

Oberflächliche Quantenkontrolle

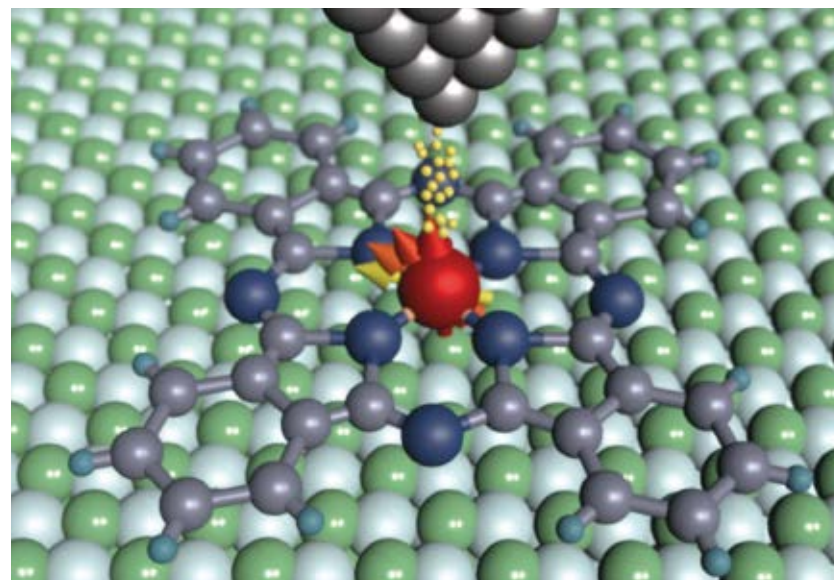
Resonanz an einzelnen Spins realisiert in einem Rastertunnelmikroskop erlaubt einen neuen Zugang zu deren Quanteneigenschaften

Philip Willke

Der Eigendrehimpuls oder auch Spin von fundamentalen Teilchen wie Elektronen ist ein Standardbeispiel für ein quantenmechanisches Zwei-Niveau-System und bildet die Basis für magnetische Phänomene. Auch sind Einzelelektronenspins in verschiedenen Quantenarchitekturen die Basis für Quantenbits für Quantencomputer und andere Quanteninformationsexperimente. Wenn Spins auf der Nanoskala genügend isoliert sind, können sie ihre quantenkohärenten Eigenschaften relativ lange beibehalten. Jedoch ist es dann oft ziemlich schwierig, ihre Zustände zu messen und kohärent zu steuern.

In diesem Artikel stelle ich eine neuartige Methode vor, mit der sich einzelne Spins auf atomarer Skala messen und steuern lassen. Diese basiert auf dem Rastertunnelmikroskop (Scanning Tunneling Microscope, STM), das seit fast vier Jahrzehnten Einblicke in die Nanowelt erlaubt. Für die erste Realisierung erhielten Gerd Binnig und Heinrich Rohrer 1986 den Physik-Nobelpreis.

Salopp gesagt funktioniert die Rastertunnelmikroskopie wie das Lesen von Blindenschrift. Statt des Fingers „rastert“ eine sehr feine Metallspitze über eine Oberfläche und regelt den quantenmechanischen Tunnelstrom auf einen konstanten Wert (Abb. 1). Mit Hilfe von Piezomaterialien ist dies so präzise möglich, dass Bilder mit atomarer Auflösung entstehen. Das eigentliche Messsignal ist hier der quantenmechanische Tunnelstrom. Dieser tritt auf, wenn zwischen Probe und Spitze eine elektrische Spannung anliegt und die



Spitze durch Adjustieren des Abstandes sehr nah – auf Größenordnungen von einem Nanometer – an die Probe gelangt. Dann können Elektronen von der einen zur anderen Seite tunneln. Durch Regelung des Tunnelstroms auf einen konstanten Wert lässt sich ein Höhenprofil der Oberfläche erzeugen. Dies erlaubt es, Atome oder Moleküle sichtbar zu machen.

Neben der Abbildung der Oberfläche kann das STM auch spektroskopisch zur Untersuchung lokaler

elektronischer Eigenschaften der Oberfläche eingesetzt werden. Dabei lassen sich nicht nur lokale Zustandsdichten am Fermi-Niveau untersuchen, sondern auch beliebige andere Energieniveaus – also auch solche, die durch Elektronenspins hervorgerufen werden.

In diesem Artikel wollen wir uns insbesondere auf den Spin von Atomen und Molekülen konzentrieren. Um deren magnetische Eigenschaften zu erforschen, kommen oft magnetische Spitzen zum Einsatz, bei denen

ZUSAMMENFASSUNG

Die Spinresonanz kommt in Kernspintomografen und in Analysegeräten in der Physik, Chemie und Biologie, sowohl in Forschung als auch Industrie zum Einsatz. Eine neue Methode erlaubt Elektronenspinresonanz an einzelnen Atomen und Molekülen in einem Rastertunnelmikroskop und liefert Einblicke in die Wechselwirkungen zwischen Atomen, in die Dynamik ihrer magnetischen Zustände und in die Eigenschaften einzelner Kernspins.

Elektronenspins legen den Grundstein für verschiedene magnetische Phänomene und bilden in unterschiedlichen Quantenarchitekturen die Basis für hochsensitive Sensoren oder auch für Quantenbits. Die hier vorgestellte neue Methode gestattet es, einzelne Spins auf atomarer Skala zu messen und zu steuern. Dieser Zugang zu atomaren Quantenzuständen eröffnet auch neue Ansätze in der Quanteninformationsverarbeitung.

