「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 16 年度採択研究代表者

百瀬 孝昌

情報通信総合研究機構電磁波計測研究センター・客員研究員

分子の電子・振動・回転状態を用いた量子演算基盤技術の開発

1. 研究実施の概要

本プロジェクトでは、分子を量子演算素子と位置づけ、その電子振動回転の量子状態を活用した新しい量子情報処理技術の実験的提案とその基盤技術の開発を行っている。具体的には、分子の電子固有状態とともに、分子のみが有する自然寿命が 10^{-3} 秒から 10^{-4} 秒と極めて長い振動・回転の固有状態 (ν, J) を量子情報を担う資源とみなし、緻密に位相制御された高輝度のコヒーレント光源およびアト秒精度で制御された超短パルス光源を演算オペレータとして、固有状態間の重ね合わせ状態を制御する技術を開発することで、分子の量子状態を用いた新しい量子情報処理基盤技術の確立を目指している。本年度は以下のような成果を主として得た。

- (1) 波形整形した超短パルス赤外レーザー技術の確立
- (2) 光の位相制御などの新しい光量子技術開発
- (3) 量子固体中の分子量子ビットのデコヒーレンスの解明
- (4) スケーラビリティをあげられるモデル系の開発
- (5) アト秒位相変調器を用いたフーリエ変換手法の開発
- (6) デコヒーレンスシミュレーターの開発
- (7) デコヒーレンスしにくい分子 qubit の理論的探索
- (8) 分子 qubit のエンタングルメント生成に関する理論的考察
- (9) 誘起双極子を取り込んだ最適制御シミュレーション法の開発

今後はさらに引き続き現在の研究を進め、分子の量子状態を用いた新しい量子情報処理基盤技術の実証をする予定である。

2. 研究実施内容 (文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

我々の目的は分子の多様な電子、振動、回転状態のそれぞれのモードを qubit と見立て、位相制御したレーザー光によってそれらのモード間のエンタングルメントを生成・制御できることを示す

ことで、分子の量子状態を用いた新しい量子情報処理基盤技術の確立をすることである。本年度の具体的な成果は以下の通りである。

(1)波形整形した超短パルス赤外レーザー技術の確立

分子の振動回転状態を量子演算素子として用いるときに必要となるゲート操作をおこなうための一つの有力な手段は、波形整形したフェムト秒赤外パルスを用いるものである。量子演算の確度をあげるためには、光位相まで含めた精緻な波形整形技術が必要である。そのような技術はこれまでに確立されていなかった。我々は $2-10\ \mu\text{m}$ の中赤外領域のフェムト秒赤外パルスの波形整形技術の開発を行い、基本的な技術を達成した。得られた実験技術から要請される周波数・時間分解能などの条件をもとに、一酸化炭素(CO)などの分子の振動回転状態を用いた時に必要となるパルス波形を理論的に計算し、十分な確度で量子演算が行えることを示した。^{1, 3)}また、そのパルス波形を実際実験的に生成し、波形解析することに成功した[論文誌筆中]。現在、これらの技術を実際の分子の量子操作に応用する段階に来ている。

(2)光の位相制御などの新しい光量子技術開発

もう一つの有力な振動回転量子ゲート操作技術は、位相同期した複数の周波数の赤外連続光レーザー光を用いるものである。そのためには絶対周波数および位相を完全に制御した赤外レーザー光源の開発が不可欠である。そのための基礎技術の開発を行った。これまでにCW発振するOPOレーザーの励起光(1064nm)の周波数を50 Hz以下まで絶対周波数および位相を安定化する技術の確立に成功した[論文誌筆中]。現在OPO出力のアイドラー光を10Hz以下まで押さえる技術を開発中である。また、光周波数コムを介して異なる周波数で発振する2台の近赤外半導体レーザーの相対位相を1000秒オーダー安定化することに成功した。また任意の位相シフト量を任意のタイミングでスイッチングする技術を確立した。現在、これらの技術を実際の分子の量子操作に応用する段階に来ている。

