

# Die Mischung macht's

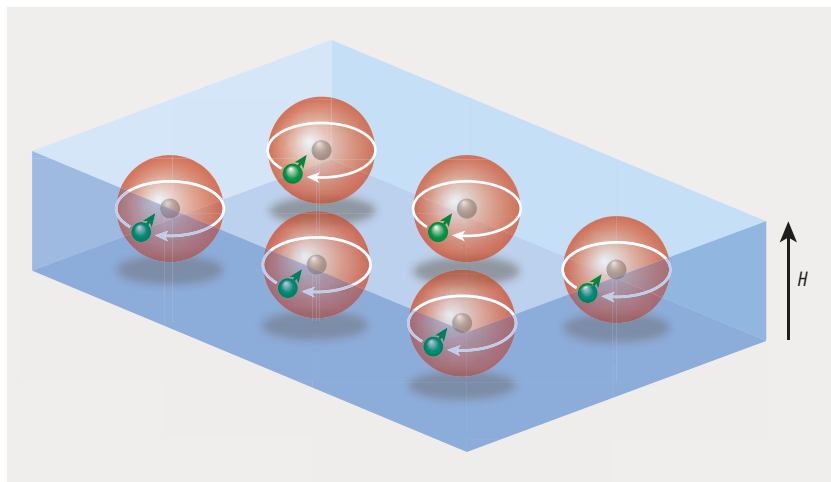
Spektroskopische Untersuchungen weisen gemischte Spinzustände in Ferromagneten direkt nach.

Mathias Kläui, Mathias Weiler und Yuriy Mokrousov

**M**agnetische Systeme finden vielfältigen Einsatz: Die Palette aktueller Anwendungen reicht von bekannten Datenspeichern wie Festplatten und Magnetbändern zu neuen MRAM-Speichern (Magnetic Random Access Memory) sowie einer großen Bandbreite von Magnetsensoren [1]. Darüber hinaus wird intensiv an unkonventioneller und neuromorpher Logik basierend auf magnetischen Systemen geforscht [2].

Solche spintronischen Anwendungen hängen empfindlich von den magnetischen Momenten ab, die durch den Eigendrehimpuls – den Spin der Elektronen – und dessen Bahnbewegung hervorgerufen werden. Diese beiden Drehimpulse führen im Zusammenspiel zum gesamten magnetischen Moment. Historisch wurde zuerst das Bahnmoment (Einstein-de Haas-Versuch) untersucht [3] und etwas später mit dem Stern-Gerlach-Experiment auch das Spinmoment.

Spintronische Anwendungen basieren auf dem Stromtransport in magnetisch geordneten Materialien. Den Strom transportieren dabei Elektronen mit einem Spin- und Bahnmoment [4], wobei das Bahnmoment in 3d-Übergangsmetallen stark an das Gitter gekoppelt und daher sehr viel kleiner als das Spinmoment ist. Die Kopplung von Spin- und Bahnmomenten der Elektronen führt zu einer Mischung der elektronischen Spinzustände. Somit liegen Mischungen von „reinen“ Spin-up- und Spin-down-Zuständen vor – up bzw. down bedeutet parallel bzw. antiparallel zur Richtung der Magnetisierung im Ferromagneten. Die Mischung ist eine quantenmechanische Überlagerung der elektronischen Zustände mit reinem Spin-up- oder Spin-down-Charakter. Ohne Spin-Bahn-Wechselwirkung sind die Zustände mit Spin up bzw. Spin down entkoppelt. Sobald die Spin-Bahn-Wechselwirkung ins



**Abb. 1** In magnetischen Systemen hängt das magnetische Moment sowohl vom Spin-Drehimpuls der Elektronen (grüner Pfeil) als auch vom Bahndrehimpuls (weiße Kreisbahn) ab. Das Verhältnis zwischen Bahn- und Spinmoment lässt sich mittels ferromagnetischer Resonanz-Spektroskopie messen.

Spiel kommt, beeinflussen sich die beiden Zustände gegenseitig, was zu einer räumlichen Verteilung der Spinpolarisation führt. Die durchschnittliche Stärke dieser Spin-Mischung ist durch den Spin-Mischungsparameter charakterisiert. Die Spin-Mischung reduziert für einen Zustand die Spinpolarisation entlang der Magnetisierungsrichtung, da durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung die Spin-Quantenzahl keine „gute“ Quantenzahl des Systems mehr ist. Um spintronische Bauelemente zu optimieren, müssen die Spin- und Bahnmomente sowie die Spinmischung möglichst genau bekannt sein.

