

令和 3 年 5 月 17 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01152

研究課題名（和文）超低エントロピー大規模スピン多体系の精密制御による量子シミュレーション

研究課題名（英文）Quantum simulation implemented by precise control of ultra-low entropy and large scale many-body spin systems

研究代表者

北川 勝浩（Kitagawa, Masahiro）

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：20252629

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：スピン多体系での磁気相転移の量子シミュレーションの実現を目指した。核スピン系では、装置開発を行い、磁気相転移に必要な超低エントロピー化に成功した。電子スピン系ではFPGAを用いたKu帯パルスESR装置を開発し、精密なスピン制御に成功した。また磁気相転移を行うためにハミルトニアンを実効的に模倣するためのパルス生成法の開発を行い、従来より高いフィデリティを得ることに成功した。磁気相転移の観測までにはいたらなかったが、今後の実現へ向けた実験装置、条件等の基盤技術が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン多体系の磁気相転移は古典コンピュータでは解析が困難である。量子的なスピン系自身にラジオ波パルスを照射し、ハミルトニアンを変形することで他のハミルトニアンを模倣する。量子シミュレータは古典コンピュータでは解析できない量子多体系を扱うため統計物理や物性物理学へ貢献できる。本研究で得られた成果は今後の量子シミュレータ開発において重要な基盤技術である。

研究成果の概要（英文）：We aimed to realize a quantum simulation of the magnetic phase transition in a many-body quantum spin system. In the nuclear spin system, we have developed DNP instruments and succeeded in achieving the ultra-low entropy required for the magnetic phase transition. In the electron spin system, we have developed a Ku-band pulsed ESR spectrometer using FPGA and realized precise spin control. We also developed a pulse generation method to effectively imitate the Hamiltonian for magnetic phase transition, and succeeded in obtaining higher fidelity than before. Although it was not possible to observe the magnetic phase transition, basic technologies such as experimental equipment and conditions for future realization were obtained.

研究分野：量子情報

キーワード：量子シミュレーション スピン 磁気共鳴 高偏極 動的核偏極

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

万能なデジタル量子シミュレーションは、量子ゲートを用いて実行する。そのためデジタル量子シミュレータの開発は、大規模な量子コンピュータを実現するのと同程度に困難である。一方、本研究提案の量子シミュレーションはアナログ型であり量子ゲートを用いずに、ハミルトニアン¹の形や大きさを変えて他の系を模倣するため比較的实现が容易であり、様々な物理系で活発に研究が行われている。

分子中のスピンを用いた系での量子情報処理の実験は少数量子ビットの研究であり、量子情報科学や物性物理への大きな寄与ができていないのが現状である。ただし他の系での量子ビットの制御については、核磁気共鳴の分野で培われてきた技術が数多く利用されている。また分子中のスピンを用いた量子コンピュータの実験では、そのスピン偏極の低さから量子ビットの超低エントロピー化を行う必要があった。それらの精密制御、超低エントロピー化は本研究課題であるスピンを用いた磁気相転移の量子シミュレータの実現に必須である。理論的にはラジオ波パルス列によって実効的にハミルトニアンを変化させることで磁気相転移を実現することが提案されている。

2. 研究の目的

本研究では、固体物質中の超低エントロピーな大規模核スピン多体系、電子スピン多体系を精密に制御することにより、磁気相転移の量子シミュレータを開発する。スピンを制御するパルス列を解析的、あるいは数値的に設計し、ハミルトニアンを実効的に模倣する。そのようなパルス列を高偏極化したスピン系に照射することで、物質が本来持っていたハミルトニアンで秩序化していた系は、実効的に模倣したハミルトニアンの磁気秩序へと変化する。他の物理系と比較して大規模(~ 10^{18} 個)に集積化されているスピン系を用いて磁気相転移の量子シミュレーションを実現することを目的とした。

3. 研究の方法

核スピンの超低エントロピー化は電子スピンの超低エントロピー状態を核スピンの移動的核偏極(DNP)で実現する。そのための実験装置の開発をおこなう。超低エントロピー化した後に回転座標系における断熱消磁(ADRF)を用いて核スピン系の磁気相転移を実現する。ADRFでは断熱定理を満たした等エントロピー過程となるようにそのスピンを操作する電磁波パルスを照射する。次にラジオ波の照射強度や周波数掃引速度を変えながらADRFに最適な断熱条件を実験的に決定し、磁気相転移を実現する。

電子スピンの超低エントロピー化は希釈冷凍機を用いて試料を100mK程度に冷却することで実現する。電子スピンの精密制御が行えるKu帯のパルスESR装置の開発を行い、核スピン同様のパルス制御を行うことで磁気相転移の実現を目指した。

双極子相互作用が支配的な上記の核スピン、電子スピン系には磁気相転移のハミルトニアンを模倣するために電磁波パルス列を照射する。そのようなパルス照射により物質が持っている本来のハミルトニアンを変化させることで、他の系のハミルトニアンを模倣できる。実効的にハミルトニアンを模倣するために次の2つの方法を組み合わせることでパルス生成を行った。ひとつは照射するパルス列に対して、平均ハミルトニアン理論に基づいて設計する手法である。もうひとつの手法として、内部ハミルトニアンと結晶中のスピンの配置から、模倣したいハミルトニアンになるように数値的に電磁波パルスを計算する手法を用いた。

