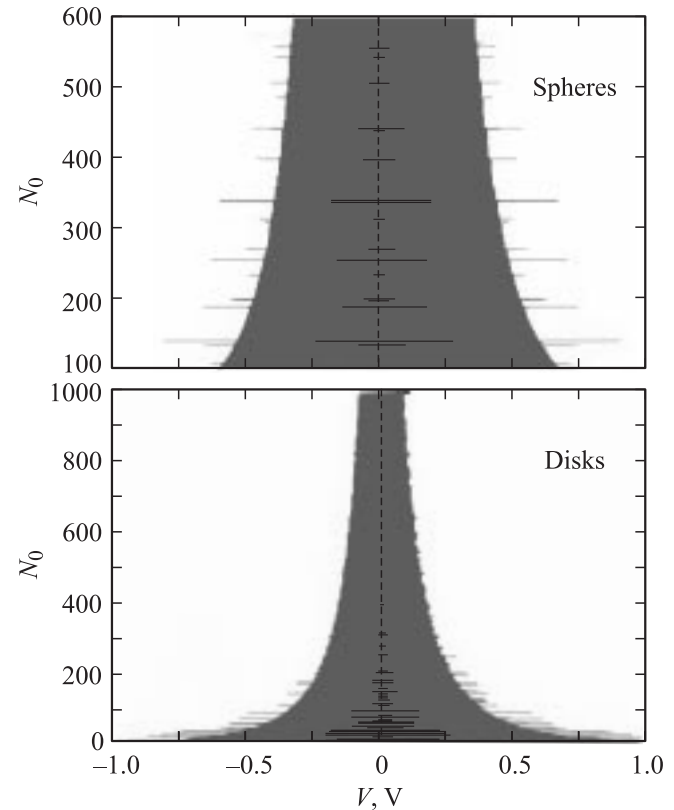


Рис. 6. Рассчитанная по (22) щель тока при $\beta = 10$ и $d_c = 2 \text{ \AA}$ для структур на сферах и дисках. В центре сплошными линиями показаны результаты расчета по формуле (27) для случая „сильного“ квантования.

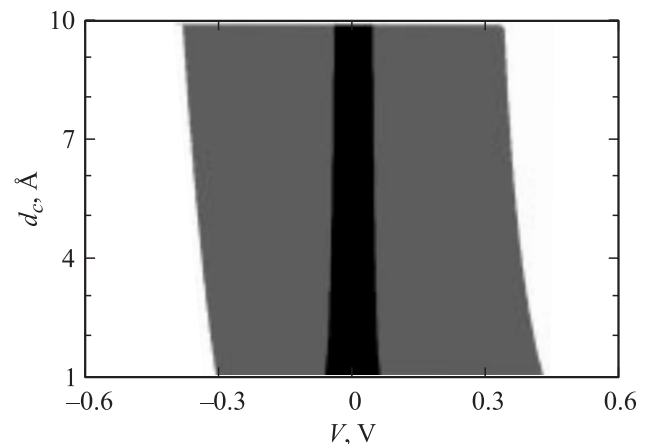


Рис. 7. Рассчитанная по (22) и (27) зависимость щели тока от d_c при $\beta = 10$ для диска Au_{178} .

На рис. 7 показана зависимость щели тока от расстояния гранула–коллектор d_c . Вычисления демонстрируют слегка немонотонную зависимость $\Delta V_g(d_c)$. Напомним, что в экспериментах [13,14] величина щели убывает от 0.8 до 0.4 V, а затем возрастает до 0.7 V при циклическом изменении $d_c \simeq 1 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \text{ \AA}$. Причины такого значительного различия, по видимому, заключаются в проявлении следующих эффектов: уширения уровней, усиления нелинейностей в сильном электрическом поле, зависимости туннельных скоростей от энергии. При высоких скоростях туннелирования емкость перестает быть классической и может сильно возрасть [29,30] (при этом уменьшается \tilde{E}_c), проявляя немонотонную зависимость от Γ^c . Это означает, что в реальности мы имеем дело с промежуточным случаем между „предельными“ вычислениями по формулам (22) и (27).

