

「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、光励起三重項状態を用いた動的核偏極(triplet-DNP)による物理的初期化と固体 NMR による量子演算、およびそれらを両立させる研究を行った。低磁場での triplet-DNP と高磁場での固体 NMR を、分子結晶サンプルと静磁場のなす角をそれぞれで独立に制御してサンプルを移送し、連続して繰り返し実行可能なフィールドサイクリングシステムを実現した。Triplet-DNP の到達偏極率を最大化するホスト結晶の重水素化率をペンタセン/p-ターフェニル系について実験的に明らかにした。固体 NMR 量子計算に適した分子の計算による探索を引き続き行なった。今後も偏極率 41.5% 以上での真の 2-qubit エンタングルメント生成実験と量子ビット数を増やすための分子探索を継続する。

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量子ビット系を初めて設計・合成し、スピン物性を実験的及び理論的に解明し量子ビットとしての有効性を検討した。本研究で合成された分子スピン量子ビット系はいずれも、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。このスピン操作技術を活用して、電子スピンに固有のスピン性を実験的に初めて証明した。また、電子スピン・核スピンヘテロ量子ビット集合系で、量子テレポーテーションの予備実験を実現した。分子電子スピンのみからなる量子ゲート操作を可能とする 2 量子ビット分子系を見出したので、極低温下での実験を行う。今後、電子スピン量子ビットの数を増やす 1、2次元系分子設計指導原理を確立する。

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。また、これに関連した量子アルゴリズムに関する応用研究を行った。今後、スケーラブルな量子計算を可能にするために必要な制御系のリソースを精密に評価するための理論への展開が期待できる。

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 固体 NMR による量子演算：

- a) 分子内の双極子相互作用を用いて固体 NMR による量子演算を行うために、分子の結晶方位と静磁場のなす角を制御可能なゴニオメータ付きプローブを開発した。さらにこのプローブはサンプルシャトル (③) 対応とした。
- b) FPGA ベースのフレキシブルな自作 NMR 分光計を 500MHz に対応させた。
- c) 照射の均一性とサンプルシャトルの点で有利と考えられるサドル形コイルの照射強度の改善を狙って多重巻きサドル型マイクロコイルを作製した。照射強度は改善したが均一性が劣化することが判明し、さらに構造の改善が必要であることが分かった。
- d) マイクロコイルによる照射強度の向上を引き続き研究した。
- e) 核スピン間で偏極を効率的に移動させるために、両方の核スピンのオフレゾナンスからオンレゾナンスに周波数をスイープしたパルス照射してスピロックを行なう新しい手法(SADIS-CP)を開発した。

② 光励起三重項状態を用いた動的核偏極 (triplet-DNP)：

- a) 動的核偏極のための低磁場系を空間的に余裕のあるより大型の電磁石に変更し、X バンドマイクロ波共振器をスロッチドチューブレゾネータからより堅牢な空洞共振器に変更して、照射効率と再現性・安定性の向上をはかった。
- b) 動的核偏極による到達偏極率を最大化するために、ペンタセンをドーピングするホスト結晶である p-ターフェニルの重水素化率を変えて実験を行い、最適な重水素化率の存在を実験的に示した。(論文投稿準備中)
- c) 動的核偏極に用いる X バンドの電力増幅器を TWT から固体化するために FET を用いた増幅器を作製した。

③ 動的核偏極と量子計算の両立：

- a) ①a)の 500MHz 固体 NMR 系と②a)の低磁場 triplet-DNP 系との間でサンプルをシャトルし、結晶方位をそれぞれ独立に設定して連続的かつ繰り返す

triplet-DNP と固体 NMR を行なうことのできるフィールドサイクリングシステムを開発し、高偏極ナフタレンの角度分解固体 NMR 分光行なった。(論文投稿中)

- b) ペンタセンの triplet-DNP による到達偏極率が高いナフタレンホスト結晶に共ドープ可能な多 qubit 分子を Gaussian03 による計算によって探索し、いくつかの候補物質を見出した。ただし市販されている試薬ではないので、新たに合成する必要があり、さらに有望な分子の探索と類似物質による共ドープ実験を継続することとした。

