

## 隧道结纳米器件中的光电流调制与因素分析

沈逸, 曾标峰, 郑臻荣\*, 唐龙华\*\*

浙江大学光电科学与工程学院, 浙江 杭州 310027

**摘要** 激光耦合隧道结器件是国际前沿研究热点, 伴随产生的电磁场局域增强或光整流等效应在等离激元光镊、单分子成像、单光子光源等领域有着重要的应用价值。为了解隧道结中的光电相互作用和特性, 首先利用反馈电沉积制备获得了固态隧道结纳米器件, 然后测定了激光功率、偏置电压、偏振方向和调制频率与光电流的关系, 并结合有限元法和时域有限差分方法进行理论仿真, 讨论了器件中光电流的组分及相关效应。结果表明, 器件局部热膨胀效应、热伏效应和热载流子效应为光电流产生的主要原因, 而光整流效应因受限于激光峰值功率, 其结果并不显著。这些发现可为固态隧道结器件中的光学调控以及在纳米尺度上研究激光调制电子隧穿过程提供参考。

**关键词** 光学器件; 隧道结纳米器件; 光电流; 热效应; 光整流效应; 等离激元效应

中图分类号 O436

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230623

## 1 引言

光耦合纳米器件的研究极大地推动了等离激元光子学与纳米光子学等领域的发展, 近年来在单分子探测<sup>[1-3]</sup>、纳米光源<sup>[4-6]</sup>、量子通信<sup>[7]</sup>等技术中取得重要突破。金属纳米结构可以将激光限制在衍射极限之下, 通过等离激元共振特性实现亚波长的纳米尺度的光场调控和光子输运<sup>[8-9]</sup>。其中, 固态隧道结纳米器件可以将入射激光耦合到隧道间隙中, 通过光学整流效应将光激发的交流信号转换为直流信号, 提供了一种检测光学频率下超快交流信号的方法<sup>[10-12]</sup>。但是, 当激光耦合到隧道结纳米器件中时, 产生的光电流通常是由多种效应共同作用的结果。除了光整流效应之外, 金属结构会因光吸收产生热膨胀、热伏效应以及热载流子效应等<sup>[13]</sup>。热膨胀效应在扫描隧道显微镜 (STM) 的实验系统中尤为突出, 相对于面积较大的基底, STM 的针尖容易受热膨胀, 从而减小与基底之间的距离, 增大隧穿电流。同时 STM 尖端结构的不对称性会导致两端产生温度差, 产生热伏电流。而在固态隧道结纳米器件中, 可以通过优化基底散热的方式, 降低热膨胀效应的影响, 但是仍不可避免因为光热效应产生电流<sup>[14]</sup>。过去的研究表明, 在动力学时间尺度上, 热效应的响应速度比光整流效应小几个数量级<sup>[15-16]</sup>。因此, 有效分析光耦合隧道结纳米器件的光电流来源, 对其在传感和电子器件等方面的应用有重要的意义。

目前, 构建隧道结器件的方式主要有两种: 一种是通过 STM 和机械可控裂结 (MCBJ) 等动态方法构筑

的间隙可调的隧道结<sup>[17-18]</sup>; 另外一种是通过电迁移<sup>[19-20]</sup>、氧气等离子体刻蚀<sup>[21]</sup>以及反馈电化学沉积<sup>[22-23]</sup>等方式制备的间隙固定的隧道结纳米器件。将光与隧道结进行耦合一直是科学家研究的热点。1986 年, Amer 等<sup>[24]</sup>就研究了激光耦合 STM 中的光热效应对隧道结间隙的影响; 同时, 基于 STM 的光整流效应也被广泛研究<sup>[25-28]</sup>。在最新的一些研究中, Zhang 等<sup>[29-30]</sup>结合局域表面等离激元热效应和 MCBJ 技术, 报道了一种光控原子级量子接触开关; 利用电迁移的方法, Ward 等<sup>[11]</sup>制备了亚纳米间隙的隧道结器件, 研究了其光整流效应和场增强特性; Mennemanteuil 等<sup>[31]</sup>和 Zolotavin 等<sup>[14]</sup>证明光热效应也可能是隧道结纳米器件中光电流产生的重要因素。但是, 利用电迁移方法制备隧道结纳米器件存在成本高昂、耗时久、成功率低的问题。因此, 仍然需要继续发展普适性好、低成本的方法来制备亚 5 nm 固态隧道结纳米器件。

在先前的工作中, 本课题组利用反馈电沉积的方式成功制备间隙大小稳定的新型固态隧道结纳米器件, 用于脱氧核糖核酸 (DNA)、蛋白质等单分子检测研究<sup>[22, 32]</sup>。在此基础上, 本文将连续激光调制耦合到上述特色固态隧道结纳米器件中, 系统研究了光激发隧穿电流的成因。测试结果显示, 热效应, 包括热膨胀和热伏效应, 在隧道结纳米器件的光电流激发中起关键作用。纳米器件光电流值与光功率、外加偏压呈线性相关, 而与激光调制频率成反比。同时, 纳米器件光电流具有明显的偏振依赖特性, 结合对激光偏振角与场增强关系的理论模拟, 表明等离激元共振效应在其

收稿日期: 2023-03-15; 修回日期: 2023-04-06; 录用日期: 2023-04-13; 网络首发日期: 2023-04-25

基金项目: 国家自然科学基金 (62127818)

通信作者: \*zzr@zju.edu.cn; \*\*lhtang@zju.edu.cn

中发挥作用。本文的研究结果为固态隧道结纳米器件的光操控和光电耦合提供了参考,有助于推动光耦合固态隧道结相关器件和技术的发展。

## 2 实验原理和方法

### 2.1 固态隧道结纳米器件的制备与表征

实验中使用的固态隧道结纳米器件的制备过程可分为 7 个步骤<sup>[22,33]</sup>: 1) 使用拉锥仪(Sutter Instrument, P-2000)将  $\theta$  型双孔石英玻璃管(Friedrich & Dimmock, Inc.)中心加热并通过两端外力拉制成尖端为锥形的纳米探针。石英玻璃管长度为 100 mm,经过拉制后获得两根长度约 50 mm 的纳米探针,探针尖端微孔直径  $25 \pm 12$  nm,两个微孔中间由厚度为  $15 \pm 5$  nm 的石英片隔开。2) 在拉制的纳米探针双孔中通入丁烷,并在尖端处使用丁烷喷枪进行火焰加热,使通入纳米探针尖端处的丁烷气体发生热解和碳沉积,获得尖端充满碳的纳米探针。3) 在纳米探针两孔中插入直径为 0.5 mm 的铜丝,铜丝前端与纳米探针内部的碳接触导通,并用热熔胶将铜丝固定。4) 利用电化学工作站(CH Instruments Inc., 760C)对纳米探针尖端裸露的碳材料进行电化学刻蚀,形成沉积位点,为后续的金电极做准备。电化学刻蚀在 0.1 mol/L KCl(Sigma-Aldrich)和 0.1 mol/L KOH(Sigma-Aldrich)混合溶液中进行。5) 在纳米探针尖端进行金电极的预沉积。预沉积采用恒电势法进行,沉积溶液为 250 mL 镀金液[4.4 mmol/L  $\text{NH}_4\text{AuSO}_3$ 和 52 mmol/L  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_3$ , pH 值为 9.5,天跃化学,CT-288]和 1750 mL 水的混合溶液。6) 利用电化学工作站在纳米探针尖端进行金电极的反馈电沉

