Abschlussbericht
Kurz- und Sachbericht

Verbundprojekt
Quantum NanoLab - Modulares Millikelvin-Rastersondenmikroskop für die Quantentechnologie (Q-NL)

Teilvorhaben
Validierung

Förderkennzeichen
13N16046

Projektlaufzeit: 01.10.2021 – 31.03.2025
Berichtszeitraum: 01.10.2021 – 31.03.2025

Zuwendungsempfänger:

Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule (RWTH)
Aachen

Teilprojektleiter:
Prof. Dr. Markus Ternes (ternes@physik.rwth-aachen.de)

Projektpartner
Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich
mProbes GmbH, Jülich
CryoVac GmbH & Co. KG, Troisdorf
Bilfinger Noell GmbH, Würzburg
Universität Augsburg, Augsburg

Inhaltsverzeichnis

I. Kurzbericht 3
Aufgabenstellung des Gesamtvorhabens 3
Aufgabenstellung des Teilvorhabens 3
Ablauf des Vorhabens und Wesentliche Ergebnisse 4
Zusammenarbeit mit Verbundpartnern 4
II. Sachbericht 5
Darstellung der erzielten Projektergebnisse des Teilvorhabens „Validierung“ 5
Teilziel 1 – Vergleich des Laboraufbaus mit herkömmlichen mk-STM Geräten 5
Teilziel 2 – Validierung des AFM/STM Prototyps 9
Teilziel 3 – Validierung des STM Prototyps mit Hochfrequenzverkabelung 10
Teilziel 4 – Validierung des kombinierten STM/AFM Insert mit Vektormagneten 11
Teilziel 5 – Validierung des kombinierten STM/AFM Insert mit Vektormagneten und Hochfrequenzverkabelung durch Dynamische Messungen von MZM 12
Teilziel 6 – Validierung des Multispitzen Inserts 12
Erläuterungen des des zahlenmäßigen Nachweises 17
Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit 17
Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse 18
Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen 19
Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses 20

I. Kurzbericht

Aufgabenstellung des Gesamtvorhabens

Im Rahmen des Verbundprojekts Q-NL wurde eine innovative Experimentierumgebung zur Erforschung und Entwicklung von Ansätzen der Quantentechnologie auf Basis speziell angefertigter Nanostrukturen entwickelt. Um die Quantenzustände in den Nanostrukturen bis hinunter auf einzelne Atome und Moleküle kontrollieren zu können, muss diese Experimentierumgebung ultratiefe Temperaturen von weniger als 0,1 Kelvin erreichen. Hierzu wurden ultrahochvakuumtaugliche Rastersondenmikroskope mit einer modularen Tieftemperaturplattform kombiniert – eine Lösung, die bisher nicht kommerziell erhältlich war. Weltweit gibt es lediglich etwa zehn Eigenbau-Systeme, die Ultrahochvakuum–(UHV)–Rastersondenverfahren mit Temperaturen unter 0,1 K kombinieren. Diese Systeme basierten jedoch fast ausschließlich auf komplizierten und kostenintensiven Mischkryostaten. Vor diesem Hintergrund verfolgte das Projekt das Ziel, die erste schlüsselfertige Gerätefamilie zu entwickeln, die Millikelvin–Temperaturen und UHV–Rastersondenmikroskopie mithilfe der adiabatischen Entmagnetisierungskühlung (ADR) vereint. Dieses Konzept bietet eine bisher unerreichte Kombination aus modularer Flexibilität und vibrationsfreiem Betrieb und stellt somit einen bedeutenden technologischen Fortschritt im Vergleich zum aktuellen Stand der Technik dar.

Aufgabenstellung des Teilvorhabens

Das Ziel des Teilvorhabens „Validierung“ im Verbundprojekt Q-NL bestand darin, die neuartige Experimentierumgebung zu erproben. Diese Experimentierumgebung ermöglicht die Entwicklung, Erforschung und Anwendung maßgeschneiderter Nanostrukturen im aufstrebenden Forschungsfeld der Quanten–Nanowissenschaften und Quantentechnologien der zweiten Generation. Zu diesem Zweck haben wir Nanostrukturen auf Basis von atomaren und molekularen Spin–Qubits in der Experimentierumgebung untersucht. Darüber hinaus haben wir Messungen an zweidimensionalen Spin–Gittern durchgeführt, die neuartige Vielteilchen–Quantenzustände und Quantenphasenübergänge zeigen. Zudem wurden zukünftige Messungen an Majorana–Zuständen in topologischen Systemen vorbereitet, indem kritische Komponenten für diese Experimente getestet wurden. Da eine effiziente physikalische Kontrolle der Quantenzustände in diesen Systemen nur bei sehr tiefen Temperaturen (unter 0,1 K) und unter Ultrahochvakuumbedingungen gelingt, konnten im Rahmen der explorativen Erforschung dieser Quantensysteme nicht nur neue Ergebnisse im Bereich der Einzelspin- und Quantenspingitterphysik erzielt werden, sondern es war auch möglich, das Experimentiersystem zu charakterisieren. Dies war für das Verbundprojekt von großem Vorteil, da dadurch eine schnelle und direkte Rückkopplung von zukünftigen Anwenderbedürfnissen erreicht wurde.

Ablauf des Vorhabens und Wesentliche Ergebnisse

Der Ablauf des Teilvorhabens gliederte sich in sechs Teilziele, die gemäß Projektantrag in aufeinander abgestimmten Arbeitspaketen erreicht werden sollten. Da die wissenschaftlichen Experimente weitestgehend nur an dem Demonstrator durchgeführt werden konnten, konnten nicht alle Teilziele vollständig erreicht werden. Dies ergab sich durch Zeitverzögerungen in den anderen Arbeitspaketen, welche die Fertigstellung des Gesamtsystems verzögerten. Auch die kostenneutrale Verlängerung um sechs Monate (bis zum 31.03.2025) nach Abschluss der regulären dreijährigen Förderphase (01.10.2021–30.09.2024) war nicht ausreichend, um alle konstruktiven Arbeiten am Prototypen erfolgreich abzuschließen und diesen einsatzfähig zu machen. Da lediglich die Integration der Kryostate in das Gesamtsystem noch aussteht, ist damit aber in naher Zukunft zu rechnen.

Trotz dieser Probleme konnten wichtige Erkenntnisse aus den durchgeführten Experimenten gewonnen werden, die für das Gelingen des Gesamtvorhabens sehr wichtig waren. Außerdem konnten dabei neue wissenschaftliche Ergebnisse generiert werden, die teilweise schon in Fachzeitschriften begutachtet veröffentlicht oder auf *ArXiv* der wissenschaftlichen Gemeinschaft zur Verfügung gestellt wurden. Darüber hinaus sind in mehreren Untersuchungen relevante Ergebnisse entstanden, die zu weiteren Fragestellungen und zukünftigen Veröffentlichungen führen werden.

Zusammenarbeit mit Verbundpartnern

Das Verbundprojekt wurde in enger Zusammenarbeit mit insgesamt fünf weiteren Partnern durchgeführt. Im Folgenden werden kurz die Kernaufgaben jedes Partners dargestellt:

- **Forschungszentrum Jülich GmbH** (Teilvorhaben *Inserts*): Verantwortlich für die Entwicklung und Bereitstellung der Inserts in den Kryostaten für die Rastersondenmikroskope.
- **mProbes GmbH** (Teilvorhaben *Rastersondenmikroskope*): Verantwortlich für die Entwicklung und Bereitstellung der ultrakompakten Rastersondenikroskope.
- **CryoVac GmbH & Co. KG** (Teilvorhaben *Kryostate*): Zuständig für die Entwicklung und Optimierung der Kryopumpe und des 4He-Badkryostaten und der 1K–Verdampfungskühlung als Vorkühlstufe für die ADR.
- **Bilfinger Noell GmbH** (Teilvorhaben *Magnete*): Entwickelt die supraleitenden Magnetsysteme für die ADR-Kühlung und die Probenmagnetfelder.
- **Universität Augsburg** (Teilvorhaben *UHV-ADR*): Entwickelt UHV-kompatible, ausheizbare ADR-Kühlpillen auf Basis von $KBaYb(BO_3)_2$ und verwandten Materialien.