This is an open access article under the terms of the Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivs License, which permits use and distribution in any medium, provided the original work is properly cited, the use is non-commercial and no modifications or adaptations are made.

Der Artikel wurde zuerst im Heft 8/9 2022 des Physik Journals veröffentlicht und für diesen Abdruck mit zusätzlichen Informationen aus dem Beitrag *In Resonanz – Atom für Atom* von Philip Willke und Andreas Heinrich (Physik Journal, Juli 2021, S. 39) ergänzt.

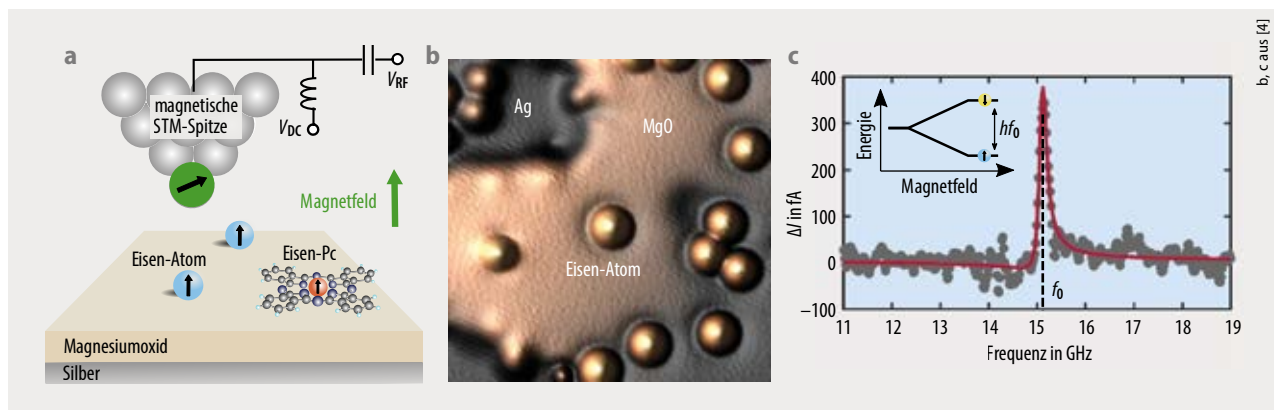


ABBILDUNG 1: Die atomar scharfe Spitze eines Rastertunnelmikroskops (a) dient dazu, Atome und Moleküle auf einer Oberfläche sichtbar zu machen (b). In diesem Artikel geht es insbesondere um Eisen-Atome und Eisen-Phthalocyanin-Moleküle. Das magnetische Feld spaltet die Spinzustände durch die Zeeman-Wechselwirkung auf (c, Inset). Durch eine magnetische Spitze lassen sich die Spinzustände der Atome auslesen und mittels einer Radiofrequenzspannung V_{RF} durch Spinresonanz anregen (c). Bei diesen Messungen wird die Frequenz durchgeföhren und die Änderung des Tunnelstroms gemessen. Letzterer ändert sich, wenn der Spin sich durch Resonanz verändert.

der Tunnelstrom spinpolarisiert ist. Ein generelles Problem spektroskopischer STM-Messungen besteht darin, dass die gemessenen Zustände thermisch verschmiert sind, da die Energie der thermisch angeregten Elektronen statistisch variiert (Fermi-Dirac-Statistik). Um die Energie-Auflösung zu verbessern, finden die STM-Experimente daher oft bei tiefen Temperaturen nahe des absoluten Nullpunkts statt. Dies erlaubt es, Energie-Zustände bis hinunter zu mehreren hundert Mikroelektronenvolt aufzulösen. Aber selbst das reicht häufig nicht aus, um schwache magnetische Wechselwirkungen im Bereich von Nanoelektronenvolt zu vermessen.

Hier helfen Spinresonanz-Techniken wie Kernspin- oder Elektronenspinresonanz (ESR). Ihr großer Vorteil im Vergleich zu spektroskopischen STM-Messungen besteht darin, dass die Energieauflösung um ein Vielfaches

höher ist. Das gelingt, da die Resonanz die thermische Verbreiterung „aus-trickst“. Dazu wird eine elektromagnetische Welle mit exakt der Frequenz f_0 passend zum Übergang eines magnetischen Zwei-Niveau-Systems eingebracht. Für einen einzelnen Elektronenspin in einem magnetischen Feld B bedeutet dies

$$hf_0 = g\mu_B B. \quad (1)$$

Hierbei sind h das Plancksche Wirkungsquantum, μ_B das Bohrsche Magneton und g der gyromagnetische Faktor. Die linke Seite beschreibt die Energie einer Mikrowelle mit Frequenz f_0 , die rechte Seite die magnetische Zeeman-Aufspaltung – beides muss zu einander passen. Die Resonanz ermöglicht energetisch hochauflösende Messungen selbst bei Raumtemperatur. Auf diesem Prinzip beruhen Magnetresonanztomogra-

mografen, die in vielen Krankenhäusern zum Einsatz kommen. Allerdings ist es bei konventionellen Resonanzmethoden notwendig, über sehr viele Spins ($\sim 10^{14}$ und mehr) zu mitteln, um ein ausreichend großes Signal zu bekommen.

