

Festkörper-Spin-Quantencomputing

nach dem S-Bus-Konzept in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$

Von der Fakultät Mathematik und Physik der Universität Stuttgart
zur Erlangung der Würde eines
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigte Abhandlung.

Vorgelegt von

Jens Mende

aus Stuttgart

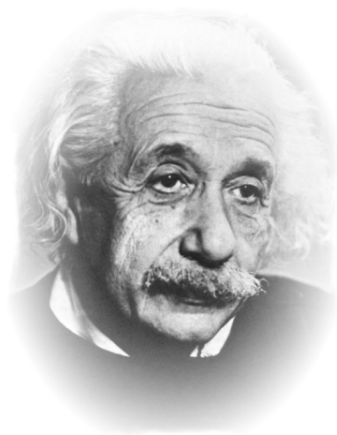
Hauptberichter: Prof. Dr. M. Mehring
Mitberichter: Prof. Dr. D. Schweitzer

Tag der Einreichung: 1. 10. 2004
Tag der mündlichen Prüfung: 11. 1. 2005



2. Physikalisches Institut
Universität Stuttgart

2005



*Das Schönste, was wir erleben können ist das Geheimnisvolle.
Es ist das Grundgefühl, das an der Wiege von wahrer Kunst
und Wissenschaft steht.
Wer es nicht kennt und sich nicht mehr wundern,
nicht mehr staunen kann,
der ist sozusagen tot und sein Auge erloschen.*

Albert Einstein

Einleitung

Die Quantenmechanik ist in ihrer tiefgreifenden Änderungen des physikalischen Weltbildes wohl wie kaum eine andere Theorie auf Widerstand und Unverständnis unter den Physikern gestoßen – selbst Albert Einstein glaubte Zeit Lebens an die Existenz einer deterministischen Quantenmechanik und nicht an die mit dem Messprozess verbundene Zufälligkeit – von ihm stammt das Zitat „Gott würfelt nicht.“. Mittlerweise ist die Quantenphysik eine der experimentell am besten bestätigten physikalischen Theorien. Welche immense Auswirkungen und Möglichkeiten in ihrer Manifestation und Weiterentwicklung die Quantenmechanik in sich birgt, konnten deren Begründer wie Max Planck, Erwin Schrödinger, Werner Heisenberg und andere wohl kaum voraussehen – ein Anspruch, dem sicherlich auch vom heutigen Standpunkt aus, noch nicht genüge getan ist.

Wie jede Theorie, wirft auch die Quantenmechanik die Frage auf, wie die Physiker sie beschreiben können. Dies veranlasste Richard P. Feynman [1] in den achtziger Jahren zu der Frage: „What kind of computer are we going to use to simulate physics? The proper problem is exact simulation of quantum physics – the computer will do exact the same as nature.“. Feynman wies damit auf die vielfältigen Möglichkeiten hin, quantenmechanische Systeme an Stelle konventioneller Computer einzusetzen – damals noch im Hinblick auf die Tatsache, dass mit klassischen Rechnern die Dynamik quantenmechanischer Systeme nur näherungsweise dargestellt werden kann [1]. Ein klassischer Computer ist schon deshalb nicht in der Lage ein Quantensystem zu simulieren, weil er keine quantenmechanischen Prinzipien wie das Superpositionsprinzip oder den Kollaps einer Wellenfunktion anwenden kann. Nur ein echter Quantencomputer würde dieser Aufgabe gerecht werden.

Die Nutzung quantenmechanischer Systeme im Sinne eines Computers ermöglicht gegenüber der klassischen Informationsverarbeitung bisher nicht realisierbare Ansätze, sei es in Bezug auf den massiven Quantenparallelismus, der Implementierung von Quantenalgorithmen in einem Quantencomputer, perfekte Zufalls-generatoren und Codiersysteme, bis hin zur Teleportation [2], [3]. Dabei ist die Effizienz der Quanteninformationsverarbeitung auch aus heutiger Sicht der Theorie noch nicht abzuschätzen.

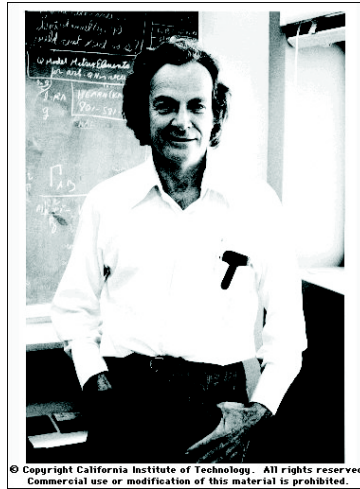


Abb. 1: Richard P. Feynman (1918 - 1988) wies 1981 als erster auf die Möglichkeit hin, Quantensysteme als Computer zu nutzen.

Der Mathematiker David Deutsch [4], [5], [6] stellte 1985 ein Rechenkonzept des *universellen Quantencomputers* nach dem Prinzip einer Turing Maschine auf. Seine Konzepte eines Quantencomputers waren ausschlaggebend für neue Ideen in der Quanteninformationsverarbeitung, Quantenkryptographie und Quantenteleportation.

Die Besonderheit der Quantenalgorithmen besteht in der Nutzbarkeit nichtklassischer Quantenzustände und Rechenoperationen im kontinuierlichen Zustandsraum der Qubits. Ein Quantencomputer verkörpert so gesehen einen Analogrechner in Amplitude und Phase der Wellenfunktionen seiner Qubits. Zielsetzung all dieser Bestrebungen ist es durch Einbindung quantenmechanischer Prinzipien in die Informationsverarbeitung „harte“ Probleme, die aufgrund ihrer mit der Komplexität exponentiell ansteigenden Rechenzeit als unlösbar gelten, in nur polynomial zunehmender Zeit zu lösen.

In einem Quantencomputer können einerseits aufgrund der Nutzung des quantenmechanischen Superpositionsprinzips viele Rechenoperationen parallel ablaufen. Prinzipiell können dadurch alle möglichen Eingaben gleichzeitig in einem einzigen Rechenschritt verarbeitet werden. Die Ergebnisse weisen jedoch im allgemeinen eine Wahrscheinlichkeitsverteilung auf, so dass eine mehrmalige Wiederholung der Quantenalgorithmen nötig ist, damit das richtige Ergebnis mit dominanter Wahrscheinlichkeit ausgegeben wird. Andererseits besteht neben der Eigenschaft dieses Quantenparallelismus durch Entwicklung von Quantenalgorithmen die Möglichkeit neuartiger Rechenoperationen, die diese Superpositionen von Qubit-Zuständen, insbesondere verschränkte Zustände, mit nichtklassischen Transformationen gezielt manipulieren. Deutschs Vorstellung der Superposition in der Viele-Welten-Interpretation beruht auf einer Aufspaltung in Paralleluni-

versen, wobei in jedem Universum das Quantenobjekt genau einen bestimmten Weg nimmt, jedoch als Messergebnis letztlich nur der Endpunkt sichtbar ist. Von Deutsch stammt auch der erste echte Quantenalgorithmus, mit dem eine Einteilung von Funktionen in verschiedene Klassen mit weniger Rechenschritten als mit klassischen Algorithmen möglich ist. Deutsch, Grover und Bennett erweiterten die klassische Informationsverarbeitung auf eine binäre Quantenlogik, die die ersten Quantenalgorithmen darstellten [7].

Die erste experimentelle Realisierung eines Quantenalgorithmus – des Deutsch-Algorithmus – erfolgte durch Jones und Mosca [8] im Jahre 1998 in der Flüssigkeits-NMR. Ein weiteres Beispiel der frühen Quantenalgorithmen ist der Grover-Suchalgorithmus, der auch schon experimentell in der NMR realisiert wurden [9]. Mitte der neunziger Jahre gelang ein entscheidender Durchbruch auf dem Gebiet der theoretischen Quanteninformationsverarbeitung, nachdem Peter Shor einen Quantenalgorithmus vorstellte und mit einer höchst effizienten Lösung des Faktorisierungsproblems Aufsehen erregte [10], [11], [12] – ebenso Grover mit seinem Suchalgorithmus [13], [14]. Die Rechenzeit zur Primfaktorbestimmung ist mit dem Shor-Algorithmus um viele Größenordnungen kürzer als mit klassischen Verfahren. Die Zerlegung einer vierhundertstelligen Zahl in ihre Primfaktoren würde mit den leistungsfähigsten Rechnern heutzutage eine Zeitdauer von rund 10^{10} Jahren in Anspruch nehmen – ein solches Problem gilt somit als klassisch unlösbar. Ein Quantencomputer hingegen könnte die Lösung bei gleicher Taktrate unter Anwendung des Shor-Algorithmus in wenigen Monaten finden. Experimentell wurde der Shor-Algorithmus in der Flüssigkeits-NMR von Vandersypen et. al [15] bereits mit neun Qubits zur Primfaktorisation der Zahl 15 umgesetzt. Die in diesem Zusammenhang nötige Quanten-Fouriertransformation wurde zuvor schon von Weinstein et al. [16] ebenfalls in der NMR experimentell demonstriert.

Die Realisierung eines Quantencomputers stellt daher eine große Herausforderung dar, die in enger Relation zu anderen technologischen Anwendungen in der Quantenkryptographie und Quantenteleportation steht. Auf dem Forschungsgebiet der Quanteninformationsverarbeitung wurden bisher sehr viele weitreichende Fortschritte in der Theorie erzielt. Die experimentelle Umsetzung steht jedoch immer noch am Anfang ihrer Entwicklung – vor allem weil es bisher keine eindeutige Zielrichtung gibt, welches physikalische System zur Implementierung eines Quantencomputers am geeignetsten ist. Es existieren im Gegensatz zur experimentellen Realisierung bisher eine unüberschaubare Vielzahl von Vorschlägen und theoretischen Ansätzen, deren Implementierung vom heutigen Standpunkt aus gesehen technologisch teilweise nicht durchführbar sind.

Einer der sicherlich weitreichendsten Vorschläge stammt von Kane [17] – seine Idee besteht in der äquidistanten Implantierung von Phosphor in Silizium, wobei die Phosphorkernspins als Qubits dienen und die Qubit-Qubit-Wechselwirkung über eine durch Gate-Elektroden erzeugte Elektronenladungswolke gesteuert wer-

den kann. Die Steuerung des damit verbundenen löcherinduzierten Ferromagnetismus, erzeugt durch Feldeffekte mittels Gate-Elektroden, wurde bereits nachgewiesen [18]. Die Manipulation der einzelnen Qubits soll durch resonante Mikrowelleneinstrahlung erfolgen.

Die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit besteht darin, grundlegende Experimente der Quanteninformationsverarbeitung mit einem Ensemble von Spinsystemen in Festkörpern zu demonstrieren, d.h. spezielle Quantenzustände – wie korrelierte, pseudoreine und verschränkte Zustände – zu präparieren sowie die Implementierung einfacher Quantenalgorithmien mittels Electron Nuclear Double Resonance-Verfahren (ENDOR) zu realisieren. Hierzu wurde parallel zu der vorliegenden Arbeit von Prof. M. Mehring vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart das sogenannte S-Bus-Konzept entwickelt, das aufgrund seiner Universalität und Skalierbarkeit durchaus auch in anderen Realisierungen, insbesondere in Quantencomputern auf Halbleiterbasis, anwendbar ist. Als physikalische Systeme zur Informationscodierung wurden hier Übergangsmetall- bzw. Selten Erd-dotierte Fluorid-Einkristalle untersucht. $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit neun individuell adressierbaren Qubits – im weiteren Verlauf auch *Qubyte+1-System* genannt – erwies sich dabei als aussichtsreichstes System zur Durchführung der Experimente nach dem S-Bus-Konzept. Hierzu waren neuartige Ansätze, wie beispielsweise eine Dichtematrixtomographie, notwendig.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in vier Hauptkapitel: Im ersten Kapitel werden in abstrakter Form die einfachen, allgemeinen Grundlagen der Quanteninformationsverarbeitung dargestellt, die die theoretische Basis der durchgeführten Experimente und zum Verständnis des S-Bus-Konzeptes bilden. Das zweite Kapitel stellt das S-Bus-Konzept hinsichtlich seiner Topologie und seiner Umsetzung mittels Electron Nuclear Double Resonance-Verfahren (ENDOR) vor. Das dritte Kapitel enthält eine Betrachtung geeigneter Fluoridkristalle, insbesondere die Charakterisierung des *Qubyte+1*-Systems $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ hinsichtlich selektiver Adressierbarkeit und des Kopplungsnetzwerkes der Qubits. Die Implementierung des S-Bus-Konzeptes zur Realisierung eines Quantencomputers in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ ist im vierten Kapitel beschrieben. Hier finden sich sukzessiv die hierfür notwendigen detaillierten Erklärungen, jeweils in Verbindung mit den experimentellen Ergebnissen und deren Auswertung, zur Präparation und Detektion von korrelierten, pseudoreinen und verschränkten Quantenzuständen, der Umsetzung des CNOT-Gatters sowie zur Durchführung eines Quantenalgorithmus, der Collins-Version des Deutsch-Algorithmus.

Diese Dissertation entstand im Rahmen zweier Forschungsprojekte, die von der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG und vom Bundesministerium für Bildung und Forschung BMBF gefördert wurden.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	I
Inhaltsverzeichnis	V
1 Quantencomputer contra klassischer Computer	1
1.1 Quantencomputing allgemein – ein Überblick	2
1.2 Bits und Qubits – Spins als Qubits	7
1.2.1 Operatordarstellung von Quantenzuständen durch die Pauli-Spin-Matrizen	8
1.2.2 Qubits im Dichtematrixformalismus	9
1.2.3 Boltzmann-Dichtematrix	14
1.2.4 Spin-Rotationen	16
1.3 Einfache Quantengatter – Grundbausteine der Algorithmen	19
1.4 Spezielle Quantenzustände	23
1.4.1 Pseudoreine Zustände	23
1.4.2 Verschränkte Zustände	26
1.5 Deutsch-Algorithmus	30
2 Das S-Bus-Konzept für Quantencomputer	37
2.1 Die Topologie des S-Bus-Konzeptes	38
2.2 Elektron-Kernspin-Wechselwirkungen im S-Bus-System	42
2.2.1 Zeeman-Aufspaltung der Elektronen- und Kernspins	44
2.2.2 g -Tensor	46
2.2.3 Spin-Spin-Wechselwirkungen	49

3	Fluoridkristalle als Quantenprozessoren	53
3.1	Dotierungen mit Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$	55
3.2	Fluoridkristalle als Qubit-Träger	57
3.3	Das S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$	60
3.3.1	Kristalleigenschaften von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$	60
3.3.2	CaF_2 -Kristallzucht	64
3.3.3	Ce^{3+} -Elektronenspin	66
3.4	Charakterisierung von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in ESR und ENDOR	68
3.4.1	Anmerkungen zur Pulsspektroskopie	69
3.4.2	Magnetfeld-Spektren $\text{CaF}_2:\text{Ce}$	72
3.4.3	Bestimmung der Kristallorientierung aus den Magnetfeldspektren	76
3.4.4	Relaxation und Dekohärenz	82
3.4.5	Mims-ENDOR-Messungen	88
3.4.6	Relaxationen und Sublevel-Echo der Qubits	91
3.5	Das <i>Qubyte+1</i> -System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$	98
3.5.1	<i>Qubyte+1</i> -ENDOR-Spektren	98
3.5.2	Bestimmung der Zugehörigkeit der ENDOR-Übergänge zu den <i>Qubyte+1</i> -Kernspins	99
3.5.3	Winkelabhängigkeit der <i>Qubyte+1</i> -ENDOR-Spektren bei Kristalldrehung	108
3.5.4	Das <i>Qubyte+1</i> -Kopplungsnetzwerk	111
3.5.5	Korrelationsanalyse des <i>Qubyte+1</i> durch Tripel-ENDOR	119
4	Implementierung des S-Bus-Konzeptes in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$	127
4.1	Multi-Quanten-ENDOR	130
4.1.1	Präparation von Quantenkorrelationen nach dem S-Bus-Konzept	130
4.1.2	Dichtematrixtomographie – die MQE-Detektion	136
4.1.3	Präparation und Detektion von Multi-Quantenkorrelationen mit N Qubits	141

4.1.3.1	MQE mit zwei Qubits	152
4.1.3.2	MQE mit drei Qubits	154
4.1.3.3	MQE mit vier Qubits	157
4.1.4	Dichtematrixtomographie kontrolliert präparierter Multi-Quantenkorrelationen mit N Qubits	161
4.2	Pseudoreine Zustände mit zwei Qubits	166
4.2.1	Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} mit einfachen Pulsen in der Korrektursequenz	170
4.2.2	Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} mittels Composite-Korrekturpulsen der Form $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$. . .	173
4.2.3	Präparation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} mit Korrektur- und Inversionssequenz $U^K(\beta_j)$ und $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$	176
4.2.4	Präparation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} unter Erweiterung der Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$ auf Composite-Pulse . . .	183
4.2.5	Einfluss der Frequenz- und Amplitudenjustage auf die MQE-Spektren	192
4.3	Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{000} mit drei Qubits . . .	196
4.4	Collins-Version des Deutsch-Algorithmus für zwei Qubits	202
4.5	Das CNOT-Gatter im N -Qubit-System	210
4.5.1	Rechnerische Darstellung der Implementierung der CNOT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System	210
4.5.2	Rechnerische Darstellung der Implementierung der INEPT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System als Vorstufe zur Umsetzung des CNOT-Gatters	217
4.5.3	Bestimmung der optimalen Evolutionszeiten τ_I in der INEPT- und CNOT-Sequenz	220
4.5.4	Dichtematrixtomographie bei Anwendung der INEPT- bzw. der CNOT-Sequenz	224
4.6	Einstein-Podolski-Rosen-Zustand $ \Psi^-\rangle$	228
	Zusammenfassung	233
	Abstract	241

Literaturverzeichnis	253
Publikationen	261
Danksagung	263
Lebenslauf	265

Kapitel 1

Quantencomputer contra klassischer Computer

Im ersten Kapitel erfolgt zunächst ein kurzer ein Überblick über die allgemeinen Eigenschaften eines Quantencomputers hinsichtlich der Definition und Transformationseigenschaften von Quantenbits (Qubits) und ihrer Beschreibung anhand des Spin- und Dichtematrix-Formalismus der Quantenmechanik. Es werden einfache, grundlegende logische Gatter, die die Bausteine der Informationsverarbeitung und somit Grundlage der Algorithmen bilden, der klassischen und der Quanteninformationsverarbeitung vorgestellt sowie die Charakteristik spezieller Quantenzustände, wie pseudoreiner und verschränkter Zustände aufgeführt. Es erfolgt weiterhin eine knappe Beschreibung des ersten, von David Deutsch vorgestellten Quanten-Algorithmus.

1.1 Quantencomputing allgemein – ein Überblick

Jede Form von Information ist stets innerhalb eines physikalischen Systems codiert. In einem klassischen Computer setzt sich diese Information aus Bits zusammen, d.h. Daten werden in einem Binär-Code durch Nullen und Einsen dargestellt, wobei das klassische Bit nur diese beiden Werte 0 und 1 annehmen kann. Die Aneinanderreihung von Bytes, bestehend aus acht Bits, ergibt dann den vollständigen Informationsgehalt. Die Binär-Codierung des Buchstaben „S“ lautet beispielsweise 01010011. Bei der Umsetzung in einem physikalischen System können dies beispielsweise Ladungszustände in Halbleiterstrukturen oder magnetische und optische Strukturen auf Datenträgern vielfältiger Art sein. Die Binärcodierung wird bis heute in der klassischen Informationsverarbeitung beibehalten. Sie hat ihren Ursprung in der Frühzeit der Datenverarbeitung, in der nur Rechenmaschinen zur Verfügung standen, deren Komponenten typischerweise zwei Einstellmöglichkeiten zuließen – ähnlich einem Schalter mit den Stellungen „ein“ und „aus“. Dies geht auf Konrad Zuse zurück, der im Jahre 1938 den ersten binären Digitalcomputer Z1 entwickelte und seine erste funktionsfähige programmierbare, elektromechanische Rechenmaschine Z3 drei Jahre später fertigstellte.

Die Informationsträger eines Quantencomputers hingegen sind quantenmechanische Systeme, sogenannte Quantenbits oder kurz Qubits – vergleichbar den Bits eines klassischen Computers, jedoch mit grundlegend anderen Eigenschaften [19]. Ein Qubit, beschrieben durch seine Wellenfunktion $|\psi\rangle$, kann im Raum seiner komplexen Zustandskoeffizienten unendlich viele Quantenzustände als Überlagerung seiner Eigenzustände annehmen und wird somit durch Amplitude und Phase seiner Wellenfunktion charakterisiert. Dabei werden die vom klassischen Bit her bekannten Zustände 0 und 1 mit den Eigenzuständen eines Qubits identifiziert, die die Basis des zugehörigen Hilbert-Raumes bilden. Die Darstellung im entsprechenden vierdimensionalen Liouville-Raum eines Qubits spiegelt die Komponenten der komplexen Zustandskoeffizienten direkt wieder. Prinzipiell ist jedes beliebige Spin- $\frac{1}{2}$ -Quantensystem für eine binäre Quanteninformationsverarbeitung geeignet.

Der quantenmechanische Zustand eines N -Qubit-Quantencomputers wird im Hilbert-Raum beschrieben durch seine Gesamtwellenfunktion $|\psi^{(N)}\rangle$ der allgemeinen Form

$$|\psi^{(N)}\rangle = c_1|011100101\dots\rangle + c_2|111010001\dots\rangle + \dots \quad (1.1)$$

Die komplexen Koeffizienten c_j der N -Qubit-Basiszustände liefern die Wahrscheinlichkeit P_j der Zustandsmessung eines Quantencomputers im Zustand $|011100101\dots\rangle$ mit $P_1 = |c_1|^2$, im Zustand $|111010001\dots\rangle$ mit $P_2 = |c_2|^2$, usw.

Die beiden Grundsäulen eines Quantencomputers bestehen einerseits aus dem Quantenparallelismus [4], [19], andererseits aus der Effizienz neuartiger Transformationen in den Quantenalgorithmien. Der unendliche, kontinuierliche Zustandsraum eines Qubits erlaubt es aufgrund des Superpositionsprinzips auf ein solches mehrere Eingaben gleichzeitig zu geben und eine völlig neue Form der Datencodierung darstellt. Dies entspricht einer simultanen Ausführung mehrerer Rechenoperationen, die zu einer deutlichen Verminderung der Dauer einer Gesamtheit von Rechenoperationen führen kann. Quantenalgorithmien bilden und transformieren aber auch gezielt Superpositionszustände von Qubits und beziehen daraus ihre enorme Leistungssteigerung gegenüber klassischen Rechenoperationen. Insbesondere die Verschränkung zweier Qubits, also die Präparation und Darstellung zweier einzelner Quantensysteme als ein einziges, ununterscheidbares, nichtlokales Gesamtsystem bildet den Kern eines Quantencomputers [20]. Voraussetzung zur Erzeugung eines verschränkten Zustandes ist eine Wechselwirkung zwischen den einzelnen Qubits [21]. Anzumerken ist in diesem Zusammenhang jedoch sicherlich, dass bis heute der eigentliche Ursprung der hohen Effizienz von Quantenalgorithmien neben dem Superpositionsprinzip in Form des Quantenparallelismus und der Nutzung der Verschränkung noch nicht vollständig bekannt ist [22].

In Computern werden die Bit-Einstellungen, in der Quanteninformationsverarbeitung dann die Qubit-Zustände, durch Anwendung von Algorithmen manipuliert, um dadurch einen Eingabe-Code auf einen Ausgabe-Code zu transformieren, der das Rechenergebnis der entsprechenden Operation darstellt (Abb. 1.1).

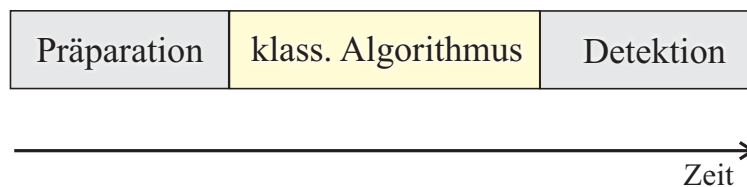


Abb. 1.1: Block-Diagramm eines klassischen Computers: Eine Eingabe (Präparation) wird mittels eines Algorithmus auf eine Ausgabe (Detektion) abgebildet.

Die mathematische Darstellung der klassischen Informationsverarbeitung erfolgt durch die Boolesche Algebra. Durch Anwendung logischer Gatter in Form von Operatoren wird ein Eingabe-Zustand auf einen Ausgabe-Zustand transformiert. Die Algorithmen werden hierbei durch eine Hintereinanderschaltung, bzw. -ausführung logischer Gatter dargestellt. Dieses Verfahren ist in der Quanteninformationsverarbeitung identisch, jedoch ist die Charakteristik der Quantenalgorithmien eine völlig andere. Das grundlegende Blockschaltbild für einen Quantencomputer zeigt Abb. 1.2. Der Unterschied zur klassischen Informationsverarbeitung besteht zum einen in der Reversibilität von Quantenalgorithmien, zum anderen

in der Präparation und Transformationen auch von Superpositionszuständen, angedeutet durch die Hadamard-Transformationen H in Zusammenhang mit den unitären Transformationen innerhalb des Algorithmenschrittes (Abb. 1.2). Prinzipiell ist jeder klassische Informationsverarbeitung in gegebenenfalls reversibler Erweiterung auch mit einem Quantencomputer möglich.

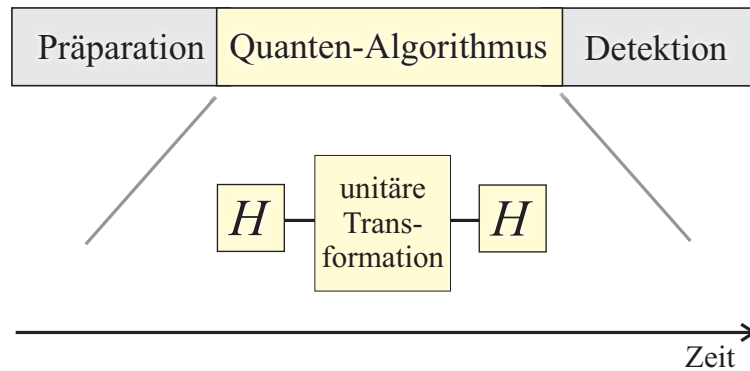


Abb. 1.2: Blockdiagramm eines Quantencomputers: Wie beim klassischen Computer wird eine Eingabe (Präparation) resultierend auf einen Ausgabezustand (Detektion) abgebildet. Die Besonderheit der Quantenalgorithmen, die reversible, unitäre Transformationen darstellen, besteht in den superpositionserzeugenden Elementen H (Hadamard-Transformationen).

Es existieren aber auch logische Quantengatter, zu denen es kein klassischen Pendant gibt - ein einfaches Beispiel dafür ist das $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatter, welches unter anderem im nächsten Kapitel erklärt wird.

In der Quanteninformationsverarbeitung kann die Auswertung des Rechenergebnisses problematisch sein, denn dieses kann – je nach Algorithmus – durchaus auch aus einer Superposition von Qubit-Eigenzuständen bestehen. Bei einer Zustandsmessung kollabiert die Wellenfunktion $|\psi\rangle = \sum_j c_j |j\rangle$ auf einen der Eigenzustände $|j\rangle$ des Quantensystems mit der Wahrscheinlichkeit $P_j = |c_j|^2$. Man erhält bei mehrmaliger Messung im allgemeinen eine Wahrscheinlichkeitsverteilung der gemessenen Eigenzustände des Rechenergebnisses. Unter Umständen ist das Rechenergebnis dadurch nicht mehr eindeutig. Dies führt zu einem Informationsverlust, welcher durch redundante Informationsverarbeitung oder entsprechende Konzeption der Quantenalgorithmen wie beim Deutsch-Algorithmus durch Projektion auf eine eindeutige Klasse von Eigenzuständen teilweise kompensiert werden kann.

Bei der Implementierung von Quantencomputern ist die Fehlerkorrektur eines der größten Probleme. Meist setzt man bei theoretischen Betrachtungen ideale Quantenobjekte ohne Dekohärenz als Qubits voraus. Dies experimentell zu realisieren

ist allerdings nicht möglich. In der Quanteninformationsverarbeitung unterscheidet man zwei prinzipielle Fehlerquellen: Dies sind einerseits Amplitudenfehler, ähnlich bei klassischen Bits, die ihren Wert ändern, andererseits Phasenfehler der Wellenfunktion durch Dekohärenz, bedingt durch eine Phasenevolution unter einem Zeitentwicklungsoperator, die bei klassischen Bits nicht auftreten können. Somit führt jede noch so kleine Wechselwirkung der Qubits mit ihrer Umgebung letztendlich zur Zerstörung des präparierten Quantenzustandes. Ein „Quantenprozessor“ muss also zur Minimierung dieser Fehler möglichst gut von seiner Umgebung isoliert werden und die Durchführung von Quantenalgorithmen muss innerhalb der Dekohärenz- bzw. Relaxationszeit des Quantensystems erfolgen.

Bei der klassischen Fehlerkorrektur wird eine Bit-Information einfach auf weitere Bits kopiert und Fehler aufgrund von Bitflips durch Vergleich der entsprechenden Bits miteinander korrigiert. In einem Quantencomputer ist dies wegen des „no cloning principle“ nicht möglich, da man hierzu den zu kopierenden Quantenzustand messen müsste, was den Kollaps der Wellenfunktion zur Folge hätte. Die Akkumulation auch nur kleiner Fehler sorgt unter Umständen dafür, dass ein Zustand nicht mehr eindeutig reproduzierbar ist. Das Kopieren von Quantenzuständen in ein Zwischenspeicher-Quantensystem mit längerer Dekohärenzzeit ist dadurch primär nicht möglich. Abhilfe kann man hier beispielsweise durch eine redundante Informationsverarbeitung schaffen, indem sogenannte Ancilla-Qubits (Hilfs-Qubits) mit in die Algorithmen einbezogen werden. Eine Veränderung deren Wellenfunktion bei Durchführung eines Algorithmus weist somit indirekt auf aufgetretene Fehler hin [23].

Allgemein gibt es auf dem Gebiet der Quanteninformationsverarbeitung bisher sehr viele theoretische Ansätze, deren Umsetzung noch an experimentellen Schwierigkeiten – wie beispielsweise bei der Implementierung in Ionenfallen – scheitern, zumal auch noch keine allgemeine Zielrichtung der Implementierung eines Quantencomputers in welcher Art von Quantensystemen abzusehen ist. Selbst grundlegende Probleme, wie die Präparation geeigneter Spin-Systeme, sind bisher bei vielen Ansätzen ungelöst. Eine der größten Herausforderungen stellt dabei die Realisierung skalierbarer Quantensysteme dar, mit einer beliebigen Anzahl individuell manipulierbarer Qubits.