II. Sachbericht

Darstellung der erzielten Projektergebnisse des Teilvorhabens „Validierung“

Teilziel 1 – Vergleich des Laboraufbaus mit herkömmlichen mk-STM Geräten

Um die Leistungsfähigkeit des zukünftigen Gerätes zu beurteilen können, sollte im **Teilziel 1** ein Vergleich mit herkömmlichen mk-STM gezogen werden. Die dazu erforderlichen wissenschaftlichen Experimente haben wir am existierenden Laboraufbau durchgeführt.

Um das **Teilziel 1.1. „Lebensdauer Spin Systeme“** und das **Teilziel 2.2. „Stark einkoppelte Spin Systeme“** erfolgreich zu erreichen, haben wir die Quantenphasen des prototypischen molekularen Spin-Systems PTCDA (3,4,9,10-perylenetetracarboxylic dianhydride) auf einer Silberoberfläche (Ag(111)) untersucht. Der Spin-Freiheitsgrad im PTCDA ist zweifach entartet, d. h., der Spin kann sich entweder im „up“- oder „down“-Zustand befinden. Magnetische Atome und Moleküle mit spinentarteten Grundzuständen zeigen typischerweise auf metallischen Oberflächen den Kondo–Effekt: Bei diesem Effekt wird bei Temperaturen unterhalb der sogenannten Kondo–Temperatur T_K der Spin-Freiheitsgrad durch die Bildung eines komplexen Vielelektronen-Singulettzustands mit den Badelektronen des Metalls abgeschirmt. Da T_K von der Kopplung des Spin-Freiheitsgrads mit dem Metall abhängt, kann der Kondo–Effekt verwendet werden, um die Wechselwirkung des magnetischen Atoms oder Moleküls mit der metallischen Umgebung zu messen. Bei Temperaturen oberhalb von T_K oder durch Anlegen eines ausreichend starken externen Magnetfeldes kann der Kondo–Zustand in einen freien paramagnetischen Spin überführt werden.

Abbildung 1a zeigt das Experiment schematisch. Um das Molekül möglichst stark vom Silber zu entkoppeln, wurde es mithilfe der Spitze so positioniert, dass es nur über zwei Silberatome mit der Oberfläche in Kontakt steht. Bei Millikelvin–Temperaturen erscheint im differentiellen Leitfähigkeitsspektrum (dI/dV-Spektrum) ein Peak an der Fermikante, d. h. bei Nullspannung (Abbildung 1c). Ein solches Spektrum ist charakteristisch für den Kondo–Effekt und die Breite des Peaks ist direkt linear mit der Kondo–Temperatur T_K verbunden. Die sehr schwache Substratkopplung führt zu einem T_K von nur 291 ± 13 mK. Nach unserem Kenntnisstand wurde bisher keine kleinere Kondo–Temperatur T_K für Adsorbate auf Metalloberflächen berichtet. Vergleichbar niedrige T_K wurden bisher ansonsten nur in mesoskopischen Quantenpunkten gefunden.

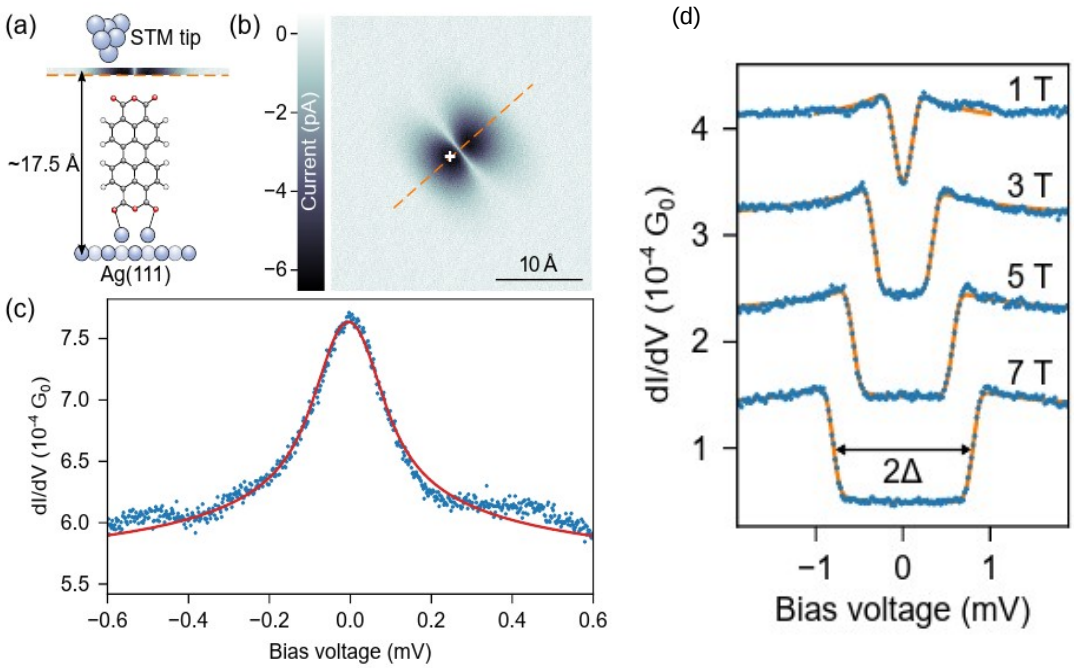

Abbildung 1: (a) *Schematische Darstellung eines stehenden PTCDA Moleküls auf einer Ag(111)-Oberfläche, einschließlich der STM-Spitze.* ***(b)*** *Tunnelstrom, der bei konstanter Höhe über der Nanostruktur gemessen wurde. (c) Leitfähigkeitsspektrum (blau) gemessen bei T = 30 mK und B = 0 T. Die rote Kurve zeigt einen Fit mit einer Kondo-Temperatur* $T_K \approx 320$ *mK. (d) Spektrum bei höheren Magnetfeldern, in denen die Kondo-Korrelationsenergie viel kleiner als die Magnetfeldenergie ist* ($k_B T_K < g\mu_B B$).

An diesem Kondo–System mit wurden nun systematisch Messungen bei verschiedenen Magnetfeldern und Temperaturen, insbesondere in den Übergangsbereichen des Temperatur–Magnetfeld–Phasendiagramms, vorgenommen. Bei sehr hohen Magnetfeldern, bei denen die Magnetfeldenergie $g\mu_B B$ ist deutlich größer als die Kondo–Korrelationsenergie $k_B T_K$ ist (g: gyromagnetischer Faktor, μ_B: Bohr–Magneton, k_B: Boltzmann–Konstante), sehen wir wie erwartet eine Aufspaltung des Peaks sowie Stufen symmetrisch zur Nullspannung. Diese Spektren konnten innerhalb eines störungstheoretischen Modells perfekt abgebildet werden, und zeigen, dass die aus den Spektren extrahierte Elektronentemperatur sehr nahe an der gemessenen Temperatur des Gerätes liegt.

Die Leistungsfähigkeit des Gerätes zeigt sich dabei insbesondere in der Temperaturstabilität auch bei unterschiedlichsten Magnetfeldern. Das ermöglichte die Kopplung des Elektronenspins im Molekül mit den Metallelektronen und mit dem externen Magnetfeld zu bestimmen. Dabei zeigt sich, dass der reine g−Faktor, der die Kopplung zum Magnetfeld beschreibt, bei tieferen Temperaturen zunimmt (Abbildung 2b). Die ist zu erwarten, da im gleichen Maße die Kopplung zunimmt, so dass, nach Berücksichtigung der Normalisierungseffekte, sich ein konstanter g−Faktor einstellt.

