

Microscopie à effet tunnel

Modèles et Théorie

Guillaume Baffou - mars 2009

<http://guillaume.baffou.com>

<http://stm.baffou.com>

The way to derive Bardeen's tunneling theory is not straightforward; it does not proceed by routine application of textbook techniques. [...]

Many books and papers on scanning tunneling microscopy simply cite Bardeen's tunneling formula without explaining its provenance at all. Several sources do remark in passing that Bardeen's current formula results from first-order perturbation theory, but this could mislead a casual reader into supposing that the formula can be derived by standard arguments.

A. D. Gottlieb et L. Wesoloski (2006) [6]

1 Première approche - modèle unidimensionnel

Le principe du microscope à effet tunnel (STM) repose sur l'effet tunnel. Une description simple de cet effet peut être faite par un modèle unidimensionnel de barrière quantique carrée [3]. U_0 est la hauteur de la barrière, d sa largeur et E est l'énergie de l'électron incident (FIG.1). L'origine des énergies est prise à la base de la barrière.

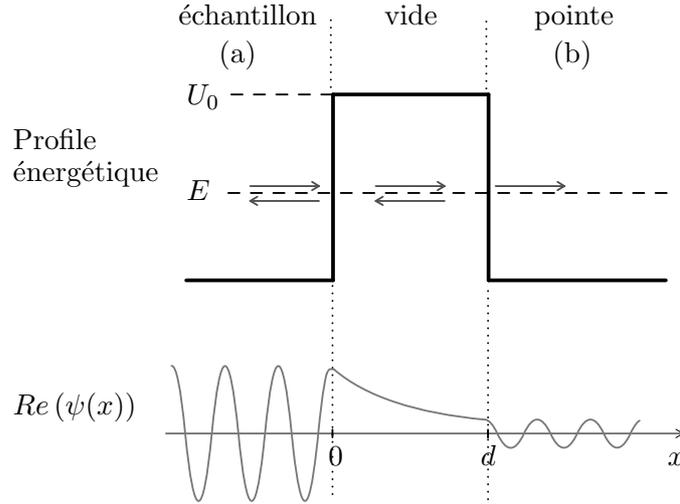


FIGURE 1: La jonction tunnel peut être modélisée en première approche par une barrière de potentiel quantique carrée. Le profil de la barrière est représenté, accompagné des différentes notations, ainsi que l'aspect de la partie réelle de l'amplitude de probabilité de présence d'un électron. L'état quantique peut se décomposer en plusieurs ondes transmises et réfléchies dans chacun des trois milieux (ce que représentent les cinq flèches).

La solution de l'équation de Schrödinger pour ce problème peut se mettre sous la forme :

$$\psi(x) = \begin{cases} A e^{ikx} + B e^{-ikx} & (x \leq 0) \\ C e^{i\kappa x} + D e^{-i\kappa x} & (0 \leq x \leq d) \\ F e^{ikx} & (x \geq d) \end{cases}$$

avec

$$\hbar k = \sqrt{2mE} \quad , \quad \hbar \kappa = \sqrt{2m(U_0 - E)}$$

L'amplitude de probabilité $\psi(x)$ décroît exponentiellement dans la barrière sur une distance typique $\ell = 1/\kappa$. Dans le cas usuel d'un métal de travail de sortie W , cette distance typique sera égale à $\sqrt{2mW}$. Pour une valeur typique $W = 4.5$ eV, on trouve $\ell = 0.9$ Å.

En tenant compte des conditions de continuités de $\psi(x)$ et $\psi'(x)$ en $x = 0$ et $x = d$, on peut calculer le coefficient T de transmission de la barrière :

$$T \equiv |F/A|^2 \approx \frac{(4k\kappa)^2}{k^2 + \kappa^2} e^{-2\kappa d}$$

Ce modèle simple donne une dépendance exponentielle du courant avec la distance pointe/surface. Cette dépendance constitue un résultat majeur puisque elle est la clé de la

haute résolution du STM.

Toujours à une dimension, Simmons [13] a développé un modèle similaire mais avec une barrière qui se dissymétrise sous l'effet de la tension V appliquée. Cette amélioration permet d'étudier l'influence de V sur la valeur du courant tunnel (FIG.2).

