

パルス ELDOR-NMR 法による同位体置換  
ジフェニルニトロキシド分子内のスピン量子状態制御

(阪市大院理<sup>1</sup>, 阪大院理<sup>2</sup>, 阪大院基礎工<sup>3</sup>, FIRST<sup>4</sup>)

田中 彩香<sup>1</sup>, 佐藤 和信<sup>1,4</sup>, 吉野 共広<sup>1</sup>, 西田 辰介<sup>1,4</sup>, 中澤 重顕<sup>1,4</sup>, Robabeh Rahimi<sup>1</sup>,  
豊田 和男<sup>1,4</sup>, 塩見 大輔<sup>1,4</sup>, 森田 靖<sup>2,4</sup>, 北川 勝浩<sup>3,4</sup>, 工位 武治<sup>1,4</sup>

Quantum state manipulation of molecular spins by using isotope-labeled  
diphenylnitroxide derivatives in single crystals

(<sup>1</sup>Graduate School of Science, Osaka City University, <sup>2</sup>Graduate School of Science, Osaka University, <sup>3</sup>Graduate School of Engineering Science, Osaka University, <sup>4</sup>FIRST-Quantum Information Processing Project) Ayaka Tanaka<sup>1</sup>, Kazunobu Sato<sup>1,4</sup>, Tomohiro Yoshino<sup>1</sup>, Shinsuke Nishida<sup>1</sup>, Shigeaki Nakazawa<sup>1,4</sup>, Robabeh Rahimi<sup>1</sup>, Kazuo Toyota<sup>1,4</sup>, Daisuke Shiomi<sup>1,4</sup>, Yasushi Morita<sup>2,4</sup>, Masahiro Kitagawa<sup>3,4</sup> and Takeji Takui<sup>1,4</sup>

【序】我々は、分子スピン量子コンピュータ/量子情報処理技術 (QC/QIP) の開拓を目指し、マイクロ波 (MW) パルスやラジオ波 (RF) パルスによる電子スピン磁気共鳴技術を用いて、分子のスピン量子状態を人為的に制御する (スピン量子状態制御) 研究を進めている。スピン量子ビットを用いる QC/QIP において、操作可能な核種の増加や、それに伴う制御技術の精密化は、開発・改良の余地を多く残している。これまで、安定ラジカルがもつ電子スピン及び核スピンを対象にパルス電子-核二重共鳴 (ENDOR) 技術を適用することにより電子-核スピン系における量子絡み合い状態の生成と検出を行ってきた[1-4]。その中で、核スピン状態の操作の代わりに電子スピン状態を MW パルスで操作しても、電子-核スピン系の量子状態変換が実現できることを提案してきた[3]。分子スピンを量子ビットとして使用するためには、緩和時間内で多くの操作が必要となるため、操作時間の短縮は重要である。高強度の RF パルスを用いたパルス ENDOR 法による核スピンの量子状態制御と比較し、MW パルスを用いた核スピンの状態変換では、高周波数を用いる分だけ変換にかかる時間の大幅な短縮が見込めるため、メリットが大きい。また、MW パルスは高強度パルスであるため、 $g_n$  因子の小さい核も扱うことができると期待される。今回、2 種のマイクロ波周波数を用いるパルス電子-電子二重共鳴 (ELDOR) 法を適用することにより、電子-核スピン状態の MW パルスによる状態制御技術の開発と高速制御を目的として、同位体置換ジフェニルニトロキシド 2 種 (図 1. 分子 1、2) の希釈単結晶を用いた単結晶パルス ELDOR 法による電子-核スピン量子状態の評価法を検討した。

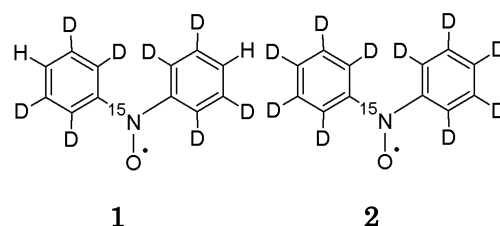


図 1. 同位体置換ジフェニルニトロキシド

【実験】実験には、窒素同位体及び重水素で部分的に標識化したジフェニルニトロキシド 1

と**2**を、それぞれ重水素化ベンゾフェノン単結晶（ホスト分子）中に希釈した混晶単結晶を育成して用いた。測定には、Bruker BioSpin社製Elexsys E580に、共同開発したコヒーレントデュアルマイクロ波パルス照射システムと高出力マイクロ波増幅アンプを組み込んだQバンドパルスELDOR分光器を使用した。試料の温度は、home-designed のOxford社製Optistat SXMクライオスタットを用いて制御した。

