

Ising can't get no satisfaction

Mithilfe von künstlichen Spin-Systemen lassen sich magnetische Ordnungsphänomene in frustrierten Gittern untersuchen.

Naëmi Leo

Bei der spontanen Bildung magnetischer Zustände ergeben sich aus kollektiven Ordnungsphänomenen oft überraschende Materialeigenschaften. Besonders interessante Spinstrukturen treten auf, wenn Wechselwirkungen miteinander konkurrieren. Mittels Nanolithografie hergestellte Spin-Systeme erlauben es, solche frustrierten magnetischen Strukturen direkt zu beobachten. Die zeitliche Entwicklung komplexer Spin-Ordnungen gibt dabei Aufschluss über ihre grundlegenden Gesetzmäßigkeiten.

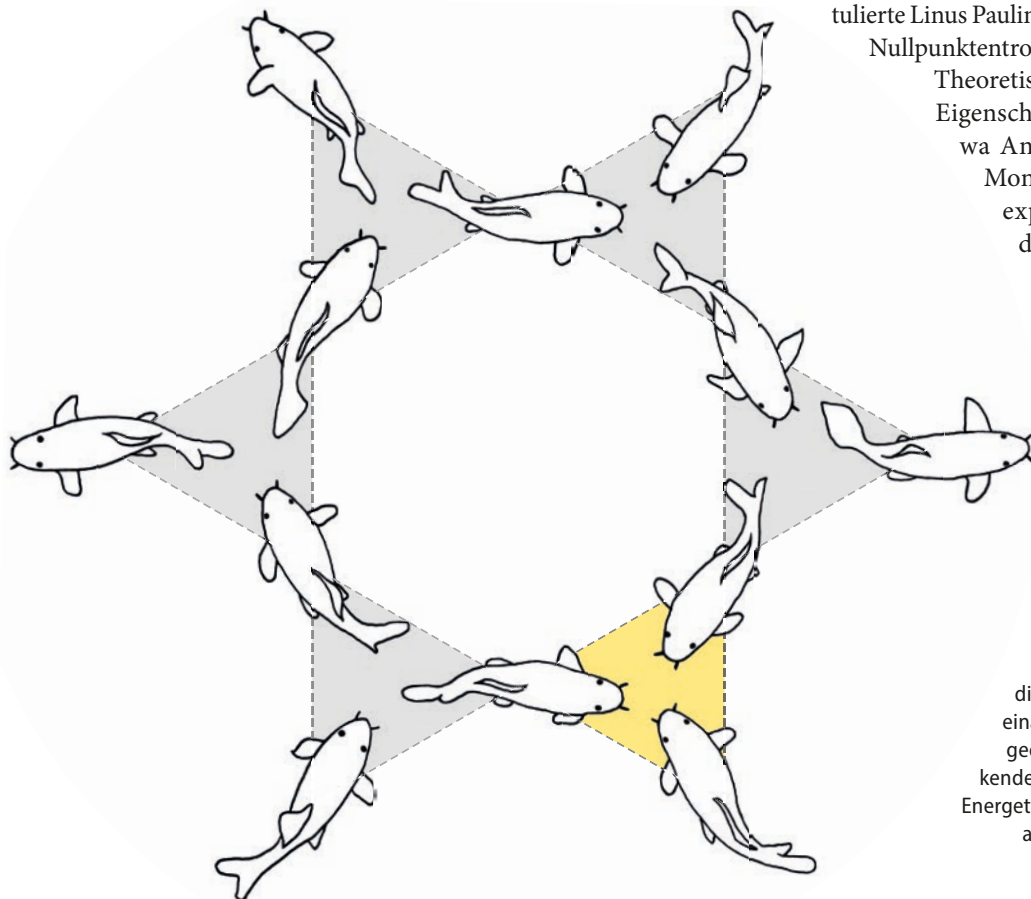
Im Alltag begegnen uns magnetische Materialien meist als Ferromagneten; etwa in Motoren, als Datenspeicher oder um Notizen an den Kühlschrank zu pinnen. Für diese Funktionalitäten nutzen wir deren spontane Magnetisierung, die sich aus der parallelen Anordnung der atomistischen magnetischen Momente ergibt. Weniger alltäglich, dafür aber von großem Interesse für mögliche

