

高温動作する集積化可能な量子情報担体の開発に向けた 分子性量子ドット中の電子スピンの高速操作とメモリの研究

High-speed manipulation of electron spin and memory in molecular quantum dots
for quantum information carriers that operate at high temperatures

研究代表者 大阪大学産業科学研究所 准教授 藤田高史[※]

Takafumi Fujita

共同研究者 大阪大学産業科学研究所 教授 大岩顕

Akira Oiwa

In recent years, research and development on quantum computers has rapidly advanced, but there are still challenges for large-scale quantum computing. One major obstacle is the requirement for extremely low-temperature operation within the millikelvin range. This study aims to develop quantum information carriers that can operate at higher temperatures and to explore their physics. Specifically, the study seeks to explore the application of new single-spin operations using molecular orbitals in a multiple bonded artificial atomic system and to demonstrate significantly faster and more precise operations that are immune to noise. This is expected to contribute to the study of quantum operations at higher temperatures. The results of this report show a 40-fold increase in speed compared to conventional non-multiplexing methods and the ability to extend holding time by 20 times even under those conditions using existing noise-cancellation techniques. Through this research, we aim to reduce the barriers to large-scale quantum computing and contribute to the realization of more advanced quantum technology.

要旨

近年、量子コンピューターの研究開発は急速に進展していますが、大規模量子計算には未だに課題が存在しています。その中でも、ミリケルビンの範囲での極低温動作が必要である点が大きな壁となっています。本研究では、高温動作の可能性がある量子情報担体の開発と、その物理の研究を目指しています。具体的には、多重結合人工原子系の分子軌道を活用した新たな単一スピン操作の応用を探求し、雑音に対して無感化する性質を持つ、大幅に高速高精度な操作の実証を行うことを目指しています。これにより、より高温環境での量子操作の研究につながることが期待されます。本報告書の結果の項では、従来の多重化していない方式と比べての40倍の高速化を実現し、その条件でも既存の雑音打ち消し技術を適用して保持時間を20倍延ばせることを実証した成果を紹介します。本研究によって、大規模量子計算への障壁を緩和し、より高度な量子技術の実現に寄与することを目指しています。

1. まえがき

本研究は、集積化可能な量子情報担体の開発に

向けた研究であり、特に半導体スピン量子ビットの分野に属する研究の中で、近年注目されつつある分子性量子ドット中の電子スピンに関して、高速操作とメモリ動作を目指した研究となっています。

量子コンピューターは、古典コンピューターよりも圧倒的に高速な演算が可能であるとされていますが、その実現には電子スピンなどの量子情報担体の大量集積化が必要です。特に、ミリケルビンという非常に低温の環境に置かなければ、熱雑音のせいで量子情報の信頼性が簡単に失われてしまうという点に大きな困難があり、量子ビットの動作原理が分かっているにもかかわらず、その実現には技術的に難解な課題が数多く残されているとされています。

その中でも本研究では、量子ビット操作の根幹である電子スピン共鳴現象に着目し、極低温動作を部分的に解消する手法を提案し実証しています。スピン共鳴は量子ビット情報を操作し、指数関数的情報処理量の増大に寄与する量子的重ね合わせ状態を実現する高周波技術です。電子スピン共鳴を起こすためには、静磁場と振動磁場により電子スピンを操作する必要がありますが、現在の技術では十数ギガヘルツの高周波を用いており、これを高パワーで極

※ 大阪大学 産業科学研究所 助教

低温環境への導入することが困難の一つとなっています。

提案しているスピン共鳴の手法では、電場による電気双極子スピン共鳴という長年知られてきた技術に、分子性量子ドットを組み合わせた応用であり、高速操作や、高温動作に適する雑音耐性について議論しています。付与されたこれらの利点により、量子情報担体の高温動作やメモリとしての用途への発展を期待しています。

