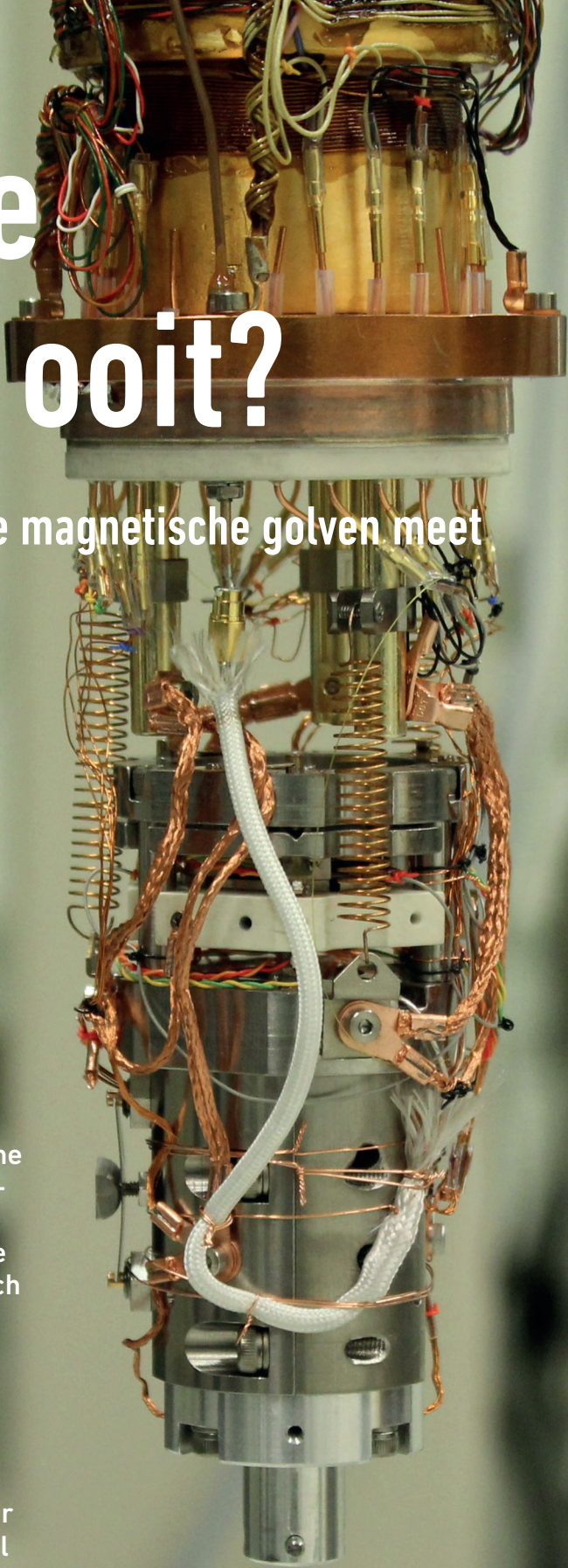


De kleinste muizenval ooit?

Sensor van maar elf atomen die magnetische golven meet

Probeer ze maar eens te vangen, magnetische golven die binnen tien picoseconden verdwijnen: in die tijd legt licht maar 3 mm af! Door slim gebruik te maken van een muizenval die zich half klassiek en half quantummechanisch gedraagt, is ons dat gelukt. En dat met maar elf atomen op een rijtje. Zo'n muizenval, gebouwd in een *scanning tunneling microscope*, kan worden gebruikt om het gedrag van die magnetische golven te bestuderen: hoe verplaatsen ze zich, hoe snel doen ze dat en, bovendien, komt hun theoretische levensduur overeen met hun échte levensduur? Allemaal vragen die met deze muizenval te beantwoorden zijn.



Scanning tunneling microscope

Het meetsysteem dat we gebruiken is een (ultrahoogvacuüm-cryogene) scanning tunneling microscope (STM), zoals weergegeven in figuur 1. Hierbij hebben we een op atomaire schaal scherpe naald boven een oppervlak hangen op een afstand van een paar ångström ($1 \text{ \AA} = 0,1 \text{ nm}$). Op deze afstand, vergelijkbaar met de grootte van een enkel atoom, kunnen elektronen tunnelen door het vacuüm tussen de tip en het oppervlak. Door een spanning aan te leggen tussen beide ontstaat er een nettoostroom die exponentieel afhangt van de onderlinge afstand. Dit biedt ons een ongekennde resolutie wat betreft de hoogte van (atomen op) het oppervlak. Door de tip vervolgens over het oppervlak te bewegen met een feedbacksysteem dat stroom constant houdt, kan men heel makkelijk een 3D-visualisatie maken van dit oppervlak, zoals afgebeeld in figuur 1. In 1986 is hiervoor de Nobelprijs voor de Natuurkunde uitgereikt aan Gerd Binnig en Heinrich Rohrer [1].

