

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 14 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25410098

研究課題名(和文)超伝導磁束量子ビットとの結合系を構成する分子電子スピン量子ビットの開発

研究課題名(英文)A study of molecular electron spin ensemble systems suitable for quantum spin memories coupled with superconducting flux qubit circuits

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・特任准教授

研究者番号：70342821

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：量子コンピュータの実現のため様々な量子物理系が提案されているが、それぞれの長所を生かし短所を補うハイブリッド型が注目されている。我々は、量子演算を担う量子ビットとして超伝導磁束量子ビットを用い量子メモリーとして位相記憶時間の比較的長い分子スピンアンサンブルを用いることを着想した。ハイブリッド型として機能させるために量子情報を超伝導磁束量子ビットから分子スピンアンサンブルへ移動させ得ることを確かめる必要がある。そのため両量子ビットを強結合させる実証研究をおこなった。この目的のために適切な基底三重項有機分子スピンの希釈単結晶の育成と結晶表面の平坦化に成功し、量子情報の移動を実証する目途がついた。

研究成果の概要(英文)：Hybridization between molecular spin ensemble qubits and superconducting flux qubit circuits has been targeted by using ground-state triplet organic molecules with large fine-structure constants. We have found that one of the stable triplet diradicals in the ground state has a large D value (-0.0655 cm⁻¹), the largest among the ground-state triplet (S = 1) nitroxide-based diradicals documented so far. The magnetically diluted single crystals were obtained by cocrystallization of a mixture of the diradical and diamagnetic host molecule which molecular structure corresponds to that of the diradical with replacement of NO groups by CO groups. The fine-structure (D) tensors of the diradical and its analog in the single crystals were determined by single-crystal ESR spectroscopy. We have solved a technical issue on flattening the surface of the small single crystals, which ensures good physical contact between the spin crystal and the circuit.

研究分野：スピン科学

キーワード：量子情報処理 量子メモリー 電子スピン共鳴 三重項ジラジカル 希釈単結晶 超伝導磁束量子ビット

1. 研究開始当初の背景

1980年代初頭から一部の物理学者の間で量子コンピュータの可能性について議論がなされてきたが実現性や実用性の面で多くの科学者には興味はもたれつつも懐疑的な目でみられていた。ところが1994年に実用的な量子アルゴリズムである素因数分解の量子アルゴリズムがショアによって発表されると状況は一変した。ショアのアルゴリズムは、量子コンピュータを用いると素因数文化を入力の数に対して多項式時間で解くことが可能になるいわゆるP問題に帰着され、RSA暗号が破られる可能性が出てきたことから社会的に注目されるようになり、多くの理論および実験科学者が量子コンピュータの実現に向けて研究を開始した。

量子ビットを担わせる量子物理系として、光子、トラップイオン、超伝導回路、分子の振動回転状態、核スピン、量子ドットの電子スピンなどが提案されている。我々は、有機分子スピンを量子ビットとしてもちいて量子コンピュータを実現する研究を行ってきた。室温でも安定なニトロキシドラジカルである TEMPO 系ラジカルを量子ビットとして採用している。この TEMPO 系ラジカルユニット2つをリンカーで結んだ弱交換相互作用系ラジカルを適切な分子設計により合成し、パルス ESR法により2電子スピン量子ビット間に制御 NOTゲート操作を初めて実現した(S.Nakazawa et al. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2012**, 51, 9860)。量子ビットを担わせる量子物理システムにはそれぞれに長所・短所がある。それぞれの量子ビットの長所を生かし短所を補うハイブリッド系が最近注目されている。例えば、量子演算速度の速い超伝導磁束量子ビットと比較的長い記憶保持時間をもつダイヤモンド NV センターの電子スピン量子ビットとの結合系の研究が報告されている。

分子磁性研究の分野においてニトロキシド系としては比較的大きな微細構造定数(D値)をもつ基底三重項ニトロキシドラジカル($S=1$, $D=2.0$ GHz)が合成されている。その比較的大きな微細構造定数を活用する観点から、我々は超伝導磁束量子ビットと有機分子電子スピン量子ビットアンサンブルとのハイブリッド系に着目した。有機分子を使うメリットは分子設計・合成により分子のスピン物性を制御できる点にある。

