

二维纳米点阵列的 Monte-Carlo 模拟*

何红波 周继承 胡慧芳 李义兵

(长沙铁道学院信息学院材料研究所,长沙 410075)

姚凯伦

(华中理工大学物理系,武汉 430074)

(1999 年 10 月 27 日收到,2000 年 2 月 20 日收到修改稿)

介绍了一种利用标准单电子隧穿理论与 Monte-Carlo 方法模拟二维量子点阵列的程序.数值计算结果表明,二维量子点阵在低温下有库仑充电行为,其量子功能作用使它显示出可喜的研究价值和应用前景.

关键词: Monte-Carlo 模拟,单电子,量子点阵

PACC: 3530Y, 6120

1 引 言

单电子效应的发现可以追溯到 1951 年,当时 Gorter^[1]在研究粒状金属在低温下的电阻时发现它有反常增大的现象,他认为可以引入小电容的充电能来解释这个结果. Giaever 与 Zeller^[2,3], Lambe 与 Jaclevic^[4]在超导隧道现象的研究时,分别独立地发现在极低温度、低偏压下埋藏于氧化物中的金属颗粒样品的电阻表现出异常增大的行为.

单电子隧道效应、库仑阻塞以及单电子振荡是单电子隧道晶体管应用的物理基础.对于通常的金属电极隧道结,当在结的两端加上偏置电压后,就会有隧道电流流过,此时有大量电子从结中隧穿,外界扰动相比之下可以忽略.然而,一旦当隧道结的结面积缩小到纳米量级后,电子将逐个地穿过隧道结,外界的扰动影响就会变得突出,其中主要包括热扰动、量子扰动和电磁扰动.要想观察到单电子隧道效应,必须克服上述三方面的外界扰动^[5-7].

首先,为使库仑阻塞能抑制电子的热扰动,必须满足

$$\frac{q^2}{2c} > k_B T, \quad (1)$$

其中 k_B 为波耳兹曼常量, T 为环境温度, c 为纳米结的电容, q 为一个电子的电荷量.

其次,单电子电荷能 $\frac{q^2}{2c}$ 要远大于量子扰动能量

$\frac{h}{RC}$, 其中 h 为普朗克常量, R 为纳米结的结电阻.

这就要求 R 远大于量子电阻 R_Ω ,

$$R \gg R_\Omega = \frac{h}{4q^2} \approx 6.5 \text{ k}\Omega. \quad (2)$$

只有当此条件满足时,才能抑制量子扰动.

再次是电磁扰动问题.它主要包括引线的分布电容和分布电感所带来的电磁干扰.最好的办法是把多个纳米结串联起来,形成相互间的自我保护.

在以下的讨论中,假设条件(1)和(2)式都满足,且无电磁干扰,即不考虑扰动问题.

2 模拟方法

单电子隧穿电路包括一些由隧道结、电容、理想电压源所联结的库仑岛组成.电压源为理想的,故其内阻为零.电子独立地通过隧道结在岛与岛之间隧穿,从而改变电路中电荷的分布.

在单电子器件电路中,目前有两种普遍使用的方法,即 Monte-Carlo 方法和主方程方法. Monte-Carlo 方法从所有可能的隧穿事件出发,计算其概率,按其概率随机地选择某一隧穿事件. Monte-Carlo 方法以非常直接的方法模拟了单电子电路中电子从一个岛到另一个岛隧穿的微观过程,因而它能给出单电子电路较好的瞬态和动力学行为.主方程则从宏观的角度来模拟单电子电路的各种可能的状态及状态之间的转变.

本文中,我们采用 Monte-Carlo 方法.以下的推导均以标准单电子隧穿理论^[5]为基础.隧穿事件发生的概率可由隧穿发生前后系统自由能的变化求得.

* 国家自然科学基金(批准号: 69890227; 69771011; 69971007), 霍英东教育基金资助的课题.

$$\Delta F = \frac{1}{2} \left(\sum_i q_i' \phi_i' - \sum_i q_i \phi_i \right) - \Delta W, \quad (3)$$

$$\Delta W = \sum_n V_n \Delta q_n,$$

其中 ϕ_i, ϕ_i' 分别为电子隧穿发生前后库仑岛 i 的电势, q_i, q_i' 分别为电子隧穿前后库仑岛的电荷量; V_n 为电压源 n 的电压, Δq_n 为电压源 n 的电荷变化量.

根据标准单电子隧穿理论, 某一个隧穿事件发生的概率为

$$\tau = (e^2 R_T)^{-1} \frac{\Delta F}{1 - \exp(-\Delta F/k_B T)}, \quad (4)$$

其中 ΔF 为 Helmholtz 自由能的变化, R_T 为隧穿结的电阻, $k_B T$ 为热能.