Met zo'n tip kunnen we niet alleen de atomen zien, maar we kunnen ze zelfs oppakken en neerleggen, om zo atomaire structuren te bouwen. In ons experiment is gekozen voor een substraat van Cu_3Au (koper-goud), met eilanden van Cu_2N (kopernitride) waarop individuele Fe-atomen zitten.

In figuur 1 lijkt het Cu_2N -eiland lager dan de Cu_3Au waarop dit eiland ligt. Dit komt doordat dit een isolator is: het laat niet zo makkelijk elektronen door en dus moet de tip dichterbij komen om dezelfde stroom te meten. Maar juist dankzij deze isolator kunnen we de Fe-atomen beter los van het onderliggende substraat beschouwen. In de figuur is ook een keten van 3-8-3-Fe-atomen te zien: dit is zowel onze muizenval (8-3) als de keten (3) waarvan we de magnetische golven willen bestuderen.

Spingolven

Magnetische golven dus. Hoe zijn die anders dan elektromagnetische golven? De naam zegt het al: elektrische velden spelen hierbij geen rol. Een elektromagnetische golf kennen we in de vorm van licht: de golflengte bepaalt de kleur. Dat zijn golven die zich in materialen, maar ook in het vacuüm kunnen voortplanten. Ze hebben dus geen medium nodig. De magnetische golven waar het in dit geval

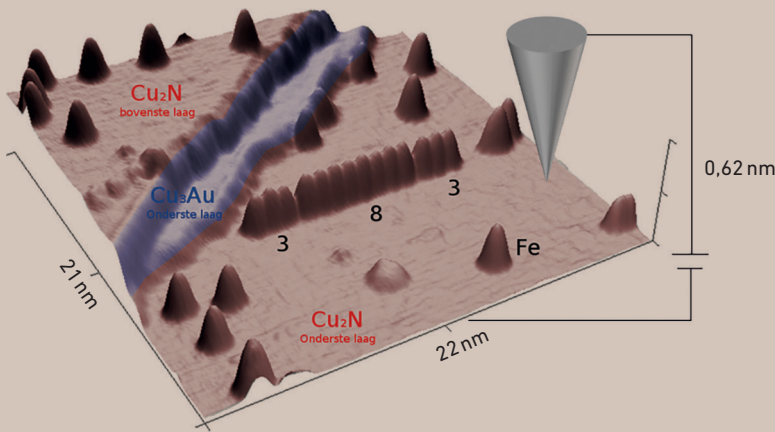
om gaat hebben wel een medium nodig: atomen met spin. Dat houdt in dat ieder atoom zelf een klein magneetje is. Aangezien een ijzeratoom vier ongepaarde elektronen (in de 3D-schil) heeft, is het (volgens Hund's regels) een $S = 2$ deeltje. Dat is dus zijn spin. Door de manier waarop het ijzeratoom zich in het CuN-rooster bevindt, de anisotropie, kunnen we het verhaal voor nu versimpelen door dit te zien als een deeltje met twee toestanden: $+2$ en -2 . Een magnetisch veld van 1 tesla (vergelijkbaar met dat van een MRI-scanner) zorgt daarna voor een Zeemansplitsing, zodat $S_z = +2$ de laagste energie heeft: hierbij staat het atomaire magneetje parallel aan het veld. Maar goed, dit is voor één atoom, en we hebben een rij van atomen. In dat geval krijgen we 2^n toestanden, waar n het aantal atomen is. Behalve atoomspecifieke energieën, is er ook een wisselwerking tussen naburige atomen in een keten. Deze wisselwerking is sterker dan de Zeemansplitsing en forceert naburige atomen binnen een keten in tegenovergestelde richtingen te staan; zie figuur 2. Dit noemen we antiferromagnetisme. Ook deze wisselwerking is een gevolg van hoe het ijzeratoom in het CuN-rooster zit. Daarnaast is er nog een wisselwerking tussen ketens; deze begint juist gelijke richting: ferromagnetisme. Wel is deze koppeling zwakker dan die binnen een keten. De Zeemansplitsing zit qua energie precies tussen deze twee koppelingsenergieën.

