研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 分子スピン量子コンピュータ

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)：

研究代表者

北川 勝浩 (大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

主たる共同研究者：

工位 武治 (大阪市立大学大学院理学研究科 特任教授)

佐藤 和信 (大阪市立大学大学院理学研究科 教授)

森田 靖 (大阪大学大学院理学研究科 准教授)

小澤 正直 (名古屋大学大学院情報科学研究科 教授)

中村 泰信 (理化学研究所基幹研究所 客員研究員)

3. 研究実施概要

分子の核スピンを量子ビットとして、分子の数や計算ステップ数などが指数爆発を起こさない真の量子計算の実現を目指して、初期化、量子演算、および、それらを連続して行う研究を行った。その結果、ナフタレン結晶にドープしたペンタセン分子の光励起三重項状態電子スピンを用いた動的核偏極法(DNP) (以下、光励起三重項 DNP)によって 28.4%の偏極率を達成した。また、短時間に高偏極を得ることを目的として、p-テルフェニル結晶にドープしたペンタセン分子の光励起三重項 DNP を、ホスト結晶の重水素化率を変化させて行い、最適な重水素化率が存在することを見出し、偏極率18%を最短40秒で達成した。さらに、重水素デカップリングを行うことにより、プロトン間のスピン拡散を2倍に高速化した。低磁場(0.4T)でのDNPによる物理的初期化と高磁場(11.7T)でのNMRによる量子演算を連続して行うために、フィールドサイクリングシステムを開発した。また、物理的初期化と量子演算を連続して行うための分子系として、重水素化したナフタレンに、DNP用のペンタセンと量子演算用の¹³Cラベルしたナフタレンを共ドープした結晶を作製した。さらに、フッ素核スピン1つ(または2つ)を量子ビットとする(ジ)フルオロナフタレン分子をペンタセンとともにナフタレン結晶に共ドープして、光励起三重項DNPによってホスト結晶を高偏極化した後、零磁場近傍での異核間スピン拡散を利用してフッ素核スピン量子ビットを高偏極化した。また、不要なダイポール相互作用を消去しながら量子演算を行うために、Lee-Goldburg照射を利用した量子演算を開発し、デコヒーレンス時間が長くなることを示した。さらに、量子演算用の高度なパルス照射が可能なFPGAや任意波形発生器(AWG)をベースとしたフレキシブルなNMR分光計を開発した。

分子の電子スピンを量子ビットとして初期化して量子演算を行うために極低温下でパルス電子スピン多重共鳴を行う装置を開発した。また、共振器によるパルス波形の歪を補償して、共振器内のスピンに所望の高周波磁場パルス波形を精密に照射する方法を開発した。さらに、単一核スピンの測定を目的として、140倍の高利得スピン増幅器を実現した。

本CRESTの課題実施期間の前半期では、既存のパルス高周波マイクロ波技術を高度化し、1.5 K以下の低温で長時間動作する、分子スピン量子コンピュータの要素技術を確立した(Qバンドマイクロ波 Coherent-Dual (CD-ELDOR)パルス技術)。分子スピン量子ビット(qubit)系の物質開発では、前半期で実現したCD-ELDOR技術で制御できる程度に弱い交換相互作用系2及び3電子スピンをもつ新規な開殻系安定有機分子(biradicals、triradicals)の一般的な分子設計の指針(g-tensor engineering 及び pseudo g-tensor

engineering)を確立し、デコヒーレンス時間の長い、分子スピン qubit 系(2桁の分子種)を合成した。これらの分子系のうち、qubit としての条件を満足していることを証明するために、これらの安定な磁氣的希釈単結晶について、X線構造解析・スピン物性の全解析を完成し、synthetic matter spin-qubits の概念を確立した。この過程で、電子スピン双極子相互作用と弱い交換相互作用の実験的分離抽出を初めて行うことに成功したので、2電子 qubit 系の擬初期化のためのパルス系列プロトコル、基本論理ゲート構築に特化した量子コンピュータ/量子情報処理技術の初歩的実験(CNOTなど)を完成した。本CRESTの課題において、分子スピン系の電子スピン qubit を用いた CNOT ゲートを初めて実現した。また、多電子 matter qubit 系の合成戦略では、計画の前倒しを図り、電子スピン qubit の利点(scalability)を活かして、Lloyd 型の 1次元周期構造電子スピン系プロトタイプ的合成に初めて成功した。これにより、matter qubit としての scalability の課題に対して、有力な solution を示した。さらに、これらの拡張系の合成法を開拓した。Qubit の scalability を目指す、この合成戦略では、DNA2重螺旋構造内の塩基間に働く強固な相補的水素結合にヒントを得て、3重螺旋構造を形成する、金属イオン helicates(配位子が巻くヘリックス構造の中心位置に閉殻金属イオンを内包する錯体)を利用して、電子スピン qubit を配列させるアプローチを考案した。スピン 2-qubit 系では、核スピン qubit と電子スピン qubit 間の擬似 entanglement を利用して「電子スピンのスピノール」を実験的に初めて直接検出した。さらに、現在のマイクロ波パルス技術で取り扱える電子スピン双極子相互作用をもつ 3電子スピン qubit 系を新たに設計・合成した。最終年度の課題の一つとして、現在のパルス電子磁気共鳴実験の時間分解能に耐えられる長さのデコヒーレンス時間をもつ、磁氣的希釈単結晶系を作成することができた。

