

「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

分子の核スピンを用いた真の量子計算を実現するために、固体 NMR による量子演算、光励起三重項状態を用いた動的核偏極、およびそれらを両立させる研究を行った。固体 NMR による量子演算は、Lee-Goldburg 照射を用いて同核スピン間のダイポール相互作用を消去しながら量子演算を行う新たな方法を考案し、1-qubit および 2-qubit 演算でデコヒーレンス抑圧の効果を実験的に確認した。光励起三重項状態を用いた動的核偏極で偏極率 25% を達成した。動的核偏極と量子演算が両方可能な 2-qubit の分子系を考案した。また、それらの実験を連続して行えるシャトルシステムを作製した。固体 NMR 量子計算に適した分子を Gaussian03 を用いて設計・探索する方法を構築した。今後は、固体 NMR 量子演算のトモグラフィーによりフィデリティの評価を行う。また、41.5% 以上の偏極率を実現して、2-qubit 系でエンタングルメントの生成を行う。また、8-qubit 程度の分子の探索を急ぐ。

電子がもつ量子スピン機能を量子コンピュータや量子情報処理操作の技術として活用するために、化学結合に与らない複数個の電子をもちかつ安定な有機分子スピン系を初めて設計・合成した。本研究で合成された分子スピンは、分子スピンは不安定であるという常識を覆すほど化学にも安定であるばかりでなく、強いマイクロ波やラジオ波の照射に対しても、半永久的に耐えるものである。また、分子スピン系電子スピンの位相・向きを任意に制御できることは、量子スピンコンピュータの開発には不可欠なスピン操作技術であるので、本研究では極低温に至る広範囲の温度領域で稼動する位相制御型のハードウェアを開発し、マイクロ波パルス要素技術を初めて確立した。今後、分子電子スピンを用いた初等量子アルゴリズムを実行する。また、電子スピン量子ビットの数を増やす分子設計指導原理を確立する。

これまで、不確定性原理と保存則に由来する量子雑音および量子計算素子の誤り確率に関する一般理論に関する基礎研究を行ない、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明らかにし、また、そのような低い雑音を推定するための最適な測定方法を明らかにしてきた。今後、フォールトトレラント量子計算への応用が期待できる。

2. 研究実施内容

(分子の核スピンの用いた真の量子計算)

分子の核スピンの用いた真の量子計算を実現するために、固体 NMR による量子演算、光励起三重項状態を用いた動的核偏極、およびそれら2つを両立させる研究を行った。固体NMRによる量子演算は、マジック角回転を用いずに Lee-Goldburg 照射を(以下 LG 照射)を用いて同核スピン間のダイポール相互作用を消去しながら量子演算を行う新たな方法を考案し、L-alanine を用いて実験を行った。1-qubit 演算ではデコヒーレンス時間 T_2 が 2.8 倍に、2-qubit 演算では T_2 と iSWAP ゲートの演算時間の比が 4.3 倍に、それぞれ改善した。ただし、この T_2 は不均一拡がりを含んだものであり、実際にはデコヒーレンスはさらに抑圧されていると考えられ、今後より詳細な実験を行う予定である。LG 照射などを多 qubit に対して自在に行なえる自由度の非常に高いFPGAベースのNMR分光計を開発した。光励起三重項状態を用いた動的核偏極では、実験条件の試行錯誤によって偏極率を25%まで改善した。動的核偏極に続いて量子演算を行いエンタングルメントを実現するために、2-qubit の分子系を考案した。また、500MHz の NMR 分光計をこの実験専用として、動的核偏極を低磁場で行った後、分子を高磁場に移動して固体 NMR を行うサンプルシャトルシステムを作製し、実験系を整備した。8-qubit 程度の固体での量子計算に適した分子を設計・探索するために、量子化学計算プログラム Gaussian03 を用いて、固体 NMR スペクトルの角度依存性を計算して、スクリーニングする方法を構築したが、まだ適当な分子の発見には至っていない。

