

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23350004

研究課題名(和文) 単一核スピンの量子状態の非破壊観測

研究課題名(英文) Optical observation of nuclear spin states of a single ion

研究代表者

松下 道雄 (Matsushita, Michio)

東京工業大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：80260032

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,600,000円、(間接経費) 4,080,000円

研究成果の概要(和文)：無機結晶中にドーブされた希土類イオンの核スピンは量子情報を実現するためにとっても良い系であると言える。これらの核スピン状態をキュービットとして用いるためには、核スピン状態を個別に観測、制御しなければならない。しかしながら、固体中の単一希土類イオンの観察は数報あるものの、検出感度の問題から量子情報までの発展には至っていない。そこで、我々は検出システムの高感度をねらい非球面対物レンズを用いた顕微システムを構築した。これにより、結晶中のプラセオジウムの1イオン検出に成功した。

研究成果の概要(英文)：Nuclear spin of rare-earth (RE) ion doped in an inorganic crystal is a solid-state system useful for processing quantum information. In order to utilize RE ions to build an integrated system of an individual spin qubits, the nuclear spins must be individually detected and controlled. However, only a few experiments were successful in resolving nuclear spin states of single RE ion in solid. The major obstacles in photo-luminescence detection of a single ion with a microscopic setup are weak emission of the ion and background emission from the whole crystal. One of the solutions is to use a crystal smaller than the focal volume. Here we took a different approach to develop a single-component aspheric reflecting objective. Owing to a larger solid-angle of a smaller focal volume, the SN ratio improved to a single-ion level.

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：希土類イオン 単一イオン検出 プラセオジウム 固体 低温

## 1. 研究開始当初の背景

### 核スピンと量子情報

1994年にShorが素因数分解の量子理論演算のアルゴリズムを発表して以来[1]、量子論理演算が注目を集めるようになった。その実現に向けた実験の中で、トラップされたBeイオン[2]やCs原子のRydberg状態[3]などと共に、溶液中の有機分子の核スピンを使った核磁気共鳴(NMR)の実験[4]が有力視されている。H、F、 $^{13}\text{C}$ などの1/2の核スピンは二つの量子状態を持ち、外界からの遮断も良く、コヒーレンス時間が長いので量子ビット(qubit)に適している。さらに、ラジオ波パルスを用いた核スピンのコヒーレンス制御の技術が発達しているのを考え合わせれば、NMRが量子コンピュータの実現に最も近い手段の一つであるといえる。

### 量子論理演算における単一スピン観測の必要性

室温の溶液中に分散したアボガドロ数個の分子の核スピンを使ったNMRの実験では、熱平衡にあるアボガドロ数個の磁化を観測していることになる。核スピン状態のゼーマン分裂はたかだか1GHzであり、熱エネルギー $kT = 6\text{ THz}$ に比べてはるかに小さい。このため、全スピンの $10^{-5}$ 程度しかNMR信号に寄与していない。量子論理演算の信号はこの熱平衡磁化の信号よりさらに小さく、ビット数の増大とともに指数関数的に減少するため、熱揺らぎの中に埋もれてしまう[5]。現実的な桁数の量子論理演算は、単一核スピンの観測ができて初めて原理的に可能となる。

### 単一スピンの光観測の現状と本研究との関係

温度1-2Kでも単一核スピン状態を観測することは困難であるが、発光性の分子やイオン1個の光検出は可能である。これを利用した、固体中の単一スピンの光検出には先行例が一つある。ダイヤモンド中の窒素・空孔欠陥(N-Vセンター)の発光顕微分光による1個の電子スピンの磁気遷移の観測である[6]。N-Vセンターの輻射寿命は12ns、単位時間の発光光子数は一分子観測が行われている典型的な有機色素分子と同程度であるため、光検出はさほど難しくない。しかし、核スピンが検出できる系の輻射寿

命は2-3桁長く、その分発光光子数が少ない。これは原子核の磁気モーメントが電子より2-3桁小さく、励起状態でスピン副準位が意味を持つためには副準位のエネルギー分裂が見分けられるほど寿命が長くなければならないからである。実際に、我々が本研究課題で提案した $\text{LaF}_3$ 結晶中の $\text{Pr}^{3+}$ の輻射寿命は47 $\mu\text{s}$ で3桁の違いがあり、核スピンを持つ発光種1個の光検出といっても系の特性が全く異なる別個の実験である。

### 研究代表者のこれまでの研究とのつながり

1個の $\text{Pr}^{3+}$ の光検出を実現するには装置の感度を数十倍向上させることが必要である。我々はこの10年間、温度1.5Kにおける単一分子の発光顕微分光の感度を向上すべく、独自の低温用対物レンズの開発を続けてきた。その経験から、我々の現在の装置の感度を一桁向上させ、単一 $\text{Pr}^{3+}$ の光検出を可能にするのは非球面反射対物レンズしかないことが分かり、同時に一体成形レンズの非球面研磨も技術的に可能な範疇に入ってきた。この対物レンズに予算を充てて開発を押し進め、1個の $\text{Pr}^{3+}$ の光検出に挑戦するのは、我々が技術的に一歩先んじている今を置いて他にない。

