Degenerált energianívójú MoS₂ alapú kvantumdotok transzportjelenségeinek vizsgálata

Ράηοκι Ταμάς

Bevezetés

Manapság a technológiai fejlődés kikényszeríti új tudományos és mérnöki miniatürizálási megoldások megalkotását, hiszen a hagyományos számítógépek fejlődését a méretcsökkentés nélkül nem lehetne fenntartani. A megnövekedett számítási kapacitás érdekében ugyanis több tranzisztort és diódát kell elhelyezni egy megadott térfogatban ahhoz, hogy a számítógépek méretét ne növeljük. Bizonyos méretskála alatt már nem kezelhetjük a rendszerünket klasszikusan (pl.: az áram és a hőfejlődés korrekt leírása lehetetlen klasszikus keretek között), hanem a megfelelő leírást a kvantummechanika segítségével tehetjük meg. A méretlokalizálási és a megnövekedett számítási igényű problémák megoldására új lehetőséget nyújt a kvantumszámítógép, mely számítási sebessége egyes problémák esetén meghaladja a hagyományos számítógépek által elérni képes felső határt. A hagyományos számítógépek számítási egysége a bit, aminek értékei 0 vagy 1 lehetnek. Ha a kvantumszámítógépünkben definiáljuk az információ alapegységét, a kvantumbitet vagy más néven qubitet, azaz egy $\alpha|0\rangle+\beta|1\rangle$ kétállapotú rendszert, ahol az α , β komplex számok teljesítik az $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ normálási feltételt, akkor ennek segítségével a kvantummechanika linearitása miatt nem szükséges hosszú, bináris karakterláncokat tárolnunk, és ezekkel számolni, hanem egyszerűen vizsgálhatjuk a két bázisállapot szuperpozíciójában lévő állapotot is. Sokféle qubittel találkozhatunk, melyek egy jövőbeli kvantumszámítógép alapját képezhetik. Ilyenek például az elektron spinje vagy völgy szabadsági foka, a spin-völgy azaz Kramers-qubit, de akár a foton polarizációja is ide sorolható. A kvantumdotok egy szilárd testben kis térrészre beszorított elektronok, melyek segítségével többféle qubitet definiálhatunk és vizsgálhatunk. Kvantumdotokat először az 1980-as években Alexey Ekimov és Louis Brus állítottak elő kísérletileg.^{1,2}

A grafén 2004-es előállítása³ óta tudjuk, hogy léteznek kísérletileg is előállítható, néhány atomi réteg vastagságú anyagok a szilárdtestfizikában. Ezek speciális elektronikai, mechanikai, illetve optikai tulajdonságokat mutatnak. A néhány atom vastagságú vékonyrétegeket széleskörűen alkalmazzák, hiszen ezek kvázi kétdimenziós szerkezetként viselkednek. A vékonyrétegekben a kationok szabályos rendben helyezkednek el, rácsot alkotnak, melynek szerkezete egyes anyagtípusok esetén hexagonális. Ilyen anyagok például a grafén, valamint az átmenetifém-dikalkogenidek

¹ Ekimov – Efros – Onushchenko 1985, 921–924.

² Brus 1984, 4403-4409.

³ Novoselov, et al. 2004, 666–669.

(pl.: MoS_2 , WSe_2) is,^{4,5,6} melyek egy aktívan kutatott területét jelentik a szilárdtestfizikának. A hexagonális rácsszerkezetű anyagok Brillouin-zónája is hexagonális, amely egy három- vagy hatfogású szimmetriát hordoz attól függően, hogy egy vagy két különböző ionból áll a rácsszerkezet. A rétegszám paritásától függően is háromvagy hatfogású szimmetriával rendelkezhet a Brillouin-zóna.

Kísérleti és elméleti szempontból is már többfajta anyagtípuson definiált kvantumdotokkal foglalkoztak, ilyenek például a szén nanocső alapú kvantumdotok⁷, szén nanodisk alapú kvantumdotok⁸ vagy átmenetifém-dikalkogenid alapú kvantumdotok is.^{4,5,6} A kvantumdotok vizsgálata során a legfontosabb mért és számolt mennyiség a vezetőképesség. Ezt vizsgálták egy 2019-es kéziratban⁹ is, ahol elvégezték néhány rétegű átmenetifém-dikalkogenideken definiált egyszeres, háromszorosan degenerált energianívójú kvantumdotok vezetőképességé-nek analízisét.

A tanulmány felépítése

A tanulmány első részében az egyszeres kvantumdotok Coulomb-blokád effektus által vezérelt transzportfolyamatait kívánjuk leírni véges hőmérsékleten. Az áram és az áramzaj vizsgálata mellett reprodukáljuk a 9-es hivatkozás (7) eredményét, azaz elvégezzük a háromszoros degenerációval rendelkező rendszerekre jellemző vezetőképesség analízisét is. Ezek után eredményeinket általánosítjuk tetszőleges degeneráció esetére. A második részben rátérünk a kettős kvantumdotok vizsgálatára, ahol általános degenerációval rendelkező rendszerekben határozzuk meg a transzportáramot a Pauli-blokád effektus figyelembevételével.