Die bisher vielversprechendsten Ansätze zur Darstellung grundlegender Experimente der Quanteninformationsverarbeitung sind einerseits Ionen oder Atome in magneto-optischen Fallen, andererseits vor allem die Magnetresonanz. Die Zielsetzung bei der Realisierung von Quantencomputern mit Ionenfallen besteht in der Qubit-Manipulation durch Einstrahlung von Laserpulsen, orts aufgelöst auf einzelne Ionen oder Atome. Somit lassen sich zwar Spin-Flips im Nanosekundenbereich realisieren, die oftmals zu unrecht auch als typische Schaltzeit logischer Gatter bezeichnet wird, jedoch bleibt dabei die zur Implementierung von Quantenalgorithmen notwendige Qubit-Qubit-Kopplung oft unberücksichtigt. Diese soll durch

die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den einzelnen Teilchen dargestellt werden.

Die weitreichendsten experimentellen Erfolge, wie beispielsweise die Realisierung des Shor-Algorithmus gelang bei der Umsetzung von Quantencomputern in der Kernspinresonanz (NMR) in Flüssigkeiten. Ein großer Vorteil besteht darin, auf eine ausgereifte Spektroskopiemethode zurückgreifen zu können. Die Manipulation der Qubits erfolgt durch eine spin- oder übergangsselektive Einstrahlung von Radiofrequenz-Pulsen auf den NMR-Übergängen. Begrenzend hierbei ist die Skalierbarkeit dieser Quantensysteme, da die Qubit-Träger – meist organische Moleküle oder Flüssigkristalle – keine beliebig große Anzahl nichtäquivalenter, möglichst homonuklearer Kernspins als Qubits aufweisen können. Die erwähnte, zur Durchführung von Quantenalgorithmien notwendige Kernspin-Kernspin-Kopplung beträgt oft nur einige zehn Hertz, die somit ebenfalls sehr lange Schaltzeiten bedingen. Neuere Bestrebungen beziehen Festkörper mit größeren Wechselwirkungen als Träger für Qubits des Ensemble-Quantencomputings mit ein.

Das zeitgleich mit Anfertigung dieser Arbeit von Prof. M. Mehring vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart entwickelte S-Bus-Konzept bezieht im Gegensatz zum NMR-Ensemble-Quantencomputing hier Elektronenspins S quasi als Wechselwirkungstransfer-Bus zwischen den Kernspins I_j als Qubits in Festkörpern zur Präparation und Detektion von Quantenzuständen mit ein. Es handelt sich dabei um ein auch auf N Qubits skalierbares Konzept, das durchaus auch bei anderen Realisierungen von Quantencomputern angewendet werden kann. Der große Vorteil besteht in der Nutzung der Hyperfeinwechselwirkung im Megahertz-Bereich zwischen Elektronen- und Kernspins, die zu einer starken Verminderung der Schaltzeiten gegenüber reinen NMR-Quantencomputern führen. Hierbei wurden neuartige universelle Methoden und Konzepte entwickelt. Details zum S-Bus-Konzept finden sich in einem eigenen Kapitel.

1.2 Bits und Qubits – Spins als Qubits

Dieses Kapitel stellt die grundlegende Beschreibung von Qubits im Rahmen des Spin-Formalismus vor. In einem Quantencomputer übernehmen die Quantenbits (Qubits) die Funktion des klassischen Bits und sind durch Spin- $\frac{1}{2}$ -Systeme darstellbar, deren beiden Eigenzustände $|+\frac{1}{2}\rangle = |0\rangle$ und $|-\frac{1}{2}\rangle = |1\rangle$ mit der Binärcodierung in 0 und 1 der Booleschen Algebra identifiziert werden können. Dies erlaubt mit einigen Erweiterungen die Übertragung des Spin- $\frac{1}{2}$ -Formalismus und der Booleschen Algebra auf die Manipulation der Qubits in der Quanteninformationsverarbeitung. Hierbei gibt es prinzipiell auch andere Ansätze mit höheren Spins, die aber eine Erweiterung der Booleschen Algebra voraussetzen [24].

Der Zustandsraum eines klassischen Bits wird durch seinen Zustandsvektor in Abhängigkeit von seinen orthogonalen Basisvektoren beschrieben. Ein klassisches Bit hat exakt zwei Einstellmöglichkeiten mit den Basisvektoren

$$\vec{0} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \vec{1} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (1.2)$$

Ein Qubit besitzt im Gegensatz zum klassischen Bit einen kontinuierlichen zweidimensionalen, jeweils komplexen Zustandsraum – den Hilbert-Raum, der von den orthonormierten Basisvektoren $|0\rangle$ und $|1\rangle$ aufgespannt wird.

In Anlehnung an den Spin- $\frac{1}{2}$ -Formalismus sind folgende Bezeichnungen für die Qubit-Basiszustände geläufig, die in der vorliegenden Arbeit verwendet werden:

$$\begin{aligned} |0\rangle &= |+\frac{1}{2}\rangle = |+\rangle = |\uparrow\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{und} \\ |1\rangle &= |-\frac{1}{2}\rangle = |-\rangle = |\downarrow\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (1.3)$$

Der Zustandsvektor eines Qubits (Abb. 1.3) ist durch die quantenmechanische Wellenfunktion $|\psi\rangle$ gegeben, die allgemein eine Linearkombination der Basisvektoren darstellt:

$$|\psi\rangle = c_1|0\rangle + c_2|1\rangle, \quad c_j \in \mathbb{C}. \quad (1.4)$$

Die komplexen Koeffizienten c_1 und c_2 unterliegen dabei der Normierungsbedingung $c_1c_1^* + c_2c_2^* = 1$ und enthalten die vollständige Information über Amplitude und Phase des Zustandsvektors $|\psi\rangle$. Von den primär vier Freiheitsgraden bleiben

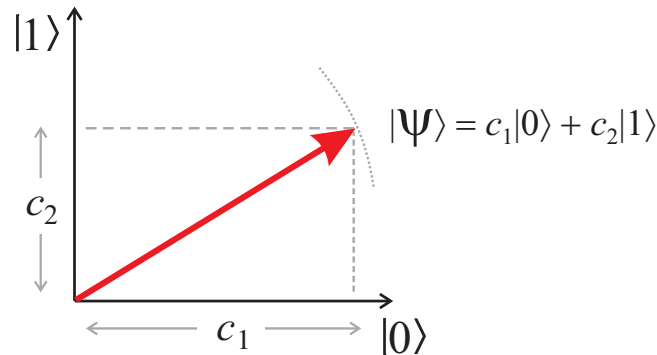


Abb. 1.3: Zustandsvektor der Wellenfunktion $|\psi\rangle = c_1|0\rangle + c_2|1\rangle = \cos\varphi|0\rangle + \sin\varphi|1\rangle$ eines Qubits im zweidimensionalen Hilbert-Raum mit den Basisvektoren $|0\rangle$ und $|1\rangle$.

aufgrund der Normierungsbedingung, d.h. durch die Existenz des Quantensystems, drei übrig.

Der Hilbert-Raum von N Qubits hat somit die Dimension 2^N . Das N -Qubit-Gesamtsystem besitzt aufgrund der Normierungsbedingung somit $2^N - 1$ Freiheitsgrade. Der Zustandsvektor des N -Qubit-Systems lautet allgemein

$$|\psi^{(N)}\rangle = |\psi_1 \cdot \psi_2 \cdot \dots \cdot \psi_N\rangle = \sum_{j=0}^{2^N-1} c_j |j\rangle, \quad (1.5)$$

woraus sich die Messwahrscheinlichkeit eines Basiszustandes $|j\rangle$ zu $P_j = c_j c_j^*$ ergibt.

Im Falle von beispielsweise 100 Qubits bilden $2^{100} \approx 10^{30}$ Eigenzustände die Basiszustände des Gesamtsystems. Diese Zahl an Freiheitsgraden würde den Rahmen jedes klassischen Computers sprengen, jedoch wird dadurch auch die Detektion eines Quantenzustandes und deren Darstellung als klassische Information beliebig schwierig.

1.2.1 Operatordarstellung von Quantenzuständen durch die Pauli-Spin-Matrizen

Analog zur Darstellung eines Qubit-Zustandes durch seine Wellenfunktion ψ im Hilbert-Raum kann dieser auch durch eine Kombinationen der Pauli-Spin-Matrizen $\hat{\sigma}_{x,y,z}$, bzw. $\hat{I}_{x,y,z}$ und der Einheitsmatrix $\hat{1}$ im Liouville-Raum beschrieben werden. Die Pauli-Spin-Matrizen $\hat{\sigma}_{x,y,z}$ sind nachfolgend mit den Drehimpulsoperatoren $\hat{I}_{x,y,z}$ aufgelistet:

$$\begin{aligned}
\hat{I}_x &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \hat{\sigma}_x, \\
\hat{I}_y &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \hat{\sigma}_y, \\
\hat{I}_z &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} = \frac{1}{2} \hat{\sigma}_z, \\
\hat{1} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.
\end{aligned} \tag{1.6}$$

Dabei gilt die Vertauschungsrelation

$$[\hat{I}_x, \hat{I}_y] = i\hat{I}_z \text{ bzw. } [\hat{\sigma}_x, \hat{\sigma}_y] = 2i\hat{\sigma}_z. \tag{1.7}$$

auch für die zyklische Permutation der Komponenten $\hat{\sigma}_{x,y,z}$, bzw. $\hat{I}_{x,y,z}$.

Häufig wird zur Beschreibung von Quantenzuständen und Operatoren auch die Relationen

$$\hat{I}_\pm = \hat{I}_x \pm i\hat{I}_y \tag{1.8}$$

verwendet, wobei \hat{I}_\pm jeweils die Erzeuger- und Vernichtoperatoren darstellen.

Analog zum Hilbertraum mit seinen Zustandsvektoren $|\psi\rangle$ sind im Liouville-Raum die Quantenzustände durch die Pauli-Spin-Operatoren als Dichtematrix $|\rho\rangle$ darstellbar. Diese wird im nächsten Kapitel näher erläutert. Nachfolgend wird hier dabei die Liouville-Schreibweise $|\rho\rangle$ in Gleichungen oftmals zu ρ vereinfacht, ebenso bei Operatoren wird meist die Schreibweise A statt \hat{A} verwendet.

1.2.2 Qubits im Dichtematrixformalismus

Der Vorteil der Beschreibung von Quantenzuständen nach dem Dichtematrixformalismus im Liouville-Raum besteht einerseits darin, sowohl reine als auch gemischte Ensemble-Quantenzustände gleichermaßen darstellen zu können, andererseits offenbart die Dichtematrix bei der Darstellung durch die Spin-Matrizen die direkte Sichtbarkeit von Korrelationen und Kohärenzen eines Zustandes. Dies wird im weiteren Verlauf anhand von korrelierten und verschränkten Zuständen

deutlich werden. Zunächst erfolgt hier die Definition der Dichtematrix ρ , im Anschluss daran die allgemeine Darstellung von Quantenzuständen durch die Spin-Operatoren als Bloch-Vektor.

Man bezeichnet den Zustand eines einzelnen quantenmechanischen Systems als einen *reinen Zustand*. Ein Ensemble bestehend aus N solcher Einzelsysteme, kann man durch eine Gesamt-Wellenfunktion des Produktes $|\psi^{(N)}\rangle = |\psi_1\psi_2\dots\psi_N\rangle$ darstellen. Hierbei entsprechen die Besetzungszahldichten der Eigenzustände eines kanonischen Ensembles im thermodynamischen Gleichgewicht der Boltzmann-Verteilung – man nennt dies einen *gemischten Zustand*, der ein inkohärentes, statistisches Gemisch reiner Zustände darstellt. Der Hilbert-Raum eines solchen Ensembles wird somit von insgesamt 2^N Eigenzuständen aufgespannt. Die Operatoren bestünden dann aus $2^N \otimes 2^N$ -Matrizen – dies ist für große N mit konventionellen Rechnern nicht mehr darstellbar. Es ist daher nur noch möglich statistische Aussagen über den Zustand des Gesamtsystems durch Mittelung über alle Einzelsysteme anhand des Dichtematrixformalismus zu treffen. Die Dichtematrix ρ beschreibt diesen gemittelten Quantenzustand des gesamten Spin-Ensembles.

Die mathematische Definition der Dichtematrix erfolgt bei der Berechnung von Erwartungswerten eines Ensembles von Quantensystemen, das sich mit der Wahrscheinlichkeit $P_{|\psi\rangle}$ in einem quantenmechanischen Zustand $|\psi\rangle$ befindet, wobei gilt:

$$0 \leq P_{|\psi\rangle} \leq 1 \quad \text{und} \quad \sum_{|\psi\rangle} P_{|\psi\rangle} = 1. \quad (1.9)$$

Im Ensemble erhält man die Observable $\overline{\langle L \rangle}$ einer physikalischen Größe L durch Bildung des Ensemblemittelwertes $\overline{\langle \hat{L} \rangle}$ der Einzel-Erwartungswerte $\langle \hat{L} \rangle = \langle \psi | \hat{L} | \psi \rangle$ aller das Ensemble bildenden Quantensysteme – man führt also eine statistische Mittelung mit Gewichtung der Wahrscheinlichkeit $P_{|\psi\rangle}$ über alle möglichen Quantenzustände des Gesamtsystems durch:

$$\begin{aligned} \overline{\langle \hat{L} \rangle} &= \sum_{|\psi\rangle} P_{|\psi\rangle} \langle \psi | \hat{L} | \psi \rangle, \quad \text{mit} \quad |\psi\rangle = \sum_i c_i |i\rangle \\ &= \sum_{|\psi\rangle} P_{|\psi\rangle} \langle \psi | i \rangle \langle i | \hat{L} | j \rangle \langle j | \psi \rangle. \end{aligned} \quad (1.10)$$

Dies lässt sich umformen in:

$$\overline{\langle \hat{L} \rangle} = \sum_{ij} L_{ij} \rho_{ji}. \quad (1.11)$$

Durch diesen Term ist die Dichtematrix für gemischte Zustände definiert als

$$\rho = \sum_{|\psi\rangle} P_{|\psi\rangle} |\psi\rangle\langle\psi|, \quad (1.12)$$

bzw. für reine Zustände vereinfacht sich dies zu

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi|. \quad (1.13)$$

Den Erwartungswert $\overline{\langle\hat{L}\rangle}$ erhält man durch Spurbildung des Operatorproduktes mit der Zustandsdichtematrix:

$$\overline{\langle\hat{L}\rangle} = \text{Tr}(\hat{L}\rho). \quad (1.14)$$

Die allgemeine Dichtematrix ρ der Wellenfunktion $|\psi\rangle = c_1|0\rangle + c_2|1\rangle$ eines reinen Zustandes eines Spins $I = \frac{1}{2}$ lautet somit:

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{pmatrix} c_1 c_1^* & c_1 c_2^* \\ c_2 c_1^* & c_2 c_2^* \end{pmatrix}. \quad (1.15)$$

Der Zustandsraum der Dichtematrix ρ eines Qubit-Spins ist der vierdimensionale Liouville-Raum. Dessen Basis bilden die Operatoren der Einheitsmatrix $\hat{1}$ und der Pauli-Spin-Matrizen σ_x , σ_y und σ_z , bzw. I_x , I_y und I_z , wie sie im vorangegangenen Kapitel definiert wurden. Jede Dichtematrix eines Qubits I_j ist somit auch durch eine Kombination der Pauli-Spin-Matrizen darstellbar:

$$\rho = \frac{1}{2}\hat{1} + \underbrace{c_1 I_x + c_2 I_y + c_3 I_z}_{\text{Bloch-Vektor}}. \quad (1.16)$$

Der sogenannte Bloch-Vektor symbolisiert dabei diesen Quantenzustand durch einen Punkt in einem dreidimensionalen Raum, der durch die Operatoren I_x , I_y und I_z aufgespannt wird, wobei die Normierungsbedingung $\text{Tr}(\rho^2) = 1$ die Länge des Bloch-Vektors festlegt. Unitäre Transformationen der Quanteninformationsverarbeitung entsprechen Drehungen dieses Bloch-Vektors, so dass die Gesamtheit aller Quantenzustände eines Qubits in diesem Raum eine Kugeloberfläche – die sogenannte Bloch-Kugel – beschreiben (Abb. 1.4).

Die Zeitentwicklung der Dichtematrix wird durch die Liouville-von Neumann-Gleichung analog zur Entwicklung der Zustandsvektoren im Hilbert-Raum durch die Schrödinger-Gleichung $i\hbar \frac{d}{dt}\psi = \mathcal{H}\psi$ beschrieben. Für zeitunabhängige

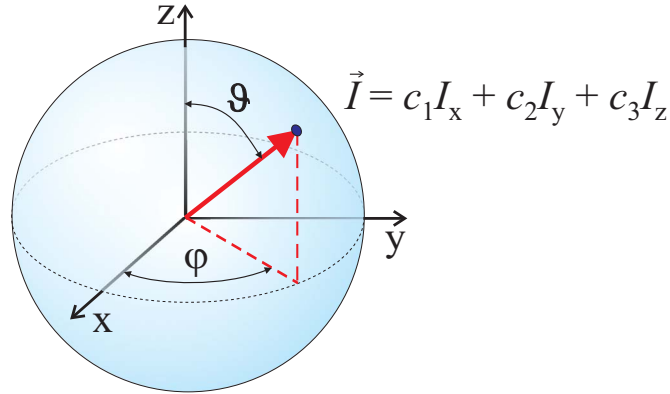


Abb. 1.4: Ein Quantenzustand $\hat{\rho} = \frac{1}{2}\hat{1} + c_1I_x + c_2I_y + c_3I_z$ eines Qubits definiert mit dem Bloch-Vektor einen Punkt im dreidimensionalen Operator-Raum mit der Basis $\{I_x, I_y, I_z\}$. Die Gesamtheit aller durch Anwendung unitärer Transformationen präparierbaren Quantenzustände bildet die Oberfläche der Bloch-Kugel. Die Euler-Winkel ϑ und φ geben die Drehwinkel der Spinrotationen bei unitären Transformationen an. Details hierzu finden sich in den nachfolgenden Kapiteln.

Hamilton-Operatoren \mathcal{H} erhält man eine geschlossene Darstellung des Zeitentwicklungsoperators $U(t)$:

$$\begin{aligned} |\psi(t)\rangle &= U(t)|\psi(t=0)\rangle \\ &= \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}t\right)|\psi(t=0)\rangle, \text{ für } \frac{\partial\mathcal{H}}{\partial t} = 0. \end{aligned} \quad (1.17)$$

Im Liouville-Raum wird diese Dynamik durch die Liouville-von Neumann-Gleichung beschrieben:

$$i\hbar\frac{d}{dt}\rho = [\mathcal{H}; \rho]. \quad (1.18)$$

Die Zeitevolution der Dichtematrix erhält man analog durch die Transformation mit dem Zeitentwicklungsoperator:

$$\rho(t) = \hat{U}(t)\rho(t=0)\hat{U}(t)^{-1}, \text{ mit } \hat{U}(t) = \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}t\right). \quad (1.19)$$

Im Falle zeitabhängiger Hamilton-Operatoren $\mathcal{H}(t)$ ist keine derart geschlossene Darstellung mehr möglich, da unter Umständen die einzelnen Operatoren nicht

mehr vertauschen. Die Zeitentwicklung des Systems unter $\mathcal{H}(t)$ ist jedoch berechenbar, unter der Berücksichtigung einer infinitesimalen Aufteilung der Evolution in Zeitabschnitte (t_0, t_j) , $j = 1 \dots N$, deren Reihenfolge nicht vertauscht werden darf. Diese sukzessive Approximation stellt die von Neumann-Reihe $\hat{U}(t, t_0)$ dar:

$$\hat{U}(t, t_0) = \hat{1} + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 \mathcal{H}(t_1) + \dots + \frac{1}{(i\hbar)^n} \int_{t_0}^t dt_1 \dots \int_{t_0}^{t_{j-1}} dt_j \mathcal{H}(t_1) \dots \mathcal{H}(t_j) + \dots \quad (1.20)$$

Formal lässt sich dies auch durch eine Potenzreihe unter Berücksichtigung des Dysonschen Zeitentwicklungsoperators \hat{T} ausdrücken:

$$\hat{U}(t, t_0) = \hat{T} \exp \left(-\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t dt' \mathcal{H}(t') \right) . \quad (1.21)$$

In den vorangegangenen Abschnitten wurde der Quantenzustand $|\psi\rangle$ eines einzelnen Qubits durch eine Dichtematrix ρ dargestellt. Die Beschreibung des Quantenzustandes eines N -Qubit-Systems erfolgt durch Bildung einer Gesamtdichtematrix $\rho^{(N)}$ der Dimension $2^N \cdot 2^N$, bestehend aus den dyadischen (oder äußeren) Produkten der Dichtematrizen ρ_j der Einzelspinsysteme:

$$\rho^{(N)} = \rho_1 \otimes \rho_2 \otimes \dots \otimes \rho_N . \quad (1.22)$$

Das Unterscheidungskriterium reiner und gemischter Zustände ist dabei durch die Spur des Dichtematrixquadrates $\text{Tr}((\rho^{(N)})^2)$ gegeben. Diese ist bei reinen Zuständen stets eins, bei gemischten Zuständen kleiner eins:

$$\begin{aligned} \text{Tr}(\rho_{\text{rein}}^2) &= 1 \\ \text{Tr}(\rho_{\text{gem}}^2) &< 1 . \end{aligned} \quad (1.23)$$

Als Beispiel für die Erweiterung der Darstellung von Quantenzuständen durch Spin-Operatoren sind nachfolgend für $N = 2$ Spins $I_{1,2} = \frac{1}{2}$ die Operatoren I_{x,y,z_1} und I_{x,y,z_2} angegeben:

$$I_{x_1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} , \quad (1.24)$$

$$I_{y_1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & -i & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i \\ i & 0 & 0 & 0 \\ 0 & i & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.25)$$

$$I_{z_1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (1.26)$$

$$I_{x_2} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.27)$$

$$I_{y_2} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & -i & 0 & 0 \\ i & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -i \\ 0 & 0 & i & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.28)$$

$$I_{z_2} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}, \quad (1.29)$$

$$\hat{1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (1.30)$$

Diese Spin-Operatoren finden sich in den nachfolgenden Kapiteln, beispielsweise bei der Darstellung pseudoreiner, korrelierter und verschränkter Quantenzustände mit zwei Qubits, mehrfach wieder. Die Beschreibung von Zuständen mit mehr als zwei Qubits erfolgt analog zu diesem Beispiel.

1.2.3 Boltzmann-Dichtematrix

Die Besetzungszahldichten eines kanonischen Ensembles einzelner Quantensysteme im thermodynamischen Gleichgewicht entsprechen der Boltzmann-Verteilung $N_i/N_j = \exp(-\frac{E_i - E_j}{kT})$. Diese ist auch hier im allgemeinen der Anfangszustand bei Anwendung von Pulssequenzen zur Quanteninformationsverarbeitung in der Magnetresonanz. Zur exakten Implementierung von Algorithmen im Ensemble

müssen daraus jedoch pseudoreine Zustände präpariert werden, die sich bei Anwendung unitärer Transformationen exakt wie reine Zustände verhalten.

Zunächst erfolgt hier eine kurze Betrachtung zur Boltzmann-Dichtematrix ρ_B eines Ensembles von Quantensystemen, jeweils bestehend aus einem Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ und N daran gekoppelten Kernspins $I_j = \frac{1}{2}$, in Abhängigkeit vom Hamilton-Operator \mathcal{H} . Dieser enthält die Zeeman-Terme mit den Larmorfrequenzen ω_S und ω_{I_j} sowie die Hyperfeinwechselwirkungen in Abhängigkeit von a_j und der Kern-Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} :

$$\rho_B = \frac{\exp(-\frac{\mathcal{H}}{kT})}{\text{Tr}(\exp(-\frac{\mathcal{H}}{kT}))}, \quad \text{mit} \quad (1.31)$$

$$\mathcal{H} = \hbar\omega_S S_z + \hbar \sum_{j=1}^N \omega_{I_j} I_{z_j} + \hbar S_z \sum_{j=1}^N a_j I_{z_j} + \hbar \sum_{j<k} D_{jk} I_{z_j} I_{z_k} .$$

Vorab sei erwähnt, dass ein solches Quantensystem mit einem Zentralspin S und N mit diesem gekoppelte Spins I_j im Rahmen des S-Bus-Konzeptes als *S-Bus-System* bezeichnet wird. Näherungsweise sind hier im Hamilton-Operator \mathcal{H} nur die Diagonalterme berücksichtigt. Die e-Funktion in ρ_B lässt sich in der Hochtemperaturnäherung unter Berücksichtigung, dass $\langle \mathcal{H} \rangle \ll kT$ und $\omega_S \gg \omega_I > a_j \gg D_{jk}$, durch eine Reihenentwicklung darstellen. Aufgrund der Dominanz der Elektron-Zeeman-Wechselwirkung reicht es aus in der Boltzmann-Dichtematrix ρ_{PB} nur den Term S_z zu betrachten:

$$\begin{aligned} \rho_B &\approx \frac{1}{2 \cdot 2^N} (\hat{1} - \frac{\mathcal{H}}{kT}) \\ &\approx \frac{1}{2^{N+1}} (\hat{1} - \frac{\hbar\omega_S}{kT} S_z) \\ &= \frac{1}{2^{N+1}} (\hat{1} - \kappa S_z), \quad \text{mit } \kappa = \frac{\hbar\omega_S}{kT} \ll 1 . \end{aligned} \quad (1.32)$$

Man schreibt zum Erhalt der Pseudo-Boltzmann-Dichtematrix ρ_{PB} dies daher weiter um in eine Gleichung, die gleichzeitig das Curie-Gesetz der Magnetisierung mit seiner $1/T$ -Abhängigkeit darstellt:

$$\begin{aligned} \rho_B &\approx \frac{1}{2^{N+1}} (\hat{1} - \kappa S_z) \\ &= \frac{1}{2^{N+1}} \left(\hat{1}(1 - \kappa) + \underbrace{\kappa(\hat{1} - S_z)}_{\rho_{PB}} \right) \\ &= \frac{1}{2^{N+1}} (\hat{1}(1 - \kappa) + \rho_{PB}) . \end{aligned} \quad (1.33)$$

Da unter den unitären Transformationen nur der Term S_z der Dichtematrix ρ_{PB} manipuliert wird und dazu proportionale Konstanten in der Quanteninformationsverarbeitung keine Rolle spielen, reicht auch eine vereinfachte Darstellung durch $\tilde{\rho}_{\text{PB}}$ aus, die als Eingabezustand bei der Quanteninformationsverarbeitung betrachtet werden kann:

$$\tilde{\rho}_{\text{PB}} = S_z . \quad (1.34)$$

Das Ziel bei der Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers in der Magnetresonanz besteht nun in der Manipulation dieser Pseudo-Boltzmann-Dichtematrix $\tilde{\rho}_{\text{PB}}$ derart, daraus pseudoreine Zustände zu präparieren und auf diese dann Algorithmen anzuwenden. Dies entspricht dann bei deren Durchführung an einem Ensemble einer Gesamtheit von Einzel-Quantenprozessoren, die exakt die gleichen Transformationen erfahren.

1.2.4 Spin-Rotationen

Ebenso wie die Darstellung von Quantenzuständen durch Spin-Operatoren möglich ist, lassen sich auch die unitären Transformationen U der Spin-Rotationen im Hilbert- und Liouville-Raum durch diese Operatoren ausdrücken, wobei die adjungierte Matrix $U^+ = U^{*T} = U^{-1}$, mit $|\det U| = 1$, durch die zu U konjugiert komplexe und transponierte Matrix dargestellt wird und identisch der Inversen von U ist. Durch Anwendung derselben wird ein Quantenzustand eines Qubits variiert. Experimentell geschieht dies hier in der Magnetresonanz durch die Einstrahlung von Mikrowellen- und Radiofrequenz-Pulssequenzen auf Elektronen- und Kernspin-Übergängen. Hierzu erfolgt im Anschluss zunächst die Darstellung von Spin-Rotationen als unitäre Transformationen. Diese ist analog zur zeitlichen Evolution eines Quantenzustandes unter dem Hamilton-Operator zu betrachten.

Eine Rotation des Drehimpulsvektors \hat{I} um eine Achse mit Einheitsvektor \hat{n} mit dem Drehwinkel β besitzt einen Hamilton-Operator der Form $\hbar\beta\hat{n}I$. Man erhält dann für diese unitäre Transformation $R(\hat{n}, \beta)$ als Operator:

$$\begin{aligned} R(\hat{n}, \beta) &= \exp(-i\beta\hat{n}\hat{I}) \\ &= \cos(\beta\hat{I}\hat{n}) - i \sin(\beta\hat{I}\hat{n}) , \text{ mit } \hat{I} = (I_x, I_y, I_z) . \end{aligned} \quad (1.35)$$

Im Falle eines Spin-Drehimpulses $I = \frac{1}{2}$ lässt sich dies weiter umformen zu

$$\begin{aligned}
R(\hat{n}, \beta) &\stackrel{I=\frac{1}{2}}{=} \hat{1} \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2i\hat{I}\hat{n} \sin\left(\frac{\beta}{2}\right) \\
&= \hat{1} \cos\left(\frac{\beta}{2}\right) - 2i(n_x I_x + n_y I_y + n_z I_z) \sin\left(\frac{\beta}{2}\right).
\end{aligned}$$

Bei der experimentellen Realisierung in der Magnetresonanz lassen sich Rotation um beliebige Achsen durch eine Kombination von Drehungen um die x-, y- und z-Achse darstellen. Die einzelnen Drehimpulskomponenten I_x , I_y und I_z transformieren sich bei Drehung um die x-, y- bzw. z-Achse um den Winkel β gemäß der angegebenen unitären Transformationen $P_{x,y,z}(\beta)$ wie folgt:

$$\begin{aligned}
P_x(\beta) = \exp(-i\beta I_x) : \quad & I_x \rightarrow I_x \\
& I_y \rightarrow I_y \cos \beta + I_z \sin \beta \\
& I_z \rightarrow I_z \cos \beta - I_y \sin \beta,
\end{aligned} \tag{1.36}$$

$$\begin{aligned}
P_y(\beta) = \exp(-i\beta I_y) : \quad & I_x \rightarrow I_x \cos \beta - I_z \sin \beta \\
& I_y \rightarrow I_y \\
& I_z \rightarrow I_z \cos \beta + I_x \sin \beta,
\end{aligned} \tag{1.37}$$

$$\begin{aligned}
P_z(\beta) = \exp(-i\beta I_z) : \quad & I_x \rightarrow I_x \cos \beta + I_y \sin \beta \\
& I_y \rightarrow I_y \cos \beta - I_x \sin \beta. \\
& I_z \rightarrow I_z
\end{aligned} \tag{1.38}$$

Bezieht man in diese allgemeine Darstellung einer Rotation auf die Drehung um die Euler-Winkel mit dem Azimuthalwinkel ϑ und dem Polarwinkel φ um die y- bzw. z-Achse, erhält man die Gesamttransformation

$$U(\vartheta, \varphi) = R^z(\varphi) R^y(\vartheta) = \exp(-i\varphi I_z) \exp(-i\vartheta I_y). \tag{1.39}$$

Diese Darstellung der unitären Transformationen durch Spin-Matrizen $I_{x,y,z}$ wird sich bei Berechnungen von Quantenzuständen im Rahmen der Quanteninformationsverarbeitung bei Anwendung unitärer Transformationen als logische Gatter, bzw. deren Umsetzung in Pulsfolgen der Magnetresonanz in den entsprechenden Kapiteln wiederfinden.