设库仑岛的电荷分布为 $\{n\} = \{n_1, n_2, \dots, n_N\}$, 其中 n_i 为岛 i 上的剩余电荷. 考虑某一分布 $\{n\}$, 设在某一充分长的模拟过程中分布 $\{n\}$ 出现 $S_{\{n\}} (\gg 1)$ 次.

设岛 i 通过隧道结与岛 k 相连, 则在分布 $\{n\}$ 后, $S_{\{n\}}$ 中有 $f_{ik} S_{\{n\}}$ 次发生从岛 i 到岛 k 电子的隧穿, 其中

$$f_i^k = \frac{\tau_i^k(\{n\})}{\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(i)} \tau_i^{\Delta(i)}(\{n\})}, \quad (5)$$

其中 $\Delta(i)$ 为与岛 i 通过隧道结相连的所有岛的集合, $\tau_i^{\Delta(i)}(\{n\})$ 为岛 i 通过隧道结隧穿到岛 $\Delta(i)$ 的概率. 系统在分布 $\{n\}$ 所停留的平均时间为

$$\Delta t(\{n\}) = \left(\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(i)} \tau_i^{\Delta(i)}(\{n\}) \right)^{-1}. \quad (6)$$

这样系统在分布 $\{n\}$ 的总时间为

$$S_{\{n\}} \cdot \Delta t(\{n\}). \quad (7)$$

设连结岛 i 与岛 k 的隧道结为 J_{i-k} , 则在上式所示的总时间内电荷通过结 J_{i-k} 的转移量为

$$e S_{\{n\}} (f_i^k - f_k^i) = e S_{\{n\}} \left\{ \frac{\tau_i^k(\{n\})}{\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(i)} \tau_i^{\Delta(i)}(\{n\})} - \frac{\tau_k^i(\{n\})}{\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(k)} \tau_k^{\Delta(k)}(\{n\})} \right\}. \quad (8)$$

通过结 $i-k$ 的总电流可将所有的电荷分布下转移电荷量除以该分布的时间所得求和, 即

$$I_{i-k} = e \frac{\sum_{\{n\}} S_{\{n\}} \left\{ \frac{\tau_i^k(\{n\})}{\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(i)} \tau_i^{\Delta(i)}(\{n\})} - \frac{\tau_k^i(\{n\})}{\sum_{i=1}^N \sum_{\Delta(k)} \tau_k^{\Delta(k)}(\{n\})} \right\}}{\sum_{\{n\}} (S_{\{n\}} \Delta t(\{n\}))}. \quad (9)$$

考虑到外电极, 我们可将单电子电路中的结点分为两类: 外结点, 即外电极; 内结点, 即库仑岛. 结点上的电荷和电势由电容矩阵相联系,

$$q = \tilde{C} \phi. \quad (10)$$

\tilde{C}_{ij} 可理解为在其余电极电势为 0, 电极 i 为单位电势时电极 j 所诱导产生的电荷量. \tilde{C} 是一个 $N \times N$ 矩阵, 其中 $N = N_e + N_i$, N_e, N_i 分别为电路中外部电极结点和内部库仑岛结点的数目. 将所有的外部结点均排在内部结点之间, 矩阵可写为

$$\tilde{C} = \begin{pmatrix} \otimes & -\tilde{C} \\ -\tilde{C}^T & C \end{pmatrix}, \quad (11)$$

其中 C 为库仑岛之间的 $N_i \times N_i$ 阶对称矩阵, \tilde{C} 是外电极与库仑岛之间的 $N_e \times N_i$ 阶矩阵, 外电极之间的电容在我们的模拟中可以不考虑.

从 (10)(11) 式可得岛 i 的电势

$$\phi_i = \sum_{j \in \text{island}} C_{ij}^{-1} (q_j + \tilde{q}_j);$$

$$\tilde{q}_j = \sum_{k \in \text{external}} \tilde{C}_{kj} V_k \quad (12)$$

或

$$\phi_i = \sum_{j \in \text{island}} C_{ij}^{-1} q_j + \sum_{k \in \text{ext}} \alpha_{ik} V_k; \quad (13)$$

$$\alpha_{ik} = \sum_{j \in \text{island}} C_{ij}^{-1} \tilde{C}_{kj},$$

其中 V_k 为外电极电势. 上述关系式使我们能建立外电极电势 $\{V_k\}$ 与库仑岛上电荷分布 $\{q_i\}$ 的关系, 系统的动力学行为可由库仑岛上电势的分布 $\{\phi_i\}$ 而求得.