【結果と考察】図2(a)~(c)に、静磁場を重水素化ベンゾフェノン単結晶の**b**軸に平行に配向させた方向で観測した分子**1**の単結晶cw及びパルスESRスペクトルを示す。スペクトルの超微細結合分裂は、窒素同位体( $^{15}\text{N}$ )及び2つの水素核スピンの由来する。図1(c)は、 $B_0 = 1207.5 \text{ mT}$ の静磁場下で第2マイクロ波周波数を $33945.018 \pm 40 \text{ MHz}$ の範囲で掃引したものである。このスペクトルは、第2マイクロ波を第1マイクロ波と位相同期をとることにより初めて実現したものである。

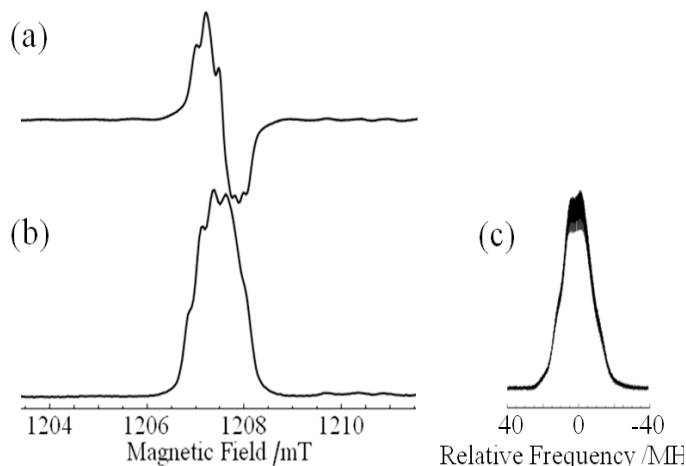


図 2. 分子 **1** の単結晶 ESR スペクトル(a)、FID 検出磁場掃引 ESR スペクトル(b)、FID 検出周波数掃引 ESR スペクトル(c)

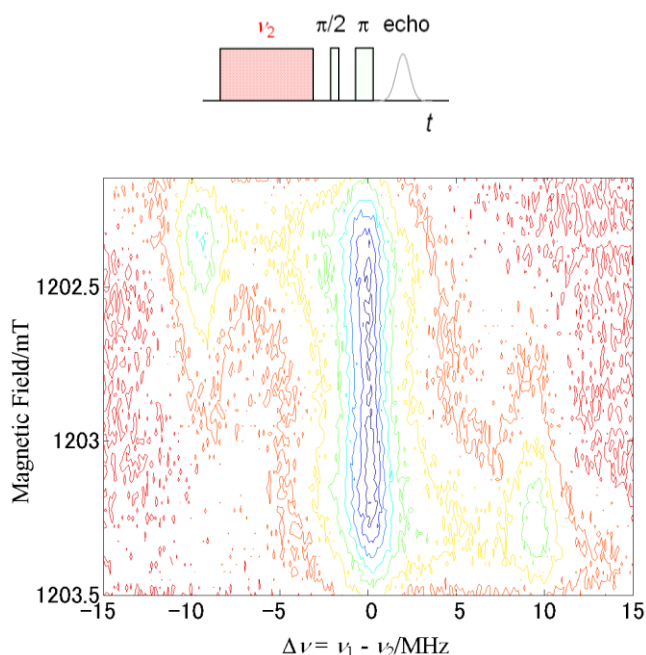


図 3. 静磁場を **b** 軸方向に配向させた時の分子 **1** のエコー検出 2D-ELDOR-NMR スペクトル

図3に、図上部に示す3パルス系列を用いて測定した第2マイクロ波周波数 ( $\nu_2$ ) 掃引スペクトルの磁場依存性を示した。低磁場側では低周波数側に、高磁場側では高周波数側にシグナルが現れている。これは、各磁場で観測している遷移のエコー強度の変化を、第2マイクロ波パルスの周波数依存性として観測しているものであり、近傍の異なる遷移が誘起されることを示している。スペクトルの帰属とELDOR効果の定量的な解析を進めることにより、第2マイクロ波パルスによるELDOR効果と電子-核スピン状態の関係を明らかにし、マイクロ波による電子-核スピン状態の量子状態制御と評価を目指している。

#### 【文献】

- [1] R. Rahimi, K. Sato, T. Takui et al., *Int. J. Quantum Inf.*, **3**, 197-204(2005).
- [2] K. Sato, R. Rahimi, T. Takui et al., *Physica E*, **40**, pp.363-366(2007).
- [3] K. Sato, S. Nakazawa, T. Takui et al., *J. Mater. Chem.*, **19**, pp.3739-3754(2009).
- [4] T. Yoshino, K. Sato, T. Takui et al., *J. Phys. Chem. Lett.*, **2**, pp.449-453(2011).