上記提案の肝となっている分子性の閉じ込め効果については、電荷の性質としては過去にも研究があるものの、そのスピンにまで言及した研究はほとんどありませんでした。本研究では新たな手法として、分子的な要素の中でも各原子の電子親和力を独立に変化させることに注力し、分子軌道全体の中で電荷が行き来するような特異的な条件を見出しました。これにより上記の電気的なスピン共鳴技術を適用する道筋が見えて、スピンの性質の検出と応用の実証へとつなげています。

分子性量子ドットの微細構造や物性についての研究をさらに進めることで、高温動作する集積化可能な量子情報担体の実現に貢献するのみならず、今後これらの研究の知見を活かし低消費電力や雑音耐性に関する物質の理解につなげ、より高性能な量子デバイスの開発から社会に貢献できることを期待します。

2. 背景原理

2.1 電子スピン共鳴

電子スピン共鳴 (ESR: Electron spin resonance) とは、電子スピンと呼ばれる物理量の共鳴現象のことです。これは、静磁場に対して垂直な方向に振動する磁場との相互作用により生じます。半導体量子ドットでは、微小な電気回路を用いてこの振動する磁場を生成することができます。

ESRは、半導体量子ドットにおいて重要な現象の一つであり、量子ビットの実現に不可欠です。例えば、電子スピンを量子ビットとして利用することが可能であり、ESRを用いて電子スピンの重ね合わせ状態を作り、量子ビットの情報を制御することができます (図1)。

この制御には、利用する磁場が重要な役割を果たします。電子スピンの磁石のようにある軸に沿って安定する静磁場に加えて、この静磁場に起因する電子スピンの共鳴周波数に合わせて一定の振動をする磁場を印加することで、特定の電子スピンを共鳴状態に誘導します。この共鳴現象を時間で正確に区切ることで、ブロッホ球面上の任意の点、つまり任意の量子ビット状態へと制御することが可能です。

量子ビットへの活用には、高速な操作や長い信頼性など、いくつかの課題が存在します。しかし、最近の研究により、量子ドットにおける電子スピン共鳴の制御性能は大幅に向上しています。これにより、より高性能で信頼性の高い量子ビットが実現される可能性があります。

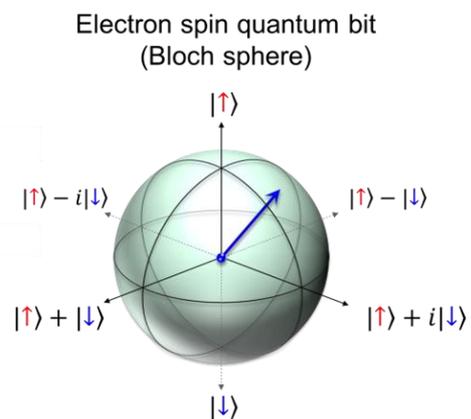


図1 電子スピン量子ビット情報 (状態) は、球面上の点で表現される (ブロッホ球)。

2.2 分子性量子ドット

量子ドットとは、半導体材料中に存在する微小な三次元領域であり、閉じ込め効果による量子力学的な現象が現れる領域のことを指します。半導体材料中にあるドットの大きさは、数ナノメートルにまで小さくなる場合があります。量子ドットは、量子コンピューターや量子暗号、高速通信などの分野で利用されています。

量子ドットの作り方の例としては、半導体の内部にある二次元的な「量子井戸」と呼ばれる構造から始めます (図2)。これは、複数の層で構成されたヘテロ構造を有する半導体基板で、それぞれの層界面がバリアとなって面直方向の閉じ込めが存在します。この構造により、電子が面内方向に動きが制限され、さらには、表面の微細電極に電圧を印加することで

面内方向にも閉じ込め効果を発揮し、ゼロ次元的な閉じ込めを作り、結果的に、離散的な量子ドット準位が現れます。

分子性量子ドットでは、単一量子ドットを隣同士に並べることで、分子的な準位を量子ドット列内に作りだし、その中において電子がどのように分布するか注目することで、電荷やスピン輸送が分子的な軌道によって支配され、半導体中の従来の量子ドットとは異なる特性が現れます。分子性量子ドットは、例えば光学応答や光電変換など、様々な分野で応用が期待されています。