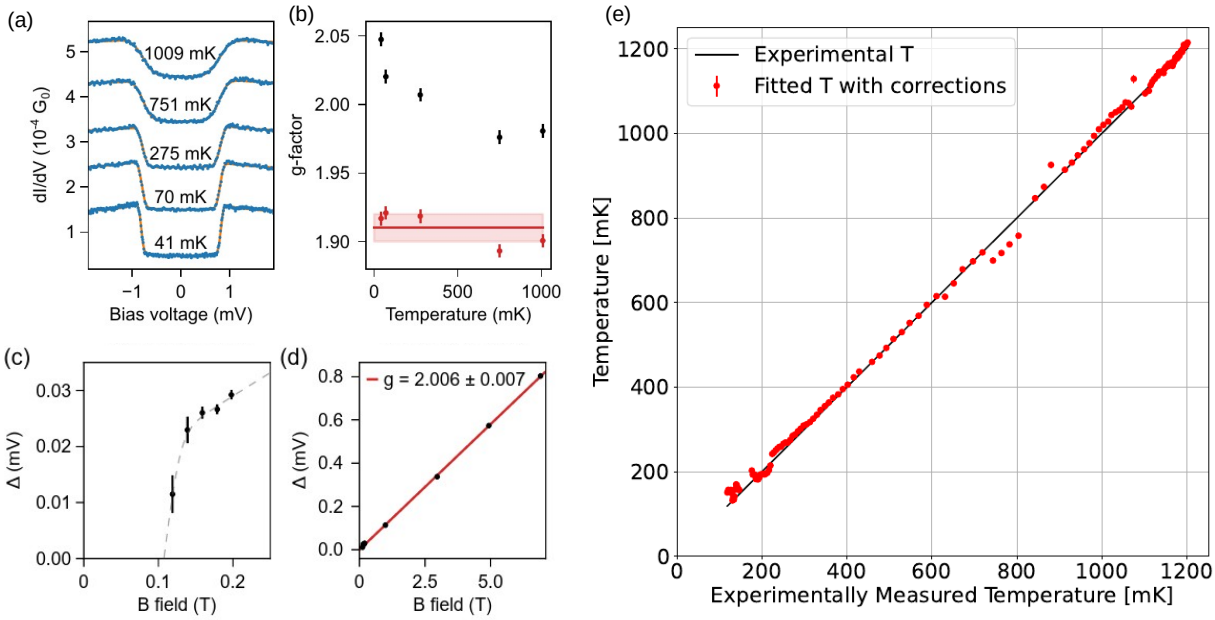

Abbildung 2: (a) *dI/dV-Spektren (blau), die bei verschiedenen Temperaturen in einem externen Feld von B = 7 T gemessen wurden. Die orangefarbenen Kurven zeigen Fits an ein störungstheoretisches Modell.* ***(b)****: Landé-g-Faktor, ermittelt aus den Fits in (a) (schwarz), und der effektive g−Faktor nach Berücksichtigung der Renormalisierungseffekte aufgrund der Austauschwechselwirkung.* ***(c)*** *und* ***(d)****: Die Zeeman−Aufspaltung, die aus den dI/dV−Spektren extrahiert wurde, ist als Funktion von B dargestellt. Die grau gestrichelte Kurve in (c) dient als Orientierungshilfe. Die rote Linie in (d) zeigt die lineare Aufspaltung in Abhängigkeit von B.* ***(e)****: Temperatur thermometrisch bestimmt über die am Spin−System aus den Spektren extrahiere Temperatur.*

Bei kleinen Magnetfeldern und sehr tiefen Temperaturen sehen wir, dass die Linearität zwischen Aufspaltung und Magnetfeld zusammenbricht. Unter einem kritischen Magnetfeld kann keine Aufspaltung mehr detektiert werden, da das Magnetfeld nicht ausreichend ist, um das molekulare Spin-System aus seinem Vielteilchen−Kondo−Singulett zu bringen (Abbildung 2c). Die extrem hohe Präzision der Temperaturstabilität zeigt sich an ähnlichen Messungen, bei der das Molekül an der Spitze befestigt war. Hier sehen wir das die aus den Spektren via Fits extrahierte Temperatur sehr gut mit der Temperatur im Instrument übereinstimmt (Abbildung 2d). Mir ist weltweit kein Rastersondemmikroskopisches Experimentiersystem bekannt, welches auch nur annähernd eine solche Temperaturstabilität besitzt.

Die überragende Stabilität der Experimentierumgebung zeigte sich auch in anderen für die Rastertunnelmikroskopie und −spektroskopie wichtigen Bereichen. Abbildung 3a und 3b zeigen topographische Messungen an einer supraleitenden Al(100)−Oberfläche. Die Oberflächenatome sind mit einer Korrugation von nur 1 pm eindeutig identifizierbar und das z−Rauschen ist mit ~100 fm auch im Vergleich zu anderen auf dem Markt befindlichen Geräten sehr klein.

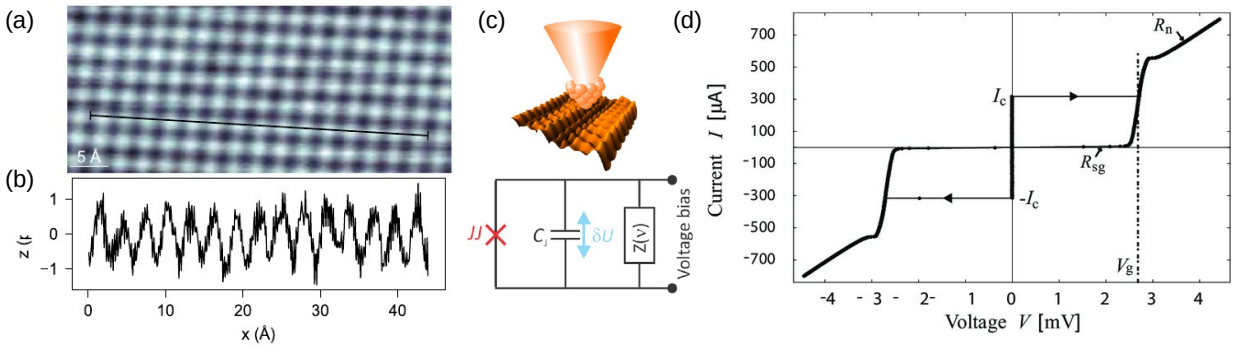

Abbildung 3: (a+b) *Eine Al(100) Oberfläche gemessen bei T = 196mK. Das Höhenprofil entlang der schwarzen Linie in (a) zeigt eine Rauschen von Δz < 100pm.* ***(c+d)*** *Schematische Darstellung des Experiments zur Bestimmung des Einflusses der elektromagnetischen Environment.*

An dieser supraleitenden Oberfläche wurde das sogenannte Josephson–Tunneln untersucht. Dabei wird neben einer supraleitenden Oberfläche auch eine supraleitende Spitze in einen Tunnelkontakt gebracht (siehe Abbildungen 3c und 3d). In diesem Zustand können die den Suprastrom tragenden Cooper-Paare die Barriere ohne Energieverlust überwinden. Die gemessene Verbreiterung des Josephson–Stroms hängt maßgeblich von der elektromagnetischen Umgebung des Tunnelkontakts ab. Aus diesen Messungen konnte eine sehr niedrige effektive Temperatur von T_{env} = 1.5 K ermittelt werden.

Im weiteren Verlauf des Projekts wurden Vorarbeiten für das **Teilziel 1.2. „Majorana Zero–Modes in Spin–Ketten“** getätigt. In diesen parallel durchgeführten Messungen wollten wir die Existenz von topologischen Majorana–Zuständen, sogenannten Majorana–Zero–Modes (MZM), in Ketten aus metallischen Atomen mittels STM untersuchen. Wie kürzlich gezeigt wurde, gibt es starke Hinweise darauf, dass MZM–Zustände an den Enden von ferromagnetisch gekoppelten Atomketten auf Supraleitern entstehen können. Zu diesem Zweck wurde ein Miniaturverdampfer von vom Projektpartner ***mProbes*** entwickelt, der das Aufdampfen von von einzelnen Metallatomen auf einer ultrakalten Oberfläche ermöglicht.