积,进一步缩小两端电极间隙。反馈电沉积采用恒电流法,沉积溶液和预沉积的溶液一致。7) 最后,将制备好的电极浸泡在去离子水溶液中 12 h 以上,使尖端表面电极金原子在去离子水中通过自重整效应达到稳定状态,获得间隙大小小于 5 nm 的固态隧道结器件。

后续使用光学显微镜、扫描电子显微镜(SEM)和高分辨率扫描透射电子显微镜能谱仪(STEM-EDS)对制备得到的隧道结纳米器件进行形貌表征,使用膜片钳对电极进行电学表征。

### 2.2 光电流测量方案

光电流测量系统如图 1(a)所示,系统由激发光路、照明光路和成像光路组成。在激发光路,638 nm 半导体激光器发出的光经光纤准直器准直后,经过起偏器转为线偏光,随后通过半波片(HWP)调节出射光的偏振角度。接着激光通过斩波器,进行一定频率的调制,最后再经过反射镜反射后,通过 40 倍物镜[Nikon, 数值孔径(NA)为 0.6]聚焦到隧道结纳米器件尖端。照明光路采用科勒照明的方式,发光二极管(LED)发出的光经过透镜  $L_1$  和  $L_2$  之后共轭到物镜的入瞳面位置,形成均匀照明场。在成像光路中,样品反射的光经过物镜、分束器(BS)和透镜  $L_3$  成像在面阵电荷耦合器件(CCD)相机上。当激光聚焦到隧道结纳米器件尖端时,可通过相机获得器件尖端的反射光斑,如图 1(b)所示。光电流信号通过锁相放大器(Zurich Instrument, MFLI)进行测量,隧道结纳米器件的末端铜线连接至锁相放大器的信号输入,同时将斩波器的信号作为参考信号输入锁相放大器,锁相放大器根据参考信号提取输入信号中对应频率的分量,实现信号的放大。

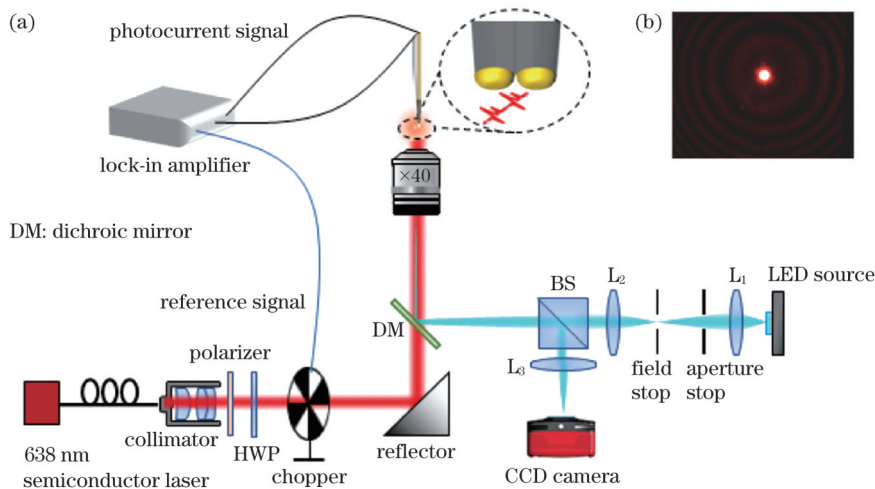


图 1 光电流测量系统示意图。(a)系统光路原理图;(b)激光聚焦到隧道结纳米器件尖端的图像

Fig. 1 Schematic diagram of photocurrent measurement system. (a) Schematic representation of system optical path; (b) image of laser focused to tunneling junction device tip

## 3 分析与讨论

### 3.1 固定间隙隧道结纳米器件的表征

通过反馈电沉积制备得到的隧道结纳米器件如

图 2 所示。图 2(a)和图 2(b)分别是隧道结纳米器件的光学照片和暗场图像,整个器件锥形尖端的尺寸小于  $1 \mu\text{m}$ 。图 2(c)和图 2(d)是隧道结纳米器件的 SEM 图像和 STEM-EDS 图像,可以看到隧道结纳米器件的