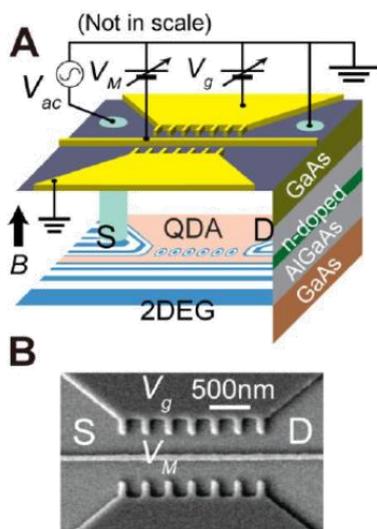


図2 分子性量子ドットの一例。(A) 表面電極と、内部に閉じ込められた電子の模式図。(B) 上から見た電子顕微鏡写真。

2.3 電場駆動型スピン共鳴

電場駆動型スピン共鳴 (EDSR: Electric-dipole spin resonance) は、外部の電場をかけることで、量子ドット中の電子スピンを制御する、ESRの応用形です。この手法は、従来のESRに比べて、高速で効率的なスピン制御を可能にするため、注目を集めています。しかも、量子ドットを形成する閉じ込め用の電極をそのまま利用できるという点で、集積性に優れているという利点があります。

EDSRの原理として、まず外部からの交流電場が量子ドットに印加されると、その電場にに応じた周期的な電位差が量子ドット内部に生じます。この電位差によって、電荷を持った電子が揺らされ、電荷の移動により物理的に有効磁場が生じることで、ス

ピン共鳴が起こります。この現象は、半導体材料によっては微小な電場でも起こりやすく、高速なスピン操作が可能になります。ただし、材料に起因する電場から有効磁場への変換は同時に、量子ビットの状態を乱す要因にもなるため、効率化と品質低下の最適なバランスがとり辛くなっており、応用への課題となっています。

2.4 本研究の目的

本研究では、分子性量子ドットの中でEDSR効果を用いた、高速で安定した電子スピン量子ビットを実現するための手法として「シャトルEDSR」を提案し、その有効性を検証することを目的としています(図3)。シャトルEDSRは、分子性量子ドットの内部を渡って電子をシャトル⁽¹⁾させながらEDSRを引き起こす手法であり、ドット間にまで働く相互作用⁽³⁾を効率的に利用することで、従来のEDSRよりも高いスピン操作速度や、意図的に特定の位置や方位への分子性軌道に波動関数を広げることによって雑音耐性を獲得できる可能性があります。このシャトルEDSRを実現する実験的手法について検討を行い、実験結果から絞り込まれる理論モデルの構築を試み、量子ビットへの応用に向けた基礎的な知見を得ることを目指しました。

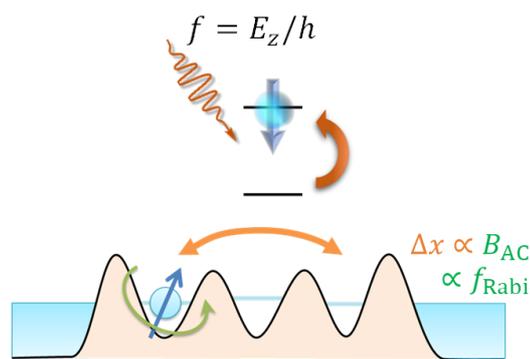


図3 電子スピン共鳴と、分子性量子ドットのシャトルを組み合わせて、EDSR効果を桁違いに増強

3. 実験環境

3.1 希釈冷凍機

本研究では、希釈冷凍機を使用した量子ドットの測定を行っています。この装置を使用して十ミリケルビン程度の環境で試料を測定することにより、室

温では見られない量子効果が観測できるようになります。

ポイントとしては、着目している離散準位がある場合、それを判別できるように熱雑音を抑えるか、離散準位の間隔を広げることです。本研究の場合、第一に着目するのは電子スピンの二準位系ですので、外部から静磁場を印加してスピンの順位を分離します(図3上)。この分離した二準位間のエネルギー(E_z)に相当する周波数(f)で振動磁場、ないし振動有効磁場を印加することで共鳴現象を引き起こします。