高精度の基本的量子計算素子の実現を阻む不可避な量子雑音の性質を解明することを目的とし、量子計算、量子測定の精度の限界を制御に使われる相互作用が従う保存法則だけから明らかにするという画期的な研究方法を確立して、ウィグナー・荒木・柳瀬の定理の一般化公式、任意の量子ゲートの誤差公式、量子雑音プロセス推定のフィッシャー情報量の公式を導出し、また、これらの知見を応用して量子アルゴリズムの研究を行い、量子アルゴリズムの設計方法全般を拡張 Clifford 群の観点から再構築した。

また、分子スピン以外にも、巨視的な人工スピンあるいは少数準位原子とも言うべき超伝導磁束量子ビットを中心に高精度な量子状態制御および読み出しを実現することを目指してきた。散逸の小さい超伝導量子回路では、量子ビットだけでなく、線形あるいは非線形の共振器また伝送線路も容易に実現される。巨大な双極子モーメントを持つ人工原子とこれらの電磁場モードとの組み合わせにより、マイクロ波帯域の量子光学実験を基板上で実現することを目指してきた。超伝導量子ビットを 2 つあるいは3つのエネルギー準位を持つ人工原子として用い、これを超伝導共振回路や超伝導伝送線路と強く結合させた場合に起こる量子光学的効果の実験を行い、成果を得た。このような技術は、量子演算回路における量子情報バスなどに適用することが期待される。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

原子核スピン量子計算、電子スピン量子計算では、初期化、多ビット化などに関して、当初目標が必ずしも達成されていないが、これは挑戦的な基礎研究テーマにはよくあることである。当初目標に代わる成果として、高速の核スピン偏極、高利得の核スピン増幅、3重螺旋構造による(ABC) n 型電子スピン量子ビットを可能とする希釈結晶の作成、電子スピンの CNOT ゲート、などで十分な成果が得られている。途中から参加した超伝導量子ビットグループは、進行波系での双極子誘導反射、電磁誘導透過、Mollow トリプレットなど量子光学の基礎実験に成功すると共に、99.4%というゲートフィデリティと $20\mu\text{sec}$ という T_2 時間という素晴らしい成果を得た。

主な研究論文とその要旨を以下にまとめる。

<主要論文>

- 1) J. Am. Chem. Soc., 2010.5, 132, 6944-6946 (2010). (DOI:10.1021/ja102030w), "Triple-Stranded Metallo-Helicates Addressable as Lloyd's Electron Spin Qubits", Y. Morita, Y. Yakiyama, S. Nakazawa, T. Murata, T. Ise, D. Hashizume, D. Shiomi, K. Sato, M. Kitagawa, K. Nakasuji, and T. Takui.

要旨: scalable qubit を構築する有力な Lloyd モデルである、スピンの 1 次元周期系を、具体的な物質系として、初めて設計・合成した。ここでは、超分子化学の知識を駆使して、開殻系金属イオンを内包する三重螺旋 *helicates* を設計して、三重螺旋対称性に由来する *g*-テンソル *engineering* を実現し、これを実験的に証明した。

- 2) Science, 2010, "Resonance Fluorescence of a Single Artificial Atom", O. Astafiev, A. Zagoskin, A. Abdumalikov, Y. Pashkin, T. Yamamoto, K. Inomata, Y. Nakamura, J. S. Tsai.

要旨: 人工原子としての超伝導磁束量子ビットをマイクロ波伝送線路と強く結合し単一原子の共鳴蛍光現象を観測した。共振器の助けを借りない原子と 1 次元自由空間との強い相互作用(自発放出レートが他の緩和レートよりもずっと大きい状況)は他の物理系では未だ実現しておらず、非常に基礎的かつユニークな系であると言える。入射光と原子の吸収・再放出光との干渉効果による透過の抑制や、非弾性散乱における Mollow 三重項を観測した。

- 3) J. Magn. Reson., 2009, "Optimization of 1H spin density for dynamic nuclear polarization using photo-excited triplet electron spins", A. Kagawa, Y. Murokawa, K. Takeda, M. Kitagawa.

