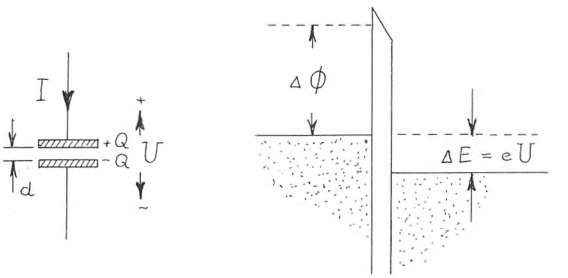
Korrelleret tunnellering i nanostrukturer

J. Mygind, Danmarks Tekniske Højskole

Tunnellering i en makroskopisk kondensator

I en kondensator, bestående af to metalplader adskilt af et isolatorlag, sker der ingen direkte overførsel af ladning mellem elektroderne. Påtrykkes kondensatoren en spænding, U, ændres overfladeladningen på pladerne ved, at der transporteres (lige mange!) elektroner til og fra systemet gennem tilledningerne. Når vi taler om ladningen, Q, på en kondensator, mener vi ladningen på den ene plade og underforstår, at systemet er ladningsneutralt. I vor (Maxwells) elektrodynamiske teori kaldes strømmen i tilledningerne for forskydningsstrømmen $I_D = \frac{dQ}{dt} = C\frac{dU}{dt}$. C er kapacitansen.

Strukturen kaldes en *tunneldiode*, når isolatorlaget gøres så tyndt, at det er af samme størrelse, som den rumlige udstrækning af bølgefunktionen for ledningselektronerne i pladerne. En given ledningselektron har da en endelig sandsynlighed for kvantemekanisk at tunnellere gennem isolatorbarrieren, og *der går en reel ladningsstrøm gennem* dioden - også når der påtrykkes en jævnspænding. Systemet er naturligvis fortsat ladningsneutralt. Billedligt afprøver en given elektron tilstandene i den modstående elektrode og "bestemmer sig for om den vil tunnellere".



Figur 1. Kvantemekanisk tunnellering i makroskopisk kondensator, hvor tykkelsen af isolatorlaget er af samme størrelse som den rumlige udstrækning af ledningselektronerne i de to metal elektroder.

Figur 1 viser en idealiseret situation. Hvor lang tid er elektronen om at tunnellere? Umiddelbart kan følgende tunnelleringstider bringes i forslag: $\tau_{probing} = h/\Delta E$ (en relativt lang tid, $\approx 10^{-13}$ s), $\tau_{direct} = h/\Delta\Phi$, eller $\tau_{flyve} = d/v_F$, hvor $\Delta E = eU$ er forskellen i det kemiske potential, $\Delta\Phi$ er barrierehøjden. d er barrieretykkelsen, v_F er Fermi-hastigheden, e er elementarladningen og h er Planck's

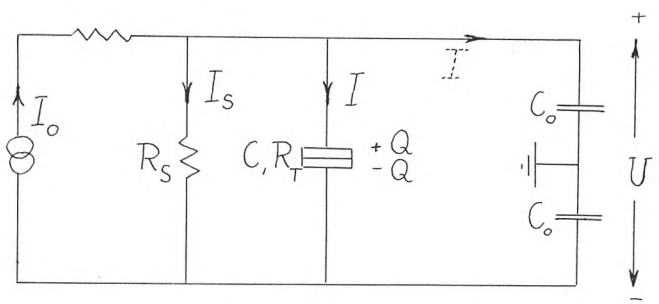


Scanning Elektron Mikroskop (SEM) billede af logo for Chalmers Tekniske Högskola, Göteborg lavet med submicron fabrikationsteknik (Electron Beam Lithography, AuPd tyndfilm, efter lift-off). De største bogstaver er ca. 1 μm ($1\cdot10^{-6}$ m) høje. Mindste liniebredde er 20 nm ($20\cdot10^{-9}$ m) med et effektivt skriveareal på 12,5 cm × 12,5 cm.

konstant. Sidstnævnte tunnelleringstider er meget korte $\approx 10^{-16}$ s. Som beskrevet senere synes der at være en afhængighed af omgivelserne i umiddelbar nærhed af det sted, hvor tunnelleringen foregår. Denne information om det mikroskopiske er af stor fysisk interesse.