核スピン量子コンピュータの初期化のために研究している量子データ圧縮の副産物として、作業領域を $\log n$ qubit に抑えたユニバーサル量子情報圧縮法を考案した。混合状態アンサンブルを用いた Bruschiweiler のデータ検索アルゴリズムを、全ての解を求めるように拡張した。さらに、その行列積状態(MPS)を用いた数値シミュレーションを行って、NP完全問題である厳密 3 集合打問題の厳密数値解法とみなして計算量を評価し、他の解法とは異質な Schmidt ランクに依存する計算量を得た。NMR などのバルク混合アンサンブルの量子もつれを検出する witness 演算子を各 qubit の偏極率演算子の線形結合として展開するアルゴリズムを考案し、単一の実験で検出可能とした。また、占有数減衰写像を導入して、密度行列のある非対角要素の絶対値から n -qubit の n 体量子もつれの有無を判定する方法を考案した。

(分子の電子スピンを活用した量子コンピュータ)

現在のパルスマイクロ波先端技術で制御できる程度に弱い交換相互作用系 2 電子スピンをもつ開殻系安定有機分子の開発するために、初年度から実施してきた分子設計・予備合成実験を終了し、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(分子スピン量子コンピュータ)プロトタイプの本格合成を実施した。具体的には、分子スピンの g-tensor molecular engineering 及び A-tensor engineering を可能とする、安定同位体標識化合物(複数個のビラジカル系)を分子設計し、これらの本格的合成実験を実施した。分子スピン量子コンピュータ(QC)の演算を行うハードウェア実験装置系については、2年

度(平成 18 年度)は初年度の基本設計・実施設計段階から製作段階に入り、Q バンド (35 GHz) マイクロ波位相制御部設計・製作の詳細な技術的な詰めを綿密に行った。さらにQ バンド用極低温クライオスタット、極低温下单結晶・パルス電子スピン二重共鳴 (Coherent Dual ELDOR) 実験装置の全体の立ち上げ・セットアップを完成し、モデル分子スピン系を用いて QC のためのマイクロ波位相制御実験を開始した。また、Q バンド ELDOR 常温動作チェック用の新規安定有機分子スピン系の開発、及び結晶内での極性を制御できる官能基を導入した開殻分子系の設計・合成を行った。後者は、分子スピン量子コンピュータのデコヒーレンス時間の分子過程的な制御を可能とする要素技術として確立することができた。(大阪市立大)

大阪大で開発するパルス電子スピン多重共鳴装置については、当初、常温からヘリウム超流動の温度で Q バンドを予定していたが、低エントロピーの達成を重視して、数百 mK の極低温で Ku バンドに計画を変更した。そのため、希釈冷凍機とそれと組み合わせ使用できる超伝導磁石のシステムを構築した。(大阪大)

(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:量子チャンネルに含まれる低雑音パラメータ推定問題の N 体拡張を考察した。一般には、最大のフィッシャー情報量を得るためには、入力状態として、N 体系のエンタングルメントや相関を持つ状態を利用しなければならないが、雑音が十分に小さく、量子チャンネルが散逸的ならば、エンタングルメントを利用することなく、分解可能な入力状態において、最大のフィッシャー情報量が得られることを示した。従って、このような場合には、最適なパラメータ推定が理論的には比較的容易に行なわれると期待できる。

(2) 量子計算素子の誤り確率に関する一般理論の展開:これまでの研究で、コヒーレント状態における電磁場によって制御される 1 量子ビット上の量子演算の誤り確率はその平均光子数に反比例することが明らかにされたが、N 量子ビット上に同一の量子演算を同一の誤り確率で行なう場合には、平均光子数を N 倍にする必要があることを示した。従って、一定の誤り確率で多くの量子演算を行なうための最小のエネルギーは、いくつかの量子演算において共有することができないことが結論される。また、従来、否定ゲートについては、角運動量保存法則から不可避に導かれる誤り確率の存在が知られていなかったが、この場合の誤り確率を求める新しい理論的方法を開発した。