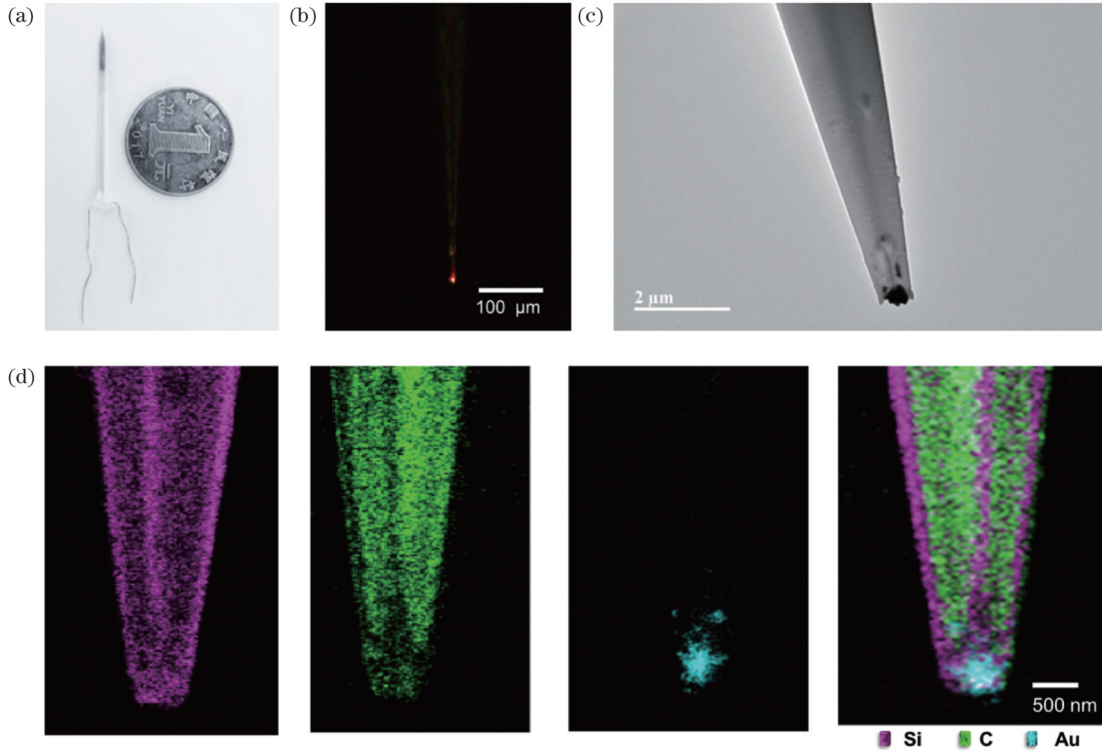


图 2 固态隧道结纳米器件的表征结果。(a)光学照片;(b)暗场图像;(c)SEM图像;(d)STEM-EDS图像

Fig. 2 Characterization of tunneling devices. (a) Optical photo; (b) dark field image; (c) SEM image; (d) STEM-EDS map of tunneling junction device tip

尖端成功沉积了金。进一步对隧道结纳米器件的电学特性进行测试,选取具非线性  $I$ - $V$  隧穿电学响应的器件用于后续测试。

### 3.2 基本原理

激光耦合隧道结产生的光电流主要有两个来源:光整流效应和激光诱导的热效应<sup>[12]</sup>。激光耦合到隧道结器件中,将会诱导一个交变的电磁场,等效于一个交变电场电压  $V_{\text{opt}}$ 。根据 Tien-Gorden 的理论,在  $V_{\text{opt}}$  远小于  $\hbar\omega/e$  的近似条件下,光整流电流可表示为

$$I_{\text{Rect}} = \frac{1}{4} \frac{\partial^2 I}{\partial V^2} V_{\text{opt}}^2, \quad (1)$$

式中:  $\frac{\partial^2 I}{\partial V^2}$  为  $I$ - $V$  特性曲线的二阶导数<sup>[28]</sup>。

光整流效应具有明显的非线性特征。由于激光被器件材料部分吸收,需要进一步考虑激光诱导热效应所产生的电流。

热效应主要包括热膨胀效应、热伏效应以及热载流子效应。对于亚 5 nm 的隧道结器件,隧道电流与隧道结间隙大小呈指数相关,因此热膨胀引起隧道结间隙变化将直接反映为隧道电流的增加,可以近似表示为

$$I_{\Delta d} = I_0 \exp(-\alpha\sqrt{\phi}d) \alpha\Delta d = \alpha\sqrt{\phi} \Delta d I_0, \quad (2)$$

式中:  $I_0 = I_0 \exp(-\alpha\sqrt{\phi}d)$  为不发生热膨胀时的总电流<sup>[34]</sup>;  $d$  为隧道结间隙;  $I_0$  为短路电流;  $\alpha$  为一常数;  $\phi$  为势垒高度;  $\Delta d$  为间隙缩小量。

热膨胀电流  $I_{\Delta d}$  主要与激光功率  $P$  和激光调制频

率  $f$  有关,间隙缩小量  $\Delta d$  与  $P$  成正相关,而在  $f$  大于截止频率时,满足  $\Delta d \propto 1/f$ <sup>[24]</sup>, 因此热膨胀电流满足  $I_{\Delta d} \propto P$  和  $I_{\Delta d} \propto 1/f$ 。

热效应的另外一个作用是在隧道结电极两端产生不对称的温度梯度场,进而导致电子的转移,产生热伏电流<sup>[34]</sup>。热伏电流主要与温度分布有关,而温度分布又主要与纳米结构表面形貌和激光功率有关。值得注意的是,热伏电流即使在未施加偏置电压时仍然存在,能够对  $I_D$  产生贡献。同时,激光与器件的纳米结构相互作用产生的等离子体在衰减时可以产生高能热载流子,而热载流子的传输可以产生热载流子电流<sup>[1]</sup>, 等离子体本身也可以产热,进一步加剧热膨胀效应。热伏电流和热载流子电流可能归为自发热电流  $I_{\text{TE}}$ 。

综上,考虑到光整流效应和热效应的共同作用,在功率为  $P$  的激光照射下,光耦合隧道结中总的隧道电流可以表达为

$$I = I_b + I_{\text{photo}} = I_b(V, d) + I_{\text{Rect}}(V, V_{\text{opt}}, d) + I_{\Delta d}(P, d) + I_{\text{TE}}(V, \Delta T, d), \quad (3)$$

式中:  $I_b$  为暗电流;  $I_{\text{photo}}$  为光电流;  $I_{\text{Rect}}$  为光整流电流;  $I_{\Delta d}$  为热膨胀电流;  $I_{\text{TE}}$  为自发热电流;  $V$  为外加的偏压;  $\Delta T$  为电极对的温度差。

### 3.3 实验结果

实验中,锁相放大器量程为  $1 \mu\text{A}$ ,在此量程下跨阻抗增益为  $1 \text{ MV/A}$ ,前端放大器带宽为  $450 \text{ kHz}$ ,直流(DC)输入阻抗为  $1 \text{ k}\Omega$ ,输入噪声为  $200 \text{ fA}/\sqrt{\text{Hz}}$  ( $1 \text{ kHz}$ )。如

图 3(a) 所示, 器件的  $I$ - $V$  特性曲线表现出明显的非线性特征, 根据隧道电流理论的 Simmons 模型<sup>[35]</sup>, 可以得到器件隧穿间隙约为 1.09 nm。实验首先测量了偏置电压为 0 的情况下, 开启与关闭激光时电流随时间的演变, 结果如图 3(b) 所示。实验中激光功率为 409  $\mu\text{W}$ , 调制频率为 1013 Hz, 半波片角度为 30°。在没有激光照射的情况下, 存在 1.9 pA 大小的暗电流, 来源于环境与系统中存在的各种电学噪声。在 638 nm 激光照射下, 隧道结纳米器件表现出快速的光响应, 光电流水平约为 15 pA。另外, 激光照射时的电流波动水平明显高于无激光照射时。这主要是因为实验系统中激光抖动以及光学噪声的引入。零偏置电压的实验结果表明, 隧道结纳米器件中存在显著的自发热电流。通过反馈电沉积制备的隧道结纳米器件, 其电极结构难以精确控制, 普遍存在不对称的两端电极结构, 因此在激光照射下, 热伏效应显著<sup>[14,31]</sup>。同时, 之前的文献表明<sup>[36-37]</sup>, 波长为 638 nm 的激光与金纳米结构之间的等离激元共振效应显著, 在电极间隙区域

