

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800230

研究課題名(和文)核スピン量子シミュレータの開発

研究課題名(英文)Development of a quantum simulator using nuclear spins

研究代表者

香川 晃徳(Kagawa, Akinori)

大阪大学・基礎工学研究科・助教

研究者番号：70533701

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では高偏極化した核スピンを用いた磁気相転移の量子シミュレータの開発を行った。2つの動的核偏極手法を用いて核スピンを高偏極化し、実効的に核スピン温度を冷却した。不対電子スピンの熱平衡状態を用いた動的核偏極では、小電力で電子・核を操作できる共振器を開発し、CaF₂結晶中の¹⁹Fスピン偏極を50%程度に高めることに成功した。光励起三重項状態を用いた動的核偏極ではp-テルフェニル結晶中の¹Hスピンの偏極を34%まで高めた。平均場近似を用いてp-テルフェニル結晶の磁気相転移に必要な偏極率を計算した結果、26%で強磁性秩序に相転移することが分かった。

研究成果の概要(英文)：We have studied a quantum simulator for magnetic phase transitions using highly polarized nuclear spins. We applied two dynamic nuclear polarization (DNP) methods to polarize nuclear spins so that the nuclear spin temperature was cooled effectively. We have constructed a cavity, which can manipulate electron and nuclear spins efficiently below 1 K for DNP with unpaired electron spins at a thermal equilibrium state. As a result, fluorine in a fluorite crystal was polarized as high as 50% by DNP. We also obtained proton polarization of 34% in a p-terphenyl crystal at room temperature using DNP with electron spins in the triplet states. Critical nuclear polarization to obtain magnetic phase transition in the p-terphenyl crystal was calculated using mean field theory. It is found that proton polarization of 26% is required at the magic angle between the molecular long axis and the direction of the static magnetic field to obtain ferromagnetic sandwich ordering.

研究分野：磁気共鳴、量子情報

キーワード：量子シミュレーション 磁気相転移 磁気共鳴 動的核偏極 核スピン 電子スピン

1. 研究開始当初の背景

2 次元強相関係の磁性や超伝導など興味深い量子多体系の物理現象の研究が活発に行われている。密度行列繰り込み群や量子モンテカルロ法などによって解析が進められているが、あらゆる問題に適した効率的な手法は未だに見つかっていない。一方、従来のコンピュータによる解析ではなく、量子多体問題に対して量子系自身を利用して解析する量子シミュレーションの研究も盛んに行われている。冷却原子、イオントラップ、励起子ポラリトンなど様々な物理系で実験的にもその有効性が示され始めている。

同様に核磁気共鳴(NMR)法を用いてXXZモデルや三体ハミルトニアンなどの量子シミュレーションが行われている。しかしそれらの実験は分子内の3スピン程度を扱った液体NMRの実験であり、通常のコンピュータを用いて容易にシミュレーションが行える小規模なものである。一方、Roumposらによって固体中の多数の核スピンの $1/2$ パルスなどのNMRパルス列をX軸方向やY軸方向に位相を変えながら照射することでHeisenbergモデルの量子シミュレーションが行えることが提案されている。そのような理論提案を実現するには、まず核スピンを高偏極化し実効的にスピン温度を下げる必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、単結晶中の核スピンをを用いて磁気相転移の量子シミュレーションを実験的に実現することを目指した。核スピンの磁気相転移を観測するには、電子スピンを利用した動的核偏極によって核スピンの向きが揃った高偏極状態を用意する必要がある。また核磁気共鳴分光では変調されたパルスの照射によって実効的に双極子結合ハミルトニアンを制御できるため、同じ物質系で異なるハミルトニアン下での磁気相転移を観測することができる。そこで本研究では、動的核偏極とNMRパルス照射が効率的に行える共振器などの開発と照射NMRパルスの設計を行う。