Einer statt alle

Vor einigen Jahren gelang es erstmals, die Rastertunnelmikroskopie mit der Elektronenspinresonanz zu vereinen (Abb. 1) [1]. Entscheidend hierfür war das Einkoppeln von Radiofrequenzen in ein Rastertunnelmikroskop [2] und die Nutzung anderer STM-Techniken, um die magnetischen Eigenschaften der atomaren Spins vorzucharakterisieren [3]. Das Rastertunnelmikroskop mit seiner hohen Ortsauflösung erlaubte es, einzelne Atome zu adressieren und das Messsignal genügend zu verstärken für die Elektronenspinresonanz an einem einzelnen magnetischen Atom auf einer Oberfläche. Hierbei wird eine magnetische STM-Spitze über ein Atom bewegt und zusätzlich zur DC-Tunnelspannung V_{RF} eine Radiofrequenz-Spannung angelegt, um den Spinzustand des Atoms anzuregen (Abb. 1a). Dieses befindet sich in der Regel auf einer dünnen isolierenden Schicht aus Magnesiumoxid (MgO) auf einem Silbersubstrat. Für die Anregung wird die Frequenz der RF-Spannung durchgeföhren. Wenn diese mit der Resonanzfrequenz der beiden niedrigsten Spinzustände des Atoms übereinstimmt, ändert sich die Spinpopulation der

SUMMARY

Surface quantum control – Resonance on individual spins realized in a scanning tunneling microscope allows a new access to their quantum properties

Spin resonance is used in nuclear magnetic resonance scanners and in analytical instruments in physics, chemistry and biology, both in research and industry. A new method allows electron spin resonance on individual atoms and molecules in a scanning tunneling microscope, providing insights into the interactions between atoms, the dynamics of their magnetic states, and the properties of indi-

vidual nuclear spins. Electron spins lay the foundation for various magnetic phenomena and, in different quantum architectures, form the basis for highly sensitive sensors or even quantum bits. The new method presented here allows to measure and control individual spins on an atomic scale. This access to atomic quantum states also offers new approaches in quantum information processing.

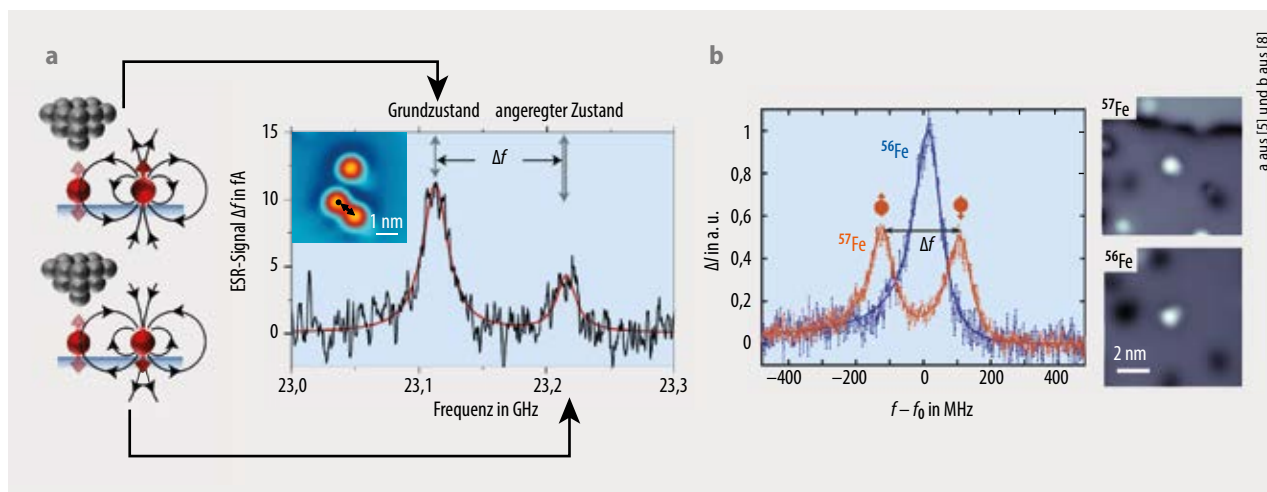


ABBILDUNG 2: Neben dem makroskopischen Magnetfeld beeinflussen auch lokale Beiträge zum Magnetfeld die Resonanzfrequenz eines atomaren Spins (a). Dies können beispielsweise benachbarte Atome sein, etwa die drei gezeigten Eisen-Atome (Inset). Abhängig von der Spinorientierung eines benachbarten Atoms (Grund- oder angeregter Zustand) verschiebt sich die Resonanz zu niedrigeren oder höheren Frequenzen, wobei der Grundzustand bei niedrigeren Temperaturen stärker besetzt ist. Die Aufspaltung Δf der beiden Resonanzen ist ein Maß für die Stärke des magnetischen Feldes des Nachbar-Atoms. Auch der Einfluss des Kernspins kann zu mehreren Resonanzen führen (b). STM-Abbildungen von verschiedenen Eisen-Atomen (rechts) sehen auf den ersten Blick gleich aus. Sie zeigen aber ein gänzlich anderes Verhalten in den ESR-Spektren (links), da ein Isotop von Eisen einen magnetischen Kern (Eisen 57, Kernspin $I = \frac{1}{2}$) besitzt. Durch die Hyperfein-Kopplung entsteht eine zusätzliche Aufspaltung der Resonanzen – für jeden Kernspinzustand eine (orange Pfeile).

