

「量子情報処理システムの実現を目指した新技術の創出」

平成 17 年度採択研究代表者

北川 勝浩

(大阪大学大学院基礎工学研究科 教授)

「分子スピン量子コンピュータ」

1. 研究実施の概要

本研究のねらいは、分子の核スピンや電子スピンを量子ビット(qubit)として用い、適切な初期化によって資源の指数爆発を防ぎ、真の量子計算を達成することである。そのために、光励起三重項状態を用いた動的核偏極(DNP)による核スピンの低エントロピー化と整合性の良い固体分子における核スピン qubit の量子演算法を研究し、a) マジック角回転(MAS)によるダイポール相互作用の全消去とパルスによる特定の qubit 間の相互作用の復活に基づく 2-qubit 演算、b) Lee-Goldburg 照射による分子間相互作用の消去下での 1-qubit および 2-qubit 演算、の 2 つの方法による実験に成功した。また、DNP と量子演算を連続して行なうための実験装置の開発と 8-qubit 程度の分子の探索を行った。さらに、初期化に必要なデータ圧縮アルゴリズムを考案した。今後は、DNP と量子演算の連続実験の研究を進め、まずはエンタングルメントが存在する 2-qubit 実験を目指す。

電子スピン qubit では、弱い交換相互作用をした 2 電子スピンをもち、強力なマイクロ波照射に耐える開殻系安定有機分子を設計し、合成に着手した。有機分子の分子性電子スピンのみを qubit とする量子コンピュータプロトタイプ分子スピンの合成予備実験を実施した。また、2 電子スピンの相対配向を精密制御するマイクロ波技術を開発し、共振器及びクライオスタットを設計して作製に着手した。今後は、電子スピン 2-qubit 演算を目指して研究を進める。

量子計算の理論では、量子チャネルに含まれる低雑音パラメータの推定問題におけるエンタングルメントによるフィッシャー情報量増大の上限を明らかにした。また、量子計算における量子雑音の一般理論と誤差公式の研究から、Jaynes-Cummings モデルで保存量から導かれる誤差と場の揺らぎから導かれる誤差の関連を明らかにした。さらに、保存量からの誤差を回避する 3-qubit 普遍符号化法の研究を行った。今後は、フォールトトレラント量子計算の物理的実現可能性の解明を目指して研究を進める。

2. 研究実施内容

1. 分子の核スピンを用いた真の量子計算

① 物理的初期化と量子演算を連続して行なうための研究

動的核偏極(DNP)による核スピンの高偏極化(物理的初期化)は固体で行う必要があり、それによって得られた低エントロピー状態を量子計算に最大限生かすには、量子演算も固体で行なう必要がある。また、物理的初期化と量子演算が両立可能な分子を用いる必要がある。さらに、DNP と量子演算を連続して行なうための実験装置が必要である。これらを解決するために、下記の研究を行った。

- I. 固体NMRによる量子演算： 固体において支配的なダイポール相互作用を用いて量子演算を行なう場合、従来の溶液と本質的に異なる問題は、分子(=量子コンピュータ)間のダイポール相互作用を消去しながら、分子内の所望の qubit 間のダイポール相互作用を使って演算を行わなければならないことである。ダイポール相互作用を消去するために、マジック角($\cos^2\theta = 1/3$)の概念に基づいた2つの方法について実験を行った。
 - A) マジック角回転(MAS)によって全てのダイポール相互作用を消去した状態で、R2TR (Rotational Resonance in the Tilted Rotating frame)によって、所望の同核 2-qubit 間のフリップフロップ相互作用を復活して、iSWAP ゲートを実現した。試料は、 ^{13}C にラベルしたグリシンをドープしたグリシン結晶で、2 つの ^{13}C を qubit として用いた。
 - B) LG (Lee-Goldberg)照射によって分子間のダイポール相互作用を消去した状態で、1-qubit の回転と異核 qubit との間の iSWAP ゲートを実現した。試料は、 ^{13}C にラベルしたアラニンをドープしたアラニンに結晶で、 ^1H に対する 1-qubit 操作と ^1H - ^{13}C 間の 2-qubit 演算を行なった。また、高周波照射強度を上げるためにマイクロコイルを用いたプローブを開発して用いた。
- II. 物理的初期化と量子計算の連続実験系の開発： 光励起三重項状態を用いた動的核偏極(DNP)と核磁気共鳴(NMR)実験を連続して行うための実験装置の開発を行った。
- III. 物理的初期化と量子演算が両立可能な分子の探索： 光励起三重項状態を用いた DNP が可能で、かつ 8-qubit 程度の量子演算実験が行える分子を、大阪市立大学のグループと協力して探索した。

