

Csonka Szabolcs

**Electron transport in atomic and molecular
junctions**

Ph.D. tézisfüzet

Témavezető: Prof. MIHÁLY György
**Budapesti Műszaki és Gazdaság-
tudományi Egyetem**
Fizika Intézet
Fizika Tanszék

BME

2005

Bevezetés

A pásztázó alagútmikroszkóp (STM) felfedezése 1986-ban egy új kutatási területet indított útjára, ami mára a nanotudományokban teljesedett ki. Különböző pásztázó technikák kifejlesztésének köszönhetően mára az anyag láthatóvá és módosíthatóvá vált az atomi méretskálán. A fizikán kívül a kémia és a biológia is érdeklődést tanúsít a természet viselkedése iránt a nanométeres tartományban. Ezen lokális vizsgálati technikák segítségével, többek között tanulmányozhatóak a vortexmagok térbeli szerkezete magas hőmérsékletű szupravezető rendszerekben, atomi klaszterek kémiai aktivitása, vagy például protein molekulák mechanikai tulajdonsága.

Atomi és molekuláris kontaktusok fizikája a nanotudományok egyik speciális területe. Ezen kontaktusokban néhány atom vagy egyetlen molekula köti össze a két elektródát. Mivel a kontaktusok mérete az elektronok Fermi-hullámhosszával összemérhető kvantummechanikai leírasmódra van szükséges a transzport, mechanikai és kémia tulajdonságok tárgyalásakor.

Atomi méretű fémes kontaktusok egyszerű és megbízható módon hozhatóak létre egy közös fém vezeték szétszakítása során. Ha a vezeték nyújtását leállítjuk a teljes elszakadást megelőzően, akkor egy olyan kontaktushoz jutunk, ami néhány atomot tartalmaz a legszűkebb keresztmetszetében. Az elmúlt évtized során végzett elméleti és kísérleti kutatások az atomi méretű kontaktusok transzport tulajdonságainak átfogó megértéséhez vezettek [Agraït et al., Phys. Rep. 377, 81 (2003)]. A vezetőképességet alapvetően a kontaktus atomjainak kémiai tulajdonsága határozza meg: a nyitott vezetési csatornák a vegyérték elektronok pályáival azonosíthatóak. Mindemellett az elektronok hullámtermészetének köszönhetően számos mezoszkópikus jelenség (vezetőképesség fluktuáció, sörét zaj, stb.) jelentős korrekciót eredményez a transzport tulajdonságokban.

Az elmúlt években a molekuláris kontaktusokat egyre szélesebb körben

tanulmányozzák. Ezen kutatások távlati célja elektronikai eszközök molekuláris szinten történő létrehozása. Megfelelően tervezett szerves molekulák dióda, tranzisztor vagy logikai kapuként működve alapvető építőkövei lehetnének a legkisebb méretű áramköröknek. A tudományterület jelenlegi állapotában még további kutatásokra van szükség, hogy önálló molekulák vezetési tulajdonságait megértsük és kontrollálni tudjuk. A kísérleti eredmények nem teljesen reprodukálhatóak, az elektródákat összekötő molekulák számát nehéz meghatározni, valamint az elméleti modellek sem nyújtanak megbízható leírást.

Atomi és molekuláris kontaktusok transzport tulajdonságainak vizsgálatához a BME Fizika Tanszékének alacsony hőmérsékleti laboratóriumában egy mintatartó került megépítésre az ún. mechanikusan kontrollálható törési kontaktus elvét alkalmazva (Mechanically Controllable Break Junction) [Halbritter, Ph.D. thesis, BUTE (2003)]. A vizsgálandó anyagot drót formájában, közepén bevékonyítva egy laprúgóra erősítjük fel, majd a rugó hajlítása során atomi méretű kontaktust hozunk létre. Az elrendezés geometriájának köszönhetően nagy mechanikai stabilitás érhető el, valamint a drót hélium hőmérsékleten történő eltörése nagy tisztaságú felületeket garantál.