Det afgørende er, at *tunnelleringsprocessen er diskret.* Netop en hel elektron (for superledere: et elektron-par, Cooper-par) d.v.s. et *helt* antal elementarladninger overføres i hver proces. Det kræver et øjebliks overvejelse at overtyde sig om, at man derimod i de metalliske tilledninger har en *kontinuert* strøm af ladning. En ledningselektron i et metal beskrives kvantemekanisk som plane bølger, der er overalt i lederen i.e. en vilkårlig lille brøkdel af elementarladningen kan leveres af omgivelserne gennem tilledningerne. Overfladeladningen $Q = U \cdot C$ på kondensatorpladerne og det elektriske felt herimellem er derfor kontinuerte variable. Kun ændringer i ladningen forårsaget af tunnellering af en enkelt elektron (Cooper-par) er en diskret begivenhed. På engelsk bruges forkortelserne SET (Single Electron Tunneling) og CPT (Cooper Pair Tunneling).

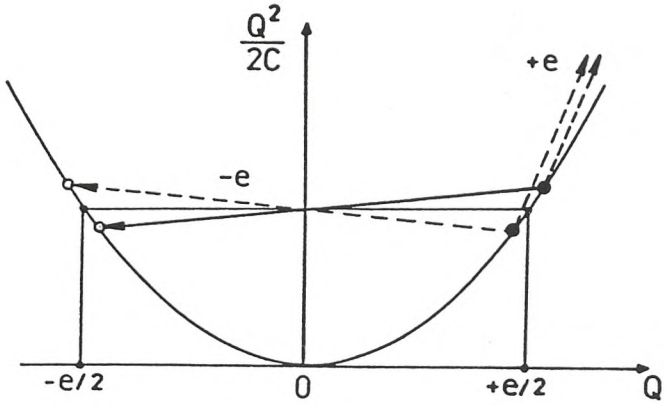
Tunnelstrømmen, I_T, er proportional med det effektive areal og udviser en eksponentiel afhængighed af tykkelsen af isolatorlaget. Desuden er tilstandstætheden for elektronerne i de to elektroder samt størrelsen af den påtrykte spænding af betydning. At SET og CPT er en stokastisk proces viser sig for $U > kT/e$ som "hagl-støj" (engelsk: shot noise) i tunnelstrømmen med en spektralfordeling govet ved Schottky's formel, $S(\omega) = \frac{1}{2\pi} eI_T$. $S(\omega)$, der som forventet er proportional med e, ladningen overført i en enkelt tunnelleringsproces, er velkendt i fotodektorer, halvlederelementer, m.m. I sædvanlige tunneldioder, hvor antallet af tunnelprocesser er meget stort, er dette nok den eneste målelige virkning af den diskrete ladningsoverførsel. Den kvantemekaniske beskrivelse er iøvrigt relativt enkel og indgår i pensum på de højere læreanstalter.



Figur 2. En tunneldiode med ekstremt lille areal er nødvendig for at vise SET/CPT-effekt. Bemærk nomenklaturen. Diagrammet viser en strømstyret diode med parasitisk shuntresistans og spredningskapacitans.

Tunneldioder med ekstremt lille areal

For at få en passende tunneleringssandsynlighed skal isolatorlaget være nogle få atomlag tykt. Det nemmeste er at anvende et 1-2 nm tykt naturligt oxydlag. Elektroderne er tynde metalfilm. Med moderne mikro-elektroniske fremstillingsmetoder (beskrevet nedenfor) kan det effektive diodeareal og dermed kapacitansen C gøres meget lille. Dette medfører, at spændingsændringen $\Delta U = e/C$ ved en SET proces kan blive stor. For en 10 μm × 10 μm diode er det ca. 0.1 μV. Selv ved meget lave temperaturer (1 K svarer til en spændingsfluktuation på $kT/e = 86\mu V$) drukner det i de termiske fluktuationer. Man skal bruge væsentligt mindre dioder eller alternativt måle ved milliKelvin temperaturer for klart at se SET og CPT. Med "state-of-the-art" dioder[1] (30 nm × 30 nm, C = 30 aF) er grænsetemperaturen $T_0 = \frac{e^2}{k2C}$ = 30K. Figur 2 viser nomenklatur og ækvivalentdiagram for en strømstyret SET/CPT diode med en shuntresistans, R_S, og spredningskapacitanser, C_0, til stel. R_T symboliserer diodens egen lækresistans.