Muizenval

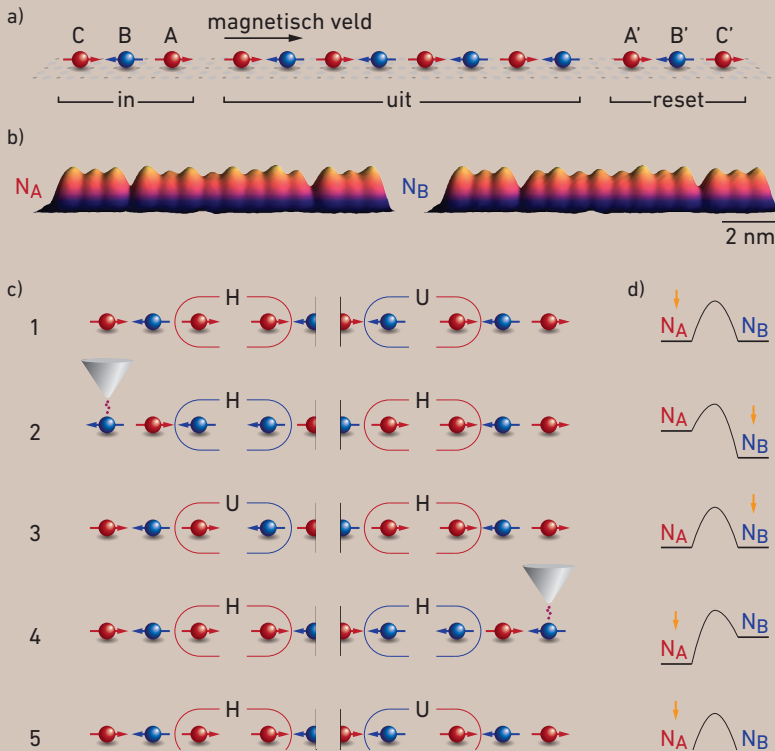
Met deze ingrediënten – de Zeemansplitsing, de anisotropie en wisselwerking tussen naburige atomen – kunnen we de muizenval (sensor) beschrijven. Dit doen we aan de hand van figuur 2. In figuur 2a is te zien dat het rechteratoom van de inputketen en het linkeratoom van de outputketen parallel staan: dit is energetisch voordelig en dus is die koppeling *happy*. Aan de andere kant is dit niet het geval: het laatste atoom van de output heeft $S_z = -2$, terwijl atoom A' van de reset $S_z = +2$ heeft. Hier is de koppeling dus *unhappy*. Vanwege de Zeemansplitsing zal een keten van 3 zich het liefst in de $[+2, -2, +2]$ -toestand bevinden, zodat de meerderheid parallel aan het veld is. Bij een keten van 8, omdat deze even is, zullen er twee toestanden zijn met gelijke energie: $N_A = [+2, -2, \dots, +2, -2]$ en



Robbie Elberse studeerde technische natuurkunde aan de TU Delft. Na zijn masterproject bij Sander Otte groeide hij daar door tot promovendus. Hij doet onderzoek naar spingolven op atomaire ketens. R.J.G.Elbertse@tudelft.nl



Figuur 1: Een metalen tip hangt boven een oppervlak met een elektrische spanning daartussen, waardoor elektronen tunnelen tussen de tip en het oppervlak. Hierdoor kan de structuur van het oppervlak gemeten worden met atomaire precisie. In het plaatje zijn te zien: individuele Fe-atomen, Cu_2N -eilanden, het Cu_3Au -substraat en een keten van 3-8-3-Fe-atomen.



Figuur 2. a) Een schematisch overzicht van de 3-8-3-structuur, bestaande uit een input (lengte 3), output (lengte 8) en reset (lengte 3). Atomen in de input en reset zijn alfabetisch gelabeld naar buiten. Kleuren rood en blauw stellen de toestanden voor van voornamelijk $S_z = +2$ en $S_z = -2$, respectievelijk. b) Zijaanzicht van een 3-8-3-structuur met de twee toestanden N_A en N_B van de output. c) Versimpelde operatiecyclus in vijf stappen; zie tekst voor meer uitleg. Energetisch voordelige koppelingen zijn aangegeven met een H (happy), onvoordelige met een U (unhappy). d) Versimpeld energiediagram waarin N_A en N_B in de vijf toestanden van (c) beschreven worden. De pijl geeft de toestand van de output aan.