Célkitűzések

Laboratóriumunk MCBJ elven működő berendezésének kialakítása során a rendszer számítógépes vezérlésének kiépítése volt a feladatom. Az általam fejlesztett szoftver valamint az ehhez kapcsolódó elektronika számos fizikai jelenség kimérését valamint az adatok online statisztikai analízisét teszi lehetővé (vezetőképesség hisztogramok, plató hosszúság és vezetőképesség fluktuációs analízisek, fonon spektroszkópia stb.).

Doktori munkám célja molekuláris teszt rendszerek transzport tulaj-

donságainak vizsgálata volt. Ennek érdekében a legegyszerűbb molekula a hidrogén kölcsönhatását vizsgáltam atomi méretű fémes kontaktusokkal. Hidrogén által előidézett, új atomi konfigurációkat sikerült azonosítanom, valamint lehetséges mikroszkopikus magyarázatot adni ezen konfigurációkra a vezetőképesség görbék megfelelő statisztikai analízisével.

Új tudományos eredmények

Doktori munkám fontosabb tudományos eredményeit az alábbi tézispontokban foglalom össze.

1. Számítógépes vezérlésű elektronikai összeállítást fejlesztettem ki atomi és molekuláris kontaktusok vizsgálatára szolgáló, MCBJ elven működő pontkontaktus mérőrendszerhez. Ez az összeállítás lehetővé teszi az interaktív mérésvezérlést (mérőeszközök szabályozását, beállítását, visszacsatolások elvégzését), nagysebességű adatgyűjtést valamint az adatok online statisztikai elemzését. A kifejlesztett elrendezés alkalmas az alábbiakra: az elektródák távolságának 0.1\AA pontosságú kalibrációja (adszorbált molekulák által módosított kilépési munka esetében is) [4]; mezoszkópikus kontaktusok gerjesztési spektrumának meghatározása [2]; atomi konfigurációk közötti korrelációk vizsgálata [1,2]; valamint vezetési csatornák elemzése a vezetőképesség fluktuációk alapján [2,3]. A mérőrendszer segítségével többek között megmutattam, hogy a palládium-hidrogén rendszer $G \sim 1 G_0$ konfigurációjának vezetőképességét több részlegesen nyitott vezetési csatorna adja [2].
2. Új statisztikai módszer alkalmazásával vizsgáltam a kvantum interferencia szerepét arany kontaktusok vezetőképesség platójának finomszerkezetében. Az alkalmazott módszer segítségével szét tudtam választani a plató meredekség kvantum interferenciából valamint a lokális atomi konfiguráció megnyúlásából származó járulékait. Kvantitatív

analízissel megmutattam, hogy a két járulék azonos nagyságrendbe esik. Modell számítást végeztem a kvantum interferencia által okozott plató meredekség fluktuációk amplitúdójának becslésére, ami jó egyezést mutatott a kísérleti eredményekkel. [3]

3. Megmutattam, hogy a hidrogén gáz erősen reagál atomi méretű palládium kontaktusokkal, hidrogén jelenlétében az egyatomos palládium kontaktus csúcsa eltűnik a vezetőképesség hisztogramból és két csúcs jelenik meg $G \sim 0.5 G_0$ illetve $\sim 1G_0$ vezetőképességeknél. Ezen csúcsok két új hidrogénhez kapcsolódó atomi konfiguráció jelenlétét mutatják. Fonon spektrum vizsgálatokkal megmutattam, hogy ezen konfigurációk hidrogén atomokat beoldott elektródák között helyezkednek el. A hidrogén beoldódása jelentős különbséget eredményez az azonos elektronszerkezetű platina kontaktusokhoz képest, ahol a hidrogén csak a felületen található. A Pt–H₂ kontaktusra végzett számítások valamint a hidrogén beoldódásának a Pd elektronszerkezetére gyakorolt hatása alapján a két új atomi konfigurációra az alábbi mikroszkopikus magyarázatot adtam: palládium-hidrid elektródák közé ékelt hidrogén illetve palládium atom. [2]
4. Új statisztikai módszerekkel tanulmányoztam az adszorbált hidrogén arany kontaktusok vezetőképességére gyakorolt hatását. Plató hosszúság eloszlások korrelációs analízisével valamint a kontaktus vezetőképességének széthúzás illetve összenyomás közbeni vizsgálatával megmutattam, hogy atomi aranylánc hidrogén környezetben is ki tud alakulni, de a lánc transzmissziója lényegesen lecsökken a hidrogénnel kölcsönhatva. Azt találtam, hogy a széthúzás során gyakran jelentkezik egy jól definiált, periodikus viselkedést mutató vezetőképesség görbe típus. Statisztikai eszközökkel megmutattam, hogy ezek a görbék egy új típusú láncképződéshez tartoznak, ami az alábbi mikroszkopikus folyamattal magyarázható: a hidrogén molekula beépül az arany kon-

