

Pásztázó alagútmikroszkóp szimulációja első elvekből

Ph.D. Tézisfüzet

Mánci Gábor

Témavezető:

Dr. Palotás Krisztián



2020

Kutatási előzmények

A pásztázó alagútmikroszkópot (STM) az 1980-as években fejlesztették ki a kvantummechanikai alagút-effektusra alapozva. Segítségével elsőként sikerült atomi felbontású topográfákat készíteni (110) orientációjú felületekről és atomi lépcsőkről CaIrSn_4 és arany felületek esetén [1]. Ez a felfedezés forradalmasította az akkori felület mikroszkópiát, az eszköz megalkotói, Gerd Binnig és Heinrich Rohrer 1986-ban Nobel-díjban részesültek. Az azóta eltelt mintegy 35 évben az STM nagyban hozzájárult a nanotechnológia és nanotudomány fejlődéséhez és a mai napig aktívan használt eszköz az anyagtudomány számos ágában a legkülönfélébb felületek vizsgálatára. A legújabb alkalmazási területek között említhető a komplex spin struktúrák vizsgálata mágneses felületeken és vékonyrétegekben spin-polarizált STM segítségével [2, 3, 4], melyek energiahatékony és nagy információ-sűrűségű mágneses adattárolást tehetnek lehetővé, vagy a felületkémi vizsgálatok, melyek a molekuláris struktúrák feltérképezését [5], vagy akár katalitikus folyamatokban lezajzó kémia reakciók vizsgálatát teszik lehetővé [6, 7]. Ezekben a fizikai és kémiai alapkutatásokban az STM a mai napig elengedhetetlen kísérleti eszköz.

Ugyancsak rendkívül hasznos sajátossága az STM-nek, hogy nem csak a felületek vizsgálatára használható, hanem a felületi struktúrák manipulálására is alkalmas atomi pontossággal [8, 9, 10, 11]. Ez utóbbi tulajdonsága miatt a jövőbeli alkalmazások során is fontos eszköz lehet, különösen kvantum-számítógépek bizonyos osztályának tervezésénél.

Célkitűzések

Fontos kiemelni, hogy az STM nem egyszerűen a felület geometriai struktúráját térképezi fel. A felületről készített topográfiát a minta geometriai struktúrájának és a minta és a tű elektron-állapotsűrűségének konvolúciója közösen hozza létre. Ez, a minta-tű kölcsönhatásokkal közösen megnehezíti a kísérleti STM képek értelmezését, ezért rendkívül fontos az STM elméleti modellezése is, amely a PhD kutatásaim fő témája volt. Korábbi STM modellekből kiindulva, mint a Bardeen-módszer [12], a Chen-módszer [13], a Tersoff-Hamann modell [14, 15], vagy az atomi szuperpozíciós módszer [16], olyan új, kis számítás igényű elektron STM modelleket fejlesztése és implementálása volt a cél, amelyek első elvű elektronszerkezeti számításokra alapozva (például sűrűségfüggvény-elmélet) képesek atomi felbontású STM képek szimulációjára. Az új STM modelleket különféle felületi struktúrák szimulációjával és vizsgálatával terveztem validálni.

Tézispontok

Kutatásaim fő eredményei a következő tézispontokban foglalhatók össze:

