

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22550124

研究課題名（和文）分子電子スピンの 4 量子ビット系量子テレポーテーションの実証

研究課題名（英文）Quantum teleportation in four-qubit system based on molecular electron spin.

研究代表者

中澤 重顕（NAKAZAWA SHIGEAKI）

大阪市立大学・大学院理学研究科・特任講師

研究者番号：70342821

研究成果の概要（和文）：ニトロキシドラジカルを電子スピン量子ビットとして用いた 3 量子ビット系トリラジカルを非磁性ホスト分子に希釈した単結晶の育成に成功し、単結晶 ESR スペクトルから 3 電子スピン量子ビット系として機能しうることが分かった。ニトロキシド基に基づく 4 量子ビット系テトララジカルにおいて複雑な溶液 ESR スペクトルの完全解析に成功し、量子状態制御に基づく量子シミュレータとして可能性を検討する物質系を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：In this work, we have treated three and four electron-spin qubit systems, in which electron-spins weakly interact via electronic exchange interactions. We have prepared, for the first time, magnetically diluted single crystals for a weakly exchange coupled triradical system. The molecular design is based on *g*-tensor engineering. It was found that the triradical system was a suitable model for electron spin three-qubit systems on the basis of the single-crystal CW-ESR and pulsed ELDOR spectral analyses. We have also synthesized novel Phthalocyanine (Pc)-based tetranitroxides (MPc(NO)₄) as an electron-based four-qubit system. Solution ESR spectra exhibited salient features arising from the intramolecular exchange interactions among the stable nitroxide radicals and the competing interactions between the exchange interactions and the hyperfine interactions at the radical sites in tetragonal symmetry. We have made a complete analysis of the complicated ESR spectra. Based on the analyses, we have proposed that the MPc(NO)₄ systems can be pilot molecules for a molecular spin quantum simulator.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：複合化学・機能物質化学

キーワード：量子ビット、量子コンピュータ、分子スピン、量子シミュレータ、ESR

1. 研究開始当初の背景

ファインマンによる量子コンピュータの概念的提案（1959、1981）により量子物理の分野で量子コンピュータの理論的研究がなされてきたが、1994 年ショアによる「素因

数分解に関する量子解読アルゴリズム」の発見により、RSA 暗号の安全性の危機に関わる問題として量子コンピュータが社会的にも注目されるようになり、量子物理、数学、情報科学の研究者が中心となって、量子コンピ

ュータ、及び量子通信、量子暗号の実現に向けて研究を始めた。量子コンピュータにおいて最も基本的かつ重要な物理現象である量子的絡み合い=エンタングルメントを生成するための量子ビットを担わせる物理状態として、分子スピン系以外で、光子、トラップイオン、超電導キャビティ、分子の振動回転状態、核スピン、量子ドットの電子スピン等が提案されているが、量子コンピュータの実現に向けて解決の難しい問題、例えば光子における2量子演算やNMRコンピュータにおける初期化やスケラビリティが指摘されている。そこで我々は、量子コンピュータの実現のための必要条件である DiVincenzo の5つの Criteria を満たす量子ビットとして分子の電子スピンに注目した(Takui, *et al*, *J. Matr. Chem.* 2009)。有機ピラジカル量子ビットをもちいた2量子演算の研究においては最小の分子スピンコンターの必須条件である2電子系量子演算に成功した。この発展系として、3電子スピン量子ビット系、及び2次元周期系を実現するためのプロトタイプである新たに正方対称型の4電子スピン系の研究段階に入った。

2. 研究の目的

(1)「分子電子スピンによる量子コンピュータ」のプロトタイプ実現のため、2電子系よりも大きな3電子および4電子スピン量子ビットの物質系の開発し電子状態を解明する。(2)最新のパルス電子スピン共鳴法である Coherent-Multiple Electron Magnetic Resonance (EMR) 装置を使って、量子状態制御の可能性を検討し、多量子演算・量子アルゴリズムを実行することが研究の目的である。