形成局域热点, 生成大量热电子, 成为隧道光电流的因素之一。因此, 在本文研究的隧道结纳米器件中, 热伏效应是光电流的主要成因之一。

为了进一步探究热膨胀效应对光电流的影响, 实验测量光电流对激光功率和调制频率的依赖性。如图 3(c) 所示, 在 0~1000  $\mu\text{W}$  的功率范围内, 光电流从 3 pA 增加到 256 pA, 表现出明显的线性依赖关系, 即满足  $I_{\text{photo}} \propto P$ <sup>[38]</sup>。而当激光功率大于 1000  $\mu\text{W}$  时, 光电流反而出现下降, 这是因为此时的激光能量已经大于隧道结纳米器件所能承受的阈值, 激光照射可能对器件尖端结构造成不可逆的损伤, 且功率越高, 器件损伤越大, 这可能与器件尖端的金原子团在高功率激光照射下发生重排有关<sup>[29]</sup>。锁相放大器中前端放大器的增益与调制频率有关, 在 250~6000 Hz 频率范围内, 频率响应  $H$  与频率  $f$  近似满足线性关系  $H = 0.00515(\text{kHz})^{-1} \times f + 0.147$ , 在探究光电流对调制频率的依赖性时, 需要利用频率响应对数据归一化, 得到归一化光电流。图 3(d) 显示归一化光电流响应与激光

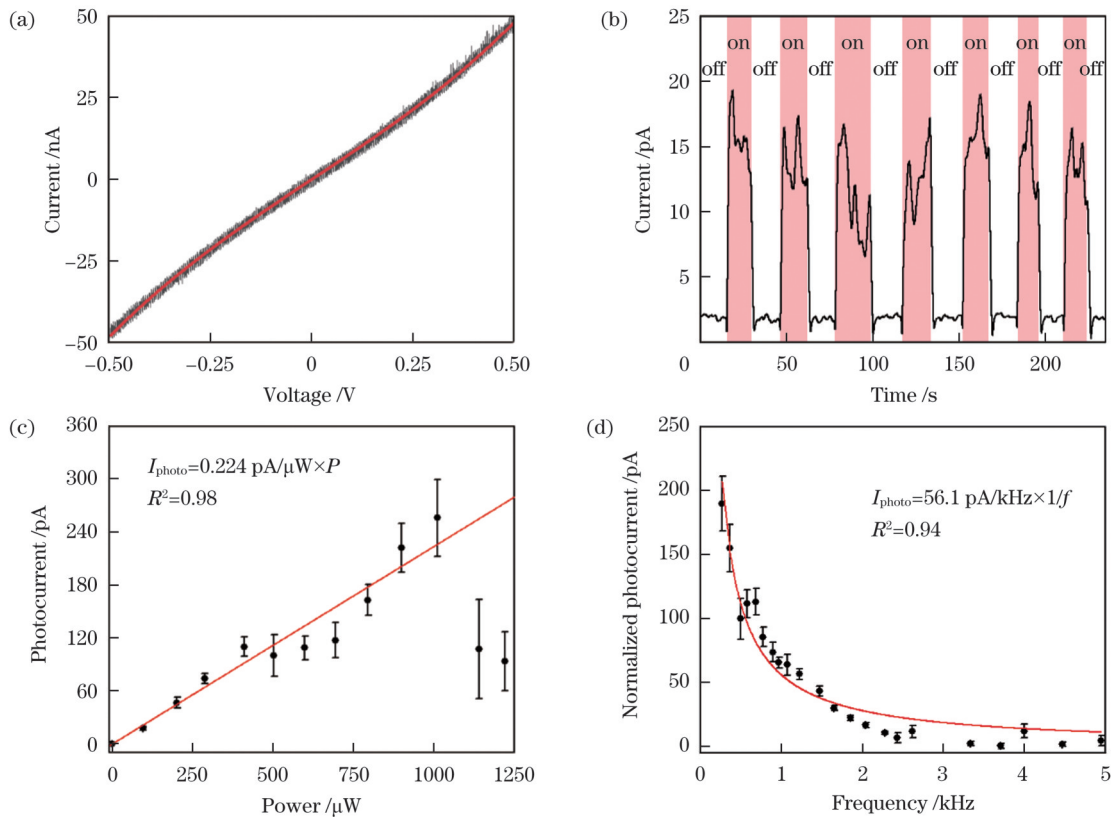


图 3 隧道结纳米器件光电流测量结果。(a) 器件的  $I$ - $V$  特性曲线; (b) 零偏置电压下电流的时间演变, 实验中激光功率为 409  $\mu\text{W}$ , 调制频率为 1013 Hz, 半波片角度为 30°; (c) 激光功率对光电流响应的影响, 偏置电压为 0 V, 调制频率为 1013 Hz, 半波片角度为 30°; (d) 激光调制频率对归一化光电流的影响, 偏置电压为 0 V, 激光功率为 409  $\mu\text{W}$ , 半波片角度为 30°。误差棒表示信号的噪声水平

Fig. 3 Results of photocurrent measurement for tunneling junction device. (a)  $I$ - $V$  curve trace; (b) time evolution of current without external bias voltage, with laser power of 409  $\mu\text{W}$ , chopper frequency of 1013 Hz, and angle of half-wave plate of 30°; (c) plot of photocurrent as function of laser power, with applied bias of 0 V, chopper frequency of 1013 Hz, and angle of half-wave plate of 30°; (d) plot of normalized photocurrent as function of modulation frequency, with applied bias of 0 V, laser power of 409  $\mu\text{W}$ , and angle of half-wave plate of 30°. Error bars represent level of noise on signal

调制频率成反比例关系,即满足  $I_{\text{photo}} \propto 1/f$ 。该结果表明,在测试的隧道结纳米器件中,热膨胀效应也是影响光电流水平的重要因素之一。