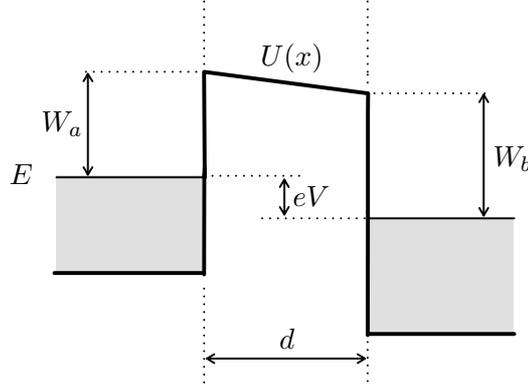


FIGURE 2: Un modèle un peu plus élaboré permet d'étudier l'influence de la tension V sur le courant tunnel I .

L'auteur est parti de la formule générale du modèle WKB¹ de la probabilité $P(x_0, E)$ qu'a un électron incident d'énergie E de traverser jusqu'à l'abscisse x_0 une barrière de profil $U(x)$ quelconque :

$$P(x_0, E) = \exp \left\{ -\frac{2}{\hbar} \int_0^d [2m(U(x) - E)]^{\frac{1}{2}} dx \right\} \equiv \exp \left\{ -2 \int_0^d \kappa(x) dx \right\}$$

où $\kappa(x) = [2m(U(x) - E)]^{\frac{1}{2}} / \hbar$

L'utilisation de ce qui peut s'interpréter comme un « vecteur d'onde local » $\kappa(x)$ permet de simplifier l'écriture et la compréhension de la formule. L'expression la plus générale du courant² s'écrit alors :

$$I \approx J_0 \left\{ \underline{U} \exp(-A\underline{U}^{1/2}) - (\underline{U} + eV) \exp[-A(\underline{U} + eV)^{1/2}] \right\}$$

où

$$J_0 = \frac{e}{2\pi\hbar(\beta d)^2}, \quad A = \frac{4\pi d(2m)^{1/2}}{\hbar}, \quad \underline{U} = \frac{1}{d} \int_0^d U(x) dx$$

En particulier, pour de faibles tensions ($eV \ll \underline{U}$), le courant tunnel s'écrit :

$$I \approx VR_c^{-1} \frac{\bar{\kappa}}{4\pi d} \exp(-2\bar{\kappa}d) \quad (1)$$

1. Wentzel-Kramers-Brillouin, plus couramment appelée BWK chez les francophones...
 2. Comme le modèle est à une dimension, le courant est plus précisément une densité de courant linéique que nous noterons J et dont l'unité est A/m^2 .

où $R_c \equiv h/2e^2$ est le quantum de résistance
 $\bar{k} \equiv [m(W_a + W_b)]^{1/2} / \hbar$ est le vecteur d'onde correspondant à une hauteur de barrière moyenne $(W_a + W_b)/2$

Pour de faibles tensions ($eV \ll W_a, W_b$), le courant est donc proportionnel à V . Ce résultat est connu et observable expérimentalement pour des surfaces métalliques mais pas pour des surfaces semiconductrices.

Ces modèles à une dimension permettent de rendre compte qualitativement de l'influence de la tension et de la distance pointe/surface sur la valeur du courant en une position donnée (x_0, y_0) mais ne permettent pas de comprendre à quoi correspondent les variations de hauteur $z(x, y)$ de la pointe lors du scan. Pour cela, il est nécessaire d'aborder des modèles plus complexes qui vont au-delà d'un modèle unidimensionnel.

2 Approche hamiltonienne

Le modèle prédominant du courant tunnel en STM est basé sur la théorie de Bardeen formulée en 1961 [1]. À cette époque, J. Bardeen cherchait à modéliser le courant tunnel d'une jonction métal-isolant-métal épitaxiée en rapport avec de récentes expériences de mesure de *gap* supraconducteur [5]. Le modèle de Bardeen est connu pour donner des prédictions fiables tant que la pointe et la surface ne sont pas trop proches et tant que la tension appliquée reste faible (typiquement 10 meV).

L'article pionnier de J. Bardeen [1] reste assez elliptique et beaucoup de livres et d'articles se contentent de citer sa formule sans en expliquer la provenance. Il est souvent simplement expliqué que la formule du courant résulte d'une théorie de perturbation au premier ordre, laissant penser qu'il suffit d'appliquer basiquement une technique décrite dans tout bon livre de référence. Pourtant la façon de déterminer l'expression du courant tunnel n'est pas triviale comme le soulignent A. D. Gottlieb et L. Wesoloski dans un article très récent [6] où une démonstration suivant l'approche d'Oppenheimer est proposée.