technologische Anwendungen und Gegenstand eines sehr produktiven Forschungsfelds, sind Antiferromagneten. In diesen richten sich atomistische magnetische Momente spontan in antiparallelen oder andersartig kompensierten Konfigurationen aus. Dadurch können emergente Materialeigenschaften entstehen, welche sich radikal von denen der elementaren Bausteine unterscheiden. So lässt sich etwa in Multiferroika eine spontane Trennung von positiven und negativen Ladungen im Material (ferroelektrische Polarisierung) beobachten, die durch komplizierte antiferromagnetische Spin-Ordnungen induziert wird.

Eine besondere Klasse antiferromagnetischer Materialien sind Spin-Eis-Systeme, in denen sich durch die geometrische Anordnung der atomistischen magnetischen Momente nicht alle Spin-Spin-Wechselwirkungen simultan befriedigen lassen. Als Konsequenz dieser Frustration bildet sich keine globale langreichweitige Ordnung aus. Stattdessen stellt sich eine magnetische Struktur ein, die zufällig wirkt, aber auf lokalen Längenskalen klaren Regeln folgt: Diese Regeln postulierte Linus Pauling 1935, um die Struktur und die endliche Nullpunktentropie von Wassereis zu erklären [1].

Theoretische Modelle sagen weitere interessante Eigenschaften für Spin-Eis-Systeme vorher, etwa Anregungen, die sich wie magnetische Monopole verhalten. Allerdings ist deren experimenteller Nachweis aufwändig, da Messungen meist nur an Großforschungsanlagen (z. B. mittels Neutronenstreuung) und bei Temperaturen von wenigen Kelvin möglich sind. Zudem erschweren andere magnetische Wechselwirkungen im Material die Interpretation der so gewonnenen Resultate.

Das Kagome-Gitter, das sich aus Dreiecken zusammensetzt, ist ein Paradebeispiel für ein frustriertes System; hier an den Ecken mit Fischen anstelle von Nanomagneten besetzt, die mit dem Kopf (*head*) oder Schwanz (*tail*) zueinander orientiert sein können. Es existiert keine geordnete Konfiguration, die für alle wechselwirkenden Paare eine *head-to-tail*-Anordnung erlaubt. Energetisch besonders ungünstig sind Dreiecke, in die alle Momente hinein oder hinaus zeigen (gelb).



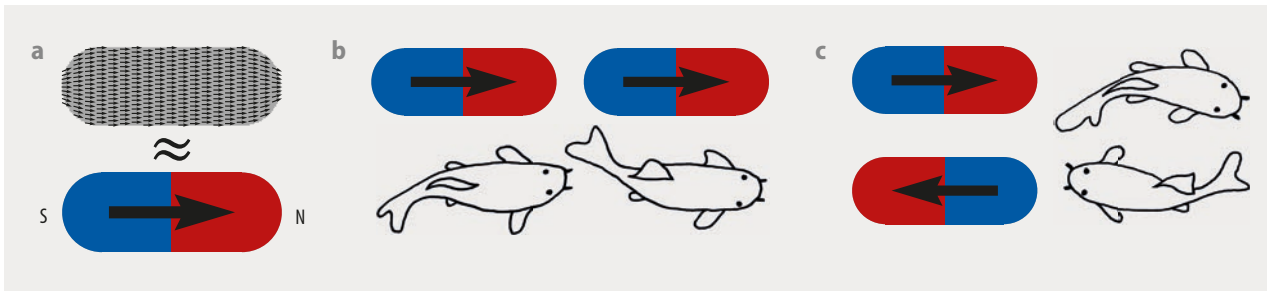


Abb. 1 Die fast homogene magnetische Struktur eines nanoskaligen Magneten (a) lässt sich zu einem bistabilen Ising-Moment mit einem Nord- und Südpol vereinfachen. Das Wechselspiel benachbarter Nanomagnete favorisiert *head-to-tail*-Konfigurationen der Momente und führt je nach räumlicher Anordnung zu ferromagnetischen (b) oder antiferromagnetischen Spin-Ordnungen (b).