Das Aufdampfen muss bei Temperaturen unter 20 K stattfinden, damit die Atome beim Landen auf der Oberfläche schnell thermalisiert werden; andernfalls kommt es zu einer Clusterbildung. Dies wurde erreicht, indem der Verdampfer auf einer Standard–„Flag-Style“–Probenplatte integriert wurde, sodass er mit dem Probenmanipulator in das Mikroskop eingesetzt werden kann.

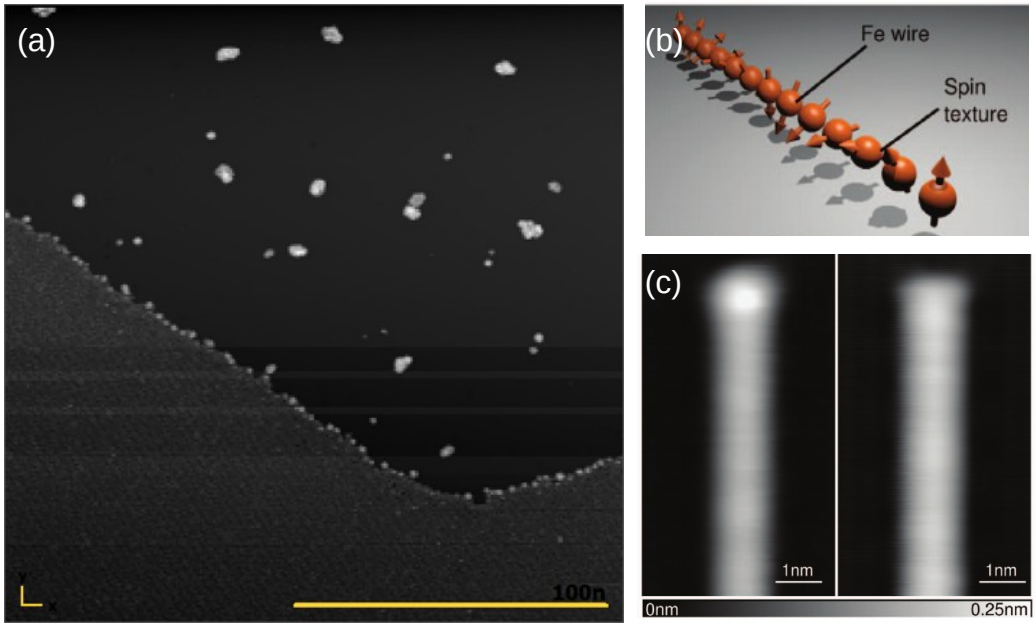

Abbildung 4: (a) *STM Topograph von Fe-atomen und kleinen Fe-Clustern auf Pb(110).* ***(b)*** *Geplante Umsetzung zum Erzeugen von Majorana Zero-Modes.* ***(c)*** *Wachstum von Ketten aus Fe-Atomen entlang der Pb(110) Oberfläche. Die Majorana Zero-Modes bilden sich an den Kettenenden (Abbildungen b+c aus R. Pawlak, et. al., npj Quantum Inf. 2, 16035 (2016)).*

Abbildung 4a zeigt die ersten Ergebnisse dieses Ansatzes. Auf einer sauberen Pb(110)–Probe wurden Eisenatome aufgedampft. Wir erkennen einzelne Eisenatome und die Bildung kleiner Cluster. Ein selbstständiges Kettenwachstum, in dem die MZM hätten detektiert werden können, haben wir leider nicht erreicht. Wir vermuten, das dafür die Probentemperatur zu niedrig und die aufgedampfte Menge an Eisenatomen zu gering war.

Teilziel 2 – Validierung des AFM/STM Prototyps

Nach dem vom Projektpartner ***mProbes*** ein kombiniertes Rastertunnel– und Rasterkraftmikroskop für den Demonstrator entwickelt wurde, konnten wir seine Leistungsfähigkeit sowohl in Bezug auf reine kraftmikroskopische Messungen als auch in kombinierten STM/AFM Experimenten validieren.

Diese ersten Testmessungen wurden bei Raumtemperatur und Atmosphärendruck durchgeführt und zeigen, dass der AFM/STM Prototyp prinzipiell den Anforderungen für die Teilziele 2.1. und 2.2. genügt. Die Abbildung 5 zeigt den Aufbau und die ersten Ergebnisse gemessen auf einer dünnen Goldlage auf Graphit. Der Prototyp konnte durch die Verzögerungen im Aufbau der Gesamtanlage noch nicht bei tiefen Temperaturen und im Vakuum getestet werden.

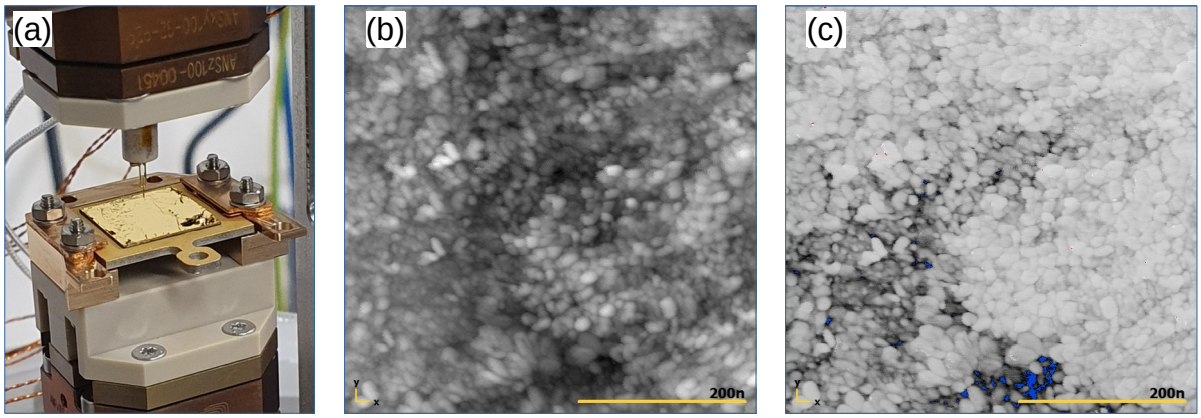

Abbildung 5: (a) *Bild des kombinierten STM/AFM−Prototyps. Im oberen Teil ist die Scanplattform zu erkennen, an der ein Needle−Sensor befestigt ist. Mit dieser kann die Probe abgebildet werden.* ***(b)*** *Topographie einer Probe aus einer Goldschicht auf Graphit.* ***(c)*** *Frequenzverschiebung, die simultan mit (b) gemessen wurde.*

Hier war im **Teilziel 2.1. „AFM an topologischen Isolatoren“** geplant, lokalisierte Majorana−Zustände an den Enden von quasi−eindimensionalen topologischen Isolatoren (TI) zu erzeugen und zu vermessen. Die TI−Nanostrukturen mit wohldefiniertem Durchmesser werden von unserem Kooperationspartner Dr. Schüffelgen epitaktisch auf einer dielektrischen SiN−Maske gewachsen. Solche Proben konnten bisher nicht in STMs vermessen werden, da die nichtleitende dielektrische Maske ein kontrolliertes Annähern der STM−Spitze an das Substrat verhindert. Deshalb muss zum Annähern der Probe and die Spitze ein AFM eingesetzt werden. Für den Erfolg dieses Experiments ist ein großer Messbereich von 30 µm x 30 µm des kombinierten STM/AFM von besonderer Bedeutung, da diese Strukturen mesoskopische Dimensionen besitzen und die MZM einige µm voneinander entfernt sein müssen, um stabile Nullmoden auszubilden.

Das **Teilziel 2.2. „Stark einkoppelte Spin Systeme“** sollte ursprünglich an durch eine Isolatorschicht, wie beispielsweise Magnesiumoxid, entkoppelten Atomen und Molekülen durchgeführt werden. Wie oben ausführlich dargestellt, wurde dieses Ziel jedoch durch mechanisches Entkoppeln des Spin-Systems vom Substrat erreicht.

