

Моделирование одноэлектронных транспортных процессов в тонких гранулированных хромовых пленках

В. О. Залуни^{*1)}, В. А. Крупенин^{+△}, С. А. Васенко⁺, А. Б. Зорин^{▽*}

⁺ Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

[▽] Федеральный физико-технический центр, 38116 Брауншвейг, Германия

^{*} Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Научно-исследовательский институт ядерной физики, 119899 Москва, Россия

[△] Институт нанотехнологий микроэлектроники РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 9 марта 2010 г.

Представлены результаты численного моделирования одноэлектронного транспорта в двумерных гранулированных хромовых пленках при низких температурах. Построена теоретическая модель, в которой гранулированная пленка представлена в виде двумерной матрицы проводящих металлических гранул (островов), слабо связанных между собой малопрозрачными туннельными барьерами, обеспечивающими транспорт одиночных электронов, локализованных на островах. Учет неоднородностей в нанометровых размерах островов и их эффективной электронной температуры, зависящей от силы протекающего тока, позволил объяснить вид недавно измеренных вольт-амперных характеристик хромовых образцов, имеющих форму прямоугольных полосок субмикронных размеров. В моделируемой системе обнаружен переход от двумерного к квазиодномерному режиму одноэлектронного транспорта, ведущего к гистерезису, наблюдаемому в эксперименте.

Хорошо проводящие тонкие металлические пленки (с толщиной $d = 20\text{--}30$ нм) служат основой для изготовления электродов малых туннельных переходов, являющихся ключевыми элементами схем, работающих на принципе одноэлектронного туннелирования [1]. Сверхтонкие ($d < 10$ нм) гранулированные металлические пленки со значительной электрической изоляцией гранул и, следовательно, высоким удельным сопротивлением (сопротивление на квадрат $\rho_{\square} \gtrsim 1$ кОм) могут в этих схемах использоваться в качестве высокоомных линейных резисторов. Включенные последовательно с туннельными переходами такие резисторы могут существенно влиять на темп электронного туннелирования [2], что расширяет возможности применений одноэлектронных устройств [3, 4]. Дальнейшее повышение удельного сопротивления металлических пленок (посредством их глубокого окисления) до значений $\rho_{\square} \sim R_q$, где $R_q \equiv h/4e^2 \approx 6.45$ кОм – квантовое сопротивление, приводит к ярко выраженным нелинейным вольт-амперным характеристикам (ВАХ), типичным для гранулированных структур при низких температурах. Основные электрические свойства гранулированных пленок определяются собственной и взаимной емкостями гранул (островов), а также межгра-

нульным сопротивлением. В высокоомных пленках при достаточно низкой температуре и слабых электрических полях туннелирование электронов между гранулами пленки сильно подавлено кулоновским взаимодействием. Это приводит к локализации электронов на гранулах и, как следствие, коррелированному одноэлектронному туннелированию. Таким образом, данные пленки представляют собой готовые одноэлектронные системы, которые могут быть с успехом использованы в различных устройствах. Например, тонкие пленки хрома были использованы вместо туннельных переходов при изготовлении одноэлектронного транзистора [5]. В работе [6] было предложено использование узкой полоски гранулированной пленки в качестве ячейки памяти на одиночных электронах.

Недавно нами были экспериментально исследованы субмикронные образцы, изготовленные из тонких (7–8 нм) хромовых гранулированных пленок [7]. Данные образцы формировались методом электронно-лучевого напыления хрома в атмосфере чистого кислорода и представляли собой узкие (100 нм) полоски из тонкой пленки хрома, соединенные с более толстыми алюминиевыми электродами, напыленными через ту же полимерную маску, но под другим углом (рис. 1а). Согласно данным, полученным при исследовании образцов при помощи просвечивающего электронного