Egyszeres kvantumdotok vizsgálata

Áttekintés

Az 1. ábrán egy egyszeres kvantumdot elvi modelljét láthatjuk. A két oldalt elhelyezkedő szürke részek a forrás és a nyelő, melyeket összefoglaló néven kontaktusoknak nevezünk, jelölik a félvezető anyagokat. Ezek például a korábban már említett átmenetifém-dikalkogenidek (pl.: MOS_2). Külső kapuelektródák segítségével egy bezáró potenciált alakítunk ki azért, hogy lokalizálni és ezáltal vizsgálni tudjunk elektronokat, illetve azok bizonyos állapotait. Az így létrejövő bezáró potenciált legegyszerűbben az 1. ábra középső részén elhelyezkedő két potenciálgáttal és a köztük elhelyezkedő potenciálgödörrel modellezhetjük, melyben energiaszintek alakulnak ki. A nívókhoz tartozó energiaértékeket a V_g kapufeszültséggel tudjuk hangolni.

7 Széchenyi 2016, 1–121.

⁴ Lee – Kulkarni – Zhong 2016, 7755–7760.

⁵ Kotekar-Patil, et al. 2019, 2202–2207.

⁶ Davari, et al. 2020, 054058.

⁸ Ezawa 2008, 155411.

⁹ Bao - Cheung - Zhang 2019.



1. ábra: Egyszeres kvantumdot sematikus energiadiagramja.

Amennyiben a forrás és a nyelő közé egy V forrás-nyelő feszültséget kapcsolunk azok μ_L -lel és μ_R -rel jelölt kémiai potenciálja eltérő lesz. A kémiai potenciálok által meghatározott energiaintervallumot transzportablaknak nevezzük. A kutatás során csak olyan rendszereket vizsgáltunk, ahol a transzportablakban maximálisan 1 energiainívó lehet. A potenciálgátakon alagúteffektussal átjuthatnak az elektronok ezzel áramot okozva. Mivel minden egyes átalagutazás Poisson-folyamat szerint megy végbe, ezért az áram értéke nem egy jól meghatározott, állandó érték lesz, hanem kissé fluktuálni fog, zajos lesz.

Vannak olyan rendszerek, melyek bizonyos belső szabadsági fokkal is rendelkeznek, ami az energianívó degenerációjához vezet. Ilyen belső szabadsági fok lehet például: (i) elektron spin miatt: 2-szeres¹⁰, (ii) páros sok rétegű MoS_2 völgy szabadsági foka miatt: 3-szoros⁹, (iii) szén nanocső spin és völgy szabadsági foka miatt: 6-szoros a degeneráció⁹.

A második esetet, azaz a 3-szoros degenerációt vizsgálták a 9-es hivatkozásban és többek között egy ilyen rendszerre számolták ki a vezetőképességet (a kézirat (7) eredménye).

A kutatásom célja az volt, hogy kiszámítsam egy ilyen rendszerre a transzportáramot, annak zaját, meghatározzam a vezetőképességet, valamint általánosítsam az elméletet az energianívó általános degenerációjának esetére, valamint kettős kvantumdot rendszerekre.

¹⁰ Fujisawa – Tokura – Hirayama 2001, 081304.

¹¹ Pályi – Burkard 2010, 155424.

Módszerek

Azzal a közelítéssel éltünk a kutatás során, hogy a dot és a kontaktusok között gyenge csatolást engedünk meg, vagyis abban a rezsimben vizsgálódtunk, amikor a forrás-nyelő feszültség jóval kisebb annál az energiánál, ami ahhoz kell, hogy egy elektron átjusson az egyik potenciálgáton. Másként fogalmazva, egy elektron transzportablakbeli energianívóra való bealagutazása csak nagyon kis mértékben változtassa meg a transzportablakbeli egyelektron-nívók energiáit. Ez azt jelenti, hogy a rendszer sűrűségmátrixának off-diagonális elemei időben gyorsan lecsengenek, a stacionárius viselkedést a diagonális elemek fogják meghatározni, melyek megadják a lehetséges megvalósuló állapotok betöltöttségének valószínűségét. Így tehát ezen közelítésben a kvantumos master egyenletek helyett használhatjuk az ún. rátaegyenleteket¹². Mik is valójában a ráták? A ráták a 2. *ábrán* Γ_1 -lel és Γ_p -rel jelölt mennyiségek, melyek megadják, hogy időegység alatt átlagosan hány elektron alagutazik át az adott potenciálgáton. Ezeket a mennyiségeket véges hőmérsékleten súlyozni kell a Fermi–Dirac-eloszlásnak megfelelően, ahol n_L és n_R jelöli rendre a forrás és a nyelő kémiai potenciáljához tartozó Fermi–Dirac-eloszlást. Mivel a V forrás-nyelő feszültség értéke csak a kémiai potenciálok különbségétől függ, ezért ez egy potenciál jellegű mennyiség, nullszintjét emiatt választhatjuk a transzportablak közepéhez. Így tehát a Fermi-Dirac-eloszlások