3. 研究の方法

真の量子コンピュータに近づくために、より複雑な3電子系、4電子系での量子演算実行の課題に挑戦する。そのために、(1)分子電子スピンによる量子コンピュータの実現をめざして3電子量子ビット系、4電子量子ビット系の弱交換相互作用型のトリラジカル、テトララジカルの分子設計・合成を行う。

(2)テトララジカルの溶液 ESR のスペクトルシミュレーションから磁気テンソルの等方成分を決定し、量子状態について考察する。

(3)電子スピンを選択的に励起しスピン操作を行うため、反磁性ホスト分子(対応ケトン化合物)に磁氣的に希釈した希釈単結晶を育成する。

(4)磁気遷移の帰属のため希釈単結晶にたいして単結晶 ESR、ENDOR 測定を行い、g テンソル、窒素超微細構造テンソルなどの決定をする。

(5)スペクトルの単純化や、線幅の広幅化

を抑制するために、水素、窒素を重水素、¹⁵Nに同位体置換した分子を合成する。

(6)量子演算に適した結晶の配向を探索し、ヘリウム温度にて最新のパルス ESR 測定装置である位相制御型 ESR 装置によりエンタングルメント状態の生成・変換、グローバーの検索アルゴリズム、量子テレポーテーション等の多量子演算の実証実験を行う。

4. 研究成果

分子電子スピンをもちいた量子コンピュータを目指し、3量子ビット系、4量子ビット系として、ニトロキシドラジカルをラジカルユニットとした擬3回対称性をもつ弱交換相互作用系トリラジカル**1**、正方対称性をもつフタロシアニン誘導体テトララジカル**3**を合成化学者(阪大・院・理 森田准教授、他)と共同で物質開発した。

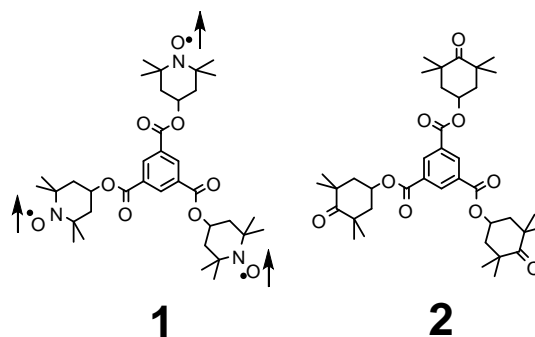


図1. 3量子ビット系トリラジカル**1**及びホスト分子**2**

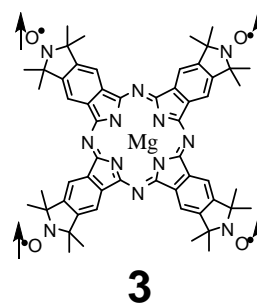


図2. 4量子ビット系テトララジカル**3**

TEMPO 系のニトロキシドラジカルは電子スピンの局在している安定したラジカルであり、先行研究である2量子ビット系ピラジカルの研究から量子ビットとして働き得ることが分かっている。量子ビット間の距離は双極子相互作用が数十 MHz なるように、12.5 Å程度に分子設計している。

4量子ビット系**3**に関して、溶液 ESR の解析の結果、ESR スペクトルの完全解析に成功し、交換相互作用を含むスピンハミルトニアンパラメータを決定した。窒素核との超微細構造定数は 1.433 mT、交換相互作用は辺

方向 10.8 MHz, 対角方向 20.0 MHz であることがわかった。スピンハミルトニアンが決定されたのでスピン状態、遷移確率を計算で求めることができ、多数ある ESR 遷移の帰属ができた。それらの ESR 遷移を利用する量子シミュレータとしての可能性を検討することができる段階に入ることができた。

3 量子ビット系 **1** に関しては非磁性ホスト分子をもちいた希釈単結晶化に成功した。静磁場角度依存性を示す ESR 測定の結果、3 量子ビット系として機能することが分かった。つまり、配向した分子に対して 3 つの量子ビットに別々にアクセスすること（選択励起）ができることを示すことができた。量子ビット間の相互作用の大きさを調べるためにパルス ESR 測定を行い、予備的な解析の結果、3 スピン系であることを反映して、静磁場配向に依存して複数の双極子相互作用を確認した。これらの結果は、3 量子ビット系による量子演算の可能性を示している。