Die Abbildung der Wellenfunktion $|\psi\rangle$ eines Qubit-Spins $I = \frac{1}{2}$ mit Anfangszustand $|\psi\rangle = |0\rangle$ durch die Transformationsmatrix $U(\vartheta, \varphi)$ liefert die allgemeine Darstellung der Wellenfunktion im Hilbert-Raum:

$$\begin{aligned}
|\psi(\vartheta = 0, \varphi = 0)\rangle &= |0\rangle & (1.40) \\
\begin{matrix} U(\vartheta, \varphi) \\ \longrightarrow \end{matrix} |\psi(\vartheta, \varphi)\rangle &= U(\vartheta, \varphi)|\psi(\varphi = 0, \vartheta = 0)\rangle = \begin{pmatrix} \exp(-i\frac{\varphi}{2}) \cos \frac{\vartheta}{2} \\ \exp(+i\frac{\varphi}{2}) \sin \frac{\vartheta}{2} \end{pmatrix}.
\end{aligned}$$

Analog hierzu ist die Dichtematrix-Transformation am Beispiel des 1-Qubit-Zustandes ρ_0 bei Drehung um die Euler-Winkel ϑ und φ gegeben durch:

$$\begin{aligned}
\rho(\vartheta = 0, \varphi = 0) &= \rho_0 = \frac{1}{2}\hat{1} + I_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} & (1.41) \\
\begin{matrix} U(\vartheta, \varphi) \\ \longrightarrow \end{matrix} \rho(\vartheta, \varphi) &= U(\vartheta, \varphi) \rho_0 U(\vartheta, \varphi)^{-1} \\
&= \frac{1}{2}\hat{1} + \sin \vartheta \cos \varphi I_x + \sin \vartheta \sin \varphi I_y + \cos \vartheta I_z \\
&= \frac{1}{2}\hat{1} + \begin{pmatrix} \cos \vartheta & \exp(-i\varphi) \sin \vartheta \\ \exp(+i\varphi) \sin \vartheta & -\cos \vartheta \end{pmatrix}.
\end{aligned}$$

$\rho(\vartheta, \varphi)$ ist die allgemeine Dichtematrix eines Qubits, wobei die Koeffizienten der Drehimpulsoperatoren den Projektionskomponenten entsprechen, die man auch klassisch erwarten würde:

$$\begin{aligned}
\langle I_z \rangle &= \langle \psi(\vartheta, \varphi) | I_z | \psi(\vartheta, \varphi) \rangle = \cos \vartheta & (1.42) \\
\langle I_y \rangle &= \langle \psi(\vartheta, \varphi) | I_y | \psi(\vartheta, \varphi) \rangle = \sin \vartheta \sin \varphi \\
\langle I_x \rangle &= \langle \psi(\vartheta, \varphi) | I_x | \psi(\vartheta, \varphi) \rangle = \cos \varphi \sin \vartheta.
\end{aligned}$$

Dies bedeutet, dass die Drehung eines Spins im Hilbert-Raum kein klassisches Analogon, sondern quantenmechanisch exakt ist und sich so auch in der Quanteninformationsverarbeitung widerspiegelt.

1.3 Einfache Quantengatter – Grundbausteine der Algorithmen

Logische Gatter bilden die Grundbausteine der Informationsverarbeitung in Computern. Wie schon eingangs erwähnt, kann man mittels der Booleschen Algebra die Datenverarbeitung in Form der Binärcodierung durch Anwendung von Operatoren, die die logischen Gatter durch unitäre Transformationen darstellen, beschreiben. Diese Rechenalgorithmen transformieren einen Eingabe-Zustand auf einen Ausgabe-Zustand, d.h. eine zugehörige Matrix U enthält die gesamte Information des logischen Gatters. Die Algorithmen lassen sich schließlich durch eine sukzessive Ausführung logischer Gatter umsetzen. In der klassischen Informationsverarbeitung ist jeder Algorithmus durch eine Abfolge und Kombinationen von NOT-, AND- und OR-Gattern darstellbar. Dies erfolgt in der Quanteninformationsverarbeitung unter der Erweiterung auf die Reversibilität der Gatter identisch, denn jeder Quantenalgorithmus ist durch eine Abfolge von Zwei-Qubit-Gattern zu realisieren [25], [26]. Das CNOT-Gatter beispielsweise bildet dabei die nötige Erweiterung des NAND-Gatters (invertiertes AND-Gatter) auf die Reversibilität der Transformationen in der Quanteninformationsverarbeitung.

Nachfolgend werden einige grundlegende, universelle logische Gatter aufgeführt, die auch im Rahmen des S-Bus-Konzeptes bei der Implementierung eines Quantencomputers in der Magnetresonanz angewandt werden. Die experimentelle Umsetzung im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird mittels Mikrowellen- und Hochfrequenz-Pulsen in ENDOR-Verfahren realisiert.

Das NOT-Gatter ist das einfachste 1 Bit-Gatter (Abb. 1.5). Es invertiert den Wert eines beliebigen Bits oder Qubits und stellt damit eine klassische Operation dar, die auch in der Quanteninformationsverarbeitung Anwendung findet:

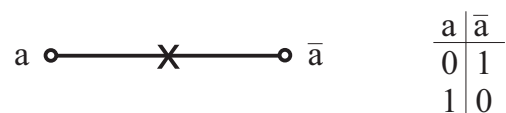


Abb. 1.5: Schaltsymbol und Wahrheitstabelle des NOT-Gatters: Das Eingabe-Bit a wird auf das Ausgabe-Bit a' abgebildet und sein Wert dabei invertiert.

Die zugehörige unitäre Transformationsmatrix hat die Form

$$U^{\text{NOT}} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} . \quad (1.43)$$

Die experimentelle Implementierung eines Bit-Flips erfolgt beispielsweise durch einen π -Puls $P_{x,y}(\pi) = \exp(-i\pi I_{x,y})$, der einen Spin um 180° um die x- bzw. y-Achse dreht.

Hinsichtlich der Besonderheit der Qubits in der Erzeugung von Superpositionszuständen im Rahmen der Quanteninformationsverarbeitung werden die nicht-klassischen Operationen der Hadamard-Transformation H und des $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatter gerecht. Die unitäre Matrix der Hadamard-Transformation H lautet:

$$H = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\sigma_x + \sigma_z) = \sqrt{2}(I_x + I_z). \quad (1.44)$$

Deren Anwendung beispielsweise auf den Eingangszustand $|0\rangle = |+\rangle$ erzeugt einen Superpositionszustand:

$$\begin{aligned} H|0\rangle &= H|+\rangle = H|\uparrow\rangle = H \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + |1\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle + |-\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle). \end{aligned} \quad (1.45)$$

Dies entspricht der Drehung eines Spins aus der z-Richtung um 90° in die xy-Ebene. Die Hadamard-Transformation H ist zu sich selbst invers, d.h. ihre zweifache Anwendung entspricht der Identitätstransformation $\hat{1}$:

$$HH = \hat{1}. \quad (1.46)$$

Abgesehen von einem Phasenfaktor entspricht die Transformation H in der Magnetresonanz einem $\frac{\pi}{2}$ -Puls, der jedoch nicht zu sich selbst invers ist. An Stelle einer aufwändigen Composite-Pulsfolge der Form $P_y(-\pi/4)P_x(\pi)P_y(\pi/4)$ zur Implementierung der Hadamard-Transformation kann zur Erzeugung von Superpositionszuständen in der Magnetresonanz auch ein einfacher $\frac{\pi}{2}$ -Puls, entsprechend dem $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatter angewandt werden, unter der Beachtung dass dann die Inverse ein $-\frac{\pi}{2}$ -Puls $P_y(-\frac{\pi}{2})$ ist. Dies entspricht exakt dem $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatter, welches ebenfalls einen Superpositionszustand erzeugt und bei zweimaliger aufeinanderfolgender Anwendung identisch dem NOT-Gatter ist [27] (vgl. Abb. 1.6).

$$a \circ \boxed{\sqrt{\text{NOT}}} \text{---} \boxed{\sqrt{\text{NOT}}} \text{---} \circ \bar{a}$$

Abb. 1.6: Das $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatter erzeugt ausgehend von einem Eigenzustand einen Superpositionszustand der beiden Eigenzustände eines Qubits und entspricht bei einer zweifachen Hintereinanderausführung dem NOT-Gatter.

Die entsprechende unitäre Transformationsmatrix des $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatters lautet:

$$\begin{aligned}
 U^{\sqrt{\text{NOT}}} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1+i & 1-i \\ 1-i & 1+i \end{pmatrix}, \text{ mit } (U^{\sqrt{\text{NOT}}})^2 = U^{\text{NOT}} \\
 &= (1+i) \left(\frac{1}{2} \hat{1} - i \hat{I}_x \right).
 \end{aligned} \tag{1.47}$$

Die Anwendung des $\sqrt{\text{NOT}}$ -Gatters auf die Qubit-Eigenzustände erzeugt folgende Superpositionszustände:

$$\begin{aligned}
 U^{\sqrt{\text{NOT}}} |0\rangle &= \frac{1}{2}(1+i)|0\rangle + \frac{1}{2}(1-i)|1\rangle, \\
 U^{\sqrt{\text{NOT}}} |1\rangle &= \frac{1}{2}(1-i)|0\rangle + \frac{1}{2}(1+i)|1\rangle.
 \end{aligned} \tag{1.48}$$

Algorithmen lassen sich vollständig aus einem Netzwerk universeller Gatter aufbauen. Ein solches universelles logisches Gatter der klassischen Datenverarbeitung ist das NAND-Gatter. Es handelt sich hierbei um ein invertiertes AND-Gatter. Die Eingabewerte (a, b) zweier Bits werden auf einen Ausgabewert c abgebildet, wie aus der Wahrheitstabelle in Abb. 1.7 zu entnehmen ist:

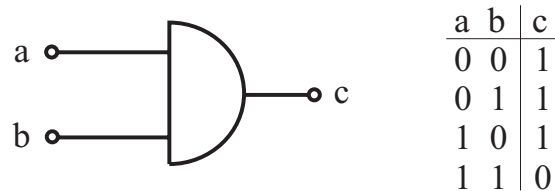


Abb. 1.7: NAND-Gatter: Dargestellt sind das Schaltsymbol und die Wahrheitstabelle, gemäß der zwei Eingabe-Bits a und b auf das Ausgabe-Bit c abgebildet werden. Diese Transformation ist nicht reversibel und so nicht in der Quanteninformationsverarbeitung anwendbar.

Das NAND-Gatter ist in dieser Art nicht in einem Quantencomputer implementierbar, da es sich aufgrund der Abbildung zweier Eingabe-Bits a und b auf ein einzelnes Ausgabe-Bit c um einen dissipativen Prozess handelt, also nicht reversibel ist. Ein Rückschluss vom Rechenergebnis auf die Eingabe ist durch diesen Informationsverlust nicht möglich, da das Rechenergebnis nicht eindeutig mit der Eingabe zusammenhängt. Daher stellt das NAND-Gatter keine unitäre Transformation dar. Ein Quantencomputer dagegen ist dissipationsfrei, d.h. N Eingänge werden durch reversible, unitäre Transformationen auf N Ausgänge abgebildet. Charles Bennett wies darauf hin, dass jede binäre Logik im Prinzip reversibel und

somit eindeutig auslegbar ist. Somit ist mit einigen Erweiterungen eine Übertragung der etablierten binären Booleschen Algebra auf die Quanteninformationsverarbeitung und damit die Darstellung von Quantenalgorithmen durch logische reversible Quantengatter in einem Quantencomputer möglich.

Eine für die Quanteninformationsverarbeitung nötige Erweiterung des logischen NAND-Gatters ist mit der Reversibilität des CNOT-Gatters (Controlled NOT [28]) realisiert. Das CNOT-Gatter besitzt zwei Eingabe-Qubits a und b , die auf die Ausgabe-Qubits a' und b' abgebildet werden. Das Target-Qubit b wird nur dann kontrolliert invertiert, wenn das Control-Qubit a einen bestimmten Wert besitzt. Im allgemeinen ist dies für $a = 1$ der Fall (vgl. Abb. 1.8).

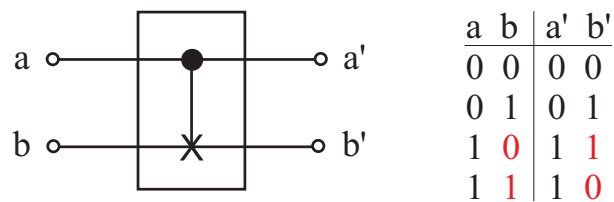


Abb. 1.8: CNOT-Gatter: Dargestellt sind das Schaltsymbol und die Wahrheitstabelle dieses Gatters, das eine reversible Erweiterung des universellen NAND-Gatters darstellt. Das Schalt-Bit b wird nur dann kontrolliert invertiert, wenn das Kontroll-Bit $a = 0$ oder $a = 1$ ist. Im allgemeinen wird die dargestellte Form der Inversion von b für $a = 1$ angewandt.

Die zugehörige unitäre Transformationsmatrix hat die Form

$$U_{\text{CNOT}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (1.49)$$

Eine Anwendung von Hadamard-Transformation und CNOT-Gatter ist beispielsweise in der Erzeugung eines verschränkten Zustandes zweier Qubits gegeben, wie dem Einstein-Podolski-Rosen-Paar (EPR-Zustand) $|\psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|01\rangle - |10\rangle)$. Dieser wird durch eine sukzessive Anwendung einer Hadamard-Transformation auf Qubit 1 und eines CNOT-Gatters auf den Eingangszustand $|\psi_{\text{in}}\rangle = |11\rangle$ generiert. Details hierzu sind im nächsten Kapitel aufgeführt.

1.4 Spezielle Quantenzustände

In diesem Kapitel werden einige spezielle Quantenzustände der Quanteninformationsverarbeitung, wie pseudoreine und verschränkte Zustände, aufgeführt, die im Rahmen dieser Arbeit bei der Implementierung eines Festkörper-Spin-Quantencomputers experimentell realisiert wurden. Die Umsetzung der Präparation in Form entsprechender ENDOR-Pulsfolgen in der Magnetresonanz nach dem S-Bus-Konzept wird erst in den späteren Kapiteln in Zusammenhang mit den Messergebnissen vorgestellt. Hier geht es vielmehr um eine kurze Darstellung dieser Zustände in Operatorschreibweise und deren Charakteristik.

1.4.1 Pseudoreine Zustände

Gershenfeld hat in der Literatur bereits auf die Problematik der Implementierung eines Quantencomputers mit Spin-Ensembles hingewiesen [29], [30], [31]. Die Zielsetzung des Ensemble-Spin-Quantencomputing besteht darin, Quantenalgorithmen auch mit den gemischten Zuständen zu realisieren, obwohl dies eigentlich nur mit reinen Zuständen, wie sie in isolierten Einzel-Quantensystemen vorliegen, möglich ist [32], [33], [29]. In einem Ensemble identischer Quantensysteme mit je N Qubit-Spins liegt stets eine Verteilung von Zuständen vor, so dass aufgrund der destruktiven Interferenz der einzelnen Wellenfunktionen und dem daraus resultierenden Kohärenzverlust eigentlich kein Quantencomputing möglich sein sollte. Abhilfe wäre eine Einzelspindetektion, die im allgemeinen jedoch ein zu schwaches Signal liefert und nur mit sehr aufwändigen Methoden möglich ist [34], [35]. Hier wird jedoch ein anderer Weg beschritten, der die Transformation der Boltzmann-Dichtematrix ρ_B auf einen Zustand gleicher Operator-Struktur wie die eines reinen Zustandes beschreibt. Mit diesen sogenannten pseudoreinen Zuständen ist die Durchführung von Quantenalgorithmen mit einem Ensemble von Spin-Systemen möglich, da diese sich bei Anwendung von Quantenalgorithmen exakt wie reine Zustände transformieren. Dies ist im Sinne einer parallelen Manipulation vieler, identischer Einzel-Quantencomputer zu verstehen, die alle die gleichen unitären Transformationen erfahren und die entsprechenden Observablen am Ensemble gemessen werden.

Nachfolgend werden die Zustandsvektoren $|ij\rangle$ und Dichtematrizen ρ_{ij} der pseudoreinen Zustände am Beispiel eines Zwei-Qubit-Systems $I_{1,2}$ vorgestellt. Die beiden gekoppelten Spins $I_{1,2} = \frac{1}{2}$ bilden ein 4-Niveau-System mit den Eigenzuständen $|00\rangle, |01\rangle, |10\rangle$ und $|11\rangle$ (Abb. 1.9).

Im Ensemble befinden sich im Falle eines pseudoreinen Zustandes alle Einzel-Quantensysteme, die den Besetzungszahlunterschied ausmachen im gleichen reinen Zustand. Die Zustandsvektoren im Hilbert-Raum, sowie die zugehörigen

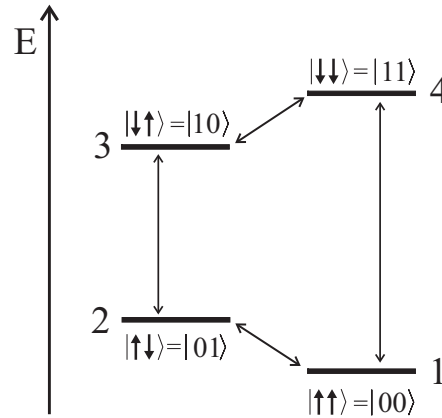


Abb. 1.9: 4-Niveau-System zweier gekoppelter Spins $I_{1;2} = \frac{1}{2}$ mit den Eigenzuständen $|00\rangle$, $|01\rangle$, $|10\rangle$ und $|11\rangle$. Die erlaubten Qubit- bzw. Spin-Übergänge sind eingezeichnet.

Dichtematrizen und ihre Operator Darstellung im Liouville-Raum dieser pseudoreinen Zustände für 2 Qubits lassen sich im Liouville-Raum der I_{z_j} -Pauli-Matrizen und der Einheitsmatrix darstellen:

$$\begin{aligned}
 |00\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} &\longrightarrow \rho_{00} = |00\rangle\langle 00| = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & (1.50) \\
 &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}(I_{z_1} + I_{z_2}) + I_{z_1}I_{z_2},
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 |01\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} &\longrightarrow \rho_{01} = |01\rangle\langle 01| = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & (1.51) \\
 &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}(I_{z_1} - I_{z_2}) - I_{z_1}I_{z_2},
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 |10\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix} &\longrightarrow \rho_{10} = |10\rangle\langle 10| = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & (1.52) \\
 &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}(-I_{z_1} + I_{z_2}) - I_{z_1}I_{z_2},
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
|11\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} &\longrightarrow \rho_{11} = |11\rangle\langle 11| = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\
&= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2}(I_{z_1} + I_{z_2}) + I_{z_1}I_{z_2}.
\end{aligned} \tag{1.53}$$

Die Berechnung der Koeffizienten der Pauli-Spin-Matrizen ist nachfolgend für obiges Beispiel der pseudoreinen Zustände dargestellt. Die Dichtematrix eines Zwei-Qubit-Systems besitzt die allgemeine Form

$$\begin{aligned}
\rho &= c_0\hat{1} + c_{x_1}I_{x_1} + c_{x_2}I_{x_2} + c_{y_1}I_{y_1} + c_{y_2}I_{y_2} + c_{z_1}I_{z_1} + c_{z_2}I_{z_2} \\
&+ c_{xx}I_{x_1}I_{x_2} + c_{xy}I_{x_1}I_{y_2} + c_{xz}I_{x_1}I_{z_2} \\
&+ c_{yx}I_{y_1}I_{x_2} + c_{yy}I_{y_1}I_{y_2} + c_{yz}I_{y_1}I_{z_2} \\
&+ c_{zx}I_{z_1}I_{x_2} + c_{zy}I_{z_1}I_{y_2} + c_{zz}I_{z_1}I_{z_2}.
\end{aligned} \tag{1.54}$$

Hierbei muss noch für die Koeffizienten c_j der Spin-Operatoren die Normierungsbedingung $\text{Tr}(\rho^2) = 1$ beachtet werden. $\text{Tr}(\dots)$ bedeutet dabei die Spurbildung der entsprechenden Matrix. Die Berechnung beispielsweise des Koeffizienten c_{z_1} der Operator-Darstellung von ρ_{00} erfolgt aus der Gleichung

$$\text{Tr}(\rho_{00}I_{z_1}) = c_{z_1}\text{Tr}(I_{z_1}^2) \Rightarrow c_{z_1} = \frac{1}{2}. \tag{1.55}$$

Die restlichen Koeffizienten c_j erhält man analog durch die Spurbildungen mit den entsprechenden Spin-Matrizen der Basis-Zustände des Liouville-Raumes.

Für N -Qubit-Systeme lassen sich auf die gleiche Weise pseudoreine Zustände darstellen, die sich analog mittels der Spin-Operatoren des zugehörigen $2^N \otimes 2^N$ -dimensionalen Liouville-Raumes berechnen. Diese enthalten dann bis zu N -fachen Korrelationen der Form $c_N |I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_2} \dots I_{x,y,z_N}\rangle$.

Eine Besonderheit dieser Quantenzustände sind die nichtklassischen Korrelationsterme $|\dots I_{z_j} I_{z_k} \dots\rangle$. Die Präparation und Detektion dieser Multi-Quantenkorrelationen ist somit eine Grundvoraussetzung zur Präparation pseudoreiner Zustände und zur Durchführung von Quantenalgorithmen. Mit Hilfe von Spin-Spin-Wechselwirkungen lassen sich die Korrelationen experimentell erzeugen. Dies wird im Kapitel über die Topologie des S-Bus-Konzeptes und des Multi-Quanten-ENDOR-Verfahrens detailliert erläutert.

Die Präparation reiner Ensemble-Zustände wäre ebenfalls durch Abkühlen der Quantensysteme in den Mikro-Kelvin-Bereich in der NMR möglich, bis aufgrund

der Boltzmannbesetzung eine ausreichende Spin-Polarisation erreicht würde, d.h. aufgrund des temperaturabhängigen Besetzungszahlunterschiedes ein reiner Quantenzustand vorläge. Man nennt dies die Überschreitung des sogenannten Quantenlimes, der hier nur der Vollständigkeit halber erwähnt ist, ohne auf Details einzugehen [30]. In der ESR kann hierbei schon das Abkühlen auf einige wenige Kelvin bei hinreichend großer Aufspaltung in Magnetfeldern von einigen Tesla, z.B. in W-Band-Spektrometern, durchaus ausreichen. In diesem Fall läge eine massive Redundanz durch die Ansammlung identischer Kopien reiner Zustände vor, wobei im Ensemble jedes einzelne Quantensystem mit je N Qubits als einzelner N -Bit-Quantencomputer wirkt und die einzelnen präparierten Quantenzustände identisch wären. Insbesondere für die Quantenfehlerkorrektur, die aufgrund des „no cloning principle“ eines der größten Hindernisse eines Quantencomputers darstellt, wäre dies nicht uninteressant.

1.4.2 Verschränkte Zustände

A. Einstein, B. Podolski und N. Rosen veröffentlichten im Jahre 1935 einen Artikel über die Vollständigkeit der quantenmechanischen Beschreibung der Realität, in dem sie ein Gedankenexperiment vorstellen, das auf dem zuvor von E. Schrödinger geprägten Begriff der Verschränkung (entanglement) basiert und eine spezielle kohärente Quantenkorrelationen darstellt [21]. Die damalige Schlussfolgerung war, dass die Beschreibung der Quantenmechanik im Bild von Wellenfunktionen entweder nichtlokal oder unvollständig sein müsse.

Zunächst zur Charakteristik der Verschränkung am Beispiel von einem Zwei-Spin-System: Ein verschränkter Zustand ist ein Superpositionszustand nicht eines einzelnen Quantenobjektes, sondern von zwei oder mehreren Teilchen. Ein solcher Zustand der beiden Quantenobjekte ist nicht separierbar, d.h. es existiert keine Darstellung der Gesamtwellenfunktion in Form eines Produktes der Einzelwellenfunktionen: $|\psi_{\text{ges}}\rangle \neq |\psi_1\rangle|\psi_2\rangle$. Dies gilt analog für die Faktorisierbarkeit der Gesamtdichtematrix ρ_{ent} in einzelne Dichtematrizen der beiden Einzelsysteme: $\rho_{\text{ent}} \neq \rho_1 \otimes \rho_2$.

Zu einem Zwei-Spin-System existieren vier verschränkte Zustände, die die sogenannte Bell-Basis bilden. Ihre Zustandsvektoren und Dichtematrizen sowie deren Operator Darstellung sind nachfolgend bezüglich der Basis der Eigenzustände $|00\rangle$, $|01\rangle$, $|10\rangle$ und $|11\rangle$ aufgeführt:

$$|\Phi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|00\rangle + |11\rangle) \quad (1.56)$$

$$\rho_{\Phi^+} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{4} \hat{1} + I_{x_1} I_{x_2} - I_{y_1} I_{y_2} + I_{z_1} I_{z_2} ,$$

$$|\Phi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|00\rangle - |11\rangle) \quad (1.57)$$

$$\rho_{\Phi^-} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{4} \hat{1} - I_{x_1} I_{x_2} + I_{y_1} I_{y_2} + I_{z_1} I_{z_2} ,$$

$$|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|10\rangle + |01\rangle) \quad (1.58)$$

$$\rho_{\Psi^+} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{4} \hat{1} + I_{x_1} I_{x_2} + I_{y_1} I_{y_2} - I_{z_1} I_{z_2} ,$$

$$|\Psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|10\rangle - |01\rangle) = |\psi_{\text{EPR}}\rangle \quad (1.59)$$

$$\rho_{\Psi^-} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & -1 & 0 \\ 0 & -1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{4} \hat{1} - I_{x_1} I_{x_2} - I_{y_1} I_{y_2} - I_{z_1} I_{z_2} .$$

Hier ist der Vorteil der Dichtematrixdarstellung zu erkennen – die Nichtdiagonalelemente bzw. die transienten Komponenten $I_{x,y}$ in der Operator Darstellung weisen auf Kohärenzen der verschränkten Zustände hin.

Bei lokaler Trennung beider Subsysteme eines in dieser Form präparierten Quantensystems über makroskopische Distanzen kann man durch Einzelmessung nicht den tatsächlichen Quantenzustand des Gesamtsystems bestimmen. Führt man eine Messung nur an einem Teilsystem durch, hat dies die instantane Projektion des anderen Teilsystems auf den entsprechenden Eigenzustand zur Folge. Dieser Kollaps der Wellenfunktion am Beispiel des EPR-Paares führt zur Projektion auf einen der beiden separierbaren Korrelationszustände:

$$|\psi_{\text{EPR}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|10\rangle - |01\rangle) \begin{array}{l} \nearrow |1\rangle|0\rangle \\ \searrow |0\rangle|1\rangle \end{array} . \quad (1.60)$$

Erst die Betrachtung als nichtlokale, kohärente Korrelation ergibt die vollständige quantenmechanische Beschreibung des verschränkten Zustandes. Einstein warf in diesem Zusammenhang die Frage auf: Wie kann der Endzustand des zweiten Teilchens durch eine Messung am ersten Teilchen beeinflusst werden, nachdem alle physikalischen Wechselwirkungen zwischen ihnen unterbunden wurden? Dies ist ein Prozeß, der scheinbar die Gesetze der Relativistik verletzt und daher zur Irritation von Einstein, Rosen und Podolski führte. Sie zogen daraus den Schluß, die Quantenmechanik sei in der Beschreibung durch Wellenfunktionen unvollständig oder nichtlokal. Ein Aspekt, der Einstein schon bei der Erklärung von Interferenzerscheinungen mit Licht auf eine Frage von Max Planck bei einer Konferenz im Jahre 1909 irritierte, ob denn ein Photon mit sich selbst interferieren könne? Diese heute experimentell bestätigte Selbstinterferenz wurde von Richard P. Feynman einmal als das *Herz der Quantenmechanik* bezeichnet. Die Akzeptanz der Nichtlokalität von Quantensystemen und Wechselwirkungen sowie der Betrachtung getrennter, verschränkter Quantensysteme als gesamtes, ausgedehntes System erlaubt erst die Vollständigkeit der Quantenmechanik, die somit nicht nur auf mikroskopische Distanzen beschränkt ist. Ein Quantenobjekt besitzt somit eine Ausdehnung - hinsichtlich seiner Dynamik man könnte auch sagen, das Teilchen nimmt mehrere Wege gleichzeitig.

1964 versuchte John Bell diesen Missstand der vermeintlichen Unvollständigkeit durch die sogenannten verborgenen Parameter λ auszugleichen und dadurch die Quantenmechanik als lokale und deterministische Theorie zu formulieren [36]. Die experimentell bestätigte Verletzung der von Bell formulierten Ungleichungen zeigen, dass verschränkte Zustände niemals mit Voraussagen lokaler und kausaler Theorien mit verborgenen Parametern in Einklang zu bringen sind [37]. Jede Messung ist zwar durch eine tiefer begründete Realität mit lokalen Wechselwirkungen erklärbar, wird jedoch der Zustandsvektor eines Quantensystems als echt angenommen, ist somit der Kollaps der Wellenfunktion als ein instantaner Vorgang auch auf Entfernung zu betrachten. Allerdings stellt dabei der Zustandsvektor nicht mehr als ein mathematisches Konstrukt dar [38]. Der experimentelle Beweis der Nichtlokalität der Quantenmechanik erfolgte durch A. Aspect, der experimentell bewies, dass verschränkte Photonen als ein gesamtes Quantenobjekt zu betrachten sind.

Für die Erzeugung eines verschränkten Zustandes ist, wie bereits dargelegt, eine Wechselwirkung zwischen den Quantenobjekten nötig. Nachfolgend ist eine Möglichkeit der Präparation des verschränkten EPR-Zustandes in der Quanteninformationsverarbeitung durch eine aufeinanderfolgende Anwendung einer Hadamard-Transformation und eines CNOT-Gatters aufgezeigt (Abb. 1.10) [39].