Zustände. Diese lässt sich direkt durch eine Änderung des spinpolarisierten Tunnelstroms auslesen (Abb. 1c), da die Größe des Widerstands der Tunnelbarriere von der Spinrichtung des Atoms abhängt. Dieser Tunnelmagnetowiderstand findet sich in ähnlicher Form auch bei planaren Tunnelbarrieren, beispielsweise zum Auslesen der klassischen Bits in einer Festplatte. Der Aufwand lohnt

sich: Denn die Energieauflösung ist bei der Einzelatom-Elektronenspinresonanz nicht mehr durch die Temperatur, sondern nur durch die Linienbreite der Resonanz begrenzt. Das führt zu einer Energieauflösung von etwa 10 neV – statt 300 μeV bei Temperaturen um 1 Kelvin. Dies bedeutet eine Verbesserung um einen Faktor von mehr als 10^4 .

Alles doppelt sehen

Eine direkte Anwendung dieser neuen Methode ist es, einzelne Atome als Magnetfeldsensoren zu benutzen. Denn so wie sich die Resonanzfrequenz durch das makroskopische Magnetfeld verändert, verschiebt sie sich auch durch jedes lokale Magnetfeld in der Umgebung eines Atoms. In einem einfachen Beispiel befinden sich zwei Atome nahe

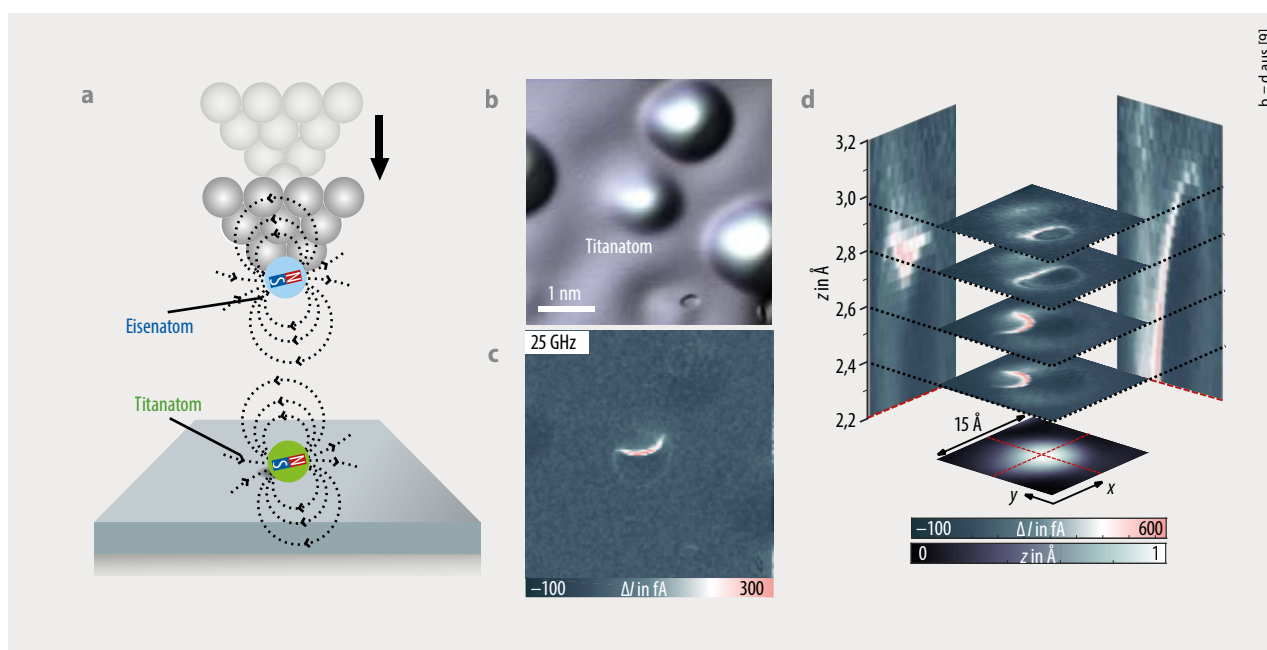


ABBILDUNG 3: Die Magnetresonanz-Tomografie an einzelnen Atomen beruht darauf, dass auch die STM-Spitze ein magnetisches Feld generiert (a). Dies erlaubt es durch Scannen über die Oberfläche bei konstanter Frequenz f , Resonanzen an bestimmten Positionen zu detektieren, wie hier für das zentrale Titanatom (b, c). Diese Änderung lässt sich in drei Dimensionen ausdehnen, um die Wechselwirkung beider Spins zu kartografieren (d). Aus den Daten leitet sich die magnetische Dipol-Dipol-Kopplung zwischen beiden Spinzentren auf der Nanometerskala ab.

beieinander (Abb. 2) [5]. Ein am ersten Atom (Sensoratom) aufgenommenes ESR-Spektrum besitzt zwei Resonanzen, die durch magnetische Kopplung mit dem Nachbaratom entstehen, abhängig von dessen Spinzustand. Da thermische Anregungen die Resonanzen verursachen, ist neben dem magnetischen Grundzustand (Spin up) auch der erste angeregte Zustand (Spin down) des Nachbaratoms besetzt. Die Aufspaltung der ESR-Signale am Sensoratom entsteht durch magnetische Dipolkopplung. Abstandsabhängige Messungen zwischen Atomen zeigen in der Tat ein r^{-3} -Potenzgesetz der Signalaufspaltung, das für die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung charakteristisch ist. Mehr noch: Durch Fits der abstandsabhängigen Frequenzaufspaltung $\Delta f(r)$ lässt sich das magnetische Moment des Nachbaratoms mit einer hohen Genauigkeit von rund einem Prozent bestimmen.