Die ferromagnetische Resonanz (FMR) hilft dabei, die Beiträge von Spin- und Bahnmoment zu quantifizieren [5]. Die Methode basiert auf der Untersuchung der Absorption von Mikrowellen durch magnetische Materialien. Charles Kittel beschrieb sie bereits vor über 70 Jahren quantitativ [6]. Ein wichtiger Parameter ist der  $g$ -Faktor, der den Beitrag von Spin- und Bahnmoment zum Gesamtmoment beschreibt. Die FMR analysiert den spektroskopischen  $g$ -Faktor, der die Resonanzfrequenz  $\omega$  und das effek-

tive magnetische Feld  $H_{\text{eff}}$  verknüpft:

$$\hbar\omega = g \mu_B \mu_0 H_{\text{eff}}. \quad (1)$$

Dieser spektroskopische  $g$ -Faktor ist vom gyromagnetischen  $g'$ -Faktor zu unterscheiden, der das Verhältnis aus magnetischem Moment zum Drehimpuls beschreibt [7, 8]. Für ein freies Elektron sind beide Faktoren gleich, aber im Festkörper muss das nicht der Fall sein, da dort je nach Kristallsymmetrie häufig der mittlere Bahn-Drehimpuls 0 ist (Orbital Quenching), während die Orbitale zum magnetischen Moment beitragen [9]. In einer von Charles Kittel beschriebenen Näherung, die nur reine Spinzustände berücksichtigt, lässt sich  $g$  schreiben als [7, 8, 10]:

$$g \approx 2 \left( 1 + \frac{\mu_L}{\mu_S} \right). \quad (2)$$

Um die Beiträge der Bahnmomente  $\mu_L$  und der Spinmomente  $\mu_S$  zum Gesamtmoment  $\mu$  zu bestimmen, gilt es, den  $g$ -Faktor aus FMR gemäß Gleichung (1) experimentell zu ermitteln. Der gemessene  $g$ -Faktor hängt nach Gleichung (2) direkt mit den Bahn- und Spinmomenten zusammen:  $\mu_L/\mu_S$

=  $(g-2)/2$ . Diese auf Kittel und van Vleck zurückgehende Analyse wird heute fast überall genutzt.

Eine kürzlich veröffentlichte Arbeit hat Hinweise geliefert, dass der  $g$ -Faktor einer komplexeren Beschreibung bedarf [11]. Dazu wurden die Bahn- und Spinmomente nicht nur mittels FMR, sondern auch mittels Röntgen-Zirkulardichroismus (XMCD) gemessen. Die Absorption der Röntgenstrahlen hängt bei dieser Methode davon ab, ob die Polarisation (Helizität) parallel oder antiparallel zur Magnetisierung ist, wenn die Energie genau so gewählt ist, dass die Röntgenstrahlung die Elektronen aus tief liegenden Niveaus an die Fermi-Kante hebt. Letztlich wird hier die Richtung der Polarisation der Elektronen an der Fermi-Kante bestimmt. Mithilfe bekannter Summenregeln [12] leiten sich die Spin- und Bahnmomente ab.

In der aktuellen Arbeit werden die beiden Methoden und deren Ergebnisse für die gleichen Proben verglichen. Erstaunlicherweise gab es signifikante Unterschiede: Das durch FMR bestimmte Bahn- zu Spinmoment-Verhältnis war bis zu 30 Prozent kleiner als das durch XMCD gemessene, und die Diskrepanz zog sich durch eine Serie von Schichten aus Multilagen (CoFe/Ni) und Permalloy ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ).

Somit stellt sich die zentrale Frage, was diese Diskrepanz hervorruft. Die aktuelle Arbeit zeigt, dass die Ursache in der Näherung liegt, die Charles Kittel in seiner Analyse angewandt hat. Er betrachtete nur die niedrigste Ordnung bei Effekten von Mischungen von Spin-up- und Spin-down-Zuständen und ging davon aus, dass die gemischten Zustände durch einen ähnlich großen Energieabstand getrennt sind wie die reinen Zustände. Damals war diese Näherung gerechtfertigt, da es noch keine so hochpräzisen FMR-Messmöglichkeiten gab. Heute lässt sich der  $g$ -Faktor jedoch mit einer Präzision von 0,1 Prozent messen. Mit dieser Genauigkeit sind auch Effekte höherer Ordnung bei der Spinmischung detektierbar, die eine entsprechende Modifikation von Gleichung (2) erfordern. Die Kombination von XMCD und FMR erlaubt es zu bestimmen, wie stark ein Spin-

down-Zustand beispielsweise mit einem fast reinen Spin-up-Zustand gemischt ist. In der Vergangenheit ließ sich dieser Mischungsparameter nur durch theoretische Rechnungen oder relativ ungenaue Fits von Relaxationsprozessen ableiten. Die aktuelle Arbeit liefert einen unabhängigen Ansatz zur Messung dieses Parameters, der direkt mit State-of-the-art-Dichtefunktionaltheorie-Rechnungen verglichen wird. Die Übereinstimmung ist erstaunlich gut. Der Vergleich von Experiment und Theorie zeigt zudem, dass sogar ein relativ kleiner Spin-Mischungsparameter von nur etwa zwei Prozent sich messbar auf die FMR-Spektren auswirken kann. Dabei kann der Spin-Mischungsparameter in Übergangsmetallen durchaus eine Größenordnung größer sein [13].

