



Universiteit
Leiden
The Netherlands

A study of electron scattering through noise spectroscopy

Kumar, M.

Citation

Kumar, M. (2012, December 5). *A study of electron scattering through noise spectroscopy*. *Casimir PhD Series*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/20251>

Version: Corrected 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/1887/20251>

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

Cover Page



Universiteit Leiden



The handle <http://hdl.handle.net/1887/20251> holds various files of this Leiden University dissertation.

Author: Kumar, Manohar

Title: A study of electron scattering through noise spectroscopy

Issue Date: 2012-12-05

SAMENVATTING

Voor bulkmetalen geldt dat de elektrische weerstand wordt veroorzaakt door de verstrooiing van elektronen aan defecten, roostertrillingen, korrelgrenzen of kunnen elektron echter onzuiverheden. Door een kwantum geleider kunnen elektronen echter reizen zonder enige verstrooiing. Om deze reden heet transport in kwantum geleiders ballistisch. Toch is de gemeten weerstand niet nul; zij wordt veroorzaakt door de verstrooiing van elektronen bij de contacten tussen de kwantum geleider en de normale geleiders die het geheel met de buitenwereld verbinden. Atomaire contacten zijn een van de meest bestudeerde systemen van dit soort en hebben een speciale plek in de vakgebieden van nanowetenschappen en nanotechnologie. Anders dan tweedimensionale elektron gas systemen, hebben de elektronen in zo'n atomaire contact een hoge toestandsdichtheid bij de Fermi energie. Het transport van elektronen gaat door discrete kwantum kanalen en is vatbaar voor de lokale potentialen van de atomen in het contact. Daarom worden deze systemen gebruikt om de lokale interacties van elektronen en daarmee de eigenschappen van de atomen of moleculen te onderzoeken.

Een van de technieken die vaak gebruikt wordt om de fysieke eigenschappen van verschillende atomen of moleculen te onderzoeken is de *mechanically controlled break junction* techniek (MCBJ). Een macroscopische draad wordt ingesnoerd tot een atomaire contact door de draad uit te rekken. Hierdoor wordt de weerstand in discrete stappen groter. De oorsprong van deze discrete stappen is anders dan wat wij weten van experimenten met tweedimensionale elektron gas systemen. In onze experimenten zijn deze discrete stappen geassocieerd met abrupte veranderingen in de lokale rangschikking van atomen in het contact. We kunnen het proces van uitrekking beheersen tot stappen in het sub-Ångstrombereik. Dit geeft ons de vrijheid om de koppeling van de centrale atomen in het contact met de bulk te variëren. Omdat we hebben gezien dat elektronische toestanden bij de Fermi energie vrij gevoelig zijn voor de coördinatie van de atomen, hebben wij een stuk gereedschap tot onze beschikking om de effectieve elektronen transmissie door het atomaire contact te manipuleren door middel van uitrekking. Dit proces creëert atomaire scherpe elektroden die niet alleen voor de studie van de lokale eigenschappen van atomen, maar ook voor de studie van de eigenschappen van moleculen die in de junctie zijn geplaatst. De interactie van de elektronen met deze moleculen kan worden bepaald met behulp van stroom-spanning spec-