Auf diese Weise gelang es, die magnetischen Momente verschiedener Atome wie Kobalt, Eisen, Holmium und Dysprosium „remote“, also aus einer Entfernung von ein bis zwei Nanometern, zu bestimmen [5, 6, 7]. Auf ähnliche Weise ist auch der Kernspin von Atomen nachweisbar [8] (Abb. 2b), der ebenfalls ähnlich wie ein „lokales Magnetfeld“ wirkt. Diese Hyperfeinaufspaltung erlaubt Rückschlüsse auf die elektronischen und magnetischen Eigenschaften des Atoms und beantwortet zum Beispiel die Frage, welches elektronische Orbital den Grundzustand bildet. Der Kernspin ist quasi ein Spion im Atom, der viel über seinen Wirt verraten kann.

Anwendungen im Spitzenfeld

Neben der magnetischen Kopplung von Atomen auf Oberflächen erlaubt es die Einzelatom-Elektronenspinresonanz, die magnetische Wechselwirkung mit der magnetischen Spitze zu vermessen [9]. Da sich magnetische Atome auch am Ende der Spitze (Spitzenapex, Abb. 3a) befinden, zeigt diese eine ähnliche Kopplung mit Atomen auf der Oberfläche wie die Oberflächenatome untereinander. Jedoch kann sich die Spitze kontinuierlich bewegen (auch im Abstand zur Oberfläche) – im Gegensatz zu den Atomen auf der Oberfläche,

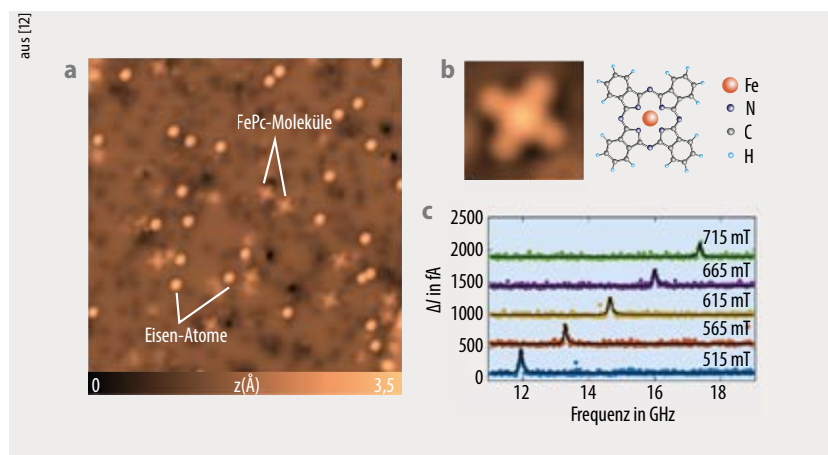


ABBILDUNG 4: Die Magnesiumoxid-Oberfläche (Topografie in a) zeigt sowohl einzelne Eisen-Atome als auch FePc-Moleküle. Für Letzteres sind eine Detailaufnahme und die Struktur gezeigt (b). Auch für die Spinresonanz-Messung auf einem FePc-Molekül zeigt sich ein linearer Verlauf mit dem Magnetfeld (c) gemäß Gleichung (1).

die auf diskreten Gitterplätzen sitzen. Oft lässt sich die Spitze daher als ein zusätzliches magnetisches Feld B_{tip} (x, y, z) beschreiben, dessen Stärke über seine Position und seinen Abstand zum Atom auf der Oberfläche justierbar ist. In diesem Fall ist der Modus Operandi auf interessante Art und Weise veränderbar: Fixiert man zum Beispiel die Frequenz f und rastert mit der Spitze die Oberfläche ab, gerät der Elektronenspin durch das richtige „Spitzenfeld“ in Resonanz (Abb. 3). Das Spitzenfeld ist durch unterschiedliche Positionen der Spitze einstellbar, was den Abstand zum Spin auf der Oberfläche und das wirkende Magnetfeld ändert. Dies funktioniert, weil es nach Gleichung (1) egal ist, ob man die Frequenz f durchfährt oder das Magnetfeld. In der Tat wird in konventionellen ESR-Experimenten öfter das (globale) Magnetfeld und nicht die Frequenz verändert.

Durch Rastern des lokalen Spitzenfeldes entstehen Bilder, welche die Wechselwirkung zwischen dem Spin auf der Oberfläche und dem Spincluster (bestehend aus Eisenatomen) an der Spitze kartografieren. Dies kann in bis zu drei Dimensionen geschehen, und zwar energetisch aufgelöst (Abb. 3c). Diese Art der Magnetresonanztomografie ist konzeptionell die gleiche wie die Kernspintomografie in der Medizintechnik. Jedoch werden hier nicht Billiarden von Wasserstoff-Kernspins angeregt wie bei MRT-Aufnahmen unseres Körpers, sondern es wird lediglich ein Spinsystem auf der Oberfläche in Resonanz gebracht und die magnetische

Wechselwirkung mit einem zweiten an der Spitze abgebildet.

