

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。物理的初期化については、目標とする偏極率 70%を達成するために実験条件について多大な努力を行なったが達成できなかった。現時点では、ナフタレン結晶にドーブしたペンタセンの濃度が不足していることが原因と考えている。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を高速化するために、高速繰り返し可能な色素レーザーを作製した。また、ナフタレン結晶への量子計算用分子のドーブが困難であることが分かったため、今後はケトン系などよりジェネラスなホスト結晶の探索にも注力する。また、電子スピン量子演算のためのKuバンド電子スピン多重共鳴装置のプロトタイプを作製した。

開殻系分子がもつ電子スピンを qubit として活用した QC/QIP を開発することを目的に、弱い交換相互作用をもつ 2 電子スピン qubit 有機分子系(安定な開殻系 biradical)を新たに設計・合成し、これを磁氣的に希釈した単結晶系を初めて得てスピン物性を解析し、アンサンブル系 2 電子 qubit 系 QC/QIP に適していることを明らかにした。QC のスピン技術を開発するために、電子スピンの位相制御を可能とする、高出力 Q-バンドパルス電子-電子 2 重共鳴 QC を設計・製作し、2 電子 qubit 系の初歩的な論理ゲートを実験的に構築した。また、Lloyd 型の 1 次元周期スピン構造をもつ scalable な電子 qubit 系のプロトタイプ系を超分子アプローチによって初めて設計・合成・単離し、X 線構造解析を行った。

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、不確定性原理と保存則に由来する測定誤差および計算誤り確率に関する数学理論を構築することにより、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開発を行った。

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（北川グループ）

- ①多 qubit 分子系の探索：光励起三重項状態を用いた動的核偏極（Triplet-DNP）が可能で、かつ Shor のアルゴリズムのデモンストレーションが行えるホスト・ゲスト分子系を、引き続き探索した。今年度は、当グループで Triplet-DNP の実績があるペンタセンをドーブしたナフタレン結晶に共ドーブ可能な分子にターゲットを絞って、探索を行った。しかし、多くの分子についてナフタレン結晶へのドーブを試みた結果、ナフタレン結晶への多 qubit 分子のドーブは困難であるという結論に至った。そのため、ケトン系などナフタレン以外のホスト結晶の可能性も探っている。一方、偏極用のペンタセン分子のホスト結晶としては、ナフタレンがこれまでのところ最も適しているので、引き続きナフタレンにペンタセンと共にドーブできる少数 qubit 分子の探索も行う。
- ②光励起三重項状態を用いた動的核偏極： ナフタレンにドーブしたペンタセンでプロトン核スピンを電子スピンの偏極率で決まる限界の 70%程度まで偏極させることを目標として実験を行い、最大 25%の偏極率を達成したが、これ以上の偏極率を得ることはできなかった。現時点では、高偏極が達成できない原因は、ナフタレン結晶中でのペンタセン濃度が不足しているためと考えている。ペンタセン濃度を上げる努力を行なった結果、徐々に高濃度の結晶が作製できるようになってきた。今後は、これらの結晶で動的核偏極実験を行い、高偏極率の達成を目指す。光励起三重項状態を用いた DNP によってより短時間でより高い偏極率を達成する方法を解明することを目的として、室温でナフタレンよりも安定な p-ターフェニルをホスト結晶として用いてホストの重水素化率の効果を実験的に研究した結果について理論的な考察を行った。[Kagawa, Murokawa, Negoro, Takeda, Kitagawa, JMR]
- この研究から、三重項状態を作るための光照射の繰り返し周波数を上げることによって、DNP を高速化できる可能性が高いことが分かったので、これまで使用していたレーザよりも高速繰り返し可能な色素レーザを作製した。
- ③固体NMRによる量子演算： 共ドーブ結晶が得られていないので、固体NMR 量子計算に必要なパルス照射法の研究を行った。
- ④真の量子計算： 偏極率が真のエンタングルメントに必要な 41.42% に達していないため、到達偏極率の向上のために②の研究に集中した