Diese neuen Erkenntnisse haben einige wichtige Konsequenzen: Zunächst erlaubt die Analyse es, den Spin-Mischungsparameter experimentell zu bestimmen, was bisher nicht ohne komplexe Modellierung möglich war. Dieser Parameter ist für Spintransport-Effekte essenziell. So lässt sich ein spinpolarisiertes Elektron als Überlagerung von zwei gemischten Zuständen beschreiben, die in der Zeitentwicklung zu einem unpolarisierten Zustand führen können. Somit gibt es einen intrinsischen Mechanismus, der die Depolarisation von Spinströmen erklärt. Außerdem ist es möglich, die Umwandlung zwischen Ladung und Spin in magnetischen Tunnelementen und Spin-Bahn-Effekten wie dem anomalen bzw. planaren Hall-Effekt zu beeinflussen. Elektronen erfahren je nach Ortsausdehnung der Wellenfunktion verschieden starke Spin-Mischungseffekte: Abhängig von der Position auf der Fermi-Oberfläche kann die Mischung stärker oder schwächer sein. An „Hot Spots“ existieren sogar komplett gemischte Zustände. Somit hängt der Spin-Mischungsparameter stark von der Geometrie der Fermi-Oberfläche ab. Dies ist ein Charakteristikum des Materials und von fundamentaler Bedeutung für Transporteffekte. Die Messung des Spin-Mischungsparameters liefert daher neue Einsichten zur Form der Fermi-

Oberfläche. Das ist wertvoll, da eine direkte Messung der Fermi-Oberflächen insbesondere in Nanostrukturen schwierig ist. Zu guter Letzt kann der Spin-Mischungsparameter auch von der Richtung der Magnetisierung in einem anisotropen magnetischen System abhängen, was künftige FMR-Messungen in solchen Systemen experimentell zeigen können.

Für zentrale spintronische Anwendungen wie magnetische Tunnel-Elemente, Spin-Transfer-Drehmomente oder Spindynamik [14] sind somit wichtige Konsequenzen zu berücksichtigen. Schließlich wird eine verbesserte theoretische Beschreibung von FMR diese weit verbreitete Technik noch leistungsfähiger machen.

- [1] B. Dieny et al., Nat. Electron. **3**, 446 (2020)
- [2] J. Grollier et al., Nat. Electron. **3**, 360 (2020)
- [3] O. W. Richardson, Phys. Rev. **26**, 248 (1908)
- [4] D. Go et al., EPL **135**, 37001 (2021)
- [5] I. S. Maksymov et al., Physica E **69**, 253 (2015)
- [6] C. Kittel, Phys. Rev. **73**, 155 (1948)
- [7] C. Kittel, Phys. Rev. **76**, 743 (1949)
- [8] G. G. Scott, Rev. Mod. Phys. **34**, 102 (1962), A. Meyer et al., J. Appl. Phys. **32**, S330 (1961)
- [9] J. Nibarger et al., Appl. Phys. Lett. **83**, 93 (2003)
- [10] H. van Vleck, Phys. Rev. **78**, 266 (1950)
- [11] J. M. Shaw et al., Phys. Rev. Lett. **127**, 207201 (2021)
- [12] J. Stöhr, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 470 (1999)
- [13] B. Zimmermann et al., Phys. Rev. B **93**, 144403 (2016)
- [14] M. B. Stearns, J. Magn. Magn. Mater. **5**, 167 (1977); A. Brataas et al., Nat. Mater. **11**, 372 (2012)

## Die Autoren

**Prof. Dr. Mathias Kläui**, Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Institut für Physik, Staudinger Weg 7, 55128 Mainz, **Prof. Dr. Mathias Weiler**, TU Kaiserslautern, Fachbereich Physik, Erwin-Schrödinger-Straße 46, 67663 Kaiserslautern und **Prof. Dr. Yuriy Mokrousov**, Johannes Gutenberg-Universität Mainz und Forschungszentrum Jülich, 52425 Jülich