Teilziel 3 – Validierung des STM Prototyps mit Hochfrequenzverkabelung

Der ursprüngliche Plan für dieses Teilziel war, nach der Installation der Hochfrequenzverkabelung am reinen STM−Prototypen zeitaufgelöste Messungen sowie Messungen, die Mikrowellenanregungen benötigen, an einzelnen sowie gekoppelten Spinsystemen durchzuführen und damit das System zu Validieren.

Aufgrund der Verzögerungen beim Aufbau des Gesamtsystems konnte dieses Teilziel nur teilweise erreicht werden. Der Projektpartner Inserts hat einen STM−Stick mit HF−Verkabelung entwickelt und hergestellt. Für die möglichst verlustarme Übertragung der Hochfrequenz wurden darin halbstarre Kabel aus Edelstahl sowie supraleitende Kabel für den Bereich unterhalb der 1K−Stufe verwendet. Halbstarre Kabel aus

Edelstahl haben den Vorteil, dass sie Hochfrequenz im GHz–Bereich relativ verlustfrei übertragen, bei gleichzeitig geringer Wärmeleitung. Sie entsprechen dem Stand der Technik. Unterhalb der 1K–Stufe konnte die Wärmeleitung und damit der Wärmeeintrag in den Messkopf durch die Verwendung der supraleitenden Kabel nochmals deutlich verringert werden.

Für dynamische Messungen an atomaren und molekularen Spinstrukturen müssen Signale mit GHz-Frequenzen und einer Zeitauflösung von unter 5 ns in den Spitze–Probe–Kontakt gebracht werden. Nur dann können einzelne Spin–Qubits kohärent gesteuert oder gekoppelte Qubits in einen kohärenten Superpositionszustand (Verschränkung) gebracht werden. Um das Potenzial des STM–Sticks mit HF–Verkabelung zu validieren, haben wir seine Transferfunktion bei Raumtemperatur gemessen und mit dem existierenden Laboraufbau verglichen. Abbildung 6 zeigt die Ergebnisse. Während die Transferfunktion des existierenden Laboraufbaus schon bei Frequenzen oberhalb von 600 MHz zusammenbricht, zeigt der neue Aufbau in logaritmischer Darstellung einen erwarteten linearen Abfall bis zu den höchsten Frequenzen von 40 GHz. Außerdem bilden sich nur sehr wenige schwache Pole aus, die eine Kompensation der Transmission sehr vereinfachen wird.

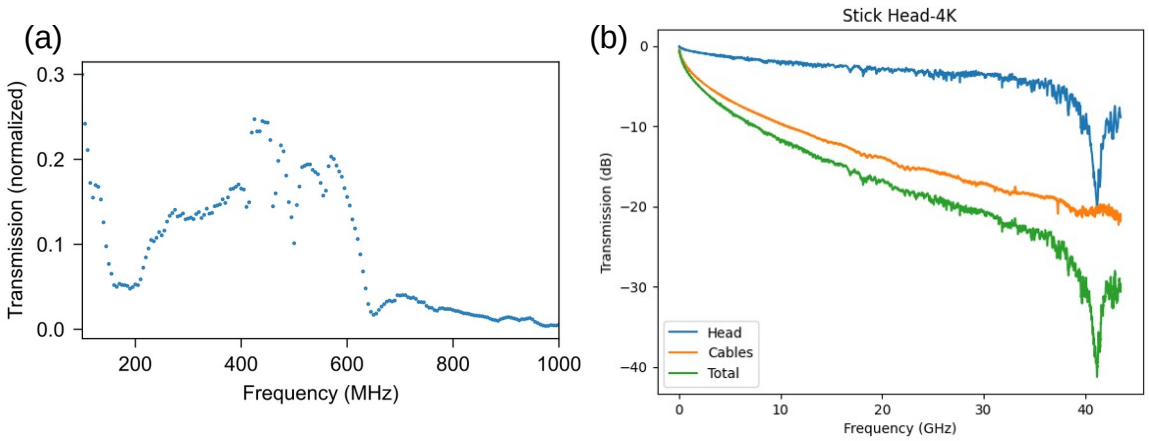

Abbildung 6: (a) *Transferfunktion des ursprünglichen Laboraufbaus.* ***(b)*** *Signifikant verbesserte Transferfunktion des neu entwickelten Hochfrequenzeinsatzes. Blau: Transferfunktion des Kopfes, orange: der Kabel, sowie grün: die Gesamttransmission.*

Teilziel 4 – Validierung des kombinierten STM/AFM Insert mit Vektormagneten

Dieses Teilziel konnte noch nicht erreicht werden, da durch Verzögerungen in der Herstellung und der Integration des Vektormagneten in das Gesamtsystem bis zum Ende des Beritszeitraumes noch nicht abgeschlossen ist. Nichtdestotrotz werden wir diese Validierung nach der Fertigstellung des Gesamtsystems aus kombinierten Rastertunnel- und Rasterkraftmikroskop mit Vektormagnetfeld durchführen. Um die noch nötigen Arbeiten zu beschleunigen und insbesondere dem Projektpartner **Inserts** eine weitere Testplattform für seine Sticks zur Verfügung zu stellen, konnten wir einen derzeit nicht benötigten, Testkryostaten bereitstellen (Abbildung 7).

Dieser verfügt über eine 1K–Joule–Thompson–Stufe und ein axiales Magnetfeld von bis zu 14 T. Somit können in diesem nicht nur die Messköpfe mit relativ geringen Aufwand getestet werden, sondern es ist auch möglich, neuartige Kühlpillen für die adiabatische Demagnetisierungsstufe zu testen.

***Abbildung 7**: Bild des Testkryostaten für Tests der Inserts bei tiefen Temperaturen und im Ultrahochvakuum. Dieser Kryostat bietet die Möglichkeit Tests durchzuführen, ohne Experimente im Laboraufbau unterbrechen zu müssen.*

Teilziel 5 – Validierung des kombinierten STM/AFM Insert mit Vektormagneten und Hochfrequenzverkabelung durch Dynamische Messungen von MZM

Im gleichen Maße wie beim Teilziel 4 konnte dieses Teilziel nicht erreicht werden, da die durch Verzögerungen in der Herstellung und der Integration des Vektormagneten in das Gesamtsystem bis zum Ende des Berichtszeitraumes noch nicht abgeschlossen ist.

Teilziel 6 – Validierung des Multispitzen Inserts

Im Teilziel 6 sollte nach der Installation des Multispitzen–Messkopfes im modularen mK–SPM dessen Leistungsfähigkeit validiert werden. Da der Multispitzen–Messkopf bis zum Ende der Laufzeit nicht fertiggestellt und uns somit nicht zum Validieren übergeben werden konnte, wurden die wissenschaftlichen Experimente, die zum Erreichen dieses Teilziels vorgesehen waren, an dem Einzelspitzen–Aufbau durchgeführt.

Insbesondere im **Teilziel 6.1: „Validierung an Spin–Gittern“** wurden dabei sehr interessante Ergebnisse erzielt, die im Folgenden kurz vorgestellt werden. Wir haben eine selbstorganisiert wachsende Monolage aus 1,4,5,6-Naphthalentetracarbonsäuredianhydrid (NTCDA) Molekülen auf einem Ag(111)–Substrat untersucht. In der Gasphase ist das Molekül ladungsneutral. Bei der Adsorption auf Ag(111) verschiebt sich jedoch sein niedrigstes unbesetztes Molekülorbital unter die Fermi–Energie, wodurch es zu einem einfach besetzten Molekülorbital (SOMO) mit Spin 1/2 wird. In STM–Topographie werden die Moleküle

bei niedrigen Spannungen als hantelförmige Objekte abgebildet. Dabei wechseln sich Reihen von topografisch höheren (helleren) und niedrigeren (dunklen) Molekülen ab (Abbildung 8a). Die Einheitszelle dieses Übergitters enthält daher zwei leicht unterschiedliche Moleküle: ein helles und ein dunkles. Interessanterweise zeigt dasselbe Gitter bei Spannungen $V > 1{,}3$ V ringförmige Strukturen in der dI/dV Topographie, die sich um die hellen Moleküle herum konzentrieren (Abbildung 8b). Diese Ringe stammen von einem starken Übergangspeak (TP), der auch in der Einpunktspektroskopie über den hellen Molekülen zu sehen ist (Abbildung 8c).