3. 研究実施体制

(1)「量子計算」グループ

①研究者名

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

・光励起三重項状態を用いた動的核偏極による物理的初期化

- ・固体NMRによる量子演算
- ・量子情報理論・量子データ圧縮アルゴリズム
- ・量子計算理論・量子計算シミュレーション
- ・パルス電子スピン多重共鳴

(2)「分子電子スピン」グループ

①研究者名

工位 武治(大阪市立大学大学院理学研究科 特任教授)

②研究項目

- ・分子の電子スピンを活用した量子コンピュータ

(3)「フォールトトレラント量子計算理論」グループ

①研究者名

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

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

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

(北川 Gr)

- Akira SaiToh, Robabeh Rahimi, Population-only decay map for n-qubit n-partite inseparability detection, Phys. Rev. A 74, (2006) 064305-1-4
- Akira SaiToh and Masahiro Kitagawa, Matrix-product-state simulation of an extended Bruschi bulk-ensemble database search, Phys. Rev. A 73, (2006) 022303-1-13
- K. Takeda, A highly integrated FPGA-based nuclear magnetic resonance spectrometer, Rev. Sci. Instrum. 78 (2007) 033103.
- RobabehRahimi, Akira SaiToh, Mikio Nakahara, and Masahiro Kitagawa, Single-experiment-detectable multipartite entanglement witness for ensemble quantum computing, Phys. Rev. A 75, (2007) 032317-1-9

(小澤 Gr)

- M. Ozawa, Noise and disturbance in quantum measurements and operations, Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng. 6244, 62440Q (1-9) (2006).
- J. Gea-Banacloche and M. Ozawa, Minimum-energy pulses for quantum logic cannot be shared,

Phys. Rev. A 74, 060301(R) (1-4) (2006).

- M. Hotta, T. Karasawa, and M. Ozawa, N-body-extended channel estimation for low-noise parameters, *J. Phys. A: Math. Gen.* **39**, 14465-14470 (2006).
- T. Karasawa, and M. Ozawa, Conservation-law-induced quantum limits for physical realizations of the quantum NOT gate, *Phys. Rev. A* **75**, 032324 (2007).

(工位 Gr)

- "Diamagnetic-paramagnetic conversion of tris(2-pyridylthio)methylcopper(II) through a structural change from trigonal bipyramidal to octahedral" R. Santo, R. Miyamoto, R. Tanaka, T. Nishioka, K. Sato, K. Toyota, M. Obata, S. Yano, I. Kinoshita,* A. Ichimura,* and T. Takui,* *Angewandte Chemie-International Edition* **45**, 7611 - 7614 (2006).
- "Watson-Crick pairing of nucleobases functionalized with open-shell molecular entities in crystalline solids" T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *Chem. Communications*, 4832 - 4834 (2006).
- "Pyridine-substituted nitronyl nitroxide biradicals: a triplet ($S=1$) ground state lasting out N-methylation" K. Hayakawa, D. Shiomi,* T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *J. Mat. Chem.* **16**, 4146 - 4154 (2006).
- "One-electron reduction of kinetically stabilized dipnictenes: Synthesis of dipnictene anion radicals" T. Sasamori,* E. Mieda, N. Nagahora, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, Y. Hosoi, Y. Furukawa, N. Takagi, S. Nagase, N. Tokitoh,* *J. Am. Chem. Soc.* **128**, 12582 - 12588 (2006).
- "One-electron reduction of kinetically stabilized dipnictenes: Synthesis of dipnictene anion radicals" T. Sasamori,* E. Mieda, N. Nagahora, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, Y. Hosoi, Y. Furukawa, N. Takagi, S. Nagase, N. Tokitoh,* *J. Am. Chem. Soc.* **128**, 12582 - 12588 (2006).
- "Building blocks for organic heterospin, heteromolecular complexes as models for organic molecule-based ferrimagnets" K. Hayakawa, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, *J. Low Temp. Phys.* **142**, pp.585 - 588 (2006).
- "Design and synthesis of a novel organic triradical as a model compound for generalized ferrimagnets" T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *J. Low Temp. Phys.* **142**, 589 - 592 (2006).
- "Design and synthesis of a novel organic triradical as a model compound for generalized ferrimagnets" T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *J. Low Temp. Phys.* **142**, 589 - 592 (2006).
- "Magnetic properties of a nitronyl nitroxide triradical as a model for single-component molecule-based ferrimagnets" Y. Kanzaki, T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *J. Low Temp. Phys.* **142**, 593 - 596 (2006).
- "Magnetic properties of a nitronyl nitroxide triradical as a model for single-component

