

平成 29 年度（第 63 回）仁科記念賞 授賞理由

大規模コヒーレントイジングマシンの実現 Realization of large-scale coherent Ising machines

武居 弘樹 氏 Hiroki Takesue

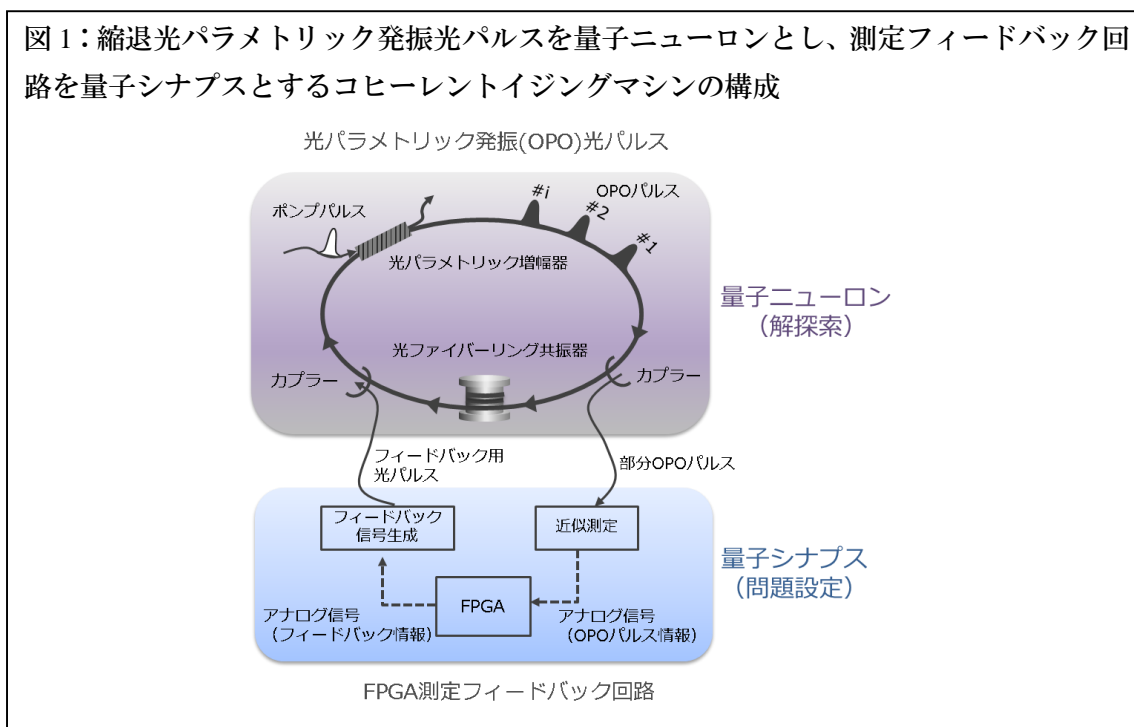
日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所 上席特別研究員

量子コンピュータの研究は、1985 年に発表されたデイビッド・ドイチェの量子並列探索の概念に遡る。それから 30 年におよぶ研究開発にもかかわらず、量子コンピュータ実現の目は未だにたっていない。苦難の歴史には明確な理由がある。量子コンピュータの基本動作は、外部の熱浴から完全に遮断された閉鎖系でのユニタリ変換であるが、我々が実現できる実験装置は常に熱浴への散逸と熱浴からの揺動を受ける開放系である。量子情報を格納する量子ビットを熱浴から完全に遮断し量子計算に耐える十分なコヒーレンス時間を確保するために、量子誤り訂正という膨大なリソースを必要とする機能を実装しなければならない。2012 年ノーベル物理学賞を受賞したサージ・アロッシュ教授（College de France）は、この事実を“量子コンピュータは夢ではなく悪夢である”という表現で表わした[1]。