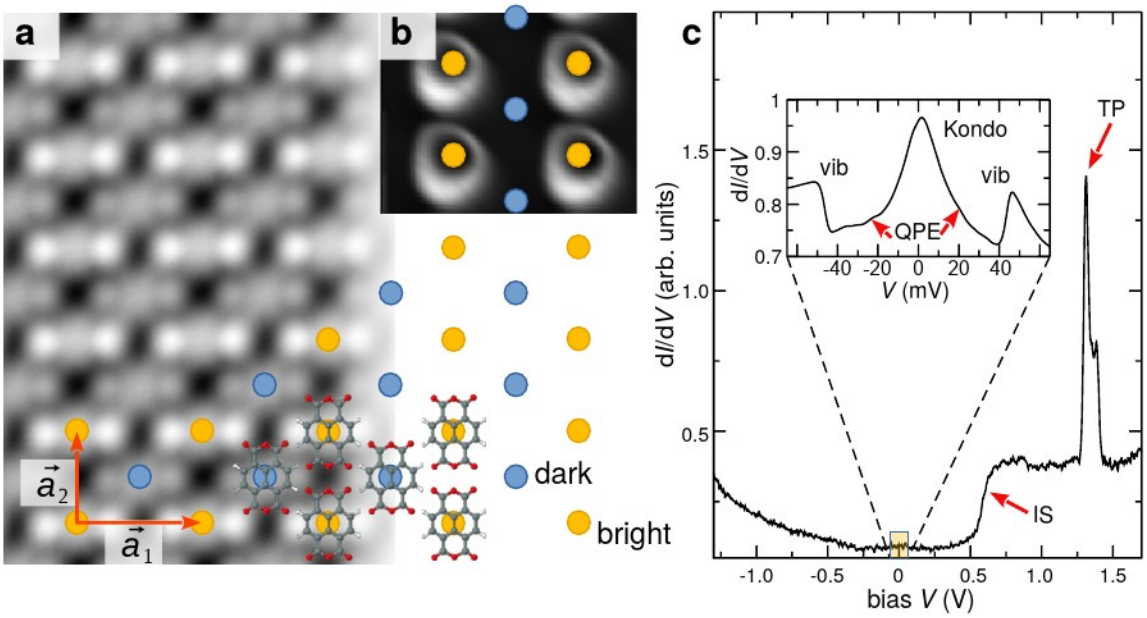

Abbildung 8: (a) *STM Topographie einer Monolage aus NTCDA-Molekülen auf Ag(111), welches Moleküle mit höherem (hellerem) und niedrigerem (dunklerem) Erscheinungsbild (gelbe bzw. blaue Punkte) zeigt. Der Höhenunterschied beträgt ≈ 30 pm. Überlagert sind ein Modell der Moleküle und die Gitterbasisvektoren.* ***(b)*** *Bild der differenziellen Leitfähigkeit, gemessen bei höherer Tunnelspannung (V = 1,4 V). Es zeigt ringförmige Strukturen, deren Zentren in der Mitte jedes hellen Moleküls liegen.* ***(c)*** *Das dI/dV-Spektrum, das über der Mitte eines hellen Moleküls gemessen wurde, zeigt zwei markante Merkmale: den Grenzflächenzustand (interface state: IS) der Ag(111)-Oberfläche und einen scharfen Übergang (transition peak: TP), der den Ursprung der ringförmigen Strukturen in Panel (b) bildet. Die Einfügung zeigt ein über das Gitter gemitteltes dI/dV-Spektrum nahe der Fermi-Energie. Es sind molekulare Schwingungsmoden (vib), eine Kondo-Resonanz und Vielteilchenzustände (QPE), die im Gitter entstehen, zu erkennen.*

Bei Energien nahe der Fermi–Energie finden wir sehr komplexe und stark positionsabhängige Spektren im Gitter. Ein über das Gitter räumlich gemitteltes Spektrum (Abbildung 8c, Einfügung) zeigt einen breiten Peak, der durch den Kondo–Effekt an jedem Molekül verursacht wird. Darüber hinaus enthält das Spektrum inelastische Schwingungsanregungen der einzelnen Moleküle bei ≈ ± 47 meV. An den Flanken des Kondo–Peaks sind gut aufgelöste Vielteilchenzustände (QPE) erkennbar.

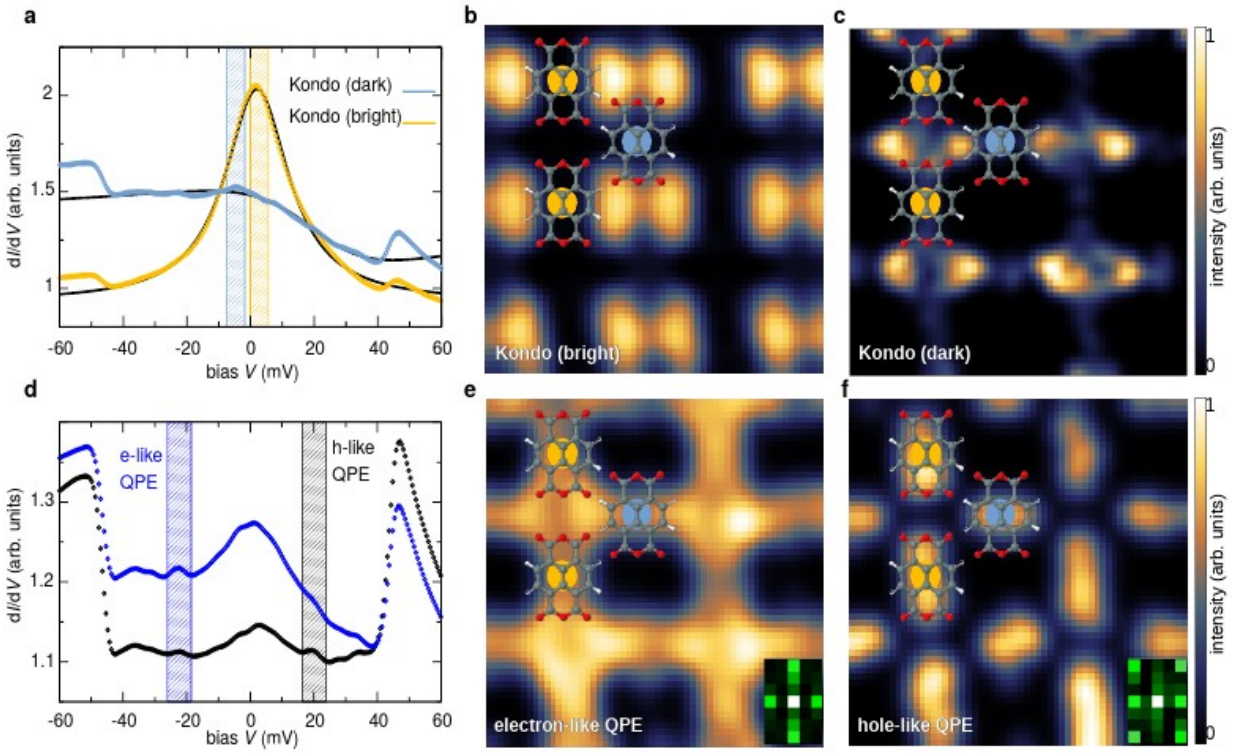

***Abbildung 9 (a)**: Gemittelte Kondo–Resonanzen, gemessen an hellen und dunklen Molekülen, und entsprechende Fits. **(b+c):** Farbcodierte Karten der Intensität der Kondo Peaks in den in Panel (a) markierten Energiebereichen und überlagertes Modell der Moleküle. **(d)** Gemittelte Spektren der QPE. **(e+f)** Farbcodierte Karten der Intensität der QPE-Merkmalen in den in Panel (d) markierten Energiebereichen und überlagertes Modell der Moleküle.*

Um die spektroskopischen Merkmale besser zu verstehen, haben wir Spektren auf einem Gitter aufgenommen und analysiert. In diesem Datensatz sind zwei Peaks nahe an der Fermi–Kante zu erkennen, deren gemittelte Spektren den Kondo–Resonanzen der hellen und dunklen Moleküle entsprechen (Abbildung 9a-c). Im Vergleich zur Kondo–Temperatur von T_K = 132 ± 5 K der hellen Moleküle zeigt das Spektrum der der dunklen Moleküle eine höhere T_K = 340 ± 20 K, was auf eine stärkere Hybridisierung mit dem Substrat zurückzuführen ist. Anstelle eines Peaks zeigt es eine asymmetrische Fano–Linienform, die aus der Interferenz zwischen zwei möglichen Tunnelprozessen, entweder über die Resonanz oder direkt in das Substrat, herrührt.