(3)量子固体中の分子量子ビットのデコヒーレンスの解明

量子凝縮相に捕捉した様々な分子の振動回転遷移の超高分解能分光計測を引き続き行い、量子演算素子としての適性を検討した。固体水素中の分子の核スピン状態の緩和機構をあきらかにした。³⁾メタン分子の場合その寿命は半日程度あり、量子固体中の分子の核スピン状態を使うことで、寿命の長い量子演算素子が開発できる可能性があることを示している。また、量子凝縮相中におけるCO分子の振動回転励起状態の緩和過程を調べるために、振動回転遷移のスペクトル線型を高分解能赤外半導体レーザーを用いて精密に測定した。結晶の温度を1.8-6Kに渡って変えて測定した結果から、スペクトル線型は温度依存性のないガウシアンと指数関数的な温度依存性をもつローレンツィアの成分に分離できることを見いだした。後者を局所フォノンモデルで解釈すると、COの励起状態はパラ水素とのファンデルワールス振動モードを介して緩和することを明らかにした。一方、経路積分分子動力学(PIMD)シミュレーションを用いた固体水素中の分子の回転状態の理論的解析を行い、パラ水素クラスタにドーピングされたCO分子が孤立の場合の約80%の回転定数をもった擬似自由回転子として振舞うことを明らかにした。これは百瀬グループの振動回転分光実験の結果を半定量的に再現するものである。CO

よりも更に「強い量子性」を持つと期待できる HF 分子の回転では、パラ水素環境体の温度条件などに依存せず孤立分子のように振舞う結果を得た。

(4)スケールビリティをあげられるモデル系の開発

分子を量子演算素子として用いたときに問題となるスケールビリティを克服するためには、分子を空間的に配列してそれらを制御することが将来的に必要なことになる。そのためのモデル系として、固体水素中に規則正しく整列している水素分子自身を用いた量子演算手法の提案と、その基礎実験手法の確立を行った[論文執筆中]。水素分子自身は光学活性ではないが、固体水素中に生成した電荷(イオン)の電場によって水素分子の振動モードが光学活性になることを活用すると、個々の水素分子の振動運動を演算素子として量子ゲート操作をすることが可能である。それを実現させるために、固体水素中にイオンを分散捕捉する技術の確立を行い、十分な濃度でイオンを捕捉することに成功した。その分光測定から少なくとも4分子の独立操作が技術的に可能であることが明らかとなった。これは将来、光格子などに捕捉した分子を量子演算素子として用いるときのモデル系なるものでもある。現在CNOT演算の基礎となる、遷移周波数の正確な測定を行っている。

(5)アト秒位相変調器を用いたフーリエ変換手法の開発

これまでに、フェムト秒レーザーパルス対の相対位相をアト秒レベルの精度で制御する「アト秒位相変調器(APM)」と呼ばれる装置を分子振動波束に適用することによって、かつてない超高精度の量子干渉を実現することに成功している。さらに、この技術を用いて、振動波束(振動固有状態の重ね合わせ状態)に書き込む振幅位相情報を制御し、これを読み出すことに成功している。また、この READ and WRITE 技術の次の段階として論理ゲートの開発を行い、これまでに、ヨウ素分子の振動波束の時間発展を利用した2ビットおよび3ビットのフーリエ変換を開発した。

(6)デコヒーレンスシミュレーターの開発

分子量子ビットの安定性を検討するため、アト秒位相変調器を用いたデコヒーレンスシミュレーターの開発を行った。具体的には、ヨウ素分子内の振動波束に赤外領域の高強度フェムト秒レーザーパルスを照射することによって誘起される振幅と位相の変化を、高精度の干渉測定等によって詳細に観察した。その結果、振幅と位相の変化量が、赤外パルスを照射するタイミングに依存することが明らかになった。さらに高強度近赤外フェムト秒パルスを用いた分子振動波束の振幅位相制御のための電場誘起断熱状態における振動波束解析プログラムの開発を現在進めている。

(7)デコヒーレンスしにくい分子 qubit の理論的探索

量子演算、量子情報処理においては、デコヒーレンスが重要な障害となる。分子内の振動状態を qubit として用いた場合には、分子内振動再配分(IVR)が重要なデコヒーレンスのメカニズムであることにより、古くから化学の分野で盛んに IVR は研究されてきた。本研究では、IVR を量子演算、量子情報処理における立場から再考察し、定性的、定量的な議論により、如何なる分子がデコヒーレンスに対して robust であるかを解明した。その結果、H₂O 分子のような、light-heavy-light で、ローカルモードで良く記述される分子が最適であ

ることを明らかにした。

(8)分子 qubit のエンタングルメント生成に関する理論的考察

一般的な議論により、エンタングルメント相互作用が弱いほど、外場相互作用を長時間にすればするほど最もエンタングル度の大きなベル状態などを生成しやすいことを明らかにした。これを端緒として、これまでは終端時間拘束のある量子系に対して用いられている最適制御理論を、終端時間拘束なしの最適制御へと拡張した新しい理論を構築した。その理論に基づき、双極子-双極子相互作用する、NaCl 分子と NaBr 分子との回転状態間のエンタングルメント生成は、外場の時間長が長いほど効率が良いことを、数値計算により明らかにした。^{4-6, 8-10)}