要旨: 光励起三重項状態を用いた動的核偏極において、プロトン(陽子)密度を最適化することによって、偏極率のビルドアップを高速化できることを初めて実験的に示した。動的核偏極を一般的に高速化する重要な知見を与えた。

- 4) Physical Review A, 2007, "Conservation-law-induced quantum limits for physical realizations of the quantum NOT gate" T. Karasawa, and M. Ozawa.

要旨: 不確定性原理に基づく従来の方法が適用できない場合に対応して、量子計算ゲートの保存法則に由来する精度限界を導く新しい方法を開発した。16 ページにわたり研究の背景、数学的方法などが詳述されている。

- 5) J. Magn. Reson., 2010, "Total compensation of pulse transients inside a resonator", Yutaka Tabuchi, Makoto Negoro, Kazuyuki Takeda, Masahiro Kitagawa.

要旨: 磁気共鳴実験系に含まれる共振器を中心とする分散性を自動的に補償して共振器帯域内の任意の周波数で所望の磁場パルスを精密に実現する方法を初めて提案し、実験的に実証した。磁気共鳴分光一般に技術革新をもたらす可能性がある。

- 6) J. Mater. Chem., 2009, 19, 3739-3754, "Molecular electron-spin quantum computers and quantum information processing: pulse-based electron magnetic resonance spin technology applied to matter spin-qubits", K. Sato, S. Nakazawa, R. Rahimi, T. Ise, S. Nishida, T. Yoshino, N. Mori, K. Toyota, D. Shiomi, Y. Yakiyama, Y. Morita, M. Kitagawa, K. Nakasuji, M. Nakahara, H. Hara, P. Carl, P. Hofer, and T. Takui.

要旨: 自然が与える Matter spin qubits には、電子スピンと核スピンを活用するアプローチがあるが、分子レベルでこれらを qubit resource としていかにして設計するか、また、これらのアンサンブル系 qubit を操作する、今日のパルス電磁波の技術的な制約のもとでいかに qubit を物質設計をするかを、一般的な分子設計指針を包括的に示した最初の論文である。また、パルスマイクロ波技術を高度化して、二つの電子スピン qubit 間の位相制御技術を初めて実現した。電子スピン間の位相制御を、TPPI(Time Proportional Phase Increment)法で行えることを初めて示した。

- 7) Phys. Rev. Lett., 2010, "Electromagnetically induced transparency on a single artificial atom", A. Abdumalikov, O. Astafiev, A. Zagoskin, Y. Pashkin, Y. Nakamura, J. S. Tsai.
 要旨:人工原子の第3のエネルギー準位も利用することで選択則が最近接準位のみ可能な「はしご型」の3準位系を実現し、強いポンプ光により誘起される Autler-Townes 二重項に起因する、プローブ光の電磁誘起透過現象を観測した。パワー透過率のオンオフ比は 94%に及んだ。
- 8) Rev. Sci. Instrum., 2009, "Magnetic field cycling instrumentation for dynamic nuclear polarization-nuclear magnetic resonance using photoexcited triplets", A. Kagawa, M. Negoro, K. Takeda, and M. Kitagawa.
 要旨:低磁場における光励起三重項状態を用いた動的核偏極と高磁場における核磁気共鳴分光をサンプルシャトルによって連続して繰り返し行うことができる磁場循環実験装置を初めて開発した。分子の核スピンを量子ビットとして正当な初期化を行って量子演算を行うために必須の実験装置である。さらに、極微試料の核磁気共鳴分光に道を拓くものである。
- 9) Physica E., 2007, 40, 363-366, "Implementation of Molecular Spin Quantum Computing by Pulsed ENDOR Technique: Direct Observation of Quantum Entanglement and Spinor", K. Sato, R. Rahimi, N. Mori, S. Nishida, K. Toyota, D. Shiomi, Y. Morita, A. Ueda, S. Suzuki, K. Furukawa, T. Nakamura, M. Kitagawa, K. Nakasuji, M. Nakahara, H. Hara, P. Carl, P. Hofer, and T. Takui.
 要旨:分子スピン内の qubits 間で、bi-partite 疑似 entanglements を自在に生成し、検出・評価する技術を確立した。この技術を使い、電子スピン固有のスピンノール(4 π 周期性)を、疑似 entangle した電子 qubit の電子スピニューテーション運動の観測を実験的に証明した。電子スピンスピンノールを直接証明した最初の論文である。
- 10) J. Chem. Phys., 2010, "2H-decoupling-accelerated 1H spin diffusion in dynamic nuclear polarization with photoexcited triplet electrons", M. Negoro, K. Tateishi, A. Kagawa, K. Takeda, M. Kitagawa.
 要旨:光励起三重項状態を用いた動的核偏極において、重水素をデカップルすることによって、プロトン(陽子)間のスピン拡散が加速されることを初めて実験的に示した。動的核偏極を一般的に高速化する重要な知見を与えた。