此外,实验研究了隧道结纳米器件光电流与入射激光偏振的关系。实验中激光功率为  $409 \mu\text{W}$ ,调制频率为  $1013 \text{ Hz}$ ,外加偏置电压为  $0 \text{ V}$ 。入射激光经过起偏器之后为线偏振光,通过旋转半波片可以对入射激光的偏振方向  $\theta$  进行旋转。如图 4(a) 所示,随着偏振方向的改变,光电流的大小发生周期性变化,变化周期为  $180^\circ$ 。实验结果表明,光电流从极大值到极小值的变化趋势与  $\cos^2\theta$  的变化趋势近似。图 4(a) 中曲线为用该关系进行拟合的结果,表达式在图中给出。纳米电极对的等离子共振效应对入射光的偏振方向有着强依赖性,当入射光偏振方向平行于电极对时,可以获得场增强因子最大的局域热点,而当入射光偏振方向垂直于纳米电极对时,等离子共振效应不显著。因此,光电流的偏振依赖特性充分说明了实验中等离激

元共振效应光电流的作用。值得注意的是,即使偏振方向垂直于纳米电极对(半波片角度为  $170^\circ$ ),仍存在显著的光电流,这部分光电流主要源于热伏电流。此外,隧道结纳米器件电极对之间可能存在多点接触的情况<sup>[39]</sup>,对不同偏振方向的入射光均发生响应,从而导致等离子共振效应产生的电流始终存在。

最后,为了探究光整流效应对光电流的贡献,实验测量了光电流对偏置电压的依赖性。如图 4(b) 所示,随着外加偏置电压的增大,光电流呈线性上升的趋势。在 3.2 中提到,光整流电流和  $\frac{\partial^2 I}{\partial V^2}$  成正比,具有明显的非线性特征。在偏压依赖实验中,没有观察到类似的现象,主要原因是实验所使用的连续激光诱导峰值功率较低,这使得式(2)中的  $V_{\text{opt}}$  项较小,同时产生的微弱的光整流电流会淹没在更为显著的热效应电流中,因此,最终获得与热效应更为直接相关的线性偏压依赖性。

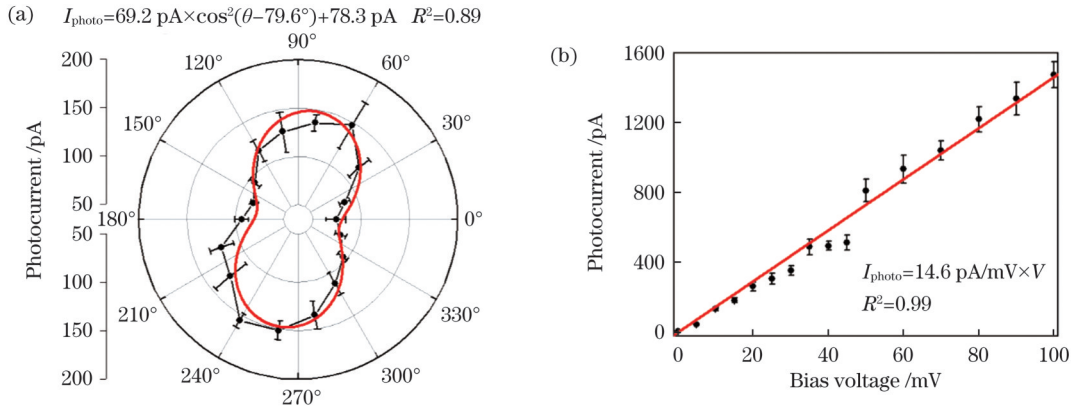


图 4 固态隧道结纳米器件光电流的偏振依赖特性和偏压依赖性。(a)激光偏振方向对光电流响应的影响,实验中偏压为  $0 \text{ V}$ ,激光功率为  $409 \mu\text{W}$ ,调制频率为  $1013 \text{ Hz}$ ; (b)外加偏压对光电流响应的影响,实验中激光功率为  $409 \mu\text{W}$ ,调制频率为  $1013 \text{ Hz}$ ,半波片角度为  $30^\circ$ 。误差棒表示信号的噪声水平

Fig. 4 Dependence of photocurrent on polarization and applied bias. (a) Plot of photocurrent as function of polarization, with applied bias of  $0 \text{ V}$ , laser power of  $409 \mu\text{W}$ , and chopper frequency of  $1013 \text{ Hz}$ ; (b) plot of photocurrent as function of applied bias, with laser power of  $409 \mu\text{W}$ , chopper frequency of  $1013 \text{ Hz}$ , and angle of half-wave plate of  $30^\circ$ . Error bars represent level of noise on signal

### 3.4 仿真分析

为了进一步理解激光与固态隧道结纳米器件的耦合机制,利用时域有限差分(FDTD)方法对激光照射下隧道结纳米器件尖端的电场分布进行模拟,同时模拟了场增强因子与激光偏振角的关系。如图 5(a) 所示,器件建模简化为两个相对的半径为  $100 \text{ nm}$  的金球以及两个半径为  $150 \text{ nm}$  的圆柱,金球间的距离为  $1.2 \text{ nm}$ ,环境介质为折射率为  $1.33$  的水,偏振角  $\theta$  为入射激光偏振方向与  $x$  轴的夹角。图 5(b)~图 5(e) 分别表示偏振角为  $0^\circ$ 、 $30^\circ$ 、 $60^\circ$  和  $90^\circ$  时的  $xz$  平面电场强度分布。偏振角为  $90^\circ$  时的电场强度远小于偏振角为  $0^\circ$  时的电场强度,表明等离子共振增强效应与偏振角有关。将特定条件下的纳米间隙中心位置的电场强度记为

$E$ ,而无纳米结构时同一位置的电场强度记为  $E_0$ ,则可以定义电场增强系数  $F = (E/E_0)^2$ 。  $F$  与偏振角  $\theta$  的关系如图 5(f) 所示。根据电场分布,可以得到坡印廷矢量分布,因此有光强  $I_1 = 0.5c\epsilon_0 n E^2$ ,其中  $c$  为真空光速,  $\epsilon_0$  为真空介电常数,  $n$  为介质折射率。根据光强可以得到单位体积内的产热速率  $\dot{q} = I_1 \alpha$ ,其中吸收系数  $\alpha = 4\pi k/\lambda$ ,  $k$  为消光系数,  $\lambda$  为真空波长<sup>[40]</sup>。因此,在纳米结构不变的情况下,可以认为升温与电场强度成正比相关<sup>[41]</sup>。图 5(f) 中给出的拟合结果所示,  $F$  与偏振角  $\theta$  满足  $F \propto \cos^2\theta$ 。使用软件 COMSOL 可以对整个隧道结纳米器件的温度分布随时间的变化进行仿真。当器件置于空气中,起始温度为  $300 \text{ K}$  时,受到功率密度为  $10^6 \text{ W/m}^2$  的激光的持续照射,达到稳态后的