$$n_{L/R} = \frac{1}{\exp\left[\frac{q_e(V_g \mp V/2)}{k_B T}\right] + 1},$$

ahol q_e jelöli az elemi töltést, k_B a Boltzmann-állandót és T a hőmérsékletet.



2. ábra: Véges hőmérsékleten végbemenő elektrontranszport-folyamatok és azok rátái.

¹² Тімм 2008, 195416.

Először vizsgáljuk azt az esetet, amikor úgy hangoljuk a kapufeszültséggel a nívó energiáját, hogy 0- és 1-szeres betöltöttség esetén egyezzen meg a rendszer teljes energiája, ami az on-site és a Coulomb potenciális energiákból tevődik össze. Ezt 0-1 rezonáns állapotnak nevezzük. Minden egyes rezonáns állapot esetén megfogalmazhatjuk az ún. rátaegyenleteket, amelyek a fentebb már említett lehetséges megvalósuló állapotok betöltöttségének valószínűségeit kapcsolják össze a rátákkal súlyozva. Tegyük fel, hogy már N elektron a mérés t ideje alatt áthaladt a forrásból a nyelőbe. Ekkor jelölje $P_0(N, t)$ és $P_1(N, t)$ annak a valószínűségét, hogy a t. időpillanatban 0-, illetve 1-szeresen van betöltve a nívó. Annak a valószínűsége, hogy a nívó 0-szorosan van betöltve, midőn N elektron már áthaladt a rendszeren, négy folyamat hatására változhat meg: (i) a forrásból bealagutazhat egy elektron a transzportablakba, ahol eddig 0 elektron volt, (ii) a transzportablakból, ahol eddig 1 elektron volt, kialagutazhat egy elektron a forrásba, (iii) a transzportablakból, ahol eddig 1 elektron volt, kialagutazhat egy elektron a nyelőbe, (iv) a nyelőből bealagutazhat egy elektron a transzportablakba, ahol eddig 0 elektron volt. Egy elektron transzportablakbeli energianívóra való bealagutazása esetében csökken a valószínűség értéke, míg az onnan kialagutazás esetében nő. Ezzel ellentétben, a valószínűség értéke kialagutazáskor csökken, bealagutazáskor pedig nő. Azon folyamatok esetében, amikor bealagutazás történik, a degeneráció miatt 3 különböző állapotba kerülhet a vizsgált elektron (ezt úgy értjük, hogy a megengedett 3 szimmetria sajátállapot közül bármelyik betöltődhet, vagyis mindegyik szimmetria sajátállapotra vonatkozó alagutazási ráta Γ_{μ} , illetve Γ_{μ}), így a rátaegyenlet ezen folyamatokat leíró tagjai egy-egy 3-as szorzófaktorral veendők figyelembe. Kialagutazásnál a transzportablakban lévő egyetlenegy szimmetria sajátállapottal rendelkező elektron tudja elhagyni a dotot. Így tehát egy háromszoros degenerációval rendelkező rendszer 0-1 rezonáns állapotára felírt rátaegyenlet-rendszer a következő:

$$\begin{split} \partial_t P_0(N,t) &= -3 \Gamma_L n_L P_0(N,t) + \Gamma_L (1-n_L) P_1(N,t) + \Gamma_R (1-n_R) P_1(N-1,t) - 3 \Gamma_R n_R P_0(N,t), \\ \partial_t P_1(N,t) &= +3 \Gamma_L n_L P_0(N,t) - \Gamma_L (1-n_L) P_1(N,t) - \Gamma_R (1-n_R) P_1(N,t) + 3 \Gamma_R n_R P_0(N+1,t), \end{split}$$

ahol természetesen $\sum_{N} [P_0(N, t) + P_1(N, t)] = 1$ kell legyen.

Célunk a transzportáramnak, az áramzajnak és a vezetőképességnek a meghatározása. Ezen mennyiségeket a rátaegyenlet-rendszerből tudjuk kiszámítani a következő módon. Első lépésként áttérünk Fourier-térbe a részecskeszám argumentumban. Ha a megfelelő, Fourier-térbeli mennyiséget χ -vel jelöljük, valamint a Fourier-térben felírt egyenletben szereplő, χ -től függő együtthatómátrixnak λ_+ -szal jelöljük a legnagyobb valós résszel rendelkező sajátértékét, akkor ezen közelítés keretein belül, az ún. generátorfüggvény módszer felhasználásával, analitikus képleteket fogalmazhatunk meg a vizsgálandó mennyiségeinkre, ahol *i* jelöli az imaginárius egységet.