(9)誘起双極子を取り込んだ最適制御シミュレーション法の開発

動的な分子整列保持機構をシミュレーションにより見出し、「トンネリングのコヒーレント破壊」の拡張・一般化が可能であることを示した。また 800nm に中心周波数をもつサブフェムト秒パルスを使い非共鳴多光子遷移を通じた振動・回転の同時制御の理論解析を行った⁷⁾。更に、従来のゲートパルス設計法を拡張し、デコヒーレンスの影響を陽に取り込むことができるパルス設計アルゴリズムを新規に開発した。

3. 研究実施体制

(1)「百瀬(情報通)」研究グループ

①研究分担グループ長：百瀬 孝昌（情報通信研究機構、客員研究員）

② 研究項目

量子凝縮相中の分子の振動回転準位を用いた量子情報基盤技術の確立

(2)「百瀬(UBC)」研究グループ

①研究分担グループ長：百瀬 孝昌（ブリティッシュコロンビア大学、客員研究員）

② 研究項目

分子の内部準位を用いた量子情報基盤技術に関する基礎研究

(3)「金森(東工大)」研究グループ

①研究分担グループ長：金森 英人（東京工業大学大学院、准教授）

②研究項目

量子凝縮相中の分子の回転状態の位相制御と量子演算素子への組み込み

(4)「大森(分子研)」研究グループ

①研究分担グループ長：大森 賢治（自然科学研究機構・分子科学研究所、教授）

②研究項目

アト秒精度の量子位相操作に基づく分子内情報処理の検証

(5)「山下(東大)」研究グループ

①研究分担グループ長： 山下 晃一（東京大学大学院、教授）

②研究項目

量子凝縮相中にある分子振動状態の高精度量子化学計算と波束ダイナミクス

(6)「大槻(東北大)」研究グループ

①研究分担グループ長： 大槻 幸義（東北大学大学院、准教授）

②研究項目

分子量子コンピュータの最適制御シミュレーション解析

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表（原著論文）

1. Masaaki Tsubouchi and Takamasa Momose, "Simulation of Rovibrational Wave Packet Propagation Generated by Shaped Mid-Infrared Femtosecond Pulses. " *Phys. Rev. A.* **77**(2), 023405 (12 pages) (2008).
2. Yuki Miyamoto, Mizuho Fushitani, Daisuke Ando and Takamasa Momose, "Nuclear Spin Conversion of Methane in Solid Parahydrogen. " *J. Chem. Phys.* **128**(11), 114502 (10 pages) (2008).
3. Masaaki Tsubouchi and Takamasa Momose, "Rovibrational Wave Packet Manipulation using Shaped Mid-Infrared Femtosecond Pulses Toward Quantum Computation 2: Optimization of Pulse Shape by Generic Algorithm. " *Phys. Rev. A.* **77**(5), 052326 (14 pages) (2008).
4. K. Mishima, K. Tokumo and K. Yamashita, "Quantum computing using molecular electronic and vibrational states", *Chem. Phys.* **343**, 61 (2008).
5. K. Mishima and K. Yamashita, "Bell state generation of multi-level systems in the presence of complex entangling interactions", *Chem. Phys.* **352**, 281 (2008).
6. K. Mishima and K. Yamashita, "Entanglement of angular momenta of atoms and molecules", *Int. J. Quantum Chem.* **108**, 1352 (2008).
7. K. Nakagami, Y. Mizumoto, and Y. Ohtsuki, Optimal alignment control of a nonpolar molecule through nonresonant multiphoton transitions, *J. Chem. Phys.* **129**, 194103 (9 pages) (2008).
8. K. Mishima and K. Yamashita, "Free-time and fixed end-point optimal control theory in quantum mechanics: application to entanglement generation", *J. Chem. Phys.* **130**, 034108 (2009).
9. H. Katsuki, H. Chiba, C. Meier, B. Girard, and K. Ohmori, "Actively Tailored Spatiotemporal Images of Quantum Interference on the Picometer and Femtosecond

- Scales,” *Phys. Rev. Lett.* **102**, 103602-1—103602-4 (2009).
10. Brian A. Tom, Siddhartha Bhasker, Yuki Miyamoto, Takamasa Momose, and Benjamin J. McCall, "Producing and Quantifying Enriched para-H₂", *Rev. Sci. Instru.* **80**(1), 016108 (3 pages) (2009).
 11. K. Mishima and K. Yamashita, “Decoherence of intramolecular vibrational entanglement in polyatomic molecules, *Int. J. Quantum Chem.* (in press).

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数 : 0 件 (CREST 研究期間累積件数 : 0 件)