Neben der räumlichen Abbildung der magnetischen Kopplung bietet ein auf der Nanoskala wirkendes Magnetfeld wie das der Spitze weitere Vorteile. Zum Beispiel lässt sich Spinresonanz auch in Rastertunnelmikroskopen ohne starke, in der Regel supraleitende, Elektromagnete betreiben [9]. Zudem erlaubt es das Spitzenfeld, intrinsische magnetische Phänomene und Eigenschaften in Abwesenheit eines externen Magnetfelds zu untersuchen. Außerdem ist es sehr wichtig für die Resonanz. Dafür ist – auch in konventioneller Spinresonanz – eine zeitlich modulierte Magnetfeld-Komponente nötig [10]. Einfache Abschätzungen zeigen, dass die Beiträge des Spitzenfeldes stärker sind als eine direkte Anregung durch magnetische Dipolstrahlung. Das liegt daran, dass der Einfluss des Spitzenfeldes durch den geringen Abstand sehr groß werden kann: bis zu Äquivalenten von 10 Tesla [11], was um ein Vielfaches stärker ist als in einem gewöhnlichen Krankenhaus-MRT.

Think Big: Vom Atom zum Molekül

Bisher kam die Einzelspinresonanz in einem Rastertunnelmikroskop hauptsächlich für atomare Spinsysteme zum Einsatz – mit einigen Vor- und Nachteilen. Zu den Nachteilen gehört, dass einzelne Atome auf Oberflächen bei höheren Temperaturen (> 10 K) oft anfangen, sich auf der Oberfläche zu bewegen. Auch sind atomare Spinsys-

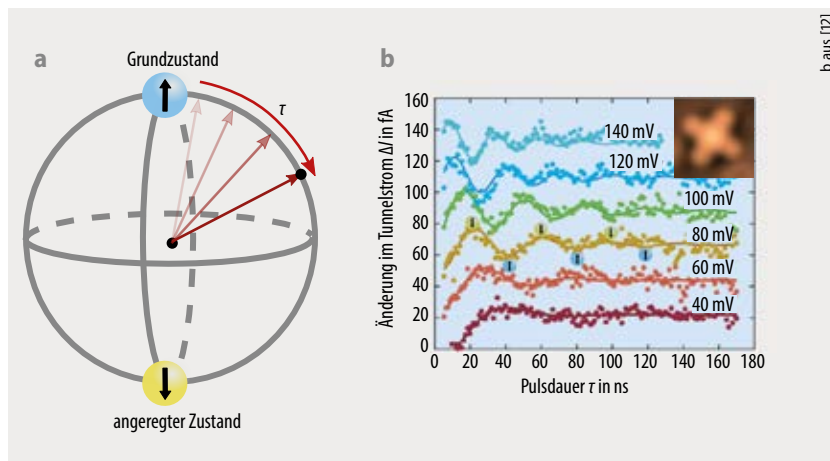


ABBILDUNG 5: Die kohärente Manipulation einzelner atomarer und molekularer Spins geschieht mittels gepulster Elektronenspinresonanz. Hierbei wird das Radiofrequenzsignal gepulst eingespeist. Während dieser Zeitspanne wird der Spin kohärent vom Grund- in den angeregten Zustand gedreht (a). Im Experiment treten Rabi-Oszillationen auf (b); der Strom ändert sich also für unterschiedlich lange Pulse. Dadurch wird das System in unterschiedlichen Superpositionen zwischen 0 und 1 detektiert. Für wachsende RF-Spannungsamplituden (unterschiedliche Farben) erfolgt diese Rotation schneller.

teme sehr stark durch die Wechselwirkung mit dem Gitter der Oberfläche beeinflusst. Dieses erzeugt das Kristallfeld um das Atom, also Ladungen, welche die magnetischen Zustände in ihrer Energie verschieben. Das Kristallfeld ist vorab schwer einzuschätzen. Beide Punkte sind weniger tragisch bei magnetischen Molekülen, also Molekülen mit typischerweise einem Atom aus den Übergangsmetallen oder den seltenen Erden. Bei diesen wird das Kristallfeld als „Verpackung“ für das magnetische Atom quasi mitgeliefert – die sogenannten Liganden des Moleküls.

Dieses Gerüst, das häufig aus Kohlenstoff, Wasserstoff und Stickstoff besteht, lässt sich chemisch sehr genau designen. Dies erlaubt es, die magnetischen Eigenschaften im Vorfeld gut einzustellen. Zudem ordnen sich Moleküle gerne von selbst in gleichmäßigen Gittern an, was sie daran hindert, sich auf der Oberfläche zu bewegen. Damit sind potenziell geordnete magnetische Strukturen mit ihnen möglich.

Den ersten molekularen Prototyp, den meine Kollegen und ich mittels Einzelspin-Elektronenspinresonanz charakterisieren konnten, ist Eisen-Phtha-

locyanin (FePc). Vereinfacht gesagt bleibt auch bei Spinresonanz auf einzelnen Molekülen alles beim Alten (Abb. 4). FePc bildet ein sehr isotropes Spin-1/2-System auf einer MgO-Oberfläche aus [12, 13]. Nicht zuletzt lässt sich das Zwei-Niveau-System des Spinzustandes kohärent verändern. Dies erlaubt es, beliebige Superpositionen zwischen beiden herzustellen – eine Grundvoraussetzung für das wachsende Gebiet der Quanteninformationsverarbeitung, das in den letzten Jahren in anderen Quantenarchitekturen an Fahrt aufgenommen hat.