温度分布如图 5(g) 所示, 最高温度可达 312.6 K。图 5(h) 给出了器件在置于空气与水中时, 在  $10^6 \text{ W/m}^2$  功率密度激光持续照射下, 最高温度随时间的变化。

在照射时间达到 1 ms 时, 温度趋于稳定, 而在照射时间达到 5 ms 时, 温度基本不再变化, 温度分布达到稳态。

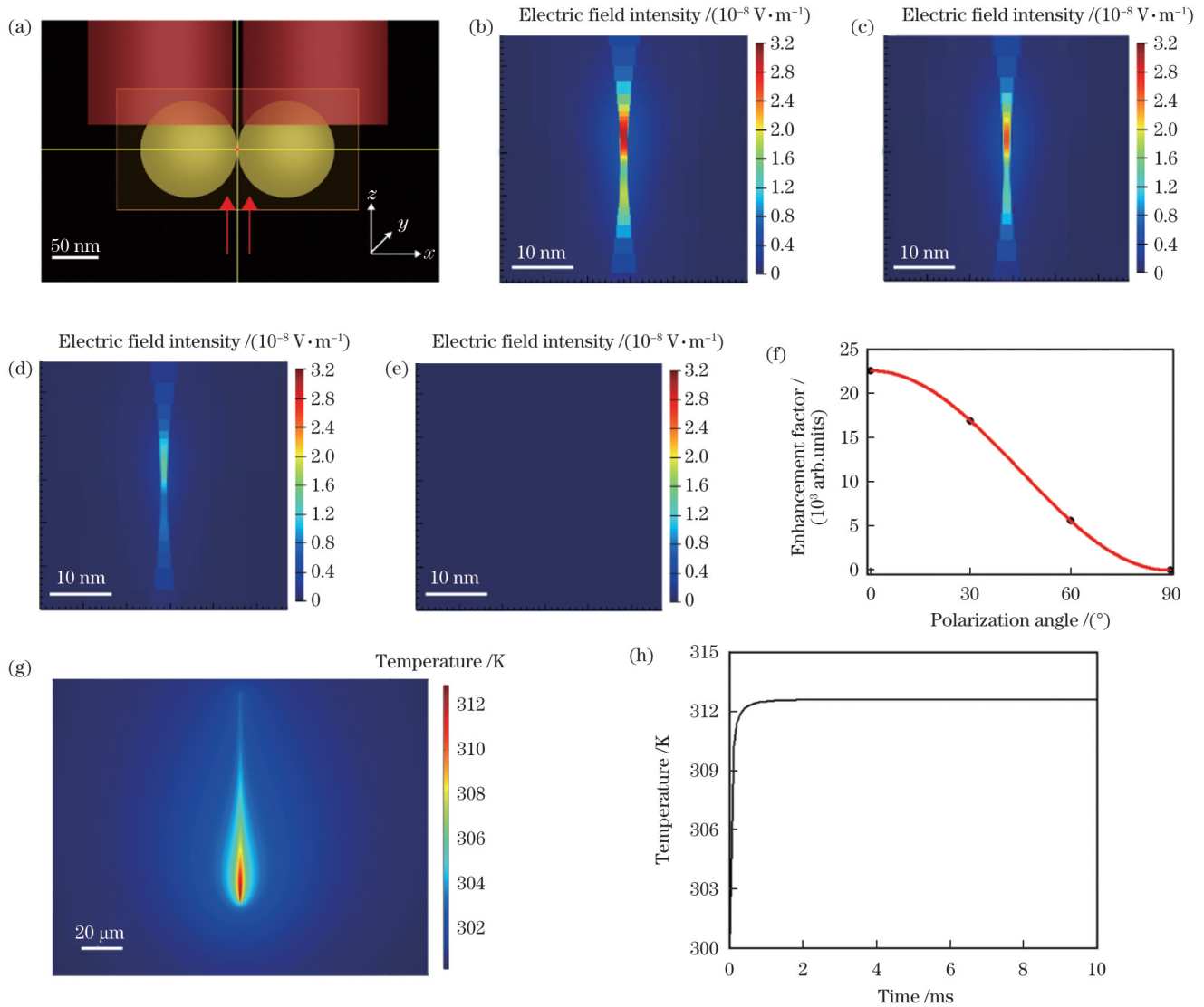


图 5 电场及温度分布仿真。(a) 器件简化模型; (b)~(e) 偏振角为  $0^\circ$  (b),  $30^\circ$  (c),  $60^\circ$  (d),  $90^\circ$  (e) 时的电场分布; (f) 电场增强系数  $F$  与偏振角  $\theta$  关系; (g) 稳态下的器件温度分布, 器件置于空气中, 初始温度 300 K, 激光功率密度  $10^6 \text{ W/m}^2$ ; (h) 器件置于空气中时最高温度随时间的变化

Fig. 5 Simulation of electric field and temperature distribution. (a) Simplified model of devices; (b)–(e) electric field distribution with polarization angle of  $0^\circ$  (b),  $30^\circ$  (c),  $60^\circ$  (d), and  $90^\circ$  (e); (f) relation between electric field enhancement factor and polarization angle; (g) temperature distribution of device in steady state, for which device is placed in air, starting temperature is 300 K, and laser power density is  $10^6 \text{ W/m}^2$ ; (h) time evolution of the highest temperature of device when placed in air

## 4 结 论

利用光场驱动隧道结纳米器件有望进一步缩小电子器件的尺寸和提高运行速度。激光与隧道结纳米器件耦合产生的光整流效应与热效应等复杂作用亟待进一步探索。对反馈电沉积制备的特色隧道结纳米器件进行系统的光电流表征, 实验结果表明, 在激光照射下, 隧道结纳米器件中产生显著的光电流。在无外加偏置电压的条件下, 由于器件结构的不对称性将产生

热伏电流, 且光电流与激光功率成线性关系, 与调制频率成反比例关系, 可以得出热伏电流和热膨胀电流是光电流的主要组成部分。同时, 光电流的偏振依赖性表明等离激元共振效应显著影响光电流的成分, 对光耦合隧道结尖端电磁场的模拟仿真进一步说明了热载流子的存在。实验中没有观察到明显的光整流效应成分, 可能是因为使用的连续激光峰值功率较低, 激发的交变电场较小。在后续对光耦合隧道结纳米器件的研究中, 可以使用脉冲激光进行光激发, 进

