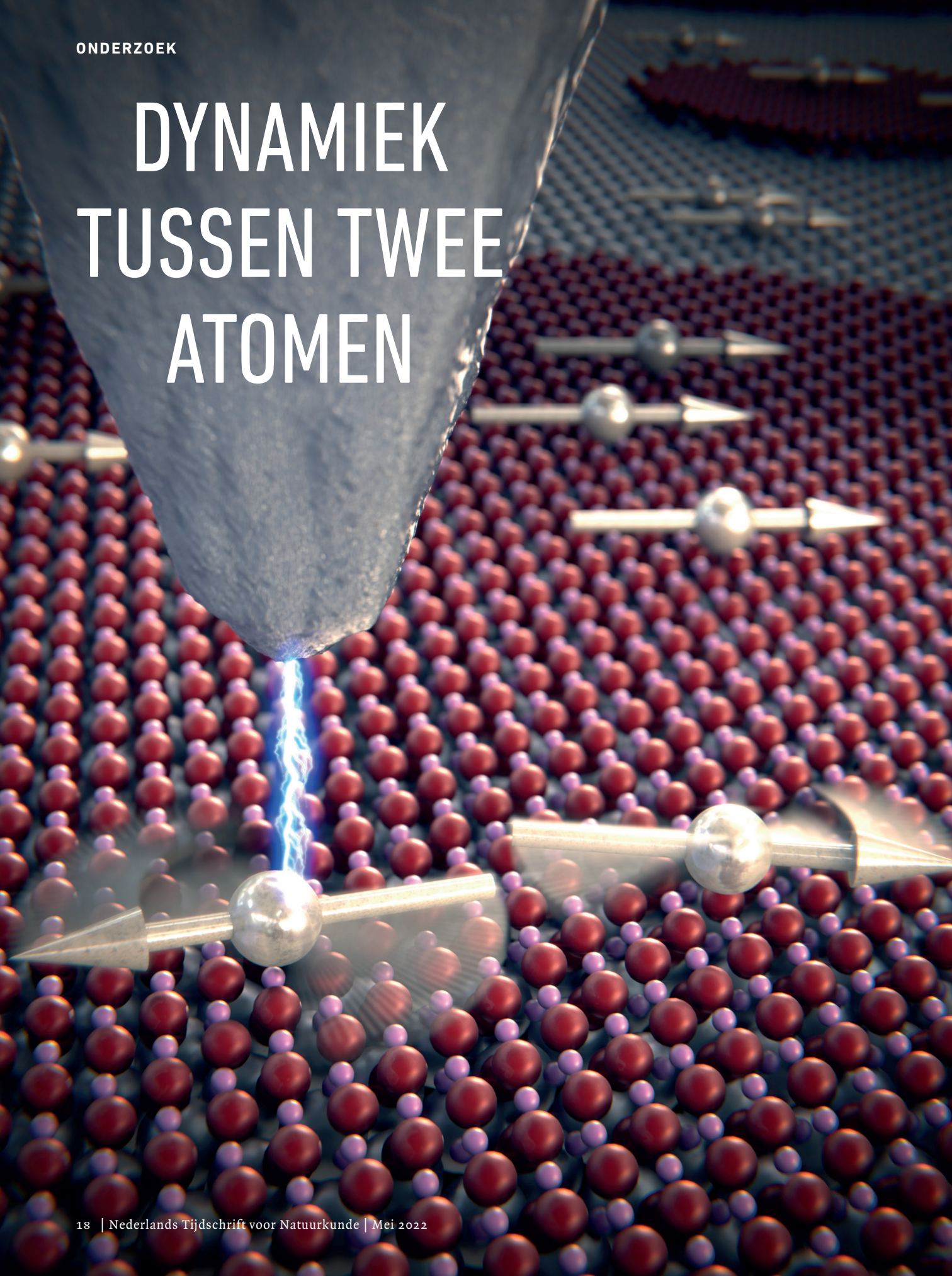


ONDERZOEK

DYNAMIEK TUSSEN TWEE ATOMEN



Hoe communiceert een atoom met zijn buurman? In Delft brachten we twee individuele atomen met elkaar in contact en legden we de magnetische wisselwerking vast door middel van een tunnelmicroscop.