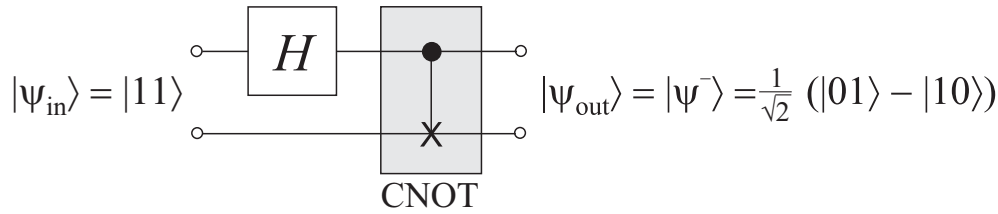


Abb. 1.10: Blockschaltbild zur Erzeugung des verschränkten EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle = |\psi_{\text{EPR}}\rangle$ durch sukzessive Anwendung einer Hadamard-Transformation H und eines CNOT-Gatters auf den Eingabe-Zustand $|\psi_{\text{in}}\rangle = |11\rangle$.

Die durch diese Transformationen generierten Quantenzustände sind nachfolgend im einzelnen aufgeführt: Der Eingabezustand $|\psi_{\text{in}}\rangle = |11\rangle$ wird durch die Hadamard-Transformation H auf dem ersten Qubit in einen Superpositionszustand überführt. Hierbei sind die Wellenfunktionen der beiden Qubits noch separabel:

$$|\psi_{\text{in}}\rangle = |11\rangle \xrightarrow{H} = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle - |1\rangle) |1\rangle \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle - |11\rangle) . \quad (1.61)$$

Das CNOT-Gatter überträgt diese Quantenkohärenz des ersten Qubits auf den verschränkten Zustand mit dem zweiten Qubit, woraus die Nichtseparabilität resultiert:

$$\frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle - |11\rangle) \xrightarrow{\text{CNOT}} |\psi_{\text{EPR}}\rangle = |\Psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|01\rangle - |10\rangle) . \quad (1.62)$$

Durch entsprechende Anwendung der Transformationen auf andere Eingangszustände in Verbindung mit einer entsprechenden Phasen Anpassung erhält man auch die übrigen Bell-Zustände. Die experimentelle Implementierung nach dem S-Bus-Konzept erfolgte durch Umsetzung des gezeigten Blockschaltbildes in Form von ENDOR-Pulssequenzen, die in einem späteren Kapitel detailliert dargestellt sind.

Allgemein ist an diese Stelle noch anzumerken, dass Verschränkung den Kern vieler Bereiche der Quanteninformationsverarbeitung darstellt. Insbesondere bei der Teleportation spielt Verschränkung die zentrale Rolle zum Transfer eines Quantenzustandes von einem System auf ein anderes, ohne den Quantenzustand selbst zu messen [2], [3], [40]. Die Charakterisierung von Verschränkung ist jedoch auch aus Sicht der Theoretiker noch nicht vollständig verstanden. Das Kriterium der Separierbarkeit ist im Fall nur weniger Teilchen einleuchtend. Zur Bestimmung des Grades der Verschränkung vieler Quantenobjekte müssen jedoch sehr viel weitreichendere Kriterien betrachtet werden, so dass die Frage, ob ein Zustand verschränkt ist oder nicht, schwierig zu beantworten ist [41].

1.5 Deutsch-Algorithmus

David Deutsch stellte als erster einen echten Quantenalgorithmus vor. Es handelt sich hierbei um einen Unterscheidungsalgorithmus ähnlich einer *if*-Abfrage in etablierten Programmiersprachen, der mit weniger Rechenschritten auskommt, als vergleichbare Algorithmen der klassischen Informationsverarbeitung. Das Unterscheidungskriterium ist dabei der Wertebereich einer binären Funktion, der in Abhängigkeit von der Eingabe ausgeglichen oder konstant ist. Nachfolgend ist der Deutsch-Algorithmus für zwei Qubits, zu dessen Implementierung ein *Schalt-Bit* $|x\rangle$ und noch ein weiteres *Hilfs- oder Ancilla-Bit* $|y\rangle$ benötigt wird. $|x\rangle$ wird auch als *Control-Bit*, $|y\rangle$ als *Function-Bit* bezeichnet. Eine Erweiterung auf N Qubits stellt der Deutsch-Jozsa-Algorithmus dar, der prinzipiell die gleichen Transformationen aufweist.

Die Logik des Deutsch-Algorithmus für ein Schalt-Bit wird beschrieben durch eine binäre Funktion f_{ij} mit dem Wertebereich $f_{ij}(x) \in \{0; 1\}$ und dem Definitionsbereich $x \in \{0; 1\}$, d.h. es existieren zu zwei Eingabewerten x je zwei mögliche Funktionswerte $f_{ij}(x)$. Die Funktion f_{ij} heisst *konstant*, wenn der Funktionswert $f_{ij}(x)$ unabhängig von Eingabewert x stets 0 oder 1 ist und *ausgeglichen*, wenn die Elemente 0 und 1 des Wertebereichs in Abhängigkeit aller Eingabewerte x als Funktionswert $f_{ij}(x)$ gleich häufig auftreten. Die Abbildungsvorschrift der Funktionen f_{ij} ist in nachfolgender Tabelle aufgeführt:

x	$f_{00}(x)$	$f_{01}(x)$	$f_{10}(x)$	$f_{11}(x)$
0	0	0	1	1
1	0	1	0	1
	konstant	ausgeglichen	ausgeglichen	konstant

Ein klassischer Computer benötigt für die Unterscheidung, ob die Funktion f_{ij} konstant oder ausgeglichen ist, zwei Rechenschritte, indem er für alle möglichen Eingabewerte x die Funktionswerte $f_{ij}(x)$ zum anschließenden Vergleich ausrechnet. Ein Quantencomputer hingegen kann die Eingabe als Superposition aller möglichen Eingabezustände der Qubits gleichzeitig verarbeiten und somit die Zugehörigkeit zur Funktionenklasse *konstant* oder *ausgeglichen* in nur einem Durchgang erhalten.

Die Umsetzung des Deutsch-Algorithmus erfolgt gemäß dem Blockschaltbild aus Abb. 1.11, bestehend aus den Hadamard-Transformationen H_j und der Transformation U_{ij} , die die binäre Funktion f_{ij} dargestellt.

Die Transformationsvorschrift von U_{ij} lautet:

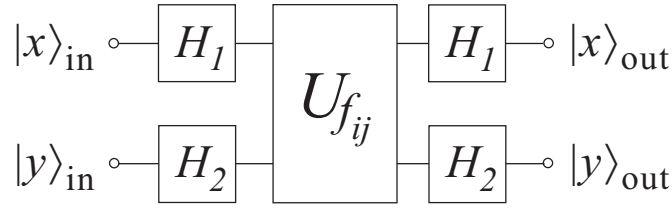


Abb. 1.11: Blockschaltbild des Deutsch-Algorithmus mit Schalt-Bit $|x\rangle$ und Ancilla-Bit $|y\rangle$, den Hadamard-Transformationen $H_{1;2}$ und der unitären Transformation U_{ij} . Zum Wert des Ancilla-Bits wird durch die Transformation U_{ij} der Funktionswert $f_{ij}(x)$ des Schalt-Bits binär addiert.

$$|x\rangle|y\rangle \xrightarrow{U_{ij}} |x\rangle|y \oplus f_{ij}(x)\rangle . \quad (1.63)$$

Der Wert des Schalt-Bits x bleibt durch die Transformation U_{ij} unverändert und zum Wert des Ancilla-Bits y wird der Funktionswert $f_{ij}(x)$ binär addiert.

Die Funktionsweise des Deutsch-Algorithmus ist nachfolgend erklärt: Zunächst wird auf jedes Qubit des Eingabe-Zustandes $|xy\rangle_{\text{in}} = |01\rangle$ eine Hadamard-Transformation $H_{1;2}$ angewandt, die eine Superposition $|\psi^H\rangle$ aller möglichen Qubit-Eigenzustände generiert:

$$\begin{aligned} |xy\rangle_{\text{in}} &= |01\rangle & (1.64) \\ \xrightarrow{H_1, H_2} |\psi^H\rangle &= H_1 H_2 |01\rangle \\ &= \frac{1}{2} (|0\rangle + |1\rangle) (|0\rangle - |1\rangle) \\ &= \frac{1}{2} (|00\rangle - |01\rangle + |10\rangle - |11\rangle) , \text{ mit} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_1 &= H \otimes \hat{1} \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & -1 \end{pmatrix} , \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} H_2 &= \hat{1} \otimes H \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & -1 \end{pmatrix} . \end{aligned}$$

Auf diesen Superpositionszustand $|\psi^H\rangle$ wird die unitäre Transformation U_{ij} angewandt. Man erhält daraus wieder eine Superposition $|\psi(U_{ij})\rangle$, die von den Funktionswerten $f_{ij}(0)$ und $f_{ij}(1)$ abhängt:

$$|\psi(U_{ij})\rangle = (-1)^{f_{ij}(0)} (|0\rangle + (-1)^{f_{ij}(0)\oplus f_{ij}(1)}|1\rangle) (|0\rangle - |1\rangle) . \quad (1.65)$$

Die daran anschließenden Hadamard-Rücktransformationen bilden den Zustand $|\psi(U_{ij})\rangle$ auf einen von der Funktionenklasse eindeutig abhängigen Nicht-Superpositionszustand $|xy\rangle_{\text{out}}$ ab:

$$\begin{aligned} |xy\rangle_{\text{out}} &= |1y\rangle \Leftrightarrow f_{ij} \text{ ausgeglichen,} \\ |xy\rangle_{\text{out}} &= |0y\rangle \Leftrightarrow f_{ij} \text{ konstant.} \end{aligned} \quad (1.66)$$

Der Wert des Schalt-Bits y enthält somit die Information über die Zugehörigkeit von f_{ij} zur Klasse der *konstanten* oder *ausgeglichenen* Funktionen.

Die Transformationen U_{ij} lassen sich durch die nachfolgend aufgeführten Matrizen ausdrücken:

$$\begin{aligned} U_{00} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, & U_{01} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, \\ U_{10} &= \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, & U_{11} &= \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (1.67)$$

Anzumerken ist hierbei, dass der Deutsch-Algorithmus nur die Information über die Zugehörigkeit zu einer der beiden Funktionenklassen liefert, eine Bestimmung, um welche Funktion einer Klasse es sich dabei handelt, ist für mehr als 2 Qubits nicht möglich. Dies offenbart eine Problematik der Quanteninformationsverarbeitung, die unter Umständen ein Informationsverlust mit sich bringt. Daher müssen im allgemeinen die Transformationen derart kombiniert werden, dass zumindest hinsichtlich eines zu erzielenden Kriteriums eines Quantenalgorithmus ein eindeutiges Ergebnis vorliegt.

Die Erweiterung des Deutsch-Algorithmus auf N Qubits bildet der sogenannte Deutsch-Jozsa-Algorithmus. Hierbei geht es wieder um die Klassifizierung konstanter und ausgeglichener, binärer Funktionen f . Klassisch benötigt man hierfür

$2^{N-1} - 1$ Rechenschritte. Dies bedeutet eine exponentielle Zunahme der Zahl der Rechenschritte mit der Größe des Eingabe-Registers. Unter Ausnutzung des Superpositionsprinzips in einem Quantencomputer erreicht man eine nur polynomielle Zunahme.

Der Eingabezustand ist gegeben durch N -Qubit-Register $|X_N\rangle$, das durch die Funktion f auf den Wertebereich $\{0; 1\}$ abgebildet wird:

$$|X_N\rangle = \{x_N x_{N-1} \dots x_1 x_0 | x_j = 0; 1\} \xrightarrow{f} \{0; 1\}. \quad (1.68)$$

Hierzu existieren 2^{2^N} binäre Funktionen f , deren entsprechende Transformationsvorschrift von U dieselbe ist, wie für ein Schalt- und ein Ancilla-Bit:

$$|x_j\rangle|y\rangle \xrightarrow{U} |x_j\rangle|y \oplus f_N(X)\rangle. \quad (1.69)$$

Eine Wertetabelle der Abbildungsvorschrift von f ist nachfolgend am Beispiel für $N = 2$ Qubits aufgeführt. Dieses Zwei-Qubit-System besitzt $2^N = 2^2 = 4$ Eigenzustände und somit der Zwei-Qubit-Deutsch-Algorithmus $2^4 = 16$ zugehörige binäre Funktionen $f(|x_1 x_2\rangle)$, die für jede mögliche Eingabe $|x_1 x_2\rangle$ wieder zwei Werte (0 oder 1) annehmen kann. Von diesen Funktionen sind zwei konstant, der Rest ausgeglichen oder keiner der beiden Klassen zuzuordnen.

$ x_1 x_2\rangle$	$ 00\rangle$	$ 01\rangle$	$ 10\rangle$	$ 11\rangle$	
$f_{0000}(x_1 x_2\rangle)$	0	0	0	0	konstant
$f_{0001}(x_1 x_2\rangle)$	0	0	0	1	unbestimmt
$f_{0010}(x_1 x_2\rangle)$	0	0	1	0	unbestimmt
$f_{0011}(x_1 x_2\rangle)$	0	0	1	1	ausgeglichen
$f_{0100}(x_1 x_2\rangle)$	0	1	0	0	unbestimmt
$f_{0101}(x_1 x_2\rangle)$	0	1	0	1	ausgeglichen
$f_{0110}(x_1 x_2\rangle)$	0	1	1	0	ausgeglichen
$f_{0111}(x_1 x_2\rangle)$	0	1	1	1	unbestimmt
$f_{1000}(x_1 x_2\rangle)$	1	0	0	0	unbestimmt
$f_{1001}(x_1 x_2\rangle)$	1	0	0	1	ausgeglichen
$f_{1010}(x_1 x_2\rangle)$	1	0	1	0	ausgeglichen
$f_{1011}(x_1 x_2\rangle)$	1	0	1	1	unbestimmt
$f_{1100}(x_1 x_2\rangle)$	1	1	0	0	ausgeglichen
$f_{1101}(x_1 x_2\rangle)$	1	1	0	1	unbestimmt
$f_{1110}(x_1 x_2\rangle)$	1	1	1	0	unbestimmt
$f_{1111}(x_1 x_2\rangle)$	1	1	1	1	konstant

Auch hier trägt das Schalt-Bit wie im vorangegangenen Beispiel die Information der Zugehörigkeit zur konstanten oder ausgeglichenen Funktionenklasse.

Collins stelle eine Vereinfachung des Deutsch-Algorithmus vor, die für $N \leq 2$ Qubits auch ohne Verschränkung auskommt, falls das Ancilla-Bit in der Eingabe auf den Zustandsraum $|y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle)$ beschränkt bleibt [42]. Das zugehörige Blockschaltbild ist in Abb. 1.12 dargestellt.

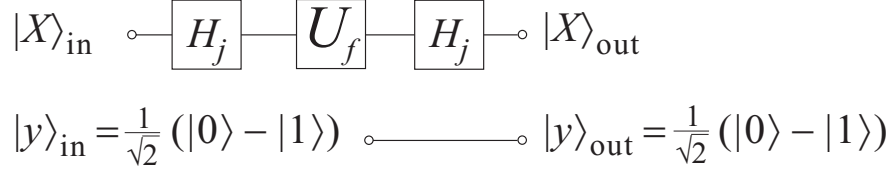


Abb. 1.12: Blockschaltbild des Deutsch-Algorithmus nach Collins mit Schalt-Bit-Register $|X\rangle = |x_{N-1}x_{N-2} \dots x_1x_0\rangle$ und Ancilla-Bit $|y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle)$. Auf jedes einzelne Schalt-Bit wird eine Hadamard-Transformationen H_j angewandt. Falls das Ancilla-Bit auf den Zustand $\frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle)$ beschränkt ist, benötigt man zur Durchführung des Algorithmus über die Transformation U_f keine Verschränkung zwischen Ancilla- und Schalt-Bits.

Die Transformationsvorschrift von U_f ist gegeben durch:

$$U_f|X\rangle|y\rangle = U_f|X\rangle \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle) = (-1)^{f(x)}|X\rangle \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle). \quad (1.70)$$

Da das Ancilla-Bit $|y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle - |1\rangle)$ durch den Algorithmus unverändert bleibt, ist keine Verschränkung und somit keine Kopplung zwischen Ancilla- und Schalt-bit zur Algorithmen Durchführung nötig. Ersteres kann dann sogar weggelassen werden. Die Transformationsvorschrift reduziert sich dann zu:

$$U_f|X\rangle = (-1)^{f(x)}|X\rangle. \quad (1.71)$$

Für $N = 2$ besitzt U_f die Matrix:

$$U_f = \begin{pmatrix} (-1)^{f_{ijkl}(|00\rangle)} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & (-1)^{f_{ijkl}(|01\rangle)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & (-1)^{f_{ijkl}(|10\rangle)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & (-1)^{f_{ijkl}(|11\rangle)} \end{pmatrix}. \quad (1.72)$$

f_{ijkl} bedeuten dabei die in vorangegangener Tabelle aufgeführten Funktionswerte. Im Fall der Funktion f_{0011} beispielsweise lautet diese Transformationsmatrix $U_{f_{0011}}$ dann:

$$U_{f_{0011}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}. \quad (1.73)$$

Der Eingabezustand $|00\rangle$ wird somit durch den Deutsch-Algorithmus mit der f_{0011} auf $|01\rangle$ abgebildet:

$$\begin{aligned} |xy\rangle_{\text{in}} &= |00\rangle \\ \xrightarrow{f_{0011}} |xy\rangle_{\text{out}} &= H U_{f_{0011}} H |00\rangle := U_f^{\text{DC}}(f_{0011})|00\rangle \\ &= |10\rangle. \end{aligned} \quad (1.74)$$

Analog berechnen sich die übrigen Transformationen U_f^{DC} zu den jeweiligen Funktionen f_{ijkl} . Die entsprechenden Abbildungsvorschriften sind nachfolgend aufgeführt:

$$\begin{aligned} U_f^{\text{DC}}(f_{0000}) : |00\rangle &\longrightarrow |00\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{00}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0101}) : |00\rangle &\longrightarrow |01\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{01}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0011}) : |00\rangle &\longrightarrow |10\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{10}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0110}) : |00\rangle &\longrightarrow |11\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{11}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{1111}) : |00\rangle &\longrightarrow |00\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{00}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{1010}) : |00\rangle &\longrightarrow |01\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{01}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{1100}) : |00\rangle &\longrightarrow |10\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{10}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{1001}) : |00\rangle &\longrightarrow |11\rangle, \text{ bzw. } \rho_{00} \longrightarrow \rho_{11}. \end{aligned} \quad (1.75)$$

Der Deutsch-Algorithmus nach Collins liefert für $N = 2$ Qubits somit nicht nur die Information über die Klassifizierung der ausgeglichenen oder konstanten Funktion f_{ijkl} , sondern auch, welche Transformation $U_f^{\text{DC}}(f_{ijkl})$ angewandt wurde. Die Transformationen der Funktionen f_{ijkl} , die weder ausgeglichen, noch konstant sind, liefern als Ausgabe einen Superpositionszustand und somit kein eindeutiges Rechenergebnis.

Für $N = 2$ wurde die Collins-Version des Deutsch-Algorithmus im Rahmen der Implementierung des S-Bus-Konzeptes realisiert. Die experimentellen Ergebnisse hierzu sind im Kapitel zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes beschrieben. Dabei wurden die entsprechenden Transformationsvorschriften U_{ijkl}^{C} umgesetzt und die jeweiligen Dichtematrizen ρ_{ij} tomographiert.

Kapitel 2

Das S-Bus-Konzept für Quantencomputer

Vor Beginn der vorliegenden Arbeit wurden erfolgreiche Experimente in Zusammenhang mit der Implementierung von Quantenalgorithmen in Spin-Quantencomputern nur in der Kernspinresonanz (NMR) in Flüssigkeiten realisiert [43], [44]. Ein Problem der dabei angewandten spinselktiven Einstrahlung zur Manipulation der einzelnen Qubits ist die Skalierbarkeit der verwendeten Quantensysteme und Konzepte, die nur eine beschränkte Anzahl an individuell adressierbaren Qubits aufweisen können [45].

Das von Prof. M. Mehring vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart parallel zur Anfertigung dieser Arbeit entwickelte S-Bus-Konzept stellt ein universelles und skalierbares Verfahren zur Implementierung eines Spin-Quantencomputers dar [46], [47], [24]. Es basiert hinsichtlich der Präparation von Quantenzuständen auf den Wechselwirkungen eines zentralen Spins S mit daran gekoppelten Qubit-Spins I_j , auf welche die Quantenalgorithmen angewandt werden. Das S-Bus-Konzept bietet nicht nur in dieser Hinsicht weitreichende Vorteile, sondern auch die Übertragbarkeit als universelles Konzept auf andere Realisierungsmöglichkeiten von Quantencomputern. Das S-Bus-Konzept wird hier im Rahmen seiner experimentellen Umsetzung mit Methoden der Electron Nuclear Double Resonance (ENDOR) mittels selektiver, multifrequentieller Einstrahlung auf Spin-Übergängen dotierter Fluoridkristalle vorgestellt.

In den nachfolgenden Abschnitten folgt die Beschreibung der Topologie des S-Bus-Konzeptes und die zu dessen Verständnis der Umsetzung in der Magnetresonanz nötigen theoretischen Grundlagen und Begriffe.

2.1 Die Topologie des S-Bus-Konzeptes

Die Topologie des S-Bus-Konzeptes ist gegeben durch einen Zentralspin S , an den eine Anzahl N von Qubit-Spins I_j über im allgemeinen unterschiedliche, dominante Wechselwirkungen a_j gekoppelt sind und zusammen das sogenannte S-Bus-System bilden. Weiterhin existiert noch ein Kopplungsnetzwerk zwischen den Qubits mit der Wechselwirkungsstärke D_{jk} (Abb. 2.1).

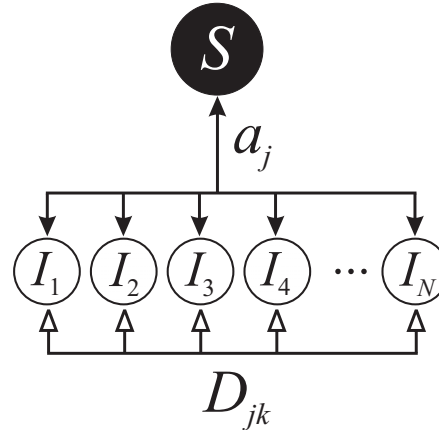


Abb. 2.1: Topologie des S-Bus-Spin-Systems am Beispiel für acht Qubits mit einem Zentralspin S , an den die Qubit-Spinnen I_j über im allgemeinen unterschiedliche Wechselwirkungen a_j gekoppelt sind. Zwischen den Qubits I_j existiert eine weitere Wechselwirkung D_{jk} .

Im allgemeinen erfolgt zunächst zur gezielten Präparation von Quantenzuständen eine unter Umständen selektive Korrelation des Zentralspins S mit den Qubit-Spinnen I_j . Die Implementierung der Algorithmen in Spinsystemen in Festkörpern geschieht mittels Doppelresonanzverfahren durch eine spinselektive Manipulation der Qubits – auch unter Ausnutzung von Qubit-Qubit-Wechselwirkungen. Die Detektion der Qubit-Quantenzustände der Kernspins I_j wird wiederum mittelbar über den zentralen S -Spin durchgeführt, der quasi als Monitor dient. Es ist hier durchaus eine Analogie zu einer Turing-Maschine zu sehen, bei der ein Schreibkopf oder Server S die Information auf einem Datenträger schreibt und ausliest und die EndEinstellung des Schreibkopfes nach Durchführung einer Rechenoperation deren Ergebnis darstellt.

Entsprechend dem Blockdiagramm der Quanteninformationsverarbeitung aus Abb. 1.2 besteht die allgemeine Mehrfachresonanz-Sequenz zur Durchführung eines Quantenalgorithmus mit N Qubits nach dem S-Bus-Konzept (Abb. 2.2) aus einer Präparationssequenz P_S zur Korrelation von S - und I_j -Spinnen sowie der gezielten Anpassung des Korrelationszustandes durch Sequenzen P_j individuell für jedes Qubit an einen pseudoreinen Eingabezustand, auf den der Algorithmus

A_j angewandt wird. Die Detektionssequenzen D_j und D_S enthält die sogenannte Dichtematrixtomographie, die die resultierende Ausgabe-Dichtematrix auf einen zu S_z multiplikativen Faktor transformieren, der als Kontrollparameter in das S-Spinecho einget.

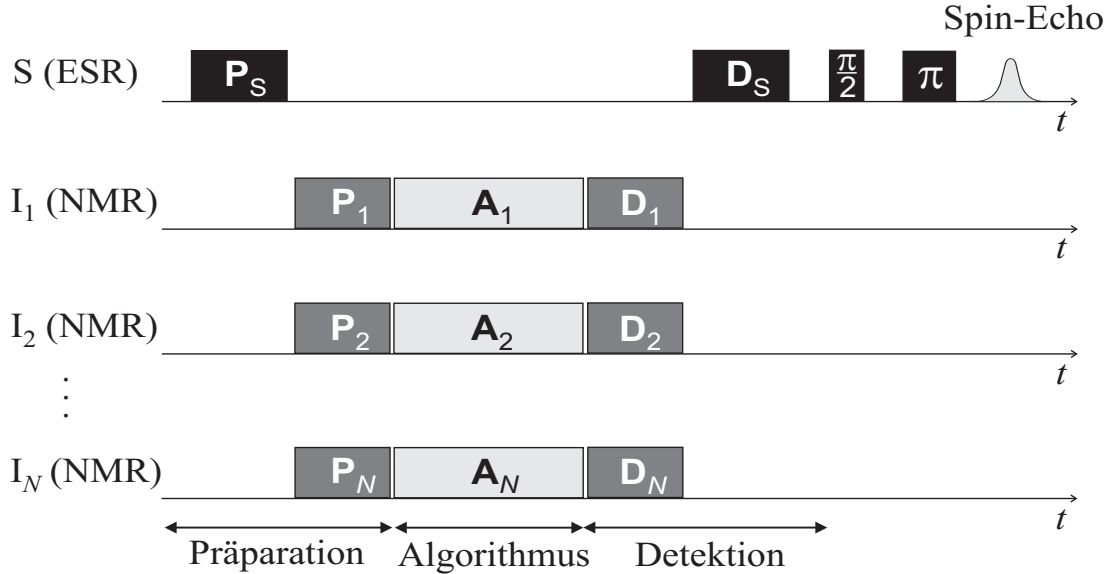


Abb. 2.2: Allgemeine Mehrfachresonanz-Sequenz zur Durchführung eines Quantenalgorithmus mit N Qubits nach dem S-Bus-Konzept mit Zustandspräparation P_j , Quantenalgorithmus A_j und Detektionssequenz D_j auf S - und I_j -Spins. Die eigentliche Messung erfolgt über das S-Spinecho. Details hierzu finden sich in den nachfolgenden Abschnitten und Kapiteln.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das S-Bus-Konzept mit Elektronen- und daran gekoppelten Kernspins in mit Übergangsmetallen oder Seltenen Erden dotierten, fluoridischen Einkristallen umgesetzt. Dabei bilden die Dotierungsionen mit einem resultierenden Elektronenspin den Zentralspin S und die umgebenden Fluor-Kernspins die Qubits I_j . Der Vorteil der Verwendung dieser Systeme gegenüber Kernspins in Flüssigkeitsmolekülen besteht einerseits in der sehr viel stärkeren Hyperfein-Wechselwirkungen aus isotroper Fermi-Kontakt- und anisotroper Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen S - und I -Spins zur Ausbildung der Spin-Spin-Korrelationen, andererseits in der massiven Redundanz identischer S-Bus-Systeme mit jedem Dotierungsion, womit eine Spektroskopie mit den üblichen Detektionsmethoden der Magnetresonanz möglich wird. Die Manipulation der Quantenzustände erfolgte dabei mittels ENDOR-Pulssequenzen durch eine spinselektive Einstrahlung auf den jeweiligen Übergängen der S - und I -Spins. Voraussetzung hierfür ist die selektive Adressierbarkeit aller Qubits im Frequenzraum. Diese ist gegeben, wenn sich alle Hyperfeinwechselwirkungen a_j der Qubits I_j mit dem S -Spin hinreichend unterscheiden. Der anisotrope dipolare Anteil

a_D der Hyperfeinwechselwirkung $a_j = a_{\text{iso}} + a_D$ führt dann unter bestimmten Kristallorientierungen durch die resultierende magnetische Nichtäquivalenz der Qubit-Spins relativ zum S -Spin zu einer Aufspaltung der I_j -Linien in den Qubit-ENDOR-Spektren.

Das S-Bus-Konzept erlaubt unter Ausnutzung der Wechselwirkung \mathcal{H}_{SI} zwischen S - und I -Spins die Präparation korrelierter Quantenzustände der allgemeinen Form

$$\begin{aligned} \rho = & S_z |c_0 \hat{1} + c_{x_1} I_{x_1} + c_{y_1} I_{y_1} + c_{z_1} I_{z_1} + c_{x_2} I_{x_2} + c_{y_2} I_{y_2} + c_{z_2} I_{z_2} + \dots \\ & + c_{xx_{12}} I_{x_1} I_{x_2} + c_{xy_{12}} I_{x_1} I_{y_2} + \dots + c_{zz_{12}} I_{z_1} I_{z_2} + c_{xx_{13}} I_{x_1} I_{x_3} + \dots \\ & + c_{xxx\dots x_{12}\dots N} I_{x_1} I_{x_2} \dots I_{x_N} + c_{xyx\dots x_{12}\dots N} I_{x_1} I_{y_2} \dots I_{x_N} + \dots \\ & + c_{zzz\dots z_{12}\dots N} I_{z_1} I_{z_2} \dots I_{z_N} \Big). \end{aligned}$$

Die Dichtematrix jedes beliebigen Quantenzustandes des S-Bus-Systems ist durch eine solche Linearkombination dieser nichtlinearen Korrelationsterme darstellbar. Diese bilden daher die Grundlage zur Durchführung von Quantenalgorithmen nach dem S-Bus-Konzept. Die gezielte Präparation von Quantenzuständen erfolgt durch eine korrelationsselektive Manipulation der Koeffizienten c_j .

Korrelierte und kohärente Zustände in S-Bus-Systemen können hier nur auf indirektem Weg über den Elektronenspin detektiert werden. Daher ist keine direkte Übertragung der in der NMR angewandten Pulsfolgen hier möglich, jedoch können durchaus Grundkonzepte des NMR-Quantencomputing übernommen werden.

Die Vorgehensweise zur experimentellen Demonstration der grundlegenden Durchführbarkeit von Quantenalgorithmen nach dem S-Bus-Konzept gliedert sich wie folgt in sukzessiv durchzuführende Einzel-Experimente:

1. Präparation und Detektion von Quantenkorrelationen zwischen zwei und mehr Qubits, um die Möglichkeit zur Erzeugung beliebiger Quantenzustände zu demonstrieren.
2. Präparation und Detektion pseudoreiner Zustände unter Anwendung von Korrektursequenzen zur selektiven Manipulation und Anpassung der Qubit-Korrelationen.
3. Implementierung des CNOT-Gatters, zur Darstellung eines universellen Quantengatters.
4. Präparation und Detektion eines verschränkten Zustandes (entanglement).