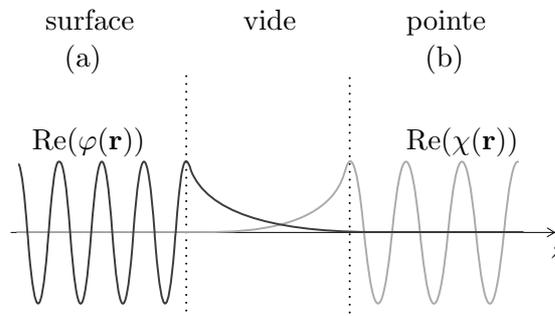


FIGURE 3: Dans son modèle, J. Bardeen considère des transitions électroniques possibles entre des états distincts des deux milieux (a) et (b).

Le modèle de Bardeen repose sur plusieurs approximations dont celle d'électrons indépendants qui nous permet d'écrire une équation de Schrödinger à un électron :

$$\mathcal{H}\psi(\mathbf{r}, t) = -\frac{\hbar^2}{2m}\Delta\psi(\mathbf{r}, t) + V(\mathbf{r})\psi(\mathbf{r}, t) = \frac{\partial\psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} \quad (2)$$

où $V(\mathbf{r})$ représente le potentiel électrostatique de la jonction. Malheureusement, même ce problème à un électron reste difficile à résoudre. Le principe du formalisme de Bardeen consiste à définir deux sous-systèmes *indépendants* (a) et (b) correspondant ici à la surface et à la pointe auxquels sont associés les hamiltoniens respectifs \mathcal{H}_a et \mathcal{H}_b .

$$\mathcal{H}_a = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V_a(\mathbf{r}) \quad (3)$$

$$\mathcal{H}_b = \frac{\mathbf{p}^2}{2m} + V_b(\mathbf{r}) \quad (4)$$

Nous nommerons les états propres et énergies propres de la façon suivante :

$$\mathcal{H}_a |\varphi_\alpha\rangle = E_\alpha |\varphi_\alpha\rangle \quad (5)$$

$$\mathcal{H}_b |\chi_\beta\rangle = E_\beta |\chi_\beta\rangle \quad (6)$$

Considérons un électron initialement dans un état propre $|\varphi_\alpha\rangle$ de la surface. L'idée est de quantifier la fuite de $|\varphi_\alpha\rangle$ vers les états propres $|\chi_\beta\rangle$ de la pointe. Nous allons donc écrire l'état de l'électron à l'instant t comme une combinaison linéaire de l'état de départ et des états de fuite.

Si l'évolution était seulement gouvernée par \mathcal{H}_a , l'état de l'électron à l'instant t serait $e^{-iEt/\hbar}|\varphi_\alpha\rangle$. Si l'effet tunnel est faible, on s'attend alors à ce que l'état de l'électron reste proche de $e^{-iEt/\hbar}|\varphi_\alpha\rangle$, on écrira donc :

$$|\psi(t)\rangle \approx e^{-iE_\alpha t/\hbar}|\varphi_\alpha\rangle + \sum_{\beta} a_{\beta}(t)|\chi_{\beta}\rangle \quad (7)$$

Le but est alors d'estimer les coefficients $a_{\beta}(t)$. Moyennant certaines approximations [6], le calcul de l'élément de matrice $\langle\chi_{\beta}|\mathcal{H}|\psi(t)\rangle$ conduit à :

$$a_{\beta}(t) = \frac{\langle\chi_{\beta}|\mathcal{H} - \mathcal{H}_a|\varphi_{\alpha}\rangle}{E_{\alpha} - E_{\beta}} (e^{-itE_{\alpha}/\hbar} - e^{-itE_{\beta}/\hbar})$$

Nous noterons à partir de maintenant $M_{\alpha,\beta} \equiv \langle\chi_{\beta}|\mathcal{H} - \mathcal{H}_a|\varphi_{\alpha}\rangle$ et $\omega_{\alpha\beta} = (E_{\alpha} - E_{\beta})/\hbar$.

La probabilité de mesurer l'électron dans l'état β à un instant t s'écrit alors :

$$p_{\alpha \rightarrow \beta}(t) = |\langle \chi_\beta | \psi(t) \rangle|^2 \quad (8)$$

$$\approx |a_\beta(t)|^2 \quad (9)$$

$$= |M_{\alpha, \beta}|^2 \frac{\sin^2(\omega_{\alpha\beta} t/2)}{(\hbar\omega_{\alpha\beta}/2)^2} \quad (10)$$

$$= \frac{t^2}{\hbar^2} |M_{\alpha, \beta}|^2 \text{sinc}^2(\omega_{\alpha\beta} t/2) \quad (11)$$