2.分子の電子スピン

- ① 現在の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である 2 電子スピンのもつ開殻系安定有機分子について、2 年度まで実施してきた分子設計・本格合成実験、磁気的な希積分子スピン系の合成探索を引き続き行った結果、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本格合成を行い、希積分子性結晶系を複数個実現した。これらの電子スピン qubit 系は、すべて、g-tensor molecular engineering、及び A-tensor engineering の設計思想に沿って実現したもので、安定同位体標識化合物の分子設計・本格（スケールアップ）合成実験、及び磁気的希積単結晶の育成技術を確立した。これらの qubit 系のスピン物性・結晶構造の詳細を実験的、及び第一原理計算によって、特に交換相互作用の大きさとスピン双極子相互作用のテンソルを解明した。
- ② 電子スピン QC のハードウェアの心臓部である電子スピンの位相制御 QC パルス電子スピン多重（当面 2 重 (ELDOR)）共鳴装置の製作については、3 年度(平成 19 年度)は、初年度の基本設計・実施設計段階から、2 年度に第 1 号機製作 (QC-CD ELDOR) を終えたので、「Q バンドマイクロ波位相制御の多重化」技術の開発のために、基礎的な予備実験を行った。
- ③ 本格的な 2 電子スピン QC 実験では、QC 実験のルーチン化、Q バンド用極低温クライオスタットベース温度の達成、極低温下单結晶・パルス電子スピン 2 重・3 重共鳴 (ELDOR) パルスプロトコルの開発に集中し、①で得たモデル分子性結晶系を用いて QC のための 2 電子スピンマイクロ波位相制御予備実験を行った。
- ④ また、3 年度も Q バンド ELDOR 常温動作チェック用安定有機分子及び上記プロトコル開発用モデル単結晶系の探索、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・合成を引き続き行った。後者は、分子スピン量子コンピュータのデコヒ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したい。3 電子スピン分子系の合成探索実験に着手した。また、ピラジカル電子スピン間の交換相互作用を断ち切るための直交型リンカーを導入した新たな 2 電子 qubit 系を設計し、磁気的希積単結晶ホスト分子を見出した。この間、電子スピン qubit 系設計のための

電子磁気共鳴スペクトルソフトを開発した。(大阪市立大)

- ⑤ 極低温で行う Ku バンド電子スピン多重共鳴実験のためのプローブおよび高周波装置の基本部分の開発を行い、ESR 信号を観測する予備実験を行った。(大阪大)
- ⑥ 極低温 Ku バンド電子スピン多重共鳴装置の開発 (大阪大)
 - a) サンプルの冷却に適した構造の空洞共振器を設計・製作し、常温で CW ESR 信号を確認した。
 - b) 希釈冷凍機内のステージ間の熱絶縁を保ちながら Ku バンドの損失を低減するために、結合同軸ケーブルの実験を行った。
 - c) Ku バンドのフィルタなどマイクロ波回路、パルス電子スピン多重共鳴信号の検出系、多重パルス発生系の一部の開発を行った。

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 : Wigner-Araki-Yanase の定理は、測定相互作用に関する加法的保存量が存在する場合、それと非可換な物理量の反復可能で正確な測定は不可能であることを主張している。本研究では、測定装置のメータが反復測定可能であることを仮定して、この定理を乗法的保存量に拡張し、乗法的保存量と非可換な物理量の反復可能とは限らない一般の測定の不可能性を証明した。更に、乗法的保存量が存在する場合の測定における平均 2 乗誤差の下限を求め、誤差を小さくするためには、加法的保存量の場合には装置系に含まれる保存量の分散を小さくする必要があったが、乗法的保存量の場合には変動係数(標準偏差の平均に対する比)を小さくする必要があることを明らかにした。
- 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、スピン量子ビット上のアダマール・ゲートを角運動量保存法則のもとで実装する場合のゲート非忠実度(1からゲート忠実度の2乗を引いた値)の一般的な下限が、不確定性原理から得られ、また、トレース距離に関する考察で NOT ゲートの誤差確率の下限が得られた。本研究において、これらの結果を一般化して、任意の自己共役ゲート(1量子ビットの自己共役なユニタリ変換)の任意の保存法則のもとでの実装に関するゲート非忠実度の一般的な下限を得た。この結果により、スピン 1/2 の量子ビット上の任意の自己共役ゲートを N 量子ビットのアンシラ、または、スピン N/2 系のアンシラと回転不変な相互作用で実装する場合に、非忠実度が $1/(4+4N^2)$ 以上になることが導かれた。これにより、1量子ビットゲートの大きなクラスに対して、角運動量の保存法則から、アンシラのスピン量子数の2乗に反比例するゲート実装の不可避な誤差が導かれることが明らかになった。
- ③ 量子アルゴリズムに関する応用研究 : Aharonov が示したジョーンズ多項式を計算する多項式時間アルゴリズムを改良し、計算量が小さくなるアルゴリズムを提案した。提案アルゴリズムでは、アルゴリズムが単純化されたが、その代償として必要キュービット数が多くなるという特徴がある。

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)

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
- ・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)

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)