4. 研究成果

(1-1) 核スピン系-室温

世界初の室温での核磁気相転移を実現するために、トリプレットDNPを用いた超低エントロピー化を行った。核スピンの緩和が抑制できる部分的に重水素化した

-ターフェニルを共同研究者から提供してもらい、それを精製しペンタセンをドーブした単結晶作製を行った。磁気相転移に必要な核スピンの偏極率(スピンの揃った割合)は静磁場と単結晶の成す角度に依存し、*p*-ターフェニルにおいて最も低いもので26%程度であると数値計算から見積もっている。より量子的な効果を取り入れるとこれより高い2%程度高い偏極率が必要であると考えている。また実験からADRFシーケンスを実行した場合、15%程度の偏極率低下があることがわかったため、トリプレットDNPによって核スピン偏極を33%以上にする必要があった。

以前の研究で得られた34%の偏極では十分でないため、実験系の構築と実験パラメータの最適化を行った。より高い静磁場で核スピン緩和時間が長くなることを期待して、静磁場が1.5倍の0.6テスラで実験が行える系を構築したが、偏極率はわずかに小さくなった。実験パラメータで

は磁場掃引幅、レーザー照射による発熱を防ぐ冷却エアなどを改善することによって 0.4 テスラの実験系で約 40%の核スピン偏極を得た。また ADRF シーケンスにおいてはオンレゾナンスにおいてラジオ波の照射磁場を十分小さくする(理想的には 0) 必要があるため、従来のパルス分光計に SPDT スイッチと減衰器を組み合わせた系を構築した。回転座標系での緩和時間は約 50ms であった。その実験系を用いて 40%に超低エントロピー化した後 ADRF を行ったが、理論的に予想した反強磁性体で得られる垂直帯磁率の磁化プラトーは観測できなかった。これは静磁場発生に用いている電磁石のわずかな電流変化による共鳴周波数の変化や、パルス NMR 分光計の低パワー領域での安定性に原因があったためではないかと考察している。今後、磁気相転移の量子シミュレータの実現には非常に弱い数 Hz レベルでの精密な操作が実現できる実験系が必要であると考えられる。

(1-2) 核スピン系-極低温

1K 程度の極低温下では核スピンの緩和時間が一般的に非常に長くなるため、DNP による超低エントロピー化が実行しやすくなる。極低温下ではフッ化カルシウムに不対電子スピンをもった Tm をドーブしたサンプルを用いて実験を行った。まず希釈冷凍機と ENDOR 共振器を用いた系において 80%以上の超低エントロピー化に成功した。そのサンプルについて回転座標系での緩和時間を測定した結果、約 10ms であることがわかった。この緩和時間の長さでは磁気相転移をするための断熱条件を満たすことが難しいために、不対電子スピンをもった Tm の量を減らす必要があると考えた。また ENDOR 共振器系では、共振の安定度やラジオ波パルスの反射の問題があったため、オーバーサイズ共振器を用いた実験系を構築した。実験系の安定度は大幅に向上したが得られる偏極は 2 割ほど低下することがわかった。 Tm の量を 1/5 に減らしたサンプルを作製し、回転座標系での緩和時間を測定したところ、約 80ms であり ADRF を実行するのに十分な緩和時間が得られた。しかし一方で不対電子スピンの量が減少したため、得られる ^{19}F 偏極も大幅に低下してしまった。低下した偏極率を改善するためにオーバーサイズ共振器の体積を約半分にするこことやステンレス導波管の銅蒸着による減衰の改善で、マイクロ波照射効率を上げることを試みたが、同程度の ^{19}F スピン偏極しか得ることができなかった。今後は Tm の濃度の最適化によって緩和時間と DNP で得られる偏極率のバランスをとること、あるいはより体積を小さくしたオーバーサイズ共振器によるマイクロ波照射効率の改善が必要であると考えられる。

(2)電子スピン系

電子スピン系の超低エントロピー化は、希釈冷凍機でサンプルを 100mK 程度に冷却することで達成できる。そのような極低温下で実験を行うための共振器開発を行った。そのような極低温下ではサンプル以外の微量に含まれる電子スピンを観測されてしまう。実験装置に用いる素材を変更し、バックグラウンド信号の抑制に成功した。また核磁気共鳴で用いられているパルスシーケンスを任意波形発振器で実現し、電子スピンの精密な制御に成功した。その後、市販の任意波形発振器が故障したため、同様な精密制御が行える Ku 帯パルス ESR 装置をより安価で構築できる FPGA を用いた分光計として開発した。Xilinx 社製の RFSoc (帯域 4GHz) を用いて系を構築した。また実験系を統一的に扱えるよう LabRAD、Python を用いてプログラムを構築した。矩形パルスの位相を変えながら照射する BB1 パルスをに用いることで通常のラビ振動より長いコヒーレンスを持った精密な制御が実現できる系を構築することには成功した。