また、研究代表者は光とラジオ波によるコヒーレントラマン二重共鳴分光を用いて、 $\text{LaF}_3$ 結晶中の $\text{Pr}^{3+}$ の核スピンに対する近接Laスピンの影響などを調べた[7,8]。この研究で得た希土類イオンの光遷移と核スピン状態に関する知識は本研究課題に直接活きると考えている。

- [1] Shor, in Proceedings of the 35th Annual Symposium on the Foundations of Computer Science, (1994) p. 124; Shor, *SIAM J. Comput.* **26** (1997) 1484. [2] Monroe, et al. *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 4714. [3] Ahn, et al. *Science* **287** (2000) 463. [4] Vandersypen, et al. *Nature* **414** (2001) 883. [5] Warren, *Science* **277** (1997) 1688. [6] F. Jelezko, T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, J. Wrachtrup, *Phys. Rev. Lett.* **92** (2004) 076401. [7] M. Matsushita, A. Mutoh, T. Kato, *Phys. Rev. B* **58** (1998) 14372. [8] M. Matsushita, T. Kato, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 2018. [9] S. Fujiyoshi, M. Fujiwara, C. Kim, M. Matsushita, et al., *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007) 051125.. [10] M. Fujiwara, S. Fujiyoshi, M.

## 2. 研究の目的

核スピンはその量子状態空間が有限次元であるため、量子情報の担い手に適している。またラジオ波パルスを用いた磁化のコヒーレンス操作の技術が発達しており、レーザーで光学分極を操作するよりもはるかに複雑な量子論理演算が実行できる。しかし感度の低さという大きな欠点を抱えている。現状では核スピン1個を観測できないために、量子論理演算の桁数が制限されている。したがって、将来、実用的な桁数の演算を可能にするためには、単一スピンの検出が不可欠である。そこで、本研究では、低温固体中の一つの発光性イオンを光検出し、その核スピンの量子状態を光吸収の波長から読み取ることによって挑戦する。この測定の特長は、核スピンの状態そのものを集団平均や繰返し平均なしに直接読み取ることにより、成功すれば量子ゼノ効果の研究などにも展開可能な、一般性の高い系を手に入れることにもなる。

## 3. 研究の方法

この研究の目的である、核スピンの量子状態の非破壊実時間観測の対象に選んだ系は、 $\text{LaF}_3$  結晶中の不純物として La のサイトを占めている希土類イオン、 $\text{Pr}^{3+}$  (核スピン  $I = 3/2$ ) である。

$\text{LaF}_3$  中の  $\text{Pr}^{3+}$  の核スピン状態の可視発光を用いた非破壊実時間観測の原理は以下の通りである。レーザーで励起する  $\text{Pr}^{3+}$  の電子遷移は、基底状態  $^3\text{H}_4$  から励起状態  $^3\text{P}_0$  への遷移で波長は約 478 nm である磁場をかけたときの、 $\text{LaF}_3$  中の  $\text{Pr}^{3+}$  の基底状態と励起状態の Zeeman 分裂の様子を示す。基底状態の Zeeman 効果の方が、励起状態より大きい。これは  $\text{Pr}^{3+}$  の電子状態が軌道角運動量の大きな2個の  $f$  電子によって形作られているため、基底電子状態  $^3\text{H}_4$  では  $f$  電子の角運動量が加えあって軌道角運動量が大きく、その結果 Zeeman 効果が大きくなる。その影響は  $\text{Pr}^{3+}$  の置かれた結晶場に対する磁場の

方向に依存し、Zeeman 効果を表わす  $g$  因子は異方的となる。一番大きな値は  $g_z/2\pi = 10.16 \text{ kHz/Gauss}$  である。一方励起状態  $^3\text{P}_0$  では  $f$  電子の軌道角運動量が打ち消しあうように働いており、 $g$  因子は電子軌道角運動量の影響を受けず等方的で  $g/2\pi = 1.31 \text{ kHz/Gauss}$  である。従って、基底状態の  $g$  因子テンソルが最大主値を取る方向へ十分強い磁場をかけておけば、核スピンの副準位ごとに電子遷移のエネルギーが異なり、測定時の核スピン状態の遷移エネルギーにレーザー周波数が一致したときのみ発光が観測される。つまり、電子遷移の Zeeman 分裂を利用して、単一イオンの発光の励起波長依存性から核スピン状態を特定できる。

## 4. 研究成果

当該研究の期間中に、固体結晶中の単一プラセオジウムイオンの光検出に成功した。これは、世界初めての成果である。検出した信号が1個のイオンからの信号であることを確認するため、単一イオンからの発光信号の偏光異方性を測定した。バルク結晶では、プラセオジウムイオンの結合サイトが120度おきにあるため、プラセオジウムイオンの吸収には偏光依存性が無い。一方、単一イオンからの信号は、偏光を変えていくと完全に強度がゼロになる角度があった。これは、検出しているイオンが1個であり、対応する双極子が1個であるため、光の偏光と双極子の向きが直交する角度で、光吸収がゼロになるからである。さらに、実験に用いた非球面物レンズの性能を実験とシミュレーションの両面から評価し、得られた1イオンからの信号が、予想される強度と良い一致を確認した。これらの実験的な結果から、プラセオジウムの1イオン光検出に成功したと考えられる。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 5 件)