5. Durchführung eines Quantenalgorithmus.

Die Darstellung der experimentellen Umsetzung in Zusammenhang mit den Messergebnissen und deren Auswertung erfolgt in einem späteren Kapitel zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.

2.2 Elektron-Kernspin-Wechselwirkungen im S-Bus-System

Die NMR-Spektroskopie geht zurück auf die Physiker Bloch und Purcell [48], die im Jahre 1946 unabhängig voneinander den Effekt der Magnetresonanz der Absorption elektromagnetischer Strahlung auf Kernspin-Zeeman-Übergängen entdeckten und hierfür 1952 den Nobelpreis erhielten. Zavoisky untersuchte erstmals denselben Effekt mit Elektronenspins [49]. In den vergangenen Jahren wurden viele erfolgreiche Experimente im Rahmen der Implementierung von Quantencomputern mit den Methoden der gepulsten Kernspinresonanz durchgeführt, die die prinzipielle Machbarkeit von Quantencomputern beweisen.

Die nachfolgende Übersicht bezieht sich auf die Elektron-Kernspin-Wechselwirkung zur Implementierung von Ensemble-Spin-Quantencomputern nach dem S-Bus-Konzeptes in dotierten Fluoridkristallen mittels ENDOR-Verfahren. Es werden einige allgemeine Grundlagen der Magnetresonanz aufgeführt, die für das Verständnis der anschließenden Kapitel nötig sind, jedoch ohne Details an dieser Stelle zu vertiefen, da dies den Rahmen dieser Ausführungen bei weitem sprengen würde. Hierzu gibt es ausführliche Darstellungen in der Literatur [50], [51], [52], [53], [54], [55].

Die Beschreibungen weiterführender Experimente – insbesondere auch rechnerische Darstellungen – finden sich in den jeweiligen Einzelabschnitten der Kapitel über die verschiedenen angewandten ENDOR-Verfahren bei der Implementierung des S-Bus-Konzeptes in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ zur Präparation spezieller Quantenzustände und der Durchführung von Quantenalgorithmen.

Der Hamilton-Operator $\mathcal{H}_{\text{S-Bus}}$ eines S-Bus-Systems mit einem zentralen Elektronenspin S , der über die Hyperfeinwechselwirkungen a_j an N benachbarte Kernspins I_j gekoppelt ist, die als Qubits dienen, enthält die jeweiligen Zeeman-Terme mit den Larmorfrequenzen $\omega_S = 2\pi\nu_S = g_{\text{eff}}\mu_B B_0/\hbar$ und $\omega_{I_j} = 2\pi\nu_{I_j} = \gamma_{I_j} B_0$ sowie die Wechselwirkungsterme der S - und I -Spins mit dem Hyperfeinwechselwirkungstensor \mathcal{A}_j und die Dipol-Dipol-Wechselwirkung \mathcal{D}_{jk} der Kernspins $I_{j,k}$ ($j, k = 1 \dots N$) untereinander (g_{eff} = effektiver g -Faktor; μ_B = Bohrsches Magneton; B_0 = äußeres Magnetfeld; γ_{I_j} = gyromagnetisches Verhältnis von I_j). In erster Näherung genügt es, die Terme höherer Ordnung zu vernachlässigen, so dass der Hamilton-Operator nur Diagonalterme mit z-Komponenten enthält:

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{\text{S-Bus}} &= \hbar \left(\omega_S S + \sum_{j=1}^N \omega_{I_j} I_j \right) \cdot \vec{B}_0 + \hbar \sum_{j=1}^N S \mathcal{A}_j I_j + \hbar \sum_{j<k} I_j \mathcal{D}_{jk} I_k \quad (2.1) \\
&\approx \hbar \omega_S S_z + \hbar \sum_{j=1}^N \omega_{I_j} I_{z_j} + \hbar \sum_{j=1}^N S_z a_j I_{z_j} + \hbar \sum_{j<k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} \\
&= h \nu_S S_z + h \sum_{j=1}^N \nu_{I_j} I_{z_j} + h \sum_{j=1}^N S_z \tilde{a}_j I_{z_j} + h \sum_{j<k} I_{z_j} \tilde{D}_{jk} I_{z_k} .
\end{aligned}$$

Die Energie-Eigenwerte ergeben sich daraus in Abhängigkeit von den Spin-Quantenzahlen m_S und m_j von Elektronen- und Kernspins zu:

$$\begin{aligned}
E(m_S, m_j) &= \hbar \left(\omega_S m_S + \sum_{j=1}^N \omega_{I_j} m_j + \sum_{j=1}^N a_j m_S m_j + \sum_{j<k} D_{jk} m_j m_k \right) \quad (2.2) \\
&= h \left(\nu_S m_S + \sum_{j=1}^N \nu_{I_j} m_j + \sum_{j=1}^N \tilde{a}_j m_S m_j + \sum_{j<k} \tilde{D}_{jk} m_j m_k \right) .
\end{aligned}$$

Die Übergangsfrequenzen berechnen sich im Falle von $S = I = \frac{1}{2}$ gemäß den Auswahlregeln $\Delta m_S = \pm 1$ für ESR-Übergänge, bzw. $\Delta m_j = \pm 1$ für Qubit-NMR-Übergänge zu

$$\begin{aligned}
\nu_{\text{ESR}} &= \nu_S + \sum_{j=1}^N \tilde{a}_j m_j \quad \text{und} \quad (2.3) \\
\nu_{\text{NMR}} &= \nu_{I_j} + \sum_{j=1}^N \tilde{a}_j m_S + \sum_{j<k} \tilde{D}_{jk} m_k .
\end{aligned}$$

Zur Verdeutlichung der Identifizierung der Eigenzustände eines S-Bus-Systems mit den Qubit-Einstellungen eines Quantencomputers ist nachfolgend für das einfache Beispiel eines Zwei-Qubit-S-Bus-Systems ein Termschema für zwei an einen Elektronenspin S gekoppelte Kernspins $I_{1,2}$ in Abb. 2.3 unter Berücksichtigung von Hyperfein- und Kern-Dipol-Dipol-Wechselwirkung dargestellt. Im Rahmen des S-Bus-Konzeptes wird nur ein Unterraum mit $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ genutzt, also nur die Qubit-Zustände $|m_1 m_2\rangle$, die zum selben elektronischen Zustand gehören. Im Fall für $N = 2$ Qubits sind dies $2^N = 2^2 = 4$ mögliche Qubit-Basiszustände $|00\rangle = |++\rangle$, $|01\rangle = |+-\rangle$, $|10\rangle = |-+\rangle$ und $|11\rangle = |--\rangle$, die ein 4-Niveau-Subsystem bilden.

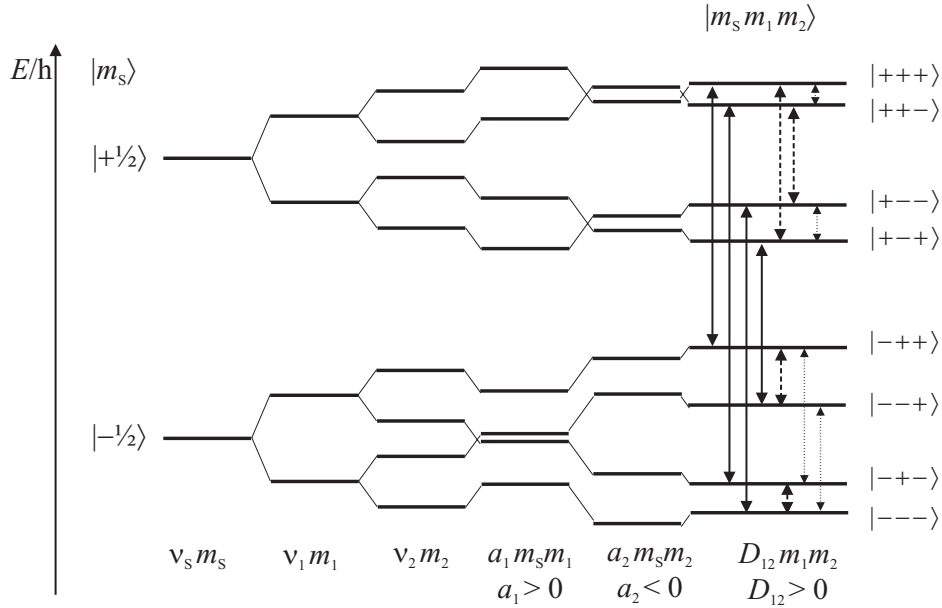


Abb. 2.3: Termschema eines S-Bus-Systems, bestehend aus einem Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ und zwei Qubit-Kernspins $I_{1,2} = \frac{1}{2}$ mit den Energieniveau-Aufspaltungen und -Verschiebungen aufgrund der Zeeman-, Hyperfein- und Dipol-Wechselwirkungen $a_{1,2}$ und D_{12} . Die Eigenzustände sind mit den Spin-Quantenzahlen $|m_s m_1 m_2\rangle$ von Elektronenspin S und den beiden Kernspins $I_{1,2}$ gekennzeichnet. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wurden $a_1 > 0$, $a_2 < 0$ und $D_{12} < 0$ gewählt. Exemplarisch sind ESR-Übergänge (durchgezogene Linien mit $\Delta m_s = \pm 1$), NMR-Übergänge (gestrichelte Linien mit $\Delta m_1 = \pm 1$) und verbotene Übergänge, entsprechend der Kohärenz eines verschränkten Zustandes (gepunktete Linie mit $\Delta m_s = 0$, $\Delta m_1 = \pm 1$ und $\Delta m_2 = \pm 1$) eingezeichnet (Termschema ist nicht massstäblich).

2.2.1 Zeeman-Aufspaltung der Elektronen- und Kernspins

Die Energieniveaus eines Elektronenspins S spalten linear zur Stärke eines äußeren Magnetfeldes B_0 in $2S + 1$ nichtentartete Niveaus der Eigenzustände $|m_s\rangle = | + S \rangle, | + S - 1 \rangle, \dots, | - S \rangle$ auf. Diese Eigenzustände entsprechen der Projektion des magnetischen Momentes $\mu_S = -g\mu_B S = \hbar\gamma_S S$ auf die in Richtung des lokalen Magnetfeld B_0^{loc} ausgerichtete Quantisierungsachse, bezogen auf den spinspezifischen g -Faktor (beim freien Elektron $g_e = 2 \cdot (1 + \frac{\alpha}{2\pi}) \approx 2,0023$; Feinstrukturkonstante $\alpha \approx \frac{1}{137}$), dem Bohrschen Magneton $\mu_B = e\hbar/(2m_e)$ und dem gyromagnetischen Verhältnis $\gamma_S = g\mu_B/\hbar$. Im Fall eines Spin $S = \frac{1}{2}$ führt dies zu einem 2-Niveau-System mit der Übergangsenergie $h\nu_S = g\mu_B B_0$.

Der Hamilton-Operator \mathcal{H}_S der Elektronenspin-Zeeman-Wechselwirkung mit einem B_0 -Feld in z-Richtung $\vec{B}_0 = (0, 0, B_0)$ und dem g -Tensor \underline{g} lautet:

$$\mathcal{H}_S = \underline{g}\mu_B\vec{B}_0 \cdot \mathbf{S} = g_{\text{eff}}\mu_B B_0 S_z = \hbar\omega_S S_z . \quad (2.4)$$

Die Zeeman-Terme der Kernspins I , enthalten an Stelle des Bohrschen Magnetons das rund drei Größenordnungen kleinere Kernmagneton μ_K , das eine positive oder negative, kernspezifische Größe darstellt.

Die Einstrahlung eines senkrecht zu B_0 polarisierten magnetischen Wechselfeldes

$$\vec{B}_1(\omega_0) = \begin{pmatrix} B_1 \cos(\omega_0 t) \\ B_1 \sin(\omega_0 t) \\ 0 \end{pmatrix} , \quad \omega_0 = 2\pi\nu_0 , \quad (2.5)$$

der Frequenz ν_0 induziert Übergänge zwischen den Zeeman-Niveaus der Spins. Im Laborsystem entspricht dies einer Überlagerung der Spinpräzession mit der Larmorfrequenz ω_S um das B_0 -Feld und der Rabi-Präzession mit der Frequenz ω_1 um das B_1 -Feld. In dem mit der Kreisfrequenz ω_0 mitrotierenden Koordinatensystem bleibt im Resonanzfall für $\omega_0 = \omega_S$ nur die Rabi-Präzession um das B_1 -Feld übrig.

Diese einfache Betrachtung gilt nur für den Grenzfall unendlich schmaler Linienbreiten der Spin-Übergänge. Im Experiment sind die Spektrallinien der Spins im allgemeinen inhomogen verbreitert, d.h. es liegt eine Verteilung von Larmorfrequenzen $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu$ eines Spin-Überganges mit der Zentralfrequenz ν_0 vor. Die Spins in den Linienflügeln erfahren bei Einstrahlung mit der Frequenz ν_0 eine Drehung um ein effektives Feld, da in deren mitrotierendem Koordinatensystem sich das B_0 -Feld nicht vollständig heraus transformiert. Der zugehörige Hamilton-Operator \mathcal{H}_{Lab} für Larmor- und Rabi-Präzession einer der innerhalb der inhomogenen Linienbreite liegenden Spinklasse bei ν_S hat im Laborsystem die Form

$$\mathcal{H}_{\text{Lab}} = \hbar\omega_S S_z + \hbar\omega_1 (S_x \cos(\omega_0 t) + S_y \sin(\omega_0 t)) . \quad (2.6)$$

Im mitrotierenden Koordinatensystem ergibt sich daraus für die Einstrahlung bei ν_0 mit relativer Phase Null:

$$\mathcal{H}_{\text{rot}} = \hbar\Delta\omega S_z + \hbar\omega_1 S_x , \quad \Delta\omega = \omega_S - \omega_0 . \quad (2.7)$$

Das resultierende Feld B_{eff} im mitrotierenden Koordinatensystem berechnet sich damit zu

$$\vec{B}_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} B_1 \\ 0 \\ \Delta\omega/\gamma_S \end{pmatrix}, \quad (2.8)$$

mit der effektiven Kreisfrequenz

$$\omega_{\text{eff}} = \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_1^2}. \quad (2.9)$$

Das Kapitel über die Aufnahme von Magnetfeldspektren enthält hierzu noch weitere zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes mit ENDOR-Verfahren relevante Aspekte.

2.2.2 g -Tensor

Das lokale, für den Spin sichtbare Magnetfeld B_0^{loc} ergibt sich aus der Abbildung des äußeren Magnetfeldes B_0 über den g -Tensor \underline{g} auf \vec{B}_0^{loc} :

$$\vec{B}_0^{\text{loc}} = \underline{g}\vec{B}_0 = \begin{pmatrix} g_{xx} & g_{xy} & g_{zx} \\ g_{yx} & g_{yy} & g_{yz} \\ g_{zx} & g_{zy} & g_{zz} \end{pmatrix} \vec{B}_0. \quad (2.10)$$

In Hauptachsenform besitzt der g -Tensor die Matrix

$$\underline{g} = \begin{pmatrix} g_{11} & 0 & 0 \\ 0 & g_{22} & 0 \\ 0 & 0 & g_{33} \end{pmatrix}, \quad (2.11)$$

mit den Hauptachsenwerten g_{11} , g_{22} und g_{33} . Die Darstellung des entsprechenden Tensorellipsoid erfolgt über die Gleichung einer Hyperfläche:

$$\frac{1}{g_{11}}x^2 + \frac{1}{g_{22}}y^2 + \frac{1}{g_{33}}z^2 = 1. \quad (2.12)$$

Ein g -Tensor kann isotrop, mit identischen Hauptachsenwerten oder auch anisotrop sein. Eine Abweichung von der Kugelsymmetrie tritt aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung auf, die den Einfluss und die Symmetrie der lokalen Umgebung des Spins – also des Kristallfeldes, bzw. der chemischen Verschiebung in Molekülen – widerspiegelt. Sind beispielsweise das äußere Magnetfeld B_0 und die z -Achse des g -Tensors parallel ausgerichtet, ergibt sich als resultierender g -Faktor der Wert g_{33} . Bei Drehung des spintragenden Moleküls oder Kristalls um die

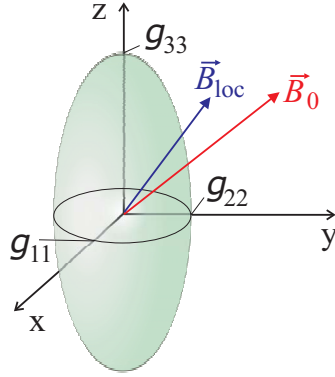


Abb. 2.4: Das schattierte Ellipsoid stellt das g -Tensorellipsoid mit den Hauptachsen g_{11} , g_{22} und g_{33} hier symbolhaft dar. Das äußere Magnetfeld \vec{B}_0 wird durch die g -Tensorabbildung auf das lokale Magnetfeld \vec{B}_0^{loc} transformiert. Diese sind im allgemeinen Fall anisotroper g -Tensoren nicht notwendigerweise parallel gerichtet.

Eulerwinkel ϑ und φ wird der g -Tensor mittransformiert. Im Fall anisotroper g -Tensoren weichen in nichtkanonischen Orientierungen das äußere B_0 -Feld und das für den Spin sichtbare lokale Magnetfeld B_0^{loc} voneinander ab, d.h. die Spin-Quantisierungsachse zeigt mehr nicht in die Richtung des äußeren B_0 -Feldes.

Es ergibt sich für den Spin bei gegebener Tensor-Orientierung im äußeren Magnetfeld B_0 ein effektiver g -Faktor, der auch im Hinblick auf die Implementierung eines Spin-Quantencomputers eine bedeutende Rolle spielt, da die Rabi-Präzessionsfrequenz und die Hyperfeinwechselwirkungen des Elektronenspins S mit umgebenden Kernspins I_j – insbesondere die anisotrope Dipol-Dipol-Wechselwirkung – ebenfalls mit dem g -Faktor skalieren. Die spiegelt sich auch direkt in den Schaltzeiten logischer Quantengatter wieder.

Der g -Tensor transformiert sich bei Drehung um die Euler-Winkel φ , ϑ und ψ wie folgt:

$$\begin{aligned} \underline{g}(\varphi, \vartheta, \psi) &= T(\varphi, \vartheta, \psi) \underline{g} T(\varphi, \vartheta, \psi)^{-1} \\ &= T^z(\varphi) T^y(\vartheta) T^z(\psi) \underline{g} T^z(\varphi)^{-1} T^y(\vartheta)^{-1} T^z(\psi)^{-1}, \text{ mit} \end{aligned} \quad (2.13)$$

$$T^z(\varphi) = \begin{pmatrix} \cos \varphi & -\sin \varphi & 0 \\ \sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix},$$

$$T^y(\vartheta) = \begin{pmatrix} \cos \vartheta & 0 & \sin \vartheta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \vartheta & 0 & \cos \vartheta \end{pmatrix},$$

$$T^z(\psi) = \begin{pmatrix} \cos \psi & -\sin \psi & 0 \\ \sin \psi & \cos \psi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Die Transformationsmatrizen $T^{x,y,z}$ bezeichnen die Drehungen um die x-, y-, z-Achse mit dem jeweiligen Eulerwinkel φ , ϑ und ψ als Drehwinkel. Die Größe des magnetischen Momentes eines Spins skaliert somit mit dem effektiven g -Faktor g_{eff} . Dieser berechnet sich dann für $\psi = 0$ zu

$$g_{\text{eff}}^2 = (g_{11} \cos \varphi \sin \vartheta)^2 + (g_{22} \sin \varphi \sin \vartheta)^2 + (g_{33} \cos \vartheta)^2. \quad (2.14)$$

Der effektive g -Faktor g_{eff} bestimmt somit die Lage der ESR-Linien im Magnetfeldspektrum. Umgekehrt kann man dann auch aus der Linienlage auf die Orientierung des g -Tensors und damit des Kristalls oder Moleküls im Magnetfeld schließen.

Für einen axialsymmetrischen Tensor mit den Hauptachsenwerten $g_{11} = g_{22} = g_{\perp}$ und $g_{33} = g_{\parallel}$ ist der effektive g -Faktor gegeben durch:

$$g_{\text{eff}}^2 = g_{\perp}^2 + (g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2) \cos^2 \vartheta. \quad (2.15)$$

Im Falle eines axialsymmetrischen g -Tensors ist aufgrund dessen alleiniger Abhängigkeit vom Euler-Winkel ϑ die Orientierung eines Einkristalls nur dann bestimmbar, wenn der Kristall mindestens zwei nicht kollineare Orientierungen der Tensorellipsoide von Spinklassen enthält. Im Magnetfeld-Spektrum zeigt dann jede Zentrenklasse eine Linie, aus deren Gesamtheit auf die Orientierung der Elementarzelle eines Kristalls relativ zum B_0 -Feld geschlossen werden kann. Hieraus können dann weitere Rückschlüsse auf das Kopplungsnetzwerk des S -Spins mit den I_j -Spins in einem S-Bus-System hinsichtlich der selektiven Adressierbarkeit der Qubits gezogen werden.

In diesem Zusammenhang macht sich im Fall einer großen g -Anisotropie bei der Induktion von Spin-Übergängen ein weiterer Effekt bemerkbar: Ist das B_0 -Feld beispielsweise parallel zur g_{\parallel} -Achse des Tensors ausgerichtet, ergibt sich als effektiver g -Faktor bezüglich B_0 der Wert g_{\parallel} . Hingegen für das eingestrahlte Wechselfeld B_1 , das senkrecht zu B_0 orientiert ist, ergibt sich als effektiver g -Faktor der Wert g_{\perp} . In nichtkanonischen Orientierungen stehen dann die lokalen B_0 - und B_1 -Felder unter Umständen auch nicht mehr senkrecht zueinander. Dies führt dazu, dass Spin-Rotationen bezüglich der lokalen Magnetfelder betrachtet werden müssen, da bei einer Nichtorthogonalität der lokalen B_0 - und B_1 -Felder Mischungen aller Spin-Operatoren bei Anwendung von Transformationen auftreten. Zu einer weitreichenden Verkomplizierung führt dies insbesondere bei der Betrachtung

von Evolutionen unter Spin-Spin-Wechselwirkungen, bei denen dann Quantisierungsachsen untereinander und Wechselwirkungstensoren gegen die Quantisierungsachsen bei nichtkanonischen Kristallorientierungen deutlich gegeneinander verkippt sein können.

2.2.3 Spin-Spin-Wechselwirkungen

Die Nutzung der Wechselwirkungen zwischen Qubits ist ein essentieller Bestandteil der Quanteninformationsverarbeitung und hier auch im speziellen Fall der Anwendung des S-Bus-Konzeptes mit ENDOR-Verfahren. In diesem Kapitel werden daher die grundlegenden Spin-Spin-Kopplungen in ihren Grundzügen kurz vorgestellt.

Neben der Kopplung des Elektronenspins S an das äußere Magnetfeld B_0 und das Kristallfeld über die Spin-Bahn-Kopplung gibt es eine weitere Wechselwirkung mit den Magnetfeldern der magnetischen Momente, die durch benachbarte Spins erzeugt werden. Dies können ihrerseits wiederum Wechselwirkungen mit anderen Elektronenspins S sein, aber im vorliegenden Fall dotierter Fluoridkristalle vor allem mit den Kernspins I_j . Erstere Kopplung nennt man Austausch-Wechselwirkung, letztere Hyperfeinwechselwirkung. Eine Austauschwechselwirkung $\mathcal{H}_A = S_1 A_A S_2$ zwischen zwei Elektronenspins, also im vorliegenden Fall zwischen zwei S-Bus-Systemen wird hier nicht betrachtet, da die einzelnen S-Bus-Systeme im Kristallverband bei den vorliegenden Dotierungen aufgrund ihres Abstandes über einige zehn Elementarzellen als nahezu wechselwirkungsfrei betrachtet werden können. Die Hyperfeinwechselwirkung des S-Bus-Netzwerkes wird zur Präparation von Spin-Korrelationen genutzt. Der zugehörige Hamilton-Operator \mathcal{H}_{SI} enthält den Hyperfeinwechselwirkungstensor \mathcal{A}_j , der allgemein in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Anteil zerlegbar ist:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{SI} &= \hbar \sum_{j=1}^N S \cdot \mathcal{A}_j \cdot I_j, & (2.16) \\ \mathcal{A}_j &= \underbrace{\frac{1}{2}(\mathcal{A}_j + \mathcal{A}_j^T)}_{\mathcal{A}^{\text{sym}}} + \underbrace{\frac{1}{2}(\mathcal{A}_j - \mathcal{A}_j^T)}_{\mathcal{A}^{\text{asym}}}, \\ \mathcal{A}^{\text{sym}} &= \begin{pmatrix} a_{xx} & a_{xy} & a_{xz} \\ a_{xy} & a_{yy} & a_{yz} \\ a_{xz} & a_{yz} & a_{zz} \end{pmatrix}, \\ \mathcal{A}^{\text{asym}} &= \begin{pmatrix} 0 & a'_{xy} & a'_{xz} \\ -a'_{xy} & 0 & a'_{yz} \\ -a'_{xz} & -a'_{yz} & 0 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Aus Symmetriegründen der Spinwellenfunktionen ist im allgemeinen der antisymmetrische Anteil meist Null: $\mathcal{A}^{\text{asym}} = 0$. Der symmetrische, diagonalisierbare Anteil \mathcal{A}^{sym} lässt sich weiter zerlegen in einen isotropen und einen anisotropen Anteil:

$$\begin{aligned}\mathcal{A}^{\text{sym}} &= \mathcal{A}^{\text{iso}} + \mathcal{A}^{\text{aniso}} & (2.17) \\ &= a^{\text{iso}} \hat{1} + \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(\eta a^{\text{iso}} + (\eta - 1)\Delta a) & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{1}{2}(\eta a^{\text{iso}} + (\eta + 1)\Delta a) & 0 \\ 0 & 0 & \Delta a \end{pmatrix}, \\ a^{\text{iso}} &= \frac{1}{3}(a_{xx} + a_{yy} + a_{zz}), \\ \Delta a &= a_{zz} - a_j^{\text{iso}}, \\ \eta &= \frac{a_{xx} - a_{yy}}{a_{zz}}.\end{aligned}$$

Dies entspricht den beiden Anteilen der Hyperfeinwechselwirkung, bestehend aus der isotropen Fermi-Kontakt-Wechselwirkung $\mathcal{A}_j^{\text{iso}} = \mathcal{A}_j^{\text{Fermi}}$ und der anisotropen Dipol-Dipol-Wechselwirkung $\mathcal{A}_j^{\text{aniso}} = \mathcal{A}_j^{\text{Dipol}}$. Die isotrope Fermi-Kontakt-Wechselwirkung resultiert aus der nicht verschwindenden Spindichte des Elektronenspins S am Ort des Kernspins I_j und hängt damit von der Wahrscheinlichkeitsdichte der S -Spin-Wellenfunktion ψ_S ab:

$$a^{\text{iso}} = \frac{8\pi}{3} \frac{\mu_0}{4\pi} g_S \mu_B g_{I_j} \mu_K |\psi_S|^2. \quad (2.18)$$

Eine anisotrope Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} besteht sowohl zwischen S - und I -Spins gleichermaßen wie zwischen I -Spins untereinander. Letztere ist jedoch aufgrund des Unterschiedes von Bohrschem Magneton μ_B und Kernmagneton μ_K rund drei Größenordnungen kleiner. Sie hängt vom Winkel ϑ des Verbindungsvektors \vec{r}_{AB} der beiden betrachteten Spins I_A und I_B relativ zum B_0 -Feld und dem Spin-Spin-Abstand $r_{AB} = |\vec{r}_{AB}|$ ab (Abb. 2.5). Daher ist auch aufgrund des großen Abstandes der S-Bus-Systeme eine Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen diesen vernachlässigbar.

Der zugehörige Hamilton-Operator \mathcal{H}_{DD} lautet in Abhängigkeit von den magnetischen Momenten $\mu_{A,B}$ der Spins I_A und I_B :

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{\text{DD}} &= I_A \mathcal{D}_{AB} I_B & (2.19) \\ &= \frac{\mu_0}{4\pi} \left(\frac{\mu_A \mu_B}{r_{AB}^3} - \frac{3(\mu_A \vec{r}_{AB})(\mu_B \vec{r}_{AB})}{r_{AB}^5} \right) \\ &= \frac{\mu_0}{4\pi} g_{I_A} g_{I_B} \mu_A \mu_B \left(I_A I_B - 3(I_A \vec{r}_{AB})(I_B \vec{r}_{AB})/r_{AB}^2 \right) / r_{AB}^3.\end{aligned}$$

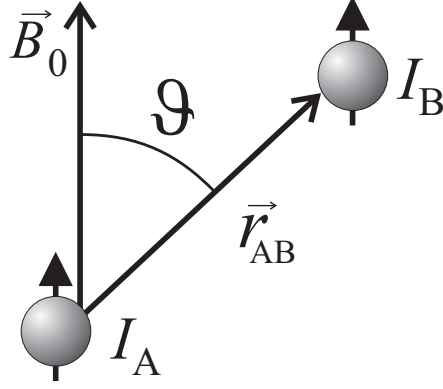


Abb. 2.5: Die Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen zwei Spins I_A und I_B hängt vom Winkel ϑ zwischen Magnetfeldvektor \vec{B}_0 und dem Verbindungsvektor \vec{r}_{AB} sowie deren Abstand $|\vec{r}_{AB}|$ der beiden Spins ab.

Dieser Term lässt sich umformen zu

$$\mathcal{H}_{\text{DD}} = \frac{\mu_0 g_A g_B \mu_A \mu_B}{4\pi r_{AB}^3} (A + B + C + D + E + F) . \quad (2.20)$$

Die einzelnen Beiträge dieses Dipol-Alphabetes teilen sich in Abhängigkeit der Euler-Winkel zwischen Magnetfeld- und internuklearem Vektor wie folgt auf:

$$\begin{aligned} A &= (1 - 3 \cos^2 \vartheta) I_{z_A} I_{z_B} \quad (\text{säkularer Term}) , \\ B &= \frac{1}{2} (1 - 3 \cos^2 \vartheta) (I_{z_A} I_{z_B} - I_A \cdot I_B) , \\ C &= -\frac{3}{2} \sin \vartheta \cos \vartheta e^{-i\varphi} (I_{z_A} I_{+B} + I_{+A} I_{z_B}) , \\ D &= C^* = -\frac{3}{2} \sin \vartheta \cos \vartheta e^{i\varphi} (I_{z_A} I_{-B} + I_{-A} I_{z_B}) , \\ E &= -\frac{3}{4} \sin^2 \vartheta e^{-2i\varphi} I_{+A} I_{+B} , \\ F &= E^* = -\frac{3}{4} \sin^2 \vartheta e^{2i\varphi} I_{-A} I_{-B} . \end{aligned} \quad (2.21)$$

Die Winkel ϑ und φ entsprechen dabei den Eulerwinkeln, die der internukleare Vektor \vec{r}_{AB} mit dem Magnetfeldvektor \vec{B}_0 einschließt.