$N_B = [-2, +2, \dots, -2, +2]$. In beide gevallen staan vier atomen parallel en vier atomen antiparallel met het externe veld. Een zijaanzicht van een STM-meting van de 3-8-3 is te zien in figuur 2b, waar de 8 in beide toestanden te zien is. Hierin lijken de atomen groter als $S_z = +2$, en kleiner als $S_z = -2$. In figuur 2c is de werking van de sensor uitgelegd: (1) In de beginsituatie is de 8 in toestand N_A , waardoor de koppeling naar de input happy is en de koppeling naar de reset unhappy. (2) Met de tip brengen we de input in een aangeslagen toestand: een toestand met meer energie. In de volgende paragraaf wordt uitgelegd hoe dat werkt. De eerste aangeslagen toestand is $[-2, +2, -2]$: de minderheid parallel met het veld. Doordat de input in de aangeslagen toestand verkeert, merkt de 8 een unhappy koppeling aan beide kanten, waardoor de 8 liever naar toestand N_B gaat om zo zijn energie te minimaliseren (zie ook figuur 2d). (3) We halen de input weer terug naar de grondtoestand. We zijn nu in de situatie beland waarin de 8 is veranderd van N_A naar N_B . (4) Door hetzelfde te doen aan de resetkant, kunnen we weer terug naar (5) de beginsituatie.

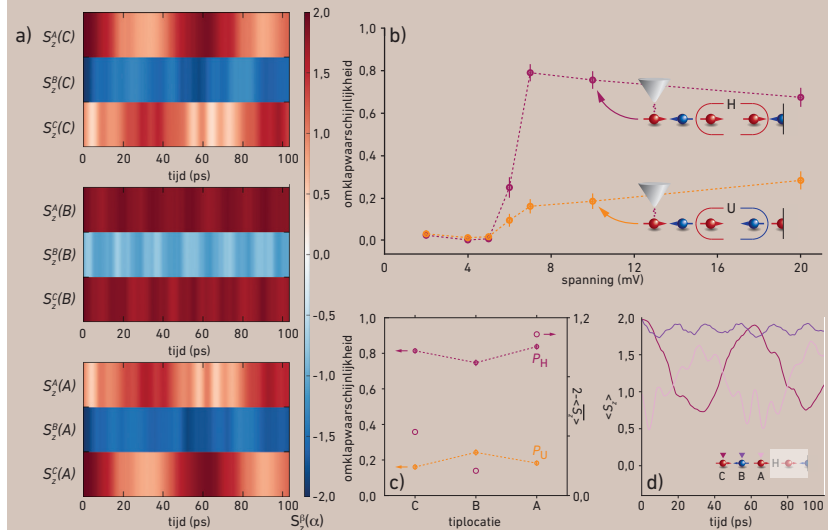
Aangeslagen toestand

Dus hoe brengen we de input in de aangeslagen toestand? Daarvoor gaan we toch weer kijken naar de atomaire toestanden ($-1, 0$ en $+1$). Voor het losse atoom is bekend dat je ongeveer 4 meV nodig hebt om deze van $S_z = +2$ naar $S_z = +1$ te brengen [2] (merk op dat, hoewel $S_z = -2$ minder energie vergt, deze transitie verboden is omdat een elektron maar een maximale verandering $\Delta s = \pm 1$ kan teweegbrengen). Voor de keten (vanwege de koppelingsenergie tussen naburige atomen) is de benodigde energie ongeveer 7 meV. Als een atoom eenmaal in zo'n aangeslagen toestand zit, zal de toestand delocaliseren: de excitatie zal zich verspreiden over de keten. Deze verspreiding van de excitatie is niet alleen een verspreiding van de energie over de keten, maar ook van spinverandering. Dit is te zien in de simulaties van figuur 3a. Hierin is, afhankelijk van waar de excitatie begint, de spin van de drie atomen

geplot als functie van tijd. Elk van de drie blokken is één simulatie waarin een van de drie atomen begint met een excitatie. In het bovenste blok begint deze op atoom C (derde regel). In de daaropvolgende blokken begint de excitatie op atoom B (tweede regel) en atoom A (bovenste regel), respectievelijk. Zo is te zien hoe de spinexcitatie heen en weer door de keten beweegt. Dit is de spingolf, het magnon of de magnetische golf (in deze context allemaal hetzelfde). Deze spingolf zorgt er effectief voor dat de spintoestand van atoom A lager is dan wanneer er helemaal geen spingolf zou zijn; dit is voldoende voor de sensor om dit te detecteren. Merk op dat, hoewel in de vorige paragraaf werd uitgelegd dat de keten van drie atomen een volledige inversie van $[+2, -2, +2]$ naar $[-2, +2, -2]$ maakt, dit enkel ter illustratie was van hoe de muizenval werkt. In werkelijkheid doorgaat de keten een heel scala aan toestanden tijdens de beweging van de spingolf. Desalniettemin is het effect hetzelfde: atoom A bevindt zich (tijdelijk) in een lagere spintoestand. Hoeveel lager deze spintoestand van atoom A is, gemiddeld over de tijd, kunnen we vinden aan de hand van hoe vaak de sensor omklapt van N_A naar N_B .

