

ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ ВЕЩЕСТВА

Метод параметризации электронного энергетического спектра примесных атомов для расчета одноэлектронных наноустройств

В. В. Шорохов

*Московский государственный университет имени М. В. Ломоносова, физический факультет,
кафедра атомной физики, физики плазмы и микроэлектроники.
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2.
E-mail: shorokhov@phys.msu.ru*

Статья поступила 09.11.2016, подписана в печать 12.12.2016.

Одиочные примесные атомы в полупроводниках и диэлектриках, обладающие стабильной электронной структурой и интересными физическими свойствами, могут стать основой элементной базы квантовых вычислительных и сенсорных систем, работающих на новых физических принципах. В работе предложен феноменологический метод параметризации одночастичного энергетического спектра валентных электронов в примесных атомах в кристаллических полупроводниках и диэлектриках, который учитывает наличие электрон-электронного взаимодействия. Учет электрон-электронного взаимодействия предложен в рамках модели внешних электронных оболочек. На основе предложенного метода представлен способ определения эффективной собственной емкости внешних оболочек примесных атомов и метод расчета туннельного тока в одноэлектронном устройстве с одним или несколькими активными примесными атомами — зарядовыми центрами.

Ключевые слова: одноатомный одноэлектронный транзистор, примесные атомы, одноэлектронное туннелирование, электронный энергетический спектр.

УДК: 538.915. PACS: 85.35.Gv, 73.63.Kv, 73.63.Rt, 71.55.-i.

Введение

Исследования электронных устройств с субнанометровыми рабочими элементами — «выделенными» атомами — позволят создавать электронные вычислительные системы сверхвысокой плотности и быстродействия. К настоящему времени предложены две концепции создания одноатомных элементов. Первая основана на использовании молекул, в которых рабочий зарядовый центр образуется на химически выделенном атоме [1]. Как правило, это атом металла [1, 2]. Вторая использует отдельные приповерхностные примесные атомы в полупроводниковых и диэлектрических кристаллах [3, 4] и является следствием долгого процесса уменьшения размеров базовых элементов традиционных полупроводниковых электронных устройств. Примесные атомы в традиционных электронных устройствах используются как пассивные поставщики носителей заряда — электронов или дырок. В устройствах одноатомной электроники примесные атомы — ключевые функциональные элементы [3–5].

Использование одиночных примесных атомов в качестве строительных блоков твердотельной нанoeлектроники привлекательно благодаря их стабильной электронной структуре и физическим свойствам при сверхмалых размерах. На основе примесных атомов уже созданы прототипы таких устройств обработки информации на новых физических принципах, как квантовые биты [6–8], квантовые вентили [9], логические ключи [10] и заря-

довые насосы [11, 12]. Следует отметить еще один перспективный класс одноатомных одноэлектронных устройств — зарядовые автоматы на одиночных примесных атомах. Ранее их пробная экспериментальная реализация была осуществлена на основе классических одноэлектронных устройств и кластерных молекул [13, 14]. Зарядовые автоматы на выделенных атомных центрах — идеальные кандидаты для создания перестраиваемых вычислительных устройств сверхвысокой информационной плотности.

Экспериментальное изучение одноэлектронного туннельного транспорта через одиночные примесные атомы в основном осуществляется с помощью одноэлектронных транзисторов на их основе [3, 8, 15–17]. Такие транзисторы состоят из наномостика, в самой узкой части которого находятся один или несколько примесных атомов, туннельных электродов и одного или нескольких управляющих электродов [3, рис. 1, а].

Основная сложность для крайне актуального теоретического описания из первых принципов процессов электронного транспорта через одиночные примесные атомы заключается в большом числе атомов в кластере минимально необходимого размера. Например, для примесного атома фосфора в кремнии радиус локализации одночастичной волновой функции валентного электрона составляет не менее 3 нм [18] и минимально необходимое количество атомов в модельном кластере — 10^4 атомов. Для практически важных моделей количество атомов

в кластере, как правило, еще больше и может достигать 10^6 атомов [19]. Большой размер модельной системы приводит к необходимости использовать вычислительные мощности петафлопного масштаба для расчетов, что существенно сужает возможность регулярного моделирования атомных функциональных электронных устройств широким кругом научных групп. При числе примесных атомов в модельных устройствах порядка 10 и более уже практически невозможно проектирование и описание их эволюции из первых принципов ввиду экспоненциального роста числа комбинаций квантовых и зарядовых состояний, необходимых для включения в расчет.

В настоящей работе предложен феноменологический метод параметризации одночастичного электронного спектра валентных электронов примесных атомов в полупроводниках и диэлектриках, который позволяет радикально снизить сложность расчета электронного транспорта в электронных устройствах на основе одиночных примесных атомов. Предложенный метод позволяет рассчитывать вольт-амперные, управляющие характеристики и токовые диаграммы стабильности подобных одноэлектронных устройств. В работе показано, каким образом предложенный метод позволяет получить емкостные характеристики примесного атома как зарядового центра одноэлектронного устройства.