Falls die Differenz $\Delta\omega_{AB}$ der Larmorfrequenzen $\omega_{A,B}$ der Spins $I_{A,B}$ groß gegenüber der Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} ist, reicht es aus in störungstheoretischen Berechnungen nur die Diagonalelemente des säkularen Termes A mit einzubeziehen. Die Terme B bis F sind höherer Ordnung der Störungstheorie und

dann vernachlässigbar, da diese mit $1/\Delta\omega_{AB}$ skalieren. Als Übergangsenergie, also der Differenz der Erwartungswerte $\langle \hat{H}_{DD} \rangle$ zwischen zwei dieser Sub-Niveaus, ergibt sich dann für Spins $I_A = I_B = \frac{1}{2}$ beispielsweise:

$$\begin{aligned}
 h\nu_{DD} &= \langle \hat{H}_{DD}(\uparrow\uparrow) \rangle - \langle \hat{H}_{DD}(\downarrow\uparrow) \rangle & (2.22) \\
 &= \frac{\mu_0 g_A g_B \mu_A \mu_B}{4\pi r_{AB}^3} \cdot \frac{1}{2} (1 - 3 \cos^2 \vartheta) \\
 &= \frac{1}{2} h \widetilde{D} (1 - 3 \cos^2 \vartheta) .
 \end{aligned}$$

Die Terme höherer Ordnung enthalten transiente Operatorkomponenten $I_{x,y}$, die sich in Erzeuger- und Vernichterooperatoren I_{\pm} umformen lassen. Diese sind verantwortlich für die sogenannten Flip-Flop-Prozesse, die auch für die Dekohärenz ursächlich sind.

Die vor allem dipolare Qubit-Qubit-Kopplung dient im Rahmen des S-Bus-Konzeptes bei der Implementierung mit dotierten Fluoridkristallen zur Umsetzung von Quantengattern und zur Verschränkung von Qubits. Im Kapitel zur Charakterisierung des *Qubyte+1* wurden die Hyperfeinwechselwirkungen und die Dipol-Dipol-Wechselwirkung in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ experimentell bestimmt und mit Simulationswerten verglichen. Anhand dieser Ergebnisse konnte das CNOT-Gatter und die Präparation des EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$ realisiert werden.

Kapitel 3

Fluoridkristalle als Quantenprozessoren

Die Zielsetzung der Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers in Festkörpern nach dem S-Bus-Konzept mittels ENDOR-Verfahren wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit mit Übergangsmetallen oder Seltenen Erden dotierten Fluorid-Einkristallen verfolgt. Die Dotierungsionen bilden dabei den zentralen Elektronenspin S des S-Bus-Systems, an den über die Hyperfeinwechselwirkung a_j die umgebenden Fluor-Kernspins $I_j = \frac{1}{2}$ gekoppelt sind, die aufgrund ihres großen gyromagnetischen Verhältnisses und ihrer Isotopenreinheit sehr gut als Qubits geeignet sind.

Das Ensemble von S-Bus-Systemen kann dabei als eine Gesamtheit einzelner, unabhängiger Quantenprozessoren im Sinne der Durchführung von Quantenalgorithmen betrachtet werden, die parallel die identischen unitären Transformationen der Qubit-Manipulationen erfahren [56]. Dies ergibt eine massive Redundanz bezüglich der Messbarkeit von Quantenzuständen. Die Implementierung von Quantenalgorithmen wäre prinzipiell auch an einem einzelnen S-Bus-System möglich – hätte sogar den Vorteil reiner Quantenzustände – wäre aber mit den hier angewandten Spektroskopiemethoden nicht durchführbar. Nach der hier angewandten Messmethode der ESR und der ENDOR-Verfahren benötigt man ein S-Bus-Ensemble in einem Einkristall, der für die Messbarkeit zwar statistisch, aber möglichst homogen verteilte ausreichend viele identische S-Bus-Spinsysteme enthält, ohne dass eine nennenswerte Austauschwechselwirkung zwischen den einzelnen S-Bus-Systemen auftritt.

In den nachfolgenden Abschnitten dieses Kapitels erfolgt nach Darstellung der Auswahlkriterien von Dotierungsionen und Wirtskristallen [57], [50], [52], [58], [59] eine Betrachtung der kristallographischen Eigenschaften von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ – das sich zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes als am vorteilhaftesten erwies –

in Zusammenhang mit dessen Kristallzuchtverfahren sowie eine quantenmechanische Betrachtung des Ce^{3+} -Spins in kubischer und tetragonaler Umgebung in CaF_2 . Weiterhin sind die ESR- und ENDOR-Messmethoden und -ergebnisse zur Charakterisierung des *Qubyte+1*-S-Bus-Systems $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in der Magnetresonanz – vor allem hinsichtlich der Bestimmung des Kopplungsnetzwerkes der Spins des S-Bus-Systems – aufgeführt.

3.1 Dotierungen mit Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$

Bei der experimentellen Umsetzung des S-Bus-Konzeptes mussten zunächst geeignete Ionen mit einem resultierenden Elektronenspin $S \neq 0$ für die Dotierung der Fluoride in Zusammenhang mit den dazu passenden Wirtskristallen ausgewählt werden. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit geht es um die Demonstration grundlegender Experimente nach dem S-Bus-Konzept. Aus diesem Grund sollten nur Dotierungen mit einem Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ oder auch effektiven Spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ als Qubit-Monitor ausgewählt werden. Höhere Spins können weitreichende Komplikationen bei der Implementierung eines Quantencomputers hinsichtlich der nötigen Erweiterungen der Booleschen Algebra mit sich bringen.

Das Element des Dotierungssions sollte weiterhin isotonenrein sein oder im Idealfall keinen Kernspin besitzen, da sich sonst je nach Isotopenverteilung anteilmäßig die durch die Hyperfeinwechselwirkung mit dem eigenen Kernspin aufgespaltenen Linien in den Magnetfeldspektren überlappen oder je nach gyromagnetischem Verhältnis des jeweiligen Isotops nicht deckungsgleich oder nicht hinreichend weit aufgespalten sein könnten. Eine selektive Einstrahlung auf den Übergängen eines Isotops von S -Spins wäre dann unter Umständen nicht mehr gewährleistet. Dies hätte zur Folge, dass die einzelnen I_j -Spins als Qubit nicht mehr durch frequenzselektive Einstrahlung in den ENDOR-Pulssequenzen gezielt manipuliert werden könnten und man undurchschaubare Mischungen und Korrelationen von Quantenzuständen des S-Bus-Systems erhielte. Ein Quantenalgorithmus wäre so nur sehr schwierig oder gar nicht durchführbar.

Im Anschluss ist eine Auswahl von Spin- $\frac{1}{2}$ -Systemen aufgelistet, die mögliche Dotierungen der Fluoridkristalle darstellen:

1. Ein Elektronenspinsystem $s = \frac{1}{2}, l = 0$ stellt das neutrale Wasserstoffatom H^0 dar, das einen idealen Zentralspin im S-Bus-System darstellen würde [60]. Jedoch sind die Kristallzuchtverfahren mittels Diffusion oder additiver Verfärbung nicht sonderlich zuverlässig im Sinne der Herstellung dotierter Einkristalle mit möglichst homogener Verteilung der Dotierungszentren. Außerdem würde bei der Eindiffusion des Wasserstoffs ein S -Spin-Konzentrationsgradient entstehen, der in Bereichen höherer Konzentration eine Austauschwechselwirkung der S-Bus-Spinsysteme untereinander nicht ausschließen könnte. In diesem Fall wäre die Voraussetzung eines Ensembles identischer, unabhängiger S-Bus-Systeme nicht erfüllt. Weiterhin sind wasserstoffdotierte Proben auch nur eine verhältnismäßig kurze Zeit von einigen Wochen bis Monaten haltbar, da der Wasserstoff aus dem Kristall wieder herausdiffundiert.
2. Einen weiteren Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ bildet ein F-Zentrum in einem Kristall [61], [62]. Schwierigkeiten für erste, grundlegende Experimente könnte

dabei die weitreichende Kopplung des F-Zentrums aufgrund dessen sehr ausgedehnter Wellenfunktion an die Kernspins in dessen Umgebung bereiten, die zu einer riesigen Linienzahl in den Spektren führt. Ein möglicher Jahn-Teller-Effekt aufgrund mehrerer Potentialminima der Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Kristallgitter eines F-Zentrums könnte zu weiteren Komplikationen der selektiven Adressierbarkeit der Qubits führen.

3. Neutrale Alkaliatome besitzen aufgrund ihres einzelnen Valenzelektrons in der s-Schale ebenfalls einen Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ mit Bahndrehimpuls $L = 0$, der auch als Zentralspin S geeignet wäre – ebenso neutrale Silber- und Goldatome [63], [64]. Es ist auch möglich, trotz der sehr hohen Reaktivität der Alkalimetalle in Alkalihalogeniden neutrale Alkaliatome als Kolloide zu implantieren, die auch schmale und intensive Linien in den ESR-Spektren zeigen, wie z.B. Li:LiF, das oft als Eichprobe bzw. Referenzsignal in der ESR verwendet wird. Ein solches Kolloid ist als S-Bus-System vollkommen ungeeignet, da in diesem Fall nicht jeder Elektronenspin die gleiche lokale Umgebung besäße, wie es für das Ensemble-Spin-Quantencomputing nach dem S-Bus-Konzept unabdingbar ist. Ein weiteres Problem besteht in der Darstellung der Wellenfunktion des Kolloids, das je nach Größe und Atomabstand ein Gesamtquantensystem aus mehreren Atomen bilden kann. Bei unterschiedlicher Symmetrie und Anzahl an Atomen in den Kolloiden würde sich für jedes Kolloid-Quantensystem eine andere resultierende Gesamtwellenfunktion und somit auch eine andere Spindichteverteilung ergeben. Eine Implementierung eines Ensemble-Quantencomputers nach dem S-Bus-Konzept ist damit nicht möglich. Bei einer möglichen Einzelsystem-Detektion wäre ein solcher Ansatz jedoch sicherlich nicht uninteressant.
4. Als Dotierungsionen, die in den S-Bus-Spinsystemen den zentralen Elektronenspin tragen können, sind weiterhin noch die Übergangsmetalle und Seltenen Erden prädestiniert, da diese ungepaarte Elektronen in der 3d- bzw. 4f-Schale enthalten und somit im allgemeinen einen resultierenden Elektronenspin tragen, falls die genannten Schalen nicht halb oder vollständig aufgefüllt sind [65], [66], [67], [68]. Bei diesen Elementen ist jedoch der von Null verschiedene Bahndrehimpuls der Elektronen zu berücksichtigen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden somit experimentell ausgesuchte Übergangsmetalle und Seltene Erden anhand ihrer ESR-Spektren auf ihre Eignung als zentrales $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ -System hin untersucht. Primär waren dies Elemente, die in der jeweiligen, im Kristall eingebauten Oxidationsstufe entweder ein einzelnes Elektron oder Loch in der 3d- bzw. 4f-Schale aufweisen. Die Elektronen dieser Zustände besitzen jedoch einen Bahndrehimpuls mit $L = 2$ bzw. $L = 3$, der zu dem Gesamtdrehimpuls $J = L + S$ beiträgt. Die Energieniveaus dieser Elemente erfahren daher für $J \geq 1$ im Kristallfeld aufgrund der Spin-Bahnkopplung eine Nullfeldaufspaltung. Dies resultiert

in einer Mischung der Wellenfunktionen und einer Verschiebung der Energieniveaus. Dieser Effekt wirkt sich besonders stark bei den Übergangsmetallen aus. Bei hinreichend starken Kristallfeldern ist jedoch davon auszugehen, dass der Bahndrehimpuls L der Übergangsmetalle vom Spindrehimpuls entkoppelt ist (Orbital Quenching). Bei den Seltenen Erden dominiert im Vergleich zur Kristallfeldwechselwirkung jedoch die Spin-Bahn-Kopplung. Daher muss bei den Seltenen Erden der Bahndrehimpuls bei der Formulierung der Wellenfunktion auf jeden Fall mit berücksichtigt werden. Letzlich entscheidend ist jedoch auch hier die Kristallfeldaufspaltung, in der ein effektives Spin- $\frac{1}{2}$ -System auch von einem Subsystem von Zuständen gebildet werden kann, die ihrerseits schon eine Mischung von Wellenfunktionen darstellen.

Nachfolgend sind die hier wichtigsten aus den Übergangsmetallen und Seltenen Erden ausgewählten Elemente mit deren Elektronenkonfigurationen in den gewünschten Oxidationsstufen aufgeführt, mit denen verschiedene Alkalifluoride dotiert und spektroskopisch untersucht wurden. Anmerkungen zur Auswahl geeigneter Wirtskristalle für diese Ionen finden sich im nächsten Abschnitt dieses Kapitels.

Element	Elektronenkonfiguration	gewünschte	Oxidationsstufe
Sc	[Xe] 3d ¹ 4s ²	Sc ²⁺	[Ar] 3d ¹
Ti	[Ar] 3d ² 4s ²	Ti ³⁺	[Ar] 3d ¹
Cu	[Ar] 3d ¹⁰ 4s ¹	Cu ²⁺	[Ar] 3d ⁹
Ce	[Xe] 4f ² 6s ²	Ce ³⁺	[Xe] 4f ¹
Yb	[Xe] 4f ¹⁴ 6s ²	Yb ³⁺	[Xe] 4f ¹³

An dieser Stelle ist vorab zu erwähnen, dass sich für die durchgeführten Experimente nach dem S-Bus-Konzept das Kristallsystem CaF₂:Ce als besonders geeignet erwies.

3.2 Fluoridkristalle als Qubit-Träger

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden Fluoride als Wirtskristall für die Übergangsmetalle, bzw. Seltenen Erden ausgewählt. Die Vorteile ¹⁹F-Kernspins nach dem S-Bus-Konzept als Qubits zu verwenden stellen sich wie folgt dar: Sie bilden als Kernspin $I_j = \frac{1}{2}$ ein ideales Qubit und besitzen nach den Protonen das höchste gyromagnetische Verhältnis $\gamma = g_{(^{19}\text{F})}\mu_K/\hbar$ aller Kernspins. Dies führt unter anderem zu kurzen Rabi-Oszillationsperioden, einer starken Hyperfeinwechselwirkung a_j und dipolaren Qubit-Qubit-Wechselwirkung D_{jk} , die einen

essentiellen Bestandteil eines Quantencomputers darstellen. Weiterhin ist Fluor isotopenrein, es liegt also in Alkalifluoriden nur eine Sorte von Qubits vor, so dass aufgrund unterschiedlicher gyromagnetischer Verhältnisse einzelner Isotope keine Linienüberschneidungen in den ENDOR-Spektren die selektive Manipulation von Qubitzuständen erschwert.

In einem Quantencomputer müssen die einzelnen Qubits selektiv adressierbar sein, damit die individuelle Präparation und Detektion von Quantenzuständen der Qubits möglich ist. Im Fall der Verwendung von Elektronen- und Kernspins nach dem S-Bus-Konzept müssen also die Kernspinübergänge aller verwendeten Qubits eines S-Bus-Zentrums im ENDOR-Spektrum vollständig aufgelöst sein, um eine Manipulation der jeweiligen Qubit-Quantenzustände durch die frequenzselektive Einstrahlung auf dem zugehörigen Qubit-ENDOR-Übergang zu gewährleisten. Dies ist der Fall, wenn die den S -Spin umgebenden I_j -Spins magnetisch nicht äquivalent sind, d.h. sich in ihrer Hyperfeinwechselwirkung in der Summe aus isotroper Fermi-Kontakt- und anisotroper Dipol-Dipol-Wechselwirkung – je nach Kristallorientierung im B_0 -Feld – hinreichend voneinander unterscheiden. Voraussetzung hierfür ist eine erniedrigte Symmetrie des S-Bus-Zentrums. Diese Symmetrierniedrigung kann entweder durch eine bereits gegebene Verzerrung der Elementarzelle des Wirtskristalls oder durch eine eventuell für das Dotierungsion nötige, interstitielle Ladungskompensation erfolgen. Letzteres kann, je nach Gittersymmetrie, dazu führen, dass in einem dotierten Kristall mehrere Zentrenklassen gleichzeitig vorliegen, die als solche zwar identisch sein können, sich in ihrer relativen Lage zueinander unterscheiden, je nachdem in welcher Raumrichtung die Symmetrieachse des Zentrums zeigt oder die interstitielle, lokale Ladungskompensation eingebaut wurde. Dies ist unproblematisch, wenn die zugehörigen ESR-Übergänge entweder entartet oder hinreichend weit aufgespalten sind, um eine klassenselektive Einstrahlung auf dem jeweiligen Übergang der S-Bus-Zentren zu gewährleisten.

Ein weiteres Kriterium bei der Auswahl geeigneter Fluorid-Kristalle sind Phasenübergänge. Die Elementarzelle bleibt beim Abkühlen des Kristalls auf wenige Kelvin, wie das in der Magnetresonanz zur Verminderung von Spin-Relaxationen durchaus üblich ist, nur erhalten, wenn der Kristall keinen Phasenübergang durchläuft, bei dem sich die Gitterstruktur ändert. Solche Phasenübergänge finden in manchen Systemen auch bei höherer Temperatur bei der Herstellung statt. Dies muß für die Kristallzucht mit in Betracht gezogen werden, da ein solcher aus der Schmelze gezogener Kristall beim Abkühlen unter Umständen Zonen unterschiedlicher Modifikationen besitzt und sich dies natürlich auf die Zahl der möglichen verschiedenartigen S-Bus-Zentren mit unterschiedlicher lokaler Symmetrie nachteilig auswirkt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes zahlreiche fluoridische Kristallsysteme mit den erwähnten Dotierungen untersucht, die

in Zusammenarbeit mit Prof. H. Paus vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart in dessen Kristalllabor hergestellt wurden. Das Hauptaugenmerk lag dabei nicht darauf, möglichst viele Qubits in einem S-Bus-System zu vereinen, sondern neben einer individuellen Adressierbarkeit der Qubits durch erniedrigte Symmetrie einen effektiven Elektronenspin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ als Dotierungsion zu finden.

Verschiedene Übergangsmetall- und Selten Erd-dotierte Fluoridkristalle wurden in der cw- und Puls-ESR, bzw. mit ENDOR-Verfahren eingehend untersucht und sind nachfolgend aufgezählt:

CaF₂:Ce³⁺ [69]; [70]; [71], [72];
 CaF₂:Mn²⁺ [63];
 CaF₂:La²⁺;
 CaF₂:Sc²⁺; CaF₂:Sc₂O₃ [73], [74], [66]; [75]
 CaF₂:Ti³⁺ [76];
 CaF₂:Tm²⁺ [77] [78];
 CaF₂:Y³⁺ [79];
 CaF₂:Yb³⁺ [80] [77];

 KMgF₃:Ce³⁺ [81];
 KMgF₃:Cu²⁺ [82]; [83];
 KMgF₃:Mn²⁺ [84];

 K₂NaAlF₆:Ce³⁺;

 KZnF₃:Ce³⁺;
 KZnF₃:Ti³⁺ [84];

 LaF₃:Ce³⁺ [85];

 LiF₃:Ti³⁺ [86]; [84];

 LiCaAlF₆:Ce³⁺ [87];

 LiSrAlF₆:Ce³⁺; [87]
 LiSrAlF₆:Cr³⁺ [88];
 LiSrAlF₆:Ti³⁺ [88];

 YLiF₄:Ti³⁺;
 YLiF₄:Yb³⁺ [88];

 YZrF₇:Ce [89], [90]

Es wurden zwar auch Spektren weiterer Verbindungen aufgenommen, die sich jedoch als zunächst ungeeignet zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes zeigten. Unter den denkbar möglichen Kombinationen von Dotierungen und Wirtskristallen erwies sich CaF₂:Ce als das zur Implementierung des S-Bus-Konzeptes geeignetste System. Die Charakterisierung dieses Systems erfolgt im nachfolgenden Kapitel.

3.3 Das S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$

Dotierungszentren in Alkalihalogeniden waren schon vor einigen Jahrzehnten Gegenstand intensiver Untersuchungen. Dabei ging es hauptsächlich um die Strukturaufklärung der Elementarzellen, wofür auch ENDOR-Verfahren genutzt wurden. Daraus wurden auch zahlreiche, theoretische Betrachtungen zur analytischen Bestimmung der Wellenfunktionen der Zentren extrahiert.

$\text{CaF}_2:\text{Ce}$ (Abb. 3.1) wies von den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kristallsystemen zur Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers die beste Eignung als S-Bus-System auf. Das Ce^{3+} -Ion mit einem effektiven Elektronenspin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ bildet den Zentralspin des S-Bus-Systems und die daran über die Hyperfeinwechselwirkung gekoppelten F^- -Kernspins die Qubits.



Abb. 3.1: CaF_2 -Kristall, der aus einem Rohling herausgespalten wurde. Die Spaltflächen liegen senkrecht zur $[111]$ -Richtung der Fluor-Kuben des Kristallgitters. Weitere Erläuterungen im Text.

In diesem Kapitel sind neben den kristallographischen Eigenschaften von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$, das Herstellungsverfahren sowie eine Darstellung der verschiedenen Anteile der Grundzustandswellenfunktion des Ce^{3+} -Ions im CaF_2 -Kristallfeld beschrieben, die den effektiven Spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ des Zentralspins bilden.

3.3.1 Kristalleigenschaften von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$

Das CaF_2 -Gitter besitzt O_h^f -Symmetrie und besteht aus einem Grundgerüst aus F^- -Kuben, wobei sich im Zentrum eines jeden zweiten Würfels ein achtfach koordiniertes Ca^{2+} -Ion befindet. Die Gitterkonstante a entspricht der Kantenlänge

zweier F^- -Würfeln und beträgt 546,3 pm [72]. Bei Dotierung mit Cer werden Ca^{2+} -Ionen durch Ce^{3+} -Ionen ersetzt (Abb. 3.3). Beide Ionen weisen fast identische Ionenradien auf:

$$\begin{aligned} r_{(\text{Ca}^{2+})} &= 126 \text{ pm [91];} & 99 \text{ pm [72];} \\ r_{(\text{Ce}^{3+})} &= 128 \text{ pm [91];} & 102 \text{ pm [72];} \\ r_{(\text{F}^-)} &= 119 \text{ pm [91];} & 136 \text{ pm [72];} \end{aligned}$$

Daher ist von einer vernachlässigbaren Störung des Kristallgitters durch die Cer-Dotierung selbst auszugehen. Eine für die ESR, mit herkömmlichen Methoden messbare Cer-Dotierung liegt bei 10^{-5} bis 10^{-4} . Dies entspricht einem mittleren Abstand der S-Bus-Zentren um die Ce^{3+} -Ionen von rund 20 bis 50 Einheiten der CaF_2 -Gitterkonstanten. Eine Austauschwechselwirkung der Elektronenspins der verschiedenen S-Bus-Zentren untereinander ist damit aufgrund deren Abstandes primär vernachlässigbar.

Die Ladungskompensation des Ce^{3+} -Ions erfolgt durch ein interstitielles F^- -Ion, das im Zentrum eines leeren Fluor-Kubus eingebaut wird und aufgrund seiner Größe zu einer Gitterverzerrung führt. Dies kann entweder nichtlokal an beliebiger Stelle im Zwischengitter, also weiter entfernt vom Ce^{3+} -Ion erfolgen, so dass die direkte S-Spin-Umgebung kubisch bleibt oder das interstitielle F^- -Ion befindet sich bei lokaler Ladungskompensation in einem der direkten Nachbar-Fluor-Würfel in [100]-, [010]- oder [001]-Richtung des Cer-Dotierungsions (Abb. 3.2) – nachfolgend als x-, y- und z-Zentrum bezeichnet. Die Folge ist eine Symmetrierniedrigung von kubischer O_h^h zu einer tetragonalen C_4 -Symmetrie des S-Bus-Zentrums mit vierzähliger Symmetrieachse in Richtung der Ladungskompensation [72], [67]. Diese stellt zusammen mit den acht nächsten Nachbarn des Ce^{3+} -Ions neun selektiv adressierbare Qubits dar: Das *Qubyte+1* (Abb. 3.3). Andererseits ist auch ein Einbau des ladungskompensierenden Fluor-Ions in einem in [111]-Richtung anschließenden Fluorkubus möglich. Dies hat dann eine dreizählige Symmetrie dieser trigonalen Zentren [92] mit Symmetrieachsen in der zu [111] äquivalenten Richtungen zur Folge (Abb. 3.2).

Es besteht weiterhin auch die Möglichkeit einer Ladungskompensation durch ein O^{2-} -Ion, das in [111]-äquivalenter Richtung eingebaut wird und zwei Fluor-Ionen ersetzt [67]. Ein solches Zentrum wird hier jedoch nicht betrachtet, da die untersuchten $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristalle unter Argon-Schutzgasatmosphäre und Zugabe von PbF_2 als Sauerstofffänger hergestellt wurden. Der Anteil solcher Zentren durch einen eventuellen Restsauerstoffgehalt in der Züchtungsapparatur ist hier somit vernachlässigbar.

Für die Umsetzung des S-Bus-Konzeptes sind die kubischen Zentren ungeeignet, da alle acht direkt benachbarten F^- -Ionen paarweise magnetisch äquivalent

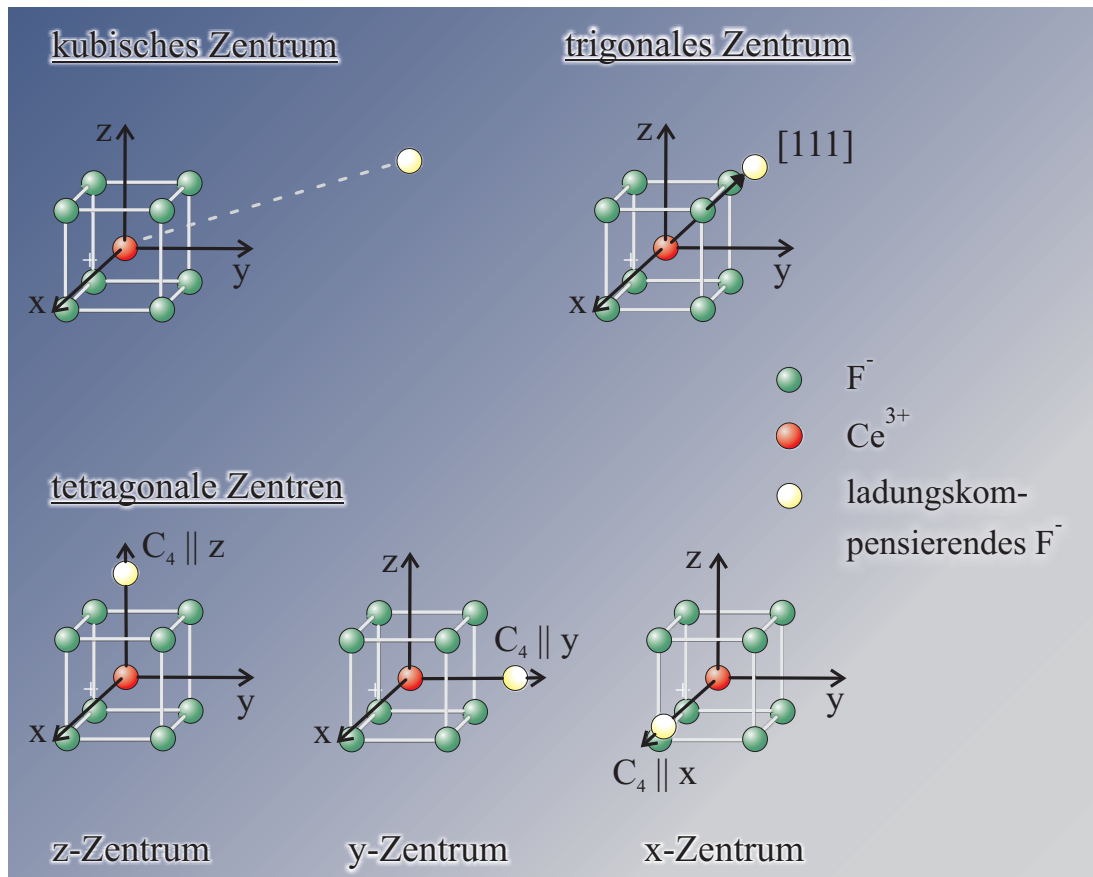


Abb. 3.2: Kubische, trigonale und tetragonale Zentrenklassen in $CaF_2:Ce$. Das kubische Zentrum weist eine unverzerrte Ce^{3+} -Umgebung auf, da die Ladungskompensation weiter entfernt vom Ce^{3+} -Ion im Zwischengitter eingebaut wird. Beim trigonalen Zentrum befindet sich das ladungskompensierende F^- -Ion in $[111]$ -äquivalenter Richtung in einem der über die Raumdiagonalen anschließenden Fluor-Kuben. In den tetragonalen Zentren befindet sich das ladungskompensierende F^- -Ion auf einem der $[100]$ -, $[010]$ - oder $[001]$ -Richtung, bzw. x-, y- oder z-Achse äquivalenten Zwischengitterplatz – diese werden nachfolgend x-, y- oder z-Zentrum genannt.

sind, d.h. unabhängig von der Kristallorientierung im Magnetfeld die gleiche Hyperfeinwechselwirkung mit dem Ce^{3+} -Spin aufweisen und damit die individuelle Adressierbarkeit der Qubits durch eine frequenzselektive RF-Einstrahlung auf den ENDOR-Übergängen nicht gegeben ist. Man erhält in den ENDOR-Spektren dann je zweifach entartete Übergänge außerhalb der Zentralgruppe der freien F^- -Ionen.

