

FAKULTÄT FÜR MATHEMATIK UND PHYSIK

Fachrichtung Physik

DR. DANIEL URBAN

Stability, Symmetry Breaking,
and Scaling Properties of
Metallic Nanowires

Stabilität, Symmetriebrechung und Skalierungseigenschaften metallischer Nanodrähte

Durch die fortschreitende Miniaturisierung sowohl elektronischer als auch mechanischer Systeme in den letzten Jahrzehnten, wird ein detailliertes Verständnis der Eigenschaften solcher kleiner Systeme immer wichtiger. In den letzten Jahren sind sogenannte Nanodrähte, ultradünne Drähte aus Metall, deren Durchmesser im Nanometerbereich ($1\text{nm} = 10^{-9}\text{ m}$) liegen, zunehmend ins Zentrum aktueller Forschung gerückt. In Experimenten ist es mittlerweile möglich, stabile Drähte mit sehr geringen Querschnittsflächen, d. h. mit nur wenigen Atomen im Querschnitt, herzustellen (Abb. 1). Diese Tatsache an sich bedarf einer theoretischen

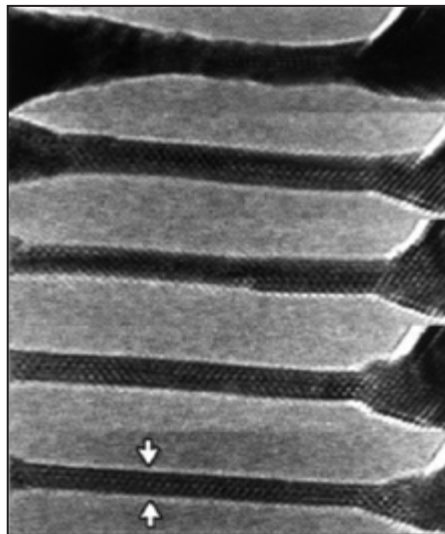


Abb. 1: Stabile Nanodrähte aus Gold, aufgenommen durch ein Elektronenmikroskop mit atomarer Auflösung. (aus 1)

Erklärung, denn klassisch betrachtet müssten solch dünne Drähte instabil sein und unter Einfluss der Ober-

Geboren am 3. Mai 1975 in Berlin. 1994 Abitur am Hochrhein-gymnasium in Waldshut. 1994 bis 2002 Diplomstudium der Physik an der Albert-Ludwigs-Universität Freiburg. 1997 bis 1998 Studienaufenthalt an der Université Paris Sud XI, Orsay, Frankreich und Stipendium der Dr. Jürgen Ulderup Stiftung. 1997 bis 2002 Stipendium der Studienstiftung des Deutschen Volkes. 2002 bis 2006 Promotion an der Albert-Ludwigs-Universität Freiburg mit „summa cum laude“ und seit 2002 wissenschaftlicher Angestellter. 2003 Gustav-Mie-Preis der Universität Freiburg. 2004 und 2005 (eingeladen) Forschungsaufenthalte an der University of Arizona, Tucson, USA.

flächen-spannung zu Tröpfchen zerfallen (Rayleigh-Instabilität, Abb. 2). Die Doktorarbeit beschäftigt sich mit der Modellierung metallischer Nanodrähte im Rahmen des sogenannten Nanoscale free electron model (NFEM). In diesem Modell wird die atomare Struktur des Drahtes durch

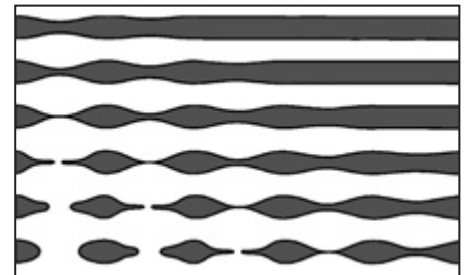


Abb. 2: Schematische Darstellung der Tröpfchenbildung einer klassischen Flüssigkeit unter Einfluss ihrer Oberflächenspannung (Rayleigh-Instabilität). Ein solcher Zerfall wäre ohne stabilisierende elektronische Schalen-effekte auch für Nanodrähte zu erwarten.

eine homogene positive Ladungsverteilung ersetzt und die Leitungselektronen werden als freies Elektronengas behandelt, welches von der Oberfläche des Drahtes eingeschlossen wird. Diese konzeptionell einfache Methode hat sich bereits in der Vergangenheit bewährt und erlaubt die Behandlung von mechanischen und elektrischen Eigenschaften innerhalb eines Modells auf einer einheitlichen Grundlage.