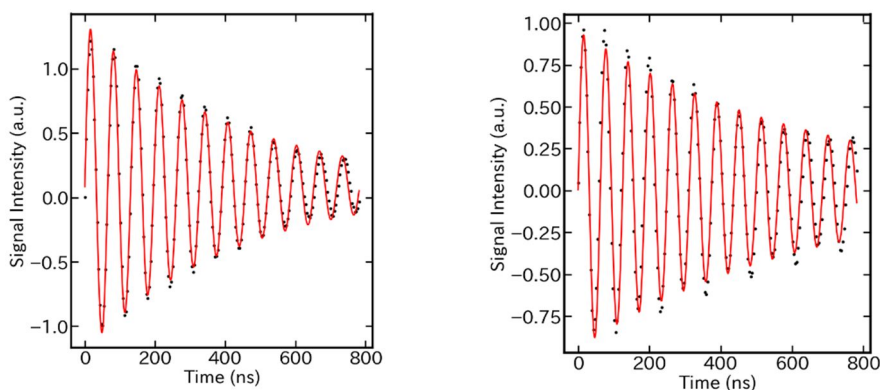


図 1 FPGA を用いて構築した Ku 帯パルス ESR の BDPA サンプルを用いたラビ振動実験。通常の矩形パルスを用いた場合(右)、BB1 複合パルスを用いた場合(左)。

(3)ハミルトニアンエンジニアリング

同種核の双極子相互作用ハミルトニアンを $XX-YY$ の形のハミルトニアンに変化させるパルス生成の開発を行った。平均ハミルトニアン理論と最適制御理論に基づいた数値最適化を組み合わせることで、膨大な計算時間を抑えつつ、実験系の制約を考慮したパルス生成を行った。パル

最適化設計におけるコスト関数を SLSQP 法により最小化することで以前より短い時間でのパルス生成に成功した。平均ハミルトニアン理論に基づいて設計されている従来型の 8 パルス系列と性能比較を行った。実験系のエラーに対して耐性をもつようにパルス(図 2 $w=1$)を設計した結果、従来の 8 パルスより高いフィデリティでのハミルトニアン生成を実現した。

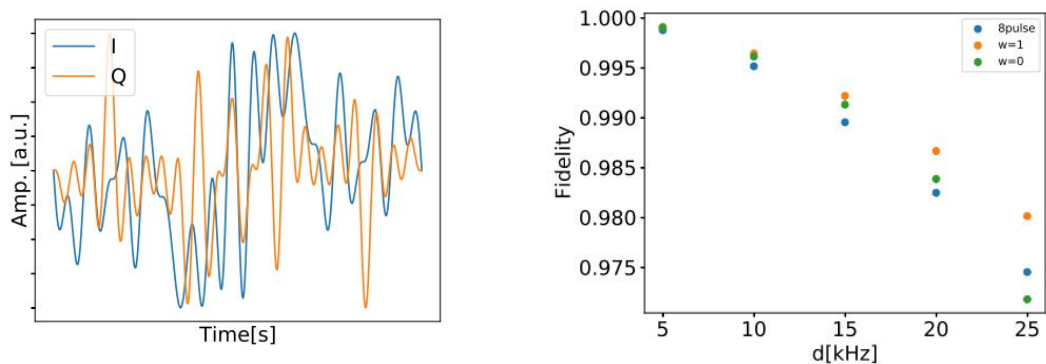


図 2 生成した最適化パルスの I、Q 成分 (左) とパルス照射により生成した実効的ハミルトニアン のフィデリティの核スピン間結合強度(d)依存性 (右)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 河合優太、小出貴斗、今若寛己、宮西孝一郎、庭瀬稜平、三好健文、根来誠、香川晃徳
2. 発表標題 RFSOCを用いた電子スピン量子ビット実験
3. 学会等名 (電子情報通信学会) リコンフィギャラブルシステム研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小出貴斗、河合優太、今若寛己、庭瀬稜平、三好健文、根来誠、香川晃徳、北川勝浩
2. 発表標題 FPGA RFSOCを用いた電子スピン量子ビット精密制御の評価
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 香川晃徳、根来誠、椿山大誠、小林太郎、北川勝浩
2. 発表標題 ENDOR 共振器を用いた希釈冷凍機中での動的核偏極
3. 学会等名 第57回NMR討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本義心、根来誠、ヤップユンセン、一条直規、香川晃徳、北川勝浩
2. 発表標題 任意波形パルスを用いた電子スピン量子ビット精密操作の定量評価
3. 学会等名 第57回電子スピンサイエンス学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 香川晃徳
2. 発表標題 核スピンの高偏極化とその応用
3. 学会等名 186委員会第35回研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 峯岸佳弘, 御手洗光祐, 香川晃徳, 北川勝浩, 根來誠
2. 発表標題 NMR量子制御の数値最適化の高速化およびロバスト耐性パルスの性能評価
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

http://www.qc.ee.es.osaka-u.ac.jp/research_init_e.html

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	香川 晃徳 (Kagawa Akinori) (70533701)	大阪大学・基礎工学研究科・助教 (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------