The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	光励起三重項電子を用いた動的核偏極による分子核スピン量子計算機の初期化
Author(s)	根来, 誠; 香川, 晃徳; 北川, 勝浩
Citation	大阪大学低温センターだより. 2010, 151, p. 3-7
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/7320
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

「物質の量子機能解明と未来型機能材料創出」

拠点リーダー：北岡　良雄（基礎工学研究科）

事業推進者

氏　名	所属・役職	GCOEでの役割
北岡　良雄	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	全体総括、革新的多元環境下 **NMR** を用いた新物理現象の発見と解明
三宅　和正	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	強相関電子物理の探求と新しい超伝導機構の理論的探索
井元　信之	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	量子情報処理に向けた光と物質の相互作用の解明量子情報理論および実験
鈴木　義茂	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	ナノ構造磁性体の作製とそれらを用いた新物理現象の発見と解明
夛田　博一	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	分子スケールエレクトロニクス素子の構築と基礎特性解明
木村　　剛	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	新しい電磁応答物質の創製
吉田　　博	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	計算機ナノマテリアル・デバイスデザイン
関山　　明	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	先端的広エネルギー励起光電子分光の開発と強相関電子系の物性解明
芦田　昌明	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	超広帯域時間領域分光法による超高速光学応答の解明とナノ構造物質の新奇創成・制御技術の開発
草部　浩一	基礎工学研究科（物質創成専攻）・准教授	世界最高精度をもつ第一原理電子状態計算理論の開発と機能性新物質の設計
宮坂　　博	基礎工学研究科（物質創成専攻）・教授	単一分子レベルの光化学反応に対するコヒーレント及びインコヒーレント制御手法の開発
清水　克哉	極限量子科学研究センター（量子基礎科学大部門）・教授	超高圧発生を中心とした極限物性研究
萩原　政幸	極限量子科学研究センター（量子基礎科学大部門）・教授	超強磁場を利用した極限物性研究と生体物質研究
白石　誠司	基礎工学研究科（システム創成専攻）・教授	分子系へのスピン注入現象を用いた新規素子の構築と単一スピン操作の実現
岡本　博明	基礎工学研究科（システム創成専攻）・教授	アモルファス・ナノ半導体の電子物性解明と新光電変換材料・デバイスの創成
占部　伸二	基礎工学研究科（システム創成専攻）・教授	レーザー冷却イオンを用いた量子情報処理
北川　勝浩※	基礎工学研究科（システム創成専攻）・教授	スピンを用いた量子情報処理実験および理論
大貫　惇睦	理学研究科（物理学専攻）・教授	量子物質の創製、重い電子系の実験的研究
野末　泰夫	理学研究科（物理学専攻）・教授	ナノ構造量子物質の作製と新物性の発見と解明
田島　節子	理学研究科（物理学専攻）・教授	エキゾチック超伝導をはじめとする新奇量子現象の発見と解明
川村　　光	理学研究科（宇宙地球科学専攻）・教授	フラストレート系の新奇秩序化現象の理論的研究
齋藤　伸吾	（独）情報通信研究機構（新世代ネットワーク研究センター）・主任研究員	テラヘルツ波を用いた半導体ナノ構造の微視的測定の開発

※印：本号で紹介する研究者及び研究グループ関係者
太字：低温センターから支援を受けている事業推進者

光励起三重項電子を用いた動的核偏極による分子核スピン量子計算機の初期化

基礎工学研究科　†根来　　誠
香川　晃徳
北川　勝浩（内線6323）
† E-mail: negoro@qc.ee.es.osaka-u.ac.jp

1　はじめに

私の研究室では分子の核スピンをビットとして用いた量子計算機の実現を目指している。分子核スピン系は外界との相互作用が小さく、ビットの量子状態の保持能力が非常に高い。また、NMR分光で60年以上もの長きにわたって培われてきたラジオ波パルステクニックを駆使することで、かなり精密に量子状態を操作することができる。これまで分子核スピン系を用いて少数ビットで*Shorのアルゴリズムなどのさまざまな量子アルゴリズムが実装されてきた[1]。しかしながら、この系には「ビットの初期化」が難しいという問題がある。アルゴリズムを動かす前にビットを全て0（この系では核スピンの向きを全て上向きの純粋状態）にしなければならない。例えば、11.7 T、室温での水素核スピンの熱平衡状態での*偏極率は 4×10^{-5} と非常に低く純粋状態には程遠い。

NMR分光の分野では偏極率を高める手法として動的核偏極（DNP）という手法が古くから知られている[2]。この手法では「不対電子を持った分子」を埋め込んだサンプルを用い、水素核スピンよりも660倍偏極率が高い電子スピンの熱平衡偏極状態をマイクロ波照射によってサンプル全体の核スピンに移す方法である。例えば、2.35 T、6 Kのような高磁場、極低温下では電子スピンの偏極率は約0.3になる。最近ではかなり大掛かりなサブミリ波装置、極低温装置を用いて、このような環境下でDNPを行い、得られた高偏極状態を精密に操作し、高分解能でNMR検出が行えるようになってきている[3]。