Schwerpunkte der Arbeit sind eine quantenmechanische Stabilitätsanalyse metallischer Nanodrähte verschiedener Geometrie, Untersuchungen zum Zusammenhang zwischen Symmetriebrechung und Stabilität (Jahn-Teller-Effekt) sowie die Entwicklung eines tieferen Verständnisses der gefundenen Peierls-Instabilität, die zu einer periodischen Verformung des Drahtes und der Ausbildung einer elektronischen Energielücke führen kann. Eine interessante Fragestellung ist es, bei gegebenen Randbedingungen jene Geometrien zu berechnen, für welche die Energie ein Minimum annimmt. Diese sind dann die möglichen stabilen Realisierungen eines Nanodrahtes, da jede weitere Verformung zusätzliche Energie kosten würde. Die entscheidende energetische Größe zur Untersuchung der Stabilität eines Nanodrahtes ist dabei dessen großkanonisches Potential, aufgefasst als Funktion der Drahtgeometrie. Das Verhalten des großkanonischen Potentials bei

Deformationen einer gegebenen Ausgangsgeometrie bestimmt dann darüber, ob ein entsprechender Draht stabil ist oder ob sich zufällige Störungen bestimmter Wellenlänge verstärken würden, da sie energetisch vorteilhaft sind. Die Schwierigkeit der Aufgabe ist nun, dass im Prinzip das großkanonische Potential für jede mögliche Geometrie berechnet werden müsste, um dann anschließend nach energetischen Minima suchen zu können. Ein erster Schritt zur Lösung dieses Problems besteht darin, zunächst die Stabilität einiger vorgegebener Geometrien gegenüber Deformationen zu betrachten. Eine umfassende quantenmechanische Stabilitätsanalyse zylindrischer Drähte im Rahmen des Streumatrixformalismus, die insbesondere das Koppeln zwischen den einzelnen Transportkanälen und die endliche Länge des Systems berücksichtigt, wurde durchgeführt. Es zeigte sich, dass die aufgrund der Oberflächenspannung zu erwartende Rayleigh-Instabilität für bestimmte Drahtradien durch elektronische Schaleneffekte unterdrückt wird. Die elektronische Schalenstruktur ist ein reiner Quanteneffekt und eine direkte Folge der lateralen Einschnürung des Elektronengases (vergleichbar mit den aus der Atomphysik bekannten Schaleneffekten, die z. B. zur chemischen Inertheit der Edelgase führen). Bei zunehmender Temperatur verlieren diese Quanteneffekte ihren Einfluss und man erhält das klassische Ergebnis (d. h. die Rayleigh-Instabili-

tät führt zum Zerfall des Drahtes). Außerdem ergab sich, dass für Deformationen kurzer Wellenlänge eine Instabilität vom Peierls-Typ die maximal mögliche Länge eines stabilen Nanodrahtes begrenzt. Die Analyse zeigte, dass ein Wechselspiel zwischen Rayleigh- und Peierls-Instabilität auf der einen Seite und stabilisierenden elektronischen Schaleneffekten auf der anderen Seite darüber entscheidet, ob eine bestimmte Geometrie letztendlich stabil ist. Die Abhängigkeit der Stabilitätskriterien von Drahtlänge und Temperatur wurden genau untersucht und das beachtenswerte Ergebnis sagt Stabilität metallischer Nanodrähte mit Längen bis hin zu 100 nm bei Raumtemperatur voraus.

Diese Ergebnisse waren im Folgenden Ausgangspunkt für eine eingehende Untersuchung der o. g. Peierls-Instabilität und insbesondere der Wechselwirkungen zwischen Elektronen und Oberflächendeformationen (Phononen) des Nanodrahtes. Deren Kopplung führt in metallischen Nanodrähten ab einer kritischen Drahtlänge und einer gewissen kritischen Temperatur zu dem Einsetzen eines Ladungsdichtewellenübergangs, welcher durch die Peierls-Instabilität im höchsten besetzten Leitungs kanal getrieben wird. Ausgehend von den gewonnenen Erkenntnissen konnte eine Skalierungstheorie der Peierls-Instabilität in der Nähe des quanten-

kritischen Punktes aufgestellt werden, die ein besseres Verständnis ihrer Temperatur- und Drahtlängenabhängigkeit erlaubt.