1. Водородоподобная модель в приближении эффективной массы

Простейшей моделью энергетического спектра неглубоких валентных электронов примесного атома в таких кристаллических полупроводниках, как кремний, является модель водородоподобного атома в приближении «эффективной массы» [20]. Это приближение приводит к возникновению водородоподобного [21] энергетического спектра валентного электрона. Недостатком приближения эффективной массы для описания одноэлектронного переноса через одиночные примесные атомы является невозможность учета многоэлектронных зарядовых и возбужденных состояний, процессов зарядки и разрядки.

Для описания различных зарядовых и многоэлектронных квантовых состояний примесных атомов можно расширить водородоподобную модель в приближении эффективной массы. Перед тем, как это сделать, перечислим некоторые положения этой модели. В водородоподобной модели одночастичные электронные энергетические уровни валентных электронов примесных атомов в полупроводнике в международной системе единиц можно записать как

$$\epsilon_n = -\frac{m^*e^4}{2n^2\hbar^2\epsilon^2(4\pi\epsilon_0)^2} = -\frac{m^*e^4}{8\hbar^2n^2\epsilon^2\epsilon_0^2}, \quad (1)$$

где n — главное квантовое число, m^* — эффективная масса электрона на дне зоны проводимости полупроводника [20]. В знаменателе выражения (1)

относительная диэлектрическая проницаемость ϵ является мерой экранировки кулоновского потенциала примесного атома электронами полупроводника.

Огибающие распределения амплитуд одночастичных волновых функций валентного электрона в области примесного атома схожи с распределениями амплитуд волновых функций электрона в водородоподобном атоме. Наличие анизотропии в кристалле может приводить к понижению центральной симметрии эффективного потенциала примесного атома и снятию случайного вырождения одночастичных энергетических уровней по орбитальному l и магнитному m_l квантовому числам. Зона проводимости в водородоподобной модели примесных атомов в полупроводниках в приближении эффективной массы играет роль энергетического континуума.

Для дальнейшего рассмотрения запишем радиус боровской орбиты, среднюю скорость и характерную частоту движения валентных электронов в примесном атоме в состояниях с главным квантовым числом n :

$$r_n = \frac{\epsilon\epsilon_0 n^2 \hbar^2}{\pi m^* e^2}, \quad v_n = \frac{e^2}{2\epsilon\epsilon_0 \hbar n} = \frac{G_0}{2\epsilon\epsilon_0 n}, \quad \nu_n = \frac{m^* e^4}{4\epsilon^2 \epsilon_0^2 n^3 \hbar^3}, \quad (2)$$

где G_0 — квант проводимости. Радиус n -й боровской орбиты, например, в примесном атоме мышьяка в кремнии в квантовом состоянии $n = 1$ составляет $r_1 \approx 2.2$ нм.

2. Модель электронного энергетического спектра с учетом электрон-электронного взаимодействия

Характерной особенностью токовых диаграмм стабильности одноатомных одноэлектронных устройств является наличие серий так называемых кулоновских ромбов с достаточно постоянными значениями туннельных токов [3, 15–17]. В процессе туннельного транспорта в таких устройствах под действием внешних управляющих полей может быть локализовано несколько электронов путем увеличения эффективной глубины потенциальной энергетической ямы в области примесного атома. Наличие нескольких слабосвязанных электронов на примесном атоме приводит к необходимости учета их кулоновского взаимодействия, которое и определяет появление кулоновских ромбов на токовых диаграммах стабильности одноэлектронных одноатомных устройств.

Определим локализованные одночастичные состояния валентных электронов в примесных атомах по аналогии с обычными многоэлектронными атомами [21, 22], каждое из которых определяется совокупностью четырех квантовых чисел $p = (n, l, m_l, m_s)$. В качестве подходящей модели для таких состояний можно, например, рассматривать локализованные функции Ванье [20, 23]. В настоящей работе эти состояния определены феноменологическим образом на основе анализа имеющихся

экспериментальных токовых диаграмм стабильности одноэлектронных транзисторов на примесных атомах [3, 15–17]. Главное квантовое число n в таких состояниях определяет размер области локализации волновой функции соответствующего одночастичного состояния и может быть равно $n \approx 1, 2, 3, \dots$. Орбитальное квантовое число l определяет угловое распределение электронной плотности вокруг примесного центра. Квантовое число m_l определяет ориентацию распределения электронной плотности в пространстве. Определим совокупность введенных одночастичных электронных состояний, локализованных на примесном атоме и имеющих квантовое число n , как оболочку; подоболочку как совокупность с одинаковыми значениями (n, l) и половину подоболочки как совокупность с одинаковыми значениями (n, l, m_s) . Аналогичные определения для свободных атомов хорошо известны в атомной физике [21, 22].

Наличие примесного атома нарушает трансляционную симметрию полупроводника. В то же время центральная симметрия потенциала остова примесного атома нарушается кристаллической решеткой. По этой причине, рассматривая одночастичные электронные волновые функции, можно в той же мере говорить об орбитальном механическом моменте валентных электронов примесного атома, в которой речь идет об импульсе электрона в зоне проводимости полупроводника.

Ключевым предположением предлагаемой феноменологической модели является равенство одночастичной энергии электронов в одной и той же половине подоболочки примесного атома (n, l, m_s) . В случае пониженных требований к точности по определению энергии электронов можно пренебречь разницей в энергии электронов в разных половинах одной и той же атомной подоболочки или разных подоболочках одной оболочки.