実際に、共同研究者が所有する希釈冷凍機を使用して、サンプルを8ミリケルビン環境下に冷却し、1.6 GHz付近の電気的な高周波を導入して測定しています(図4)。その際、サンプルの外側には、内径6センチ、外径30センチ程度の超伝導磁石が設置され、同時に冷却されています。超伝導磁石を利用することで発熱なく静磁場を印加することができ、量子ドット内部の電子スピン状態を観測することができます。



図4 希釈冷凍機が設置されている部屋の写真。右側に冷凍機内部、左側に測定系の電子機器ラック。

3.2 電圧掃引測定環境

実験では、量子ドットの電子スピンを制御するために微細電極へと電場を印加します。このため、微小で低雑音の電圧変化を利用できる洗練された電子機器が必要であり、本助成の多くをこの室温電子機器の購入に充てさせていただきました。これ無くして量子ドットの実験は不可能でした、大いに感謝申し上げます。

本実験では、電圧掃引と電圧反射測定を組み合わせ

せた量子ドットの測定を行っています(図5)。まず、各電極に独立した精密電圧を印加するために、高精度な電圧源を使用します。これらの電圧源は、高い応答性を持ち、同時にノイズを発生させずに一定の電圧を維持できる機器を選定しました。このような電圧源を使用することで、各電極から量子ドットの状態(各ドットの化学ポテンシャルエネルギーや、トンネル結合エネルギー)を制御することができます。結果的に量子ドットの電子数を一個単位でコントロールし、量子ビットとしての単一電子スピンを扱うことができます。

EDSRの共鳴実験で高周波を印加する場合、一般にはこれらの電極から一本を選び、事前に高周波と定電圧を結合させる電気回路をプリント基板上に作成した上で冷却します。そうすることで、一定の量子ドットの状態を保ったままスピン共鳴実験が可能になります。高周波の印加には、室温で高周波源を用意し、1.8 GHz対応の同軸ケーブルを介して冷凍機内部へと挿入します。このとき、熱雑音がサンプルに影響を与えないよう、減衰器を何段かに分けて冷凍機内で徐々に減衰させるところにも工夫が必要になります。

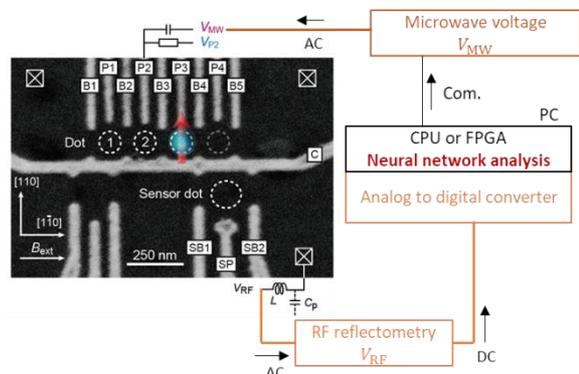


図5 量子ドットの測定系を表した模式図。

このように制御した電子スピンの観測にはRF反射測定系を使います。RF反射測定系とは、量子ドットの電荷状態を非破壊的に読み取るための測定方法の一つです。具体的には、センサーの役割をする独立した量子ドットを用意し(図5試料写真の下半分の構造)、100 MHz相当のRFを印加します。プリント基板にあらかじめ、この周波数が共振するLCR共振回路を設計しておくことで、センサー量子ドットの伝導率をRの変化として、RF反射強度

に反映させることができます (図6). この測定系は非常に高感度であり, 量子ドットの電子数をマイクロ秒以下の時間で確実に読み取ることができます.

