

スピン操作のためのヘテロスピン結合系の構築 Quantum Tunneling in Hetero-metallic Magnetic Molecules

東北大・金研 野尻浩之, 田中卓也
電気通信大 石田尚行

¹H. Nojiri, ¹T. Tanaka and ²T. Ishida

¹Institute for Materials Research, Tohoku University

²University of Electro-Communications

1. はじめに

スピン系において量子応答を得るためには、スピンのコヒーレント制御を行う必要がある。その有力な手段は、磁気共鳴状態を利用することである。実際、これまで、孤立スピン系を中心に、パルス EPR によるラビ振動の観測が報告されている。我々は、スピンの量子操作のために、制御容易なエンタングルメント系を系統的に開発し、さらにスケラブルな Q-bit 実現のために半導体ナノ構造体に埋め込んだ錯体分子スピンの構築を試みた。さらに、新しい手法として、光照射による電荷移動を伴うスピン転移を利用した多重制御による高速スイッチングを研究してきた。

2. Ln-R*ヘテロメタル錯体の開発

スピンの量子操作においては、反転と情報の保持をどのように両立させるかが課題となる。反転を行うために、スピン系は出来るだけ異方性が少なく、ハイゼンベルグ系と見なせる方が望ましい。異方性などが強いと、パルス EPR においてマイクロ波やミリ波で作られる動的な磁場の強度が技術的に大きく出来ない現状では、反転による操作がそもそも困難である。さらに、異方性による対称性の低下は、準位間に混成をもたらし、各量子状態の独立性を損なうことになる。一方で、スピンの反転により達成されたある量子状態を保持するためには、何らかの内部場によって、準位間のエネルギー差を作り出し、安定化させる必要がある。この目的のためには、異方性の強いイジング的なスピン系の方が有利である。実際に、異方性がないと、熱ゆらぎ等によるスピンの反転が容易におこり、コヒーレンスが失われる。このように、回転しやすいスピン系と保持しやすいスピン系という2つの要請は、矛盾する性質であり、それをどのように満たすのかは難しい問題である。

我々は、このような課題への解決方法として、ハイゼンベルグスピンとイジングスピンを交換相互作用で結合したヘテロメタル系の構築に取り組んできた。これまでは、3d 遷移金属と希土類の組み合わせを主に研究してきたが、遷移金属の $S=1/2$ のスピンは、ハイゼンベルグ的ではあるが、スピン軌道相互作用による異方性は決して無視できない。そこで我々は、今回、異方性が極めて小さなラジカルスピン:R*と希土類の組み合わせを研究した。この系は、ハイゼンベルグ+イジングスピン系として、量子スピン操作

における典型的な系となることが期待できる。

今回、構築したヘテロスピン系 Ln-2pyNO の構造のを Fig. 1 に示す。図の N-O 部分にラジカルスピンの存在し、酸素および窒素を介して中心にある希土類イオンと磁気結合をしている。

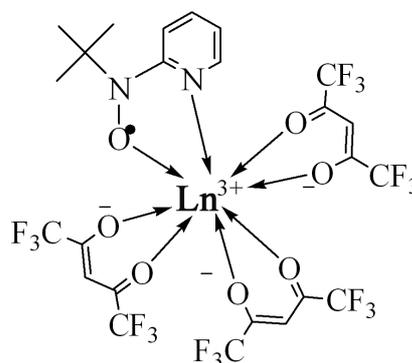


Fig. 1 Structure of Ln-Radical complex

今回測定した、EPR スペクトルを Fig. 2 に示す。Ln イオンとしては Dy である。高周波側では 1 本の吸収が見えているが、周波数を下げると 2 本になることがわかる。強度から、この2つの吸収をアサインすると、Fig. 3 のような周波数-磁場ダイアグラムが得られる。ここでは、強磁場部分のデータを足している。

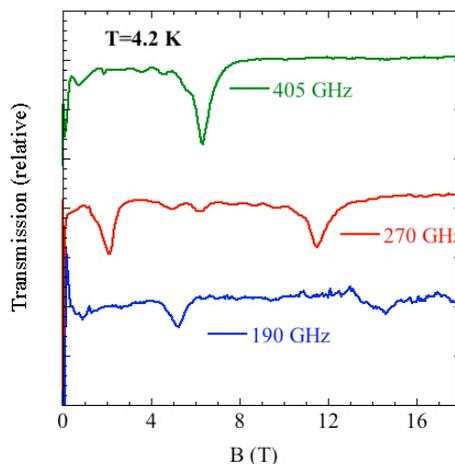


Fig. 2 EPR spectrum of Dy-2pyNO complex.