Je kent de plastic kristalmodellen uit het scheikundelokaal vast nog wel: balletjes (atomen) die met dunne stokjes (bindingen) aan elkaar zitten en zo een rooster vormen. De atomen in zo'n model lijken rotsvaste, statische bouwstenen maar in werkelijkheid beweegt er constant van alles in een kristal. Je kunt daarbij denken aan elektronen die door het kristal bewegen of aan trillingen in het atoomrooster, maar ook de kleine magneetmomenten – spins – van de individuele atomen voelen elkaar en kunnen draaien. De interactie tussen deze atomaire magneetmomenten is interessant om een aantal redenen. Ten eerste liggen zulke interacties waarschijnlijk ten grondslag aan de eigenschappen van bepaalde exotische materialen. Ten tweede kunnen deze interacties tussen spins ook slim gebruikt worden voor de overdracht van informatie. Zo worden in spintronica zeer energie-efficiënte spingolven gebruikt voor de overdracht van informatie in plaats van elektrische stroom en zijn er verschillende qubits (bouwstenen van de quantumcomputer) gerealiseerd op basis van spins. In dit onderzoek hebben we een tunnelmicroscop gebruikt om twee individuele atomen te isoleren en aan elkaar te koppelen. Door een van de twee spins te exciteren en vervolgens uit te lezen konden we de elementaire spin-spincommunicatie tussen de twee atomen op nanoseconde-tijdschaal bestuderen. We hopen zo meer te weten te komen over hoe spinexcitatie zich beweegt door materialen.

Tunnelmicroscop

De uitvinding van de tunnelmicroscop (afgekort STM voor *scanning tunneling microscope*) in 1981 bracht een revolutie teweeg in het natuurkundig onderzoek naar materialen: omdat de microscoop geen gebruikmaakt van licht is het mogelijk de diffractielimiet te overwinnen en een oppervlak met subatomaire resolutie te bestuderen [1]. De microscoop bestaat

uit een naald met slechts één enkel atoom aan het uiteinde. Deze naald wordt zo dicht bij een oppervlak gebracht dat er een meetbare stroom ontstaat van elektronen die door de vacuümbarière tussen naald en oppervlak tunnelen als er een spanning over wordt aangelegd. Aangezien deze tunnelstroom zeer gevoelig is voor de afstand tussen naald en oppervlak kan er een hoogtekaart gemaakt worden door met de naald over het oppervlak te scannen. Al snel kwam men er achter dat er met de STM meer gedaan kon worden dan alleen afbeeldingen van een oppervlak maken. Met de naald konden sommige atomen zelfs worden opgepakt en ergens anders weer worden neergelegd, waarmee structuren op nanoschaal atoom voor atoom kunnen worden gebouwd [2]. Door specifiek magnetische atomen op te pakken met de naald wordt de tunnelstroom zelfs gevoelig voor de magnetisatie van het oppervlak. Door enkele atomen op een dunne laag elektrisch isolerend materiaal te leggen en de preparaten af te koelen tot enkele Kelvins kan magnetisme op atomaire schaal worden bestudeerd waarbij zich allerlei interessante quantummechanische effecten voordoen [3].