Simulaties

Wetende dat de spingolven alleen ontstaan als de elektronen zo'n 7 meV met zich meedragen, kunnen we uit de metingen van figuur 3b halen dat onze sensor werkt zoals bedoeld! Hierin wordt de *switching probability* (waarschijnlijkheid voor de 8 om van N_A naar N_B te switchen of vice versa) als functie van elektronenergie weergegeven. We hebben de waarschijnlijkheid gemeten door honderden keren de inputketen aan te slaan en te controleren of de outputketen omgeklapt is. De outputketen blijft namelijk een lange tijd in omgeklapte toestand, terwijl de inputketen vrijwel direct terug is in zijn grondtoestand. Het gaat dus om elektronen die van de tip naar atoom C gaan, waardoor atoom C aanslaat, en waardoor via een spingolf atoom A in S_z -waarde daalt. Daardoor wordt de koppeling unhap-



Figuur 3. a) Computersimulaties van de tijdevolutie van spinexcitatie in de keten. Elk blok stelt een andere simulatie voor, waarin een excitatie start op een ander atoom. Van boven naar beneden beginnen de excitaties op atoom C, B of A (zie figuur 2). Binnen elk blok wordt de spintoestand per atoom (rij) weergegeven aan de hand van een kleurcode in de volgorde A, B, C, van boven naar beneden. b) Metingen van de omklapwaarschijnlijkheid als functie van de elektrische spanning. Hierbij is H vanuit een happy toestand ($N_A \rightarrow N_B$) en U vanuit een unhappy toestand ($N_B \rightarrow N_A$). c) Gesloten cirkels, linker as: metingen van de kans op omslaan als functie van het aangeslagen atoom (na een 10 mV puls). Open cirkels (rechter as) geven de gemiddelde afwijking van $S_z = 2$ van atoom A tijdens de eerste 20 ps na het aanslaan van een atoom volgens de simulaties in (d). d) Computersimulaties van de tijdevolutie van spintoestand. De kleuren geven voor verschillende aangeslagen atomen, de spintoestand van atoom A aan. Dit komt overeen met de bovenste regel van elke blok van (a).

pier, met als uiteindelijk effect dat de keten van 8 omklapt. Zoals verwacht meten we alleen een grote switching probability zodra de elektronen meer dan 7 meV hebben en meten we dat de kans vanuit happy ($N_A \rightarrow N_B$) veel groter is dan vanuit unhappy ($N_B \rightarrow N_A$) – in dat laatste geval zou je 8 alleen maar happier maken. Top, het zou dus moeten werken. Kunnen we hier dan ook de levensduur van die spingolven bepalen? Ja, dat kunnen we! In figuur 3d is de bovenste regel van de drie blokken uit figuur 3a te zien: de spin van atoom A na een excitatie op een van de drie inputatomen. Door de gemiddelde afwijking van de grondtoestand te nemen over de eerste 20 ps (95% van alle excitaties zijn dan vervallen door elektronen uit het Cu_3Au), komen we op een verwachte efficiëntie. Dit zijn de open cirkels in figuur 3c. De gesloten cirkels zijn metingen van de omklapwaarschijnlijkheid waarbij een excitatie op de

verschillende atomen begint. Deze komen kwalitatief goed overeen: hoog-laag-hoog voor atomen A-B-C. Als we in de simulaties een kortere of langere tijdsduur aannemen, komt dit niet meer goed overeen. Tevens komt deze waarde van zo'n 10 ps overeen met de literatuur. Ook voor een keten van vijf atomen komen de simulaties goed overeen met zowel de metingen als de literatuurwaarde voor de levensduur (voor meer informatie, zie [3]). Met deze sensor hebben onderzoekers nieuw gereedschap voor het bestuderen van magnetische golven in atomaire structuren.

REFERENTIES

- 1 G. Binnig, Nobel Lecture, Nobelprize.org, 22 november (2020).
- 2 C.F. Hirjibehedin et al., Large magnetic anisotropy of a single atomic spin embedded in a surface molecular network, *Science* **317**, 1199-1203 (2007).
- 3 R.J.G. Elbertse et al., Remote detection and recording of atomic-scale spin dynamics, *Communications Physics* **3**, 94 (2020).