主な受賞リストを以下にまとめる。

<主な受賞>

1. 小澤 正直 日本数学会賞秋季賞、(社)日本数学会、業績名「量子情報の数学的基礎」、2008年9月25日
2. 工位 武治 2009 IES Silver Medal for Chemistry (IES: International EPR/ESR Society)
3. 蔡 兆申 応用物理学会フェロー (2010年)
4. 小澤 正直 科学技術分野の文部科学大臣表彰科学技術賞(研究部門)、文部科学省、業績名「量子測定理論の先駆的研究」、2010年4月13日
5. 小澤 正直 International Quantum Communication Award, QCMC Organizing Committee, sponsored by Tamagawa University, "contributions to mathematical theories of quantum measurements and quantum computation", July 22, 2010.

その他(学会での発表に対する受賞など)

6. Craig M. Jensen Award 受賞, New Ligands with Extensively π -Conjugated System: Syntheses of Nitrogen-Incorporated Phenalenyl Derivatives and Their Metal Complexes. Suzuki, S.;

Morita, Y.; Fukui, K.; Sato, K.; Shiomi, D.; Takui, T.; Nakasuji, K. The 7th International 21 Century COE Symposium on Intergrated EcoChemistry (COEIEC VII、第7回国際21世紀COE 自然共生化学会議)、2005年12月20日、米国ハワイ州ホノルル

7. 第18回基礎有機化学連合討論会 ポスター賞 清水章弘・久保孝史・森田 靖・中筋一弘, アントラキノイド構造を有する非局在型一重項ビラジカルの合成と性質, 第18回基礎有機化学連合討論会、2006年10月7日～9日、福岡市
8. 第46回NMR討論会若手ポスター賞受賞, 根来 誠 DDS のイメージ周波数とスーパーナイキストサンプリングを用いたデジタル NMR 分光計の駆動周波数向上方法, 第46回 NMR 討論会, 札幌コンベンションセンター, 2007年9月11日
9. 第47回NMR討論会若手ポスター賞受賞, 田渕 豊 Active compensation of RF pulse transients 能動制御によるラジオ波パルス過渡現象の補正, 第47回 NMR 討論会, 筑波大学, 2008年11月12日
10. Suraj P. Manrao Student Travel Fund, Yutaka Tabuchi, Active Compensation of rf-Pulse Transients, April, 2009.
11. Y. Morita, "Nature Reader Panel" invited by Dr Philip Campbell, Editor-in-Chief of *Nature* by Nature Publishing Group
12. 森田 靖 大阪大学ベンチャー・サポート・プログラム 優秀賞(2007年度)受賞題目:「分子結晶性二次電池: 多段階酸化還元系有機分子の高効率合成と蓄電材料への応用研究」
13. 2006–2007年大阪大学英文研究年報(Annual Report)論文100選, Aromaticity on the Pancake-Bonded Dimer of Neutral Phenalenyl Radical as Studied by MS and NMR Spectroscopies and NICS Analysis, Suzuki, S.; Morita, Y.; Fukui, K.; Sato, K.; Shiomi, D.; Takui, T.; Nakasuji, K. *J. Am. Chem. Soc.* **2006**, 128, 2530–2531.
14. 2007–2008年大阪大学英文研究年報(Annual Report)論文10選 Thermochromism in an Organic Crystal Based on the Co-existence of s- and p-Dimers, Morita, Y.; Suzuki, S.; Fukui, K.; Nakazawa, S.; Kitagawa, H.; Kishida, H.; Okamoto, H.; Naito, A.; Sekine, A.; Ohashi, Y.; Shiro, M.; Sasaki, K.; Shiomi, D.; Sato, K.; Takui, T.; Nakasuji, K., *Nature Mater.* **2008**, 7, 48–51.

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

本チームの研究成果は、量子情報処理分野のみならず、磁気共鳴、化学合成、量子化学計算、量子光学など、一般の科学分野で幅広く使われる可能性があり、この点でのインパクトがあったと考えられる。特に、分子スピンの人工的制御技術は、今後、化学界を中心に研究が活発化することが予想される。本チームの研究成果は、そうした将来の研究方向に指針を与えるベースとして重要な意味を持っている。

4-3. 総合的評価

3重螺旋構造による(ABC)_n型電子スピン結晶を用いた多ビット化、およびスケーラブルなスピン増幅の実現(100倍以上の利得と量子ビットの結合ネットワークの詳細に依らない大規模な量子回路の実現は画期的である)の2つは将来の量子情報処理技術の突破口となりうる着想である。引き継がれた最先端プロジェクトにおいて、これらのアイデアが発展して、更に大きなブレークスルーにつながることを期待したい。