2. 分子の電子スピンを用いた量子コンピュータ

- ① 電子スピンを qubit とする分子の研究・開発： 複数の分子性電子スピンをもつ複合分子スピン系は、分子スピン相互の配向や分子スピンの広がり(局在・非

局在性)など多様な因子を精密制御できるので、電子スピン間に働く量子力学的な相互作用(交換相互作用)の強さをコントロールできる。分子性電子スピンの数を増やす合成技術は確立しているが、分子性電子スピンの相互の配向、及び交換相互作用の強さを望むままに分子制御する g-エンジニアリングは未開拓である。本課題では、分子性電子スピンそのものを量子コンピュータの量子ビットとしてあらわに扱う技術を開拓するに際し、平成17年度内に、強力なマイクロ波照射に半永久的に耐える分子スピン系を新たに合成し、結晶アンサンブル系を新たに見出した。これを通じて、弱い交換相互作用を有する複数の分子スピン系の合成指針(g-エンジニアリング)を得た。

- ② 電子スピンによる量子演算の研究および装置の開発： 複数の分子スピンの相対配向を制御するマイクロ波技術を得たので、2 K 以下で動作する量子演算用共振器、及びクライオスタットを設計し、製作段階に入った。

3. フォールトトレラント量子計算

- ① 不確定性原理と保存則に由来する量子雑音の研究： 量子雑音の尺度の相互関係についての基礎研究のため、量子チャネルに含まれる低雑音パラメータの推定問題を定式化し、その問題におけるエンタングルメントによるフィッシャー情報量の増大効果に関する研究を行い、2レベル系の低雑音パラメータ推定において、増大比の上限が $3/2$ であることを証明し、また、いくつかの例において上限を達成する条件を求めた。
- ② 量子計算素子の誤り確率に関する一般理論の展開： 量子計算における量子雑音の一般理論と誤差公式に関する研究を行い、特に、Jaynes-Cummings モデルにおいて、保存量から導かれる誤差と場の揺らぎから導かれる誤差との関連を明らかにした。また、保存量からの誤差を回避する3量子ビット普遍符号化法の研究を行い、19ゲート列構成法で実現可能な2論理ビット・ゲートの全体が制御ユニタリ・ゲートと局所同値な量子ゲートの全体と一致することを示した。

3. 研究実施体制

「量子計算」グループ

①研究分担グループ長：北川 勝浩（大阪大学大学院基礎工学研究科、教授）

②研究項目：

- A) 核スピン qubit の物理的初期化
- B) 核スピン qubit の量子演算
- C) 量子データ圧縮
- D) 量子情報理論

- E) 量子計算シミュレーション
- F) 量子回路
- G) Q バンド電子スピン多重共鳴
- H) フォールトトレラント量子計算

「分子電子スピン」グループ

①研究分担グループ長：工位 武治（大阪市立大学大学院理学研究科、教授）

②研究項目：

- A) 弱い交換相互作用をした 2 電子スピンをもつ開殻系安定有機分子を設計し、多段階合成に着手し、分子スピン量子コンピュータの部分骨格となる新規開殻分子を合成した。
- B) A) で得られた成果は、有機分子の電子スピンのみを qubit とする量子コンピュータプロトタイプの合成予備実験の一環としての位置づけであるが、**g-tensor molecular engineering** を目指す、安定同位体標識化合物や磁気回転比が大きな核スピン構成核を有する分子の設計指針を同時に得た。
- C) パルスベースの極低温下单結晶・電子スピン二重共鳴実験設備のセットアップの準備（主として、極低温下でのマイクロ波空洞共振器性能テストなど）を行った。Q バンド用極低温クライオスタットを設計し、製作段階に入った。

「フォールトトレラント量子計算理論」グループ

①研究分担グループ長：小澤 正直（東北大学大学院情報科学研究科、教授）

②研究項目：

- A) 不確定性原理と保存則に由来する量子雑音の研究
- B) 量子計算素子の誤り確率に関する一般理論の展開

4. 主な研究成果の発表

(1) 論文（原著論文）発表

- Quantum gates generated by rotationally invariant operators in a decoherence-free subsystem Y. Kawano and M. Ozawa, Phys. Rev. A 73, 012339 (1-8) (2006).
- Constraints for quantum logic arising from conservation laws and field fluctuations J. Gea-Banacloche and M. Ozawa, J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt. 7, S326-S332 (2005).
- Ancilla-assisted enhancement of channel estimation for low-noise parameters, M. Hotta, T. Karasawa, and M. Ozawa, Phys. Rev. A 72, 052334(1-11) (2005).
- Magnetic Properties Of Nitronyl Nitroxide And Iminonitroxide Triradicals As Model Compounds For Generalized Ferrimagnets T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui, Polyhedron, 2005, 24, 2377-2381.
- Synthesis And Properties Of A Triarylamine Derivative With A Coordination Site And Its Copper (II) Complex M. Yano, K. Inoue, T. Motoyama, Y. Azuma, M. Tatsumi, O.

