



Universiteit
Leiden
The Netherlands

Towards optical detection of a single electron

Moradi, A.

Citation

Moradi, A. (2021, February 23). *Towards optical detection of a single electron. Casimir PhD Series*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/3149275>

Version: Publisher's Version

License: [Licence agreement concerning inclusion of doctoral thesis in the Institutional Repository of the University of Leiden](#)

Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/3149275>

Note: To cite this publication please use the final published version (if applicable).

Cover Page



Universiteit Leiden



The handle <https://hdl.handle.net/1887/3149275> holds various files of this Leiden University dissertation.

Author: Moradi, A.

Title: Towards optical detection of a single electron

Issue Date: 2021-02-23

Samenvatting

De spectroscopie van een enkel molecuul heeft een krachtige methode opgeleverd om fluorescerende organische moleculen in tal van studies toe te passen. Naast detectie toepassingen in de biologie en vastestoffysica, of in de kwantuminformatie technologie, zijn moleculen ook interessante studie objecten voor fundamenteel onderzoek. Een van de zeer boeiende gebieden is ladingstransport en de detectie van elektrische velden op nanoschaal. Het ontwikkelen van moleculaire nanosensoren voor elektrische velden kan niet alleen helpen om de beweging van ladingen in geleiders en halfgeleiders op fundamenteel niveau te onderzoeken, maar kan ook leiden tot zeer gevoelige en nauwkeurige instrumenten voor quasi-statische ladingsopsporing of zelfs ladingsdetectie van één enkel elektron. Dergelijk onderzoek zou uiteindelijk kunnen leiden tot de constructie van nauwkeurige elektrische-veldsensoren die kunnen fungeren als interface tussen de kwantumtoestand van een elektron en de buitenwereld. In dit verband hebben we moleculaire fluorescentiesystemen en elektrische netwerken ontwikkeld met als doel de elektrische-veld detectie en optische detectie van een enkel elektron. Hoofdstuk 1 geeft een algemeen overzicht van de spectroscopie van een enkel molecuul en van het Stark-effect.

In Hoofdstuk 2 van dit proefschrift hebben we een zeer gevoelige moleculaire sonde van het elektrische veld ontwikkeld. Het systeem is gebaseerd op het integreren van dibenzoterryleen (DBT) als het sondemolecuul (gast) in een 2,3-dibroomnaftaleen (DBN) gastheermatrix. Eénkristallen van DBN gedoteerd met DBT zijn gegroeid door co-sublimatie. DBT-moleculen worden geïntegreerd langs de a-as van het kristal door drie gastheermoleculen te vervangen. De visgraatstructuur van het DBN-kristal introduceert vervorming en buiging in een DBT-molecuul en breekt de symmetrie ervan. De DBT-vervorming gecombineerd met het effect van elektronegativiteit van de broom-atomen induceert een grote elektrische dipool. De gemeten dipoolmoment verandering van 2,1 D komt goed overeen met de berekende dipoolmoment verandering van 2,46 D. Als gevolg van het induceren van zo'n dipoolmoment is er voor een DBT-molecuul een grote en homogene lineaire Stark verschuiving van maximaal 2 GHz / kVcm^{-1} gemeten. Voor een veld van 10 kV / cm is deze verschuiving 600 keer groter dan de lijnbreedte van de ZPL "Zero-Phonon line" van het molecuul. Dit duidt dit op een grote gevoeligheid voor elektrische velden. We hebben ook de optische eigenschappen van het systeem bestudeerd. Een zeer stabiele, smalle ZPL met een lijnbreedte van ongeveer 40 MHz en een helderheid van ongeveer 10^7 uitgezonden fotonen per seconde zijn gemeten. Kwantumchemische berekeningen bevestigen onze vondst van een groot, door de gastheermatrix geïnduceerd dipoolmoment van het DBT-molecuul. Moleculaire-mechanica simulaties bevestigen dat het invoegen van DBT in de eenheidscel van de matrix op acht verschillende manieren kan gebeuren, wat overeenkomt met de acht matrix-DBN-moleculen in de eenheidscel. Hoewel deze plekken tot verschillende oriëntaties van dipoolmomenten (en dus tot verschillende Stark-coëfficiënten in een willekeurig aangelegd elektrisch veld) leiden, hebben ze allemaal dezelfde energie dankzij de drie spiegelsymmetrieën van het systeem. Dit

systeem kan worden gebruikt voor het meten van elektrische velden in nanostructuren of als een uitstekend afstembare lichtbron van éénfoton toestanden. Wat nog belangrijker is voor ons project, is dat het een uitstekende kandidaat is voor optische detectie van één elektron.

In Hoofdstuk 3 hebben we een nieuw fenomeen bestudeerd en het vermogen ervan om de optische overgang van fluorescerende moleculen af te stemmen. In verschillende gast/gastheer moleculaire systemen zijn de door licht geïnduceerde ladingdragers onderzocht. Ladingdragers in de buurt van het molecuul genereren een lokaal elektrisch veld en produceren een Stark-verschuiving. Deze ladingen hebben een lange levensduur: van de orde van enkele uren. De geproduceerde Stark-verschuiving kan worden gebruikt voor langdurige, elektrode-vrije fijn-afstemming van optische overgangen in fluorescerende moleculen. Vervolgens introduceren we een foto-ionisatiemodel om de ladingsopwekking en -propagatie in de matrix te beschrijven. Het effect is gebruikt om ZPL's van DBT-moleculen af te stemmen in drie verschillende gastheermatrices: polykristallijn naftaleen, 2,3-dibroomnaftaleen éénkristallen, en antraceen nanokristallen. Bij nanokristallen werd een verschuiving van meer dan 100 GHz verkregen. Onze collega's in Florence hebben dit effect gebruikt voor frequentiematching van 5 verschillende ruimtelijk van elkaar gescheiden DBT-moleculen. Het afstemmen biedt allerlei toepassingen van moleculen in kwantum-technologieën, zoals de integratie van veel éénfoton lichtbronnen in moleculaire elektronica en fotonische schakelingen.