ここまでは電子数の情報を観測することについてでしたが, その時間変化からスピン情報を推定して量子ビットの状態を読み取ることが可能です. 本研究の成果の一部として, 雑音の多い環境からスピン情報を得る, 機械学習を用いた手法があります^[1]. 詳細は省きますが, これも量子ビットを高温環境下で動作させる重要なステップの一つとして位置付けています. 本研究の趣旨とする物理方面からの開発に加えて, 情報学的観点から性能を向上させることでも大規模化への距離を縮める効果が期待されます.

同様の観点で, スピン情報の時間発展にさらに解析を加えることで, 共鳴条件の揺らぎを検出することも可能になります. これを十分早く高周波源の信号へとフィードバックすることで, よりスピン制御の整合性がとれた, いわゆる「コヒーレンス」を保った量子ビット制御が可能になります (図5のループ的な信号路). これも本研究期間中に得られた重要な成果であり, 材料の選定に依らず, 磁気雑音や電気雑音がある中でも量子ビット実験を可能にする周期的な手法となります^[4].

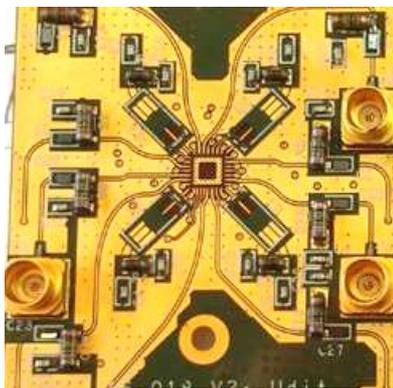


図6 試料を載せるプリント基板.
周辺に高周波回路が配置されている.

4. 実験結果

4.1 スピン共鳴

ここでは基本的なスピン共鳴の実験結果について説明します. 以降の実験ではまず, 共鳴周波数を同定することが最初の調整であり, その周波数に合わせてから共鳴の強度等を議論します. スピン共鳴実

験ではスピンを初期化してから, つまり, 基底状態である磁場に沿ったスピン状態を量子ドットの中に引き入れてから, マイクロ波を印加してスピンに作用させます.

図7は, 分子性量子ドットを構成する前の, 各量子ドットに単一スピンを初期化した場合に得られた共鳴周波数です. 各共鳴周波数は, 外部磁場に対してほぼ線形に推移し (実際は g 因子の非線形性から3次関数にフィッティングされる), それぞれのドットで独立した共鳴周波数を示していることが分かります. この事実は詳細に調べており, わずかに異なる閉じ込め効果の結果であることが分かっています⁽²⁾.

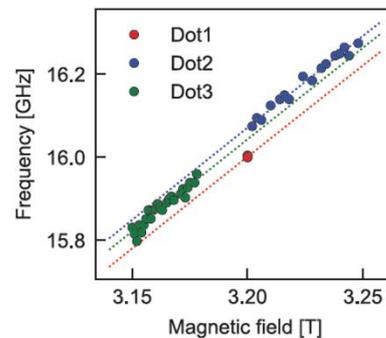


図7 共鳴周波数の磁場依存性.

独立した3つの量子ドットについて共鳴が確認できる.

4.2 分子性量子ドットのスピン共鳴

ここからが新しい事実を含んだ実験となり, 分子性量子ドットの性質を示す結果を見ていくことになります. 目指している状態は, 図8の模式図にあるような2重量子ドット (2つの量子ドットがトンネル結合した状態) の反交差です. このエネルギー図は, 各ドットの電子親和力の差に対してプロットした計算結果になっており, 高周波で電子を揺らした場合の電子の動きをシミュレートしています. 分子性量子ドットとして特徴的なこの反交差を狙って, 共鳴実験を行います.