Künstliche Spin-Systeme

Eine Alternative, um Ordnungsphänomene in frustrierten magnetischen Systemen zu erzeugen und zu beobachten, bieten künstliche Spin-Systeme [2]. Dabei handelt es sich um Metamaterialien, in denen die elementaren magnetischen Bausteine keine Elektronen im Festkörper sind, sondern Nanomagnete, die sich mittels Lithografie in fast beliebigen zweidimensionalen Gittern schreiben lassen [3–5]. Der magnetische Zustand solcher Strukturen ist auch mit Messungen bei Raumtemperatur auf dem Labortisch zugänglich – etwa durch Abrastern mit einer magnetischen Spitze. Dies vereinfacht die experimentelle Beobachtung erheblich und erlaubt es, das kollektive Zusammenspiel der magnetischen Momente direkt zu verfolgen.

Die fundamentalen Bausteine künstlicher Spin-Systeme sind längliche Inseln aus ferromagnetischem Material wie Permalloy, einer magnetisch „weichen“ Nickel-Eisen-Legierung. Die Nanomagnete sind einige zehn bis einige hundert Nanometer groß. Da ihre magnetische Mikrostruktur weitgehend homogen ist, lassen sie sich vereinfacht als bistabiler nanoskaliger Stabmagnet mit zwei möglichen Ausrichtungen des Nord- und Südpols beschreiben (**Abb. 1a**). Solche Nanomagneten werden auch als Ising-Makrospins bezeichnet; nach Ernst Ising, der 1925 das statistische Verhalten von wechselwirkenden bistabilen Elementen herleitete. Das Ising-Modell, eines der wichtigsten Modelle der statistischen Mechanik, erlaubt es, Ordnungsphänomene in einer Vielzahl von Systemen vorherzusagen.

Das Zusammenspiel der Nanomagnete ist durch magnetostatische Kräfte bestimmt. Dabei lässt sich die Wechselwirkungsenergie zweier magnetischer Momente \mathbf{m}_i und \mathbf{m}_j an Positionen \mathbf{r}_i und \mathbf{r}_j in erster Ordnung durch die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung beschreiben:

$$E_{\text{dip}} = \frac{\mu_0}{4\pi|\mathbf{r}_{ij}|^3} \left[\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{m}_j - 3 \frac{(\mathbf{m}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{m}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{|\mathbf{r}_{ij}|^2} \right] \quad (1)$$

In dieser Gleichung sind μ_0 die magnetische Feldkonstante und $\mathbf{r}_{ij} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i$ der Abstandsvektor zwischen den beiden Nanomagneten. Die Formel beschreibt mathematisch die *head-to-tail*-Regel, nach der sich gleiche magnetische Pole abstoßen und sich ungleiche Pole anziehen: Liegen zwei Nanomagnete auf einer Linie, stellt sich bevorzugt ein ferromagnetischer Zustand ein, bei dem beide Momente in dieselbe Richtung zeigen (**Abb. 1b**). Liegen die

Nanomagnete Seite an Seite, ist ein antiparalleler Zustand mit kompensiertem Nettomoment energetisch günstiger (**Abb. 1c**). Je nach räumlicher Anordnung der Nanomagnete ergeben sich daher zahlreiche ferro- und antiferromagnetische Konfigurationen mit unterschiedlichen Energien.

Energielandschaften

Von besonderem Interesse sind die Grundzustände eines Systems, für welche die *head-to-tail*-Regel bestmöglich befolgt wird, um die Wechselwirkungsenergie zu minimieren. Eine grundlegende Frage ist, ob und wie wahrscheinlich sich ein solcher Grundzustand aus einem gewählten Startzustand einstellt.