troscopie. Elektron-elektron of elektron-fonon interacties zijn karakteristiek voor de atomaire of moleculaire soort in het contact. Terwijl deze interactiesignalen door meerdere onderzoeksgroepen met stroom-spanningsspectroscopie zijn bestudeerd, hebben wij de effecten van deze interacties op de fundamentele ruis in de stroom onderzocht. De stroom fluctueert rond de gemiddelde waarde vanwege verstrooiing van het elektron bij de contacten, als de transmissiekans kleiner is dan 1. Deze fluctuatie heeft van nature een wit karakter, en staat bekend als hagelruis. De hagelruis in een geleider is evenredig met de elektrische lading en met de gemiddelde waarde van de stroom. Hagelruis in een geleider in afwezigheid van interacties, wordt gegeven door $S_I = 2eI$; deze uitdrukking geldt in de limiet van een lage transmissiekans, $\tau \ll 1$, voor alle kanalen. Voor perfecte transmissie ($\tau = 1$) is de hagelruis volledig onderdrukt. In het algemeen is de ruis per kanaal onderdrukt met een factor $F = (1 - \tau)$, de Fano factor. Vanwege elektron-elektron en elektron-fonon verstrooiing wijkt de waarde van de hagelruis af van de zonder wisselwerkingen; in het geval van elektron-fonon verstrooiing kan dit worden waargenomen als een knik in de ruis-spanning grafiek. In ons onderzoek kijken wij naar deze afwijking om de interacties die plaats vinden in atomaire en moleculaire geleiders te bestuderen. Dit proefschrift bestaat uit twee delen: (a) Inelastische signaturen in de ruis als gevolg van elektron-fonon interacties. (b) De studie van magnetisme in atomaire contacten: elektron-elektron interacties.

In het eerste deel van dit proefschrift hebben we gekeken naar inelastische verstrooiingseffecten in de ruis. Eerder hebben wij al een *transitie* gezien in het teken van het signaal in de differentiële geleiding ten gevolge van de elektron-fonon interactie. Deze interactie lijdt tot een stap naar beneden in de differentiële geleiding bij de bias-spanning die correspondeert met de fonon energie van een kwantum geleider met perfecte transmissie. Daarentegen vindt men een stap omhoog in de differentiële geleiding voor kwantum geleiders met lage-transmissie. Voor een Landauer geleider met een enkel kanaal wordt de *tekenwisseling* gevonden rond $\tau = 0.5G_0$. Dit kan begrepen worden in termen van een fonon-gemedieerde enkel-deeltje verstrooiings-effect. Aangezien hagelruis de tweede cumulant van de stroom is (de geleiding is de eerste cumulant), is deze meer gevoelig voor subtiele interacties van de geleidende elektronen. Onze ruis metingen aan atomaire goud ketens laten afwijkingen zien in de fonon energie van het goud atomaire systeem. De verandering in ruis is evenredig met de verandering in de geleiding ten gevolge van de elektron-fonon interactie. De *overgang* in het teken van de inelastische correctie in de ruis wordt gezien bij een geleidingswaarde van $0.95G_0$. Deze *overgang* is hoger dan de voorspelde waarde van $0.85G_0$. De positieve inelastische correctie in de ruis gezien bij hoge transmissie is vrij eenvoudig te begrijpen. Echter, de negatieve correctie kan niet in een simpel enkel-elektron plaatje begrepen worden, maar kan uitgelegd worden als een twee-elektronen-en-een-fonon-proces.

Beschouw twee elektronen, met energieën E en $E - \hbar\omega_0$, uit het linker reservoir, waarbij het elektron met hoge energie (met energie E) een fonon genereert. De twee elektronen zullen dan concurreren om dezelfde uitgaande toestand. De wisselwerking als gevolg van het Pauliverbod zorgt ervoor dat de energie distributie van bezette uitgaande toestanden meer uniform is, en daarmee de ruis verlaagt. De positieve inelastische correctie waargenomen in de ruis dicht bij $\tau = 1$ komt goed overeen met de theoretische waarde, terwijl de negatieve correctie afwijkt van de theoretische waarde, al is dit erg afhankelijk van het model. Het toevoegen van geleidingsfluctuaties in elektron transport kan de verplaatsing in de *tekenovergang* fenomenologisch verklaren, maar is in kwantitatief opzicht niet geheel afdoende.

Vergelijkbare metingen van Au-O-Au atomaire ketens laten gelijksoortige lineaire afwijkingen in de ruis zien, als gevolg van inelastische verstrooiing van elektronen. Voor Au atomaire ketens, zowel als voor Au-O-Au atomaire ketens hebben wij een tweede kink in de ruis gezien bij hogere energieën. Dit zou een gevolg van hogere-orde vibratie processen kunnen zijn.