そのスピン共鳴実験の結果が図9になります. 始めに見て取るのは, 共鳴周波数がエネルギー離調 (各ドットの化学ポテンシャルの差) に対して低い方向にずれている領域が存在しているということです. 理論的には, この領域で強くスピン共鳴の強度が大きくなることが予測されています. 共鳴周波数のず

れたポイントを狙ってエネルギー離調を調整したうえで、共鳴周波数を同定すると、次のスピン制御実験に移ります。

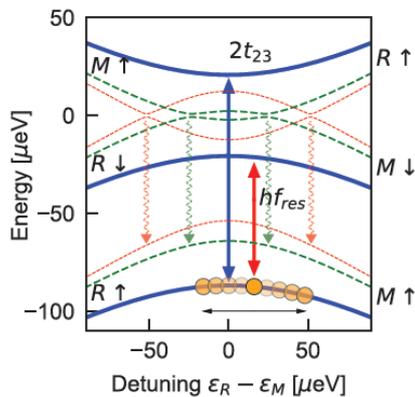


図8 各ドットの化学ポテンシャルが反交差している付近を計算した、2重量子ドットのエネルギー図。

図9右がその結果で、横軸はナノ秒の単位となっており、十メガヘルツ以上の回転周波数でスピンの回されている結果を表しています。つまり、この共鳴条件では、従来数メガヘルツでしか回転しなかったスピンを、数倍速く回していることになり、量子ビットとしての操作速度が向上されたということが分かります。

ここで用いた時間分解測定の詳細は省きますが、高周波を時間的に区切る技術も、量子ビットを精確に操作するためには重要であり、この面を改善する新たなパルス変調の開発も期間中に行い、最終的なエラー率をさらに半減する成果が得られています^[3]。

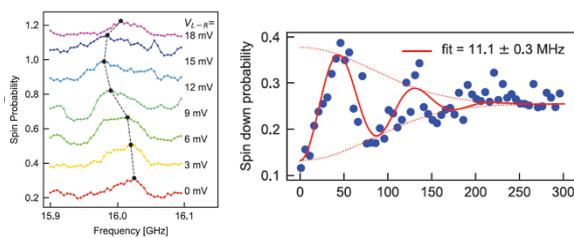


図9 共鳴周波数が電圧でずれていく様子と、そこでの高速化されたスピン回転操作。

4.3 シャトルEDSRの性質

我々は、この分子性量子ドットを用いたスピン共鳴の事を、シャトルEDSRと呼んでおり、その物理について直感的な理解を進めるために次の近似を行い、その解析解が実験と整合するかを確かめました。

2重量子ドットの状態は、ドット間のトンネル結合の強度を表す t と、エネルギー離調 ϵ で特徴づけられます。前者は、どれだけ強くドット同士が結びついていて、分子的な結合が強いかを表す正の量であり、後者は、ドット間の化学ポテンシャルの差を示しており、どれだけ偏って片方のドットに強く束縛されているかを表す符号付きの量となっています。これらの定常的な値を操作することで、2重量子ドットの中でどのように単一電荷の波動関数を広げるかを調整し、高周波との相互作用を調整することができます。

先ほどと同様のスピン回転速度の測定実験を、 ϵ の軸に沿ってプロットしたのが図10に示してあり、近似的に予測される依存性と共に示しています。実験結果は予測値と非常によく合っており、2重量子ドットのシャトルEDSRが良く機能していることが分かります。最もスピン回転の効率が良いのは離調ゼロ付近であり、トンネル結合の逆数の関係にあることが示してあります。分子性を良く表すトンネル結合が強くなるほど、回転周波数が落ちてしまうのは、一見すると期待に反するのですが、これは既に結合して高速化している点から離れてしまう際、つまり結合強度を上げすぎると速度が落ちるということを言っています。エネルギー離調に対して回転周波数が落ちていってしまうのは、電子が片方のドットに偏って束縛されてしまうことから、単一ドットの性質に近づいてしまっていることから理解されます。

