

4C15

量子コンピュータ分子スピンQCバス系の量子情報制御を目指した DPNO- d_8 の単結晶ESR/ENDOR法による研究

(阪市大院理¹, 近大理工², 阪大院理³, 阪大院基礎工⁴, JST-CREST⁵)

○吉野共広,¹ 西田辰介,^{1,5} 中澤重顕,^{1,5} 佐藤和信,^{1,5} Rahimi, Robabeh,² 豊田和男,^{1,5}
塩見大輔,^{1,5} 森田靖,^{3,5} 北川勝浩,^{4,5} 工位武治^{1,5}

【序】現在、量子コンピュータ・量子情報処理(QC/QIP)の研究は、光子、捕捉されたイオンや核スピンなど、様々な量子ビットを用いた系において実験的な検証が盛んに行われている。我々は、これまでパルス電子-核多重共鳴(ENDOR)法によるスピン制御技術を用いて、固相状態の開殻系安定有機分子における電子スピン-核スピン系の2量子ビット間で量子エンタングルド状態を生成し、ベル状態間の変換や電子スピン持つスピノール性の実証実験など、量子スピン状態の制御が可能であることを示してきた[1~4]。今回、固相におけるアンサンブル系分子スピン QC の多量子ビットへの拡張を目指し、古くから知られるジフェニルニトロキシド(DPNO- h_{10}) (分子 **1**)とその誘導体(DPNO- d_8) (分子 **2**)に注目し、分子スピンバス系のモデル分子としての可能性を探った。これらの系は、ベンゾフェノン誘導体分子(Benzophenone- d_{10}) (分子 **3**)に磁氣的希釈された固相系試料であり、特に、核スピンの選択的励起のために量子ビットの候補の数を絞り、設計・合成された同位体置換分子 **2** は、*A-tensor engineering* された特別な系と呼ぶこともできる。固相系における電子構造を単結晶 Cw-ESR/ENDOR 測定と密度汎関数法による理論計算を用いて解明するとともに、それらの情報をもとに、パルス ESR/ENDOR 法を用いたスピン操作を試み、分子スピンバス量子コンピュータへの適用性について検討した。

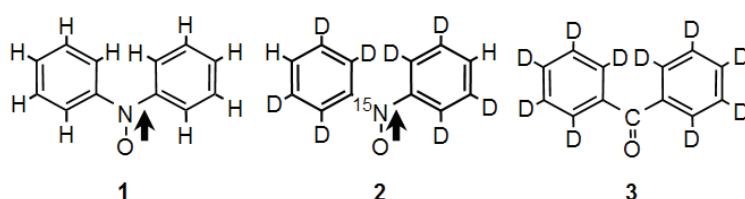


図1 安定な無置換ジフェニルニトロキシドラジカル **1** (DPNO- h_{10}) と **1** のパラ位以外の ^1H 核と ^{14}N 核を同素体置換したジフェニルニトロキシド誘導体 **2** (DP ^{15}NO - d_8) と全て ^2H (D)核に置換した重水素化ベンゾフェノン **3** (Benzophenone- d_{10})

【実験】単結晶 cw-ESR/ENDOR 測定は、ベンゾフェノン単結晶の結晶軸周りに試料を回転することにより角度依存性の測定を行った。ジフェニルニトロキシド **1** の固相系 ESR/ENDOR スペクトルは、ホスト分子 **3** の晶系を反映する角度依存性を示し、ホスト分子 **3** が分子 **1** で置き換わった希釈単結晶であることを示した[5]。分子 **1** と、*A-tensor engineering* を施した新規物質である分子 **2** についても、Cw-ESR/ENDOR スペクトルの角度依存性の詳細な解析を行い、Gaussian03 や ADF2006 ソフトウェアパッケージを用いた DFT 計算を用いて電子構造を解明した。その知見をもとに、Q バンドパルス ESR/ENDOR の実験を行った。パルス ESR による縦緩和時間(T_1)と横緩和時間(T_2)の測定は、それぞれ、反転回復法とスピンエコー法を用いて行った。単結晶 Cw-ESR スペクトルの測定は Bruker BioSpin 社製の E500 分光器、単結晶 Cw-ENDOR/TRIPLE スペクトルの測定は ESP300/350 分光器、パルス ESR/ENDOR の実験は E580 分光器をそれぞれ用いて行った。

【結果と考察】分子**3**の単結晶中に磁氣的に希釈された分子**1**と分子**2**のENDORスペクトルを図2に示す。これらは、静磁場 B_0 が結晶座標の a 軸に平行な方向で観測されたスペクトルである。これらのスペクトルは、ベンゾフェノン単結晶(P2 $_1$ 2 $_1$ 2 $_1$, $Z=4$)の晶系を反映していることを示している。分子**1**のENDORスペクトル(図2(a))は、分子内の10個のプロトンにより、スペクトルが複雑となるため、分子内