In den tetragonalen Ce^{3+} -Zentren werden die der Ladungskompensation zugeordneten F^- -Ionen von diesem radial um eine Verschiebung $\varepsilon = 0,09 \cdot a/4$ nach

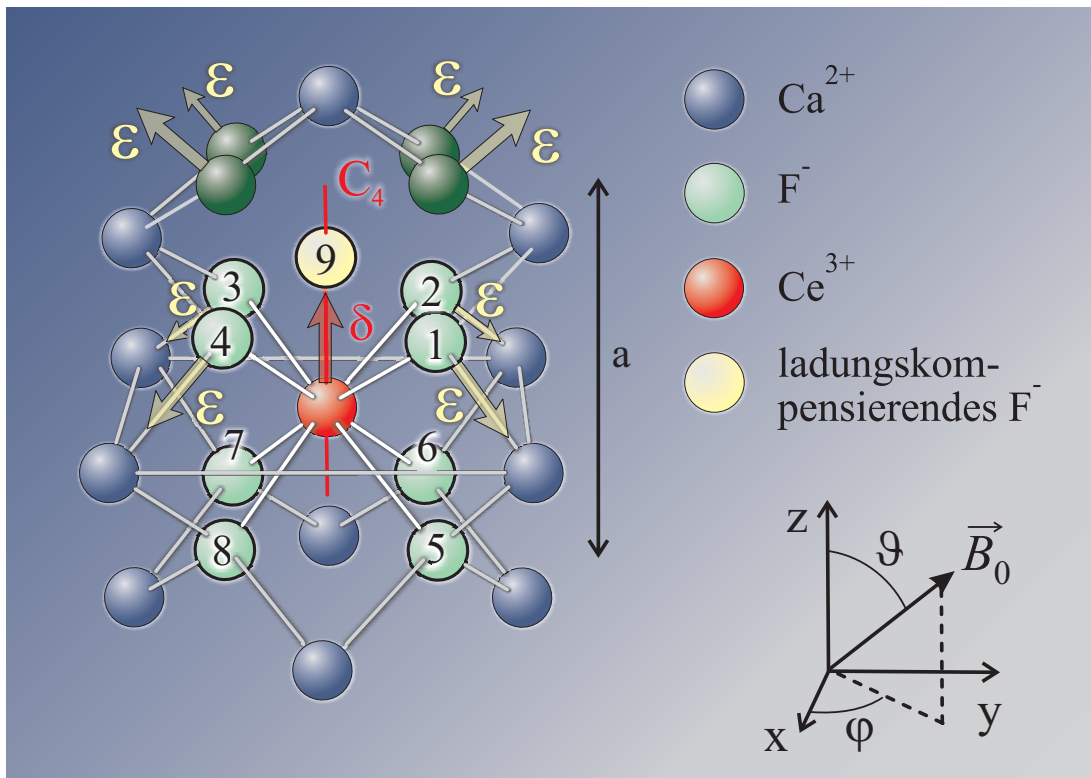


Abb. 3.3: Kristallstruktur des tetragonalen Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$: Die Ca^{2+} -Ionen sind achtfach koordiniert von F^- -Ionen in kubischer Umgebung. Die Gitterkonstante (Kantenlänge zweier Fluor-Würfel) beträgt $a = 546,3 \text{ pm}$. Zur Ladungskompensation des dreiwertigen Dotierungsions Ce^{3+} , das den effektiven Spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ trägt und einen Ca^{2+} -Gitterplatz einnimmt, wird ein weiteres F^- -Ion auf einem Zwischengitterplatz eingebaut. Im Falle lokaler Ladungskompensation – im Bild in z -Richtung – führt dies zu einer Gitterverzerrung mit den empirischen Werten $\varepsilon = 0,09 \cdot a/4$ und $\delta = 0,12 \cdot a/4$. Das ladungskompensierende F^- -Ion (9) und die acht nächsten Nachbar- F^- -Ionen (1 bis 8) des Ce^{3+} -Ions bilden nach dem S-Bus-Konzept neun Qubits: Das *Qubyte+1*. Die Qubit-Kernspins der Fluor-Ionen lassen sich in drei Klassen einteilen. Klasse 1: F^- -Ion 1 bis 4, Klasse 2: F^- -Ion 5 bis 8, Klasse 3: F^- -Ion 9.

Weitere Erläuterungen hierzu im Text.

außen verschoben und gleichzeitig rückt das Ce^{3+} -Ion aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung um den Weg $\delta = 0,12 \cdot a/4$ in Richtung der Ladungskompensation (Abb. 3.3), wobei der Abstand des Ce^{3+} -Ions zu den der Ladungskompensation zugewandten Fluor-Ionen der Klasse 1 nahezu konstant bleibt [72]. In nichtkanonischen Orientierungen des Kristalls im Magnetfeld werden aufgrund der Anisotropie der Dipol-Dipol-Wechselwirkung zwischen S - und I -Spins alle neun direkt benachbarten F^- -Ionen der direkten Ce^{3+} -Umgebung magnetisch inäquivalent.

Durch diese vollständige Aufhebung der Entartung aller ENDOR-Übergänge werden die direkt dem Ce^{3+} direkt benachbarten Fluor-Ionen als Qubits I_j in der ENDOR-Frequenz selektiv adressierbar. Die acht nächsten Nachbar-Fluor-Ionen des Ce^{3+} -Ions lassen sich hierbei in drei Klassen unterteilen: Zwei Klassen zu je vier Fluor-Ionen auf der der Ladungskompensation zu- bzw. abgewandten Seite des Ce^{3+} -Ions (F^- -Ion 1 bis 4, bzw. 5 bis 8 in Abb. 3.3) und eine Klasse, die durch die Ladungskompensation selbst (F^- -Ion 9 in Abb. 3.3) gegeben ist [72].

Eine Erweiterung auf eine noch größere Zahl von Qubits ist auch in einem solchen System durch die Einbeziehung der Kopplungen an Fluor-Ionen in der zweiten, dritten und höheren Schalen durchaus denkbar, jedoch ist deren Linienabstand in den ENDOR-Spektren so gering, dass diese als Qubits mit herkömmlichen ENDOR-Pulsen nicht mehr selektiv adressierbar wären, da eine RF-Einstrahlung auf diesen Übergängen zu einem Übersprechen der Pulse auf andere Übergänge führen würde. Weiterhin ist ihre Kopplung an den Zentralspin S sehr viel schwächer, so dass eine Durchführung von Quantenalgorithmen innerhalb der Dekohärenzzeit unter Umständen auch nicht mehr gewährleistet ist, weil dann die Evolutionszeiten in den Pulsfolgen der Quantenalgorithmen die Relaxationszeiten übersteigen würden.

3.3.2 CaF_2 -Kristallzucht

In Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe Prof. H. Paus vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart wurden unter anderem mehrere $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristalle unterschiedlicher Dotierung nach der Bridgman-Methode hergestellt. Es handelt sich dabei um eine einem Zonenschmelzverfahren vergleichbare Methode, bei dem das pulverförmige Ausgangsmaterial CaF_2 und CeF_3 in einem zylinderförmigen Glasgraphit-Tiegel aufgeschmolzen wird (Abb. 3.4). Der Tiegel wird unter Argon-Schutzgas mittels einer Induktionsheizspule ca. 50°C über die Schmelztemperatur von CaF_2 bei 1423°C aufgeheizt. Im Anschluß daran wird der Tiegel auf der Ziehstange langsam – weniger als 1 mm pro Stunde – rechnergesteuert nach unten aus dem Spulenzentrum herausgezogen, so dass die Temperatur in den tiefer liegenden Teilen der Schmelze unter die Erstarrungstemperatur sinkt und der Kristallisationsprozess einsetzt. Der untere Teil des Tiegels ist daher kegelförmig ausgebildet, so dass sich beim Herausfahren des Tiegels aus dem Spulenzentrum beim Abkühlen bevorzugt an dieser Stelle ein Kristallisationskeim ausbilden kann, der beim weiteren Auskristallisieren die Wachstumsrichtung des Kristalls vorgibt.

Bei diesem Herstellungsverfahren können allerdings aufgrund des Temperaturgradienten bei der Kristallzucht Spannungen im Kristall auftreten, die nach dem Abkühlen Risse verursachen. Diese Spannungen im Kristall können weiterhin zu

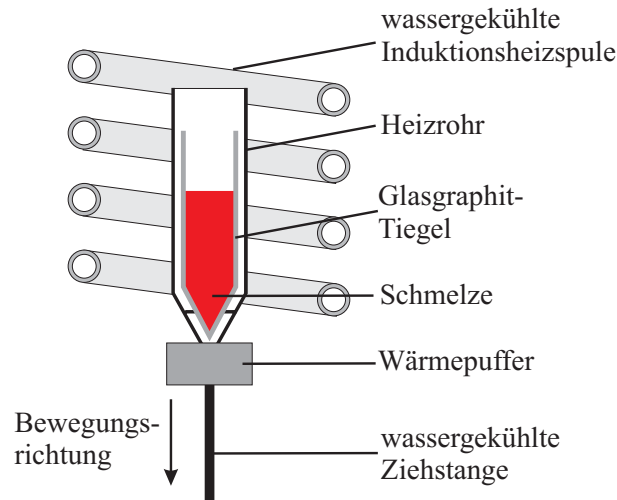


Abb. 3.4: Schematischer Aufbau einer Kristallzuchtapparatur nach Bridgman: Das aufgeschmolzene Rohmaterial in einem Glasgraphit-Tiegel wird zum Abkühlen aus der Spulenmitte nach unten herausgeföhren, so dass bei Entstehung eines Kristallisationskeimes an der unteren Tiegelspitze das Kristallwachstum einsetzt und der Kristall im Tiegel entlang des Temperaturgradienten nach oben wächst.

einem sogenannten „*g*-strain“ führen. Dies entspricht einer Änderung des effektiven *g*-Faktors aufgrund der durch die Spannungen verursachten weiteren Verzerrung der lokalen Gittersymmetrie der *S*-Spin-Umgebung, die ihrerseits zu einer Veränderung der Spindichteverteilung und damit des *g*-Tensors führt. Dies würde in den ESR-Spektren zu Linienverbreiterungen führen. Ein nachträgliches Tempern der Kristalle vermeidet dies.

Beim Einsetzen des Erstarrungsprozesses aus der CaF_2 -Schmelze sind die ladungskompensierenden F^- -Ionen im Kristall statistisch verteilt. Bis zur Abkühlung ist von einer sehr ausgeprägten Diffusion der Fluor-Ionen – also auch der Ladungskompensation – auszugehen, so dass bei langsamer Abkühlung des Kristalls oder beim Tempern die Ladungskompensation in die Nähe der Ce^{3+} -Dotierung diffundieren kann und sich vorzugsweise tetragonale Zentren ausbilden, im Gegensatz zu abgeschreckten Kristallen, die vornehmlich kubische Ce^{3+} -Zentren aufweisen. Die CaF_2 -Kristalle wurden aus diesem Grund im Anschluss an die Kristallzucht getempert, indem sie nochmals auf ca. $700\text{ }^\circ\text{C}$ aufgeheizt und anschließend über einen Zeitraum von ca. 250 Stunden die Temperatur bis auf Raumtemperatur heruntergeregelt wird. Die relative Häufigkeit von tetragonalen und kubischen Zentren in einem CaF_2 -Kristall lässt somit durchaus über die Abkühlzeitdauer beeinflussen. In Abhängigkeit von der Abkühlrate liegen somit mehr kubische oder tetragonale Ce^{3+} -Zentren mit lokaler Ladungskompensation vor.

3.3.3 Ce³⁺-Elektronenspin

In diesem Kapitel erfolgt eine kurze quantenmechanische Darstellung des Ce³⁺-Elektronenspins im CaF₂-Kristallgitter im Hinblick auf die Grundzustandswellenfunktion, die den zentralen effektiven Elektronenspin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ des S-Bus-Systems bildet [72].

Das Ce³⁺-Ion besitzt ein einzelnes Elektron in der 4f-Schale und damit die Elektronenkonfiguration [Xe] 4f¹ mit einem Bahndrehimpuls $L = 3$ und einem Spindrehimpuls $S = \frac{1}{2}$. Nach den Hundschen Regeln besitzt der Grundzustand des freien Ce³⁺-Ions den Gesamtdrehimpuls $J = 5/2$. Die Spin-Bahn-Aufspaltung der Zustände ${}^2F_{5/2}$ und ${}^2F_{7/2}$ beträgt in CaF₂ 2250 cm⁻¹ (Abb. 3.5). Dadurch ist eine Zumischung des ${}^2F_{7/2}$ -Zustandes zum ${}^2F_{5/2}$ -Zustand in erster Näherung vernachlässigbar.

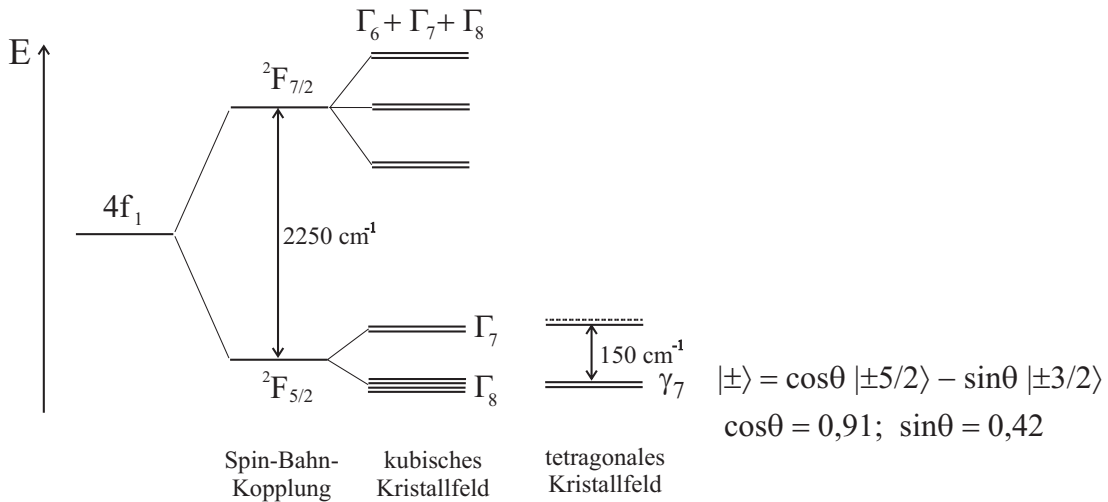


Abb. 3.5: Termschema des Ce³⁺-Ions in Abhängigkeit der Kristallfeldsymmetrie (nicht massstäblich): Die Entartung des 4f¹-Zustand wird aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung aufgehoben und spaltet in die Zustände ${}^2F_{5/2}$ und ${}^2F_{7/2}$ auf. Mischungen der Eigenzustände in Abhängigkeit vom Kristallfeld führen in kubischem Kristallfeld zu den Zuständen $\Gamma_6 + \Gamma_7 + \Gamma_8$ sowie $\Gamma_7 + \Gamma_8$. In tetragonaler CaF₂-Umgebung ergeben sich daraus für das Grundzustandsdublett γ_7 : $|m_j\rangle = \cos\theta |\pm \frac{5}{2}\rangle + \sin\theta |\mp \frac{3}{2}\rangle$, welches dabei den effektiven Spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ des S-Bus-Zentrums bildet.

Der sechsfach entartete Grundzustand ${}^2F_{5/2}$ des freien Ce³⁺-Ions spaltet in kubischer Umgebung in das Dublett Γ_7 und das Quartett Γ_8 auf, wie aus Abb. 3.5 ersichtlich ist [72], [67], der Zustand ${}^2F_{7/2}$ entsprechend in die Terme $\Gamma_6 + \Gamma_7 + \Gamma_8$. Im tetragonalen Kristallfeld mit C_4 -Symmetrie erfolgt eine weitere Aufspaltung und Mischung der Eigenfunktionen, gemäß

$$\begin{aligned}\Gamma_6 &\longrightarrow \gamma_6 \text{ ,} \\ \Gamma_7 &\longrightarrow \gamma_7 \text{ ,} \\ \Gamma_8 &\longrightarrow \gamma_6 + \gamma_7 \text{ .}\end{aligned}$$

Dabei ist für jedes Dublett eine Betrachtung als effektiver Spin $\frac{1}{2}$ möglich [50]. Der γ_7 -Grundzustand bildet den effektiven Spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ als Zentralspin des S-Bus-Zentrums in CaF_2 . Die Wellenfunktion dieses Zustandes wird in der Literatur [72], [70], [67] in Abhängigkeit von der Nebenquantenzahl m_L , der Spinquantenzahl m_S und des Mischungswinkels θ angegeben mit:

$$\begin{aligned}|\pm \psi_{2F_{5/2}}\rangle_{(V_{\text{tetr}})} &= \pm \sum_{m_J} c_{m_J} |m_L, m_S\rangle \\ &= \pm \cos \theta \left(\sqrt{\frac{1}{7}} |2; +\frac{1}{2}\rangle - \sqrt{\frac{6}{7}} |3; -\frac{1}{2}\rangle \right) \\ &\quad \pm \sin \theta \left(\sqrt{\frac{5}{7}} |-2; +\frac{1}{2}\rangle - \sqrt{\frac{2}{7}} |-1; -\frac{1}{2}\rangle \right) \text{ ,} \\ \cos \theta &= 0,91; \quad \sin \theta = 0,42 \text{ .}\end{aligned} \tag{3.1}$$

Die Darstellung durch die Gesamtdrehimpuls-Quantenzahl $m_J = m_L + m_S$ lautet:

$$\begin{aligned}|\pm \psi_{2F_{5/2}}\rangle &\xrightarrow{V_{\text{tetr}}} \pm \sum_{m_J} c_{m_J} |m_J\rangle \\ &= \pm \left(\cos \theta | \frac{5}{2} \rangle + \sin \theta | -\frac{3}{2} \rangle \right) \text{ .}\end{aligned} \tag{3.2}$$

Der g -Faktor ist nach Literaturangaben [72] die einzig verfügbare Information des Grundzustandes. Aus Relaxationsmessungen [68] konnte weiterhin abgeleitet werden, dass der erste angeregte Zustand 150 cm^{-1} über dem Grundzustand liegt.

Das C_4 -symmetrische Kristallfeld des tetragonalen Zentrums führt mittelbar über die Spin-Bahnkopplung zu einer starken g -Anisotropie des Ce^{3+} -Spins mit axialsymmetrischem g -Tensor. Nachfolgend sind die g -Faktoren der in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ bekannten Zentren tabellarisch aufgelistet [67]:

$\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrum	g -Faktor	
kubisch	$g(\Gamma_8) = 2,00;$	$3, 1 \pm 0, 1; \quad g(\Gamma_7) = 1, 297$
tetragonal	$g_{\parallel} = 3,038 \pm 0,003;$	$g_{\perp} = 1,396 \pm 0,002$
trigonal	$g_{\parallel} = 2,38 \pm 0,03;$	$g_{\perp} < 0,1$

3.4 Charakterisierung von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in ESR und ENDOR

Bevor die eigentliche Implementierung von Quantenalgorithmen nach dem S-Bus-Konzept in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in Form von ENDOR-Pulssequenzen durchgeführt werden kann, müssen die Proben ausreichend auf ihre Magnetresonanzeigenschaften hin untersucht werden, insbesondere mit dem Augenmerk auf die selektive Adressierbarkeit der einzelnen Qubits. In diesem Kapitel sind neben den experimentellen Aufbauten die Messmethoden und die jeweiligen Messergebnisse dieser Charakterisierung aufgeführt.

Nachfolgend sind zunächst die Charakterisierungsmethoden und -ziele als kurzer Überblick aufgelistet:

1. cw- und Puls-ESR-Magnetfeldspektren:

Aus den Magnetfeldspektren lässt sich außer dem Resonanzfeld die Wertigkeit des Spins S und die Zahl, bzw. Größe von Hyperfeinwechselwirkungen an andere Spins I_j bei hinreichender Linienaufspaltung bestimmen. Winkelabhängigkeitsmessungen einkristalliner Proben der Magnetfeld-Spektren liefern weiterhin Informationen über eine Anisotropie des g -Tensors und die Größe seiner Hauptachsen. Im Falle des tetragonalen Ce^{3+} -Zentrums kann man aus der Winkelabhängigkeit der ESR-Linienlage der x -, y - und z -Zentren die Orientierung der CaF_2 -Einheitszelle relativ zum äußeren Magnetfeldes \vec{B}_0 berechnen.

2. Relaxationsmessungen:

Man unterscheidet bei der Spin-Relaxation zwischen longitudinaler und transversaler Relaxationszeit T_1 und T_2 . Die T_1 -Zeit beschreibt die charakteristische Zeit des Zerfalls der S_z - bzw. I_z -Komponente eines präparierten Quantenzustandes in den Gleichgewichtszustand der Boltzmann-Verteilung aufgrund der Spin-Spin-Wechselwirkungen in Abhängigkeit transienter Operator-Komponenten $S_{x,y}$, bzw. $I_{x,y}$. Die T_2 -Zeit beschreibt die Dekohärenz von Quantenzuständen aufgrund von Spindiffusion und Fluktuationen von Wechselwirkungen, die von den Operator-Komponenten S_z bzw. I_z abhängen oder auch durch Flip-Flop-Prozesse.

Für die Durchführung von Quantenalgorithmen sind diese Relaxationszeiten relevant, da innerhalb dieser die Präparation des Eingangszustandes, der Quantenalgorithmus und die Detektion in Form einer Dichtematrix-Tomographie durchgeführt werden müssen. Andernfalls ist kein Zusammenhang zwischen Eingabe und Ausgabe im Sinne der Informationsverarbeitung mehr gegeben.

3. ENDOR-Messungen:

Die ENDOR-Messungen geben Aufschluß über die spektrale Lage der I_j -Kernspinresonanzen, die im S-Bus-System als Qubits verwendet werden sowie über deren Kopplungsstärke a_j an den zentralen S -Spin. Diese Wechselwirkung wird für die Präparation von Spin-Korrelationen nach dem S-Bus-Konzept genutzt. Zur Verifikation der Modellvorstellung des tetragonalen Zentrums werden die ENDOR-Spektren auch in Abhängigkeit vom Drehwinkel des Kristalls um eine Achse aufgenommen. Aus den ENDOR-Messungen lassen sich einerseits Folgerungen auf die lokale Umgebung des S -Spins im Kristallgitter ziehen, andererseits dienen diese Messungen hier vor allem der Untersuchung der selektiven Adressierbarkeit der einzelnen Qubits, d.h. der vollständigen Aufspaltung aller ENDOR-Linien im Spektrum.

4. MQE als Ergänzung zu den ENDOR-Messungen:

Es reicht nicht aus, nur die Lage der Qubit-Übergänge zu kennen, sondern es muss auch geklärt werden, welche Linien im ENDOR-Spektrum zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle = |\pm \frac{1}{2}\rangle$ gehören und ob ENDOR-Übergänge eine Entartung aufweisen, die im ENDOR-Spektrum möglicherweise nicht mehr aufgelöst ist. Hierzu dienen auch Multi-Quanten-ENDOR-Messungen (MQE), die paarweise auf je zwei Qubit-ENDOR-Linien ausgeführt werden. Nur im Fall nichtentarteter ENDOR-Übergänge ist gewährleistet, dass wirklich einzelne Qubits bei RF-Einstrahlung auf deren ENDOR-Übergängen manipuliert werden und somit eine Durchführung von Quantenalgorithmen möglich ist. Das MQE-Verfahren wird in einem späteren Kapitel zusammen mit Beispielmessungen noch detailliert erklärt.

In den nachfolgenden Abschnitten werden die Pulsfolgen der Charakterisierungsmessungen detailliert dargestellt. Aufgrund deren Vielfältigkeit erfolgt dies stets in Zusammenhang mit der Darstellung der jeweiligen experimentellen Ergebnisse der an dem S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ durchgeführten Messungen.

Die Darstellung dieser standardmäßig verwendeten Pulssequenzen erfolgt hier sehr ausführlich, weil sich anhand dieser einfachen Beispiele schon deutlich zeigen lässt, dass die experimentelle Umsetzung der Quanteninformationsverarbeitung aufgrund systematischer Unzulänglichkeiten wie Pulsfehler, endlicher Pulsdauern und Pulsbreiten Probleme aufwirft.

3.4.1 Anmerkungen zur Pulsspektroskopie

Im Realfall erfahren nicht alle Spins eines Überganges den vorgegebenen Drehwinkel β eines Pulses $P(\beta)$ mit der Frequenz ν_0 , da ein realer Puls nicht für alle

Spins innerhalb einer endlichen inhomogenen Linienbreite eines Überganges in Resonanz ist, weil hierbei eine Verteilung der Larmorfrequenzen der einzelnen Spinklassen vorliegt (Abb. 3.6). Beispielsweise bei Einstrahlung in der Linienmitte eines Überganges bei der Frequenz ν_0 erfahren die Spins mit einer spektralen Lage in den Linienflügeln mit einer Verteilung der Resonanzfrequenzen $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu$ stets eine Drehung um ein effektives Magnetfeld \vec{B}_{eff} , da sich für diese Spins in dem mit $\omega_0 = 2\pi\nu_0$ mitrotierenden Koordinatensystem bezüglich des Pulses $P(\beta, \omega_0)$ das B_0 -Feld nicht vollständig heraustransformiert.

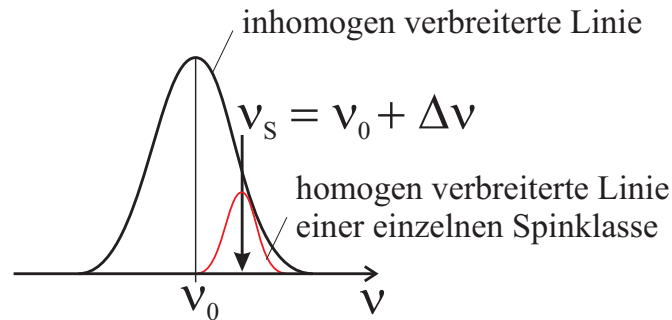


Abb. 3.6: Eine inhomogen verbreiterte Resonanzlinie eines Zeeman-Übergangs mit der Zentralfrequenz ν_0 besteht aus einer Verteilung von homogen verbreiterten Linien einzelner Spinklassen mit einer jeweiligen Zentralfrequenz $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu$.

Bei einer Pulseinstrahlung auf der Zentralfrequenz ν_0 berechnet sich die resultierende Rotationsachse $\vec{\omega}_{\text{eff}}$ in dem mit $\omega_0 = 2\pi\nu_0$ mitrotierenden Koordinatensystem aus den Präzessionen um das nicht vollständig heraustransformierte B_0 -Feld und das darin statische B_1 -Feld (Abb. 3.7) zu:

$$\vec{\omega}_{\text{eff}} = \Delta\vec{\omega} + \vec{\omega}_1 \quad \text{mit} \quad \Delta\vec{\omega} \perp \vec{\omega}_1. \quad (3.3)$$

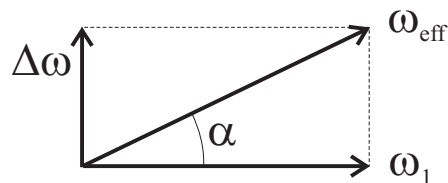


Abb. 3.7: Die effektive Drehachse $\vec{\omega}_{\text{eff}} = \vec{\omega}_0 + \Delta\vec{\omega}$ eines Spins ergibt sich aus der Vektoraddition der Rotationsachsen des für $\Delta\omega \neq 0$ sich nicht vollständig heraustransformierenden B_0 -Feldes und des B_1 -Wechselfeldes.

Dies hat zur Folge, dass die Spins verschiedener Spinklassen eines inhomogen verbreiterten Übergangs verschiedene resultierende Drehwinkel $\beta(\Delta\omega)$ erfahren.

Abb. 3.8 zeigt symbolisch die Rotation zweier Spins I_1 und I_2 mit unterschiedlicher Larmorfrequenz ν_S um das effektive Magnetfeld $\vec{B}_{\text{eff},j} \parallel \vec{\omega}_{\text{eff},j}$ bei Einstrahlung eines $\frac{\pi}{2}|_y$ -Pulses auf der Resonanzfrequenz von I_1 .

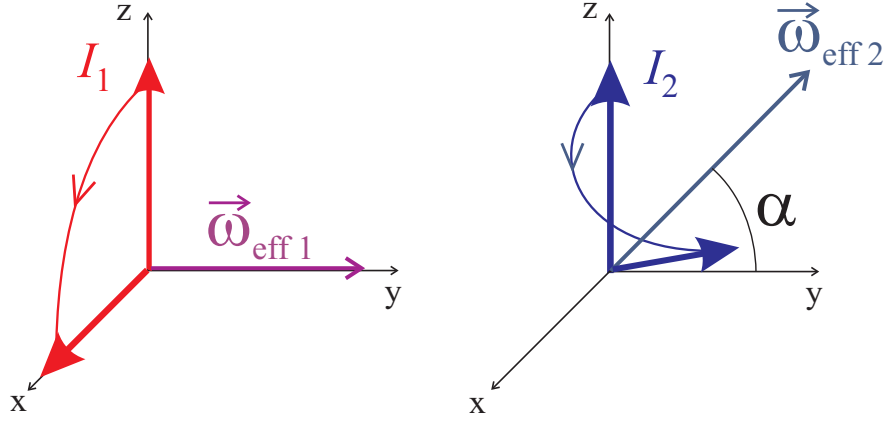


Abb. 3.8: Rabi-Präzession zweier Spins $I_{1;2}$ um die effektive Rotationsachse $\vec{\omega}_{\text{eff},1;2}$ bei resonanter (links) und nichtresonanter Einstrahlung (rechts) eines $\frac{\pi}{2}|_y$ -Pulses. Nur die Larmorfrequenz ν_S der Spinklasse I_1 stimmt mit der eingestrahlten Frequenz ν_0 überein. Diese Spins werden um 90° gedreht, während die Spinklasse I_2 mit der Resonanzfrequenz $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu$ eine Rabi-Präzession um das effektive Magnetfeld mit einem resultierenden Drehwinkel ungleich 90° erfährt.

Bei Einstrahlung auf einem Qubit-Übergang werden auch die Quantenzustände von Qubits anderer Übergänge beeinflusst. Dies ist bei der Implementierung von Quantenalgorithmien zu berücksichtigen. Für bestimmte Pulsdauern t_P ist es jedoch möglich, dass der nichtresonante Spin I_2 eine Drehung um ein Vielfaches von 360° um das effektive Magnetfeld erfährt und somit sein Quantenzustand – abgesehen von einer Phasenänderung hinsichtlich des Spinor-Verhaltens – im Idealfall unverändert bleibt. Somit ist der Einfluss dieses Übersprechens zumindest paarweise für je zwei Qubits zu minimieren, wie nachfolgend erläutert wird.

Für eine Zeitdauer t_P eines Pulses $P_y(\beta_1)$ mit Drehwinkel β_1 beträgt im resonanten Fall für den Spin I_1 mit der Larmorfrequenz ν_0 die Rabifrequenz

$$\omega_1 = 2\pi\nu_1 = \beta_1/t_P . \quad (3.4)$$

Der Spin I_2 besitze die Larmorfrequenz $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu$, so dass sich für dessen effektive Rabi-Präzession ein resultierender Drehwinkel β_2 ergibt:

$$\begin{aligned} \beta_2 &= 2\pi\nu_{\text{eff}} \cdot t_P = \omega_{\text{eff}} \cdot t_P , \quad \text{mit} \\ \omega_{\text{eff}} &= \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_1^2} = 2\pi\sqrt{\Delta\nu^2 + \nu_1^2} . \end{aligned} \quad (3.5)$$

Die Rabipräzession mit einem Drehwinkel β_1 des Spins I_1 und der Rotation von I_2 um ein Vielfaches von 360° entspricht der Bedingung

$$\begin{aligned}\omega_{\text{eff}} \cdot t_{\text{P}} &= \sqrt{\Delta\omega^2 + \omega_1^2} t_{\text{P}} & (3.6) \\ &= 2\pi\sqrt{\Delta\nu^2 + \nu_1^2} \cdot t_{\text{P}}, \quad \text{mit } \nu_1 = \frac{\beta_1}{2\pi t_{\text{P}}} \\ &\stackrel{!}{=} n \cdot 2\pi, \quad n \in \mathbb{N}_0.\end{aligned}$$

Hieraus berechnet sich die geeignete Pulsdauer t_{P} zur paarweisen Minimierung des Übersprechens auf zwei Qubit-Übergängen zu:

$$t_{\text{P}} = \frac{\sqrt{n^2 - \left(\frac{\beta_1}{2\pi}\right)^2}}{\Delta\nu}, \quad n \in \mathbb{N}_0. \quad (3.7)$$

Eine Erweiterung dieser Methode auf mehr als zwei Qubits ist sicherlich nur mit großem Aufwand möglich und erfordert detaillierte Untersuchungen, verbunden mit einer multifrequentiellen Einstrahlung auf mehreren Qubit-Übergängen, so dass beispielsweise nur ein Qubit-Spin I_j um einen vorgegebenen Winkel β_j gedreht wird und die restlichen Spins I_k eine Rotation um $n \cdot 360^\circ$ erfahren.