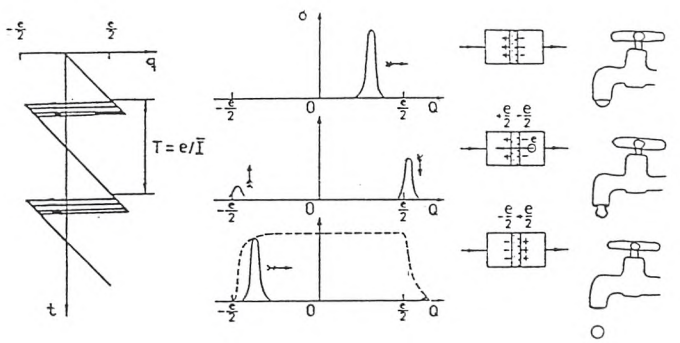
Figur 3. Ændring af ladningsenergien ½Q/C ved tunnellering af en enkelt elektron i en mesoskopisk diode. En energetisk favourabel proces er vist med pilen for $Q >$ ½e. $\Delta Q = -e$.

I ekstremt små dioder kan ladningsenergien $\frac{1}{2}CU^2 = \frac{1}{2}Q^2/C$ blive dominerende. Figur 3 viser, at det er favorabelt for en elektron at tunnellere, når $Q >$ ½e. $\Delta Q = \pm e$ ved processen. Til gengæld vil der ikke ske tunnellering for $|Q| <$ ½e, hvilket vil sige, at der går ikke jævnstrøm for bias spændinger $|U| < U_{\text{threshold}} = \frac{e}{2C}$. Dette kaldes *Coulomb blokade.*

Påtrykker vi en lille strøm, vil ladningen kontinuert bygges op til ½e, hvorpå en elektron tunnellerer. Herved ændres diodens ladning til -½e (indenfor tunneleringstiden), opladningen fortsætter, o.s.v. Dette leder til *relaxations-oscillationer* i Q og U med frekvensen f, bestemt af at middelværdien af strømmen $\langle I_T \rangle = n\,e\,f$. Som vist i figur 4 er situationen analog med en dryppende vandhane. Måler vi sammenhørende værdier for $\langle I \rangle$ og $\langle U \rangle$ fås diodens dc IU-karakteristik som angivet i figur 5.

Coulomb-blokaden medfører, at IU-karakteristikken for store negative og positive spændinger er parallelforskudt ned spændingen $U_{\text{offset}} = e/C$. Heraf kan C bestemmes. Hældningen er givet ved tunnelkonduktansen $G_T = 1/R_T$.

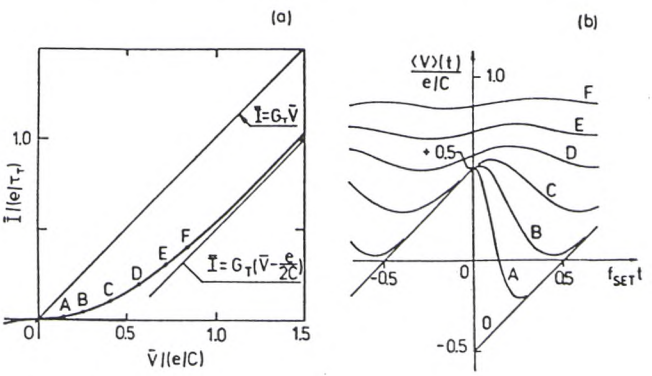
I det tidslige forløb vist på figur 4 er det antydet, at den tidslige korrelation af tunnelleringen f. eks. på grund af termiske fluktuationer ikke er perfekt. Hvis man kunne observere oscillationerne direkte (dette er endnu ikke gjort!) vil man se en spektralline omkring f med en endelig