Экспериментальные данные по измерению потенциалов ионизации свободных атомов [24] свидетельствуют о том, что внешнюю половину подоболочки свободного атома с квантовыми числами (n, l, m_s) можно рассматривать с позиции модели идеальной сферы с некоторым идеальным радиусом R_n [25, 26]. Этот же подход был использован в настоящей работе для описания оболочек примесного атома в полупроводниках. Энергия электронных оболочек примесного атома в полупроводнике формально может быть вычислена на основе их усредненного радиуса и модели взаимодействия электронов на идеально проводящей сфере [25, 27]. Запишем электростатическую энергию взаимодействия электронов для такой идеальной сферы радиуса R_{nlm_s} [25, 27]:

$$U_{ee,n'}(N_{nlm_s}) = \frac{N_{nlm_s}(N_{nlm_s} - 1)e^2}{8\pi\epsilon_0 R_{nlm_s}}, \quad (3)$$

где N_{nlm_s} — число электронов в половине подоболочки (nlm_s) . Множитель $(N_{nlm_s} - 1)$ учитывает

отсутствие электрон-электронного взаимодействия в случае одного электрона в подоболочке [25].

Энергию притяжения N_{nlm_s} электронов к остову примесного атома для выбранной половины подоболочки можно записать как

$$U_{Ze,nlm_s}(N_{nlm_s}) = -\frac{N_{nlm_s}Z_{nlm_s}^*e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{nlm_s}}, \quad (4)$$

где $Z_{nlm_s}^*$ — эффективный заряд остова примесного атома, как он «виден» из половины подоболочки (n, l, m_s) , который включает в себя электронный заряд всех нижележащих электронных оболочек и заряд ядра.

Кинетическую энергию N_{nlm_s} электронов, расположенных в половине подоболочки, можно определить как

$$T_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{N_{nlm_s}\hbar^2 n^2}{2m^* R_{nlm_s}^2}. \quad (5)$$

Полная энергия половины подоболочки примесного атома с N электронами и главным квантовым числом n есть

$$E_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = N_{nlm_s} \left(\frac{\hbar^2 n^2}{2m^* R_{nlm_s}^2} - \frac{(Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)e^2}{4\pi\epsilon_0 R_{nlm_s}} \right). \quad (6)$$

Эффективный радиус половины подоболочки может быть определен через минимизацию ее полной энергии (6) по R_{nlm_s} :

$$R_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{4\pi\epsilon_0 \hbar^2 n^2}{e^2 m^* (Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)}. \quad (7)$$

Сделаем оценку $Z_{nlm_s}^*$ для примесного атома мышьяка в кремнии. Вторая половина его $4p$ -подоболочки является внешней и не полностью заполненной в основном состоянии. Она содержит только один электрон. Можно оценить ее эффективный заряд остова, используя энергию возбужденного одночастичного состояния атома мышьяка в кремнии 0.048 эВ [20], как $Z_{4p}^* \approx 5.3$. В случае полностью заполненной этой половины подоболочки $(N_{4p} - 1)/2 = 1$. Приведенная оценка показывает, что, как правило, $Z_{nlm_s}^* \gg (N_{nlm_s} - 1)/2$, что определяется неидеальностью экранировки остова примесного атома электронами внутренних оболочек. Выражение (7) можно рассматривать как уточненное выражение боровского радиуса в примесном атоме (2). Выражение (7) дает возможность определить понятие собственной эффективной емкости [28, 29] оболочки примесного атома:

$$C_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^2 n^2}{e^2 m^* (Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)}. \quad (8)$$

Эффективная собственная емкость двух половин подоболочек, относящихся к одной подоболочке, отличается слабо. Оценку разницы емкостей можно записать как

$$\Delta C \sim \frac{e^2}{E_{ls}}, \quad (9)$$

где E_{ls} — характерная энергия спин-орбитального взаимодействия для выбранной подоболочки.

Используя выражение для эффективного радиуса электронной оболочки в примесном атоме (7), получаем выражение для полной энергии половины атомной подоболочки

$$E_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = -\frac{e^4 m^* N_{nlm_s} (Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)^2}{2(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^2 n^2}. \quad (10)$$

Среднюю скорость электрона в рассматриваемой половине подоболочки запишем в виде

$$v_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{e^2 (Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)}{4\pi\epsilon_0 \hbar n}. \quad (11)$$

Характерная частота движения в примесном атоме для выбранной половины подоболочки

$$\nu_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{m^* e^4 (Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^3 n^3}. \quad (12)$$

Выражения (11) и (12) являются уточнением в многоэлектронном случае соответствующих боровских формул.

Электростатическая энергия N_{nlm_s} -го электрона в половине подоболочки может быть вычислена в предложенной модели на основе следующего выражения:

$$\begin{aligned} \epsilon_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \\ = -\frac{e^4 m^* \left(Z^{*2} + \left(\frac{3}{4} N_{nlm_s} - 2Z_{nlm_s}^* - 1 \right) (N_{nlm_s} - 1) \right)}{2(4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^2 n^2}. \end{aligned} \quad (13)$$

Наличие нескольких электронов в одной и той же половине подоболочки и их эквивалентность позволяют объяснить причину существования нескольких блокадных кулоновских ромбов с одинаковой величиной кулоновской блокады на токовых диаграммах одноатомных одноэлектронных транзисторов, тогда как боровская модель примесного атома предсказывает монотонное уменьшение кулоновских блокадных ромбов по мере увеличения главного квантового числа.