量子計算・量子情報処理研究の最新の研究動向において、量子情報を如何にして量子ビットに記憶させるかといういわゆる量子メモリーの研究課題がクローズアップされてきた。特に、2 つの量子物理系の利点を生かすためにハイブリッド系を構築し、一方で量子演算を行い、他方は量子メモリーとして機能させる研究が注目されてきた。有機磁性分子の特徴に着目し超伝導磁束量子ビットとのハイブリッド系において量子メモリーとして機能させる研究もおこなった。

2 つのニトロキシド基をもつ分子であるイミノニトロキシド-ニトロキシド直接連結型基底三重項ジラジカル **4** は交換相互作用 $J = +550$ K、微細構造定数 $|D| = 0.0655$ cm⁻¹、 $|E| = 0.005$ cm⁻¹、 $g_x = 2.0032$ 、 $g_y = 2.0048$ 、 $g_z = 2.0032$ であることが岡田、工位らによって実験的に決められている。この分子のスピン物性を精緻に解析する研究を行った。

10 K 以下での ESR 測定の結果、分子 **4** の D 値の符号は負であると決定した。微細構造定数の量子化学計算からスピンスピン相互作用だけでなくスピン軌道相互作用も重要であることがわかった。また、分子 **4** は広範囲の低温領域の ESR 測定において 2 量子遷移の信号が観測されたので、CW/Pulse ESR をもちいて、詳細な 2 量子遷移の機構解明の研究も併せて行った。143 K および 10 K における、2 量子遷移強度のマイクロ波パワー依存性から 2 量子遷移は Consecutive な機構であると結論した。

分子 **4** は量子メモリーとして有望なスピン物性を備えている重要な研究対象であることがわかった。また、量子演算の高速化の観点から 2 量子遷移を利用した量子情報処理の研究の端緒になると考えられる。

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 11 件)

① Nakazawa, S.; Nishida, S.; Ise, T.; Yoshino, T.; Mori, N.; Rahimi, R.D.; Sato, K.; Morita, Y.; Toyota, K.; Shiomi, D.; Kitagawa, M.; Hara, H.; Carl, P.; Hölfer, Takui, T.

“A Synthetic Two-Spin Qubit: g -Engineered Exchange-Coupled Biradical as Designed for Controlled-NOT Gate Operations”

Angew. Chem. Int. Ed. **2012**, 51, 9860–9864. 査読有, DOI: 10.1002/anie.201204489

② Ayabe, K.; Sato, K.; Nishida, S.; Ise, T.; Nakazawa, S.; Sugisaki, K.; Morita, Y.; Toyota, K.; Shiomi, D.; Kitagawa, M.; Takui, T.

“Pulsed Electron Spin Nutation Spectroscopy of Weakly Exchange-Coupled Biradicals: a General Theoretical Approach and Determination of the Spin Dipolar Interaction” ,

Phys. Chem. Chem. Phys. **2012**, 14, 9137–9148. 査読有, DOI: 10.1039/c2cp40778g

③ Abe J.; Ueki S.; Arata T.; Nakazawa, S.; Yamauchi S.; Ohba Y.

“Improved Sensitivity by Isotopic Substitution in Distance Measurements Based on Double Quantum Coherence EPR”

Appl. Magn. Reson. **2012**, 42, 473–485. 査読有, DOI: 10.1007/s00723-012-0317-x

④ Atsumi, H.; Maekawa, K.; Nakazawa S.; Shiomi D.; Sato, K.; Kitagawa, M.; Takui, T.; Nakatani, K.

“Tandem Arrays of TEMPO and Nitronyl Nitroxide Radicals with Designed Arrangements on DNA”

Chemistry-A Euro. J. **2012**, 18, 178–183. 査読有, DOI: 10.1002/chem.201102693

⑤ Yoshino, T.; Nishida, S.; Sato, K.; Nakazawa, S.; Rahimi, R.D.; Toyota, K.; Shiomi, D.; Morita, Y.; Kitagawa, M.; Takui, T.