- molecule-based ferrimagnets" Y. Kanzaki, T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *J. Low Temp. Phys.* **142**, 593 - 596 (2006).
- "Ground-state triplet biradicals of nitronyl nitroxide containing a nucleobase substituent as synthons for bio-inspired organic magnets", H. Tanaka, T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *J. Low Temp. Phys.* **142**, 601 - 604 (2006).
- "A high-conductivity crystal containing a copper(I) coordination polymer bridged by the organic acceptor TANC" M. Tadokoro,* S. Yasuzuka, M. Nakamura, T. Shinoda, T. Tatenuma, M. Mitsumi, Y. Ozawa, K. Toriumi, H. Yoshino, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, T. Mori, and K. Murata, *Angewandte Chemie-international Edition* **45**, 5144 - 5147 (2006).
- "Clustering of molecular spins in the crystals of nitronyl nitroxide and iminonitroxide triradicals based on benzene-1,3,5-triyl frameworks" Y. Kanzaki, D. Shiomi,* C. Kaneda, T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *J. Mat. Chem.* **16**, 2064 - 2073 (2006)
- "A quantum and deductive chemical study for all congeners of polybromo/chlorodibenzo-p-dioxin and polybromo/chlorodibenzofuran" M. Sakai,* K. Toyota, and T. Takui,* *J. Chemical Information and Modeling* **46**, 1269 - 1275 (2006).
- "Multidimensional networks of pi-conjugated oligomers: Crystal structures of 4,4':2',2''-4'',4'''-quaterimidazole in hydrate, protonated salt, and dinucleic copper complexes" T. Murata, Y. Morita,* K. Fukui, Y. Yakiyama, K. Sato, D. Shiomi, T. Takui, and K. Nakasuji,* *Crystal Growth & Design* **6**, 1043 - 1047 (2006).
- "Ab initio MO analysis of the excited electronic states of high-spin quintet 2-methylphenylene-1,3-dinitrene", K. Sugisaki, K. Toyota,* K. Sato, D. Shiomi, and T. Takui,* *Angewandte Chemie-International Edition* **45**, 2257 - 2260 (2006).
- "Thiacalix[3]pyridine produces a stable mononuclear rhodium(II) complex with mutual Jahn-Teller effect" R. T. Hamazawa, T. Nishioka,* I. Kinoshita,* T. Takui, R. Santo, and A. Ichimura, *Dalton Transactions*, 1374 - 1376 (2006).
- "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.* **128**, 2530 - 2531 (2006).
- "Experimental evidence for the triplet-like spin state appearing in ground-state singlet biradicals as a key feature for generalized ferrimagnetic spin alignment" K. Maekawa, D. Shiomi,* T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *J. Phys. Chem. B* **110**, 2102 - 2107 (2006).
- "Singlet biradical character of phenalenyl-based Kekule hydrocarbon with naphthoquinoid structure" T. Kubo,* A. Shimizu, M. Uruichi, K. Yakushi, M. Nakano, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, Y. Morita, and K. Nakasuji,* *Org. Letters* **9**, 81 - 84 (2007).
- "Amine-based organic high-spin systems; Synthesis, electrochemical and spectroscopic studies of polyalkylated one-dimensional oligoaryl triamines" M. Yano,* A. Fujiwara, M. Tatsumi, M.