3. Метод расчета туннельного тока через примесный атом

В ранее выполненных экспериментальных работах [3, 15–17] измеренное электрическое сопротивление мостика одноэлектронного транзистора на примесных атомах составило 10^5 – 10^8 Ом. Поскольку квантовая единица сопротивления равна 25.8 кОм и электронный перенос через примесные атомы в этих работах предположительно осуществлялся через несколько одночастичных энергетических уровней, величину прозрачности туннельных барьеров между примесными атомами и туннельными электродами можно оценить в диапазоне $2 \cdot 10^{-1}$ – $2 \cdot 10^{-4}$. При таких значениях прозрачности

туннельных барьеров и при не очень высоких напряжениях смещения одночастичные электронные состояния на примесном атоме слабо связаны с одночастичными состояниями в других примесных атомах и электродах, что соответствует одноэлектронному режиму туннельного переноса [27, 33].

Темпы туннелирования между примесными атомами и примесными атомами и электродами можно оценить, используя выражение для характерной частоты движения валентных электронов в электронной оболочке примесного атома (12)

$$\Gamma_{nlm_s}(N_{nlm_s}) \approx \nu_{nlm_s}(N_{nlm_s}) \mathcal{T}_{nlm_s}(N_{nlm_s}), \quad (14)$$

где $\mathcal{T}_{nlm_s}(N_{nlm_s})$ — коэффициент прозрачности эффективного туннельного барьера между парой примесных атомов или между примесным атомом и электродом для соответствующего значения энергии валентного электрона $\epsilon_{nlm_s}(N_{nlm_s})$. Высота эффективного потенциального барьера определяется в приближении «эффективной массы» как разница между дном зоны проводимости и энергией валентного электрона в примесном атоме (13). Ширина эффективного туннельного барьера определяется расстоянием между соседними примесными атомами или между выделенным примесным атомом и туннельным электродом. Туннельная связь между примесными атомами или между выделенным примесным атомом и туннельным электродом приводит к уширению одночастичных энергетических уровней электронов в примесных атомах на величину $\hbar \Gamma_{nlm_s}(N_{nlm_s})$. Размер области локализации электронов увеличивается по мере увеличения n и l и, следовательно, происходит увеличение собственной эффективной емкости и темпов туннелирования электронов для соответствующих подоболочек.

В одноатомном одноэлектронном транзисторе энергия электростатического взаимодействия между примесным атомом, играющим роль активного зарядового центра, и туннельным металлическим электродом может быть описана с помощью эффективных взаимных электрических емкостей $C_{nlm_s}^L$ и $C_{nlm_s}^R$ [30]. Определим коэффициент деления на напряжения смещения одноэлектронного транзистора в точке нахождения примесного атома относительно туннельных электродов как

$$\eta_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{C_{nlm_s}^L(N_{nlm_s})}{C_{nlm_s}^L(N_{nlm_s}) + C_{nlm_s}^R(N_{nlm_s})}. \quad (15)$$

С высокой степенью точности можно считать, что коэффициент деления на напряжения смещения не зависит от квантового номера подоболочки примесного атома

$$\eta_n \approx \eta. \quad (16)$$

Запишем электростатическую энергию частично заполненной половины подоболочки в виде

$$U_{nlm_s}(N_{nlm_s}) = \frac{N_{nlm_s}(N_{nlm_s} - 1)e^2}{2C_{nlm_s}^\Sigma(N_{nlm_s})} - N_{nlm_s}e(\varphi_g + \varphi_t), \quad (17)$$

где

$$C_{nlm_s}^\Sigma(N_{nlm_s}) = C_{nlm_s}(N_{nlm_s}) + C_{nlm_s}^L(N_{nlm_s}) + C_{nlm_s}^R(N_{nlm_s}), \quad (18)$$

φ_g — электрический потенциал, созданный в точке нахождения примесного атома управляющими электродами; φ_t — электрический потенциал, созданный паразитными зарядовыми ловушками — «пассивными» зарядовыми центрами, которыми могут быть как различного рода дефекты кристаллической решетки, так и другие примесные атомы, не принимающие участие в электронном транспорте. Наличие таких ловушек осложняет анализ характеристик одноэлектронных устройств на примесных атомах, поскольку эти ловушки могут спонтанно с некоторой малой вероятностью заряжаться и разряжаться. По этой причине точное определение φ_t затруднено. В экспериментах по созданию одноатомных одноэлектронных устройств потенциалы φ_g и φ_t , как и потенциалы туннельных электродов, задаются относительно нижнего проводящего слоя подложки, который обычно занулен. Эти потенциалы в области расположения активного зарядового атомного центра следует понимать как разности потенциалов, которые определяют дополнительное смещение энергетических уровней примесного атома.