taktusba, és ez a hidrogén kapocs elég erős ahhoz, hogy atomi aranyláncot húzzon ki az elektródákból. [1,5]

Publikációs lista

Tézispontokhoz kapcsolódó publikációk:

- [1] Sz. Csonka, A. Halbritter, G. Mihály,
Pulling goldnanowires with a hydrogen clamp.
accepted to Phys. Rev. B, cond-mat/0502421 (2005).
- [2] Sz. Csonka, A. Halbritter, G. Mihály,
O. I. Shklyarevskii, S. Speller, and H. van Kempen
Conductance of Pd-H nanojunctions.
Phys. Rev. Lett., **93**, 016802 (2004).
- [3] A. Halbritter, Sz. Csonka, G. Mihály,
O. I. Shklyarevskii, S. Speller and H. van Kempen
Quantum interference structures in the conductance plateaus of gold nanojunctions.
Phys. Rev. B Rap. Com., **69**, 121411 (2004).
- [4] Sz. Csonka, A. Halbritter, G. Mihály, E. Jurdik,
O. I. Shklyarevskii, S. Speller, and H. van Kempen
Field and temperature induced effects in the surface modification process.
Journal of Applied Physics, **96**, 6169 (2004).
- [5] Sz. Csonka, A. Halbritter, G. Mihály, E. Jurdik,
O. I. Shklyarevskii, S. Speller, and H. van Kempen,
Fractional conductance in hydrogen-embedded gold nanowires.
Phys. Rev. Lett., **90**, 116803 (2003).

Egyéb publikációk:

[6] I. K. Yanson, O. I. Shklyarevskii, Sz. Csonka, H. van Kempen, S. Speller, A. I. Yanson, and J. M. van Ruitenbeek, *Atomic size oscillations in conductance histograms for Au nanowires and the influence of work hardening*.
accepted in Phys. Rev. Lett., cond-mat/0508194 (2005).

[7] A. Halbritter, Sz. Csonka, G. Mihály, E. Jurdik, O. Yu. Kolesnychenko, O. I. Shklyarevskii, S. Speller, and H. van Kempen, *Transition from tunneling to direct contact in tungsten nanojunctions*.
Phys. Rev. B, **68**, 35417 (2003).

[8] A. Halbritter, Sz. Csonka, O. Yu. Kolesnychenko, G. Mihály, O. I. Shklyarevskii, and H. van Kempen, *Connective neck evolution and conductance steps in “hot” point-contacts*.
Phys. Rev. B, **65**, 45413 (2002).

[9] P. Fazekas, K. Penc, H. Berger, L. Forró, Sz. Csonka, I. Kézsmárki and G. Mihály
BaVS₃: from spin gap insulator to non Fermi liquid.
Physica B, **312**, 694 (2002).

[10] I. Kézsmárki, Sz. Csonka, H. Berger, L. Forró, P. Fazekas and G. Mihály
Pressure dependence of the spin gap in BaVS₃.
Phys. Rev. B Rap. Com., **63**, 81106 (2001).