• Stacionárius áramerősség:
$$I_{stac} = -iq_e \frac{\partial \lambda_+}{\partial \chi}\Big|_{\chi=0}$$

• Áramzaj:
$$\delta I = \lim_{t \to \infty} \sqrt{-\frac{q_e^2}{t} \frac{\partial^2 \lambda_+}{\partial \chi^2}} \Big|_{\chi=0}$$

• Vezetőképesség:
$$G = \frac{\partial I_{stac}}{\partial V}\Big|_{V=0}$$

Eredmények 3-szoros degenerációra

Az előbbiekben megfogalmazott formulák jelentik számunkra egy rátaegyenlet-rendszer megoldását. Ezek tetszőleges degeneráció és rezonáns állapotok esetén formailag ilyen alakúak. Ezen mennyiségektől csak akkor függenek, akkor mutatják meg a rendszerre jellemző specialitást, ha egy konkrét esetre számoljuk ki őket.

Vizsgáljuk meg ezeket a függvényeket háromszoros degeneráció esetére! Először nézzük a stacionárius áramerősség függését a V, kapufeszültségtől, valamint a V forrás-nyelő feszültségtől. Ezeket rendre a 3. és 4. ábrák szemléltetik. Megfigyelhetjük, hogy a stacionárius áramerősség a kapufeszültség függvényében jól meghatározott értékek körül csúcsosodó görbével írható le. Ezen csúcsok hármas csoportokba állnak (az energianívó degenerációjának megfelelően), melyek periodikusan ismétlődnek a kapufeszültség függvényében. Egy adott csúcs ahhoz a rezonáns állapothoz tartozik, amely két szám között helyezkedik el (pl.: balról a harmadik csúcs a 0-1 rezonáns állapotot jellemzi). A csúcsok maximumai nem egyeznek meg, értékük a rezonáns állapotot jellemző betöltöttségektől függ, valamint a maximum helyek nem ekvidisztánsan követik egymást. A 0-1 és az 1-2, valamint az 1-2 és a 2-0(3) rezonanciákhoz tartozó csúcsok távolsága megegyezik, azonban ez kisebb, mint a 2-0(3) és a 0-1 közti. Ennek az az oka, hogy ha az 1-2 rezonáns állapotból át szeretnénk vinni a rendszert a 2-0(3) rezonáns állapotba, akkor nem csak az újabb elektron miatt fellépő Coulomb-potenciális energiát kell megfizetnünk, de azt az energiát is, ami ahhoz szükséges, hogy a potenciálgödörbeli következő, nagyobb energiájú nívó essen a transzportablakba. Így tehát valójában nem 2-3, hanem 2-0 hangolásról beszélünk. (Ez a két eset lényegében ekvivalens, az interpretációban van csak különbség: az előbbinél egy teljesen, míg az utóbbinál egy nullaszorosan betöltött nívó van a transzportablakban.) Most változtassuk a V forrás-nyelő feszültséget a 3. ábra jobb felső sarkában található táblázatnak megfelelően. Látható, hogy V növelésével a csúcsmaximumok is nőnek a csúcsok kiszélesedése mellett, de egy adott értékhez aszimptotikusan konvergálnak, ahogyan ezt a 4. ábra is mutatja. Ezt az értéket a ráták, valamint a rezonanciára jellemző betöltöttségek határozzák meg. Fontos megjegyezni, hogy ha egy kísérletben tetszőlegesen is tudnánk változtatni a V forrás-nyelő feszültséget, akkor sem tudnánk tetszőlegesen nagy áramot mérni! Ezen kívül érdemes megfigyelni, hogy az aszimptotikus konvergencia a hőmérsékleti skála nagyságrendjében történik meg, intuitív várakozásainknak megfelelően.



3. ábra: Háromszoros degeneráció esetén a stacionárius áramerősség, mint a kapufeszültség függvénye.



4. ábra: A stacionárius áramerősség, mint a forrás-nyelő feszültség függvénye.

Hasonlóan vizsgálhatjuk az áramzajt a V_g kapufeszültség függvényében leíró görbéket (ld. 5. *ábra*). Itt is nagyon hasonlók mondhatók el, mint az áramerősséget leíró görbék esetén, ezért ezeket most nem részleteznénk. Két dolgot azonban fontos megjegyezni. Egyrészt, ott nagy az áramzaj, ahol az áram is. Ez intuitíve is nyilvánvaló, hiszen az áramot az alagúteffektus okozza, melyben az elektronok Poisson-folyamat szerint alagutaznak át a potenciálgátakon. Másrészt, szeretnénk megemlíteni, hogy többszörös degenerációval rendelkező rendszer esetében nekünk sikerült először áramzajt számítani.