Электронные подоболочки примесного атома, которые находятся по энергии ниже валентной оболочки, остаются невозбужденными и не учитываются в одноэлектронном транспорте. Полное зарядовое состояние примесного атома N определим как разность полного числа электронов, локализованных на примесном атоме в заряженном состоянии и числом локализованных электронов в нейтральном примесном атоме. Зарядовое состояние $N=0$ соответствует электрически нейтральному примесному атому. Полная электростатическая энергия примесного атома может быть записана в виде суммы электростатических энергий всех подоболочек

$$U(N) = \sum_{\{nlm_s\}} \left[\frac{N_{nlm_s}(N_{nlm_s} - 1)e^2}{2C_{nlm_s}^\Sigma} - N_{nlm_s}e(\varphi_g + \varphi_t) \right]. \quad (19)$$

Получим выражение для расчета туннельного тока в одноэлектронных устройствах, в которых эффективными зарядовыми центрами являются примесные атомы в приближении слабой туннельной связи. Будем полагать, что ширина одночастичных энергетических уровней валентных электронов примесных атомов, определяемая туннельной связью, мала по сравнению со средним расстоянием между ними. Также будем предполагать, что ширина этих уровней много меньше величины тепловых флуктуаций

$$kT \gg \hbar (\Gamma_{N,p}^L + \Gamma_{N,p}^R), \quad (20)$$

где $p = (n, l, m_l, m_s)$ и много меньше характерной кулоновской энергии выделенного примесного атома [27, 33]

$$E_C \gg \hbar (\Gamma_{N,p}^L + \Gamma_{N,p}^R). \quad (21)$$

Также будем пренебрегать резонансным тунелированием через примесный атом, предполагая, что оно дает существенно меньший вклад в туннельный ток, чем одноэлектронное тунелирование.

Запишем выражение для вероятности туннелирования электрона в единицу времени на $\omega_{n,N,p}^+$ и с $\omega_{n,N,p}^-$ одночастичного энергетического уровня p выделенного примесного атома [27, 31]:

$$\begin{aligned} \omega_{N,p}^+ &= \omega_{N,p}^{L,+} + \omega_{N,p}^{R,+} = \Gamma_{N,p}^L f_{N,p}^{+,L} + \Gamma_{N,p}^R f_{N,p}^{+,R}, \\ \omega_{N,p}^- &= \omega_{N,p}^{L,-} + \omega_{N,p}^{R,-} = \\ &= \Gamma_{N,p}^L (1 - f_{N,p}^{-,L}) + \Gamma_{N,p}^R (1 - f_{N,p}^{-,R}), \end{aligned} \quad (22)$$

где $f_{N,p}^{\pm,L(R)}$ — распределение Ферми–Дирака, вычисленное для соответствующих значений энергии одночастичных уровней в левом и правом электродах для процессов прихода в «+» и ухода «−» электронов из примесного атома [27, 31]. Темпы туннелирования в выражении (22) могут быть рассчитаны на основе выражения (14) или золотого правила Ферми [27] и приближения Бардина [32]. При расчете вероятностей (22) необходимо учитывать закон сохранения энергии для туннелирования электрона в конечное (из начального) одночастичное состояние $p = (n, l, m_l, m_s)$ в подоболочке примесного атома в зарядовом состоянии N_{nlm_s} из начального (в конечное состояние) в левом (правом) электроде на энергетический уровень $\varepsilon_{\pm,L(R)}$:

$$\varepsilon_{\pm,L(R)} = \varepsilon_{N,p} \pm U(N_{nlm_s} \pm 1) \mp U(N_{nlm_s}) - \eta^{L(R)} eV + e(\varphi_g + \varphi_t), \quad (23)$$

где $\eta^L = \eta$, $\eta^R = \eta - 1$.

Для описания эволюции квантовых состояний примесного атома необходимо использовать аппарат матрицы плотности. В случае слабой туннельной связи, используя секулярное и марковское приближения, можно перейти к описанию системы с помощью функции распределения вероятности $\rho(\{n_p\}, t)$ по числам заполнения n_p одночастичных состояний $p = (n, l, m_l, m_s)$ и системы кинетических уравнений [27, 31], в которых вероятности туннелирования определяются выражениями вида (22). Решив систему кинетических уравнений для функции распределения вероятности $\rho(\{n_p\}, t)$, можно вычислить туннельный ток через одноатомный одноэлектронный транзистор. Для этого достаточно вычислить ток через один из двух туннельных переходов транзистора, так как в стационарном режиме его протекания токи через левый и правый переходы равны:

$$\begin{aligned} I = I^L = I^R &= -e \sum_{p=1}^{\infty} \sum_{\{n_i\}} \rho(\{n_i\}, t) \times \\ &\times \{ \delta_{n_p,0} \omega_{n,N,p}^{L,+}(V, \varphi_g, \varphi_t) - \delta_{n_p,1} \omega_{n,N,p}^{L,-}(V, \varphi_g, \varphi_t) \}, \end{aligned} \quad (24)$$

где n_p — числа заполнения электронных одночастичных энергетических уровней в примесном атоме.