の電子スピンを含む3量子ビット以上の量子情報操作を行うモデル系としては、核スピンを選択的に励起することが難しいだけでなく、マイクロ波パルスによるESR遷移の選択的励起も困難であった[4]。ESR/ENDORスペクトルの単純化を目指して設計、合成した分子**2**の a 軸方向のENDORスペクトルを図2(b)に示す。部分的な重水素化と同位体置換した窒素核(^{15}N)により、分子**2**のENDORスペクトルは単純化されている。超微細結合定数の相対符号は、TRIPLEスペクトルを観測することにより決定した。表1にDFT計算の結果と併せて、実験的に決定した ^1H 核の超微細結合テンソルの主値を示す。DFT計算には、Gaussian03ソフトウェアを用いて、ハイブリッド型汎関数(B3LYP)により非制限法で行った。基底関数には、DZVPを用いた。DFT計算による超微細結合テンソルの主値は、ENDOR/TRIPLEの実験結果とほぼ矛盾無く一致し、主値に関してもBrustolon等による粉末試料による実験結果[6]より精度良く決定することができた。

量子演算・量子状態制御を実行するためには、スピン系がより長いデコヒーレンス時間(緩和時間)をもつ必要がある。分子**3**に磁氣的希釈されたDPNO誘導体の濃度は、任意の希釈濃度に調整することが可能である。濃度の違いによる緩和時間の依存性をパルスESR法を用いて調べたところ、濃度が低いほど緩和時間 T_1 及び T_2 が長くなり、スピン制御に有利であることがわかった。また、50Kにおける分子**2**の縦緩和時間 T_1 はRFのゲート時間より十分に長く、電子スピン及び核スピンの制御が可能であることを確認した。現在、分子**2**にパルスENDOR技術を適用して、スピン操作の実験を行っている。当日は、分子**2**の分子・電子構造の詳細と合わせて、分子スピン量子コンピュータモデル分子としての有用性や量子情報操作の可能性について報告する。

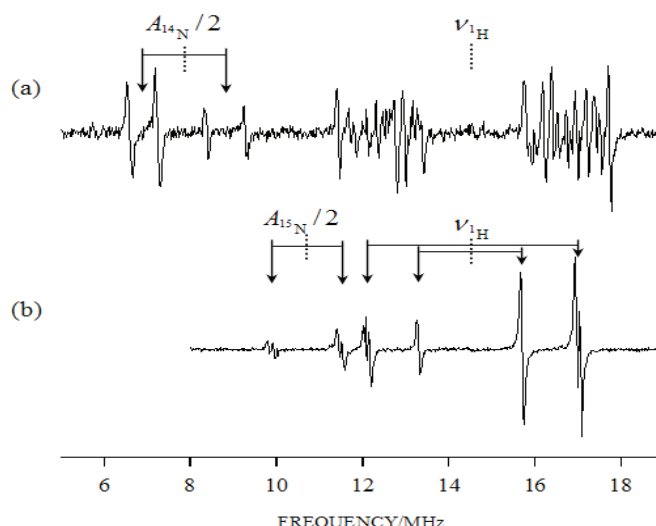


図2 静磁場 B_0 が a 軸に平行な方向での、分子**1**(a)と分子**2**(b)のCW-ENDORスペクトル。スペクトル(b)は、270 K、磁場 3394.85 G、マイクロ波周波数 9.54144 GHz を用いて観測された。

表1 分子**2**のpara位の ^1H 核の超微細結合テンソルの主値(/MHz)。(カラム左端から2種類の実験値(270 K)、DFT計算と文献値[6]の値を示す。)

	実験値 (270 K)	実験値 (270 K)	DFT (DZVP)	文献値 [6]	
$para\text{-}^1\text{H}$	A_{xx}	-8.63	-8.82	-9.48	-7.60
	A_{yy}	-5.56	-5.76	-6.63	-5.80
	A_{zz}	-2.22	-2.34	-2.17	-2.92
	A_{iso}	-5.47	-5.64	-6.09	-5.44

【文献】

- [1] M. Mehring, J. Mende, and W. Scherer, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 153001 (2003).
- [2] R. Rahimi, K. Sato, K. Furukawa, *et al.*, *Int. J. Quantum Inf.*, **3**, 197(2005).
- [3] K. Sato, R. Rahimi, N. Mori, *et al.*, *Physica E*, **40**, 363 (2007).
- [4] K. Sato, S. Nakazawa, R. Rahimi, *et al.*, *J. Mater. Chem.*, **19**, 3793 (2009).
- [5] T.-S. Lin, *J. Chem. Phys.*, **57**, 2260 (1972). Erratum, *ibid.*, **58**, 3534 (1973).
- [6] A. L. Maniero, M. Brustolon, *J. Chem. Soc., Faraday Trans. 1*, **84**(8), 2875(1988).