In Hoofdstuk 4 van dit proefschrift heb ik één-elektron transistoren (SETs) geïntroduceerd. De werkingsprincipes van SETs worden theoretisch besproken, en hun werking en eigenschappen gepresenteerd. Het aantal elektronen binnen een eindig eiland is een geheel getal en kan nauwkeurig worden geregeld door elektronen één voor één toe te voegen wanneer aan de voorwaarde van de Coulomb blokkade is voldaan. Dit maakt het mogelijk om één enkel elektron te vangen in een metalen eiland in de buurt van een moleculaire sonde die gevoelig is voor elektrische velden, zoals een DBT/DBN-systeem. Deze geïntegreerde schakeling kan worden toegepast om één elektron optisch te detecteren. Bij deze hybride benadering kan het aantal elektronen binnen het eiland elektrisch worden aangestuurd. Tegelijkertijd kan het molecuul het bestaan van extra elektronen vertalen naar een verschuiving van de optische overgang die detecteerbaar is. Hoewel SETs al tientallen jaren bestaan, vereist het gebruik ervan voor deze toepassing specifieke voorwaarden. Het essentiële aspect is dat het elektrische veld dat wordt gecreëerd door het geladen eiland niet mag worden afgeschermd door de toevoerdraden of door enig ander bulkmateriaal. Er is een geschikte configuratie van SETs voor detectie van enkele lading ontworpen. Het bestaat uit een 200 nm groot eiland met heel puntige toevoerdraden die minimale overlap met de eilanden hebben. Een COMSOL-simulatie laat zien dat de elektrische veldsterkte van een gevangen elektron in zo'n SET tot 200 nm van het eiland kan worden waargenomen, waarbij DBT in DBN wordt beschouwd als het sondemolecuul is.

Rekening houdend met alle vereisten en de faciliteiten in ons laboratorium, is een fabricagemethode ontwikkeld om de benodigde SET's te vervaardigen. In Hoofdstuk 5 worden de verschillende fabricage methoden gepresenteerd. De inspanning begon met elektronenbundel lithografie. Ondanks het gebruik van verschillende trucs, zoals overdosering van de elektroden ten opzichte van het eiland in een SET-configuratie, verhinderde de slechte resolutie van de elektronenbundel de fabricage van de tunnel opening. Vervolgens is er een andere fabricagemethode ontwikkeld op basis van zelfassemblage van gouden nanodeeltjes en nanostaafjes. Veertig nanometer grote gouden nanobolletjes (als eiland) zijn gepositioneerd tussen twee nanostaafjes (als elektroden) door het gebruik van homocysteïne moleculen als

verbinding. Door het ontbreken van speciale fabricagemogelijkheden konden we niet verder gaan met deze aanpak. Tenslotte werd een tien-stappen hybride methode ontwikkeld om de SETs te fabriceren. Bij deze methode werd de resolutielimiet van de elektronenbundel overwonnen door eilanden van elektroden te scheiden met een isolatielaag die fungeert als de tunnel opening. Bij deze methode zijn eilanden van 200 nm van een patroon voorzien met behulp van elektronenbundel-lithografie, en vervolgens is de tunnel opening met behulp van atomaire depositie met atomaire resolutie gegroeid. Het vermogen om de dikte van de isolatielaag nauwkeurig te beheersen stelt ons in staat een brede verdeling van tunnelopeningen te maken. Een groot aantal transistoren is tijdens het transport en elektrische meting beschadigd geraakt door statische elektriciteit en instabiliteit van de elektrisch potentiaal in de elektronische opstelling. Omdat we de SETs in Leiden niet hadden kunnen meten, hebben we de elektrische metingen voortgezet in samenwerking met de groep van professor H. van der Zant aan de Technische Universiteit Delft.

In hoofdstuk 6 worden de pogingen om één elektron optisch te detecteren beschreven. Het DBT: DBN-kristal is op de gefabriceerde chip geplakt. De optische metingen werden uitgevoerd bij 1,2 K door het monster onder te dompelen in vloeibaar helium. Door het verschil tussen de brekingsindex van het kristal (1,6) en het vloeibare helium (1,02), alsmede de vorming van vele scheuren in het kristal tijdens het afkoelen, bleek het moeilijk om de SETs onder het kristal te vinden. De geschatte locatie van de eilanden werd bepaald door het matchen van microscopie beelden en het bestuderen van de reactie van de moleculen op de source-drain spanning en het aan de gate aangelegde elektrische veld. Daarna werd het source-drain spanningsverschil laag gehouden en werd de gate-spanning gescand terwijl het excitatiespectrum van het molecuul opgenomen werd. De gate spanning manipuleert de potentiaal van het eiland en laat het eiland een elektron bij een bepaalde spanning binnen. Daarom kan het elektrische veld van het elektron worden waargenomen als een sprong in het moleculaire spectrum of een niet-lineariteit in de Stark verschuiving. Hoewel een dergelijk signaal werd waargenomen, was de reproduceerbaarheid niet voldoende om optische waarneming van elektronenbundel enkel elektron te claimen. De inspanningen om één enkel elektron optisch te detecteren worden voortgezet.