¹⁾ e-mail: vasil@cryotech.phys.msu.ru

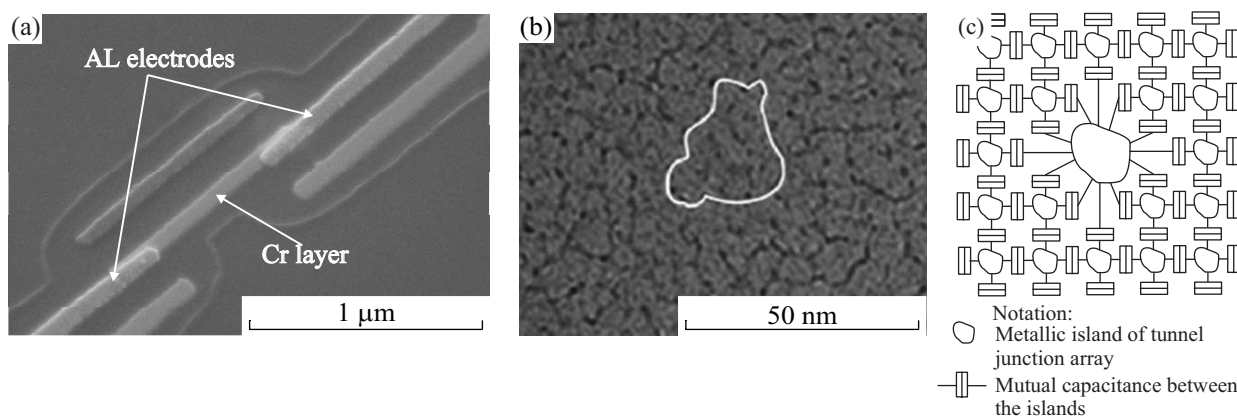


Рис.1. (а) Изображение исследуемого образца в растровом электронном микроскопе; (б) структура Cr пленки в просвечивающем электронном микроскопе (сросшаяся гранула обведена белым контуром); (с) эквивалентная схема пленки со сросшимися гранулами. Собственные емкости гранул опущены для простоты изображения

микроскопа (рис.1б), хромовые пленки состояли из проводящих гранул неправильной формы, имеющих в плоскости пленки характерный размер 10–20 нм и разделенных тонкими диэлектрическими барьерами CrO_x.

Экспериментальные образцы имели ширину 100 нм и длину 200, 500 и 1000 нм. Таким образом, данные образцы имели достаточно большое количество гранул (10×20, 10×50 и 10×100, соответственно) в каждом направлении.

Характерные параметры гранулированных пленок, оцененные в предположении однородного “прямоугольного” массива проводящих гранул с собственной емкостью C_0 , разделенных туннельными переходами емкостью C и сопротивлением R , представлены в таблице (см. оценки, сделанные в работе [7]).

Оценки параметров исследованных пленок. В скобках указаны значения, использованные при численном моделировании

Межгранулярная емкость, C	Собственная емкость гранулы, C_0	Межгранулярное сопротивление, R
31.6–38.5 аФ (31.6 аФ)	0.54–0.91 аФ (0.91 аФ)	7.1–14.7 кОм (10 кОм)

ВАХ образцов, измеренных при температурах $T < 1$ К, имели характерные участки кулоновской блокады: при напряжениях смещения ниже некоторого порогового значения ток через образец практически отсутствовал. В области достаточно низких температур, $T = 25–200$ мК, переход из блокадного состояния в проводящее при небольшом увеличении напряжения смещения происходил резким скачком. В зависимости от сопротивления образца амплитуда

скачка тока находилась в диапазоне 50–1000 пА. При уменьшении напряжения смещения обратный переход из проводящего состояния в блокадное также происходил скачком, но при заметно меньшем значении напряжения смещения. Ширина петли такого гистерезиса при $T = 25$ мК доходила до одного милливольтта (рис.2). Увеличение температуры приводило к все