一步放大器件的光整流效应,以及从时间尺度上对光电流的成分进行提取和分析。本研究有助于对激光与纳米结构相互作用机理的研究,也能为光电流的控制提供参考。

### 参 考 文 献

- [1] Wang M N, Wang T, Ojambati O S, et al. Plasmonic phenomena in molecular junctions: principles and applications[J]. *Nature Reviews Chemistry*, 2022, 6(10): 681-704.
- [2] Fried J P, Wu Y F, Tilley R D, et al. Optical nanopore sensors for quantitative analysis[J]. *Nano Letters*, 2022, 22(3): 869-880.
- [3] Li Z S, Lu T W, Huang P R, et al. Efficient nano-tweezers via a silver plasmonic bowtie notch with curved grooves[J]. *Photonics Research*, 2021, 9(3): 281-288.
- [4] Kuzmina A, Parzefall M, Back P, et al. Resonant light emission from graphene/hexagonal boron nitride/graphene tunnel junctions [J]. *Nano Letters*, 2021, 21(19): 8332-8339.
- [5] Li C, Chen K, Guan M X, et al. Extreme nonlinear strong-field photoemission from carbon nanotubes[J]. *Nature Communications*, 2019, 10: 4891.
- [6] Yang A K, Wang D Q, Wang W J, et al. Coherent light sources at the nanoscale[J]. *Annual Review of Physical Chemistry*, 2017, 68: 83-99.
- [7] Yu X T, Wang X, Li Z, et al. Spin Hall effect of light based on a surface plasmonic platform[J]. *Nanophotonics*, 2021, 10(12): 3031-3048.
- [8] Yang K, Yao X, Liu B W, et al. Metallic plasmonic array structures: principles, fabrications, properties, and applications[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(50): 2170392.
- [9] Barreda A I, Zapata-Herrera M, Palstra I M, et al. Hybrid photonic-plasmonic cavities based on the nanoparticle-on-a-mirror configuration[J]. *Photonics Research*, 2021, 9(12): 2398-2419.
- [10] Dasgupta A, Mennemanteuil M M, Buret M, et al. Optical wireless link between a nanoscale antenna and a transducing rectenna[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 1992.
- [11] Ward D R, Hüser F, Pauly F, et al. Optical rectification and field enhancement in a plasmonic nanogap[J]. *Nature Nanotechnology*, 2010, 5(10): 732-736.
- [12] Tang Y K, Harutyunyan H. Optical properties of plasmonic tunneling junctions[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2023, 158(6): 060901.
- [13] Mennemanteuil M M, Buret M, Colas-des-Francis G, et al. Optical rectification and thermal currents in optical tunneling gap antennas[J]. *Nanophotonics*, 2022, 11(18): 4197-4208.
- [14] Zolotavin P, Evans C, Natelson D. Photothermoelectric effects and large photovoltages in plasmonic Au nanowires with nanogaps [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2017, 8(8): 1739-1744.
- [15] Zhou S H, Chen K, Cole M T, et al. Ultrafast electron tunneling devices: from electric-field driven to optical-field driven[J]. *Advanced Materials*, 2021, 33(35): e2101449.
- [16] Stolz A, Berthelot J, Mennemanteuil M M, et al. Nonlinear photon-assisted tunneling transport in optical gap antennas[J]. *Nano Letters*, 2014, 14(5): 2330-2338.
- [17] Lu Z X, Zheng J T, Shi J, et al. Application of micro/nanofabrication techniques to on-chip molecular electronics[J]. *Small Methods*, 2021, 5(3): 2001034.
- [18] Zeng B F, Zou Y L, Wang G, et al. Quantitative studies of single-molecule chemistry using conductance measurement[J]. *Nano Today*, 2022, 47(1): 101660.
- [19] Song H, Kim Y, Jang Y H, et al. Observation of molecular orbital gating[J]. *Nature*, 2009, 462(7276): 1039-1043.
- [20] Suga H, Suzuki H, Otsu K, et al. Feedback electromigration assisted by alternative voltage operation for the fabrication of facet-edge nanogap electrodes[J]. *ACS Applied Nano Materials*, 2020, 3(5): 4077-4083.
- [21] Cao Y, Dong S H, Liu S, et al. Building high-throughput molecular junctions using indented graphene point contacts[J]. *Angewandte Chemie (International Ed. in English)*, 2012, 51(49): 12228-12232.
- [22] Tang L H, Nadappuram B P, Cadinu P, et al. Combined quantum tunnelling and dielectrophoretic trapping for molecular analysis at ultra-low analyte concentrations[J]. *Nature Communications*, 2021, 12: 913.
- [23] Yang Y, Liu J Y, Zheng J T, et al. Promising electroplating solution for facile fabrication of Cu quantum point contacts[J]. *Nano Research*, 2017, 10(10): 3314-3323.
- [24] Amer N M, Skumanich A, Ripple D. Photothermal modulation of the gap distance in scanning tunneling microscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 1986, 49(3): 137-139.
- [25] Cocker T L, Jelic V, Hillenbrand R, et al. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(8): 558-569.
- [26] Yoshioka K, Katayama I, Arashida Y, et al. Tailoring single-cycle near field in a tunnel junction with carrier-envelope phase-controlled terahertz electric fields[J]. *Nano Letters*, 2018, 18(8): 5198-5204.
- [27] Cocker T L, Jelic V, Gupta M, et al. An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope[J]. *Nature Photonics*, 2013, 7(8): 620-625.
- [28] Tu X W, Lee J H, Ho W. Atomic-scale rectification at microwave frequency[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2006, 124(2): 021105.
- [29] Zhang W Q, Liu H S, Lu J S, et al. Atomic switches of metallic point contacts by plasmonic heating[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, 8: 34.
- [30] Zhang S R, Guo C Y, Ni L F, et al. *In-situ* control of on-chip angstrom gaps, atomic switches, and molecular junctions by light irradiation[J]. *Nano Today*, 2021, 39(1): 101226.
- [31] Mennemanteuil M M, Colas-des-Francis G, Buret M, et al. Laser-induced thermoelectric effects in electrically biased nanoscale constrictions[J]. *Nanophotonics*, 2018, 7(12): 1917-1927.
- [32] Tang L H, Yi L, Jiang T, et al. Measuring conductance switching in single proteins using quantum tunneling[J]. *Science Advances*, 2022, 8(20): eabm8149.
- [33] Jiang T, Yi L, Liu X, et al. Fabrication of electron tunnelling probes for measuring single protein conductance [J]. *Nature Protocols*, 2023, 18: 2579-2599.
- [34] Grafström S. Photoassisted scanning tunneling microscopy[J]. *Journal of Applied Physics*, 2002, 91(4): 1717-1753.
- [35] Simmons J G. Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film[J]. *Journal of Applied Physics*, 1963, 34(6): 1793-1803.
- [36] Zeng B F, Deng R, Zou Y L, et al. Optical trapping of a single molecule of length sub-1 nm in solution[J]. *CCS Chemistry*, 2023, 5(4): 830-840.
- [37] Zhan C, Wang G, Yi J, et al. Single-molecule plasmonic optical trapping[J]. *Matter*, 2020, 3(4): 1350-1360.
- [38] 王茜, 梁红艳. 等离激元纳米海胆结构增强热载流子的产生与注入[J]. *中国激光*, 2023, 50(1): 0113016.  
Wang X, Liang H Y. Plasmonic nanourchin enhanced hot carrier generation and injection[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(1): 0113016.
- [39] Dubois V, Raja S N, Gehring P, et al. Massively parallel fabrication of crack-defined gold break junctions featuring sub-3 nm gaps for molecular devices[J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 3433.
- [40] Chen X W, Wang X W. Near-field thermal transport in a nanotip under laser irradiation[J]. *Nanotechnology*, 2011, 22(7): 075204.
- [41] Zaman M A, Hesselink L. Dynamically controllable plasmonic tweezers using C-shaped nano-engravings[J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 121(18): 181108.