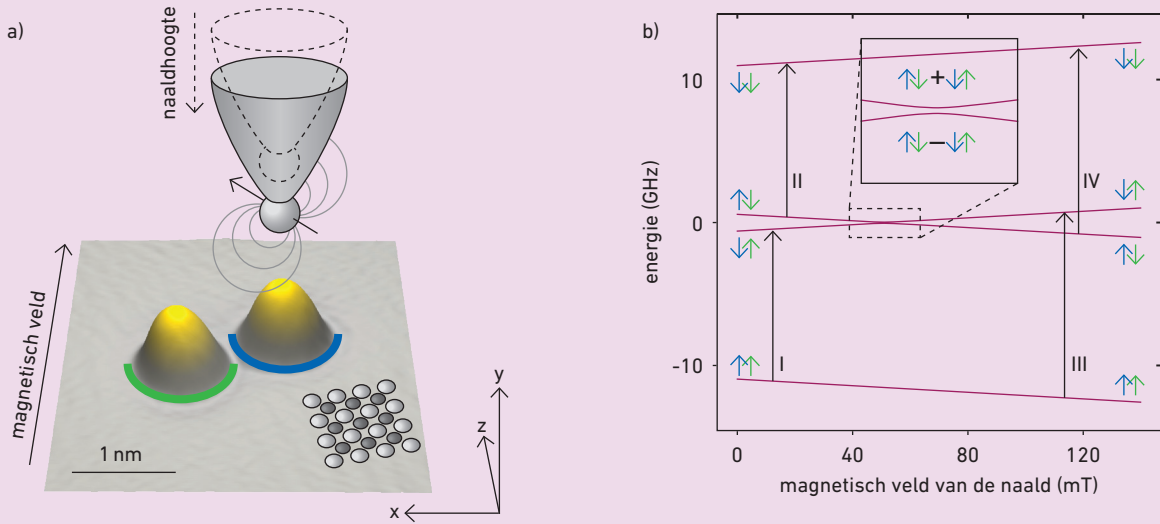
Het koppelen van titaniumatomen

In dit onderzoek [4] bestudeerden we titaniumatomen op een oppervlak van magnesiumoxide (MgO). Omdat ieder titaniumatoom in deze configuratie één ongepaard elektron bevat, is het effectief een spin-1/2-deeltje. Door de atomen met de STM-naald over het oppervlak te bewegen konden we er twee dicht bij elkaar brengen zodat de spins koppelen. Om dynamische interactie tussen de twee spins mogelijk te maken, is het belangrijk dat de spintoestanden in superpositie worden gebracht. Dit gebeurt als beide spins exact dezelfde omgeving voelen. Helaas gooit de STM-naald hier roet in het eten: als we dicht bij een van de atomen komen om zijn spintoestand te meten, veranderen we het lokale magneti-

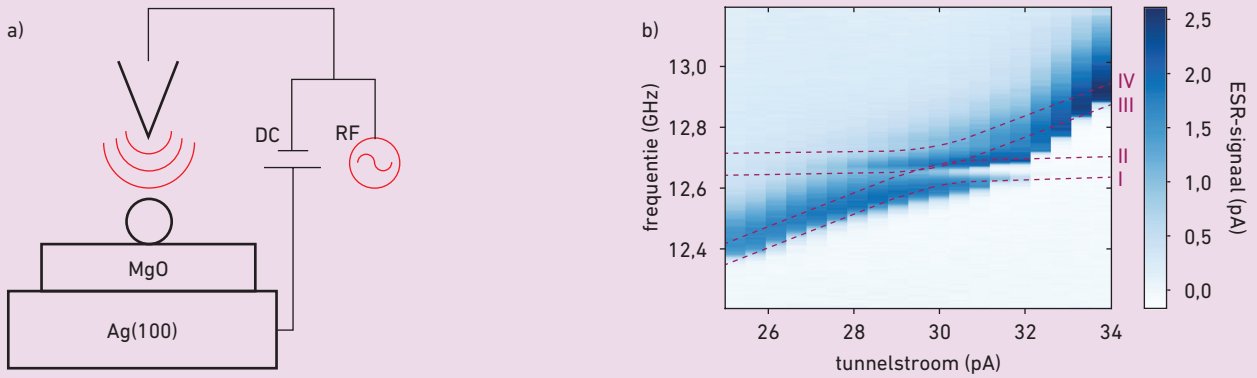


Lukas Veldman studeerde natuurkunde aan de TU Delft. Na een stage bij wetenschappelijke-instrumentenmaker SPECS in Berlijn keerde hij terug naar Delft voor een promotieonderzoek naar atomaire spindynamica in de groep van Sander Otte. L.M.Veldman@tudelft.nl