De meeste Au contacten laten een lineaire afwijking zien boven de fonon energie. Een lineaire afhankelijkheid is te verwachten voor een sterke koppeling van fononen met de fononen in de elektroden. Echter, in sommige gevallen waar deze koppeling verminderd kan worden-laten de ruis metingen een niet-lineaire afwijking zien boven de fonon energie van het contact. Deze niet-lineairiteit is toe te schrijven aan een terugkoppeling van de fonon fluctuaties op de ladingstatistiek van de elektronen. De ruis wijkt kwadratisch af boven de fonon energie in het experiment. Echter, het is te vroeg om conclusies te trekken over de ontspanningsnelheid van fononen en om een definitieve conclusie te trekken over de bestaande theorieën.

Een moleculair systeem zoals Pt-D₂-Pt en Au-O-Au zou geschikter zijn om de niet-lineaire effecten die veroorzaakt worden door inelastische verstrooiing, te bestuderen. Het nadeel is dat deze systemen vaak last hebben van $1/f$ ruis. Doorgaans ligt de kantelfrequentie van de $1/f$ ruis voor Pt-D₂-Pt bij een instelspanning van 34meV is rond de 1MHz. Om deze reden hebben wij een hoogfrequentie lage-ruis kruis-spectrum meetopstelling ontwikkeld, welke de ruis in een moleculair systeem in het MHz bereik kan meten. Hiervoor gebruiken wij een op-maatgemaakte lage ruis versterker en een twee-kanaals kruiscorrelator.

Voor sommige Au atomaire contacten hebben we een abnormaal grote ruis onderdrukking bij de fonon energie gezien. Voor de processen die hierboven zijn beschreven zijn twee-elektron processen de reden voor de ruis onderdrukking (niet groter dan 20 – 30%). Abnormale contacten laten een veel hogere onderdrukking zien, zelfs een afnamen van de ruis bij hogere spanning. Wij hebben onderzocht of dit effect verklaard kon worden door zwakke lading *shuttling*, inclusief spiegel-potentiaal. We kunnen alleen een voldoende groot effect krijgen in ons model

bij een periodieke beweging van het atoom in het contact met grote amplitude. Zulke abnormaal grote amplitudes kunnen voorkomen in recente modellen die niet-conservatieve stroom-geïnduceerde krachten in beschouwing nemen die de atomen in het contact beïnvloeden. Deze kracht kan ook eerdere waarnemingen verklaren van abnormale stroom-geïnduceerde breuken van atomaire ketens, dus zou het interessant zijn om te testen wat de breuk-spanningen zijn van de ketens die abnormale ruiseigenschappen laten zien. Een vervolgstudie is aan de gang.

In het tweede deel van dit proefschrift hebben wij gekeken naar de rol van magnetisme in Pt atomaire ketens en ferromagnetische atomaire contacten. Uit modelberekeningen is voorspeld dat Pt atomaire ketens een gelokaliseerd magnetisch moment zullen ontwikkelen in het contact. Een verhoogd gelokaliseerd moment kan worden verwacht vanwege de verhoogde toestandsdichtheid, door reductie van de atomaire coördinatie bij oprekking van het contact. Omdat de susceptibiliteit van Pt erg dicht bij de Stoner limiet ligt, en Pt een hoge koppeling heeft, verwacht men dat Pt een overgang van bulk paramagnetisme naar spontaan magnetisatie in atomaire ketens zal laten zien. De aanwezigheid van sterke anomalieën in de differentiële geleiding rond het nul-spanning punt voor Pt atomaire ketens, is eerder toegeschreven aan zwakke gelokaliseerde magnetische momenten. We hebben de Pt atomaire ketens gekarakteriseerd door middel van differentiële geleiding en ruis metingen. De ruis metingen wijzen op de aanwezigheid van tenminste 4 – 6 spin kanalen in de atomaire contacten. De aanwezigheid van meer dan één (twee spin) kanalen is te verwachten voor overgangsmetalen, vanwege de deelname van d orbitalen in de geleiding. We hebben een sterke reductie in de ruis gezien bij uitrekking van het contact, en uiteindelijk een Fano factor samenvallend met de minimum ruis curve voor vier spin kanalen, waarbij een kanaal dubbel bezet is en perfect geleidt. De waargenomen wolk aan datapunten is duidelijk begrensd door deze curve. Dit suggereert de afwezigheid van sterke spin-gepolariseerde eigen kanalen in de geleiding. We stellen voor dat de geleiding wordt gedomineerd door zwak gepolariseerde kanalen, waarbij magnetisme mogelijk is beperkt tot kanalen die slecht geleiden.

