

分子スピン量子ビットの状態制御とパルス ESR テクノロジー

(阪市大院理) 佐藤 和信

Quantum Spin Technology for Molecular Spin Qubits by Pulsed ESR
(Graduate School of Science, Osaka City University) Kazunobu Sato

Electron and nuclear spins are typical resources as molecular spin quantum bits (qubits) for quantum information science in molecules. Precise spin technology for the spin qubits is one of the fundamental issues in the field of molecular spin quantum science. Pulsed ESR and electron-nuclear multiple resonance (ENDOR/ELDOR) techniques are introduced as the quantum spin technology to manipulate electron spin qubits. We are going to describe observation of quantum coherence between electron and nuclear spins and verification of the spinor nature of both electron and nuclear spins (4π periodicity) by pulsed ENDOR technique and two- electron spin qubits manipulation by pulsed ELDOR technique.

The pulsed ESR techniques are integrated by applying arbitrary waveform generator (AWG), and the AWG based ESR technology overcomes technical limitation in ESR spectroscopy. We will present the advanced AWG-ESR techniques and spin-qubit control with arbitrary waveform pulses. The AWG-ESR techniques have been applied to typical spin systems for considering the spin excitation underlying quantum control. We also discuss a GRAPE (GRadient Ascent Pulse Engineering) approach based on the AWG-ESR technology as a promising method for global control of spins in molecular spin systems.

Keywords : *Quantum Spin Technology; Pulsed ESR; Molecular Spin Quantum Computer; Spin qubit; Arbitrary Waveform Pulse*

分子スピン系における電子スピンや核スピンは、代表的な量子情報リソースの一つである。分子内の電子・核スピンを量子ビットとして捉えることにより、重ね合わせや絡み合い状態などの量子状態に特有な性質を用いて、超並列化や情報検索など効率的な量子情報処理が実現できる。物質がもつスピンなどの量子性を用いて情報処理を実現するためには、量子情報を担う量子性物質を開発し、その量子状態を精密に制御することが重要であり、物質科学や制御技術におけるチャレンジングな課題である。本講演では、分子内のスピンを量子ビットとする量子情報処理を実現するスピンテクノロジーとして、パルス ESR/電子多重共鳴(ENDOR/ELDOR)技術やパルス波形制御技術と安定な分子スピン系への適用を紹介する。安定な分子スピンモデル系や弱交換相互作用系の量子状態評価と状態変換の実験を示すとともに、パルス波形最適化等の高精度なスピン制御に向けた最適化手法について議論する。

パルス ESR/ENDOR 法による分子スピン系の量子状態制御

分子スピン系を量子情報処理に資するための重要な要請は、安定性と長い位相緩和時間である。位相緩和は量子情報の保持能力に直結するため、長い位相緩和時間をもつスピン系の探索、創出が不可欠であり、分子スピン系の最適化を進める研究が重要になってくる。我々は、量子情報を長く保持できる分子システムとして、分子内・分

子間の磁氣的相互作用を抑えた分子スピン希釈単結晶系や同位体標識した安定ラジカル系に着目し、電子・核スピン系の量子状態制御の研究を行ってきた[1-4]。量子状態制御は、①量子ビットの初期化（擬純粋状態の生成）、②量子演算処理（量子絡み合い状態の生成と制御）、③量子状態の観測の3つの過程に分けることができる。これら3過程を含む量子演算回路を、パルス ENDOR 技術を用いてマイクロ波とラジオ波パルスを組み合わせたパルス系列で構築し、量子状態制御を行った。時間比例位相増加（TPPI）法を用いてマイクロ波とラジオ波の位相干渉を観測することにより、スピン状態間のコヒーレンスに関する知見を得ることに成功した。また、生成した量子絡み合い状態に対して、選択的なマイクロ波、或いはラジオ波パルスを照射することにより、スピン-1/2 のスピノールに由来する 4π 周期性が観測されることを示した。これは、電子-核スピン混在系における量子絡み合い状態の生成を証明するとともに、量子状態の位相変換過程を示すものであり、量子状態を実験的に操作・制御できることを示している。

任意波形マイクロ波技術による電子スピン運動の制御

電子スピンニューテーション法は、照射する矩形パルスのパルス幅依存性を観測することにより電子スピンの運動を観測し、電子スピンの遷移モーメントを定量的に評価する方法であるが、スピン系の量子ビットとしての機能評価に適用される例が増えてきている。近年のマイクロ波技術の発展により様々な任意波形パルスを用いた量子状態制御が実現可能となってきた。一般的なパルス ESR 法で用いる矩形パルスに代えて、任意波形パルスを実験に用いることができるため、波形制御によって電子スピン遷移に関わるスピンの運動を操作することが可能である。我々は、任意波形信号発生器を導入した AWG-ESR 技術を用いて、チャープパルスによる断熱的スピン制御や強度変調パルスである GRAPE パルス[4]によるスピン状態制御を行い、ESR スペクトルの操作を通して、スピン混在系における選択的な電子スピン遷移、或いは電子スピンのみを制御する GRAPE パルスによるスピン選択操作が可能であることを実験的に示してきた。ESR 遷移の励起に関わる電子スピンのニューテーション運動とスピン状態の関係を概観し、矩形パルスや任意波形パルスの下での電子スピン運動を視覚的に理解することにより、スピン状態の制御への適用を議論する。等方的な弱交換相互作用ヘテロビラジカル系[5]を対象に、2 電子スピン系における交換相互作用の影響よりスピン制御を達成するためのマイクロ波パルスの最適化について触れる予定である。

- 1) K. Sato, Y. Morita, T. Takui et al., *J. Mater. Chem.*, **2009**, 19, 3739-3754.
- 2) S. Nakazawa, K. Sato, Y. Morita, T. Takui et al., *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2012**, 51, 9860-9864.
- 3) S. Yamamoto, K. Sato, T. Takui et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2015**, 17, 2742-2749.
- 4) T. Shibata, K. Sato, T. Takui et al., *Appl. Magn. Reson.*, **2021**, in press. (DOI: 10.1007/s00723-021-01392-5)
- 5) K. Sato, E. Bagryanskaya, T. Takui et al. *J. Phys. Chem. A*, **2019**, 123, 7507-7515.