Обсудим другие особенности туннельной конструкции, которые делают неоднозначным данное рассмотрение. Несмотря на то что эмиттер и коллектор сделаны из одного материала, химические потенциалы электронов в этих электродах не равны: эмиттер представляет собой толстую пленку Au(111), а коллектор — поликристалл Au, их работы выхода различны [31]. Работа же выхода низкоразмерных структур (и кластеров в том числе), по-видимому, подчиняется неравенству $W < W_0$ [22]. Кроме того, эмиттер покрыт слоем диэлектрика, что также влияет на работу выхода электронов из эмиттера. Оценим этот вклад.

Исходя из косвенных экспериментальных измерений [32] работа выхода уменьшается с ростом ϵ . В [33] проведены вычисления работы выхода W_d электронов для цилиндрических нанопроволок щелочных металлов, погруженных в диэлектрик: W_d уменьшается примерно на 20% при увеличении ϵ от 1 до 4. Основной вклад при этом можно отнести к изменению величины электростатического дипольного барьера: его вклад в работу выхода системы золото–вакуум составляет до 30% [31]. Следовательно, эта величина и составляет верхнюю границу изменения работы выхода W_d системы металл–диэлектрик–вакуум. Вследствие того что $W_d < W_0$, в принципе возможно достижение обратного неравенства $W_d < W$, что приведет к зарядке кластера отрицательным зарядом еще до приложения внешнего поля. Контакт кластера с диэлектрической пленкой также изменит положение дна потенциальной ямы. На энергетическую диаграмму структуры может повлиять и переход металл–диэлектрик кластеров золота [34].

Приложение. Расчет электронного спектра в кластерах

Спектр волновых чисел в сферической и цилиндрической потенциальной яме глубиной U_0 определяется из условия непрерывности логарифмической производной волновой функции на границе ямы.

Для диска радиуса R и толщины H необходимо решить уравнение

$$k_{nm} \frac{I'_m(k_{nm}R)}{I_m(k_{nm}R)} = \chi_{nm} \frac{K'_m(\chi_{nm}R)}{K_m(\chi_{nm}R)}. \quad (\text{П1})$$

Здесь $k_{nm} = \sqrt{k_0^2 - \chi_{nm}^2}$, $\hbar k_0 = \sqrt{2m_e|U_0|}$, I_m — функция Бесселя, K_m — функция Макдональда, $m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, штрих означает производную по всему аргументу, m_e — масса электрона. Число $n = 1, 2, 3, \dots$ нумерует корни уравнения (П1) для заданного значения m .

Воспользуемся теорией возмущений [19]

$$k_{nm} = k_{nm}^{(0)} + k_{nm}^{(1)} + \dots, \quad |k_{nm}^{(1)}/k_{nm}^{(0)}| \ll 1,$$

где в качестве нулевого приближения $k_{nm}^{(0)}$ взят спектр бесконечно глубокой цилиндрической ямы. Числа $k_{nm}^{(0)}$ определяются решениями уравнения

$$I_m(k_{nm}^{(0)}R) = 0.$$

Найденная поправка первого порядка имеет вид

$$k_{nm}^{(1)} = \frac{k_{nm}^{(0)} K_m(\chi_{nm}^{(0)}R)}{R \chi_{nm}^{(0)} K'_m(\chi_{nm}^{(0)}R)}.$$

Вычисления для перечисленных выше параметров приводят к результату $k_{nm}^{(1)} < 0.07 k_{nm}^{(0)}$, подтверждающему достаточную точность теории возмущений для данной задачи.

Квантование компоненты волнового вектора вдоль оси цилиндра k_s определяется решением уравнения

$$k_s H = s\pi - 2 \arcsin(k_s/k_0),$$

где s — целые числа. Пренебрегая областью вблизи ребер оснований, спектр электронов в диске можно вычислить следующим образом:

$$\epsilon_{nms} = U_0 + \frac{\hbar^2}{2m_e} (k_{nm}^2 + k_s^2).$$

Помимо вырождения по спину имеет место двукратное вырождение по знаку индекса m , так как $k_{n,m} = k_{n,-m}$.

Спектры кластеров обозначаются как ϵ_p . Все уровни нумеруются в порядке возрастания энергии, $p = 1, 2, 3, \dots$ — номер одноэлектронного состояния.