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
- ・量子アルゴリズムに関する応用研究

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

【北川グループ】

1. W.K. Peng, K. Takeda, Efficient cross polarization with simultaneous adiabatic frequency sweep on the source and target channels, *J. Magn. Reson.*, **188**, (2007), 267-274.
2. K. Takeda, A highly integrated FPGA-based nuclear magnetic resonance spectrometer, *Rev. Sci. Instrum.* **78** (2007) 033103.
3. Munehiro Inukai, Kazuyuki Takeda, Studies on multiple-quantum magic-angle-spinning NMR of half-integer quadrupolar nuclei under strong rf pulses with a microcoil, *Concepts in Magnetic Resonance*, **33B**, 115-123 (2008).
4. Makoto Negoro, Syogo Yamanaka, Akinori Kagawa, Kazuyuki Takeda, Masahiro Kitagawa, Universal control of nuclear spins in solids robust against decoherence, *Proceedings of the 8th*

International Conference on Quantum Communication, Measurement and Computing pp. 137-140, Edited by O. Hirota, J.H. Shapiro.

5. Akira SaiToh and Masahiro Kitagawa, Solving X3HS using a matrix-product-state simulation of an extended Bruschweiler search, Proceedings of the 8th International Conference on Quantum Communication, Measurement and Computing (QCMC2006), pp. 141-144, Edited by O. Hirota, J.H. Shapiro and M. Sasaki (NICT Press, Tokyo, 2007)
6. Robabeh Rahimi, Akira SaiToh, Mikio Nakahara, and Masahiro Kitagawa, Single-Experiment-Detectable Multipartite Entanglement Witness for Ensemble Quantum Computing, Measurement and Computing (QCMC2006), pp. 401-404, Edited by O. Hirota, J.H. Shapiro and M. Sasaki (NICT Press, Tokyo, 2007)

【工位グループ】

1. T. Kubo, A. Shimizu, M. Uruichi, K. Yakushi, M. Nakano, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, Y. Morita, and K. Nakasuji, "Singlet biradical character of phenalenyl-based Kekule hydrocarbon with naphthoquinoid structure", *Organic Letters*, **9**, pp.81-84 (2007).
2. K. Maekawa, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui, "A Guanine-substituted nitronyl nitroxide radical forming a one-dimensional ferromagnetic chain", *Org. Biomol. Chem.*, **5**, pp.1641-1645 (2007).
3. S. Nishida, Y. Morita, T. Ohba, K. Fukui, K. Sato, T. Takui, and K. Nakasuji, "Control in spin-delocalization into the 2-substituted pi-systems in 3-oxophenalenoxyl neutral radicals: evaluation by their dimeric structures and DFT calculations", *Tetrahedron*, **63**, pp.7690-7695 (2007).
4. H. Tanaka, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui, "Thymine-Substituted Nitronyl Nitroxide Biradical as a Triplet ($S = 1$) Component for Bio-Inspired Molecule-Based Magnets", *Polyhedron*, **26**, pp.2230-2234 (2007).
5. M. Yano, M. Fujita, M. Miyake, M. Tatsumi, T. Yajima, O. Yamauchi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui, "Synthesis and properties of a redox active ligand with bispicorylamino groups and its dinuclear complex", *Polyhedron*, **26**, pp.2174-2178 (2007).
6. M. Yano, K. Kitagawa, M. Tatsumi, K. Sato, and T. Takui, "m-Phenylenediamine-based high-spin dication diradicals: Analysis of the decomposed products", *Polyhedron*, **26**, pp.2027-2030 (2007).
7. M. Yano, A. Fujiwara, M. Tatsumi, M. Oyama, K. Sato, and T. Takui, "Amine-based organic high-spin systems; Synthesis, electrochemical and spectroscopic studies of polyalkylated one-dimensional oligoaryl triamines", *Polyhedron*, **26**, pp.2008-2012 (2007).
8. K. Tanaka, K. Furuichi, M. Kozaki, S. Suzuki, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, and K. Okada, "Preparation and Magnetic Properties of 4,6-Bis(iminonitroxide)-substituted Resorcinol and Its Cu-complex", *Polyhedron*, **26**, pp.2021-2026 (2007).