Als Beispiel für eine solche Entwicklung soll ein Quadratgitter aus zwölf Nanomagneten dienen (**Abb. 2a**): Ein wohldefinierter Startzustand lässt sich durch ein angelegtes Magnetfeld initiieren, das die anfängliche Richtung aller magnetischen Momente vorgibt. Um in den Grundzustand überzugehen, müssen sechs Nanomagnete spontan nacheinander schalten. Ein Pfad in einer Energielandschaft soll dies veranschaulichen: In dieser Landschaft korrespondiert jede mögliche Spin-Konfiguration mit einem Datenpunkt, dessen Höhe die Wechselwirkungsenergie des Zustands angibt. Der Pfad zum Grundzustand endet am tiefsten Grund des Energietals (weiße Linie in **Abb. 2b**). Da sich die einzelnen Schaltereignisse spontan und in beliebiger Reihenfolge ereignen, sind viele alternative Pfade möglich. Obwohl das Gefälle der Energielandschaft eine bevorzugte Richtung vorgibt, können einige Pfade in lokale Energieminima führen. Solche metastabilen Zustände lassen sich nur über energetisch ungünstige – und daher unwahrscheinlichere – Zwischenschritte verlassen. Dadurch kann das System lange Zeit in einem Zustand verharren, der nicht dem Grundzustand entspricht [6, 7].

Das Kagome-Gitter, benannt nach einem japanischen Flechtmuster, ist ein Paradebeispiel für ein System mit frustrierten Wechselwirkungen. In diesem wechselwirken jeweils drei Nanomagnete in einem Dreieck, sodass die *head-to-tail*-Regel nicht für jedes Spinpaar gleichzeitig erfüllt werden kann. Als Kompromiss folgt die magnetische Ordnung bevorzugt lokalen Eisregeln, denen zufolge an jedem Dreieck zwei Momente entweder ein- oder auswärts zeigen. Dies führt zu zahlreichen magnetischen Zuständen mit ähnlichen Energien. Der Übergang von einem Start-

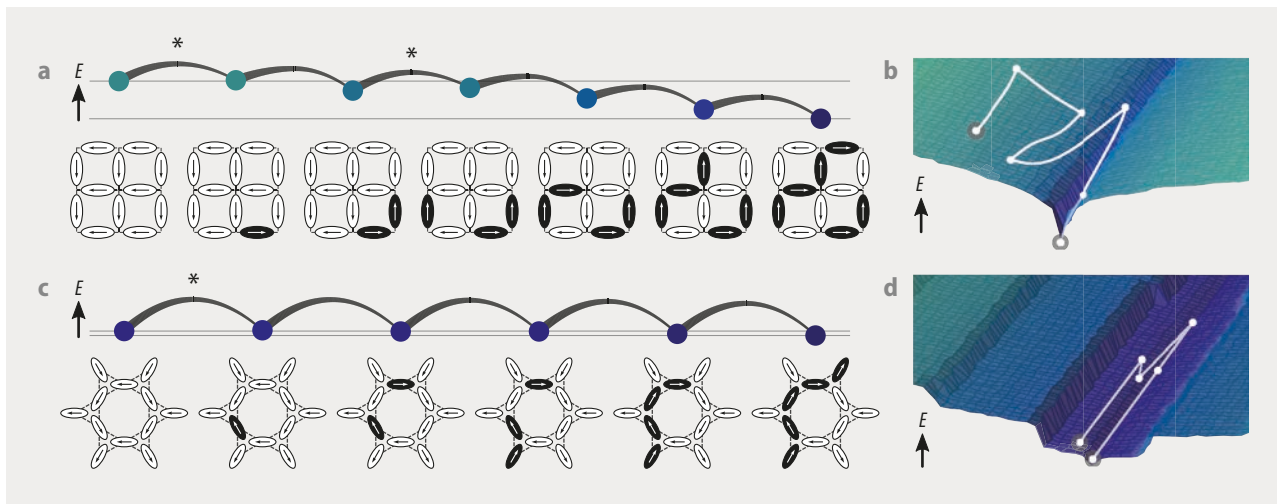


Abb. 2 In einem quadratischen Spin-System ist die Wechselwirkungsenergie (a, oben) für verschiedene magnetische Konfigurationen (a, unten) unterschiedlich. Für den Übergang von einem homogenen Zustand zu einem Grundzustand, der die *head-to-tail*-Regel befriedigt, müssen sukzessive die Momente einzelner Nanomagnete schalten (weiß zu schwarz). Hierbei gibt es auch Umwege über Zustände mit höherer Energie (mit * markiert). Der Übergangspfad (b, weiß) in der Energielandschaft, in dem jeder Netzpunkt einem magnetischen Zustand entspricht, endet im tiefsten Punkt des Tals (Grundzustand). Im Kagome-Gitter erfolgt der Übergang in den Grundzustand ähnlich (c); durch die frustrierten Wechselwirkungen ergeben sich dabei aber viele Zustände ähnlicher Energie, die sich in der Energielandschaft als Plateaus manifestieren (d).