2. 分子の電子スピンを用いた量子演算（北川グループ）

- ①極低温（100mK）Ku バンドパルス電子スピン多重共鳴装置の開発：高周波部分の周波数構成などをすべて任意波形発生器(AWG)に合わせて変更し、プロトタイプを作製した。それを用いて、室温での ESR 信号の観測を試みたが、現有の CW TWT のアイドル時(パルス出力時以外)雑音が大きく、受信系のフロントエンドを飽和させてしまうという問題に直面した。その

ため、非線形素子を用いて TWT からの出力をパルス出力時のみ実験系に導入し、アイドル時には別のルートに出力してダミーロードで終端する実験を行った。この問題を本質的に解決するには、CW TWT からパルス TWT に変更する必要がある、これまでの実験に基づいて必要な仕様を策定した。このTWTの入手には時間がかかるため、小電力の半導体増幅器で代替して、FID を観測した。

3. 分子の電子スピンを用いた量子コンピュータの開発（工位グループ）

- ①今日のパルスマイクロ波技術を駆使して電子スピンの位相を制御する要素技術として、**Q-バンドマイクロ波 Coherent-Dual (CD-ELDOR)** 先端技術を開発し、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 (biradical) のアンサンブル系 (磁気的に希釈した単結晶) に適用し、2 電子スピン qubit からなる初歩的な量子論理ゲートを構築した。強いマイクロ波やラジオ波の照射に対しても極めて安定な新規な biradical 系を複数個設計・合成し、交換相互作用と電子スピン由来の双極子相互作用が競合する分子系の設計指針を確立することができた。これらの biradical 単結晶系はすべて、初めての 2 電子開殻分子系の例であるので、これらのスピン物性の全解析を、X 線構造解析と共に行った。本年度は、新たに **pseudo g-engineering** アプローチを開拓した。このアプローチでは、異なる核スピン同位体を導入することにより、biradical 系全体としての縮重を破ることができるので、合成上の制約が緩和される。多電子 matter qubit 系の合成戦略では、計画の前倒しを図り Lloyd 型の 1 次元周期スピン構造系プロトタイプの合成に初めて成功した。引き続き第 2 世代 (ABC) n オリゴマーの設計・合成の指針を得た。これは、常磁性金属イオンの g テンソルを配位環境によって制御するもので、遷移金属の種類に関わらず制御可能な方法論で scalable な電子スピン qubit 系の開拓を期待できる。
- ②電子スピン **QC/QIP** のハードウェアの心臓部である電子スピンの位相制御 **CD** 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、初年度の基本設計・実施設計段階から、2 年度の第 1 号機製作 (**QC-CD ELDOR**)、3 年度のルーチン稼動実験を終え、4 年度の本格実験に加え、**Q-バンド TWT** アンプ装備により照射できる帯域の拡大化・時間高分解能化を実現した。
- ③本格的な 2 電子スピン **QC** 実験では、昨年度 (3 年度) に引き続き、**QC/QIP** 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常時達成 (液体ヘリウム大容量クライオスタットの設計・製作)、極低温下单結晶・パルス電子スピン 2 重共鳴 (**ELDOR**) パルス系列プロトコルの開発を実施してきた。多電子スピン qubit 系における量子テレポーテーションのパルス系列プロトコルを開拓する目的で、電子スピンをバス qubit とする、電子-核スピン qubit 系 (多核スピンを有する芳香族安定ラジカル) について、パルス系列を考案し初めて量子テレポーテーション実験を実施した。

4. フォールトトレラント量子計算（小澤グループ）

①不確定性原理と保存則に由来する量子雑音の研究：ウィグナー・荒木・柳瀬の定理の定量的一般化公式：ウィグナー・荒木・柳瀬の定理は、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。[G. Kimura, B.K. Meister, and M. Ozawa, Quantum limits of measurements induced by multiplicative conservation laws: Extension of the Wigner-Araki-Yanase Theorem, Phys. Rev. A 78, 032106 (7 pages) (2008)]