数学的概念（線形重ね合わせ状態による量子並列探索）だけを残し、その実現手段を閉鎖系のユニタリ変換という少し窮屈な舞台から開放系の散逸過程や自己秩序形成という大きな舞台へ拡張する試みが、量子光学の理論家の間で模索されるようになったのは 2010 年ごろからである[2]。これを実現する実験手法の探索がそれに続き、NTT、スタンフォード大学、パリ大学、Weizmann Institute、MIT などの量子光学実験グループが研究を開始した。武居氏の率いる NTT グループは、まず 10 km という超長距離ファイバでリング共振器を構成し、シリカファイバ自体が持つ 3 次の非線形光学効果（光カー効果）を用いて 4 光波混合型縮退光パラメトリック発振器を実現した[3]。この系では、一つのリング共振器中に、 10^6 個以上の独立した縮退パラメトリック発振光パルスと同時に生成でき、その一つ一つをイジングスピンとして使える。現在最も大規模な量子ビットを搭載する量子アニーラとしては、D-WAVE 社が開発した D-WAVE 2000Q があるが、全量子ビット 2000 のうち、約 2% に当たる 40 個の量子ビットに欠陥があることがわかっている。一方、武居氏らが実現した 10^6 個の縮退パラメトリック発振光パルスは全て均一な特性を示し、無欠陥であることが実証されている[3]。武居氏らは次により制御し易い 2 次の非線形光学効果を用いて縮退パラメトリック発振器を構成し、1 万個の縮退パラメトリック発振光パルス間に光遅延線を用いて最近接イジング結合（強磁性型と反強磁性型）を導入し、1 次元リングスピン鎖を実現した[4]。この実験系が実現するボルツマンサンプリング特性から、スピン系の実効温度がイジング結合係数と真空場揺らぎの比で決められることを明らかにした。

この実験を通してコヒーレントイジングマシンの基本動作原理も実証された。発振しきい値以下のポンプレートでは真空スクイーズ状態という最小不確定状態の一つにあった縮退パラメトリック発振光パルスは解の量子並列探索を行っているが、ポンプレートを上げて発振しきい値に達すると一斉に協同的対称性の破れを起こし、0相（スピニアップに相当）か π 相（スピンドアウンに相当）のいずれかの発振状態を選択することが確認された。

武居氏は、次にこれらの多数の縮退パラメトリック発振光パルスを相互に接続する技術の開拓に取りかかった。 $N = 10^6$ の光パルスを全結合するためには同じ数の光遅延線を実装し、これを時分割多重モードで動作させ、合計 $N^2 \approx 10^{12}$ もの光結合を実装しなければならないが、これは技術的に不可能である。実際コヒーレントイジングマシンを光遅延線で直接結合するシステムは、スタンフォード大学グループで $N = 4$ が、理研グループで $N = 16$ が実現されたが、それ以上の規模に拡張するのは無理であった。そこで、武居氏は光パルスの位相と振幅を光ホモダイン検波で次々に読み出し、多数の光パルスの情報を基に、ターゲット光パルスに結合させるべきフィードバック光パルスを計算・生成し、これを光ファイバリング共振器に再注入する量子測定フィードバック方式なるものを考案した。この技術は武居氏が長年取り組んできた量子暗号通信システムの実装技術[5]を改良してすぐに実現することができた。こうして、図1に示すような縮退パラメトリック発振光パルスを量子ニューロンとし、測定フィードバック回路を量子シナプスとする量子ニューラルネットワークのひとつ（コヒーレントイジングマシン）が実現された[6]。



この実験には、NTTとスタンフォード大学が同時に成功し、2つのグループからの論文は2016年10月のScience誌に同時に掲載された。しかし、スタンフォード大学のシステムが、 $N = 100$ の光パルスを測定フィードバック回路で全結合 ($N^2 \sim 10^4$ シナプス結合) している小規模なもの

であったのに対し、武居氏らが開発した NTT システムでは、 $N = 2000$ の光パルスが測定フィードバック回路で全結合 ($N^2 \sim 4 \times 10^6$ シナプス結合) した大規模なものであった[6]。そのため、計算量理論で NP 困難クラスと呼ばれている現代コンピュータにとって最も難しい問題の一つである MAX-CUT 問題で現代アルゴリズムに対してベンチマークすることが出来た。結果は、図 2 に示すようにスーパーコンピュータに実装した現代アルゴリズムの一つ (ホップフィールド・タンク型ニューラルネットワークモデル) に比べて約 100 倍の高速性が実証された。

図 2：量子ニューラルネットワーク (コヒーレントイジングマシン) と古典ニューラルネットワーク (スパコンにアルゴリズムとして実装) による $N = 2000$ 完全グラフの MAX-CUT 問題の計算性能の比較。約 100 倍の高速性が実証された