Figur 4. Relaxationsoscillationer i ladningsopbygning og spænding. Bemærk analogien med en dryppende vandhane.

frekvensbredde. For at kunne observere Coulomb-blokade og dermed indirekte den tidslige korrelation skal følgende være opfyldt:

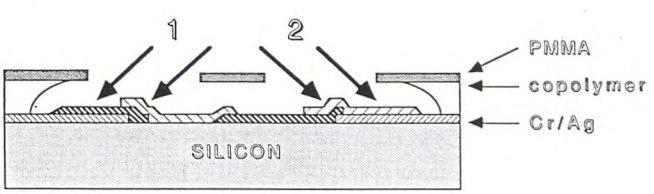
1) Ladningsenergien skal, som nævnt, overstige de termiske fluktuationer; $T < T_0 = \frac{e^2}{k\,2C}$.
2) Ladningsenergien skal være større end kvantefluktuationerne i dioden tilsluttet omgivelserne (se figur 2; $\frac{e^2}{2C} \gg \frac{h}{\tau_{RC}}$, hvor $\tau_{RC} = R_T\,C$ eller $\tau RC = R_S\,C$ afhængigt af hvilken af de to resistanser, der er mindst. Dette svarer til
$R_T, R_S \gg R_Q = \frac{h}{4e^2} = 6{,}5\text{k}\Omega$.
Kvanteresistansen R_Q er en fjerdedel af von Klitzing-konstanten $R_K = h/e^2$ omtalt i forbindelse med kvantiseret Hall-effekt i det første nummer af KVANT (p. 14).
3) Spredningskapacitanserne C_0 fra tilledninger m. v. (se figur 2) må ikke dominere diodekapacitansen C. Er C_0 stor belastes dioden med en lav impedans, det vil sige at den bliver spændingsdrevet ved høje frekvenser. Problemet kan løses ved, at indskyde store serieresistanser mellem dioden og C_0. Et alternativ er at lade dioden indgå i en serieforbindelse af mange høj-ohmske tunneldioder, som hver for sig har ringe kapacitet til stel, tilledninger, m.v.



Figur 5. SET-effekt i en ubelastet ($R_S = 0$) tunneldiode med ikke-superledende elektroder. Højre del viser det tidslige forløb af relaxationsoscillationerne i de forskellige biaspunkter.