Die Kondo–Resonanzen sind stark an den Enden der hantelförmigen Topografie der Moleküle lokalisiert, die ihren C–H–Bindungen entsprechen. In der Mitte des Moleküls verschwindet die Resonanz hingegen. Eine solche Verteilung kann nicht von einem symmetrischen Orbital stammen. Sie deutet vielmehr auf ein π–ähnliches Molekülorbital mit einer Knotenebene entlang der Längsachse des Moleküls hin. Dieses π–Orbital enthält ein räumlich verteiltes magnetisches Moment mit einer Phasenverschiebung von π zwischen den beiden Enden und ermöglicht so eine signifikante intermolekulare Kopplung.

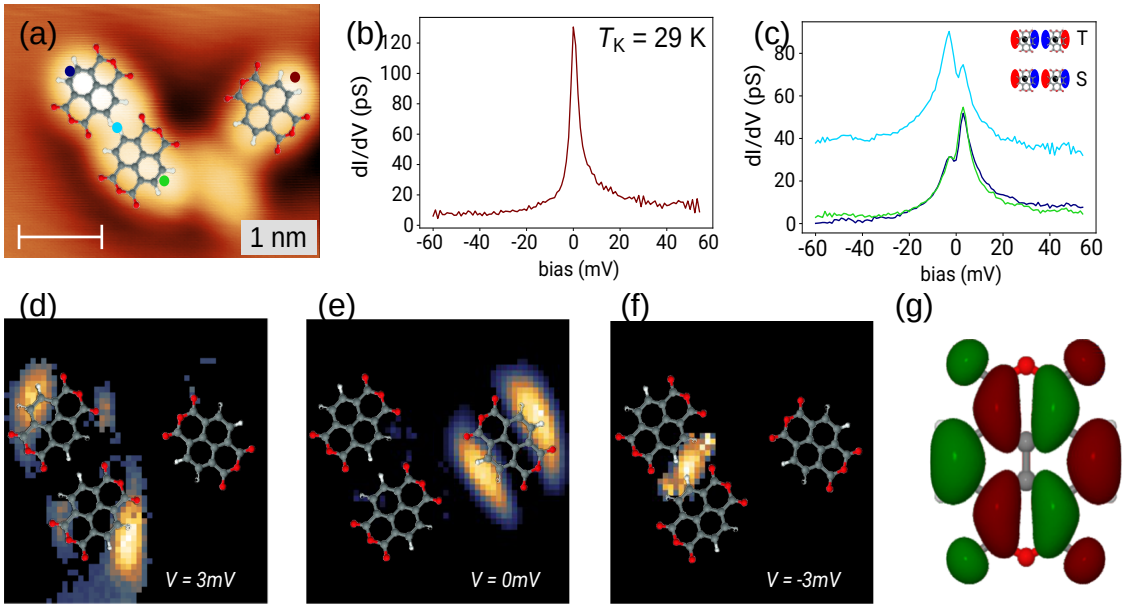

Abbildung 10: (a) *STM-Bild der Monomer- und Dimerstruktur.* ***(b+c)*** *Spektren, aufgenommen an den farbcodierten Stellen in (a). Die Einfügung zeigt die Kondo–Temperatur für das Monomer und farbcodiert die Phasen der Singulett–Triplett–Anregung für das Dimer. Die Spektren in (c) sind zur besseren Übersichtlichkeit vertikal verschoben.* ***(d-f)*** *Peakintensität für verschiedene Tunnelspannungen.* ***(g)*** *Wellenfunktion des niedrigsten unbesetzten Orbitales von NTCDA aus DFT–Berechnungen.*

Die Zustände an den Flanken des Kondo−Peaks bei −23 mV und +20 mV sind deutlich unterscheidbar. Ihre Abbildung zeigt, dass der besetzte Zustand bei negativer Spannung am stärksten zwischen den Molekülen lokalisiert ist, während der unbesetzte Zustand in der Mitte jedes dunklen und hellen Moleküls lokalisiert ist (siehe Abbildung 9d−f). Diese Verteilung erinnert an Bindungs- und Antibindungs-kombinationen zwischen den π−Zuständen der benachbarten Moleküle erinnert und zeigt, dass sich ein korreliertes Gitter gebildet hat. Diese neuen Zustände haben eine zusammengesetzte Struktur, die Beiträge sowohl von den lokalisierten π−Elektronen der Moleküle als auch von den Leitungselektronen des Silbers enthalten.

Um die Vielzahl von Ein- und Vielteilcheneffekten im NTCDA Gitter besser zu verstehen und ein tieferes Verständnis der auftretenden Effekte zu erlangen, haben wir Schritt für Schritt kleine Strukturen aus einzelnen Molekülen aufgebaut. Dabei fanden wir heraus, dass ein isoliertes Molekül auf der Silberoberfläche keinen Kondo-Effekt zeigt. Die Situation ändert sich jedoch, wenn die Kopplung des Moleküls zum Substrat gestört wird.

Das gestörte Monomer zeigt im Vergleich zum Gitter einen Kondo−Effekt mit deutlich reduzierter T_K von 29 K (siehe Abbildung 10a-b). Werden zwei Moleküle zu einem Dimer zusammengefügt, so sehen wir in den dI/dV−Spektren den Singulett−Triplett−Übergang mit stark asymmetrischen Peaks bei einer Spin−Spin−Austauschkopplungsenergie von etwa J = 1,5 meV (siehe Abbildung 10c),. Dies deutet

darauf hin, dass J größer ist als die Kondo-Abschirmungsenergie $E_K = k_B T_K$. Während die Kondo–Resonanz des Monomers wie erwartet an den C–H–Bindungen lokalisiert ist (siehe Abbildung 10e), sind die Resonanzen des Dimers abhängig von dem Vorzeichen der Tunnelspannung an verschiedenen Stellen im Dimer lokalisiert: Der Peak bei positiver Spannung ist maximal an den Enden der Struktur, während wir den Peak bei negativer Spannung zwischen den beiden Molekülen finden (siehe Abbildungen 10d und 10f). Diese Verteilung erinnert an die im Gitter gefundenen Quasiteilchenanregungen bei −23 mV und +20 mV.

Die Peak–Asymmetrie in diesem vergleichsweise einfachen System konnten wir mithilfe eines Zwei–Orbital–Anderson–Modells und einer modifizierten Schrieffer–Wolff–Transformation erklären, die zu einem effektiven, Kondo–ähnlichen Hamiltonian führt. Für das Verständnis der Beobachtungen entscheidend, ist die Annahme eines weiteren vollständig besetzten Orbitals in der Nähe der Fermi–Kante. Interferenzen zwischen diesem Orbital und den in ein Singulett und ein Triplett gesplitteten gemeinsamen Spin–Orbitalen des Dimers führen zu einer Peakasymmetrie für den Singulett–Triplett–Übergang, die von der Phasendifferenz $\Delta\phi$ zwischen den beiden Orbitalen abhängt. In diesem Experiment konnten wir somit den Phasenunterschied zwischen den beiden Enden des das magnetische Moment tragenden Orbitals eines einzelnen Moleküls direkt nachweisen.