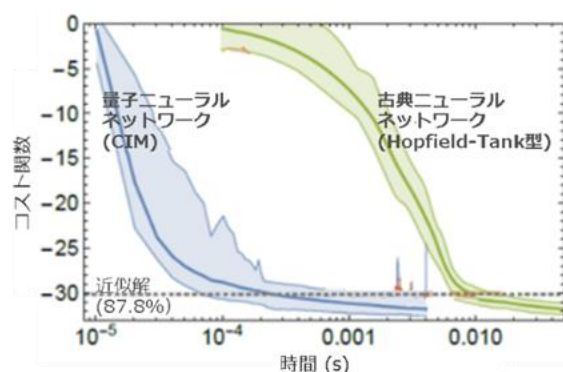


表 1 に現在世界の主要研究機関で開発が進められている 3 つの量子コンピュータ (ゲート型、アニール型、ネットワーク型) の比較をまとめた。武居氏らの開発したコヒーレントイジングマシンは単に最大規模の量子コンピュータであるばかりでなく、室温で動作する唯一のマシンである。武居氏らの実験は、量子コンピュータ開発の潮流を閉鎖系から非平衡開放系へと根本から変

表 1：3 つの量子コンピュータ (ゲート型、アニール型、ネットワーク型) の比較

	ゲート型	アニール型	ネットワーク型
基本原理	量子干渉	量子トンネリング	量子相転移
開発機関	IBM/Google Intel/Microsoft	D-WAVE/MIT	NTT/Stanford
ビット数	9~15 ビット	2,000 ビット	2,000ビット
有効ビットの割合	-	98%	100%
結線数	-	12,000 (スパース結合)	4,000,000 (全結合)
解ける問題サイズ	-	$N \lesssim 60 \sim 70$	$N \lesssim 2,000$
動作温度	極低温 (10mK)	極低温 (10mK)	室温 (300K)
条件	超高真空	超高真空	常圧
物理系	超伝導量子回路	超伝導量子回路	光パラメトリック発振器 ネットワーク
量子性 $k_B T / \hbar \omega$	0.06	0.06	0.02
消費電力	-	25 kW	1 kW

える画期的なものである。

参考文献：

- [1] S. Haroche and J-M. Raimond, “Quantum computing: Dream or nightmare,” *Physics Today* (1996).
- [2] 例えば、F. Verstraeta, M. M. Wolf, and J. I. Cirac, “Quantum computing, quantum state engineering and quantum phase transition,” *Nature Physics* 5, 633 (2009).
- [3] H. Takesue and T. Inagaki, “10 GHz clock time-multiplexed degenerate optical parametric oscillators for a photonic Ising spin network,” *Opt. Lett.* 41, 4273-4276 (2016).
- [4] T. Inagaki, K. Inaba, R. Hamerly, K. Inoue, Y. Yamamoto and H. Takesue, “Large-scale Ising spin network based on degenerate optical parametric oscillators,” *Nat. Photonics* 10, 415–419 (2016).
- [5] H. Takesue, T. Sasaki, K. Tamaki, and M. Koashi, “Experimental quantum key distribution without monitoring signal disturbance,” *Nature Photonics* 9, 827–831 (2015).
- [6] T. Inagaki, Y. Haribara, K. Igarashi, T. Sonobe, S. Tamate, T. Honjo, A. Marandi, P. L. McMahon, T. Umeki, K. Enbutsu, O. Tadanaga, H. Takenouchi, K. Aihara, K. Kawarabayashi, K. Inoue, S. Utsunomiya, and H. Takesue, “A coherent Ising machine for 2000-node optimization problems,” *Science* 354, 603-606 (2016).