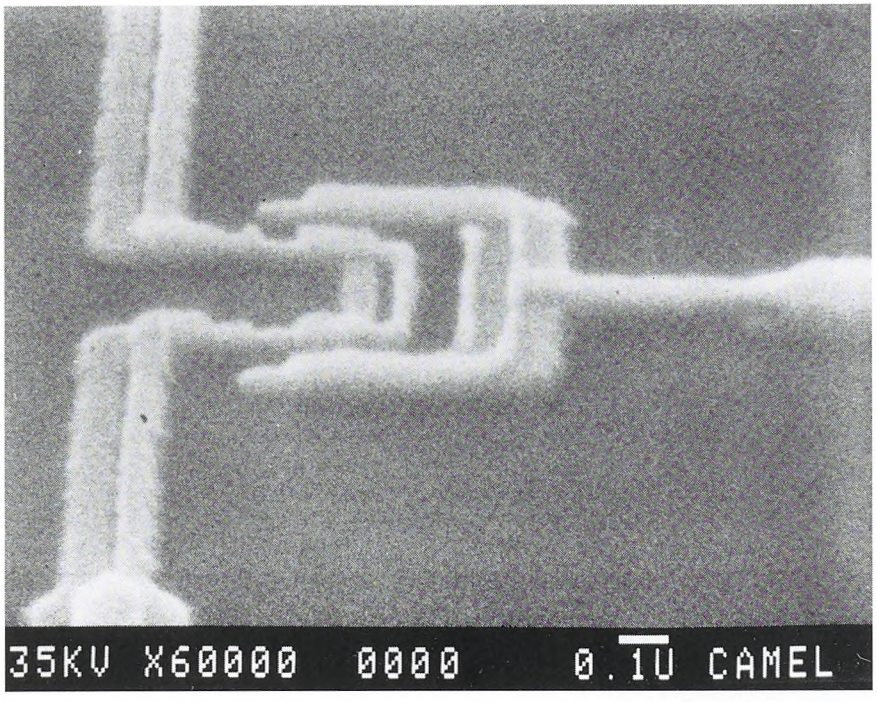
Fremstilling af nanostrukturer

Med moderne datamatstyret elektronstrålelithografi kan man fremstille mønstre med en opløsning på 20 nm. Den SET-transistor, som er afbildet på næste side, er lavet på Chalmers Tekniske Högskola, Göteborg. Bemærk 100 nm målestokken.



Figur 6. Fremstilling af $Al/Al_2O_3/Al$ nano-tunneldiode på silicium substrat. Et ekstremt lille overlap opnås ved at en frithængende bro af fotoresist fungerer som maske ved pådampning af to aluminium tyndfilm (top og bund) fra forskellige vinkler. Vinkler og afstande er stærkt fortegnede.

Aluminiumoxyd (Carborundum) er et af de hårdeste og mest stabile materialer, og hovedparten af de til dato fremstillede mesoscopiske tunneldioder består af en $Al/Al_2O_3/Al$ sandwich. Se figur 6. For at opnå så små overlap fremstilles først en lille frithængende bro af fotoresist (PMMA). Broen understøttes af et underliggende lag af en anden type resist (Copolymer), der er relativt let at fjerne og lader sig underætse. Tricket er at vippe chip'en nogle grader omkring en akse parallel med broen mellem to pådampninger. Den første aluminiumfilm oxyderes før den næste pådampes. På SEM-billedet (Scanning Electron Microscope) øverst på næste side er både de to bøjede strukturer, som med de to små overlap (bulen på det tyndeste sted) definerer de to tunneldioder, og den gaffelformede "gate" i SET-transistoren nemme at se. Den viste struktur er et udsnit af en array, som ved 35 mK har vist



Figur 7. En ''SET-transistor'' bestående af to tunneldioder og en ''gate''. Bemærk 100 nm målestokken.

overbevisende SET-effekt og tidslig korrelation ved mikrobølge excitation[2]. Herom senere.

Tunneldioder kan laves ned til 50 nm × 50 nm med en kapacitans på 10^{-16}F. Spredningskapacitansen er ti gange mindre. Tunnelresistansen kan varieres i et stort område fra 30 - 1000 kΩ. Med den viste metode bliver mønstrene automatisk placeret indbyrdes korrekt. Dette muliggør fremstilling af udstrakte både en- og todimensionale arrays.

Omgivelsernes betydning, tunnelleringstiden

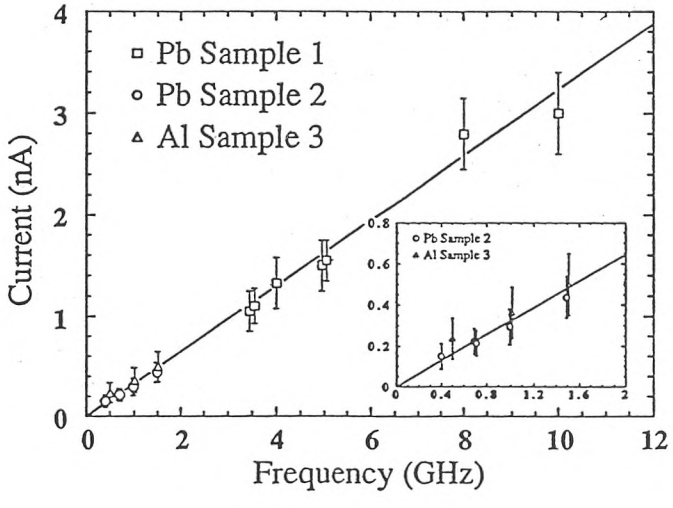
Den frekvensafhængige impedans, $Z(\omega)$, af omgivelserne har vist sig at have stor indflydelse på dc egenskaberne for ultra-små tunneldioder. Vi har allerede (figur 2) nævnt spredningskapacitanser C_0 og shuntresistanser R_S.