利用 Monte-Carlo 方法模拟首先在于选择一初始电荷分布 $\{n\}$. 由概率 τ_i^k 决定一马尔可夫链 $\{n\}_0 \rightarrow \{n\}_1 \rightarrow \{n\}_2 \rightarrow \dots$. 在模拟时间充分长以后, 根据 (9) 式可计算单电子电路的电流分布.

3 模拟实例

目前, 人们已能通过多种方法制备粒径范围由几纳米到几百纳米, 尺寸可控、粒径分布窄的 Au,

Ag, Cu, Pt 等金属纳米粒子和 CdS, PbS, Fe₂O₃, TiO₂ 等半导体纳米粒子. Langmuir-Blodgett 技术和自组装技术的研究和发展, 使人们开始利用和操控分子、粒子以及界面三者之间的相互作用将纳米粒子固定在基片上. 在这种复合结构中, 具有一定绝缘性的有机分子膜可以充当具有不同特性的介质, 而金属或半导体纳米粒子则可以作为夹在两层相同或不同的有机膜中的储存电子的库仑岛. 有不少实验小组在纳米器件的原型化方面取得了巨大的成就, 发现了重要的 $I-V$ 台阶效应^[8-12].

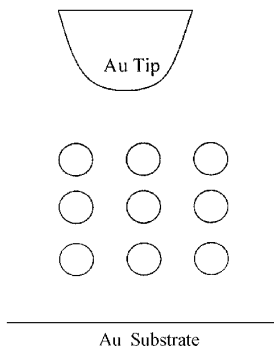


图 1 纳米点阵列示意图

我们利用 Monte-Carlo 方法对图 1 所示的纳米点阵列进行模拟. 纳米点可看成库仑岛, 在岛的直径相比岛间的距离较小时, 岛与岛之间的电容矩阵可写为

$$(C^{-1})_{ii} = \frac{1}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \frac{1}{r_i};$$

$$(C^{-1})_{ij} = \frac{1}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \frac{1}{S_{ij}}, \quad i \neq j;$$

$$S_{ij} = [(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (z_i - z_j)^2]^{1/2}, \quad (14)$$

其中 r_i 为第 i 岛的半径, ϵ 为纳米点周围介质的介电常量.

相邻岛之间的隧道结的隧道电阻为

$$R_{ij} = \frac{\rho}{4\pi} \frac{1}{S_{ij}} \quad i \neq j, \quad (15)$$

ρ 为纳米点周围介质的电阻率, S_{ij} 同上. 在选择一多余电子的分布 $\{n\}$ 之后, 我们就可根据电容矩阵计算各结点的电势, 然后利用 Monte-Carlo 方法根据各种分布的停留时间及分布之间的相互转换的概率, 计算出电流的分布.

我们利用 Monte-Carlo 方法对图 1 所示的纳米点阵列进行了模拟. 我们的模拟中, 取纳米点周围介质的介电常量为 $\epsilon = 11.9$, 电阻率为 $\rho = 2.3 \times 10^5 \Omega \cdot \text{cm}$. 量子点阵列为 3×3 的点阵. 利用(14)(15)式

计算电容矩阵及隧道电阻, 根据(9)式可计算流过外电极的电流与外加恒压源的关系, 其结果见图 2.

从图 2 中可看出, 在低温下 $I-V$ 特性曲线的台阶效应较为明显, 而在温度逐渐升高时, 台阶效应逐渐被热运动所掩盖. 图 3 为固定在 100 K 温度时, $I-V$ 特性曲线随量子点尺寸的变化. 从图 3 中可看出, 随着量子点尺寸的加大, 台阶效应逐渐消失. 这表明台阶效应是一种量子尺寸效应, 只有在纳米尺度的量子点才能表现出来.