“ESR and ¹H, ¹⁹F ENDOR/TRIPLE Study of Fluorinated Diphenylnitroxides as Synthetic Bus Spin-Qubit Radicals with Client Qubits in Solution”

J. Phy. Chem. Lett. **2011**, 2, 449–453. 査読有, DOI: 10.1021/jz101650z

⑥ Nakazawa, S.; Sato, K.; Shiomi, D.; Yano, M.; Kinoshita, T.; Franco, M. L. T. M. B.; Lazana, M. C. R. L. R.; Shohoji, M. C. B. L.; Itoh, K.; Takui, T.

“Organic Polyanionic High-Spin Molecular Clusters: Topological-Symmetry

Controlled Models for Organic Ferromagnetic Metals”

Phys. Chem. Chem. Phys. **2011**, 13, 1424-1433. 査読有, DOI: 10.1039/c0cp00730g

⑦ Ueda, A.; Ogasawara, K.; Nishida, S.; Ise, T.; Yoshino, T.; Nakazawa, S.; Sato, K.; Takui, T.; Nakasuji, K.; Morita, Y.

“Semiquinone Radical Anion: Quantitative Evaluation of the Concave-Convex Dynamic Behavior in the Structural and Electronic Features”

Angew. Chem. Int. Ed. **2010**, 49, 6333-6337. 査読有, DOI: 10.1002/anie.201002626

⑧ Morita, Y.; Yakiyama, Y.; Nakazawa, S.; Murata, T.; Ise, T.; Hashizume, D.; Shiomi, D.; Sato, K.; Kitagawa, M.; Nakasuji, K.; and Takui, T.,

“Triple-Stranded Metallo-Helicates Addressable as Lloyd’s Electron Spin Qubits”,

J. Am. Chem. Soc., **2010**, 132, 6944-6946. 査読有, DOI: 10.1021/ja102030w

⑨ Atsumi, H.; Maekawa, K.; Nakazawa, S.; Shiomi, D.; Sato, K.; Kitagawa, M.; Takui, T.; Nakatani, K.

“Noncovalent assembly of TEMPO radicals pair-wise embedded on a DNA duplex”, *Chem. Lett.*, **2010**, 39, 556-557. 査読有, DOI: 10.1246/cl.2010.556

⑩ Maekawa, K.; Nakazawa, S.; Atsumi, H.; Shiomi, D.; Sato, K.; Kitagawa, M.; Takui, T.; Nakatani, K.

“Programmed assembly of organic radicals on DNA”

Chem. Commun. **2010**, 46, 1247-1249. 査読有, DOI: 10.1039/b913061f

⑪ Ohba, Y.; Watanabe, C.; Nakazawa, S.; Yamauchi, S.

“Determination of Quality Factor for Highly Overcoupled EPR Resonators”

Appl. Mag. Res. **2010**, 37, 781-794. 査読有, DOI: 10.1007/s00723-009-0066-7

[学会発表] (計 27 件)

①

発表者: 中澤重顕

題名: ESR double quantum transitions revisited: a ground-state triplet nitroxide diradical with sizable ZFS as studied by single-crystal CW/Pulsed ESR spectroscopy

学会名: The 46th Annual International meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry

場所: Warwick, UK

年月: 2013 年 4 月 10 日

②

発表者: 中澤重顕

題名: ゼロ磁場分裂定数の大きなニトロキシド系ジラジカルの希釈単結晶中の構造と 2 量子遷移の CW/Pulsed ESR による研究

学会名: 日本化学会第 93 春季年会

場所: 立命館大学 びわこ・くさつキャンパス

年月: 2013 年 3 月 24 日

③

発表者: 中澤重顕

題名: A Study of the zero-field splitting tensor and Double Quantum Transitions of triplet-state nitroxide-substituted iminonitroxide: A quest for a spin quantum memory in a hybrid system with an SC flux qubit