4. Проводимость электронного одночастичного энергетического уровня

При малых напряжениях смещения V возможен электронный перенос через примесный атом только через один одночастичный электронный уровень с индексом p . В этом случае в сумме в выражении (24) останется только одно слагаемое. Используя ранее полученное в работе [31] приближенное выражение для проводимости одиночного энергетического уровня в приближении линейного отклика в пределе при $V \rightarrow 0$, проводимость одноатомного транзистора запишем в виде

$$G \approx \frac{e^2}{4k_B T} \frac{\Gamma_{N,p}^L \Gamma_{N,p}^R}{\Gamma_{N,p}^L + \Gamma_{N,p}^R} \frac{1}{\text{ch}^2(\varepsilon^{\pm, L(R)}/2k_B T)}. \quad (25)$$

Обычно в экспериментах реализуется близкий к симметричному одноатомный одноэлектронный транзистор, $\eta \approx 0.5$ и $\Gamma_{N,p}^L \approx \Gamma_{N,p}^R \approx \Gamma_{N,p}$. В экспериментально реализованных транзисторах [3, 15–17] все измерения в основном были проведены при гелиевых ($T = 4$ К) температурах и ниже. Величины $\varepsilon^{\pm, L(R)}$ соответствуют положению одночастичных энергетических уровней примесных атомов относительно зоны проводимости кристалла. Например, для кремния и неглубоких доноров эти значения энергии ~ 10 мэВ, что позволяет в выражении (25) с хорошей точностью заменить гиперболический косинус на единицу. Используя максимальное значение туннельной проводимости, измеренной экспериментально на границе кулоновского ромба, запишем более простое выражение для оценки прозрачности эффективного туннельного барьера:

$$G_{\max} = \max \left\{ \frac{\partial I}{\partial V} \right\} = \frac{e^2}{4k_B T} \Gamma_{N,p}. \quad (26)$$

Окончательное выражение для коэффициента прозрачности туннельного барьера получается путем подстановки выражения для $\Gamma_{N,p} \sim \nu_{nlm_s}(N_{nlm_s})\mathcal{T}_p$, где частота $\nu_{n,N}$ определяется выражением (12). В результате

$$\mathcal{T}_{N,p} = \frac{G_{\max}}{G_0} \frac{k_B T}{\pi \text{Ry}} \frac{m_e}{m^*} \frac{\epsilon^2 n^3}{(Z_{nlm_s}^* - (N_{nlm_s} - 1)/2)^2}. \quad (27)$$

Используя приближенное выражение для прозрачности прямоугольного туннельного барьера и предполагая, что эффективная высота потенциального барьера между примесным атомом и туннельным электродом определяется разностью энергий между дном зоны проводимости кристалла полупроводника и одночастичным уровнем энергии примесного атома, ширину эффективного туннельного барьера можно оценить как

$$\mathcal{W} \approx -\frac{\hbar \ln(\mathcal{T}_{N,p})}{2\sqrt{2m^* \varepsilon_{N,p}}}. \quad (28)$$

Выражение (28) позволяет оценивать расстояние между отдельными примесными атомами и между примесными атомами и туннельными электродами.

5. Определение эффективной емкости внешней оболочки примесного атома

Представленная выше феноменологическая модель электронных оболочек примесного атома позволяет определить их эффективный радиус и эффективную собственную емкость путем обработки данных экспериментальных измерений токовых диаграмм стабильности одноатомного одноэлектронного транзистора. Для определения емкостных параметров атомных оболочек активного зарядового центра на примесном атоме можно использовать закон сохранения энергии (23). В пределе низкой температуры $T \rightarrow 0$ кулоновские ромбы на токовой диаграмме стабильности имеют четкую внутреннюю микроструктуру и края. Границы каждого ромба определяются вероятностями включения или исключения одночастичных состояний той или иной электронной оболочки в процесс туннельного переноса электронов через примесный атом.

Используя выражение (17), изменение электростатической энергии при туннелировании электрона в половину подоболочки (nlm_s) можно записать как

$$U(N_{nlm_s} + 1) - U(N_{nlm_s}) = \frac{N_{nlm_s} e^2}{C_{nlm_s}^{\Sigma}} - e(\varphi_g + \varphi_t). \quad (29)$$

Из ранее полученных выражений для вероятности переходов (22) следует, что вероятность туннелирования на энергетический уровень p оболочки с главным квантовым числом n и зарядовым состоянием N отличается от нуля $\omega_{n,N,p}^+ > 0$, если выполняется условие

$$\varepsilon_{N,p} \leq \eta^{L(R)} eV - \frac{N_{nlm_s} e^2}{C_{nlm_s}^{\Sigma}} + e(\varphi_g + \varphi_t). \quad (30)$$

Вероятность туннелирования электрона с одночастичного энергетического уровня p примесного атома в зарядовом состоянии N отличается от нуля $\omega_{n,N,p}^- > 0$, если

$$\varepsilon_{N,p} \geq \eta^{L(R)} eV - \frac{(N_{nlm_s} - 1)e^2}{C_{nlm_s}^{\Sigma}} + e(\varphi_g + \varphi_t). \quad (31)$$

Если ни для одного из зарядовых состояний N и одночастичных энергетических уровней p активного примесного центра не выполняются условия $\omega_{n,N,p}^+ > 0$ и $\omega_{n,N,p}^- > 0$, то полный ток через транзистор заблокирован $I = 0$.

Выражения (30) и (31) определяют положения кулоновских ромбов на токовой диаграмме стабильности. Переход на такой диаграмме из области с нулевым туннельным током $I = 0$ в область ненулевых токов $I \neq 0$ связан с открытием одного из одночастичных энергетических уровней примесного атома для туннельного транспорта.