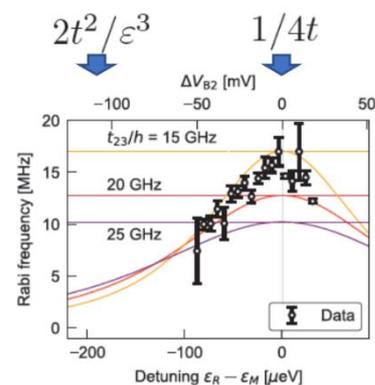


図10 二重量子ドットを使った場合の、エネルギー離調依存性。分子性量子ドットに特徴的な、スピン回転速度のピークが現れた。

4.4 3重量子ドットのシャトルEDSR

解析解から簡単に外れる様子が、もう一つ量子ド

ットを結合させた3重量子ドットで観測されました(図11)。自然界の分子を例に当てはめてみれば、酸素分子のような2原子分子から、もう一つ加えた二酸化炭素のように、分子全体で電子が安定化する性質がこの3重量子ドットでも模倣されています

(ただし単一電子に関して)。極低温の量子ドットで実験を行うメリットとして、各原子様の電子を自在に調整できることと、電子やスピン波動関数の重ね合わせ状態を議論し、より深い物理を見出せることです。本結果から読み取れることは、単純にスピン回転速度がもう桁速くなること(ピークIIIの最大200MHz)のみならず、物理的により安定した状態が観測されている可能性も示しており、後の考察で議論します。

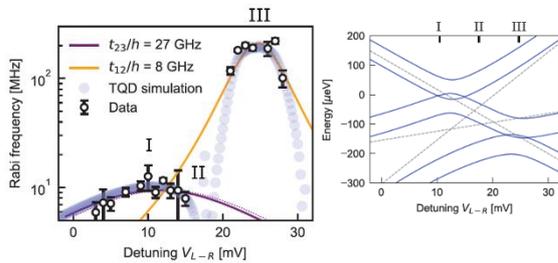


図11 三重量子ドットの様子の依存性。計算した右のエネルギー図に対応した、新たなピークやディップが現れた。

5. 考察

5.1 3重量子ドットの状態図

3重量子ドットの結果を考察するために、まずは量子ドット内の電子の振る舞いを記述するハミルトニアンを作成しました。このハミルトニアンを用いて、時間分解シミュレーションを行い、スピン共鳴実験をシミュレーションして回転速度を計算します(図10の丸点)。この結果を実験結果と比較することで3重量子ドット内のスピンの振る舞いについてより詳細な理解を得ることができました。

図11右の図はハミルトニアンから計算される定常状態を示すエネルギー図であり、分子性を示す反交差がいくつもあります。これらの組み合わせ次第で、操作速度を増強するピークIやIIIの振る舞いだけでなく、ピークIIIの際に外乱からの影響も同時に軽減できる結果、逆に電子の自己干渉によってスピン回転が打ち消されるディップIIのような特徴的な現象も説明することができました。

5.2 高速操作に加えた雑音耐性

以上の実験と計算の比較結果より、分子性量子ドット内のスピン軌道相互作用の強さや、外乱に対する安定性についてより詳細に理解することができ、追加の実験を行うことで雑音耐性を実証することができています。そこでは量子ビットの動作性能としてのスピン回転精度について議論しており、同じ半導体材料での単一量子ドットの先行研究と比較すれば、本文中の全ての改善を組み合わせることで3桁近く改善されている結果が得られています(図12にその一例、図9と比較しても歴然とした違いが見られます)。

現在解析中であるが、数字だけの比較で言えば熱雑音が桁で上がったとしても、高精度な量子ビットの操作が保たれることを示唆しています。この改善は、低温とはいえ、希釈冷凍機が不要な温度帯(1ケルビン前後)での動作を意味しており、本研究の目的である高温動作に足る結果であることを示しています。これは量子ビットの大量集積化には欠かせない改善です。今後も分子性量子ドットを含めた、電子スピンの振る舞いを詳細に解析していくことが重要であると考えられます。