- Yamauchi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui, *Polyhedron*, 2005, 24, 2112–2115.
- Organic High-Spin Systems Of Oligoarylamines: Properties Of Tetraaryl-m-Phenyldiamine Oligocations As Examined By Electron Transfer Stopped-Flow Method M. Yano, Y. Nakanishi, K. Matsushita, M. Tatsumi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui *Polyhedron*, 2005, 24, 2116–2120.
 - Synthesis, Electrochemical And Spectroscopic Studies Of Highly Extended Tetraaryl-M-Phenylenediamines As Precursors Of Ground-State Triplet Dications M. Yano, T. Furuya, M. Yonezawa, M. Tatsumi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui *Polyhedron*, 2005, 24, 2121–2125.
 - Exchange Interaction Of 5,5'-(m- and p-Phenylene) Bis (10-Phenyl-5,10-Dihydrophenazine) Dications and Related Analogues E. Terada, T. Okamoto, M. Kozaki, M. E. Masaki, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, and K. Okada *J. Org. Chem.*, 2005, 70, 10073–10081.
 - Pulsed ENDOR-Based Quantum Information Processing R. Rahimi, K. Sato, K. Furukawa, K. Toyota, D. Shiomi, T. Nakamura, M. Kitagawa, and T. Takui *Int. J. Quantum Information*, 2005, 3, 197–204.
 - Spin Transfer And Solvato-/Thermochromism Induced By Intramolecular Electron Transfer In A Purely Organic Open-Shell System S. Nishida, Y. Morita, K. Fukui, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2005, 44, 7277–7280.
 - 2-Aryl Substituted 3-Oxophenalenoxyl Radicals; Pi-Spin Structures And Properties Evaluated By Dimer Structure Y. Morita, S. Nishida, K. Fukui, K. Hatanaka, T. Ohba, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, G. Yamamoto, and K. Nakasuji *Polyhedron*, 2005, 24, 2194–2199.
 - Deflected Spin Transmission From Radical Substituent To Corannulene's Curved Surface: Density Functional Theory Calculations K. Fukui, Y. Morita, S. Nishida, T. Kobayashi, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji *Polyhedron*, 2005, 24, 2326–2329.
 - Spin Delocalization On Curved Surface Pi-System: Corannulene With Iminonitroxide S. Nishida, Y. Morita, T. Kobayashi, K. Fukui, A. Ueda, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji *Polyhedron*, 2005, 24, 2200–2204.
 - Effect Of Methoxy Groups In A 1,3-Diazaphenalenyl Pi-System: Electronic-Spin Structure Of 4,9-Dimethoxy-1,3-Diazaphenalenyl S. Suzuki, Y. Morita, K. Fukui, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, And K. Nakasuji *Polyhedron*, 2005, 24, 2618–2624.
 - Nitronyl Nitroxide Triradical As A Model For Generalized Ferrimagnet T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, And T. Takui *Synthetic Metals*, 2005, 154, 297–300.
 - Hexaazaphenalenyl Anion Revisited: A Highly Symmetric Planar Pi-System With Multiple-Networking Ability For Self-Assemble Metal Complexation S. Suzuki, Y. Morita, K. Fukui, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji *Inorg. Chem.*, 2005, 44, 8197–8199.
 - Magnetic Ordering In A Genuine Organic Crystal With Triangular Antiferromagnetic Spin Units K. Takeda, Y. Yoshida, Y. Inanaga, T. Kawae, D. Shiomi, T. Ise, M. Kozaki, K. Okada, K. Sato, and T. Takui *Phys. Rev. B*, 2005, 72, 24435/1–6.
 - Syntheses, Crystal Structures, And Magnetic Properties Of Nitronyl Nitroxide Triradicals Composed of Ground-State Singlet Biradicals And Monoradicals: Molecular Spin Clusters In The Crystal T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui *Chem. Materials*, 2005, 17, 4486–4492.
 - Theoretical Study On Spin Alignments In Ferromagnetic Heterospin Chains With Competing Exchange Interactions: A Generalized Ferrimagnetic System Containing Organic Biradicals In The Singlet Ground State K. Maekawa, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato,

and T. Takui J. Phys. Chem. B, 2005, 109, 9299–9304.