Dass sich Superpositionszustände auch für einzelne Spins auf Oberflächen einstellen lassen, konnte in Experimenten mit gepulster Elektronenspinresonanz gezeigt werden (Abb. 5). Hierbei wird lediglich für eine kurze Zeit von zehn bis zu ein paar hundert Nanosekunden der Spin mit einem Radiofrequenzpuls angeregt – anstatt kontinuierlich (Abb. 5a). Dadurch rotiert der Moleküls spin kohärent zwischen dem Grund- und angeregten Spinzustand. Als Resultat treten Oszillationen zwischen den beiden Zuständen auf (Rabi-Oszillationen, Abb. 5b). Diese klingen jedoch sowohl bei Molekülen [12] als auch bei Atomen [14] nach rund 100 Nanosekunden ab. Der Grund hierfür ist die Wechselwirkung mit der Umgebung, die gefürchtete Dekohärenz. Denn bei jeder Kopplung mit der Außenwelt bekommt der Spinzustand einen „Schubs“, also einen Phasen-

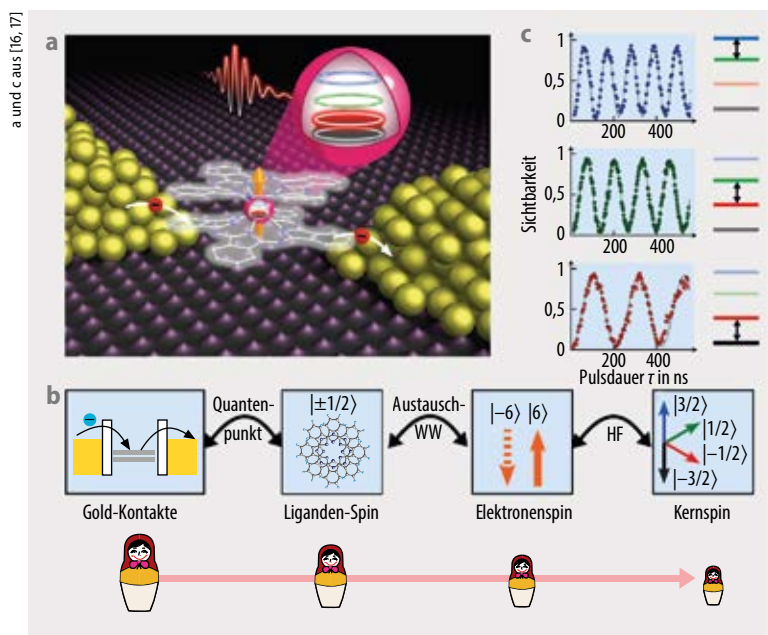


ABBILDUNG 6: In Bruchkontakt-Experimenten ist es gelungen, die kohärente Kontrolle einzelner Moleküle zu zeigen. Dabei wird das Molekül zwischen zwei Goldelektroden eingefangen, in diesem Fall ein Terbium-„Doppeldecker“ Molekül (a). Über mehrere Stufen, die jeweils über unterschiedliche magnetische Wechselwirkungen koppeln, lässt sich der Kernspin des Moleküls adressieren. Diese Stufen bestehen aus einem Quantenpunkt-Readout an den Goldelektroden, welcher mit einem Liganden-Spin wechselwirkt, der wiederum über Austauschwechselwirkung an den Terbium-Elektronenspin koppelt. Dieser koppelt schlussendlich mittels Hyperfeinwechselwirkung an die vier Niveaus des Terbium-Kernspins (b). Durch diese verschachtelte Adressierung bleibt die Kohärenz der Kernspins lange geschützt. Dadurch sind lange Kohärenzzeiten in Rabi-Messungen möglich (c) (blau: Übergang $+3/2 \leftrightarrow +1/2$; grün: Übergang $+1/2 \leftrightarrow -1/2$; rot: $-1/2 \leftrightarrow -3/2$).

schub, der den Zustand unkontrolliert beeinflusst. Gemittelt über viele Messungen klingt die Kurve ab. Für die atomaren Spins auf Oberflächen stellt die Wechselwirkung mit Elektronen in der Umgebung den dominanten Prozess dar [15]. Dies betrifft insbesondere die Tunnelstrom-Elektronen. Daher gilt es, deren Einfluss so weit wie möglich zu reduzieren.

Ein molekularer Quantencomputer?

Eine Alternative zum Verbessern der Kohärenzzeit besteht darin, Moleküle mit komplexeren Eigenschaften zu verwenden: Hier am Physikalischen Institut und am Institut für Quantenmaterialien und -technologien des KITs versuchen meine Kollegen und ich mit verschiedenen Methoden – inklusive dem Rastertunnelmikroskop –, die Quanteneigenschaften speziell entworfener Moleküle zu kontrollieren. Eine Klasse mit sehr interessanten Eigenschaften sind Phthalocyanin-Doppeldecker. Diese bestehen wie ein Hamburger aus zwei Brötchenhälften oben und unten (Phthalocyanine) und einem Patty in der Mitte (Atom aus seltenen Erden, Abb. 6). Ein beliebtes „Patty“ ist hier Terbium. Mit diesen Molekülen lässt sich die Wechselwirkung der molekularen magnetischen Zustände mit der Außenwelt weiter reduzieren und in mehreren Schritten entkoppeln – verschachtelt wie Matroschka-Puppen. Die Kernspins des Terbium-Atoms bilden die eigentlichen Qubits, also die innerste Puppe. Durch die Entkopplung sind diese magnetischen Qubits sehr langlebig und können über einige Minuten bestehen. Dies erlaubte es in Bruchkontakt-Experimenten (Abb. 6), Rabi-Oszillationen mit sehr langen Kohärenzzeiten zu realisieren [16] und damit erste Quantenalgorithmen umzusetzen [17].