9. Y. Kanzaki, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui, "Benzyl-phenyl Ether Derivatives of Nitronyl Nitroxide Triradicals as a Model for Single-component Organic Molecule-based Ferrimagnetics", *Polyhedron*, **26**, pp.1901-1904 (2007).
10. Y. Kanzaki, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui, "Magnetic Interactions in p-Phenylene-bis(nitronyl nitroxide) Biradicals with Large Torsion Angle", *Polyhedron*, **26**, pp.1890-1894 (2007).
11. K. Hayakawa, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui, "Stable Iminonitroxide Biradicals: Building Blocks for Organic Heterospin, Heteromolecular Complexes", *Polyhedron*, **26**, pp.1885-1889 (2007).
12. K. Maekawa, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and T. Takui, "Cytosine- and a guanine-substituted nitronyl nitroxide radicals as building blocks for generalized ferrimagnetic system", *Polyhedron*, **26**, pp.2347-2352 (2007).
13. K. Okada, S. Beppu, K. Tanaka, M. Kuratsu, K. Furuichi, M. Kozaki, S. Suzuki, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, Y. Kitagawa, and K. Yamaguchi, "Preparation, structure, and magnetic interaction of a Mn(hfac)₂-bridged [2-(3-pyridyl)(nitronyl nitroxide)-Mn(hfac)₂]₂ chain complex", *Chem. Commun.*, pp.2485-2487 (2007).
14. 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, "Implementation of Molecular Spin Quantum Computing by Pulsed ENDOR Technique: Direct Observation of Quantum Entanglement and Spinor", *Physica E*, **40**, pp.363-366 (2007).
15. T. Murata, Y. Morita, Y. Yakiyama, Y. Nishimura, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, and K. Nakasuji, "Zwitterionic pi-radical involving EDT-TTF-imidazole and F4TCNQ: redox properties and self-assembled structure by hydrogen-bonds and multiple S•••S interactions", *Chem. Commun.*, pp.4009-4011 (2007).
16. H. Tanaka, D. Shiomi, T. Ise, K. Sato, and T. Takui, "Cytosine-guanine base pairing in a hydrogen-bonded complex of stable open-shell molecules with S = 1 spins", *Cryst. Eng. Comm.*, **9**, pp.767-771 (2007).
17. Y. Morita, S. Suzuki, K. Fukui, S. Nakazawa, H. Kitagawa, H. Kishida, H. Okamoto, A. Naito, A. Sekine, Y. Ohashi, M. Shiro, K. Sasaki, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, and K. Nakasuji, "Thermochromism in an Organic Crystal Based on the Co-existence of s- and p-Dimers", *Nature Materials*, **7**, pp.48-51 (2008). (doi:10.1038/nmat2067)
18. T. Matsumoto, T. Sasamori, K. Sato, T. Takui, and N. Tokitoh, "Reduction of a Kinetically Stabilized Silabenzene Leading to the Formation of the Corresponding Anion Radical Species", *Organometallics*, **27**, pp.305-308 (2008). (doi:10.1021/om701060a)
19. T. Sawai, K. Sato, T. Ise, D. Shiomi, K. Toyota, Y. Morita, and T. Takui, "Macrocyclic

High-Spin ($S = 2$) Molecule: Spin Identification of A Sterically Rigid Metacyclophane-Based Nitroxide Tetraradical by Two-Dimensional Electron Spin Transient Nutation Spectroscopy", *Angew. Chem. Int. Ed.*, in press (2008).

20. Y. Morita, A. Ueda, S. Nishida, K. Fukui, T. Ise, D. Shiomi, K. Sato, and K. Nakasuji, "Curved Aromaticity of Corannulene-Based Neutral Radical: Crystal Structure and 3D Unbalanced Delocalization of Spin", *Angew. Chem. Int. Ed.*, **47**, pp.2035-2038 (2008). ([doi:10.1002/anie.200704752](https://doi.org/10.1002/anie.200704752))
21. S. Nakazawa, K. Sato, D. Shiomi, M. L. T. M. B. Franco, M. C. R. L. R. Lazana, M. C. B. L. Shohoji, K. Itoh, and T. Takui, "Electronic and molecular structures of C_{60} -based poly-anionic high-spin molecular clusters: Direct spin identification and electron spin transient nutation spectroscopy for high spin chemistry", *Inorganica. Chimica. Acta.*, in press (2008). ([doi:10.1016/j.ica.2008.03.048](https://doi.org/10.1016/j.ica.2008.03.048))

【小澤グループ】

1. M. Ozawa, Simultaneous measurability of non-commuting observables and the universal uncertainty principle, Proc. 8th Int. Conf. on Quantum Communication, Measurement and Computing (NICT Press, Tokyo, 2007), 363-368.
2. G. Kimura, H. Tanaka, and M. Ozawa, Comments on "Best conventional solutions to the King's problem," *Z. Naturforsch.* 62a, 152-156 (2007).
3. Y. Nakajima, Y. Kawano, and H. Sekigawa, "Efficient quantum circuits for approximating the Jones polynomial," *Quantum Information and Computation*, Vol. 8, No. 5, pp. 489-500 (2008).

(2) 特許出願

平成 19 年度 国内特許出願件数 : 0 件 (CREST 研究期間累積件数 : 1 件)