1. Alapvetően hozzájárultam a pályafüggő 3D-WKB elektron alagút modell kifejlesztéséhez és implementálásához, amely rendkívül hatékonyan képes nagy felbontású STM és SP-STM képek szimulációjára, mivel a számításigény független a minta és a tú Brillouin-zónájának k -pont felbontásától. [P1]. A modell érvényességét a tú-minta távolság és az alagútfeszültség függvényében megfigyelhető korrugáció inverzió jelenségének vizsgálatával mutattam be a nem mágneses W(110) felületen [P1] és a mágneses Fe(110) felületen [P3]. A megfigyelhető STM kontraszt inverziót az alagutazásban részt vevő elektronállapotok térbeli irányultságával magyaráztam. Mágneses SP-STM esetben azt találtam, hogy az állapotok orientációján kívül a spin- és energiafüggő, pálya szimmetriák szerint felbontott projektált elektron állapotsűrűségek komplex összjátéka is felelős a korrugáció inverzióért. Mindkét vizsgált rendszer esetén jó egyezést találtam az új 3D-WKB modellel számolt STM képek és a Bardeen valamint Tersoff-Hamann modellek alapján számított STM képek között. [P1,P3].
2. Kifejlesztettem és a pályafüggő 3D-WKB modellbe implementáltam az aszimmetrikus tűk kezelését, amely így alkalmassá vált tetszőleges tű orientációkkal elkészített STM képek szimulációjára [P2]. A korrugáció inverzió jelenségére fókuszálva, tanulmányoztam a W(110) felületet számos tű orientáció mellett, feltártam és megmagyaráztam a korrugáció inverzió komplex tű-minta távolság, alagút feszültség és tű orientáció függését. Megmutattam, hogy – még ilyen egyszerű felület esetén is – a tű és minta relatív orientációja jelentős hatással van a korrugáció inverzióra és az STM képekre egyaránt. [P2]. Szintén tanulmányoztam a tű forgatások hatását grafit (HOPG) felületen. A tű-stabilitás kedvező feltételeire fókuszálva megmutattam, hogy az olyan lokális tű orientációk, amelyben főként a tű $d_{3z^2-r^2}$ állapotai dominálnak, a kialakuló STM képen csak a másodlagos kontraszt jelleget befolyásolják, 'csíkozott' mintázatot kialakítva, míg az elsődleges kontraszt jellemzők változatlanok maradnak [P4]. Másrészt, az olyan tű orientációk, melyek során az átmenetnél az $m \neq 0$ tű állapotok dominálnak, képesek az elsődleges jellemzőket is megváltoztatni és a háromszöggrácsból hatszöggrács kontraszt átmenetet létrehozni az STM képen [P4].
3. Bemutattam egy újszerű korrelációs analízis módszert, mellyel kvantitatíven összehasonlíthatóvá váltak különböző elméleti modellekkel számolt és kísérleti STM

képek [P5]. Az új módszert a HOPG mintán alkalmaztam különböző volfrám tűkkel kombinálva és részletes összehasonlítást végeztem a 3D-WKB és a Bardeen elméleti módszerek és kísérleti adatok között. Azt találtam, hogy a két elméleti módszer a kísérleti adatokkal összevetve számszerűleg ugyanolyan megbízható [P5]. Továbbá bemutattam egy statisztikai módszert, mellyel nagy számú szimulációkat elvégezve és kísérleti adatokkal összevetve információ nyerhető a kísérletben használt tű geometriájáról valamint a tű és minta relatív orientációjáról. Az eljárás alkalmazhatóságát a HOPG felületen mutattam be két különböző geometriájú volfrám tűvel kombinálva, mindegyik esetben közel 20000 különböző tű orientációval. Azt találtam, hogy a 'hegyes' tűmodellel szemben az egyszerűbb, 'tompá' tű-modell nagyobb alagútfeszültség és tű-orientáció tartományban ad jobb egyezést a kísérleti adatokkal [P5].

4. Kiterjesztettem Chen elektron alagutazásra vonatkozó derivált szabályát, hogy kombinálható legyen első elvekből számított elektronszerkezet adatokkal és az új, hatékony STM szimulációs modellt implementáltam a bSKAN kódba [P6]. A kiterjesztett modell alkalmas a különböző tű-minta átmenetek alagút mátrixelemeinek súlyozására akár egy tetszőleges energia független modell alapján, vagy akár a tű atomra projektált egy-elektron hullámfüggvények vagy lokális állapotsűrűségek alapján, energia függő módon. A modell megbízhatóságát két különböző felületen demonstráltam, ahol a kvantum interferencia effektusok jelentősek az alagutazás során: az egyik a nitrogénnal szennyezett grafén felület, a másik a mágneses Mn_2H komplex $Ag(111)$ felületen [P6]. Megmutattam, hogy a tű elektronszerkezete jelentősen befolyásolja a kialakuló STM képet, különösen az s és p_z tű állapotok között fellépő interferencia felelős a kontraszt változásokért mindkét vizsgált rendszerben, amely effektus nem figyelhető meg a széleskörűen alkalmazott Tersoff-Hamann modellt használva [P6]. A kiterjesztett Chen modell 25-ször gyorsabbnak bizonyult a Bardeen módszernél, továbbra is jó egyezést mutatva azazal, így egy olyan gyors és megbízható eszköz STM képek szimulációjára, amely figyelembe veszi a tű elektronszerkezete és lokális geometriája mellett annak tetszőleges orientációját is [P6].