Qubits auf Basis einzelner Moleküle bieten weitere Vorteile zu anderen etablierten Systemen: Zum einen sind sie mit ungefähr einem Quadratnanometer pro Qubit deutlich kleiner als etwa Qubits auf Basis supraleitender Schaltkreise. Zum anderen lassen sich in einem Kernspin oft sogar mehr als zwei Zustände nutzen: sogenannte Qudits mit d Zuständen – im Fall von Terbium sind es $d = 4$!

Prinzipiell ist die Skalierung molekularer Spin-Qubits kein Problem. Chemisch sind viel größere Qubit-Systeme herstellbar und auf spezielle Bedürfnisse anpassbar [18]. Das Problem ist vielmehr, dass die Quantenprozessoren so klein sind, dass mehrere Spins nur schwer einzeln zu steuern und auszu-lesen sind. An dieser Stelle sollen die Einzelspinresonanz und die hohe Ortsauflösung des Rastertunnelmikroskops nachhelfen!

Danksagung

Open Access Veröffentlichung ermöglicht und organisiert durch Projekt DEAL.

Referenzen

- [1] S. Baumann et al.: Electron paramagnetic resonance of individual atoms on a surface, *Science* **350** (2015) 417
- [2] W. Paul et al.: Generation of constant-amplitude radio-frequency sweeps at a tunnel junction for spin resonance STM, *Rev. Sci. Instr.* **87** (2016) 074703
- [3] A. Heinrich et al.: Single-Atom Spin-Flip Spectroscopy, *Science* **306** (2004) 466
- [4] P. Willke et al.: Tuning Single-Atom Electron Spin Resonance in a Vector Magnetic Field *Nano Lett.* **19** (2019) 8201
- [5] T. Choi et al.: Atomic-scale sensing of the magnetic dipolar field from single atoms, *Nat. Nano* **12** (2017) 420
- [6] F. Natterer et al.: Reading and writing single-atom magnets, *Nature* **543** (2017) 226
- [7] A. Singha et al.: Engineering atomic-scale magnetic fields by dysprosium single atom magnets, *Nat. Commun.* **12** (2021) 1
- [8] P. Willke et al.: Hyperfine interaction of individual atoms on a surface, *Science* **362** (2018) 336
- [9] P. Willke et al.: Magnetic resonance imaging of single atoms on a surface, *Nat. Phys.* **15** (2019) 1005
- [10] T. Seifert et al.: Longitudinal and transverse electron paramagnetic resonance in a scanning tunneling microscope, *Sci. Adv.* **6** (2020) eabc5511
- [11] K. Yang et al.: Tuning the Exchange Bias on a Single Atom from 1 mT to 10 T, *Phys. Rev. Lett.* **122** (2019) 227203
- [12] P. Willke et al.: Coherent Spin Control of Single Molecules on a Surface, *ACS Nano* **15** (2021) 17959
- [13] X. Zhang et al.: Electron spin resonance of single iron phthalocyanine molecules and role of their non-localized spins in magnetic interactions, *Nat. Chem.* **14** (2022) 59
- [14] K. Yang et al.: Coherent spin manipulation of individual atoms on a surface, *Science* **366** (2019) 509
- [15] P. Willke et al.: Probing quantum coherence in single-atom electron spin resonance, *Sci. Adv.* **4** (2018) eaq1543
- [16] S. Thiele et al.: Electrically driven nuclear spin resonance in single-molecule magnets, *Science* **344** (2014) 1135
- [17] C. Godfrin et al.: Operating Quantum States in Single Magnetic Molecules: Implementation of Grover's Quantum Algorithm, *Phys. Rev. Lett.* **119** (2017) 187702
- [18] W. Wernsdorfer und M. Ruben: Synthetic Hilbert Space Engineering of Molecular Qudits: Isotopologue Chemistry, *Adv. Mat.* **31** (2019) 1806687

AUTOR

Philip Willke

studierte Physik an der Universität Göttingen, wo er 2017 auch promovierte. Nach Postdoktoraten am IBM Forschungslabor (Almaden, Kalifornien) und dem Center for Quantum Nanoscience in Seoul, Südkorea, wechselte er im Juni 2020 an das Karlsruher Institut für Technologie. Hier leitet er seit Herbst 2020 eine Emmy Noether-Nachwuchsgruppe für quantenkohärente Kontrolle von Spins auf Oberflächen. Seit Frühjahr 2022 ist er zudem Tenure-Track-Professor am Physikalischen Institut. Neben der Forschung widmet sich Willke der Wissenschaftskommunikation. So ist er beispielsweise mittlerweile bei über 30 Science Slams in ganz Deutschland aufgetreten.

Gaede-Preis 2022



„Für seine herausragenden experimentellen Arbeiten zur Erforschung von einzelnen Elektronen- und Kernspins mittels Elektronenspinresonanz an einzelnen Atomen auf Oberflächen“ erhielt Philip Willke den Gaede-Preis 2022.

Willke widmet sich mit seiner Nachwuchsgruppe am KIT der Forschung im Grenzbereich von Quantentechnologien und Nanowissenschaften. Die von ihm zur Reife entwickelte Technik der Einzel-Atom-Elektronenspinresonanz ist derzeit ein aufregendes Feld in der Festkörper- und Oberflächenphysik. Die individuelle Vermessung der quantenmechanischen Eigenschaften einzelner Atome und Moleküle auf Oberflächen eröffnet völlig neue Möglichkeiten, atomare Strukturen zu manipulieren und künstliche Quantensysteme zu kreieren.



Prof. Dr. Philip Willke, Karlsruher Institut für Technologie, Wolfgang-Gaede-Str. 1, 76131 Karlsruhe, E-Mail philip.willke@kit.edu