Lorsque $t \gg E_\alpha, E_\beta$, le sinus cardinal est une fonction très piquée autour de $\omega_{\alpha\beta} = 0$. Ceci traduit le fait que les transitions à $E_\alpha \approx E_\beta$ (dites *élastiques*) sont bien plus probables et qu'elles donneront lieu au flux de courant majoritaire. À la limite $t \rightarrow \infty$, la fonction sinc^2 tend vers une fonction de Dirac : $\text{sinc}^2(\omega_{\alpha\beta} t/2) \rightarrow 2\hbar/\pi t \delta(E_\alpha - E_\beta)$. En tenant compte de cette limite le courant total s'écrira donc finalement³ :

$$I = e \sum_{\alpha, \beta} \frac{dp_{\alpha \rightarrow \beta}}{dt} f_{E_F}(E_\alpha) (1 - f_{E_F - eV}(E_\beta))$$

$$I = \frac{2e}{\hbar} \sum_{\alpha, \beta} |M_{\alpha, \beta}|^2 f_{E_F}(E_\alpha) (1 - f_{E_F - eV}(E_\beta)) \delta(E_\alpha - E_\beta) \quad (12)$$

où $f_\mu(E) = 1/(1 + \exp(\frac{E-\mu}{k_B T}))$ est la fonction de Fermi-Dirac qui pondère chacun des états par leur taux d'occupation à la température T .

Dans la limite des faibles tensions et faibles températures, cette expression peut être simplifiée :

$$I = \frac{2\pi e^2}{\hbar} V \sum_{\alpha, \beta} |M_{\alpha, \beta}|^2 \delta(E_\alpha - E_F) \delta(E_\beta - E_F) \quad (13)$$

La difficulté est maintenant de calculer l'élément de matrice $M_{\alpha, \beta} = \langle \chi_\beta | \mathcal{H} - \mathcal{H}_{sam} | \varphi_\alpha \rangle$ où \mathcal{H} est inconnu. Usant d'un sacré tour de passe-passe [6], il est possible de donner une formulation plus symétrique à cet élément de matrice :

$$M_{\alpha, \beta} = -\frac{\hbar^2}{2m} \int [\chi_\beta^*(\mathbf{r}) \Delta \varphi_\alpha(\mathbf{r}) - \varphi_\alpha(\mathbf{r}) \Delta \chi_\beta^*(\mathbf{r})] d^3r$$

En utilisant le théorème de Green-Ostrogradski⁴, on peut faire apparaître l'expression de la densité de courant de probabilité [3] $\mathbf{j}_{\alpha, \beta}(\mathbf{r})$ entre les états $|\varphi_\alpha\rangle$ et $|\chi_\beta\rangle$:

3. Dans cette expression finale (et depuis le début des calculs) l'origine des énergies a été prise de façon commune des deux côtés de la barrière. Dans certains ouvrages et articles, il arrive que l'origine des énergies soit décalée de eV entre la pointe et la surface. Cette autre convention conduit à des expressions du courant tunnel légèrement différentes faisant par exemple apparaître $\delta(E_\alpha - E_\beta - eV)$ plutôt que $\delta(E_\alpha - E_\beta)$. Les deux points de vue se justifient et diffèrent donc d'une simple convention d'origine des énergies.

4. $\iiint_V \nabla \cdot \mathbf{A} d^3r = \iint_S \mathbf{A} \cdot d\mathbf{S}$

$$= -\frac{\hbar^2}{2m} \int \nabla \cdot [\chi_\beta^*(\mathbf{r}) \nabla \varphi_\alpha(\mathbf{r}) - \varphi_\alpha(\mathbf{r}) \nabla \chi_\beta^*(\mathbf{r})] d^3r \quad (14)$$

$$= -\frac{\hbar^2}{2m} \int_{\mathcal{S}} [\chi_\beta^*(\mathbf{r}) \nabla \varphi_\alpha(\mathbf{r}) - \varphi_\alpha(\mathbf{r}) \nabla \chi_\beta^*(\mathbf{r})] \cdot d\mathbf{S} \quad (15)$$

$$= -i \int_{\mathcal{S}} \mathbf{j}_{\alpha,\beta}(\mathbf{r}) \cdot d\mathbf{S} \quad (16)$$

où \mathcal{S} est une surface située dans la barrière séparant les deux sous-systèmes.