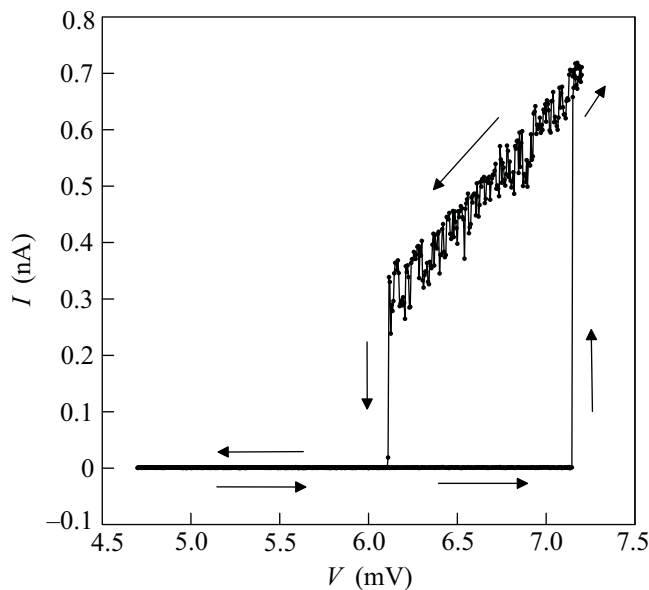


Рис.2. Пример переключений между блокадным и проводящим состояниями. Стрелки показывают процесс измерения ВАХ в прямом и обратном направлениях ($T = 25$ мК)

более частому появлению многократных переключений между блокадным и проводящим состояниями как при увеличении напряжения смещения, так и при его уменьшении. При температурах $T > 200$ мК

эффект переключений практически исчезал. Ранее такое поведение тока в двумерных одноэлектронных структурах не наблюдалось.

Попытки объяснения данного явления привели к исследованию влияния неоднородностей в двумерной структуре проводящих островов, разделенных туннельными переходами, на транспорт тока. Одной из причин появления значительных неоднородностей могло быть недостаточное окисление зародышей на этапе роста хромовой пленки. В этом случае образуются объединения гранул, связанных омически и формирующих таким образом неоднородность (рис.1b). На эквивалентной схеме (рис.1c) такая “большая” гранула в отличие от обычного острова двумерного массива связана более чем с 4 соседями. Количество, расположение и размер сформированных “больших” гранул непостоянны и случайным образом меняются от образца к образцу, влияя на их транспортные свойства.

Для объяснения вышеупомянутых особенностей ВАХ наших образцов использовалась модель двумерного массива (10×50) проводящих островов, разделенных туннельными барьерами, с единственной неоднородностью, расположенной близко к центру массива (рис.1c).

Поведение избыточного электрона, находящегося на одном из островов массива, определяется его поляризационным воздействием на соседние острова массива (образование “поляризационного облака” вокруг электрона), взаимодействием с избыточными электронами на других островах и влиянием внешних источников напряжения. Таким образом, потенциальная энергия i -го электрона может быть записана как

$$U_i = U_{0,i} + U_{\text{int},i} + U_{\text{ext},i}, U_{\text{int},i} = \sum_j U_{\text{int},ij}, \quad (1)$$

где $U_{0,i}$ – собственная энергия электрона, $U_{\text{int},i}$ – энергия его взаимодействия с другими избыточными электронами, $U_{\text{ext},i}$ – энергия, определяемая внешним источником напряжения, а индекс j , по которому производится суммирование, относится ко всем избыточным электронам.

Продольное сечение профиля потенциальной энергии ($U_{0,i} + U_{\text{ext},i}$) пробного электрона в рассматриваемом массиве островов, содержащем “большую” гранулу, представлен на рис.3а. Предполагается, что острова массива электронейтральны, то есть на них отсутствуют избыточные электроны. Радиус экранирования заряда в массиве [8] с заданными параметрами (таблица) составляет $\Lambda = \sqrt{C/C_0} = 5 \div 6$ элементарных ячеек. Следовательно, приложенное внешнее напряжение смещения влияет только на