In tegenstelling tot Pt, zijn Fe en Ni ferromagnetisch in de bulk, en atomaire contacten hebben gelokaliseerde momenten veroorzaakt door de aanwezigheid van gedeeltelijke gevulde d suborbitalen. De interactie van het lokale magnetische moment met de continuumtoestanden, veroorzaakt veel-deeltjes effecten met de gelokaliseerde niet-nul spin toestanden gekoppeld aan de zee van geleidingsselectronen. Voor een spin-1/2 moment in een niet-magnetisch metaal staat dit fenomeen bekend als het Kondo effect. De signatuur van het Kondo effect in de differentiële geleiding wordt gezien als een anomalie bij spanning nul. In experimenten door Calvo *et al.* werd de verwachte logaritmische afhankelijkheid van de geleiding bij nul-spanning gevonden bij lage temperatuur, wat er toe leidde dat de au-

teurs een Kondo interpretatie van de *zero-bias* anomalieën voorstelden, ondanks de sterke *exchange opsplitsing* voor deze metalen. We hebben de uittrekkingsafhankelijkheid van de differentiële geleiding en ruis voor zulke contacten gevolgd. Gebruik makende van dezelfde analyse vonden wij een Kondo temperatuur voor Fe en Ni atomaire contacten van 100K en 230K, respectievelijk, in overeenstemming met Calvo *et al.* De Kondo temperatuur van de contacten daalt bij het oprekken van de contacten. Als de contacten naar de bulk limiet worden geduwd, zien wij een splitsing van de Kondo resonantie. Wij wijten dit voorlopig aan een interactie tussen twee gelokaliseerde magnetische momenten op twee verschillende atomen in het ferromagnetische atomaire contact.

De ruis metingen voor de ferromagnetische contacten laten een sub Poissoniaans ruisniveau zien, met de aanwezigheid van overwegend meer dan twee kanalen (vier spin kanalen) die participeren in de geleiding. We vonden geen duidelijk bewijs voor sterk ontaarde geleidingskanalen onder de limiterende curve voor spin gedegenererde systemen, behalve voor twee contacten met ($G < 1G_0$), voor welke we slechts een lage nauwkeurigheid hebben. De Fano factor gemeten voor ferromagnetische atomaire contacten schaaft ruwweg lineair met de Kondo temperatuur en met zijn resonantie amplitude, met enige uitschieters. De waargenomen connectie tussen de Fano factor en de grootte van de anomalie ondersteunt het idee dat de anomalie afkomstig bij nul-spanning is van spin verstrooiing door gelokaliseerde magnetische momenten. Echter, of dit werkelijk Kondo verstrooiing is, zoals Calvo *et al.* voorstellen, kan niet met zekerheid gezegd worden op basis van onze data.

De studie van hagelruis op atomaire contacten geeft ons inzichten in elektron transport eigenschappen die niet verkregen kunnen worden uit simpele geleidingsmetingen. Toekomstige hoge spanning hagelruis experimenten op moleculaire systemen zouden details van de niet-evenwicht fonon bezetting en zijn interacties met de geleidingselektronen kunnen aantonen. De hoge frequentie ruis metingsopstelling is een goed opstelling om meer fysische verschijnselen in nanoschaal elektron transport aan het licht te brengen.