2. 研究の目的

巨視的な超伝導磁束量子ビットとアンサンブル有機電子スピン量子ビットとの結合メカニズムを解明する。そのために超伝導量子ビットと結合させる最適な有機電子スピン量子ビット系を物質系(単結晶)として構築する。超伝導量子ビットが動作する 20 mK で三重項副準位の一番下の状態に電子スピンを分布させるために(いわゆる量子情報の初期化)まずはなるべくD値の大きな基底三

重項ニトロキシドラジカルを分子設計・合成する。微細構造テンソルは方向性があるので方向を揃えるために単結晶を育成する。分子間の相互作用を小さくするために非磁性ホスト分子に希釈させた単結晶を育成する。微細構造テンソルの量子化学計算を行い、スピン-スピン相互作用(SS)とスピン-軌道相互作用(SO)の微細構造テンソルへの寄与度を明らかにする。超伝導量子ビットと有機電子スピン量子ビットの結合定数を実験で求める。SSとSOの寄与度の異なるD値をもつ有機電子スピン量子ビットと超伝導量子ビットの結合定数を観測し、その違いなどから結合メカニズムを解明する。

3. 研究の方法

超伝導磁束量子ビットとのハイブリッド系を構築するために、微細構造定数のなるべく大きな基底三重項ニトロキシドラジカルを分子設計・合成する。さらに、ラジカルと骨格のよく似た非磁性のホスト分子を合成しラジカルを磁氣的希釈単結晶を育成する。単結晶QバンドCW ESR法によりラジカルのスピンハミルトニアンパラメータ(gテンソル、Dテンソル、Aテンソル)を決定し電子状態を解明する。超伝導回路をもちいて超伝導磁束量子ビットと有機電子スピン量子ビット(磁氣的希釈単結晶)との結合定数を求める。いくつかのニトロキシドラジカルをもちいることによって結合のメカニズムを解明する。

Dテンソルは方向性をもつので方向の揃った単結晶を実験に用いるが、非希釈単結晶は分子間の磁氣的相互作用が大きく作用しスピン緩和時間が短くなるので、ラジカルを磁氣的に希釈した単結晶を育成するために、非磁性のホスト分子を合成する。適切なホスト分子としては、ラジカルをNO基をCO基に置き換えた、骨格のよく似た分子がラジカルを取り込むことがいままでの研究で分かっている。

4. 研究成果

基底三重項ニトロニトロキシドラジカルの中で最もD値の大きなラジカル1($D=0.0655$ cm⁻¹)と比較的大きなD値をもつラジカル2($|D|=0.025$ cm⁻¹)を準備した。量子化学計算によるDテンソルの計算をスピン-スピン相互作用だけでなくスピン軌道相互作用も考慮して行い実験値とよく一致する値を得た。量子メモリーとして機能させるためにデコヒーレンス時間(スピン-スピン緩和時間)は長い必要があるので、デコヒーレンスの大きな原因の一つであるラジカル間の磁氣的な相互作用を小さくするために反磁性のホスト分子の単結晶に希釈させることを試みた。適切なホスト分子として、ラジカルをNO基をCO基に置き換えた骨格のよく似た分子がラジカルを取り込むことがいままでの研究でわかってい

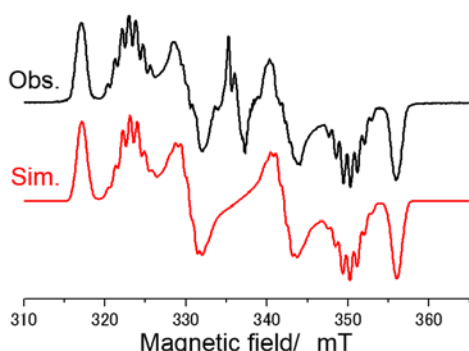
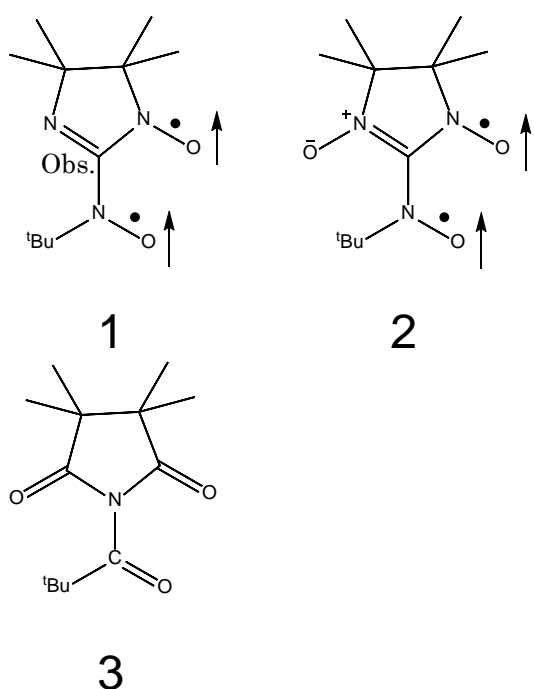