Bekannterweise spielt die Symmetrie des betrachteten Systems in vielen Bereichen der Physik eine entscheidende Rolle. Um den Zusammenhang zwischen Symmetriebrechung und der Stabilität metallischer Nanodrähte aufzudecken, wurden neben der Analyse zylindrischer Geometrien auch Nanodrähte mit einer elliptischen Querschnittsfläche unter-

sucht. Es stellte sich heraus, dass einige dieser stark deformierten Drähte ebenfalls stabile Realisationen eines Nanodrahtes darstellen. Zusammen mit den oben beschriebenen stabilen zylindrischen Konfigurationen lässt sich eine geschlossene Erklärung der entsprechenden experimentellen Daten geben. Für Alkalimetall-, Gold- und Aluminiumnanodrähte findet sich experimentell genau die theoretisch vorhergesagte Sequenz besonders stabiler Geometrien. Dabei zeigt sich, dass Drähte mit elliptischer Querschnittsfläche

ein Viertel der experimentell beobachteten stabilen Drähte ausmachen (Abb. 3).

Drähte mit zylindrischer oder elliptischer Querschnittsfläche haben in gewisser Weise eine besondere Geometrie, da für sie eine exakte Lösung angegeben werden kann (sie sind „integrable“ Strukturen). Um zu untersuchen, ob Integrabilität für sich genommen bereits ein Stabilitätskriterium ist und um die Stabilitätsanalyse möglichst zu verallgemeinern, wurden auch Drähte beliebiger Querschnittsfläche betrachtet. Dabei wurde eine Multipolentwicklung der Drahtgeometrie durchgeführt. Zunächst gelang es, einen rigorosen Beweis der außerordentlichen Stabilität der magischen Sequenz zylindrischer Radien bezüglich beliebiger Deformationen zu führen. Dies erklärte gleichzeitig die herausragende Bedeutung der Axialsymmetrie für die Stabilisierung dreidimensionaler Drähte. Weiterhin wurden Quadrupoldrähte untersucht, wobei sich zeigte, dass es keine generelle Bevorzugung der integrierbaren elliptischen Geometrie gegenüber der nicht-integrierbaren Quadrupolgeometrie gibt. Querschnittsflächen höherer Multipolsymmetrie sind dahingegen kaum relevant, da die Oberflächenspannung mit zunehmender Drahtoberfläche immer mehr an Relevanz gewinnt und folglich solche deformierten Drähte zunehmend energetisch unvorteilhaft (d. h. instabil) werden.