Из неравенств (30), (31) и данных о структуре блокадных ромбов на токовой диаграмме стабильности можно оценить собственные емкостные параметры примесного атомного центра транзистора e^2/C_{Σ} и C_{Σ} [27, 33]. Для этого определим взаимную емкость активного примесного зарядового центра

транзистора и управляющего электрода. Это задача усложняется присутствием паразитных зарядовых ловушек. Если зарядовые состояния этих ловушек не меняются при малых изменениях напряжения смещения V и управляющего напряжения V_g , то потенциал φ_g может быть определен с помощью линейной аппроксимации границы кулоновского ромба на токовой диаграмме стабильности. Используя условия (30) и (31), можно видеть, что граница кулоновского блокадного ромба может быть записана как

$$\varphi_g = \alpha_g V_g = \eta^{L(R)} V + \text{const}. \quad (32)$$

Выбор η^L и η^R в выражении (32) определяется тем, какая сторона кулоновского ромба выбрана для определения емкостного коэффициента управляющего электрода α_g . Окончательно для емкостного коэффициента управляющего электрода

$$\alpha_g = \eta \frac{dV}{dV_g} \Big|_{\text{rb}} \quad \text{или} \quad \alpha_g = (\eta - 1) \frac{dV}{dV_g} \Big|_{\text{lb}}, \quad (33)$$

где индексы «lb» и «rb» — левая и правая границы токового ромба соответственно. Из выражения (33) определяем значение коэффициента деления напряжения смещения

$$\eta = \frac{dV}{dV_g} \Big|_{\text{lb}} / \left(\frac{dV}{dV_g} \Big|_{\text{lb}} - \frac{dV}{dV_g} \Big|_{\text{rb}} \right). \quad (34)$$

Для определения значений e^2/C_Σ и C_Σ можно применить выражения (30) и (31). Используя две соседние вершины токовых треугольников, которые соответствуют одночастичным электронным энергетическим уровням $\varepsilon_{N,p'}$ и $\varepsilon_{N,p''}$ из одной и той же половины подболочки и двум зарядовым состояниям N' и $N'' = N' \pm 1$ примесного атома, и предполагая, что окружающие зарядовые ловушки не меняют своего зарядового состояния и, следовательно, не меняют электрический потенциал в точке нахождения активного примесного атома по мере изменения напряжения на управляющем электроде от одной вершины к другой и, воспользовавшись условиями (30) и (31) при $V = 0$, получаем следующее выражение для оценки характерной кулоновской энергии рабочего зарядового центра транзистора:

$$\frac{e^2}{C_{nlm_s}^\Sigma} \approx \frac{\varepsilon_{N',p'} - \varepsilon_{N'',p''} - e\alpha_g(V_g' - V_g'')}{N'' - N'}. \quad (35)$$

Заключение

Предложен феноменологический метод параметризации одночастичного энергетического спектра валентных электронов в примесных атомах в кристаллических полупроводниках и диэлектриках, который является развитием водородоподобной модели в приближении эффективной массы для неглубоких примесных атомов в полупроводниках. В методе учтено наличие электрон-электронного взаимодействия и электронных оболочек. Параметры электронных оболочек могут быть определены из эксперимен-

тальных данных или на основе расчета из первых принципов.

Представлен способ определения эффективной собственной емкости валентных электронов примесных атомов, что имеет крайне важное значение для анализа результатов экспериментальных работ по созданию одноатомных одноэлектронных устройств. На основе метода параметризации одночастичного энергетического спектра предложен метод расчета туннельного тока в системе из одного или нескольких примесных атомов и туннельных электродов. Для дальнейшего развития метода предполагается использовать данные расчетов электронной структуры примесных атомов в полупроводниках и диэлектриках для получения параметров электронных оболочек. Описание одночастичных электронных состояний примесных атомов в кристаллах полупроводников и диэлектриков осложнено наличием анизотропии. При необходимости предложенная оболочечная модель может быть изменена для учета анизотропии путем замены сферических оболочек эллипсоидальными.

Предложенная параметризация энергетического спектра валентных электронов в примесных атомах позволяет перейти к моделированию электронного транспорта в практически интересных одноэлектронных наноразмерных устройствах, состоящих из одного или нескольких активных примесных атомов, например зарядовых автоматов на примесных атомах.

Работа выполнена при финансовой поддержке РНФ (грант 16-12-00072).