EPR 結果の特徴として、まず第一に、これらの 2本の吸収はいずれも、共鳴磁場が周波数と共に低磁場にシフトする傾向を示している。第二に、それぞれのモードの傾きは2に近いので、これらはラジカルのスピンの反転による吸収であることを示している。第三の特徴としては、通常線幅が双極子相互作用で支配される先鋭なものであるラジカルスピンの系と違い、今回の系では、線幅がかなり広いことがある。この線幅は、測定に用いたのが多結晶試料であるため、異方性の分布を反映している可能性があり、今後、単結晶によりその起源を精査することが必要である。

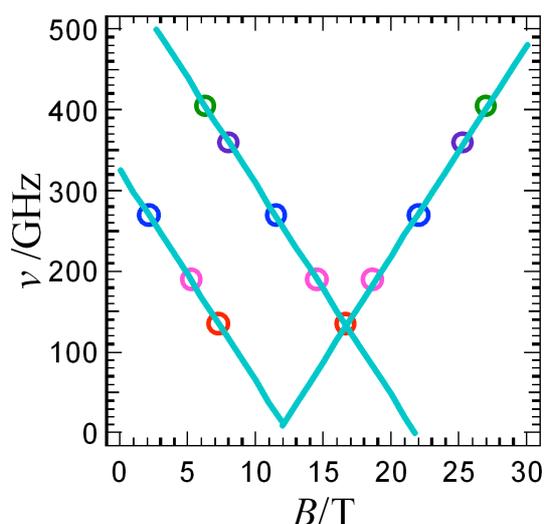


Fig. 3 Frequency-field diagram of Dy-2pyNO complex.

最初の2つの特徴から、今回見出された EPR の起源としては、Dy とラジカルスピン間の交換相互作用によりバイアスされたラジカルスピンの EPR 吸収であると解釈できる。その内部場の大きさは2つのモードによって異なるが、12-22 T程度と、これまでの 3d 遷移金属とのヘテロスピンの系に比べて大きな値を示しており、結合の強さの点でも今回の系が優位であることがわかった。これらの結果は、ラジカルスピンを希土類の作る強いイジング的な内部場により強制的にゼーマン分裂出来る事を示しており、ハイゼンベルグ+イジングスピンの構築に成功したことを示している。

3. 多重項間遷移 EPR

以下では、上記に述べた EPR の遷移要素に関して考察する。よく知られているように、EPR は磁気双極子相互作用により許容となるために、一般的に合成スピンは保存され、その z 成分である S_z が 1 変わる遷移が許容であり、それに加えて状態の混成があれば、高次の遷移も可能になる。

今回は磁気結合をした2つのスピンの EPR を観測したわけであるが、その遷移の起源は系をどのよう

に捉えるかによって異なる。磁気結合をした結果、Dy とラジカルスピンで新しい合成量子数 J を形成すると考えれば、ラジカルスピンの反転は、この合成スピンの保存則を破っていることになる。なぜなら、この立場では、今回観測された EPR は磁気量子数を変える遷移ではなく、 J そのものを変える遷移にあたり、多重項間の EPR 遷移というべきものだからである。

EPR における遷移行列は、状態間の混じりであり、量子トンネルにおけるギャップに関する量である。今回の Dy-R*系では、通常は生じない EPR 遷移が、このような状態間の混成を通して起こっていると考えられるが、その起源はハイゼンベルグとイジング系という対称性の異なるスピンを結合したことにあると考えられる。逆に言えば、これらの遷移行列要素は、組み合わせる系の対称性によって、設計可能な量であることになる。この点はスピン操作において、今回の系が有力になり得る事を示している。

4. その他

その他の成果としては、これまで凍結溶液など稀釈系において報告されてきたラビ振動を観測するために、ナノポーラスシリコンに埋め込み系を用いて、スケラブルな固体試料でのコヒーレンス制御を探索したこと。Fe-Co 錯体において、光誘起による電荷移動を用いて系のスピンの大きさそのものを変えて、異なった磁気状態間を遷移することを ESR により実証したことなどがあげられるが、これらに関しては紙数の関係上省略する。

5. まとめ

以上のように、希土類とラジカルスピン系からなるヘテロ系の分子磁性体は、強い磁気相互作用を持ち、希土類のスピンの向きを制御により、エネルギー準位を操作できることが示された。これはスピンによる情報保持において、重要な特性である。さらに、対称性の違いに起因する系の遷移行列要素を系統的に変化させて、スピンの EPR による反転のし易さを制御出来ることも明らかになった。これは、操作性の設計が可能であるという点で重要な特徴である。

参考文献

- [1] H. Nojiri and Z. W. Ouyang, THz Electron Spin Resonance on Nanomagnets, Terahertz Sci. Technol. 5(2012) 1-10.