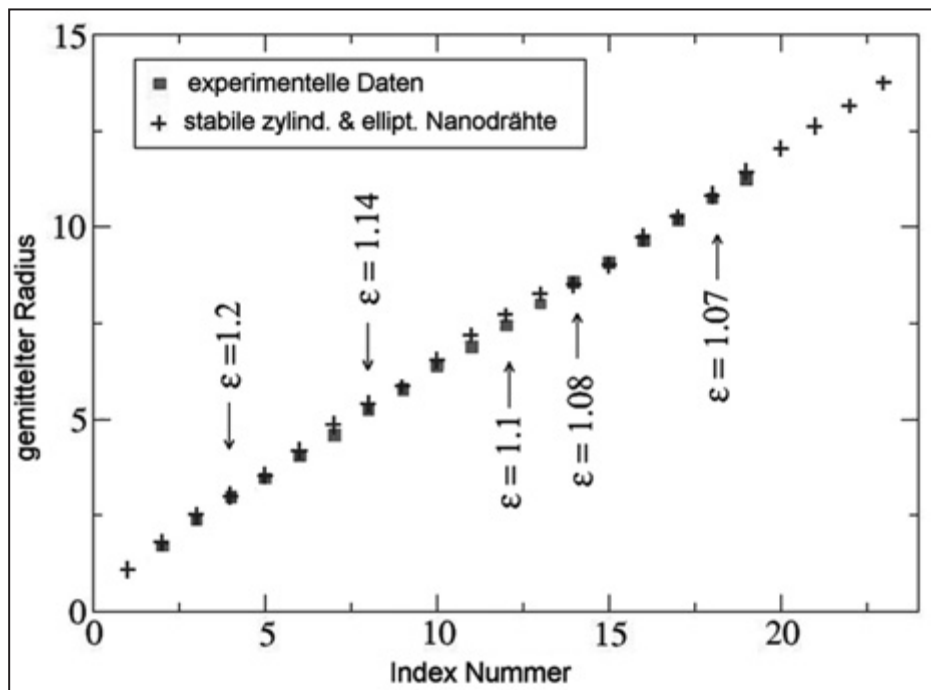


Abb. 3: Vergleich zwischen den experimentell gefundenen Natrium Nanodrähten (aus 2) und der theoretischen Vorhersage im Rahmen des NFEM: Es zeigt sich eine hervorragende Übereinstimmung. Drähte mit elliptischer Querschnittsfläche sind durch Angabe ihres Halbachsenverhältnisses ϵ gekennzeichnet. Die vertikale Achse ist proportional zu dem gemittelten Drahtradius.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass diese Arbeit Licht auf die komplexe und faszinierende Physik metallischer Nanodrähte werfen konnte und zu einem besseren Verständnis ihrer Stabilität beigetragen hat, welche für einen möglichen Einsatz von Nanodrähten in nanoelektronischen Schaltkreisen von großer Bedeutung ist.

Literaturangaben:

- [1] Oshima, Kondo, Takayanagi. Journal of Electron Microscopy 52, 49-55 (2003).
 - [2] Yanson, Yanson, van Ruitenbeek. Nature 400, 144 (1999).
- Einen guten Überblick über das Forschungsgebiet der metallischen Nanodrähte, sowohl von der experimentellen als auch von der theoretischen Seite her, gibt der Übersichtsartikel:
- [3] Agraït, Levy Yeyati, van Ruitenbeek. Quantum properties of atomicsized conductors. Phys. Rep. 377, p.81-380 (2003).

Ausgewählte Veröffentlichungen:

- [1] Urban, Grabert. Interplay of Rayleigh and Peierls Instabilities in Metallic Nanowires. Phys. Rev. Lett. 91, 256803 (2003).
- [2] Urban, Bürki, Yanson, Yanson, Stafford, van Ruitenbeek, Grabert. Electronic Shell Effects and the Stability of Alkali Nanowires. Solid State Communications 131, 609 (2004).
- [3] Urban, Bürki, Zhang, Stafford, Grabert. Jahn-Teller-Distortions and the Supershell Effect in Metal Nanowires. Phys. Rev. Lett. 93, 186403 (2004).
- [4] Urban, Bürki, Stafford, Grabert. Stability and Symmetry Breaking in Metal Nanowires: The Nanoscale Free-Electron Model. Phys. Rev. B 74, 245414 (2006).
- [5] Urban, Stafford, Grabert. Scaling Theory of the Peierls-CDW in Metal Nanowires. Phys. Rev. B 75, 205428 (2007).
- [6] Mares, Urban, Bürki, Grabert, Stafford, van Ruitenbeek. Electronic and Atomic Shell Structure in Aluminum Nanowires. Nanotechnology 18, 265403 (2007).

Danksagung:

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zu dieser Arbeit beigetragen haben. Besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. H. Grabert für die motivierende Unterstützung meiner Arbeit und die Möglichkeit mit ihm und in seiner Arbeitsgruppe zu arbeiten, sowie für seine ständige Diskussionsbereitschaft. Großer Dank gilt auch Dr. J. Bürki und Prof. Dr. C. A. Stafford von der University of Arizona in Tucson, USA, für eine intensive und erfolgreiche Zusammenarbeit und einen regen Austausch von Ideen. Herrn Prof. J. M. van Ruitenbeek danke ich für interessante Diskussionen und für die Einsicht in seine experimentellen Daten. Ganz besonders danke ich meiner Frau Annika für ihre Unterstützung, Geduld und Liebe.