3. 研究の方法

本研究の概念図を図1に示す。本研究を実現するには大きく分けて2つの部分に分ける

ことができる。まず核スピンの向きがばらばらな低偏極な状態から向きの揃った高偏極な状態を作り出す必要がある。核スピンの双極子結合は、最も大きな ^1H スピンでも10kHz程度であり、温度で表すとマイクロケルビン以下である。したがって単にサンプルを冷却することで核磁気相転移を実現するにはそのようなオーダーまで温度を冷却する必要があり非常に困難である。そこで本研究ではAbragamらが行った動的核偏極(DNP: Dynamic Nuclear Polarization)と回転座標系の断熱消磁(ADRF: Adiabatic Demagnetization in the Rotating Frame)を用いて核スピンの冷却を行う。

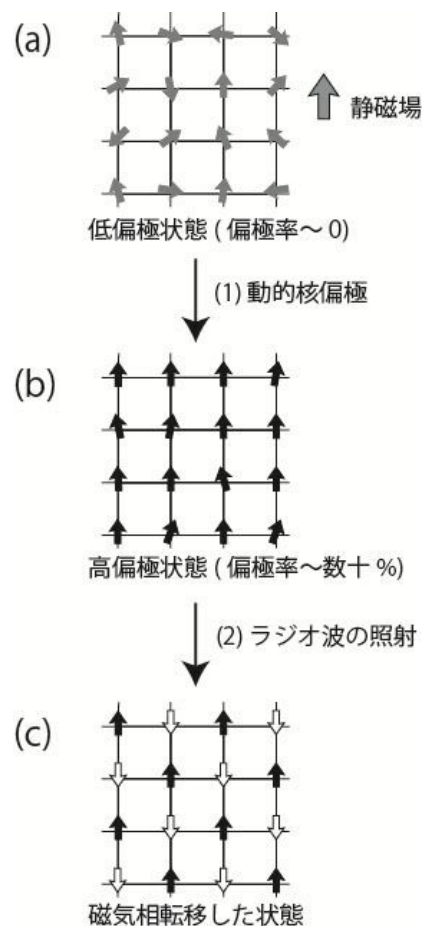


図1. 本研究の概念図

DNPとは電子スピンの高い偏極率を核スピんに移す手法である。DNPでは一般的には静磁場下にある電子スピンのマイクロ波を照射し、超微細結合を通して核スピンの偏極を高める。そのように高偏極化された核スピンの偏極から求めた温度はスピン温度と呼ばれ、格子系の温度より数桁低い温度になる。その

ような状態に ADRF を行うとさらに実効的に核スピン温度を冷却できる。本研究では不對電子スピンの熱平衡状態を用いた動的核偏極(熱平衡 DNP)とレーザーで励起して生成した電子スピンの三重項状態を用いた DNP(トリプレット DNP)を用いる。熱平衡 DNP を用いて核スピン偏極を数十%以上に高めるには高磁場、極低温下で実験を行う必要がある。極低温下で実験を行うには、小電力で電子スピンと核スピンを操作できる ENDOR(Electron Nuclear Double Resonance)共振器を作製する必要がある。本研究では Weis らによって提案された ENDOR 共振器を作製する(図 2)。NMR コイルをリボンコイルで作製し、その両端から $1\mu\text{m}$ の銅箔を取り付けた石英ロッドを挿入することで、ESR 用の TE₀₁₁ モードの円筒型共振器としても用いることができる。

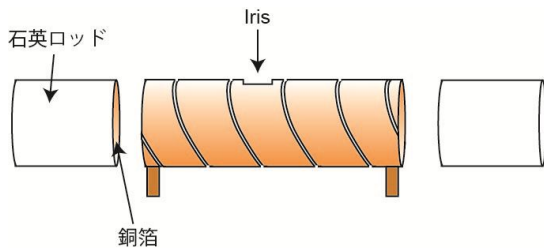


図 2. ENDOR 共振器

熱平衡 DNP では希釈冷凍機を用いて 1K 以下の温度下で実験を行う。サンプルとしてツリウムをドーブしたフッ化カルシウムの単結晶を用いた。ドーブ量は ^{19}F スピン 1 つに対して、 1.66×10^{-4} 個である。ツリウムの不對電子スピンの g 値は約 3.45 であり、2.85 Tesla の静磁場下で 138 GHz 程度のゼーマン分裂をしている。またこの磁場下では ^{19}F スピンの共鳴周波数は 114 MHz 程度である。このような実験環境下では電子スピンの偏極率は 99%以上である。