zustand zu einem der Grundzustände ist daher nur mit einer geringen Energieänderung verbunden (**Abb. 2c**). Wie bei der blinden Suche nach dem tiefsten Punkt eines weiten, flachen Tals sind die Erfolgsaussichten gering, den Grundzustand zufällig zu finden (**Abb. 2d**). Dies bestätigen auch experimentelle Beobachtungen [8, 9]. Allerdings treten im Kagome-Gitter interessante lokale Ordnungsphänomene und kollektive Effekte auf. Ein Beispiel dafür sind koordinierte magnetische Fluktuationen, die vermeiden, dass sich energetisch ungünstige Dreiecke mit einer *all-out/all-in*-Formation der Momente bilden [10].

Energiebarrieren

Eine weitere Frage bezieht sich auf die Zeitskalen, auf denen sich ein künstliches Spin-System in einem Zustand niedriger Energie anordnet. Die dafür notwendigen, zufällig auftretenden (stochastischen) Schaltereignisse lassen sich mithilfe von Monte-Carlo-Simulationen modellieren. Raten $\nu(\Delta E, T)$, die über das Arrhenius-Gesetz mit den zu überwindenden Energiebarrieren ΔE und der Temperatur T verbunden sind, beschreiben dabei die Übergangs-

wahrscheinlichkeiten und Zeitskalen:

$$\nu(\Delta E, T) = \nu_0 \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right). \quad (2)$$

Hier sind ν_0 die sogenannte Versuchsrate und k_B die Boltzmann-Konstante. Die Energiebarrieren ΔE der einzelnen Nanomagnete, deren magnetische Momente sich näherungsweise über eine quasikontinuierliche Rotation des Makrospins umkehren (**Abb. 3a**), sind maßgeblich durch deren Größe und Form sowie das magnetische Material bestimmt. Wechselwirkungen mit benachbarten Nanomagneten modifizieren ΔE , was eine Entwicklung zum Grundzustand begünstigt und unterschiedliche Barrieren für Rotationen im und gegen den Uhrzeigersinn entstehen lassen kann (**Abb. 3b**) [11, 12]. Wegen der exponentiellen Abhängigkeit in Gleichung (2) ist die genaue Kenntnis von ΔE maßgeblich für Simulationsergebnisse, die quantitativ mit Experimenten vergleichbar sind [6, 8].

Für den experimentellen Nachweis *spontaner* Ordnungsphänomene in künstlichen Spin-Systemen gelang der entscheidende Fortschritt vor einigen Jahren mit der Fabrikation sehr kleiner und dünner superparamagnetischer Nano-

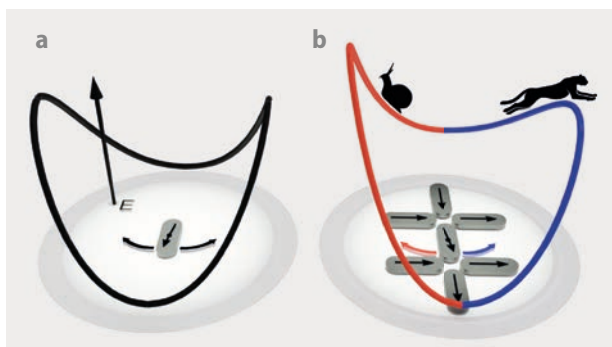


Abb. 3 Der Übergang zwischen den stabilen Zuständen eines Nanomagneten erfolgt über eine annähernd gleichmäßige Rotation des magnetischen Moments (a). Dabei ist eine Energiebarriere zu überwinden (schwarze Linie). Wechselwirkungen mit benachbarten Nanomagneten ändern diese Energiebarriere (b) und können zu unterschiedlichen Übergangsraten für Rotationen im bzw. gegen den Uhrzeigersinn führen (rot bzw. blau). Die niedrigere Energiebarriere (blau) führt zu statistisch schnelleren Reaktionen.