Publikációs lista

A tézispontokhoz kapcsolódó publikációk

- [P1] K. Palotás, **G. Mándi**, L. Szunyogh, „Orbital-dependent electron tunneling within the atom superposition approach: Theory and application to W(110)” *Physical Review B* **86**, 235415/1-11 (2012)
- [P2] **G. Mándi**, N. Nagy, and K. Palotás, “Arbitrary tip orientation in STM simulations: 3D WKB theory and application to W(110)” *Journal of Physics: Condensed Matter* **25**, 445009/1-10 (2013)
- [P3] **G. Mándi** and K. Palotás, “STM contrast inversion of the Fe(110) surface” *Applied Surface Science* **304**, 65-72 (2014)
- [P4] **G. Mándi**, G. Teobaldi, and K. Palotás, “Contrast stability and “stripe” formation in Scanning tunneling Microscopy imaging of highly oriented pyrolytic graphite: The role of STM-tip orientations” *Journal of Physics: Condensed Matter* **26**, 485007/1-11 (2014)
- [P5] **G. Mándi**, G. Teobaldi, and K. Palotás, “What is the orientation of the tip in a scanning tunneling microscope?” *Progress in Surface Science* **90**, 223–238 (2015)
- [P6] **G. Mándi** and K. Palotás, “Chen’s derivative rule revisited: Role of tip-orbital interference in STM” *Physical Review B* **91**, 165406/1-12 (2015)

Egyéb publikációk

- [P7] K. Palotás, **G. Mándi**, and W. A. Hofer, “Three-dimensional Wentzel-Kramers-Brillouin approach for the simulation of scanning tunneling microscopy and spectroscopy” *Frontiers of Physics* **9**, 711-747 (2014)
- [P8] K. Palotás, **G. Mándi**, L. Szunyogh, “Enhancement of the spin transfer torque efficiency in magnetic STM junctions” *Physical Review B* **94**, 064434/1-13 (2016)

Hivatkozások

- [1] G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber, E. Weibel. Surface studies by scanning tunneling microscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 49:57, 1982.
- [2] R. Wiesendanger. Spin mapping at the nanoscale and atomic scale. *Rev. Mod. Phys.*, 81:1495, 2009.
- [3] K. von Bergmann, A. Kubetzka, O. Pietzsch, R. Wiesendanger. Interface-induced chiral domain walls, spin spirals and skyrmions revealed by spin-polarized scanning tunneling microscopy. *J. Phys.: Condens. Matter*, 26:394002, 2014.
- [4] R. Wiesendanger. Nanoscale magnetic skyrmions in metallic films and multilayers: A new twist for spintronics. *Nat. Rev. Mater.*, 1:16044, 2016.
- [5] K. S. Mali, N. Pearce, S. De Feyter, N. R. Champness. Frontiers of supramolecular chemistry at solid surfaces. *Chem. Soc. Rev.*, 46:2520–2542, 2017.
- [6] J. Wintterlin. Scanning tunneling microscopy studies of catalytic reactions. *Advances in Catalysis*, 45:131–206, 2000.
- [7] B. Hulsken, R. Van Hameren, J. W. Gerritsen, T. Khoury, P. Thordarson, M. J. Crossley, A. E. Rowan, R. J. M. Nolte, J. A. A. W. Elemans, S. Speller. Real-time single-molecule imaging of oxidation catalysis at a liquid–solid interface. *Nat. Nanotechnol.*, 2:285–289, 2007.
- [8] D. M. Eigler, E. K. Schweizer. Positioning single atoms with a scanning tunnelling microscope. *Nature*, 344:524–526, 1990.
- [9] M. F. Crommie, C. P. Lutz, D. M. Eigler. Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface. *Science*, 262:218–220, 1993.
- [10] H. Kim, A. Palacio-Morales, T. Posske, L. Rózsa, K. Palotás, L. Szunyogh, M. Thorwart, R. Wiesendanger. Toward tailoring Majorana bound states in artificially constructed magnetic atom chains on elemental superconductors. *Science Advances*, 4:eaar5251, 2018.
- [11] S. N. Kempkes, M. R. Slot, S. E. Freeney, S. J. M. Zevenhuizen, D. Vanmaekelbergh, I. Swart, C. M. Smith. Design and characterization of electrons in a fractal geometry. *Nature Physics*, 15:127–131, 2019.

- [12] J. Bardeen. Tunnelling from a many-particle point of view. *Phys. Rev. Lett.*, 6:57–59, 1961.
- [13] C. J. Chen. Tunneling matrix elements in three-dimensional space: The derivative rule and the sum rule. *Phys. Rev. B*, 42:8841–57, 1990.
- [14] J. Tersoff, D.R. Hamann. Theory and application for the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. Lett.*, 50:1998–2001, 1983.
- [15] J. Tersoff, D.R. Hamann. Theory of the scanning tunneling microscope. *Phys. Rev. B*, 31:805–13, 1985.
- [16] K. Palotás, W. A. Hofer, L. Szunyogh. Simulation of spin-polarized scanning tunneling microscopy on complex magnetic surfaces: Case of a Cr monolayer on Ag(111). *Phys. Rev. B*, 84:174428, 2011.