Betragter vi en enkelt punkt-diode, kunne man fristes til at tro, at man kun skulle medtage spredningskapacitansen af det lille område, som elektronen ''føler'' mens den tunnellerer. Området, hvor der skal ske en omfordeling af ladningen, vil være af størrelsesordenen $\tau \times c$, hvor τ er tunnelleringstiden og c er lyshastigheden. Et overslag giver meget korte tunnelleringstider svarende til de nævnte τ_{direct} og τ_{flyve}.

Der har været udført en del eksperimenter, hvor ens dioder har været anbragt i forskellige ''omgivelser''. Resultaterne stemmer nogenlunde med teoretiske beregninger med realistiske værdier for $Z(\omega)$. Typisk er det impedansen ved relaxationsfrekvensen (givet ved bias-punktet), som har størst indflydelse. Problemet er endnu uafklaret, og den mest rimelige tunnelleringstid er τ_{probe} (Heisenbergs ubestemthedsrelation). Denne passer typisk bedre til τ_{RC} d. v. s. den tid, der medgår til op-/afladning af diodekapacitansen. Tiden, dioden bruger til at afprøve omgivelserne (friheds-graderne for tunnelleringen justeres), er meget længere end den direkte tunnelleringstid. Sidstnævnte dominerer muligvis ved store bias-spændinger.

Synkronisering og rumlig korrelation

Påtrykkes et externt rf- eller mikrobølgesignal er det muligt at synkronisere tunnelleringen af både enkelt-elektroner og Cooper-par. I vandhanemodellen svarer det til, at dråberne rystes af i takt med en periodisk op-/nedadgående bevægelse af hanen. I dc IU-karakteristikken for en SET-diode obser-



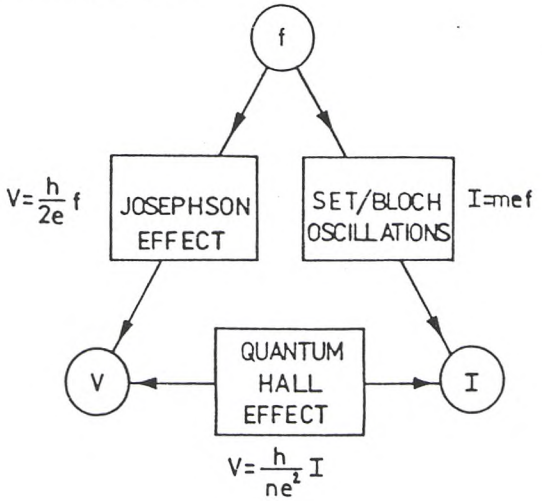
Figur 8. Tidslig korrelation. Strømplateauer plottet versus påtrykt frekvens for mesoscopisk tunneldiode med superledende elektroder. Linien angiver den teoretiske forudsigelse $I = 2e f_{ext}$ for tunnellerende Cooper-par.

veres der strømplateauer med en afstand på $\Delta I = e\, f_{ext}$, hvor f_{ext} er den påtrykte frekvens. Dette kan danne grundlaget for en fremtidig *kvante-strømnormal*, og en række kredsløb med flere SET-dioder har indenfor de sidste par år bragt den relative usikkerhed ned[3] på $1 \cdot 10^{-5}$.

SET-effekten er dual til *Josephson-effekten*, der kendes fra store tunneldioder med superledende elektroder. Den nationale Josephson-spændingsnormal, som forfatteren installerede ved Dansk Institut for Fundamental Metrologi (DFM) i 1986, er baseret på de konstant-spændingstrin, der fremkommer i dc *IU*-karakteristikken med en spændingsdifferens på $\Delta V = \frac{1}{2}h/e\, f_{ext}$. Her er usikkerheden i øjeblikket titusinde gange mindre.