我々は「不対電子を持った分子」の代わりに「光励起三重項電子スピンを持つ分子」を用いたDNP（triplet-DNP）による核スピン系の高偏極化を研究している。ペンタセンのような分子の光励起三重項状態では、それぞれの準位における占有数分布が温度、磁場に依らず非常に偏っており、この偏りをDNPで核スピンに移すことができる。これまで0.3 T、105 K下で0.018 mol%ペンタセン

---

*この印の付いている語は、後に「用語説明」があります。

をドープしたナフタレン単結晶中の水素核スピンの偏極率を約**0.7**まで高められたという報告がなされている[4]。この方法では極低温技術やサブミリ波技術が必要なく高偏極状態を得ることができる。

我々はこれまで**triplet-DNP**を用いて、量子計算機となる分子の核スピン系の高偏極化を目指し研究を続けてきた。本稿ではこの研究における二つのトピックでの進展を報告する。一つ目はこの手法によって高偏極化に必要な時間の短縮化について説明する。前述の偏極率**0.7**を得た実験は実に**10**時間**triplet-DNP**を繰り返し得たものである。ここでは偏極の高速化に目的を絞って議論する。二つ目はこの手法によりどのような分子が高偏極化できるかについてである。これまで**triplet-DNP**ではホスト物質の水素核スピン系以外の核スピン系に偏極を移したという報告はなされていない。

2　偏極の高速化

前述の実験でホスト分子として用いられたナフタレンはT_1が非常に長いという利点を持つ代わりにペンタセンを溶かすことが出来る量が少ないという欠点を持つ。高偏極化のスピードは「偏極の源となる三重項電子の数」、すなわちペンタセンの数に比例する。**p**-テルフェニルはナフタレンよりペンタセンを多く溶かすことが出来る。**0.05 mol**%ペンタセンドープ**p**-テルフェニル単結晶を用いて**triplet-DNP**を繰り返し行い、偏極率が上昇していく様子を図 **1**（**a**）に示す。**10**分で約**0.18**まで偏極率を向上させることに成功した。この実験は室温下で行われた。ここで得られた偏極率は室温における **triplet-DNP**によってこれまでに得られた値の中で最も高い値である。

高偏極化のスピードは「偏極される側の水素核スピンの数」に反比例すると考えられる。量子計算機となる分子核スピン系以外のホスト物質の水素核スピンを部分的に重水素化すれば、高偏極化に要する時間を短縮することが可能である。**0.05 mol**%ペンタセンドープ**98.3**%重水素化**p**-テルフェニル単結晶を用いて得られた偏極率向上の様子は図 **1**（**b**）に示すように、かなり高速化することに成功している。重水素化率が高いほど偏極される水素核スピンの数は少なくなるが、同時に水素間の距離が遠くなりスピン偏極がサンプル全体へと拡散していく速度が遅くなってしまう。このト

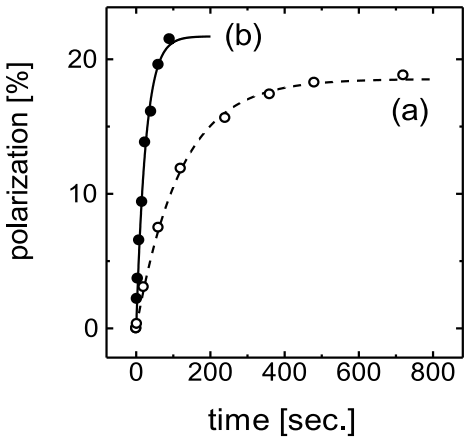

図 **1**　非重水素化**p**-テルフェニル（**a**）と**98.3%**重水素化 **p**-テルフェニル（**b**）の偏極向上の様子

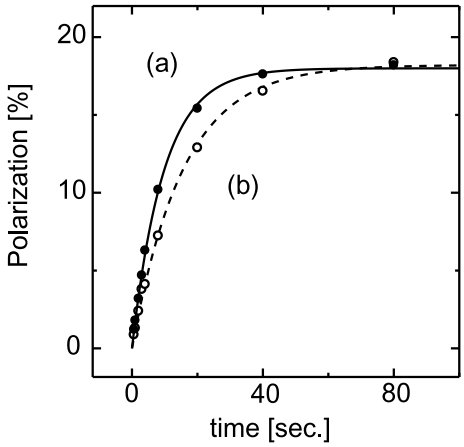

図 **2**　重水素に共鳴したラジオ波照射下（**a**）と非共鳴ラジオ波照射下（**b**）での部分的重水素化 **p**-テルフェニルの偏極向上の様子

レードオフによって**DNP**におけるホスト物質の最適な重水素化濃度が存在する[5]。

この偏極の拡散速度の低下は重水素核スピンと水素核スピンの相互作用も一つの要因になっている。重水素核スピンに共鳴するラジオ波照射を**DNP**中に行えば、この相互作用が平均化（デカップル）され、スピン偏極の拡散は促進される。重水素に共鳴する**RF**照射を行いながら**triplet-DNP**を繰り返した時の、偏極率向上の様子を図 **2**（**a**）に示す。デカップル効果がほとんどない非共鳴のラジオ波照射下での偏極率上昇の様子を図 **2**（**b**）に示す。結果、重水素デカップリング照射を行った場合は、スピン拡散が促進され偏極向上に要する時間がさらに短縮できることがわかった（現在論文執筆中）。