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。これらの結果を一般化して、任意のユニタリゲート（1量子ビットのユニタリ変換）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ユニタリゲートを 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、ユニタリゲートの二つの固有値の偏角の差を θ ($0 \leq \theta \leq \pi$) とすると、 $0 \leq \theta \leq \pi/2$ の場合に非忠実度が $\sin^2 \theta / (4+4N^2)$ 以上になり、 $\pi/2 \leq \theta \leq \pi$ の場合に非忠実度が $1/(4+4N^2)$ 以上になることが示された。アダマール・ゲートや NOT ゲートは $\theta = \pi$ の場合で、これらに対しては、非忠実度が $1/(4+4N^2)$ 以上になることが導かれる。これにより、全ての1量子ビットゲートに対して、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。[投稿中]

量子アルゴリズムに関する応用研究：リー群論の KAK 分解を利用して、ユニタリ行列を分解することにより、量子回路を自動的に構成するアルゴリズムが知られている。このアルゴリズムを利用し、一般化クリフォード群の効率的な量子回路を構成した。一般化クリフォード群は、量子フーリエ変換を含む群であり、この量子回路を利用すると、ショアのアルゴリズムの改良が可能である。[口頭発表済み、投稿準備中]

3. 研究実施体制

(1)「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、教授）

②研究項目

(1)分子の核スピンによる真の量子計算

(2)分子の電子スピンによる量子演算

(2)「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、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研究分担グループ長： 小澤 正直（東北大学大学院/名古屋大学大学院、教授）

②研究項目

(1) 不確定性原理と保存則に由来する量子雑音の研究

(2) 量子計算素子の誤り確率に関する一般理論の展開

(3) 量子アルゴリズムに関する応用研究

(4) 量子雑音理論の量子暗号への応用

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表（原著論文）

「量子計算」グループ

1. Weng Kung Peng, Masahiro Kitagawa, Simultaneous adiabatic spin-locking cross polarization in solid-state NMR of paramagnetic complexes, Chemical Physics Letters 460 (2008) 531-535
2. 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).
3. Masashi Fukuchi, Munehiro Inukai, Kazuyuki Takeda, K. Takegoshi, Double-acquisition: Utilization of discarded coherences in a 2D separation experiment using the States method, J. Magn. Reson., 194, 300-302 (2008).
4. K. Takeda, Y. Tabuchi, M. Negoro, M. Kitagawa, “Active compensation of rf-pulse transients” J. Magn. Reson., Vol.197, (2009), 242-244
5. Akinori Kagawa, Yu Murokawa, Kazuyuki Takeda, Masahiro Kitagawa, “Optimization of ^1H spin density for dynamic nuclear polarization using photo-excited triplet electron spins” Journal of Magnetic Resonance 197 (2009) 9–13
6. Kazuyuki Takeda, Yutaka Tabuchi, Makoto Negoro, Masahiro Kitagawa, “Active compensation of rf-pulse transients” Journal of Magnetic Resonance 197 (2009) 242–244

7. Akinori Kagawa, Makoto Negoro, Kazuyuki Takeda, and Masahiro Kitagawa, Magnetic field cycling instrumentation for DNP-NMR using photoexcited triplets, Review of Scientific Instruments(accepted)