熱活性化遅延蛍光現象を用いた高効率有機 EL の実現

High Efficiency Organic Electroluminescence via Thermally Activated Delayed Fluorescence

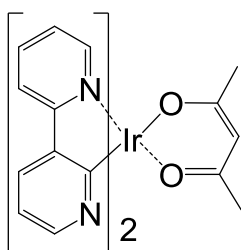
安達 千波矢 氏 Chihaya Adachi

国立大学法人九州大学最先端有機光エレクトロニクス研究センター長

自由電子が再結合することによって発光する III-V 族化合物半導体で形成されるエレクトロ・ルミネッセンス (EL) では、励起子を介在させることなく発光させることができるために、100% 近い内部量子効率を実現することができる。これに対し有機 EL 素子は、有機薄膜 (100 nm 程度) に 10 V 程度の電圧を印加し、薄膜に mA/cm² に達する電流を流し、生成する電子とホール電荷の再結合により励起子が形成され、その基底状態への放射遷移により発光する。発光過程に励起子が介在することにより、様々な輻射過程、非輻射過程が関与し、発光輝度・量子効率が低下する。励起状態には、スピン多重度が異なる一重項励起状態と三重項励起状態の 2 状態があり、25% の確率で生成される一重項励起子は蛍光 (Fluorescence) 過程で発光し、75% の確率で生成される三重項励起子は燐光 (Phosphorescence) 過程にかかわる。1987 年に開発された最初の有機 EL 積層型素子は、一重項励起子による蛍光発光で外部量子効率は 1% であり、90 年代半ばまでの蛍光素子の外部量子効率は 5% 程度であった。90 年代初期から高い量子効率が期待される三重項励起子

が介在する燐光素子の開発が進み、安達千波矢氏、S. R. Forrest らは、広いエネルギーギャップを持つホスト材料に、スピン軌道相互作用によって発光遷移を可能とするイリジウムを含む化合物（図1）を添加することによって、100%近くの内部量子効率を示し、外部量子効率が19%に達する燐光発光による有機EL素子を実現できることを示した [1]。

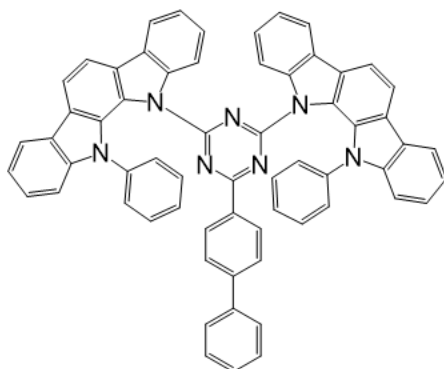
図1：高効率りん光発光化合物（論文1より）



さらに、安達氏らは一重項励起子と三重項励起子とともに発光に関与させることができればより高い量子効率を実現できると考え、一重項励起子と三重項励起子の間のエネルギー差 (ΔE_{ST}) が小さいときには熱活性化によって三重項励起子を一重項励起子に転換できることに着目し、 $\Delta E_{ST} = 0.11\text{eV}$ 放射減衰率が 10^7 s^{-1} となる励起子間変換を実現するとともに蛍光発光に効率的に寄与する化合物 PIC-TRZ（図2）によって、これが可能になることを示した[2]。これは熱活性化遅延蛍光（TADF）効果と呼ばれ、時間的な遅れは伴うが、三重項励起子を一重項励起子に変えることによって100%の内部量子効率を達成することを可能とするものである。この結果は、単に高い内部量子効率を得るというだけでなく、希土類元素を含む重元素を必要とすることなく、分子設計によって多様で自由度が高い芳香族化合物で実現できることを示した。

図2：高効率化遅延蛍光材料の基礎となった分子構造 PIC-TRZ（論文2より）

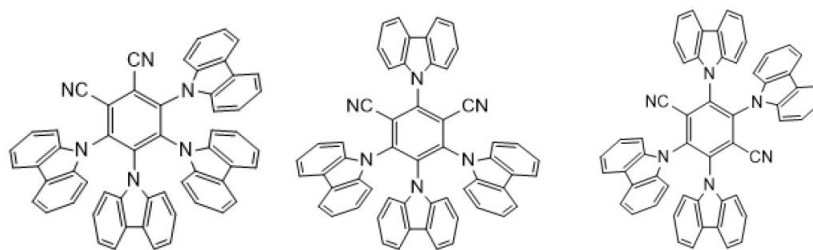
$\Delta E_{TS} = 0.11\text{ eV}$



2012年、電子供与（ドナー）性と電子受容（アクセプター）性置換基を含有する新規化合物の網羅的な設計・合成に取り組み、分子の組成と配位を操作するなどによって構造を様々に変えて、非放射過程を抑制し効果的に熱活性化遅延蛍光現象を示す分子を探索し、カルバゾールをドナーとし、ジシアノベンゼンをアクセプターとする図3に示すような一連の化合物を実現するに至った[3]。