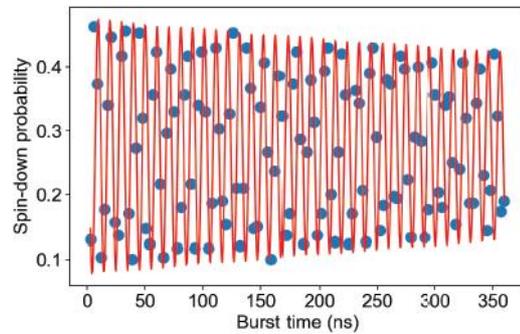


図12 本文で述べたスピン操作の工夫を組み合わせ、雑音耐性及び長時間保持を実現した高速スピン回転の例。

6. まとめ

本報告書では、高速で安定した量子ビット操作を目指し、分子性量子ドットの中で新たな電子スピンの操作手法、シャトルEDSRを提案し実証したことを詳しく報告してきました。この手法は分子性量子ドット中を電子がシャトルされるがごとく行き来させることで、特定の方向に電荷振動が増強させ、スピン共鳴を起こすEDSRを増強しています。そ

こから実験と考察を重ね、特徴的な分子性軌道の性質を深く理解することで、結果的にスピン操作の高速性と雑音耐性が同時に満たされる条件を見出し、高温動作の可能性がある電子スピン操作を観測するに至りました。

この研究開発活動を通じて、スピン量子ビットの新たな技術が導入され、材料系を拡張し温度帯を上げる量子ビットの可能性を示し、スピンドバイスの多くの分野に量子性を議論する機会を与えることにもつながったと考えています。このような成果は、本助成を得ることで実現できたものであり、心より感謝申し上げます。今後もより一層の技術革新や教育に取り組み、分野の成長につなげていきたいと考えています。最後に、本研究にご協力いただいた関係者の皆様に深く感謝いたします。

S. Tarucha, Signatures of Hyperfine, Spin-Orbit, and Decoherence Effects in a Pauli Spin Blockade, *Physical Review Letters*, Vol. 117, No. 206802 (2016/11)

発表論文

- [1] Y. Matsumoto, T. Fujita, A. Ludwig, A. D. Wieck, K. Komatani and A. Oiwa, Noise-robust classification of single-shot electron spin readouts using a deep neural network, *npj Quantum Information*, Vol. 7, No. 136 (2021/9) p. 1-7

口頭発表, 受賞等

- [2] 湯田秀明, 藤田高史, 大岩顕, 量子ドット列を介したスピン量子ビットの断熱量子状態転送, 第 70 回応用物理学会春季学術講演会, シンポジウム (2023/3)
- [3] 松本雄太, 藤田高史, X. Liu, A. Ludwig, A. D. Wieck, 小池啓介, 三好健文, 大岩顕, 多重量子ドットにおける高速高忠実度スピン操作, 日本物理学会 2023 年春季大会 (2023/3)
- [4] Y. Matsumoto, T. Fujita, A. Ludwig, A. D. Wieck, K. Koike, T. Miyoshi, and A. Oiwa, Fast single-spin qubit operation and its coherence time enhanced by feedback control, *International Conference on the Physics of Semiconductors 30th* (2022/6)

参考文献

- (1) T. Fujita, T. A. Baart, C. Reichl, W. Wegscheider and L. M. K. Vandersypen, Coherent shuttle of electron-spin states, *npj Quantum Information*, Vol. 3, No. 22 (2017/6)
- (2) V. P. Michal, T. Fujita, T. A. Baart, J. Danon, C. Reichl, W. Wegscheider, L. M. K. Vandersypen and Y. V. Nazarov, Nonlinear and dot-dependent Zeeman splitting in GaAs/AlGaAs quantum dot arrays, *Physical Review B*, Vol. 97, No. 035301 (2018/1).
- (3) T. Fujita, P. Stano, G. Allison, K. Morimoto, Y. Sato, M. Larsson, J. -H. Park, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Oiwa and