Список литературы

- [1] K.K. Likharev. Proc. IEEE **87**, 606 (1999).
- [2] J. von Delft, D.C. Ralph. Phys. Rep. **345**, 61 (2001).
- [3] И.О. Кулик, Р.И. Шехтер. ЖЭТФ **68**, 623 (1975).
- [4] Д.В. Аверин, А.Н. Коротков. ЖЭТФ **97**, 1661 (1990).
- [5] C.W.J. Beenakker. Phys. Rev. B **44**, 1646 (1991).
- [6] D.V. Averin, A.N. Korotkov, K.K. Likharev. Phys. Rev. B **44**, 6199 (1991).
- [7] A.N. Korotkov, Yu.V. Nazarov. Physica B **173**, 217 (1991).

- [8] Л.С. Кузьмин, К.К. Лихарев. Письма в ЖЭТФ **45**, 389 (1987).
- [9] S.T. Ruggiero, T.B. Ekkens. J. Phys.: Cond. Matter **13**, 1819 (2001).
- [10] T. Ohgi, H.-Y. Sheng, Z.-C. Dong, H. Nejoh, D. Fujita. Appl. Phys. Lett. **79**, 2453 (2001).
- [11] T. Ohgi, D. Fujita. Phys. Rev. B **66**, 115 410 (2002); Physica E **18**, 349 (2003).
- [12] T. Ohgi, Y. Sakotsubo, Y. Ootuka, D. Fujita. Appl. Phys. Lett. **84**, 604 (2004).
- [13] B. Wang, X. Xiao, X. Huang, P. Sheng, J.G. Hou. Appl. Phys. Lett. **77**, 1179 (2000).
- [14] J.G. Hou, B. Wang, J. Yang, X.R. Wang, H.Q. Wang, Q. Zhu, X. Xiao. Phys. Rev. Lett. **86**, 5321 (2001).
- [15] М.Я. Азбель. УФН **168**, 613 (1998).
- [16] D.M. Kaplan, V.A. Sverdlov, K.K. Likharev. Phys. Rev. B **68**, 045 321 (2003).
- [17] R. Parthasarathy, X.-M. Lin, K. Elteto, T.F. Rosenbaum, H.M. Jaeger. Phys. Rev. Lett. **92**, 076 801 (2004).
- [18] Р.Б. Лафлин. УФН **170**, 292 (2000).
- [19] Е.В. Васюгин, В.В. Погосов. ФТТ **46**, 1861 (2004).
- [20] Е.С. Солдатов, В.В. Ханин, А.С. Трифонов, С.П. Губин, В.В. Колесов, Д.Е. Преснов, С.А. Яковенко, Г.Б. Хомутов, А.Н. Коротков. УФН **168**, 217 (1998).
- [21] L.I. Kurkina, O.V. Farberovich. Solid State Commun. **98**, 469 (1996).
- [22] В.П. Курбацкий, В.В. Погосов. ФТТ **46**, 526 (2004).
- [23] D.R. Snider, R.S. Sorbello. Phys. Rev. B **28**, 5702 (1983).
- [24] А.В. Соколов. Оптические свойства металлов. Наука, М. (1961).
- [25] В.П. Курбацкий, В.В. Погосов. Письма в ЖТФ **26**, 84 (2000).
- [26] V.V. Shorokhov, E.S. Soldatov, O.V. Snigirev. Thin Solid Films **464–465**, 445 (2004).
- [27] С. Фудзита. Введение в неравновесную квантовую статистическую механику. Мир, М. (1969).
- [28] M. Brack, O. Genzken, K. Hansen. Z. Phys. D **21**, 65 (1991).
- [29] J. Wang, H. Guo, J.-L. Mozos, C.C. Wan, G. Taraschi, Q. Zheng. Phys. Rev. Lett. **80**, 4277 (1998).
- [30] J. König, H. Schoeller. Phys. Rev. Lett. **81**, 3511 (1998).
- [31] V.V. Pogosov, O.M. Shtera. УФЖ **47**, 1065 (2002); Cond-mat/0310176.
- [32] А. Модинос. Авто-, термо- и вторично-электронная эмиссионная спектроскопия. Наука, М. (1990).
- [33] А.Н. Смогунов, Л.И. Куркина, О.В. Фарберович. ФТТ **42**, 1848 (2000).
- [34] H.-G. Boyen, A. Ethirajan, G. Kastle, F. Weigl, P. Ziemann, G. Schmid, M.G. Garnier, M. Buttner, P. Oelhafen. Phys. Rev. Lett. **94**, 016 804 (2005).