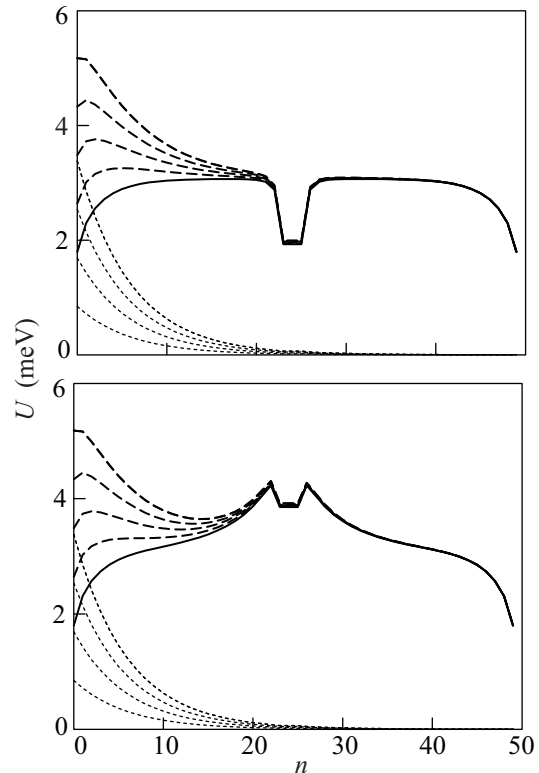


Рис.3. Продольное центральное сечение профиля потенциальной энергии массива проводящих гранул с симметричной неоднородностью, состоящей из 5 объединенных гранул (n – номер гранулы в сечении). (а) Профиль потенциальной энергии без избыточных электронов в центре неоднородности; (б) профиль потенциальной энергии с избыточным электроном в центре неоднородности. Сплошная линия соответствует собственной энергии электрона U_0 , штриховая – сумме собственной энергии U_0 и внешнему приложенному потенциалу U_{ext} , пунктир – внешнему потенциалу U_{ext}

электроны, расположенные на расстоянии не более 5–6 элементарных ячеек от границ пленки; движение же электрона в центральной части массива обусловлено его взаимодействием с другими избыточными электронами.

Следует обратить внимание на наличие четко выраженной потенциальной ямы - зарядовой ловушки – глубиной $\delta U \approx 0.5$ мэВ, создаваемой неоднородностью. Электрон, попавший в такую ловушку, увеличивает ее потенциальную энергию приблизительно на 1 мэВ. Рис.3б соответствует потенциальной энергии пробного электрона в массиве проводящих островов при условии, что в ловушке (“большая” гранула) удерживается 1 электрон. Избыточный электрон, удерживаемый в ловушке, отталкивает другие электроны, вошедшие в массив островов, и меняет форму профиля потенциальной энергии, приводя к появлению

нию энергетического барьера в районе неоднородности и потенциальной ямы между неоднородностью и левым краем массива (рис.3b). На рис.4 представлен

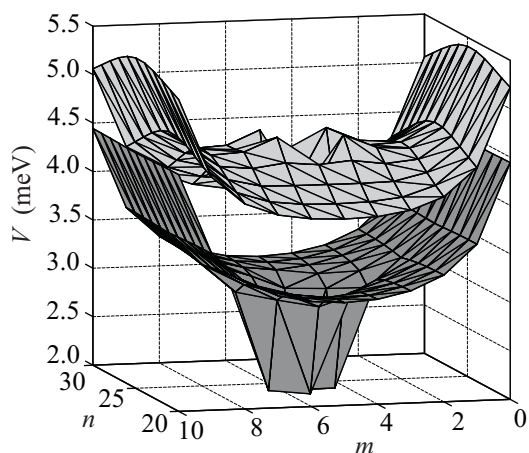


Рис.4. Фрагмент поверхности потенциальной энергии массива проводящих гранул вблизи неоднородности (m – ширина, n – длина массива). Нижняя поверхность соответствует профилю потенциальной энергии без избыточных электронов в центре неоднородности, верхняя поверхность представляет профиль потенциальной энергии с избыточным электроном в центре неоднородности

фрагмент поверхности потенциальной энергии вблизи неоднородности. Поскольку радиус экранирования, находящегося в ловушке электрона, составляет $\Lambda = 5 \div 6$ элементарных ячеек, а характерная ширина цепочки переходов – $M \approx 10$ элементарных ячеек, то возможна блокировка транспорта по всей ширине массива туннельных переходов.