A fentiekben megadott formula segítségével kiszámíthatjuk a különböző hangolásokra vonatkozó vezetőképességeket, mint a kapufeszültség függvényét. Ezen görbék maximumainak aránya megegyezik a 9-es hivatkozás (7) eredményével, ezért ezt itt most nem részletezzük.



5. ábra: Háromszoros degeneráció esetén az áramzaj, mint a kapufeszültség függvénye.

Általánosítás m-szeres degenerációra

Ebben az alfejezetben általánosítjuk a 9-es hivatkozás és az előző alfejezetek eredményeit az energianívó *m*-szeres degenerációjának esetére. Meghatározzuk egy *m*-szeresen degenerált, (k,k + 1)-re (k \in {0,1,...,m - 1}) hangolt energianívó esetén a kvantumdotra jellemző áramerősség, áramzaj és vezetőképesség függését a kapu- és a forrás-nyelő feszültségtől. A korábban leírt metódussal analóg módon számolhatjuk ki a stacionárius állapotbeli áramerősséget, az áramzajt és a vezetőképességet. A levezetés lépéseit nem részletezzük, de a kapott eredményeket rögzítjük. Rátaegyenletek:

$$\begin{aligned} \partial_t P_k(N,t) &= -(m-k) \Gamma_L n_L P_k(N,t) + (k+1) \Gamma_L (1-n_L) P_{k+1}(N,t) \\ &+ (k+1) \Gamma_R (1-n_R) P_{k+1}(N-1,t) - (m-k) \Gamma_R n_R P_k(N,t), \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \partial_t P_{k+1}(N,t) &= +(m-k)\Gamma_L n_L P_k(N,t) - (k+1)\Gamma_L(1-n_L)P_{k+1}(N,t) \\ &-(k+1)\Gamma_R(1-n_R)P_{k+1}(N,t) + (m-k)\Gamma_R n_R P_k(N+1,t). \end{aligned}$$

Stacionárius áramerősség:

$$I_{stac}^{k,k+1}(V_g,V) = q_e \frac{(m-k)(k+1)\Gamma_L\Gamma_R(n_L - n_R)}{\Gamma_L[(m-2k-1)n_L + k + 1] + \Gamma_R[(m-2k-1)n_R + k + 1]}$$

Áramzaj:

$$\delta I_{k,k+1} \Big(V_g, V \Big) = \sqrt{\frac{q_e^2}{t} \left\{ \frac{(m-k)(k+1)(ab'+a'b)}{(m-k)(a+b) + (k+1)(a'+b')} - \frac{2(m-k)^2(k+1)^2(ab'-a'b)^2}{[(m-k)(a+b) + (k+1)(a'+b')]^3} \right\}}$$

ahol

$$a = \Gamma_L n_L, \qquad a' = \Gamma_L (1 - n_L), \qquad b = \Gamma_R n_R, \qquad b' = \Gamma_R (1 - n_R).$$

Vezetőképesség:

$$G_{k,k+1}(V_g) = \frac{q_e^2}{k_B T} \frac{\Gamma_L \Gamma_R}{\Gamma_L + \Gamma_R} \frac{(m-k)(k+1)}{m+1 + (m-k)e^{-V_g/(k_B T)} + (k+1)e^{V_g/(k_B T)}}$$

Ezekkel a formulákkal azt szeretnénk szemléltetni, hogy tetszőleges degeneráció esetén megfogalmazhatók a rátaegyenletek és ezekből analitikusan (és egzaktul) származtathatók a vizsgált mennyiségek, de azok konkrét alakja most nem olyan lényeges! Egy dolgot azonban rögzítsünk, mégpedig, adott degeneráció és rezonáns állapot esetén a maximális vezetőképességet! Ennek értéke:

$$G_{k,k+1\,max} = \frac{q_e^2}{k_B T} \frac{\Gamma_L \Gamma_R}{\Gamma_L + \Gamma_R} \frac{(m-k)(k+1)}{(m-k) + (k+1) + 2\sqrt{(m-k)(k+1)}}$$

Konkrétan kiszámolva m=3 és (k,k+1)=(0,1),(1,2),(2,3(0)) rezonanciákra, a maximális vezetőképességek aránya $3:2+\sqrt{3}:3$, egyezésben a 9-es hivatkozás (7) eredményével.

Ahelyett, hogy belemennénk az előbbiekben rögzített bonyolult képletek részletes analízisébe, nézzünk meg inkább egy alkalmazást, a hatszoros degeneráció esetét, amely kísérletileg is releváns, hiszen páratlan sokrétegű MoS_2 -nál ilyet találunk!