[1] 丸尾美奈子・稲川博敬・虎谷泰靖・近藤 徹・松下道雄・藤芳 暁

「Three-dimensional laser-scanning confocal reflecting microscope for multicolor single-molecule imaging at 1.5 K」(査読有り)  
Chemical Physics Letters・591号・P. 233-236・2014年  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cpllett.2013.11.039>

[2] 日野原拓也・濱田裕紀・中村一平・松下道雄・藤芳 暁  
「Mechanical stability of a microscope setup working at a few kelvins for single-molecule localization」(査読有り)  
Chemical Physics・419号・246-249・2013年.  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.chemphys.2013.02.024>

[3] 藤原正規・藤芳 暁・松下道雄  
「Single-component objective for low-temperature imaging and spectroscopy of single nano objects」(査読有り)  
Physica Procedia・13号・P.38-41・2011年.  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.phpro.2011.02.009>

[4] 内山大輔・星野 創・大友康平・加藤太朗・恩田賢一・渡邊 瑛・小井川浩之・藤芳 暁・松下道雄・南後 守・出羽毅久「Single-protein study of photoresistance of pigment-protein complex in lipid bilayer」(査読有り)  
Chemical Physics Letters・511号・P.135-137・2011年.  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.cpllett.2011.06.019>

[5] 内山大輔・小井川浩之・大友康平・南後 守・出羽毅久・藤芳 暁・松下道雄  
「Reconstitution of bacterial photosynthetic unit in a lipid bilayer studied by single-molecule spectroscopy at 5 K」(査読有り)  
Physical Chemistry and Chemical Physics・13号・P.11615-11619・2011年.  
DOI: 10.1039/C1CP20172G

〔学会発表〕(計 12 件)

[1] 中村一平・藤芳 暁・松下道雄  
「固体中の単一核スピンの光観測に向けた Pr<sup>3+</sup>のーイオン分光」  
日本物理学会・2013年9月25~28日・徳島大

[2] 中村一平・吉弘達矢・稲川博敬・藤芳 暁・松下道雄  
「固体中のPr<sup>3+</sup>のーイオン発光検出」  
分子科学討論会・2013年9月24~27日・京都テルサ

[3] 若尾 佳佑・濱田 裕紀・日野原 拓也・松下道雄・藤芳 暁  
「温度1.5 Kのタンパク質1分子イメージング装置の機械的安定性評価と向上」  
分子科学討論会・2013年9月24~27日・京都テルサ

[4] 虎谷 泰靖・丸尾 美奈子・稲川 博敬・喜井 勲・林 宣広・細谷 孝充・松下道雄・藤芳 暁  
「温度数Kの色素分子の3次元イメージング技術の設計と実現」  
分子科学討論会・2013年9月24~27日・京都テルサ

[5] 近藤 徹・武藤梨沙・栗栖源嗣・大岡宏造・藤芳 暁・松下道雄  
「光合成反応中心タンパク質の極低温1分子分光」  
分子科学討論会・2013年9月24~27日・京都テルサ

[6] 稲川博敬・松下道雄・藤芳 暁  
「限界性能を持つ反射対物レンズの開発と数Kでの色素1分子イメージングへの応用」  
分子科学討論会・2013年9月24~27日・京都テルサ

[7] 丸尾美奈子・稲川博敬・松下道雄・藤芳 暁  
「温度数Kにおける色素1分子の3次元イメージング」  
日本物理学会第68回年次大会・2013年03月27日・広島大学

[8] 稲川博敬・松下道雄・藤芳 暁  
「開口数0.8の極低温用対物レンズ：一分子蛍光観測による評価」  
日本物理学会秋季大会・2012年09月20日・神奈川大学

[9] 稲川博敬・松下道雄・藤芳 暁  
「温度数Kにおける一分子分光のための高開口数対物レンズの開発」  
分子科学討論会・2012年9月19日・東京大学

[10] 藤芳 暁、大友 康平、古屋 陽、出羽 毅久、南後 守、伊関 峰生、渡辺 正勝、松下道雄  
「タンパク質1分子の中赤外吸収観測」

生体分子科学討論会・2012年06月09日・東北大学

[11] 藤原正規、平野充遙、渡辺正勝、伊関峰生、藤芳暁、松下道雄

「温度数ケルビンのタンパク質1分子分光装置の機械的安定性の評価」

分子科学討論会・2011年9月21日・札幌コンベンションセンター（札幌）

[12] 日野原拓也、濱田裕紀、松下道雄、藤芳暁

「温度数ケルビンのタンパク質1分子分光装置の機械的安定性の評価」

分子科学討論会・2011年9月21日・札幌コンベンションセンター（札幌）

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松下 道雄 (MICHIO MATSUSHITA)

東京工業大学・大学院理工学研究科・准教授  
研究者番号：80260032

### (2) 研究分担者

なし ( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

なし ( )

研究者番号：