図1. ジラジカル2の希釈系のパウダーE S Rスペクトル。 $T=100\text{ K}$, $\nu=9.446756\text{ GHz}$.

るのであるが、ジラジカル2の構造に対応したケトン分子3の合成に成功した。分子3にジラジカル1, 2を希釈させた単結晶の育成を試みたところ、ほぼ望みの濃度で希釈単結晶を育成することに成功した。ホスト単結晶中でのジラジカル1, 2の微細構造定数(D値)を知るために、希釈単結晶をすりつぶしたパウダーのE S Rスペクトルを観測した。

図1にジラジカル2のパウダーE S Rスペクトルの実測とシミュレーションスペクトルを示す。スペクトルシミュレーションの結果、室温でジラジカル2のD値は 0.0182 cm^{-1} であった。1の方は2種存在しD値は 0.0618 cm^{-1} と 0.058 cm^{-1} であった。パウダーパターンのE S Rスペクトルシミュレーションから得られたスピンハミルトニアンパラメータを用いて単結晶E S Rスペクトルの解析を行った。ジラジカル1は結晶中にコンフォーマーが2種類存在し、結晶の対称性から磁氣的に3サイト存在することから合計6種類のスペクトルの角度変化が現れるが、すべて

スペクトルシミュレーションにより再現することができDテンソルを決定することができた。テンソルの対角化により得られる余弦方向から分子構造に対するDテンソルの主軸方向を決定することができた。ジラジカル2はコンフォーマーは1種類であるが、同様の解析によりDテンソルおよび分子構造に対する主軸方向を決定した。分子スピンアンサンブルを超伝導磁束量子ビットと強結合させるためには単結晶を超伝導回路にきちんと接触させる必要がある。超伝導回路からの磁束の空間的広がり数は数 $\mu\text{ m}$ 程度なので、結晶中のより多くの三重項分子を結合させるために結晶表面の平坦化を研磨によりおこなった。有機結晶はもろいため工夫を必要としたがラフネス $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以下の平坦化に成功した。現在、この結晶を使って超伝導磁束量子ビットとの強結合実験を進行中である。

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)

- ① Park, D.K.; Feng, G.; Rahimi, R.; Labruyere, S.; Shibata, T.; Nakazawa, S.; Sato, K.; Takui, T.; Laflamme, R.; Baugh, "Hyperfine spin qubits in irradiated malonic acid: heat-bath algorithmic cooling" *J. Quantum Inf. Processing*, **2015**, 14, 2435-2461, DOI: 10.1007/s11128-015-0985-1、査読有
- ② Yamamoto, S; Nakazawa, S.; Sugisaki, K.; Sato, K.; Toyota, K.; Shiomi, D; Takui, T. "Adiabatic quantum computing with spin qubits hosted by molecules" *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2015**, 17, 2742-2749, DOI: 10.1039/c4cp04744c、査読有
- ③ Ayabe, K.; Sato, K.; Nakazawa, S.; Nishida, S.; Sugisaki, K.; Ise, T.; Morita, Y.; Toyota, K.; Shiomi, D.; Kitagawa, M.; Suzuki, S.; Okada, K.; Takui, T. "Pulsed electron spin nutation spectroscopy for weakly exchange-coupled multi-spin molecular systems with nuclear hyperfine couplings: A general approach to bi- and tri-radicals and determination of their spin dipolar and exchange interactions", *Mol. Phys.* **2013**, 111, 2767-2787, DOI: 10.1080/00268976.2013.811304, 査読有
- ④ Atumi, H.; Nakazawa, S.; Dohno, C.; Sato, K.; Takui, T.; Nakatani, K. "Ligand-induced electron spin-assembly on a DNA tile", *Chem. Comm.* **2013**, 49, 6370-6372. DOI: 10.1039/c3cc41801d、査読有