- Oyama, K. Sato, and T. Takui, *Polyhedron*, in press (2007).
- “*m*-Phenylenediamine-based high-spin dication diradicals: Analysis of the decomposed products” M. Yano,* K. Kitagawa, M. Tatsumi, K. Sato, and T. Takui, *Polyhedron*, in press (2007).
 - “Synthesis and properties of a redox active ligand with bispicorylamino groups and its dinuclear complex” M. Yano,* M. Fujita, M. Miyake, M. Tatsumi, T. Yajima, O. Yamauchi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui, *Polyhedron*, in press (2007).
 - “Thymine-substituted nitronyl nitroxide biradical as a triplet ($S = 1$) component for bio-Inspired molecule-based magnets” H. Tanaka, D. Shiomi,* T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *Polyhedron*, in press (2007).
 - “Stable iminonitroxide biradicals: Building blocks for organic heterospin, heteromolecular complexes” K. Hayakawa, T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *Polyhedron*, in press (2007).
 - “Cytosine- and a guanine-substituted nitronyl nitroxide radicals as building blocks for generalized ferrimagnetic system” K. Maekawa, T. Ise, D. Shiomi,* K. Sato, and T. Takui,* *Polyhedron*, in press (2007).
 - “Magnetic Interactions in *p*-penylene-bis(nitronyl nitroxide) biradicals with large torsion angles” Y. Kanzaki, D. Shiomi,* T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *Polyhedron*, in press (2007).
 - “A Guanine-substituted nitronyl nitroxide radical forming a one-dimensional ferromagnetic chain” K. Maekawa, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui,* *Org. Biomol.Chem.* accepted (2007).
 - 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. Höfer, and T. Takui,* *Physica E*, accepted (2007).
 - Two-Dimensional Networks of Ethylenedithio-Tetrathiafulvalene Derivatives with the Hydrogen-Bonded Functionality of Uracil, and Channel Structure of Its Tetracyanoquinodimethane Complex, Morita, Y.; Miyazaki, E.; Umemoto, Y.; Fukui, K.; Nakasuji, K. *J. Org. Chem.* 2006, 71, 5631–5637
 - 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, Murata, T.; Morita, Y.; Fukui, K.; Tamaki, K.; Yamochi, H.; Saito G.; Nakasuji, K. *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 2006, 79, 894–913
 - CASCI-DFT Study of the Phenalenyl Radical System. Ukai, T.; Nakata, K.; Yamanaka, S.; Kubo, T.; Morita, Y.; Takada, T.; Yamaguchi, K. *Polyhedron* in press.
 - Origin of The Enhancement of The Second Hyperpolarizability of Singlet Diradical Systems with Intermediate Diradical Character. Nakano, M.; Kishi, R.; Ohta, S.; Takebe, A.; Takahashi, H.;

Furukawa, S.; Kubo, T.; Morita, Y.; Nakasuji, K.; Yamaguchi, K.; Kamada, K.; Ohta, K.; Champagne, B.; Botek, E. *J. Chem. Phys.* **2006**, *125*, 074113-1–074113-9.

○ Second Hyperpolarizabilities γ of Open-shell Singlet One-dimensional Systems: Intersite Interaction Effects on The Average Diradical Character and Size Dependences of γ Nakano, M.; Takebe, A.; Kishi, R.; Ohta, S.; Nate, M.; Kubo, T.; Kamada, K.; Ohta, K.; Champagne, B.; Botek, E.; Takahashi, H.; Furukawa, S.; Morita, Y.; Nakasuji, K. *Chem. Phys. Lett.* **2006**, *432*, 473–479.

○ Second Hyperpolarizabilities of Polycyclic Diphenalenyl Radicals: Effects of *para/ortho*-Quinoid Structures and Central Ring Modification.
Nakano, M.; Nakagawa, N.; Ohta, S.; Kishi, R.; Kubo, T.; Kamada, K.; Ohta, K.; Champagne, B.; Botek, E.; Takahashi, H.; Furukawa, S.; Morita, Y.; Nakasuji, K.; Yamaguchi, K. *Chem. Phys. Lett.* **2006**, *429*, 174–179.