Список литературы

1. Park J., Pasupathy A.N., Goldsmith J.I. et al. // *Nature*. 2002. **417**, N 6890. P. 722.
2. Beloglazkina E.K., Majouga A.G., Manzheliy E.A. et al. // *Polyhedron*. 2015. **85**. P. 800.
3. Shorokhov V.V., Presnov D.E., Amitonov S.V. et al. // *Nanoscale*. 2017. **9**, N 2. P. 613.
4. Zwanenburg F.A., Dzurak A.S., Morello A. et al. // *Rev. Mod. Phys.* 2013. **85**. P. 961.
5. Koenraad P.M., Flatté M.E. // *Nat. Mater.* 2011. **10**, N 2. P. 91.
6. Kane B.E. // *Nature*. 1998. **393**, N 6681. P. 133.
7. Pla J.J., Tan K.Y., Dehollain J.P. et al. // *Nature*. 2012. **489**, N 7417. P. 541.
8. Fuechsle M., Miwa J.A., Mahapatra S. et al. // *Nat. Nanotechnol.* 2012. **7**, N 4. P. 242.
9. Veldhorst M., Yang C.H., Hwang J.C.C. et al. // *Nature*. 2015. **526**, N 7573. P. 410.
10. Mol J.A., Verduijn J., Levine R.D. et al. // *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*. 2011. **108**, N 34. P. 13969.
11. Yamahata G., Nishiguchi K., Fujiwara A. // *Nat. Commun.* 2014. **5**, N 5038. P. 1.
12. Tettamanzi G.C., Wacquez R., Rogge S. // *New J. Phys.* 2014. **16**, N 6. P. 63036.
13. Snider G.L., Orlov A.O., Amlani I. et al. // *Semicond. Sci. Technol.* 1998. **13**, N 8A. P. A130.
14. Bose S.K., Lawrence C.P., Liu Z. et al. // *Nat. Nanotechnol.* 2015. **10**. P. 1048.

15. *Lansbergen G.P., Rahman R., Wellard C.J. et al. // Nat. Phys.* 2008. **4**, N 8. P. 656.
16. *Pierre M., Wacquez R., Jehl X. et al. // Nat. Nanotechnol.* 2010. **5**, N 2. P. 133.
17. *Tan K.Y., Chan K.W., Mottonen M. et al. // Nano Lett.* 2009. **10**, N 1. P. 11.
18. *Usman M., Bocquel J., Salfi J. et al. // Nat. Nanotechnol.* 2016. **11**. P. 763.
19. *Lee S., Ryu H., Jiang Z., Klimeck G. // 13th Int. Workshop on Computational Electronics. IEEE, 2009. P. 1.*
20. *Ю П., Кардона М. // Основы физики полупроводников. М.: Физматлит, 2002.*
21. *Бете Г., Солнтер Э. // Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами. М.: Физматгиз, 1960.*
22. *Собельман И.И. // Введение в теорию атомных спектров. М.: Физматгиз, 1963.*
23. *Marzari N., Mostofi A.A., Yates J. et al. // Rev. Mod. Phys.* 2012. **84**, N 4. P. 1419.
24. *Ralchenko Y., Clark R.E.H., Dubernet M. et al. // AIP Conf. Proc.* 2009. **1125**, N 1. P. 207.
25. *Belkhir L. // Phys. Rev. B.* 1994. **50**, N 12. P. 8885.
26. *Carlson T.A., Nestor C., Wasserman N., Mcdowell J. // Atom. Data Nucl. Data Tables.* 1970. **2**. P. 63.
27. *Аверин Д.В., Коротков А.Я. // ЖЭТФ.* 1990. **97**, № 5. С. 1661.
28. *Iafrate G.J., Hess K., Krieger J.B., Macucci M. // Phys. Rev. B.* 1995. **52**, N 15. P. 10737.
29. *Шорохов В.В., Солдатов Е.С., Губин С.П. // Радиотехника и электроника.* 2011, **56**, № 3. С. 352. (*Shorokhov V.V., Soldatov E.S., Gubin S.P. // J. Commun. Technol. El.* 2011. **56**, N 3. P. 326.)
30. *Герасимов Я.С., Шорохов В.В., Маресов А.Г. и др. // Радиотехника и электроника.* 2011. **56**, № 12. С. 1514. (*Gerasimov Ya.S., Shorokhov V.V., Maresov A.G. et al. // J. Commun. Technol. El.* 2011. **56**, N 12. P. 1483.)
31. *Beenakker C.W.J. // Phys. Rev. B.* 1991. **44**. P. 1646.
32. *Bardeen J. // Phys. Rev. Lett.* 1961, **57**, N 57. P. 57.
33. *Аверин Д.В., Лухарев К.К. // ЖЭТФ.* 1986. **90**, № 2. С. 733.

A method of dopant electron energy spectrum parameterization for calculation of single-electron nanodevices

V. V. Shorokhov

Department of Atomic Physics, Plasma Physics and Microelectronics, Faculty of Physics, Lomonosov Moscow State University, Moscow 119991, Russia.

E-mail: shorokhov@phys.msu.ru.

Solitary dopants in semiconductors and dielectrics that possess stable electron structures and interesting physical properties may be used as building blocks of quantum computers and sensor systems that operate based on new physical principles. This study proposes a phenomenological method of parameterization for a single-particle energy spectrum of dopant valence electrons in crystalline semiconductors and dielectrics that takes electron–electron interactions into account. It is proposed to take electron–electron interactions in the framework of the outer electron shell model into account. The proposed method is applied to construct the procedure for the determination of the effective dopant outer shell capacity and the method for calculation of the tunneling current in a single-electron device with one or several active dopants–charge centers.

Keywords: single-atom single-electron transistor, dopants.

PACS: 85.35.Gv, 73.63.Kv, 73.63.Rt, 71.55.–i.

Received 9 November 2016.

English version: *Moscow University Physics Bulletin.* 2017. **72**, No. 3. Pp. 279–286.

Сведения об авторе

Шорохов Владислав Владимирович — канд. физ.-мат. наук, доцент; тел.: (495) 939-59-35, e-mail: shorokhov@phys.msu.ru.