学会名: F I R S T 量子情報処理プロジェクト 新学術領域 量子サイバネティクス 全体会議 2012

場所: 東京大学 本郷キャンパス 小柴ホール

年月: 2012 年 12 月 13 日

④

発表者: 中澤重顕

題名: イミノニトロキシド-ニトロキシド基底三重項ジラジカルの電子状態及び 2 量子遷移の希釈単結晶 CW/Pulse ESR 法による研究

学会名: 第 51 回電子スピンサイエンス学会 年会

場所: 札幌コンベンションセンター

年月: 2012 年 11 月 1 日

⑤

発表者: 中澤重顕

題名: Double quantum transitions of ground-state triplet iminonitroxide-nitroxide diradicals as studied by pulsed ESR nutation spectroscopy

学会名: 8th Asia-Pacific EPR/ESR Symposium (APES2012)

場所: Beijing, China

年月: 2012 年 10 月 13 日

⑥

発表者: 中澤重顕

題名: Double quantum transitions of ground-state triplet iminonitroxide-nitroxide as studied by pulsed ESR nutation spectroscopy

学会名: The 13th International Conference on Molecule-based Magnets

場所: Orlando, USA

年月: 2012 年 10 月 9 日

⑦

発表者: 中澤重顕

題名: イミノニトロキシド-ニトロキシド基

底三重項ジラジカルの ESR 二量子遷移のパルス ESR ニューテーション法による研究
学会名：第 6 回分子科学討論会
場所：東京大学 本郷キャンパス
年月：2012 年 9 月 21 日

⑧

発表者：中澤重顕
題名：A study of fine-structure tensor and double quantum transitions of nitroxide-substituted iminonitroxide
学会名：The sixth Japanese-Russian Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices
場所：Rostov-on-Don, Russia
年月：2012 年 9 月 10 日

⑨

発表者：中澤重顕
題名：Synthetic Electron Spin Qubits as Manipulated by Pulsed ESR Spectroscopy: g-/A-Engineering Approach
学会名：The 2nd Internal Symposium of Electron Spin Science
場所：Matsushima, Japan
年月：2012 年 7 月 25 日

⑩

発表者：中澤重顕
題名：Zero-Field Splitting Tensor and Double Quantum Transitions of Nitroxide-Substituted Iminonitroxide: A Candidate for QC Qubit-Coupled Ensemble Spin Quantum Memory
学会名：第 7 回科研費量子サイバネティクス総括班会議
場所：ハイアットリージェンシー京都
年月：2012 年 6 月 21 日

⑪

発表者：中澤重顕
題名：Quantum operations by pulsed ESR spectroscopy: Molecular design for biradical and triradical
学会名：The 45th Annual International Meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry
場所：Manchester, UK
年月：2012 年 3 月 26 日

⑫

発表者：中澤重顕
題名：Molecular design for biradical and triradical qubits and quantum gate operations by pulsed ESR spectroscopy
学会名：量子情報プロジェクト/量子サイバネティクス 全体会議 2011
場所：京都国際ホテル
年月：2011 年 12 月 13 日

⑬

発表者：中澤重顕
題名：ビラジカル Qubit とトリラジカル Qubit

の分子設計とパルス ESR 法による量子演算
学会名：第 50 回電子スピンサイエンス学会
年会

場所：仙台国際センター
年月：2011 年 11 月 18 日

⑭

発表者：中澤重顕
題名：Molecular design for biradical and triradical qubits and quantum gate operations by pulsed ESR spectroscopy
学会名：The fifth Japanese-Russian Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices
場所：Awaji, Japan
年月：2011 年 11 月 14 日

⑮

発表者：中澤重顕
題名：分子電子スピン 2 量子ビット及び 3 量子ビットによる量子演算とエンタングルメント生成
学会名：第 5 回分子科学討論会
場所：札幌コンベンションセンター
年月：2011 年 9 月 22 日

⑯

発表者：中澤重顕
題名：A CNOT gate operation of synthetic electron spin-qubits and detection of their entanglement
学会名：6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH6)
場所：Matsue, Japan
年月：2011 年 8 月 5 日