「分子電子スピン」グループ

8. Morita, Y.; Nishida, S.; Kawai, J.; Takui, T.; Nakasuji, K. Oxophenalenoxyl: Novel Stable Neutral Radical with a Unique Spin-Delocalized Nature Depending on Topological Symmetries and Redox State *Pure Appl. Chem.* 2008, *80*, 507–517.
9. Sawai, T.; Sato, K.; Ise, T.; Shiomi, D.; Toyota, K.; Morita, Y.; Takui, T. Macrocyclic High-Spin ($S = 2$) Molecule: Spin Identification of A Sterically Rigid Metacyclophane-Based Nitroxide Tetradical by Two-Dimensional Electron Spin Transient Nutation Spectroscopy *Angew. Chem. Int. Ed.* 2008, *47*, 3988–3990.
10. Murata, T.; Morita, Y.; Yakiyama, Y.; Yamamoto, Y.; Yamada, S.; Nishimura, Y.; Nakasuji, K. Hydrogen-Bond Architectures of Protonated 4,4'-Biimidazolium Derivatives and Oligo(imidazolium)s in Charge-Transfer Salts with Tetracyanoquinodimethane *Cryst. Growth Des.* 2008, *8*, 3058–3065.
11. Nishida, S.; Morita, Y.; Ueda, A.; Kobayashi, T.; Fukui, K.; Ogasawara, K.; Sato, K.; Takui, T.; Nakasuji, K. Curve-Structured Phenalenyl Chemistry: Synthesis, Electronic Structure, and Bowl-Inversion Barrier of a Phenalenyl-Fused Corannulene Anion *J. Am. Chem. Soc.*, 2008, *130*, 14954-14955.
12. Nakazawa, S.; Sato, K.; Shiomi, D.; Franco, M. L. T. M. B.; Lazana, M. C. R. L. R.; Shohoji, M.C.B.L.; Itoh, K.; Takui, T. Electronic and Molecular Structures of C_{60} -based Polyanionic High-spin Molecular Clusters: Direct Spin Identification and Electron Spin Transient Nutation Spectroscopy for High-spin Chemistry *Inorg. Chimica Acta*, 2008, *361*, 4031-4037.
13. Sawai, T.; Sato, K.; Ise, T.; Shiomi, D.; Toyota, K.; Morita, Y.; Takui, T. Macrocyclic High-Spin ($S=2$) Molecule: Spin Identification of a Sterically Rigid Metacyclophane-based Nitroxide Tetradical by Two-dimensional Electron Spin Transient Nutation Spectroscopy *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2008, *47*, 3988-3990.
14. 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*, 2008, *27*, pp.305-308 .
15. A. Kunishita, M. Kubo, H. Sugimoto, T. Ogura, K. Sato, T. Takui, S. Itoh, Mononuclear Copper(II)-Superoxo Complexes that Mimic the Structure and Reactivity of the Active Centers of PHM and $D\beta M$ *J. Am. Chem. Soc.*, *131*, pp.2788-2789 (2009).
16. Masafumi Yano, Yorichika Okino, Yuji Ichihara, Masakazu Tatsumi, Munetaka Oyama, Kazunobu Sato, Takeji Takui, Organic High-Spin Systems; Synthesis, Electrochemical and Spectroscopic Studies of π -Extended Tetraaryl *m*-Phenylenediamines *Polyhedron*, in press (2009).

17. Masafumi Yano, Mitsuru Manabe, Masakazu Tatsumi, Munetaka Oyama, Kazunobu Sato, Takeji Takui, Synthesis and Properties of a Redox Active Starburst Ligand with Three Bispicorylamino Groups and its Trinuclear Complexes *Polyhedron*, in press (2009).
18. Yuki Masuda, Masato Kuratsu, Shuichi Suzuki, Masatoshi Kozaki, Daisuke Shiomi, Kazunobu Sato, Takeji Takui, Yuko Hosokoshi, Xiaozheng LAN, Yuji Miyazaki, Akira Inaba, Keiji Okada A New Ferrimagnet Based on a Radical-substituted Radical Cation Salt *J. Am. Chem. Soc.* 2009, 131 (13), 4670-4673.
19. 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. Höfer, T. Takui. Molecular Electron-Spin Quantum Computers and Quantum Information Processing: Pulse-Based Electron Magnetic Resonance Spin Technology Applied to Matter Spin-Qubits *J. Mater. Chem.*, DOI: 10.1039/b819556k, in press (2009).

「フォールトトレラント量子計算理論」グループ

20. G. Kimura, B.K. Meister, and M. Ozawa, Quantum limits of measurements induced by multiplicative conservation laws: Extension of the Wigner-Araki-Yanase Theorem, *Phys. Rev. A* 78, 032106 (7 pages) (2008).
21. T. Karasawa, M. Ozawa, J. Gea-Banacloche, and K. Nemoto, Quantum precision limits for any implementation of single qubit gates under conservation laws, *Intern. J. Quantum Information* 6, 701-706 (2008).

(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 : 1 件)