Tidslig korrelation og synkronisering ved CPT er netop blevet observeret[4] i tunneldioder med superledende elektroder. Da det er Cooper-par, der tunnellerer, er afstanden mellem successive konstant-strømplateauer $\Delta V = \frac{h}{2e} f_{ext}$, som vist på figur 8. CPT-effekten (også benævnt Bloch-oscillationer) kan ligesom SET-effekten bruges som kvante-strømnormal.

Inddrager vi den tredie kvante-normal, *kvante-Hall-effekten* er der nu et metrologisk bånd mellem de atomare konstanter: e, $\frac{h}{2e}$ og $\frac{h}{e^2}$ i den såkaldte *Kvante-metrologi trekant* vist på figur 9.



Figur 9. Den kvante-metrologiske trekant. De tre relationer overbestemmer enhederne i det nuværende SI-system. Kun SET-normalen har stadig en relativt stor usikkerhed.

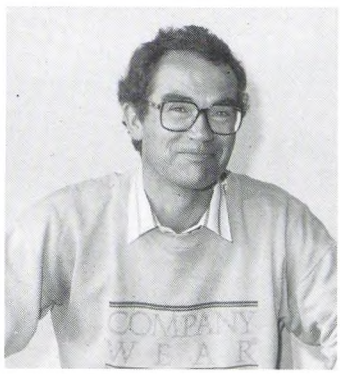
Som afslutning vil vi diskutere *rumlig korrelation* i en een-dimensional SET-diode array, hvor hver diode har den samme egenkapacitans og spredningskapacitans til omgivelserne. En elektron, som befinder sig på det lille stykke metalfilm mellem den i'te og (i+1)'te diode, vil oplade dette, og på grund af spredningskapacitanserne opbygge et rumligt elektrisk potential, der strækker sig til begge sider langs array'en. Beslutter elektronen sig for at tunnellere følger potentialet med. Ladning skal bevares, elektronerne blokerer for hinanden og potentialet giver en langtrækkende gensidig vekselvirkning. Resultatet er en rumlig korrelation.

Bortset fra, at tunnelleringsprocessen er stokastisk er situationen analog til de *solitære bølger*, man ser i ulineære systemer. Systemet kan udvides til to dimensioner, og det åbner mange muligheder for at studere nanostrukturers dynamiske egenskaber.

SET- og CPT-effekten har en lang række potentielle anvendelser. Det kan vi vende tilbage til en anden gang. For at sætte fantasien i sving skal her yderligere nævnes: SET-elektrometer (opløsning på $2 \cdot 10^{-4}\ e/\sqrt{\text{Hz}}$ ved 10 Hz), samt analog og digital SET-elektronik (extrem tæt pakning, minimal energiafsætning).

Referencer

1) K. K. Likharev, IBM Journ. Res. Dev. **32** 144 (1988).
2) P. Delsing, D. B. Haviland, T. Claeson, K. K. Likharev og A. N. Korotkov. Bidrag præsenteret ved den internationale SQUID'91 konference, 18-21 juni 1991 i Berlin.
3) L. J. Geerlings, V. F. Anderegg, P. A. M. Holweg, J. E. Mooij, H. Pothier, D. Esteve, C. Urbina og M. H. Devoret, Phys. Rev. Lett. **64** 2691 (1990).
4) L. S. Kuzmin og D. B. Haviland. Bidrag præsenteret ved den internationale SQUID'91 konference, 18-21 juni 1991 i Berlin.



Jesper Mygind. Lic.Techn. (Ph.D.) i fysik fra Danmarks Tekniske Højskole (DTH) 1972. Docent ved Fysisk Laboratorium I, DTH. Medvirkede 1986-89 ved opbygningen af Dansk Institut for Fundamental Metrologi (DFM). Forskningsfelt: Lavtemperatur faststoffysik, superledning, Josephson-effekt, kvante-metrologi, mesoscopiske strukturer.