これらは高いルミネッセンス効率を示すのみならず、発色に多様性をもたらし、両者の配位関

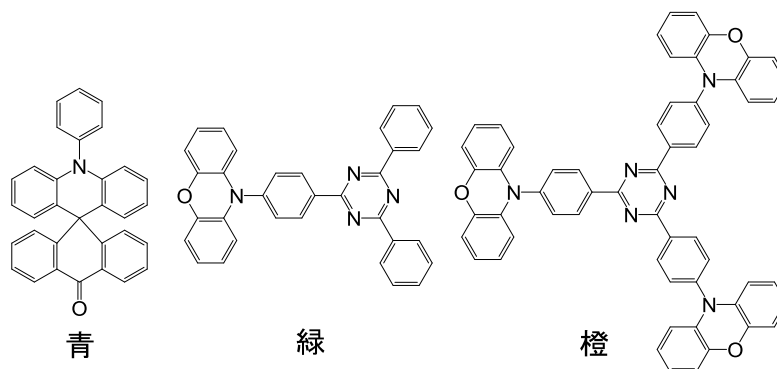
図3：高効率を実現した遅延蛍光材料の分子構造（論文3より）



係によって ΔE_{ST} を調整することを可能にする。密度汎関数法に基づく設計と解析によって、シアノ基は量子効率を高めること、またカルバゾール基は発色性に関わっていることを示すとともに、青色から燈色にわたるスペクトルを与える分子（図4）を合成し、NMR、赤外スペクトル、高分解能質量分析、元素分析などによって構造と特性の関係性を明らかにした。

図4：高効率な青色、緑色、橙色遅延発光を示す分子構造（論文4より）

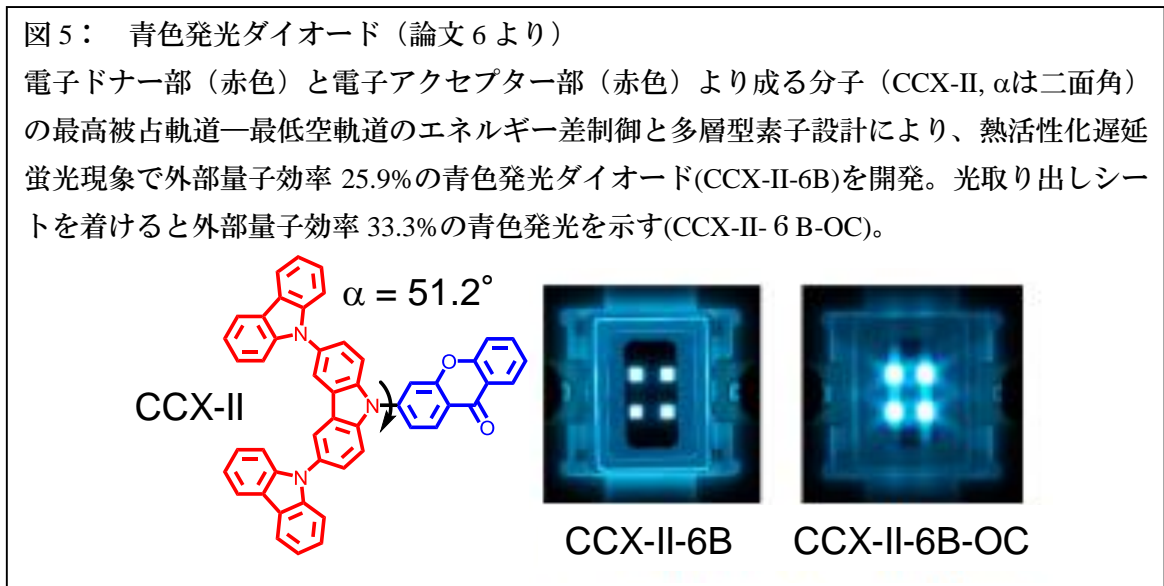
$$\Delta E_{TS} = 0.03-0.11 \text{ eV}$$