magnete. Bei Raumtemperatur fluktuieren diese zufällig (da $\Delta E \approx k_B T_{RT}$), während die magnetischen Wechselwirkungen zwischen den Nanomagneten geordnete Muster bevorzugen. Reduziert sich die Temperatur des Systems durch Kontakt mit einem Kühlfinger, erlauben solche Systeme die Untersuchung von spontanen Übergängen zu geordneten Phasen [9, 10, 13, 14]. Damit das künstliche Spin-System im Experiment einen Zustand niedriger Energie einnehmen kann und nicht vorzeitig in einem chaotischen Zustand einfriert, ist es notwendig, die Temperatur allmählich zu reduzieren.

Andere Experimente erfordern es, dass die Temperatur der Probe erhöht wird, nämlich wenn die Energiebarrieren groß sind (d. h. $\Delta E \gg k_B T_{RT}$). Um die Übergangsraten zu erhöhen und somit eine Entwicklung in einen geordneten Zustand wahrscheinlicher zu machen, wird die Probe meist über den Kontakt mit einer Heizplatte geheizt [6, 8, 12]. Eine solche Temperaturkontrolle ist allerdings langsam, energetisch ineffizient und räumlich unspezifisch.

Diese Nachteile lassen sich vermeiden: Bei einer neuen Heizmethode werden in hybriden Nanoelementen aus Gold und magnetischem Material mittels Laserlicht Ladungsschwingungen (Plasmonen) angeregt. Die dadurch induzierten elektrischen Ströme erhöhen die Temperatur der Nanostruktur auf bis zu mehrere hundert Grad Celsius und erleichtern somit magnetische Schaltvorgänge [15]. Dies ermöglicht es, die Temperatur von Nanomagneten lokal durch Wahl des Laserspots und auf kurzen Zeitskalen – potenziell bis zu etwa zehn Pikosekunden – zu kontrollieren.

Ein weiterer Vorteil plasmonischen Heizens ist die Möglichkeit, nur Nanomagnete in einem spezifischen Untergitter zu heizen (**Abb. 4**), da die Polarisation des Lichts die elementspezifische Heizrate bestimmt. Im Gegensatz zu globalen Heizmethoden, bei denen sich alle magnetischen Energieskalen in derselben Weise ändern, lassen sich hierbei die Form der Energielandschaft und die Übergangsraten asynchron variieren. Damit ergeben sich neue Möglichkeiten, ein künstliches Spin-System aktiv und kontrolliert in einen Zustand niedriger Energie zu überführen.

Ausblick

Künstliche Spin-Systeme erlauben es, statistische Modelle in maßgeschneiderten Gittern zu quantifizieren und geben Aufschlüsse zu vielfältigen magnetischen Ordnungsphänomenen [3–5]. Bausteine wie frei rotierende magnetische Momente [13] sowie komplexe 3D-Gitterstrukturen ermöglichen es weiterhin, magnetische Metamaterialien mit neuen Funktionalitäten herzustellen.

Zudem wird an potentiellen technologischen Einsatzmöglichkeiten künstlicher Spin-Systeme geforscht. So können Nanomagnete binäre Informationen kodieren, und Lösungen logischer Operationen oder komplexer Optimierungsprobleme lassen sich mathematisch als Grundzustände eines wechselwirkenden Systems darstellen. Erreicht man diese Grundzustände mittels passender Heizschemata, ermöglicht dies energieeffiziente Berechnungen. Das tiefere Verständnis der zugrundeliegenden Energie- und Zeitskalen sowie das gezielte Heizen von Nanomagneten mit Laserlicht eröffnen dafür neue Wege.