# Optical Modulation and Cause Analysis of Photocurrent in Nanoscale Tunneling Junction Devices

Shen Yi, Zeng Biaofeng, Zheng Zhenrong\*, Tang Longhua\*\*

*College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou 310027, Zhejiang, China*

## Abstract

**Objective** Laser-coupled tunneling junction devices can lead to various phenomena such as electromagnetic field local enhancement and optical rectification effects, which have significant applications in fields such as plasmon optical tweezers, single-molecule imaging, and single-photon light sources. Using optical fields to drive tunneling junction nanodevices may also reduce the size of electronic devices and improve their speed. The main methods to construct tunneling junction devices include tunneling junctions with adjusted nanogap through dynamic methods and tunneling junction devices with fixed nanogap through methods like electromigration and feedback electrodeposition. However, the fabrication of tunneling junction devices by electromigration still has the issues of high cost, time consumption, and low success rate. In previous works, our group successively fabricated novel solid-state tunneling junction nanodevices with stable nanogap through feedback electrodeposition, and these devices are appropriate for such research. In the present study, we couple continuous laser to the characteristic solid-state tunneling junction nanodevices and systematically study the cause of photoinduced tunneling current. We hope that our results may provide a reference for the optical manipulation and optoelectronic coupling of solid-state tunneling junction nanodevices, and contribute to the development of optically coupled solid-state tunneling junction-related devices and technologies.

**Methods** The fabrication of solid-state tunneling junction nanodevices includes seven steps. Firstly, pull  $\theta$ -shaped double-hole quartz glass tubes into nanoprobe tips with conical tips through external forces at both sides while heated at the center using a cone puller. Secondly, introduce butane gas into the double holes of the nanoprobe tips and use a butane spray gun to heat the tip, causing the butane gas to undergo pyrolysis and carbon deposition at the tip. Thirdly, insert copper wires with a diameter of 0.5 mm into the two holes, so that the front ends of the copper wires are in contact with the carbon inside the nanoprobe tips. The copper wires are fixed using a hot melt adhesive. Fourthly, etch the exposed carbon material at the tip of the nanoprobe tips using an electrochemical workstation, to form deposition sites as the preparation for subsequent gold electrodes. Fifthly, pre-electrodeposit gold electrodes at the tip of the nanoprobe tips using the constant current method. Sixthly, feedback-electrodeposit gold electrodes at the tip of the nanoprobe tips using the constant potential method. Finally, soak the fabricated electrodes in deionized water for more than 12 h, so that the gold atoms on the tip surface of the electrode reach a stable state through a self-resetting effect, and solid-state tunneling devices with sub-5 nm nanogaps are obtained.

**Results and Discussions** The current in the devices increases when the laser is switched on, and decreases when the laser is switched off at zero bias voltage, which proves the presence of photocurrent. The tunneling junction nanodevices exhibit quick optical response, and the photocurrent at zero bias voltage shows that a significant spontaneous thermal current exists in such devices. Influencing factors of the photocurrent are then researched. When the laser power grows, the photocurrent grows linearly within the power range of 0–1000  $\mu\text{W}$ . And the photocurrent decreases when the power exceeds 1000  $\mu\text{W}$  due to irreversible optical damage. When the modulation frequency grows, the photocurrent decreases inversely within the frequency range of 250–6000 Hz. This result shows that thermal expansion effects play an important role in photocurrent (Fig. 3). The relation between photocurrent and polarization angle follows a square-of-cosine rule, and the photocurrent has a period of  $180^\circ$ . This result shows that plasmon resonance effects contribute to the photocurrent, which includes plasmon-induced thermal expansion current and hot carrier current. And the photocurrent does not decrease to zero whatever the polarization angle is, which proves the presence of thermal voltage current. When the bias voltage grows, the photocurrent grows linearly, which shows that optical rectification effects are not significant in our experimental conditions (Fig. 4). The simulation results also show the polarization dependence of electrical field intensity, which is positively correlated with the temperature rise. When the devices are put in the air and illuminated by the laser with a power density of  $10^6 \text{ W/m}^2$ , the temperature in the devices rises from 300 K to 312.6 K in less than 5 ms (Fig. 5).

**Conclusions** In the present study, the influencing factors and causes of the photocurrent in solid-state tunneling junction devices are systematically studied. Under laser illumination, significant photocurrent is generated in the tunneling junction nanodevices. The experiment and simulation results show that the local thermal expansion effects, thermal voltage effects, and hot carrier effects are the main reasons for photocurrent generation, while optical rectification effects are not significant. Additionally, the optical rectification effect is not significantly limited by the laser peak power. To get the maximum photocurrent, we can increase laser power and bias voltage (under threshold), decrease modulation frequency, and choose an appropriate polarization angle. And it is possible to amplify the optical rectification effects using a pulsed laser. Our study may contribute to the study of the interaction mechanism between laser and nanostructures, as well as provide a reference for the control of photocurrent.

**Key words** optical devices; nanoscale tunneling junction device; photocurrent; thermal effects; optical rectification effects; plasmonic effects