トリプレット DNP は 0.4T、300K で実験を行う。サンプルは重水素化ペンタセンを 0.05mol%ドーブした *p*-テルフェニルの単結晶用いる。 ^1H スピンの緩和時間を長くするために、*p*-テルフェニルは中央のベンゼン環のプロトンのみを部分的に重水素化したものを用いる。ペンタセンは 590nm のレーザーによって励起され、電子スピンは三重項状態となり大きな偏極を持つことができる。室温で高い偏極率が得られるので実験的な制約が少ない代わりに、得られる偏極率は熱平衡 DNP

よりも低くなる。

そのように冷却した核スピン系にラジオ波を照射し、実効的に核スピン間のハミルトニアンを量子シミュレーションを行うためハミルトニアンへと変化させる。理論的には量子シミュレーションに用いることができる NMR パルス列を設計する。また平均場近似を用いて磁気相転移に必要な核スピン偏極率の計算を行う。

4. 研究成果

(1) 熱平衡 DNP

ENDOR 共振器を自作した結果、図 3 のような共振特性が得られた。石英ロッドの挿入長を変えることで共振器長を変化させた結果、理論的に予想される周波数の変化とほぼ等しい値が得られた。NMR のラビ周波数は約 $12.5\text{kHz}/W^{1/2}$ であり、通常のソレノイドコイルを用いた NMR 共振器と同等の効率を得られた。

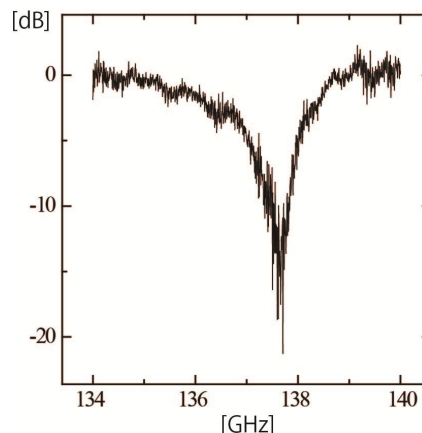


図 3. 円筒型共振器の共振特性

この開発した ENDOR 共振器を用いて熱平衡 DNP 実験を行った。実験は 0.2K で行った。マイクロ波を照射する時間に対するフッ化カルシウムの ^{19}F スピンの偏極率向上を図 4 に示す。最大で 52%の偏極が得られた。

先行研究の結果から偏極率は 80%以上に高められると考えられる。本研究では径 0.5mm の石英ガラスロッド上にサンプルを設置したために DNP 中にマイクロ波照射によりサンプル温度が上昇し、スピン格子緩和時間が短くなったため得られた偏極率が以前の結果より低かったと考えられる。今後はより冷却能力が高い物質上にサンプルを設置し偏極率向上を目指す。また ADRF、NMR パルス照射

を行い、磁気相転移の量子シミュレーションの実現を目指し今後も研究を継続する。

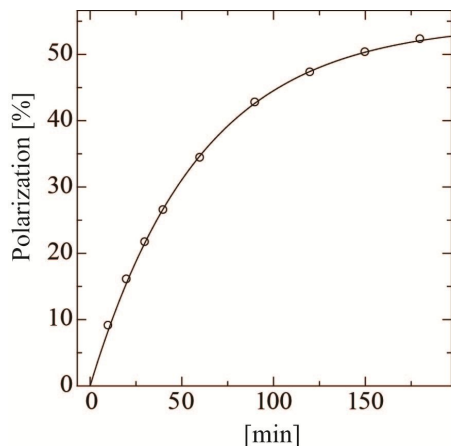


図 4. DNP による ¹⁹F スピン偏極のビルドアップ

(2) トリプレット DNP

重水素化したベンタセンと部分的に重水素化した *p*-テルフェニルをサンプルとして用いた結果、¹H スピンのレーザ照射中のスピン格子緩和時間は約 19 分であった。この値はこれまでの重水素化していないサンプルと比較して約 3 倍である。その結果、室温で 34% という非常に高い偏極率が得られた。