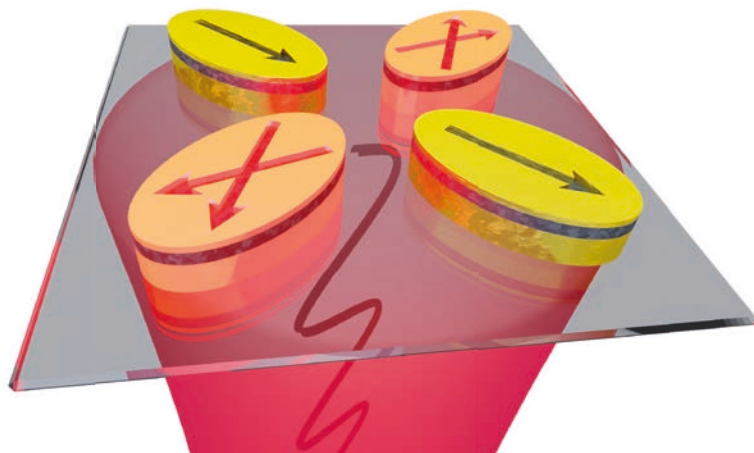


Abb. 4 Hybride Metamaterialien, die plasmonische Nanoheizer aus Gold mit Nanomagneten (grau) kombinieren, ermöglichen schnelles und auf ein spezifisches Untergitter beschränktes Heizen durch Anregung mit Laserlicht (rot). Damit lässt sich die Relaxationskinetik künstlicher Spin-Systeme auf neuartige Weise kontrollieren.

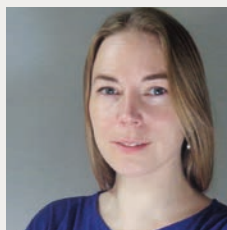
*

Ernst Ising (1900–1998) war Jude. 1933 wurde ihm eine „normale“ Arbeit in Deutschland verunmöglicht. Nach dem Novemberpogrom 1938 floh er nach Luxemburg. Obwohl seine bahnbrechende Arbeit 1925 veröffentlicht wurde, hat er erst 1947, nachdem er in die USA ausgewandert war, von der Berühmtheit „seines“ Modells erfahren. Mehr dazu unter <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/epdf/10.1002/phbl.19950510517> und <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/epdf/10.1002/phbl.19980541008>.

Literatur

- [1] L. Pauling, J. Am. Chem. Soc. **57** 2680 (1935)
- [2] R. F. Wang et al., Nature **439**, 7074 (2006)
- [3] L. J. Heyderman und R. L. Stamps, J. Phys. Condens. Matter **25**, 36 (2013)
- [4] C. Nisoli et al., Rev. Mod. Phys. **85**, 1473 (2013)
- [5] S. H. Skjærvø et al., Nature Rev. Phys. **2**, 2 (2019)
- [6] H. Arava et al., Phys. Rev. Applied **11**, 054086 (2019)
- [7] J. Lehmann et al., Nat. Nanotechn. **15**, 896 (2020)
- [8] A. Farhan et al., Nat. Phys. **9**, 6 (2013)
- [9] K. Hofhuis et al., Phys. Rev. B **102**, 180405(R) (2020)
- [10] O. Sendetskyi et al., Phys. Rev. B **93**, 224413 (2016)
- [11] S. Koraltan et al., Phys. Rev. B **102**, 064410 (2020)
- [12] N. Leo et al., New J. Phys. **23**, 033024 (2021)
- [13] N. Leo et al., Nature Commun. **9**, 2850 (2018)
- [14] O. Sendetskyi et al., Phys. Rev. B **99**, 214430 (2019)
- [15] M. Pancaldi et al., Nanoscale **11**, 7656 (2019)

Die Autorin



Naëmi Leo (FV Magnetismus) studierte Physik an der Universität Bonn und promovierte 2014 an der ETH Zürich. Bis 2018 arbeitete sie am Paul Scherrer Institut in der Schweiz. Nach einem kurzen Aufenthalt an der Universität Tokio forscht sie seit Ende 2018 – derzeit als Marie Skłodowska-Curie Fellow – am CIC nanoGUNE in San Sebastián, Spanien, an der optischen Kontrolle von magnetischen Metamaterialien.

Dr. Naëmi Leo, CIC nanoGUNE, Tolosa Hiribidea, 76, 20018 Donostia / San Sebastián, Spanien