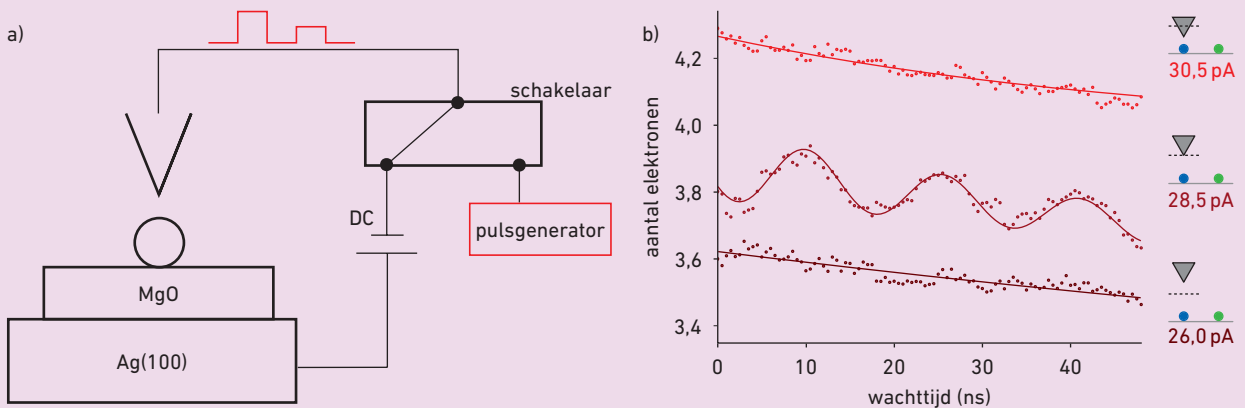
ONDERZOEK



Figuur 1. a) Topografie (hoogtemeting) van de twee gekoppelde titaniumatomen met schematische weergave van de STM-naald en het onderliggende MgO-atoomrooster. b) Energiediagram van de eigentoestanden van de twee atomen als functie van de kracht die het magneetveld van de naald op een van de atomen uitoefent. Mogelijke elektron-spinresonantie-overgangen zijn aangegeven met Romeinse cijfers.



Figuur 2. a) Schematische weergave van een ESR-experiment in een STM. b) ESR-resonanties van de twee gekoppelde titaniumatomen als functie van de afstand van tunnelstroom, die een maat is voor de afstand tot het oppervlak. Grotere stroom betekent kleinere afstand tussen naald en atomen. Berekende ESR-transities uit figuur 1b zijn aangegeven met rode stippellijnen.



Figuur 3. a) Schematische weergave van een *pump-probe*-experiment in een STM. b) Pump-probemetingen op de twee titaniumatomen voor verschillende naald-atoomafstanden. De y-as laat het aantal gemeten elektronen per probepuls zien, de x-as de wachttijd tussen de pump- en probepulsen.

sche veld (zie figuur 1a). Dit is genoeg om het evenwicht te verstoren en de superpositie te verbreken. Een oplossing voor dit probleem vonden we door één van de titaniumatomen op een andere bindingsplek in het MgO te leggen. Zo is de omgeving die de atomen voelen zonder naald uit evenwicht en kunnen we juist door dichterbij te komen proberen de spintoestanden weer in balans te brengen. We krijgen dan een energiediagram zoals te zien in figuur 1b. Als de naald ver weg is, vormen zich geen superpositietoestanden, maar als we de naald langzaam dichterbij brengen is er ergens een punt waar het verschil in omgeving van de atomen volledig wordt gecompenseerd door de naald: het tuning point. De vraag is nu, hoe vinden we dat punt?

Elektron-spinresonantie

Hiervoor gebruiken we een techniek genaamd elektronspinresonantie (ESR) waar bijvoorbeeld ook MRI scanners op gebaseerd zijn. Naast de continue (DC) spanning die we aanleggen tussen de naald en het monster voegen we een radiofrequent (RF) oscillerende spanning toe (figuur 2a). Deze RF-spanning kan overgangen tussen spinstaten aandrijven mits de frequentie van het oscillerende elektrische veld past bij het energieverval tussen de spinstaten. Door de spingevoelige tunnelstroom te meten terwijl we de frequentie veranderen, kunnen we zo een resonantie detecteren die ons heel precies vertelt wat het bijbehorende energieverval is [5]. Als we dit experiment doen met onze twee gekoppelde atomen en we de naald elke keer iets dichterbij brengen kunnen we zien hoe het effectieve veld van de naald de energievervalen tussen de spinstaten beïnvloedt. In figuur 2b zie je de resonanties die we meten tussen de eigentoestanden die geplot zijn in figuur 1b. Omdat de energievervalen tussen I en II en tussen III en IV heel klein zijn, zien we ze hier als een enkele resonantie. Als de naald ver van de atomen af staat, detecteren we alleen resonanties I en II, en als de naald juist heel dichtbij is meten we alleen transities III en IV.

Dit komt omdat we maar één atoom tegelijkertijd kunnen uitlezen: datgene waar de naald boven hangt. Dit atoom geven we aan met blauw, het andere met groen. Zo zijn we bijvoorbeeld wel in staat een overgang tussen $\uparrow\uparrow$ en $\downarrow\uparrow$ te detecteren (omdat de blauwe spin omklapt) maar blijft de overgang tussen $\uparrow\uparrow$ en $\uparrow\downarrow$ onzichtbaar (omdat de blauwe spin hetzelfde blijft). Op het tuning point veranderen de eigentoestanden echter in superposities tussen $\uparrow\downarrow$ en $\downarrow\uparrow$. Aangezien er nu vier overgangen zijn waarbij de blauwe spin omklapt, zijn we ook gevoelig voor alle vier de resonanties. Dit zien we ook in de ESR-metingen van figuur 2b: in het midden van de grafiek vinden we een zogeheten *avoided crossing*: een punt waar, als gevolg van de koppeling tussen de spins, twee ontaarde toestanden opsplitsen in twee superposities. Dit resulteert in vier resonanties. We hebben nu de juiste plaats voor de naald gevonden zodat de spins van de twee atomen effectief dezelfde omgeving voelen. Nu moeten we nog een manier vinden om het spinsysteem uit balans te brengen zodat er dynamica ontstaat.