⑰

発表者：中澤重顕
題名：Generation and detection of an entangled state for synthetic electron spin-qubits
学会名：The 44th Annual International Meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry
場所：York, UK
年月：2011 年 4 月 6 日

⑱

発表者：中澤重顕
題名：分子電子スピンをもちいたパルス ESR 法による量子演算
学会名：日本化学会第 91 春季年会
場所：神奈川大学 横浜キャンパス
年月：2011 年 3 月 29 日

⑲

発表者：中澤重顕
題名：Weakly exchange-coupled nitroxide biradicals as molecular electron-spin qubits
学会名：Pacifichem 2010
場所：Hawaii, USA

年月：2010年12月17日

⑳

発表者：中澤重顕

題名：分子の電子スピン量子ビットの CNOT ゲートの開発

学会名：量子情報処理プロジェクト全体会議

場所：ホテルニューフジヤ熱海

年月：2010年12月8日

[21]

発表者：中澤重顕

題名：ビラジカル Qubit による CNOT ゲート操作

学会名：第49回電子スピンサイエンス学会年会

場所：名古屋大学シンポジオンホール

年月：2010年11月13日

[22]

発表者：中澤重顕

題名：Quantum Operation for Synthetic Electron Spin-Qubits by Pulsed ELDOR/ENDOR Technique

学会名：Asia-Pacific EPR/ESR Symposium 2010

場所：Jeju, Korea

年月：2010年10月12日

[23]

発表者：中澤重顕

題名：Quantum Gate Operation for Synthetic Electron Spin-Qubits by Pulsed ELDOR/ENDOR Spin Technology

学会名：The 12th International Conference on Molecule-Based Magnets

場所：Beijing, China

年月：2010年10月9日

[24]

発表者：中澤重顕

題名：分子スピン量子ビットによる量子演算

学会名：第4回分子科学討論会2010

場所：大阪大学豊中キャンパス

年月：2010年9月14日

[25]

発表者：中澤重顕

題名：Quantum Operation for Synthetic Electron Spin-Qubits

学会名：IV Russian-Japan Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices

場所：Nizhny Novgorod, Russia

年月：2010年9月6日

[26]

発表者：中澤重顕

題名：Molecular Electron Spin-Qubits: Implementation of Quantum Operation and Teleportation

学会名：10th Asian Conference of Quantum Information Science

場所：Tokyo, Japan

年月：2010年8月

[27]

発表者：中澤重顕

題名：Weakly Exchange-Coupled Biradicals as Molecular Electron-Spin Qubits: Magnetic Properties, Peculiar Spin-Relaxation Phenomena, and Quantum Operations

学会名：CREST 2010 International Symposium on Physics of Quantum Technology

場所：Tokyo, Japan

年月：2010年4月8日

[図書] (計2件)

[1] 著者名：T. Takui, S. Nakazawa, H. Matsuoka, K. Furukawa, K. Sato, and D. Shiomi,

書名：“Molecule-based exchange-coupled high-spin clusters: Conventional, High-Field/High-Frequency and Pulse-Based Electron Spin Resonance of Molecule-Based Magnetically Coupled Systems”, in *EPR of Free Radicals in Solids II: Trends in Methods and Applications (Chapter 3)*, Eds. A. Lund and M. Shiotani, Springer, pp.71-162

発行年：2012年.

[2] K. Sato, S. Nakazawa, S. Nishida, R. D. Rahimi, T. Yoshino, Y. Morita, K. Toyota, D. Shiomi, M. Kitagawa, and T. Takui

“Novel Applications of ESR/EPR: Quantum Computing/Quantum Information Processing”, in *EPR of Free Radicals in Solids II: Trends in Methods and Applications (Chapter 4)*, Eds. A. Lund and M. Shiotani, Springer, pp.163-204

発行年：2012年.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中澤 重顕 (NAKAZAWA SHIGEAKI)

大阪市立大学・大学院理学研究科・特任講師

研究者番号：70342821

(2) 研究分担者

工位 武治 (TAKUI TAKEJI)

大阪市立大学・大学院理学研究科・特任教授

研究者番号：10117955

(3) 連携研究者

なし