При увеличении напряжения смещения (увеличении потенциала левой границы массива) электроны входят в массив и скапливаются в потенциальной яме, образованной левой границей массива и неоднородностью (рис.3b). При данных параметрах неоднородности один из электронов всегда будет находиться внутри неоднородности, а остальные будут образовывать одну из устойчивых конфигураций, зависящих от напряжения смещения. На рис.5 представлен пример таких конфигураций и соответствующих им распределений потенциальной энергии для случая неоднородности, расположенной в центре массива. При достижении напряжения смещения, соответствующего порогу кулоновской блокады, зарядовые конфигурации становятся неустойчивыми, и через систему начинает протекать ток.

Расчет ВАХ методом Монте-Карло для температуры $T = 5-20$ мК показал, что наблюдавшийся экспериментально скачок тока отсутствует в результа-

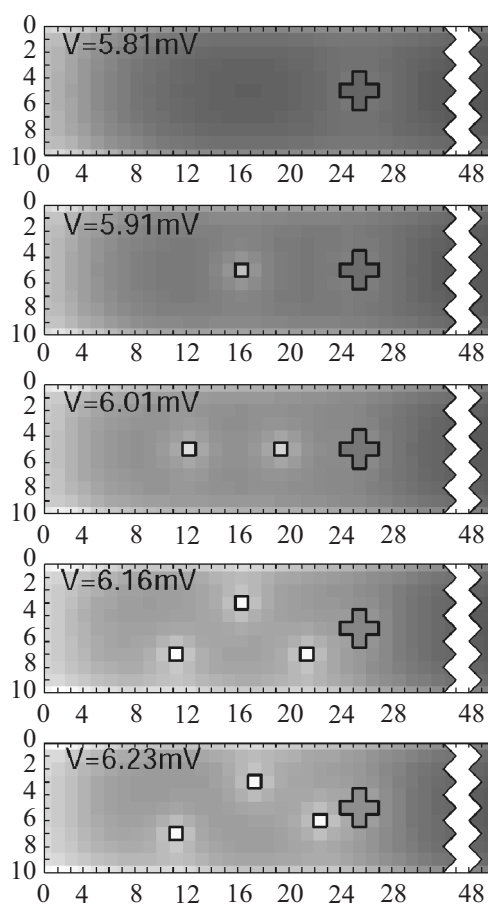


Рис.5. Профили потенциальной энергии (показана плотностью серого цвета) массива гранул (ширина – 10, длина – 50) в области кулоновской блокады при возрастании (сверху – вниз) напряжения смещения. Положение электронов в устойчивых зарядовых конфигурациях указано квадратами

тах численного моделирования. Вместо скачка, на ВАХ наблюдалась область резкого возрастания тока, которая с увеличением температуры размывалась. Для объяснения наблюдаемых особенностей транспорта тока мы далее учли разогрев электронного газа в исследуемой гранулированной структуре, возникающей при протекании тока. Известно (см., например, оригинальную работу [9], а также, применительно к одноэлектронным устройствам, работу [10]), что в различных материалах, охлажденных до температур ниже 1 К, связь электронной и фононной подсистем оказывается ослабленной за счет значительного уменьшения константы электрон-фононного взаимодействия при уменьшении температуры. В нашем случае это явление приводит к тому, что разогреваемый туннелирующими электронами электронный газ острова будет иметь температуру T_e , заметно большую, чем фононная температура T_{ph} и температура

подложки $T_{\text{sub}} = T_{ph} = T_{\text{bath}}$, где T_{bath} – физическая температура эксперимента. При напряжениях смещения, меньших порога блокады, ток через исследуемую нами сетку проводящих островов равен нулю, и $T_e = T_{\text{sub}}$. При превышении порога кулоновской блокады даже относительно короткое переключение системы в проводящее состояние приводит к росту температуры электронного газа. Таким образом, если система находится в проводящем состоянии, то увеличение температуры электронного газа приводит к росту темпов туннелирования между островами и, следовательно, тока через систему. Таким образом включается положительная обратная связь по току – появление незначительного тока в системе приводит к его лавинообразному нарастанию.