そこでクラスター平均場近似やモンテカルロ法を用いて相転移を実現するために必要な偏極率を見積もった。その結果、静磁場と *p*-テルフェニル分子の長軸がマジック角を成す場合に必要な偏極率が最も低く約 26% で強磁性相 (図 5) が得られることが分かった。

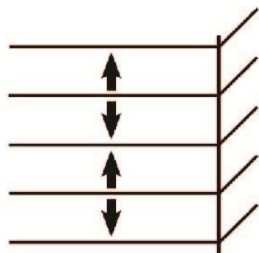


図 5. *p*-テルフェニルで現れる強磁性相。マイクロメートル程度で強磁性の向き変わった層が交互に現れる。

次にそのように高偏極化した核スピんに ADRF を行った後に、垂直磁化率を測定した。その結果、垂直磁化率にプラトーが現れた。これは理論的に予想される結果と一致している。ただし実験中の核スピンのスピン格子

緩和時間を考慮すると、理論的に得られた 26% という相転移が起こる偏極率と実験で得られる最大の偏極率 34% に大きな差がないために明確に磁化プラトーを示すには至っていない。今後はスピン格子時間が長く、より高い偏極率が得られる 0.6 Tesla 程度の静磁場下で実験を行う必要がある。

(3) NMR 多重パルス系列の設計

スペクトルの分解能を上げるために NMR ではサンプルを数十 kHz で回転する手法が用いられている。そのサンプルの回転に同期し、120 度回転する毎に NMR パルスを図 6 に示したような格子系に照射することで最近接の核スピン間の 0 次の平均ハミルトニアンが Kitaev-Hisensberg モデルとなることを見出した。

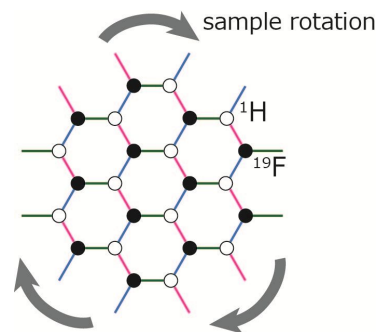


図 6. ¹H スピンと ¹⁹F スピンがハニカム格子状になっている系。Solid Line は化学結合ではなく最近接の双極子結合を表している。

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 4 件)

K. Tateishi, M. Negoro, S. Nishida, A. Kagawa, Y. Morita, M. Kitagawa, "Room temperature hyperpolarization of nuclear spins in bulk", Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 111, 7527-7530 (2014). doi:10.1073/pnas.1315778111 (査読有)

K. Tateishi, M. Negoro, A. Kagawa, T. Uesaka, M. Kitagawa, "Hyperpolarization of thin films with Dynamic Nuclear Polarization using photoexcited triplet electrons", J. Phys. Soc. Jpn., 82, 034005 (2013). <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.084005> (査読有)

K. Tateishi, M. Negoro, A. Kagawa, M. Kitagawa, "Dynamic Nuclear Polarization with Photoexcited Triplet Electrons in a Glassy Matrix",

125, 13549-13552 (2013).
DOI: 10.1002/anie.201305674 (査読有)

〔学会発表〕(計 18 件)

香川晃徳、根来誠、北野嵩博、立石健一郎、西田辰介、森田靖、丸山勲、北川勝浩、”高偏極化した核スピン系での磁気相転移の量子シミュレーション”, 日本物理学会 2014 年秋季大会 (20140910), 中部大学春日井キャンパス

A. Kagawa, T. Kitano, M. Negoro, I. Maruyaa, M. Kitagawa, “Towards quantum simulation of magnetic phase transition using highly polarized nuclear spins”, FIRST International Symposium on Topological Quantum Technology (20140129), Tokyo, Japan

香川晃徳、北野嵩博、根来誠、丸山勲、北川勝浩、”平均場近似を用いた核磁気相転移の解析”, 第 52 回 NMR 討論会 (20131114), 石川県立音楽堂

〔図書〕(計 1 件)

北川勝浩、香川晃徳、根来誠、アグネ技術センター、固体物理 11(No.573) 2013、95-105

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.qc.ee.es.osaka-u.ac.jp/>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

香川 晃徳 (Kagawa Akinori)

大阪大学大学院基礎工学研究科・助教

研究者番号 : 70533701