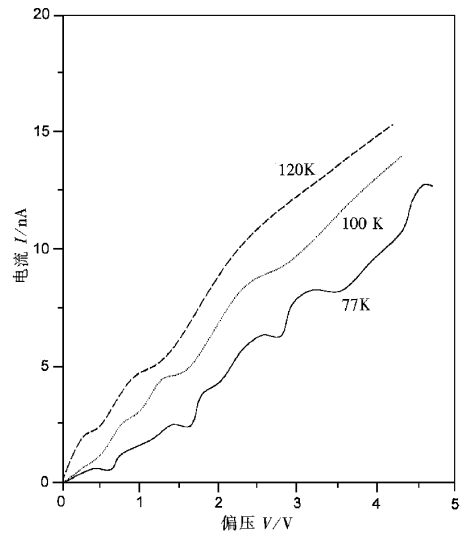


图 2 纳米阵列 $I-V$ 特性曲线在粒径 6 nm 时随温度 T 的变化

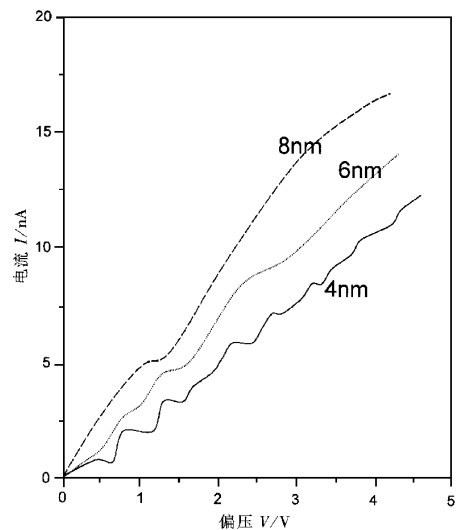


图 3 纳米阵列 $I-V$ 特性曲线在 $T = 100 \text{ K}$ 时随纳米点粒径的变化

4 结论与讨论

库仑台阶行为的形成可以简单地概括为:库仑岛由于被隧道结与外电路孤立,电子只能单个地通过隧穿进入或离开,在不同的电源偏压下,岛上将“储存”不同数目的电子.如果与分子或原子中的能级概念进行类比,可以认为岛上存在着“库仑能级”,每个能级上只能分布一个电子.隧穿发生的条件既决定于每个结上的电压,又决定于岛上储存的电子数.连续改变外加偏压,岛上的电子数也将因此逐一

变化.岛中每多一个或少一个电子,通过体系的隧穿电流就会发生一个阶跃,从而在 $I-V$ 曲线上将出现台阶现象.

Monte-Carlo 方法以非常直接的方法模拟了单电子电路中电子从一个岛到另一个岛隧穿的微观过程,因而它能给出单电子电路较好的瞬态和动力学行为.实际表明, Monte-Carlo 方法在单电子器件的半经典模拟中取得了较好的结果.对二维量子点阵而言,正确选择量子点之间的电容矩阵以及隧道结电阻都是十分重要的.在实际模拟中,应不断调整选择的参量以更好地拟合实际曲线.

- [1] C. J. Gorter, *Physica*, **A17** (1951), 777.
- [2] I. Giaever, H. R. Zeller, *Phys. Rev. Lett.*, **20** (1968), 1504.
- [3] H. R. Zeller, I. Giaever, *Phys. Rev.*, **181** (1969), 789.
- [4] J. Lambe, R. C. Jacevic, *Phys. Rev. Lett.*, **22** (1969), 1371.
- [5] D. V. Averin, K. K. Likharev, In “Mesoscopic phenomena in Solids”, edited by B. L. Altshuler, P. A. Lee, R. A. Webb (Elsevier, Amsterdam, 1991).
- [6] R. P. Andres, J. D. Bielefel, J. I. Herderson *et al.*, *Science*, **273** (1996), 1690.
- [7] M. Amman, R. Wilknis, E. Ben-Jacob *et al.*, *Phys. Rev.*, **B43** (1991), 1146.
- [8] R. P. Andres, T. Bein, M. Dorogi, S. Feng, J. I. Hender-son, C. P. Kubiak, W. Mahoney, R. G. Osifchin, R. Reifen-berger, *Science*, **272** (1996), 1323.
- [9] T. Mii, K. Makoshi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996), 3706.
- [10] M. Dorogi, J. Gomez, R. Osifshin, P. P. Andres, R. Reifen-berger, *Phys. Rev.*, **B52** (1995), 9071.
- [11] Y. Chen, L. Wang, H. X. He, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **91** (1997), 294.
- [12] D. L. Klein, P. L. McEuen, J. E. Bowen Katari, R. Roth, A. P. Alivisatos, *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996), 2574.

MONTE-CARLO SIMULATION OF TWO DIMENSIONAL ARRAYS*

HE HONG-BO ZHOU JI-CHENG HU HUI-FANG LI YI-BING

(Materials Research Institute, College of Information, Changsha Railway University, Hunan 410075, China)

YAO KAI-LUN

(Department of Physics, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

(Received 27 October 1999; revised manuscript received 20 February 2000)

ABSTRACT

In this paper, a single-charge tunneling simulator, the Monte Carlo simulator of two-dimensional quantum dot array using standard single electron tunneling theory and Monte-Carlo method is introduced. The simulated results show that the two-dimensional quantum dot array has Coulomb charging effect at low temperatures. The quantum effect of the dot array exhibits great prospect in research and applications.

Keywords: Monte-Carlo simulation, single electron, quantum dot array

PACC: 3530Y, 6120

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 69890227; 69771011; 69971007) and by the Fok Ying-tong Education Foundation, China.