[学会発表] (計11件)

- ① 中澤重顕、柴田大貴、山本悟、E. Hosseini、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、工位武治、Quantum operations by use of molecular

- spin qubits, Potassium Hydrogen Maleate Radical with strong forbidden transitions, *The 9th Russian-Japanese International Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices*, 2015年11月9日、兵庫県・淡路市
- ② 中澤重顕、E.Hosseini、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、工位武治、Quantum operations by use of molecular spin qubits with strong forbidden transition, *The 3rd Awaji International Workshop on Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Application*, 2015年6月15日、兵庫県・淡路市
- ③ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、A single-crystal ESR/ENDOR study of highly compact nitroxide-based diradicals in the triplet ground state as quantum spin memory devices for quantum computers, *The 48th Annual International meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry*, 2015年4月2日、Southampton, UK
- ④ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、Determination of the fine-structure tensors and spin relaxation phenomena for iminonitroxide-nitroxide diradicals in magnetically diluted single crystal as studied by CW-/pulse-ESR, *The Joint Conference of APES2014, IES and SEST2014*, 2014年11月14日、奈良県・奈良市
- ⑤ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、A cw-/pulse-esr study for iminonitroxide-nitroxide diradicals in magnetically diluted single crystals, *The 8th Japanese-Russian International Workshop on Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Application*, 2014年9月29日、Kazan, Russia
- ⑥ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、Molecular structure and double quantum transitions of a ground-state triplet iminonitroxide-nitroxide diradical in magnetically diluted single crystal as studied by CW-ESR/pulsed ESR spectroscopy, *The 14th International Conference on Molecule-based Magnets*, 2014年7月7日、Saint Petersburg, Russia
- ⑦ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、Determination of the fine-structure tensors and spin relaxation phenomena for iminonitroxide-nitroxide diradicals in magnetically diluted single crystal as studied by CW-/pulse-ESR, *The 2nd Awaji International Workshop on Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Application*, 2014年6月16日、兵庫県・淡路市
- ⑧ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、A ground-state triplet iminonitroxide-nitroxide diradical in magnetically diluted single crystal as studied by CW-ESR/pulse ESR spectroscopy, *The 47th Annual International meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry*, 2014年4月8日、Dundee, UK
- ⑨ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、Molecular structures and double quantum transitions of a ground-state triplet iminonitroxide-nitroxide diradical as studied by CW-ESR/pulsed ESR spectroscopy, *The 7th Japanese-Russian International Workshop on Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Application*, 2013年11月20日、兵庫県・淡路市
- ⑩ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、尾向宏介、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、A study of Fine-Structure Tensors and Double Quantum Transitions of Stable Nitroxide-Substituted Iminonitroxide Diradicals in Magnetically Diluted Single Crystals, *The 1st Awaji International Workshop on Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Application*, 2013年6月17日、兵庫県・淡路市
- ⑪ 中澤重顕、河盛萌子、杉崎研司、豊田和男、塩見大輔、佐藤和信、古井孝宜、倉津将人、鈴木修一、小寄正敏、岡田恵治、工位武治、ESR double quantum transitions revisited: a ground-state triplet nitroxide diradical with sizable ZFS as studied by single-crystal CW/Pulsed ESR spectroscopy, *The 46th Annual International meeting of the ESR Spectroscopy Group of the Royal Society of Chemistry*, 2013年4月10日、Warwick, UK

[図書] (計 1件)

Shigeaki Nakazawa, Shinsuke Nishida,

Kazunobu Sato, Kazuo Toyota, Daisuke Shiomi, Yasushi Morita, Kenji Sugisaki, Elham Hosseini, Koji Maruyama, Satoru Yamamoto, Masahiro Kitagawa and Takeji Takui
“Molecular spin qubits: Molecular optimization of synthetic spin qubits, molecular spin AQC and ensemble spin manipulation technology”, in Principles and Methods of Quantum Information Technologies (Chapter X), Eds. Yoshihisa Yamamoto and Koichi Semba, Springer-Verlag, (2015).

[その他]

ホームページ等

<http://www.qcqis.sci.osaka-cu.ac.jp/~nakazawa/>

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・
特任准教授
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