Для учета этого эффекта метод Монте-Карло был модифицирован таким образом, что расчет электронной температуры производился самосогласованно. При проведении моделирования мы использовали следующий алгоритм: перед началом расчета система находилась в состоянии с электронной температурой $T_e = T_{\text{bath}}$; далее, через определенное заранее число N_T розыгрышей Монте-Карло (в нашем случае $N_T = 5000$) производился расчет электронной температуры T_e на основании системы уравнений баланса. Полученное значение самосогласованной температуры использовалось в течение следующих N_T розыгрышей. Далее процесс расчета T_e повторялся. Следуя работе [10], электронная температура находилась из уравнения

$$P_i = \Sigma \cdot (T_{e,i}^5 - T_{ph,i}^5). \quad (2)$$

Здесь P_i – суммарная мощность, приносимая/уносимая туннелирующими на/с i -й/-го острова электронами, $T_{e,i}$ и $T_{ph,i}$ – соответственно электронная и фононная температуры островов, Σ – материальная константа. Для расчета температурной зависимости величины скачка тока мы сделали ряд допущений. Во-первых, мы предположили, что температура $T_{e,i}$ электронов на всех островах в рассматриваемой нами сетке одинакова, в то время как $T_{ph} = T_{\text{bath}}$. Так как процесс расчета P_i на основании результатов усреднения по числу N_T предыдущих розыгрышей по методу Монте-Карло требует весьма значительных затрат процессорного времени, а точная величина константы Σ неизвестна нам заранее, то мы использовали приближенный подход. Предположим, что $P_i \propto I_i^2$, где I_i – суммарный ток через i -й остров системы. Также определим T_0 как температуру, достигаемую системой при переходе в проводящее состояние. Таким образом

мы имеем $T_{e,i} = (I^2/\sigma + T_{\text{bath}}^5)^{\frac{1}{5}}$, если $T_{e,i} < T_0$ и $T_{e,i} = T_0$ в остальных случаях.

При проведении расчетов с использованием описанной выше модели необходимо уделить особое внимание выбору количества розыгрышей, которые надо проводить на каждом шаге метода Монте-Карло для определения среднего тока через систему. При увеличении напряжения смещения до напряжений порядка порога блокады система может находиться в блокаде в течение достаточно долгого времени, переходя из одного устойчивого состояния в другое, а затем переходит в проводящее состояние. Данное время ожидания перехода системы из блокаде в проводящее заранее нам неизвестно и оно определяется параметрами рассматриваемой системы. Таким образом, количество розыгрышей на каждом шаге метода Монте-Карло должно быть выбрано достаточно большим, чтобы иметь возможность наблюдения события переключения системы из блокаде в проводящее состояние. При расчете ВАХ мы производили последовательно несколько расчетов при увеличении количества розыгрышей Монте-Карло. Если вид ВАХ оставался качественно неизменным при увеличении количества розыгрышей, то процесс останавливался. В среднем, для учета интересующих нас эффектов необходимо было провести порядка 10^5 розыгрышей.

Типичный результат расчетов ВАХ, проведенных при помощи данного алгоритма представлен на рис.6.

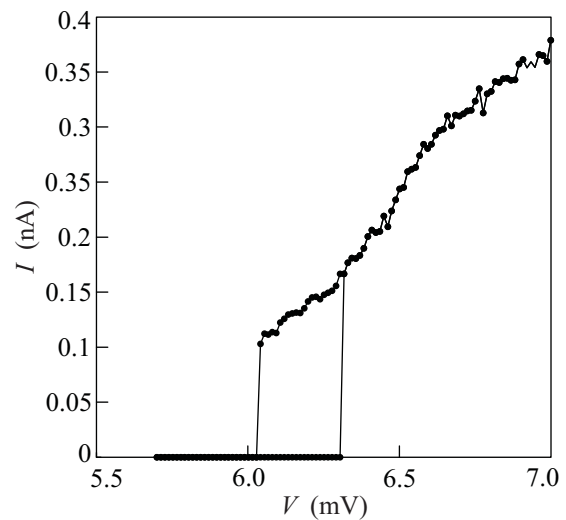


Рис.6. Рассчитанная ВАХ массива проводящих гранул с неоднородностью ($T_{\text{bath}} = 100$ мК)

Необходимо отметить, что скачкообразное переключение из блокаде в проводящее сохра-

няется вплоть до температур $T_{\text{bath}} \approx 100$ мК, что хорошо согласуется с экспериментальными данными.