Nézzük most a vezetőképességet (ami már csak a kapufeszültségtől függ)! Ezt a *6. ábra* mutatja. Megfigyelhető, hogy a korábban látott áramerősség, illetve áramzaj görbékhez hasonlóan minden egyes rezonanciához csúcsokat találunk és ezen csúcsok közti tartományokban pedig lényegében elhanyagolható a vezetőképesség. Az előbbieket Coulomb-csúcsoknak, az utóbbiakat pedig Coulomb-blokádnak nevezzük. A Coulomb-blokád azért lép fel, mert adott elektronszám mellett az elektronok Coulomb potenciális energiája fix, az elektronok számának diszkrét függvénye, míg a kapufeszültségből származó on-site energiákat folytonosan tudjuk változtatni, így annak csak bizonyos megválasztása esetén lesz két szomszédos betöltöttségű állapotban a rendszer teljes energiája azonos. Ahogy az előzőekben láttuk, az elméletünk analitikus, így nem csak az egyes rezonanciákhoz (ld. felül lévő számok) tartozó görbealakokat, de a görbék maximumát is meg tudjuk határozni analitikusan. Ez egy nagyon erős fegyvertény, nagyon fontos alkalmazási lehetőséggel bír, hiszen ha egy mérésben nem ismerjük a rendszerbeli degenerációt, de megmérjük a vezető-képességet mint a kapufeszültség függvényét, akkor a mért maximumok arányát az elméletből számolható arányokkal összevetve következtetni tudunk a degenerációra, így ez a módszer anyagszerkezeti feltérképezésre is lehetőséget ad számunkra. Ezen kívül a Coulomb-csúcsok magasság-arányának analitikus meghatározása újabb bizonyítékot ad arra vonatkozóan, hogy néhány elektronos kvantumdotunk van, valamint az elektron transzportot egyelektron-alagutazás írja le.



6. ábra: Vezetőképességbeli Coulomb-csúcsok hatszoros degeneráció esetén.

Kettős kvantumdotok vizsgálata

Áttekintés

A kettős kvantumdotokat nagyon hasonlóan modellezhetjük, mint az egyszeres dotokat (ld. 7. *ábra*). Most is egy bezáró potenciált alakítunk ki, melynek segítségével lokalizáljuk az elektronokat, de az egyszeres dotokhoz képest azzal a különbséggel, hogy a potenciálunk most nem egy-, hanem kétfenekű. A potenciál egy-egy feneke felel meg egy-egy dotnak. Ezekben a potenciálgödrökben kialakuló nívók energiáját az egymástól független, és kapufeszültségekkel tudjuk hangolni. Természetesen itt is jelen van külső paraméterként a *V* forrás-nyelő feszültség. Fontos megjegyezni, hogy a két szélső, tehát egy kontaktus és egy potenciálgödör közötti potenciálgáton való alagutazás inkoherens, hiszen Poisson-folyamat szerint, azaz valószínűségi jelleggel megy végbe, míg a középső, (jóval) kisebb magasságú potenciálgáton való átalagutazás koherens, hiszen a dotok között erős hibridizáció megy végbe. Célunk most is, tetszőleges degeneráció mellett, feltételt adni a külső paraméterekre vonatkozóan ahhoz, hogy nagy áramot, s ezáltal vezetőképességet tudjunk mérni.

A kutatás során eddig a zérus hőmérséklet esetét vizsgáltuk, így a kettős dotok zérus hőmérsékletű analízisét, illetve a zérus hőmérséklet esetére kapott eredményeket kívánjuk prezentálni, valamint ezek után a Kitekintésben összefoglalni a véges hőmérséklet esetére várható fejleményeket.



7. ábra: Kettős kvantumdot sematikus energiadiagramja.