3　ホスト物質以外の高偏極化

これまで**triplet-DNP**ではホスト物質の水素核スピン系以外の核スピン系に偏極を移したという報告はなされていない。我々はブリッジマン法を用いて炉の温度、サンプルの降下速度などの最適な条件を慎重に探り、**1 mol**% **2**-フルオロナフタレン、**0.01 mol**%ペンタセン二重ドープナフタレン単結晶と、**0.5 mol**% **2,3**-ジフルオロナフタレン、**0.005 mol**%ペンタセン二重ドープナフタレン単結晶の作成に成功した。我々が以前開発した磁場循環装置を用い[6]、これらのサンプルを低磁場で偏極した後、高均一高磁場にシャトルし、^{19}**F NMR**スペクトルを測定した。図 **3**（**a**）は **2**-フルオロナフタレンをドープしたサンプルによる信号で、図 **3**（**b**）が **2,3**-ジフルオロナフタレンをドープしたサンプルによる信号である。これらは**triplet-DNP**によって初めてホスト物質の ^{1}**H**スピン系以外で得られた偏極信号である。このようなフッ素核スピン系は外界との相互作用がかなり自由にオンオフ可能で、高偏極化と精密操作が両立可能な系として、これまでできなかった原理検証の実験を行うことが出来ると期待している。

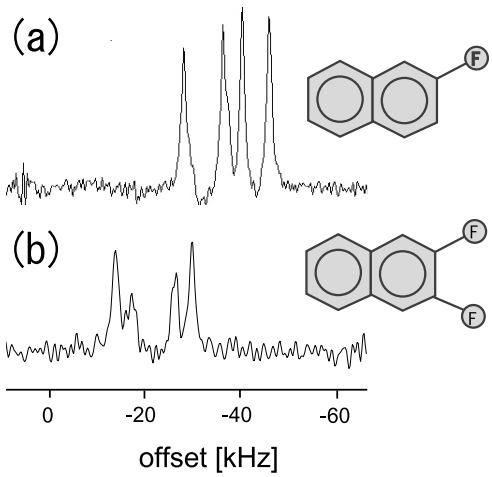

図 **3**　**2**-フルオロナフタレン（**a**）と**2,3**-ジフルオロナフタレン（**b**）の高偏極フッ素核**NMR**信号

4　まとめ

本稿では、光励起三重項電子を用いた動的核偏極による分子核スピン系の高偏極化の研究における二つの進展を報告した。まず、一つ目は高偏極化に要する時間の短縮化についてである。ホスト物質を**p**-テルフェニルにしペンタセンのドープ量を増やすこと、ホスト物質を重水素化し偏極される側の水素核スピンを減らすこと、そして、重水素デカップリングを施すことで最終的に**40**秒で偏極率約**0.18**を達成することができた。二つ目はどのような分子が高偏極化できるかについてである。ペンタセンドープナフタレンにさらに**2**-フルオロナフタレン、あるいは、**2,3**-ジフルオロナフタレンを二重ドープした単結晶を作成し、磁場循環装置を用いてこのサンプルの高偏極フッ素核スピン

の**NMR**信号を観測することに成功した。現在、このフッ素核スピン系を用いこれまで出来なかった量子計算の原理検証の実験を行っているところである。また、本研究における進展は**NMR**分光においても非常に重要で、**NMR**信号の高感度化の新しい可能性を示すものである。

本研究は**CREST/JST**、科研費（量子サイバネティクス）、グローバル**COE**の援助を受けて行われた。

参考文献

［1］**L. Vandersypen** *et al*., **Nature** 414, **883**（**2001**）; **J. Jones**, *et al*., **Nature** 393, **344**（**1998**）.

［2］**A. Overhauser, Phys. Rev.** 91, **476**（**1953**）.

［3］**T. Maly** *et al*., **J. Chem. Phys.** 128, **052211**（**2008**）.

［4］**K. Takeda** *et al*., **J. Phys. Soc. Japan** 73, **2313**（**2004**）.

［5］**A. Kagawa** *et al*., **J. Magn. Reson.** 197, **9**（**2009**）.

［6］**A. Kagawa** *et al*., **Rev. Sci. Instrum.** 80, **044705**（**2009**）.

用語解説

Shorのアルゴリズム

量子計算機を使うことで、因数分解を桁数の多項式関数の時間で解くことが出来るアルゴリズム

偏極率

スピン－$\frac{1}{2}$の偏極率は上向きスピンの占有数 N_+と下向きスピンの占有数 N_-を用いて$\frac{N_+-N_-}{N_++N_-}$で定義される。すべてのスピンが上を向いている純粋状態なら偏極率は **1** で、上向きと下向きが **1**：**1** の割合で完全に混合した状態では **0** になる。