Vingt ans avant l'invention du microscope à effet tunnel, J. Bardeen ne songeait qu'à une jonction invariante par translation en x et y en relation avec les expériences de mesures de *gap* supraconducteur. C'est en 1983 que Tersoff et Hamann ont appliqué ce formalisme à la géométrie particulière du microscope à effet tunnel [15]. Pour calculer l'élément de matrice $M_{\alpha,\beta}$, ils ont donné des formes explicites aux fonctions d'ondes de la pointe et de la surface adaptée à la géométrie d'une jonction tunnel STM. Plus précisément, ils ont modélisé la fonction d'onde de la pointe $\chi_\beta(\mathbf{r})$ par une fonction à symétrie sphérique⁵ :

$$\chi_\beta(\mathbf{r}) \propto \frac{e^{-\kappa_\beta |\mathbf{r}|}}{|\mathbf{r}|}$$

et la fonction d'onde de la surface par un développement en ondes planes de la forme :

$$\varphi_\alpha(\mathbf{r}) \propto \sum_{\mathbf{G}} a_{\mathbf{G}} \exp \left[-(k^2 + |\mathbf{k}_{//} + \mathbf{G}|^2)^{1/2} z \right] \times \exp [i(\mathbf{k}_{//} + \mathbf{G}) \cdot \mathbf{x}]$$

L'utilisation de ces deux fonctions d'onde a permis de donner une forme explicite au courant tunnel à partir du formalisme de Bardeen :

$$I \propto eV \frac{eh^3}{m^2} \rho_{tip}(0) \rho_s(eV)$$

où $\rho_{tip}(0)$ est la densité énergétique d'état de la pointe au niveau de Fermi et $\rho_s(E)$ est la densité énergétique d'état de la surface à l'énergie E définie par rapport au niveau de Fermi de la surface.

Cette formule illustre le fait que le STM est sensible, en première approximation, à la densité électronique de la surface à l'énergie du niveau de Fermi.

D'autres modèles plus avancés existent, notamment applicables pour des tensions plus élevées et des surfaces semiconductrices mais nous ne détaillerons pas ces modèles dans cette annexe introductive et nous invitons le lecteur à se reporter aux articles y faisant référence [4, 11, 14, 8, 9, 2, 12, 10, 7].

5. Notons que cette expression correspond bien à l'amplitude d'une solution stationnaire de l'équation de Schrödinger (4), caractérisée par une énergie $E_\beta = \hbar^2 \kappa_\beta^2 / 2m$. Plus précisément, elle correspond au cas où $V_b(\mathbf{r}) \propto \delta(\mathbf{r})$.

Bibliographie

- [1] J. Bardeen. Tunneling from a many-particle point of view. *Phys. Rev. Lett.*, 6(2) :57, 1961.
- [2] S. Ciraci, A. Baratoff, and I. P. Batra. Tip-sample interaction effects in scanning-tunneling and atomic force microscopy. *Phys. Rev. B*, 41(5) :2763, 1990.
- [3] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Frank Laloë. *Mécanique quantique I*. Hermann, 1973.
- [4] N. Garcia, C. Ocal, and F. Flores. Model theory for scanning tunneling microscopy : Application to $\text{Au}(110)(1 \times 2)$. *Phys. Rev. Lett.*, 50(25) :2002, 1983.
- [5] Ivar Giaever. Energy gap in superconductors measured by electron tunneling. *Phys. Rev. Lett.*, 5(4) :147, 1960.
- [6] A. D. Gottlieb and L. Wesoloski. Bardeen's tunnelling theory as applied to scanning tunnelling microscopy : a technical guide to the traditional interpretation. *Nanotech.*, 17(8) :R57, 2006.
- [7] Werner A. Hofer, Adam S. Foster, and Alexander L. Shluger. Theories of scanning probe microscopes at the atomic scale. *Rev. Mod. Phys.*, 75 :1287, 2003.
- [8] C. Julian Chen. Origin of atomic resolution on metal surfaces in scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 65 :448, 1990.
- [9] C. Julian Chen. Tunneling matrix elements in three-dimensional space : The derivative rule and the sum rule. *Phys. Rev. B*, 42(14) :8841, 1990.
- [10] J. A. Kubby and J. J. Boland. Scanning tunneling microscopy of semiconductor surfaces. *Surf. Sci. Rep.*, 26 :61–204, 1996.
- [11] N. D. Lang. Vacuum tunneling current from an adsorbed atom. *Phys. Rev. Lett.*, 55 :230, 1985.
- [12] W. Sacks and C. Noguera. Generalized expression for the tunneling current in scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B*, 43(14) :11612, 1991.
- [13] John G. Simmons. Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating layer film. *J. Appl. Phys.*, 34(6) :1793, 1963.
- [14] E. Tekman and S. Ciraci. Atomic theory of scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. B*, 40 :10286, 1989.

- [15] J. Tersoff and D. R. Hamann. Theory and application for the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 50(25) :1998, 1983.