Módszerek, eredmények

A problémát az ún. töltésstabilitási diagram (ld. 8. ábra) segítségével vizsgálhatjuk, ami tulajdonképpen a 3. ábrán látható függvény általánosítása kettős dotokra. A töltésstabilitási diagramon az on-site energiák függvényében ábrázoljuk az optimális töltéskonfigurációt az energiaminimum elv figyelembevételével. Az on-site energiák az adott dothoz tartozó kapufeszültségek elemi töltésszereseiként vannak definiálva, tehát a transzportablakbeli energianívó energiáját adják meg. Az on-site energiákon kívül figyelembe kellett még venni az azonos, illetve a különböző dotokban lévő elektronok közti, Coulomb-kölcsönhatásból származó potenciális energiatagokat is. Látható a diagramon, hogy az on-site energiák függvényében jól definiált tartományokra bomlik fel ez a paramétertér. Ez szintén annak a következménye, hogy a Coulomb-energiatagok a részecskeszámok diszkrét függvényei, míg az on-site energiák folytonosan változtatható mennyiségek. A tartományokra írt számpárok azt jelzik, hogy adott on-site energiák mellett hányszorosan van betöltve a bal, illetve a jobb oldali nívó. (A 8. ábra 3-szoros degeneráció esetére készült.) Kérdés, hogy ezen paramétertér mely pontjaiban vagy részeiben folyik áram? Ehhez először azt kell megértenünk, hogy az ún. transzportciklusok hol helyezkednek el a töltésstabilitási diagramon. Két különböző transzportciklus lehetséges: (i) egy elektron bealagutazik a forrásból a bal oldali dotba, a bal oldaliból egy át a jobb oldaliba, majd pedig a jobb oldaliból kialagutazik egy a nyelőbe, (ii) egy elektron bealagutazik a forrásból a bal oldali dotba, a jobb oldaliból kialagutazik egy a nyelőbe, majd pedig a bal oldaliból egy át a jobb oldaliba. Fontos, hogy a transzportciklusok végállapota meg kell egyezzen a kiindulási állapottal, hiszen pont ez jelenti azt, hogy egy elektron haladt át a rendszeren. Ezek a transzportciklusok a töltésstabilitási diagram azon pontjai, ahol három tartomány találkozik, vagyis a pirossal, illetve feketével jelölt pontok, ezekben várhatunk áramot. Nevezzük ezeket összefoglaló néven csomópontoknak. Egy általam írt Mathematica programkód segítségével tetszőleges degeneráció esetén egzaktul ki tudtam számítani a csomópontokban folyó áramerősségértékeket egy jellegében az egyszeres dotok elméletét leíró rátaegyenlet-rendszerhez nagyon hasonló egyenletrendszer megoldásaként.



8. ábra: Töltésstabilitási diagram háromszoros degeneráció estén.

Kiderült, hogy a csomópontoknak csak egy része hármaspont, vagyis olyan pont, melyben nemzérus áram folyik, ezek a töltésstabilitási diagram pirossal jelölt pontjai. A feketékben folyó áram erőssége zérus az ún. Pauli-blokád jelensége miatt. Ennek megértéséhez vegyük észre, hogy a fekete pontokra vonatkozóan $\varepsilon_{\rm R} < \varepsilon_{\rm L}$, azaz a jobb oldali nívó mélyebben van, mint a bal oldali, így könnyen lehet, hogy egy újabb elektron alagutazása a bal oldali dotból a jobb oldaliba nem megy végbe, hiszen olyan szimmetria sajátállapotban lévő elektron alagutazna át, mely már van a jobb oldali dotbéli vizsgált egyelektron nívón, így ez a folyamat a Pauli-elv miatt nem mehet végbe (ld. *9. ábra*). Fontos még megjegyezni, hogy az egyszeres dotok elméletében vizsgált Coulomb-blokád is felfedezhető a töltésstabilitási diagramon, mégpedig a tartományok belsejében, a határoktól távol. Itt az optimális töltéskonfigurációban lévő elektronok Coulomb-potenciális energiája és a tartományok belsejében lévő on-site energiák nem tudnak rezonáns állapotokat meghatározni.



9. ábra: Pauli-blokád szemléletes magyarázata.

Összefoglalás

Kutatásunk során elméletileg vizsgáltuk egy-, illetve kétszeres kvantumdot rendszerek transzportfolyamatait rátaegyenlet-formalizmus keretében. Az irodalomban eddig meglévő (konkrét degenerációra kimondott) elméletet általánosítottuk tetszőleges degeneráció esetére egyszeres kvantumdotok transzportszámolásának terén. A stacionárius áramerősség és áramzaj analízise mellett az egyszeres dotok elméletében a rendszerre jellemző vezetőképesség vizsgálatát is elvégeztük. Az egyszeres dotokra kapott eredményeinket alkalmaztuk a 3- és 6-szoros degenerációk esetére, melyek néhány rétegű átmenetifém-dikalkogenid rendszerekre jellemzők. Ezen túl általánosítottuk az elméletet tetszőleges degenerációval rendelkező kettős kvantumdotokra, ahol a töltésstabilitási diagram segítségével zérus hőmérsékleten kiszámítottuk a hármaspontokban folyó áramerősség- értékeket.

Kitekintés

Kutatásom folytatásaként a tetszőleges degenerációval rendelkező kettős dotok véges hőmérsékletű analízisét kívánom elvégezni. A töltésstabilitási diagram hármaspontjai várhatóan elkenődnek, így már a paramétertér miden pontjában mérhetünk nemzérus, de sok helyen elhanyagolható értékű, áramot. Az áramerősséget megadó felület meghatározása után könnyedén származtathatjuk a vezetőképességet megadó felületet is.

Megjegyzés

Ezen tanulmány Páhoki Tamás "Nanorétegeken definiált kvantumdotok transzportjelenségeinek vizsgálata" című TDK és OTDK dolgozata alapján a IV. Móra Kárpát-medencei Szakkollégiumi Konferenciához tartozó, Szakkollégiumi Füzetek 10. című tanulmánykötetéhez készült, a Konferencián "Degenerált energianívójú MoS₂ alapú kvantumdotok transzportjelenségeinek vizsgálata" címmel tartott előadásából. Az itt leírtak mind a TDK és OTDK dolgozat szellemi részét képezik.