Модифицированный нами метод Монте-Карло для самосогласованного учета температуры электронного газа также позволил объяснить наблюдавшийся в эксперименте гистерезис на ВАХ. Переход системы из проводящего состояния в блокадное происходит при меньшем значении транспортного напряжения, чем из блокадного в проводящее. Это связано с тем, что системе необходимо достаточно охладиться, чтобы вернуться в блокадное состояние.

Численное моделирование, проведенное с несколькими, произвольно расположенными, неоднородностями (количеством до 4), показало, что величина скачка тока в основном возрастала с увеличением числа неоднородностей.

В рамках данной работы мы рассмотрели особенности одноэлектронного транспорта в двумерных массивах туннельных переходов, содержащих неоднородности. На основании данных численного моделирования нами обнаружено образование устойчивых зарядовых конфигураций в блокадном состоянии и каналов протекания тока в проводящем состоянии. Предложена упрощенная модель нагрева островов массива туннельных переходов протекающим током. Применение данной модели при проведении моделирования по методу Монте-Карло позволило получить ВАХ, согласующиеся с экспериментально измеренными. Основным допущением, сделанным в данной модели, является равенство температур всех островов двумерного массива, и, как следствие, отсутствие процессов передачи тепла между отдельными островами. Такое допущение позволяет вычислять темпы туннелирования между островами на основании аналитических формул, уменьшив таким обра-

зом затраты вычислительных ресурсов. В то же время можно с уверенностью сказать, что проведение расчетов с использованием более полной (сложной) модели позволит найти более тонкие эффекты и представляется интересным направлением исследований в будущем.

Данная работа была выполнена при финансовой поддержке гранта “Программа фундаментальных исследований Президиума РАН № 27” и Европейского союза в рамках проекта SCOPE (Grant # 218783).

1. D. V. Averin and K. K. Likharev, In: *Mesoscopic Phenomena in Solids*, Eds. B. L. Altshuler, P. A. Lee, and R. A. Webb, Amsterdam, North-Holland: Elsevier, 1991, p.173.
2. G. L. Ingold and Yu. V. Nazarov, in *Single Charge Tunneling*, Eds. H. Grabert and M. H. Devoret, Plenum, New York, 1992, p.21.
3. P. Delsing, K. K. Likharev, L. S. Kuzmin, and T. Claeson, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1180 (1989).
4. A. B. Zorin, S. V. Lotkhov, H. Zangerle, and J. Niemeyer, *J. Applied Physics* **88**, 2665 (2000).
5. V. A. Krupenin, A. B. Zorin, M. N. Savvateev et al., *J. Applied Physics* **90**, 2411 (2001).
6. V. A. Krupenin, V. O. Zalunin, V. S. Vlasenko et al., *Proc. of 15th Int. Symposium “Nanostructures: Physics and Technology” (2005)*, Ioffe Institute, 2005.
7. V. A. Krupenin, V. O. Zalunin, and A. B. Zorin, *Microelectronic Engineering* **81**, 218 (2005).
8. Н. С. Бахвалов, Г. С. Казака, К. К. Лихарев, С. И. Сердюкова, *ЖЭТФ* **95**, 1010 (1989).
9. M. L. Roukes, M. R. Freeman, R. S. Germain et al., *Phys. Rev. Lett.* **55**, 422 (1985).
10. A. N. Korotkov, M. R. Samuelsen, and S. A. Vasenko, *J. Appl. Phys.* **76**, 3623 (1994).