Im Weiteren haben wir Strukturen aus vier Molekülen aufgebaut. Bei den Quadrumer–Strukturen erkennen wir Kondo–Screening bei identischen, hellen Molekülen in zwei verschiedenen Konfigurationen (siehe Abbildung 11a und b). Unter Verwendung eines 4–Seiten–Hubbard–Modells identifizieren wir in dem $n = 4$ Fock–Raum, das bedeutet jeweils ein Spin-tragendes Orbital pro Molekül, den Spin–Singlet–Grundzustand und drei angeregte Spin–Tripletts, wobei nur diejenigen bei $E = 8t^2/U$ identische Moleküle in der Triplettkonfiguration aufweisen (siehe Abbildung 11c). Da alle ladungsangeregten Zustände mit $n = 5$ beziehungsweise $n = 3$ Überlagerungen von weitgehend identischen Molekülen sind und jeder Kondo–Spinflip über Ladungsanregungen erfolgen muss, können nur identische (helle) Moleküle eine $S = 1$ Kondo–Abschirmung erreichen. Deshalb beobachten wir nur in zwei gegenüberliegenden Molekülen einen Peak an der Fermi–Kante.

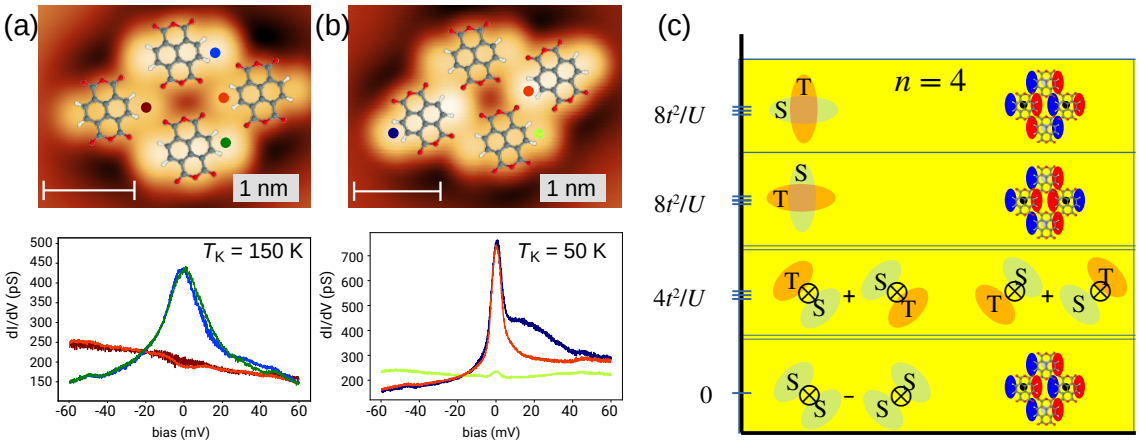

Figure 11: (a+b) *STM–Topographien und dI/dV–Spektren, gemessen auf zwei prototypischen Quadrumeren.* ***(c)*** *Schematisches Energieniveaudiagramm mit t als Sprungparameter zwischen benachbarten Molekülen und U als intraorbitale Coulomb–Abstoßung.*

Zusammenfassend haben wir aus den den Bausteinen des 2D–Spin–Gitters Strukturen von ein bis vier NTCDA–Molekülen hergestellt. Wir konnten den Kondo–Effekt in diesen Molekülen untersuchen und haben festgestellt, dass er sehr empfindlich auf die Geometrie reagiert. Im Dimer wird das Screening durch die Wechselwirkung zwischen den Spins behindert. Dies führt zu einem Singulett–Triplett–Übergang mit einer Spannungsasymmetrie, die von der lokalen Phasendifferenz der Zwei–Teilchen–Wellenfunktion abhängt. In Quadrumerstrukturen können wir den Kondo–Effekt aufgrund der Verfügbarkeit von ladungsangeregten Zuständen nur bei zwei gegenüberliegenden Molekülen beobachten. Ausblickend werden wir unsere Forschung auf komplexere Strukturen ausweiten, um tiefere Einblicke in die Physik des Gitters zu gewinnen.

Erläuterungen des des zahlenmäßigen Nachweises

Die im Rahmen des Projekts bewilligten Mittel wurden vollständig in Anspruch genommen. Gemäß der Finanzierungsplanung wurden sie für Personalausgaben im Zusammenhang mit den geplanten Evaluierungsarbeiten sowie für Verbrauchsmaterialien eingesetzt. Ein detaillierter zahlenmäßiger Nachweis über die Mittelverwendung wurde separat übermittelt.

Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die im Rahmen dieses Projekts durchgeführten Arbeiten waren notwendig und angemessen, um die angestrebten wissenschaftlichen und technologischen Ziele zu erreichen. Nur dank der bereitgestellten Förderung konnten unsere Arbeiten die einzigartigen Möglichkeiten der modularen Experimentierplattform für Rastersondenmikroskope bei Millikelvin-Temperaturen in wissenschaftlich anspruchsvollen Experimenten zeigen. Dadurch konnten wir einerseits während der

Entwicklung Feedback geben und andererseits die zukünftige Vermarktung entscheidend vorantreiben.

Voraussichtlicher Nutzen und Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die im Rahmen des Gesamtprojekts entwickelten Systeme bieten einen hohen wissenschaftlichen und technologischen Nutzen und können unmittelbar im Rahmen der Kommerzialisierungsinitiative des Forschungszentrums Jülich eingesetzt werden. Sobald der Kryostat durch den Projektpartner Cryovac geliefert wird, steht das voll funktionsfähige System für weitere Experimente im Bereich der Quantum Nanoscience zur Verfügung. Hier planen wir unsere begonnenen Experimente weiterführen.

Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Während des Projektverlaufs sind keine F&E-Ergebnisse Dritter, die für das Vorhaben von Relevanz wären, bekannt geworden.

Erfolgte oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses

Wie in diesem Bericht dargestellt, wurden im Rahmen des Verbundprojekts Untersuchungen zur Validierung des bestehenden Laboraufbaus sowie des neu entwickelten Instruments für die Quantentechnologie anhand experimenteller Messungen durchgeführt. Die erzielten wissenschaftlichen Ergebnisse wurden sowohl auf nationalen als auch internationalen Konferenzen präsentiert und sind teilweise schon in Fachzeitschriften begutachtet und veröffentlicht veröffentlicht worden, über Plattformen wie *ArXiv* der wissenschaftlichen Gemeinschaft zur Verfügung gestellt worden. Darüber hinaus sind in mehreren Untersuchungen relevante Ergebnisse entstanden, die zu weiteren Fragestellungen und zukünftigen Veröffentlichungen führen werden.

Im Folgenden ist eine Übersicht der schon veröffentlichen Publikationen aufgeführt:

- S. Arabi, T. Esat, A. Sabitova, Y. Wang, H. Lee, C. Weber, K. Kern, F. S. Tautz, R. Temirov, M. Ternes, „*Portrait of locally driven quantum phase transition cascades in a molecular monolayer*“, arXiv:2208.10377 (2022).
- T. Esat, M. Ternes, R. Temirov, F.S. Tautz. „*Electron spin secluded inside a bottom-up assembled standing metal-molecule nanostructure*”. Physical Review Research 5, 033200 (2023).
- T. Esat, X. Yang, F. Mustafayev, H. Soltner, F.S. Tautz, R. Temirov. „*Determining the temperature of a millikelvin scanning tunnelling microscope junction*”. Communications Physics 6, 81 (2023).
- Y. Bae, M. Ternes, K. Yang, A. J. Heinrich, C. Wolf, C. P. Lutz, „*Direct Observation of Fully Spin-Polarized Tunnel Current Between Quantum Spins Using a Single Molecule Sensor*“, ACS Nano 19, 1361 (2025).