Köszönetnyilvánítás

Elsősorban szeretnék köszönetet mondani dr. Széchenyi Gábornak, amiért elvállalta a témavezetésemet és bevezetett a témába. Türelme, szaktudása és fáradtságos munkája nélkül ez a tanulmány nem jöhetett volna létre. Köszönettel tartozom Dr. Cserti Józsefnek is, aki a kutatás során hasznos tanácsokkal látott el.

A tanulmány az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-20-1 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból finanszírozott szakmai támogatásával készült.

A kutatómunka a 2017-1.2.1-NKP–2017-00001 sz. Nemzeti Kiválósági Program Kvantumbitek előállítása, megosztása és kvantuminformációs hálózatok fejlesztése projekt szakmai támogatásával valósult meg.

Irodalom

BRUS 1984 = Brus, L. E.: Electron–electron and electron-hole interactions in small semiconductor crystallites: The size dependence of the lowest excited electronic state. *The Journal of chemical physics* 80.9 (1984) 4403–4409.

DAVARI, ET AL. 2020 = Davari, S., et al.: Gate-Defined Accumulation-Mode Quantum Dots in Monolayer and Bilayer WSe₂. *Physical Review Applied* 13.5 (2020) 054058.

EKIMOV – EFROS – ONUSHCHENKO 1985 = Ekimov, A. I. – Efros, A. L. – Onushchenko, A. A.: Quantum size effect in semiconductor microcrystals. *Solid State Communications* 56.11 (1985) 921–924.

EZAWA 2008 = Ezawa, M.: Coulomb blockade in graphene nanodisks. *Physical Review B* 77.15 (2008) 155411.

FUJISAWA – TOKURA – HIRAYAMA 2001 = Fujisawa, T. –Tokura, Y. – Hirayama, Y.: Transient current spectroscopy of a quantum dot in the Coulomb blockade regime. *Physical Review B* 63.8 (2001) 081304.

KOTEKAR-PATIL, ET AL. 2019 = Kotekar-Patil, D., et al.: Coulomb Blockade in Etched Single-and Few-Layer MoS_2 Nanoribbons. *ACS Applied Electronic Materials* 1.11 (2019) 2202–2207.

LEE – KULKARNI – ZHONG 2016 = Lee, K. – Kulkarni, G. – Zhong, Z.: Coulomb blockade in monolayer MoS_2 single electron transistor. *Nanoscale* 8.14 (2016) 7755–7760.

NOVOSELOV, ET AL. 2004 = Novoselov, K. S., et al.: Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science* 306.5696 (2004) 666–669.

PÁLYI – BURKARD 2010 = Pályi A. – Burkard, G.: Spin-valley blockade in carbon nanotube double quantum dots. *Physical Review B* 82.15 (2010) 155424.

SZÉCHENYI 2016 = Széchenyi G.: *Szén nanocső kvantumdotok elméleti vizsgálata*. Doktori értekezés. Budapest : Eötvös Loránd Tudományegyetem, 2016.

TIMM 2008 = Timm, C.: Tunneling through molecules and quantum dots: Master-equation approaches. *Physical Review B* 77.19 (2008) 195416.

Internetes források

BAO – CHEUNG – ZHANG 2019 = Bao, Z. – Cheung, P. – Zhang, F.: Flavor Quantum Dots and Artificial Quark Model in Transition Metal Dichalcogenides. (2019)

https://arxiv.org/pdf/1903.01967.pdf (Letöltés: 2020. 05. 07.)

Investigation of the transport effects of MoS_2 based quantum dots with degenerated energy levels

Tamás Páhoki

The theory of electron transport processes taking place in mesoscopic systems, which we have examined, can be investigated with the so-called rate equation formalism. This allows us to theoretically test the quantum dots' transport processes which are defined on a few-layer transition-metal dichalcogenide (e.g. MoS₂) systems. In such systems, quantum dots' energy levels have three-fold degeneracy, the behaviour of electrons can be described by a three-fold symmetry which is rare in solid-state physics, resulting an interesting and novel behaviour in the transport processes.

We have analytically examined the transport processes of single quantum dots controlled by the so-called Coulomb blockade with the help of rate equations, while the degeneracy of the energy level is 3- or *m*-fold. We have determined the dependency of system-specific quantities (transport current, current noise and conductivity) on the external parameters. As a next step, we examined the transport properties of double quantum dots in the case when the degeneracy of the energy levels is *m*-fold. In addition to determining the optimal charge configuration, we also analyzed the effects in the transport current due to the so-called Pauli blockade.