有機 EL の発光層はホストと発光ドーパントから形成されるが、図4に示すような熱活性化遅延蛍光化合物と蛍光物質を発光層に共存させ三重項励起子を一重項励起子に変換することによって、電気励起により生成された全ての励起子を最終的には蛍光ドーパントへ移動することが可能となり、100%の内部量子効率で蛍光分子からの発光を可能とし、外部量子効率 19.3%の有機 EL を得ることに成功した[4]。本手法によれば、発光材料として電気化学的に安定性が高い蛍光分子を用いることが可能になり、駆動耐久性を向上させることもできる。安達氏らはこのようにして実現される有機 EL を Hyperfluorescence（ハイパーフルオレッセンス）と名付けている。

有機分子を主体としその設計自由度を活用することを可能としたこの手法は、さらなる材料の開発を促し、光取り出しに有利な分子配向を取り入れることなどを目指して設計をすすめ、 ΔE_{ST} が 9.0-82.6 meV（室温は約 26 meV）の多彩な発光分子を開発し、外部量子効率 29.6%を有する有機 EL 素子が実現した。分子設計の高度化により、三重項励起子から一重項励起子への変換、ならびに、一重項励起子から光変換の迅速化を図ることによって高輝度化をすすめるとともに、長寿命化、発光の温度特性の改善、耐熱性にも優れた材料の開発を行っている[5]。最近では、従来の燐光材料では実用化できていない青色発光の高効率化（外部量子効率 25.9%）に成功し（図5）[6]、 ΔE_{ST} が室温より大きい分子においても、励起状態においてホールが分子内で自由に移動できる分子

構造を持つ場合（パラ置換体）、高い TADF 外部量子効率を得られることを提唱している[7]。



以上のように、設計の自由度を生かすことによって高度な機能の実現が期待される有機化合物における EL に関して、熱活性化遅延蛍光（TADF）現象による高効率化に着目し、適切な分子を探索し、機能性を向上させるための設計・合成を精力的に進めるとともに、これらをもとにした高効率有機 EL を実現し[文献 2,3]、それによって世界の趨勢を先導してきた業績は、仁科記念賞の授賞に値する。

参考文献：

- [1] C. Adachi, M. A. Baldo, M. E. Thompson and S. R. Forrest, “Nearly 100% internal phosphorescence efficiency in an organic light-emitting device”, *Journal of Applied Physics*, 90, 5048-5051(2001).
- [2] A. Endo, K. Sato, K. Yoshimura, T. Kai, A. Kawada, H. Miyazaki and C. Adachi, “Efficient up-conversion of triplet excitons into a singlet state and its application for organic light emitting diodes”, *Applied Physics Letters*, 98, 083302 (2011).
- [3] H. Uoyama, K. Goushi, K. Shizu, H. Nomura and C. Adachi, “Highly efficient organic light-emitting diodes from delayed fluorescence”, *Nature*, 492, 234-238(2012).
- [4] H. Nakanotani, T. Higuchi, T. Furukawa, K. Masui, K. Morimoto, M. Numata, H. Tanaka, Y. Sagara, T. Yasuda and C. Adachi, “High-efficiency organic light-emitting diodes with fluorescent emitters”, *Nature Commun.*, 5, 4016(2014).
- [5] H. Kaji, H. Suzuki, T. Fukushima, K. Shizu, K. Suzuki, S. Kubo, T. Komino, H. Oiwa, F. Suzuki, A. Wakamiya, Y. Murata and C. Adachi, “Purely organic electroluminescent material realizing 100% conversion from electricity to light, *Nature Commun.*, 6, 8476(2014).
- [6] T. Miwa, S. Kubo, K. Shizu, T. Komino, C. Adachi and H. Kaji, “Blue organic light-emitting diodes realizing external quantum efficiency over 25 % using thermally activated delayed fluorescence emitters”, *Scientific Reports*, 7, 284(2017).

[7] T. Hosokai, H. Matsuzaki, H. Nakanotani, K. Tokumaru, T. Tsutsui, A. Furube, K. Nasu, H. Nomura, M. Yahiro and C. Adachi, “Evidence and mechanism of efficient thermally activated delayed fluorescence promoted by delocalized excited states”, *Science Advances*, 3, e1603282(2017).