- Magnetic Phase Transition In A Heteromolecular Hydrogen-Bonded Complex Of Nitronylnitroxide Radicals K. Hayakawa, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui J. Phys. Chem. B, 2005, 109, 9195–9197.
- Hydrogen-Bonded Networks In Organic Conductors: Crystal Structures And Electronic Properties Of Tetracyanoquinodimethane With 4,4'-Biimidazolium Having Multiprotonated States Y. Morita, T. Murata, K. Fukui, S. Yamada, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, H. Kitagawa, H. Yamochi, G. Saito, and K. Nakasuji J. Org. Chem., 2005, 70, 2739–2744.
- Exchange Interaction In Covalently Bonded Biradical-Monoradical Composite Molecules K. Maekawa, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui J. Phys. Chem. B, 2005, 109, 3303–3309.
- Synthesis, intermolecular interaction, and semiconductive behavior of a delocalized singlet biradical hydrocarbon T. Kubo T, A. Shimizu, M. Sakamoto, M. Uruichi, K. Yakushi, M. Nakano, D. Shiomi, K. K. Sato, T. Takui, Y. Morita, and K. Nakasuji Angew. Chem. Int. Ed., 2005, 44, 6564–6568.
- Magnetic Properties of a Nitronyl Nitroxide Triradical as a Model for Single-Component Molecule-Based Ferrimagnetics, Y. Kanzaki, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui, J. Low. Temp. Phys. 2006, in press.
- Clustering of Molecular Spins in the Crystals of Nitronylnitroxide and Iminonitroxide Triradicals Based on Benzene-1,3,5-Triyl Frameworks, Y. Kanzaki, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, T. J. Mater. Chem. 2006, in press.
- An Ab Initio MO Analysis for Electronic Excited States of High-Spin Quintet Phenylene-1,3-dinitrene K. Sugisaki, K. Toyota, K. Sato, D. Shiomi, and T. Takui Angew. Chem. Int. Ed., 2006, 45, 2257–2260.
- Phenalenyl-based Highly Conductive Molecular Systems with Hydrogen-Bonded Networks: Synthesis, Physical Properties and Crystal Structures of 1,3- and 1,6-Diazaphenalenenes, and Their Protonated Salts and Charge-Transfer Complexes with TCNQ T. Murata, Y. Morita, K. Fukui, K. Tamaki, H. Yamochi, G. Saito, and K. Nakasuji, Bull. Chem. Soc. Jpn. 2006, in press.
- Multi-Dimensional Networks of pi-Conjugated Oligomer: Crystal Structures of 4,4':2',2'':4'',4'''-Quaterimidazole in Hydrate, Protonated Salt and Dinucleic Copper Complex T. Murata, Y. Morita, K. Fukui, Y. Yakiyama, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, K. Nakasuji Cryst. Growth Des. 2006, in press.
- Aromaticity on the Pancake-Bonded Dimer of Neutral Phenalenyl Radical as Studied by MS and NMR Spectroscopies and NICS Analysis S. Suzuki, Y. Morita, K. Fukui, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji J. Am. Chem. Soc. 2006, 128, 2530–2531.
- Ethylenedithio-TTF-Imidazole: Construction of Pluri-Dimensional Network by Hydrogen-Bonding and S...S Interactions T. Murata, Y. Morita, Y. Nishimura, Y. Yakiyama, and K. Nakasuji In Multifunctional Conducting Molecular Materials; Saito, G., Wudl, F., Haddon, R. C., Tanigaki, K., Enoki, T., Katz, H. E., Eds.; Royal Society of Chemistry, London, U.K.: 2006, in press.
- Second Hyperpolarizabilities of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Involving Phenalenyl Radical Units M. Nakano, T. Kubo, K. Kamada, K. Ohta, R. Kishi, S. Ohta, N. Nakagawa, H. Takahashi, S. Furukawa, Y. Morita, K. Nakasuji, and K. Yamaguchi Chem. Phys. Lett. 2006, 418, 142–147.
- Entanglement witness derived from NMR superdense coding R. Rahimi, K. Takeda, M.

Ozawa, M. Kitagawa J. Phys. A: Math. Gen. 39 2006 2151–2159.