Spin-flipverstrooiing

Hiervoor gebruiken we de tunnelende elektronen zelf. Omdat deze elektronen zelf ook spin hebben kan een botsing tussen een elektron en het atoom (ook wel verstrooiing genoemd) leiden tot het omklappen van de spin van het atoom. We maken gebruik van dit proces met een zogenoemde *pump-probe*-techniek (figuur 3a). Eerst sturen we een korte pump-puls waarin de tunnelende elektronen de spin van het atoom onder de naald omklappen. Vervolgens wachten we een bepaalde tijd voordat we de probe-puls sturen. In deze laatste puls meten we via de spingevoelige tunnelstroom de spintoestand van het atoom. Door de wachttijd te variëren kunnen we zo de evolutie van de spin volgen in de tijd na het omklappen [6].

Als we deze meting doen op onze twee atomen vinden we het resultaat in figuur 3b. Op het moment dat de naald te ver weg of juist te dichtbij staat, zien we een relatief langzaam

vervallend signaal. Dit is de relaxatie van de spinexcitatie die gelokaliseerd blijft op het atoom onder de naald. Omdat de naald de koppeling tussen de twee atomen uit evenwicht brengt, kan de excitatie niet worden gedeeld met het naburige atoom. Als de naald juist precies op het tuning point staat, zien we opeens een oscillatie. Dit is de excitatie die heen en weer gaat tussen de twee atomen. Dit wordt ook wel een spin-flip-flopdynamiek genoemd. Het is alsof je een duwtje geeft aan een slinger en hij op zijn eigenfrequentie heen en weer gaat. De frequentie van de oscillatie wordt gegeven door de kracht van de koppeling tussen de atomaire spins. Hoe dichterbij de twee atomen bij elkaar worden geplaatst op het oppervlak, hoe sterker de koppeling en hoe sneller de oscillatie. In dit geval meten we een oscillatie van 64 ± 1 MHz wat neerkomt op ruwweg 265 neV aan koppelingsenergie. Deze metingen laten zien dat het mogelijk is om dynamica tussen individuele spins te bestuderen op atomair niveau. Omdat STM de mogelijkheid biedt om atoom voor atoom structuren te bouwen, hopen we in de toekomst spindynamica in allerlei geometrieën en materialen te kunnen onderzoeken. Zo kunnen we een grote stap zetten naar het creëren van informatieoverdracht via spinexcitatie en krijgen we beter inzicht in het gedrag van natuurlijke spinstructuren, zoals die in complexe materialen.

REFERENTIES

- 1 G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber en E. Weibel, *7 x 7 reconstruction on Si (111) resolved in real space*, *Physical review letters* **50**, 120 (1983).
- 2 J.A. Stroscio en D.M. Eigler, *Atomic and molecular manipulation with the scanning tunneling microscope*, *Science* **254**, 1319-1326 (1991).
- 3 A.J. Heinrich, J.A. Gupta, C.P. Lutz en D.M. Eigler, *Single-atom spin-flip spectroscopy*, *Science* **306**, 466-469 (2004).
- 4 L.M. Veldman, L. Farinacci, R. Rejali, R. Broekhoven, J. Gobeil, D. Coffey, M. Ternes en A.F. Otte, *Free coherent evolution of a coupled atomic spin system initialized by electron scattering*, *Science* **372**, 964-968 (2021).
- 5 S. Baumann, W. Paul, T. Choi, C.P. Lutz, A. Ardavan en A.J. Heinrich, *Electron paramagnetic resonance of individual atoms on a surface*, *Science* **350**, 417-420 (2015).
- 6 S. Loth, M. Etzkorn, C.P. Lutz, D.M. Eigler en A.J. Heinrich, *Measurement of fast electron spin relaxation times with atomic resolution*, *Science* **329**, 1628-1630 (2010).