トポロジカル量子物性物理学の創始

Foundation of Topological Quantum Condensed Matter Physics

甲元 真人 氏 Mahito Kohmoto

元東京大学物性研究所

近年、量子物性物理学において、トポロジーの重要性が広く認識されるようになってきた。特に、2005年のトポロジカル絶縁体の理論的発見[1]以降、トポロジカル絶縁体・超伝導体・半金属などの研究に飛躍的な進展がみられている。このようなトポロジーに起因する現象はトポロジカル量子現象と呼ばれている。

トポロジカル量子現象の先駆的な実験は、1980年の K. von Klitzing らによる量子ホール効果における「ホール伝導度の量子化」(e^2/h の整数倍)の観測である[2]。この著しい現象は、強磁場中の2次元電子系(時間反転対称性なし)という特殊な条件下で実現されたものである。この発展形である上記のトポロジカル絶縁体では、磁場は必ずしも必要ではなく(時間反転対称性あり)、また2次元に限らず1次元や3次元でも実現することが明らかにされてきた。この場合、磁場に代わってスピン・軌道相互作用が重要な役割を果たしている。今や、トポロジカル量子現象に関する研究は、量子物性物理学の一大分野として大きく発展しつつある。

このようなトポロジカル量子現象に関する理論研究は、1982年に出版された Thouless-Kohmoto-Nightingale-den Nijs (TKNN)による先駆的な論文に始まる[3]。これは、上に述べた量子ホール状態での「ホール伝導度の量子化」を理論的に示したものであり、トポロジカル量子物性物理の幕開けを告げる美しい理論である。具体的には、線形応答理論を用いて周期ポテンシャル中にある自由電子系でホール伝導度を計算し、これが e^2/h の整数倍に量子化されることが示された。甲元氏は、この著しい成果を生み出した著者の一人として世界的に高く評価されている。

TKNNの論文で示された量子化の仕組みは、その後の研究で、トポロジーという数学の概念と密接に関係していることが明らかになった。1983年の Avron らの論文[4]では、TKNNの論文で求められたホール伝導度の量子化値がトポロジカル不変量で与えられることが指摘された。さらに、1985年の甲元氏の単著論文[5]では、整数量子ホール効果におけるトポロジーの物理的意義が明快に説明されている。この論文では、周期ポテンシャル中の自由電子系に対して、

- (1) 運動量空間に仮想的なゲージ場が定義できること、
- (2) ホール伝導度がこのゲージ場に伴う曲率の積分で与えられること、

(3) この積分がチャーン数と呼ばれる整数値をとるトポロジカル不変量になること、が示された。

甲元氏の定式化では、ホール伝導度は次の表式で与えられる：

$$\sigma_{xy} = \left(\frac{e^2}{h}\right) N_{\text{Ch}} \quad N_{\text{Ch}} = \frac{1}{2\pi} \int dk_x dk_y [\vec{\nabla} \times \vec{a}(\mathbf{k})]_z$$

ここで、運動量空間で定義された仮想的ゲージ場が $\vec{a}(\mathbf{k})$ である。仮想的ゲージ場が作り出す磁場 $\vec{\nabla} \times \vec{a}(\mathbf{k})$ の 2 次元ブリルアンゾーン内での積分によって、トポロジカル数であるチャーン数 N_{Ch} が与えられるという、美しくかつ物理的に明快な表式である。

運動量空間におけるゲージ場を用いた甲元氏の定式化は、物性物理学に広く浸透し、トポロジカル物質を理解する上で標準的な枠組みを与えることとなった。実際、近年急速に進展しているトポロジカル絶縁体・超伝導体・半金属などの研究に、甲元氏の理論が広く用いられている。

TKNN の著者の一人であり、トポロジカル量子現象を扱う理論的な枠組みを与えた甲元氏は、トポロジカル量子物性物理学の創始者の一人として、その基礎を築き物性物理学に新たな研究舞台を切り拓いた。

参考文献：

[1] “Quantum Spin Hall Effect in Graphene”,

C. L. Kane and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. 95, 226801 (2005).

[2] “New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance”,

K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, Phys. Rev. Lett. 45, 494 (1980).

[3] “Quantized Hall Conductance in a Two-Dimensional Periodic Potential”

D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs,

Phys. Rev. Lett. 49, 405 (1982).

[4] “Homotopy and Quantization in Condensed Matter Physics,”

J. E. Avron, R. Seiler, and B. Simon, Phys. Rev. Lett. 51, 51 (1983).

[5] “Topological Invariant and the Quantization of the Hall Conductance,”

M. Kohmoto, Ann. Phys. 160, 343 (1985).