Weiterhin führt der Einfluss der Pulsflanken mit ansteigendem und abfallendem B_1 -Feld aufgrund des nichtlinearen Response der Spins zu Phasenfehlern der präparierten Spin-Wellenfunktionen. Hinzu kommt die zeitliche Evolution der Spin-Wellenfunktion während der endlichen Pulsdauer. All diese Unzulänglichkeiten führen zu Fehlern bei der Präparation von Quantenzuständen und bei der Durchführung von Quantenalgorithmen, die sich in komplexen Pulsfolgen akkumulieren.

3.4.2 Magnetfeld-Spektren $\text{CaF}_2\text{:Ce}$

In diesem Kapitel werden zunächst die Messmethoden und Magnetfeldspektren beispielhaft für verschiedene Orientierungen der $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ -Kristalle aufgezeigt, sowie die Bestimmungsgleichungen der Euler-Winkel der Orientierung der CaF_2 -Elementarzelle relativ zum B_0 -Feld. Die Auswertung mit der Zielsetzung der Bestimmung der Kristallorientierung erfolgt am Kapitelende.

Sowohl in der cw- als auch in der Puls-ESR werden die Magnetfeldspektren bei konstanter eingestrahelter Mikrowellenfrequenz – im X-Band bei rund 9,5 GHz – in Abhängigkeit von der Variation des äußeren B_0 -Feldes aufgenommen. In der cw-ESR findet eine kontinuierliche Einstrahlung statt, deren Absorptionsänderung

in der Probe im Resonanzfall detektiert wird. In der Abb. 3.9 ist beispielhaft zur Darstellung der großen g -Anisotropie ein cw-ESR-Spektrum eines getemperten $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristalls in nichtkanonischen Orientierungen relativ zum B_0 -Feld dargestellt. Aufgrund des Temperns enthält dieser Kristall überwiegend tetragonale und nur wenige kubische Ce-Zentren, was sich auch in den Linienintensitäten widerspiegelt.

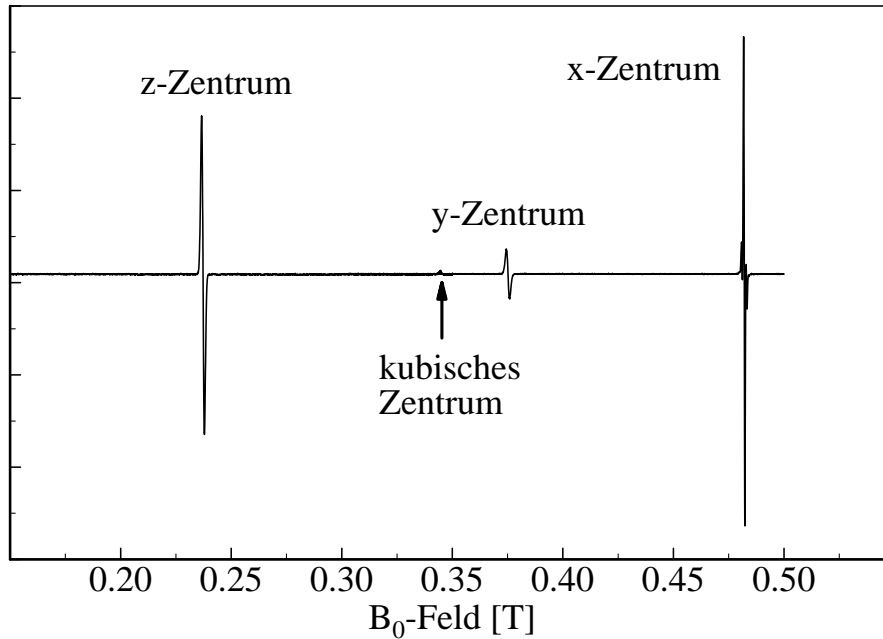


Abb. 3.9: cw-ESR-Magnetfeldspektrum eines getemperten $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristalls, Dotierung 10^{-4} : Aufgetragen ist das differentielle Absorptionssignal in Abhängigkeit von der B_0 -Feldstärke. Das kubische $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrum weist eine einzelne Resonanzlinie auf, dessen spektrale Lage keine signifikante Winkelabhängigkeit bei Drehung des Kristalls zeigt, im Gegensatz zu den drei Resonanzlinien des tetragonalen Zentrums mit einer großen g -Anisotropie. Es handelt sich bei diesen Linien um drei Zentrenklassen – je nachdem, ob das interstitielle ladungskompensierende Fluor-Ion relativ zur Elementarzelle in x-, y- oder z-Richtung eingebaut ist. Die Vielzahl der Hyperfeinwechselwirkungen des Ce^{3+} -Ions mit den umgebenden Fluor-Kernspins führt zu nicht aufgelösten ESR-Linienaufspaltungen, die zu einer Linienbreite von rund 1,5 mT führen.

Messdaten: ESR-Frequenz: $\nu_S = 9,36794186$ GHz, Resonanzfelder:
 $B_0^{(z)} = 0,23729$ T (z-Zentrum); $B_0^{(y)} = 0,37510$ T (y-Zentrum);
 $B_0^{(x)} = 0,48203$ T (x-Zentrum); $B_0^{(\text{kub})} = 0,34452$ T (kubisches Zentrum);
 $T = 20$ K.

In der Puls-ESR wird zur Aufnahme von Magnetfeldspektren nach Einstrahlung der Pulssequenzen ebenfalls in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke B_0 ent-

weder der Freie Induktionszerfall (FID) oder die Spin-Echo-Magnetisierung der Probe gemessen. Abbildung 3.14 zeigt die Hahn-Echo-Sequenz zur Erzeugung eines Spin-Echos. Der Initialzustand vor Anwendung der Hahn-Echo-Sequenz aus Abb. 3.14 ist in der Hochtemperaturnäherung der Boltzmann-Zustand $\rho(t=0) = \rho_B = S_z$.

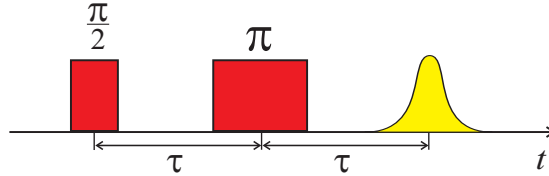


Abb. 3.10: Hahn-Echo-Sequenz mit einem $\frac{\pi}{2}$ - und einem π -Puls im Abstand τ führt zu einem Spin-Echo bei $t = 2\tau$ im Fall inhomogen verbreiteter Übergänge.

Die freie Phasenevolution der einzelnen Spins S_j mit den Resonanzfrequenzen $\nu_S = \nu_0 + \Delta\nu_j$ nach dem $\frac{\pi}{2}$ -Puls mit der Frequenz ν_0 unter dem Hamilton-Operator $\mathcal{H} = \hbar \sum_j \omega_S S_{z_j} = \hbar \sum_j (\omega_0 + \Delta\omega_j) S_{z_j}$, $\omega_S = 2\pi\nu_S$ mit dem Zeitentwicklungsoperator $U(\tau)$ führt nach Anwendung eines π -Refokussierungspulses $P_y(\pi)$ bei $t = \tau$ zu einer makroskopischen transienten Probenmagnetisierung als Spin-Echo bei $t = 2\tau$:

$$\rho(t > \tau) = U(\tau)^{\text{Echo}} S_z U(\tau)^{\text{Echo}^{-1}} \quad (3.8)$$

$$= \exp(-i\Delta\omega(t-2\tau)S_z) (-S_x) \exp(+i\Delta\omega(t-2\tau)S_z)$$

$$\stackrel{t=2\tau}{=} | -S_x \rangle, \text{ mit}$$

$$U(\tau)^{\text{Echo}} = U(t-\tau) P_y(\pi) U(\tau) P_y\left(\frac{\pi}{2}\right),$$

$$U(t) = \exp(-i\Delta\omega t S_z).$$

Dies gilt so nur unter der idealisierenden Annahme, dass alle Phasenevolutionen vollständig refokussiert werden – also keine Dekohärenz vorliegt – und eine Evolution während der endlichen Pulsdauer vernachlässigt wird, also sogenannte Delta-Pulse angewandt werden. Realiter ist dies natürlich nicht der Fall. Im Experiment mit einfachen Pulsen endlicher Dauer und Linien endlicher Breite kann niemals exakt der gewünschte Drehwinkel einer unitären Transformation für alle Spins erreicht werden. Man erhält somit in Abhängigkeits des Verhältnisses der

spektralen Pulsbreite zur Linienbreite eine mehr oder minder große Verteilung von Quantenzuständen, die die Präparation von Quantenzuständen erschwert.

In Abb. 3.11 ist das X-Band-ESR-Echo-Spektrum eines getemperten $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristalls gezeigt. Die Resonanzfelder $B_0^{(x,y,z,\text{kub})}$ der einzelnen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentren werden mit oben, in Klammern stehendem Index bezeichnet.

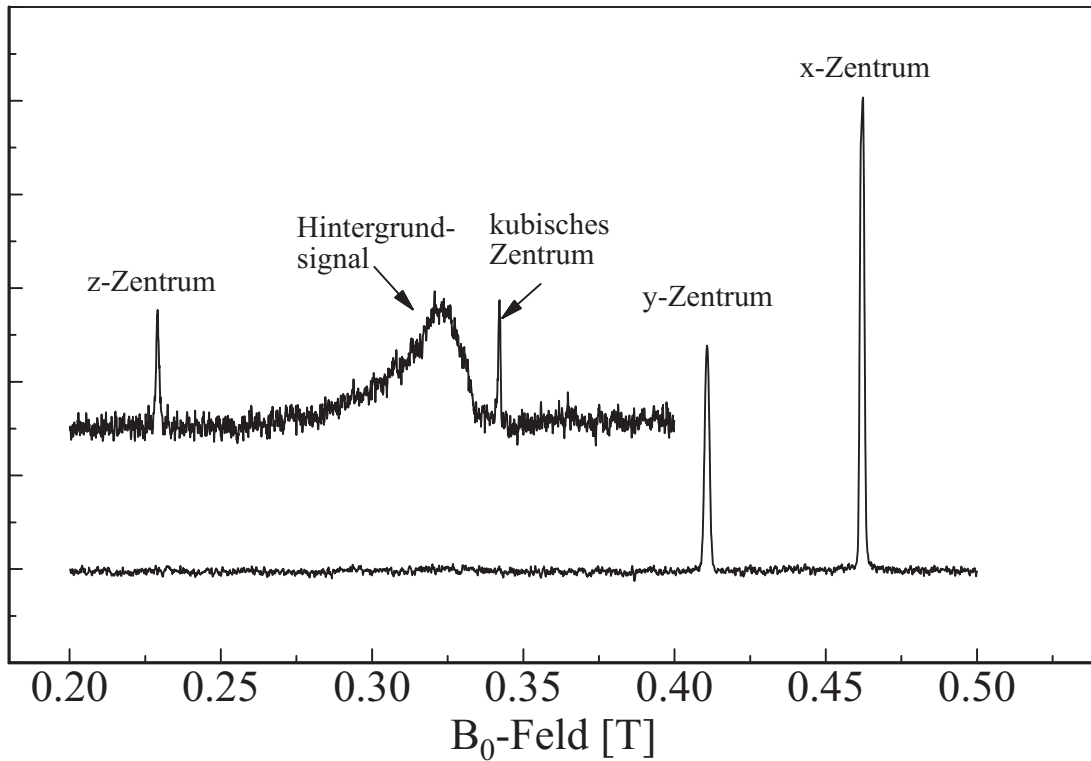


Abb. 3.11: Hahn-Echo-Spektrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit den Resonanzlinien von kubischem, x-,y- und z-Zentrum. Aufgetragen ist die Echohöhe in Abhängigkeit vom B_0 -Feld. Zur Aufnahme der Resonanzlinien des z-Zentrums und des kubischen Zentrums musste die Detektionsverstärkung stark erhöht werden.

Messdaten: ESR-Frequenz $\nu_S = 9,391448$ GHz, Resonanzlinien bei $B_0^{(z)} = 0,22375$ T (z-Zentrum); $B_0^{(y)} = 0,43840$ T (y-Zentrum) und $B_0^{(x)} = 0,48181$ T (x-Zentrum); $B_0^{(\text{kub})} = 0,34327$ T (kubisches Zentrum); $T = 8$ K.

Die unterschiedlichen Linienintensitäten rühren von einer Abhängigkeit der Übergangswahrscheinlichkeit von der x-, y-, bzw. z-Zentrenorientierung relativ zum B_0 -Feld ab. Je nach Lage des B_0 -Feldes ergibt sich ein anderer effektiver g -Faktor und eine andere Lage der Quantisierungsachse des Ce^{3+} -Spins, die zu einer orientierungsabhängigen Wechselwirkung innerhalb des S-Bus-Kopplungsnetzwerkes führt und damit die Übergangswahrscheinlichkeit und vor allem die Relaxationszeiten beeinflusst. Im Spektrum aus Abb. 3.11 sind die Linien der x- und

y-Zentren sehr dominant, der Übergang des z-Zentrums jedoch nur bei sehr viel größerer Verstärkung zu sehen. Hinzu kommt aufgrund der vorliegenden starken g -Anisotropie ein weiterer Effekt, der die Linienintensitäten beeinflusst: Die Linienlage im Magnetfeldspektrum erlaubt die Zuordnung eines effektiven g -Faktors $g_{\text{eff}}(B_0^{(x,y,z)})$ für alle Zentrenklassen, im vorliegenden Fall mit $g_{\text{eff}}(B_0^{(x)}) \leq g_{\text{eff}}(B_0^{(y)}) \leq g_{\text{eff}}(B_0^{(z)})$ für $B_0^{(x)} \geq B_0^{(y)} \geq B_0^{(z)}$. Die gemessene Echomagnetisierung aus der Summe aller magnetischen Momente skaliert jedoch nicht mit dem effektiven g -Faktor $g_{\text{eff}}(B_0^{(x,y,z)})$ bezüglich \vec{B}_0 , sondern mit $g_{\text{eff}}(B_1^{(x,y,z)})$ bezüglich \vec{B}_1 da die spektroskopische Messung der Probenmagnetisierung stets in B_1 -Richtung senkrecht zu \vec{B}_0 erfolgt. Dies geht unmittelbar in die resultierende Probenmagnetisierung und damit in die Signalintensität ein. Ist das g -Tensorellipsoid eines Cer-Zentrums beispielsweise so orientiert, dass die große Hauptachse g_{\parallel} parallel zu B_0 ist, liegt der zugehörige Übergang bei kleinen B_0 -Feldern. Das dazu senkrechte B_1 -Wechselfeld transformiert sich dann allerdings mit dem kleineren Faktor g_{\perp} , ebenso die Summe der gemessenen magnetischen Momente des Spin-Echos, woraus die erwähnte geringere Linienintensität bei kleineren B_0 -Feldern mit resultiert. Die Folge ist, dass unterschiedliche Rabi-Präzessionsfrequenzen für x-, y- und z-Zentren vorliegen und daher bei identischer Pulsdauer die Spins verschiedene Drehwinkel erfahren. Dies tritt hier aufgrund der großen g -Anisotropie besonders deutlich hervor. In nichtkanonischen Orientierungen müssen hierbei die vollständigen Tensortransformation bezüglich der lokalen B_0 - und B_1 -Felder relativ zu den Feldern im Laborsystem beachtet werden, da dann die lokalen Wechselfelder nicht mehr notwendigerweise orthogonal zueinander sind.

3.4.3 Bestimmung der Kristallorientierung aus den Magnetfeldspektren

Die Berechnung der Lage des g -Tensors der tetragonalen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentren relativ zum äußeren Magnetfeld \vec{B}_0 erfolgt entweder aus Winkelabhängigkeitsmessungen der ESR-Linienlage der tetragonalen Cer-Zentren oder ist aufgrund der bekannten relativen, orthogonalen Orientierung der C_4 -Symmetrieachsen von x-, y- und z-Zentrum aus deren Resonanzfeldern zu bestimmen.

Nachfolgend sind die zur Berechnung der Resonanzfelder $B_0^{(x,y,z)}$ von x-, y- und z-Zentrum bei bekannter Kristallorientierung benötigten Formeln angegeben, die in umgekehrter Folge auch zur Bestimmung der Ausrichtung des Kristalls im Spektrometer für gemessene Feldwerte benutzt wurden. Hierzu wird ein *Kristallhauptachsensystem* definiert, dessen x-, y- und z-Achsen mit denen des z-Zentrums übereinstimmen (Abb. 3.12).

In diesem *Kristallhauptachsensystem* besitzt das äußere Magnetfeld \vec{B}_0 die Projektionswinkel ϑ_x , ϑ_y und ϑ_z (Index unten) auf dessen x-, y- und z-Achse. Die

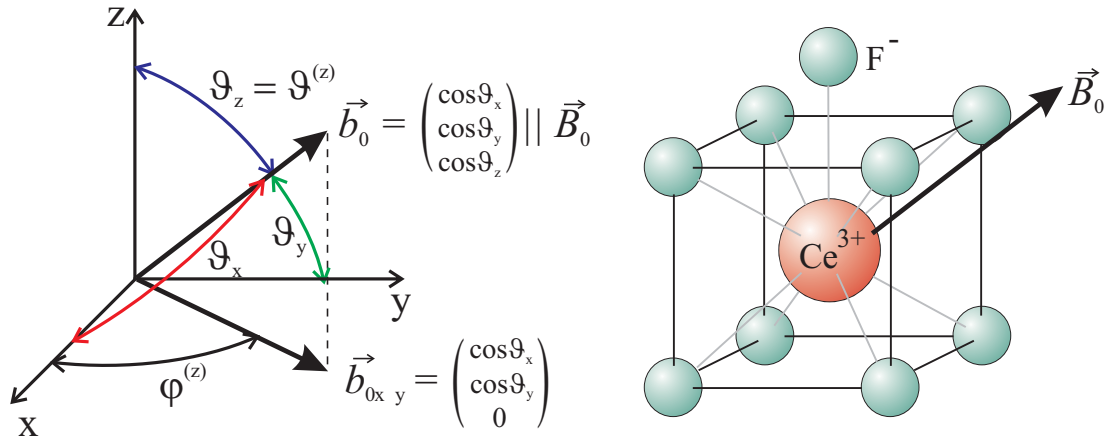


Abb. 3.12: Ausrichtung des Kristallhauptsachsensystems (links) und des z-Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ (rechts). Dargestellt sind die Projektionswinkel $\vartheta_x, \vartheta_y, \vartheta_z$ des äußeren Magnetfeldes \vec{B}_0 auf die x-, y- und z-Kristallhauptachsen. Die C_4 -Symmetrieachsen von x-, y- und z-Zentrum zeigen in Richtung der x-, y- bzw. z-Achse des Kristallhauptsachsensystems. Die zugehörigen Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ des B_0 -Feldes in den jeweiligen Zentralsystemen sind aus den Projektionswinkeln $\vartheta_{x,y,z}$ berechenbar, wenn mindestens zwei Datensätze von Resonanzfrequenz ν_S und Resonanzfeld $B_0^{(x,y,z)}$ bekannt sind. Hierzu werden die Vektoren \vec{b}_0 und \vec{b}_{0xy} benötigt. Weitere Erläuterungen im Text.

C_4 -Symmetrieachsen von x-, y- und z-Zentrum sind jeweils in x-, y- bzw. z-Richtung dieses Kristallhauptsachsensystems ausgerichtet und bilden ein orthogonales Rechtssystem. Für jedes einzelne Zentrum wird weiterhin ein eigenes *Zentrumssystem* definiert, mit Ausrichtung der eigenen C_4 -Achse in z-Richtung des jeweiligen Zentrumssystems. Somit besitzt das B_0 -Feld in jedem Zentrum einen anderen Satz an Euler-Winkeln, die für x-, y- und z-Zentrum jeweils mit $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ (Index oben in Klammern) bezeichnet werden. Diese können aus den Projektionswinkeln im Hauptsachsensystem berechnet werden, da jeder Resonanzlinie der x-, y- und z-Zentren bei den Resonanzfeldern $B_0^{(x)}$, $B_0^{(y)}$ und $B_0^{(z)}$ ein effektiver g -Faktor $g_{\text{eff}}^{(x,y,z)}$ entspricht.

Aufgrund der C_4 -Symmetrie der tetragonalen Zentren ist der g -Tensor axialsymmetrisch, mit den Hauptachsen g_{\parallel} und g_{\perp} . Daraus ergeben sich die Projektionswinkel des B_0 -Feldes $\vartheta_{x,y,z}$ auf die x-, y- und z-Achsen des Kristallhauptsachsensystems zu (Abb. 3.12):

$$\cos \vartheta_{x,y,z} = \frac{g_{\text{eff}}^{(x,y,z)^2} - g_{\perp}^2}{g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2}, \quad \text{mit} \quad g_{\text{eff}}^{(x,y,z)} = \frac{h\nu_S}{\mu_B B_0^{(x,y,z)}}. \quad (3.9)$$

Die Orthogonalität der x-, y-, z-Kristallhauptachsen sowie der C_4 -

Symmetrieachsen von x-, y- und z-Zentren liefert als Randbedingung die Gleichung

$$\cos^2 \vartheta_x + \cos^2 \vartheta_y + \cos^2 \vartheta_z = 1 . \quad (3.10)$$

Für die Berechnung der zugehörigen Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ der B_0 -Feldrichtung in den einzelnen x-, y- und z-Zentrensystemen, wird ein normierter Magnetfeldvektor \vec{b}_0 kollinear zum äußeren Magnetfeld \vec{B}_0 definiert (Abb. 3.12). Dieser lässt sich durch die Projektionskomponenten von \vec{B}_0 auf die Achsen des Kristallhauptachsensystems ausdrücken:

$$\vec{b}_0 = \begin{pmatrix} \cos \vartheta_x \\ \cos \vartheta_y \\ \cos \vartheta_z \end{pmatrix} . \quad (3.11)$$

Daraus erhält man z.B. für das z-Zentrum dessen azimuthalen Euler-Winkel $\vartheta^{(z)} = \vartheta_z$ und den polaren Euler-Winkel $\varphi^{(z)}$, der von der x-Kristallhauptachse und der Projektion von \vec{b}_0 auf $\vec{b}_{0,xy} = (\cos \vartheta_x, \cos \vartheta_y, 0)$ in der xy-Ebene eingeschlossen wird. Entsprechend berechnen sich für alle drei tetragonalen $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ -Zentren die jeweiligen Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ der Richtung des Magnetfeldes \vec{B}_0 in den einzelnen Zentrensystemen von x-, y- und z-Zentrum zu:

$$\vartheta^{(z)} = \vartheta_z , \quad \varphi^{(z)} = \arccos \left(\sqrt{\frac{\cos^2 \vartheta_x}{\cos^2 \vartheta_x + \cos^2 \vartheta_y}} \right) , \quad (3.12)$$

$$\vartheta^{(y)} = \vartheta_y , \quad \varphi^{(y)} = \arccos \left(\sqrt{\frac{\cos^2 \vartheta_z}{\cos^2 \vartheta_z + \cos^2 \vartheta_x}} \right) , \quad (3.13)$$

$$\vartheta^{(x)} = \vartheta_x , \quad \varphi^{(x)} = \arccos \left(\sqrt{\frac{\cos^2 \vartheta_y}{\cos^2 \vartheta_y + \cos^2 \vartheta_z}} \right) . \quad (3.14)$$

Zur experimentellen Verifikation dieser Modellvorstellung wurde eine Winkelabhängigkeitsmessung der ESR-Linienlage und eine entsprechende Simulation für alle drei Zentrenklassen in Abhängigkeit vom Drehwinkel γ des Kristalls durchgeführt (Abb. 3.13), wodurch auch bewiesen wird, dass tatsächlich im weiteren Verlauf ein tetragonales $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ -Zentrum zu Grunde gelegt werden darf.

Zur Berechnung dieser Simulation wurden zwei Sätze von Eulerwinkeln definiert: Die Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$, $\varphi^{(x,y,z)}$ und $\psi^{(x,y,z)}$ geben, wie bereits dargelegt, die Lage des B_0 -Feldes den einzelnen Zentrensystemen von x-, y- und z-Zentrum an. Die Euler-Winkel α , β und γ (Drehwinkel) bezeichnen die Lage der Kristalldrehachse im

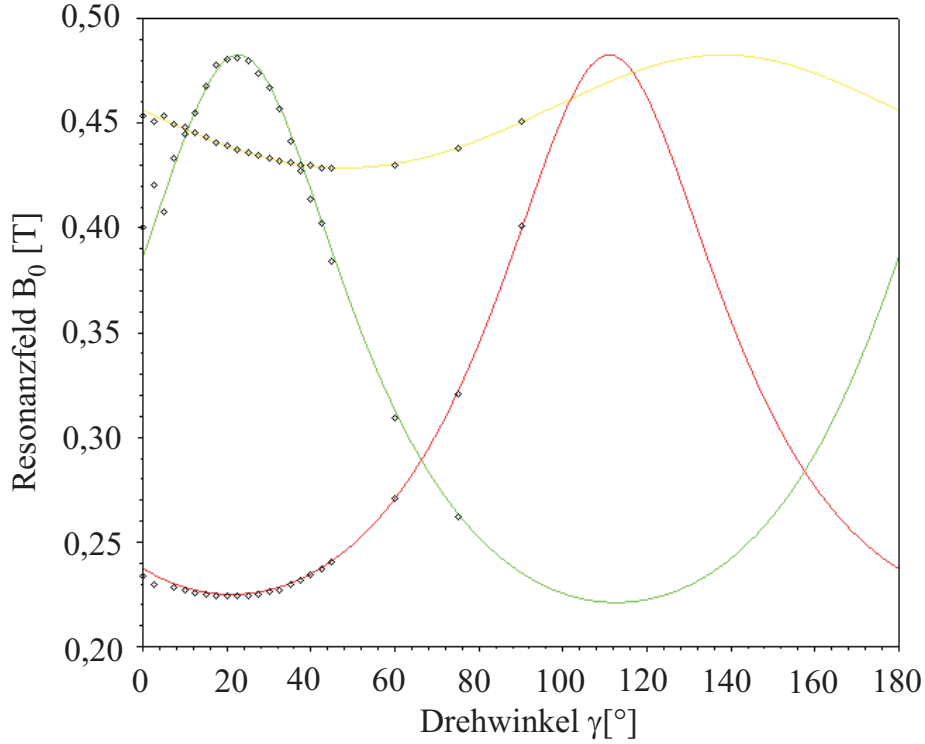


Abb. 3.13: Winkelabhängigkeit der ESR-Linienlage von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$: Aufgetragen ist die jeweilige gemessene Resonanzfeldstärke $B_0^{(x,y,z)}$ (Punkte) bei $\nu_S = 9,391$ GHz in Abhängigkeit vom Kristalldrehwinkel γ . Die Anpassung der Kristalldrehachse liefert im Kristallhauptachsensystem die Euler-Winkel $\alpha = 83,0^\circ$, $\beta = 13,5^\circ$ und γ . Der Magnetfeldvektor \vec{B}_0 zeigt für $\alpha = \beta = \gamma = 0^\circ$ in x-Richtung. Die angenommenen g -Tensorhauptachsen besitzen die Werte $g_\perp = 1,389$, $g_\parallel = 3,038$.

Kristallhauptachsensystem. Zur Berechnung der Resonanzfelder $B_0^{(x,y,z)}$ mußte ein Zusammenhang zwischen diesen Winkeln hergeleitet werden. Diese Verknüpfung erfolgte über die apparative Bedingung, dass bei den durchgeführten Experimenten die Kristalldrehachse stets senkrecht zum B_0 -Feld war. Durch Anpassung der Lage der Goniometerdrehachse in der Simulation der ESR-Linienlage wurden diese an die Messergebnisse angepasst: Für $\alpha = \beta = \gamma = 0^\circ$ wurde im Kristallhauptachsensystem die Goniometerdrehachse in z -Richtung und das B_0 -Feld in x -Richtung definiert.

Der \vec{B}_0 -Vektor berechnet sich im Kristallhauptachsensystem in Abhängigkeit von den Euler-Winkeln α , β und γ der Kristalldrehachse zu

$$\vec{B}_0(\alpha, \beta, \gamma) = T_z(\alpha) T_y(\beta) T_z(\gamma) \vec{B}_0(\alpha = \beta = \gamma = 0^\circ) \quad (3.15)$$

$$\vec{B}_0(\alpha = \beta = \gamma = 0^\circ) = \begin{pmatrix} B_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} .$$

Dabei sind die Transformationsmatrizen $T_{x,y,z}$ der Drehung um die Euler-Winkel α , β und γ in Kristallhauptachsensystem gegeben durch:

$$\begin{aligned} T_z(\alpha) &= \begin{pmatrix} \cos \alpha & -\sin \alpha & 0 \\ \sin \alpha & \cos \alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} , & (3.16) \\ T_y(\beta) &= \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & \sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} , \\ T_z(\gamma) &= \begin{pmatrix} \cos \gamma & -\sin \gamma & 0 \\ \sin \gamma & \cos \gamma & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} . \end{aligned}$$

Somit ist die Orientierung von \vec{B}_0 im Kristallhauptachsensystem berechenbar. Aus dieser lassen sich die entsprechenden Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ im jeweiligen x-, y- und z-Zentersystem bestimmen und daraus wiederum über die jeweiligen effektiven g -Faktoren $g_{\text{eff}}^{(x,y,z)}$ die entsprechenden Resonanzfelder $B_0^{(x,y,z)}$ für x-, y- und z-Zentrum.

Die Projektionswinkel von \vec{B}_0 im Kristallhauptachsensystem werden dabei sukzessive durch die jeweiligen Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ in den einzelnen Zentersystemen ausgedrückt. Diese wiederum werden auf die Euler-Winkel α , β und γ der Kristalldrehachse umgerechnet. Das Resonanzfeld $B_0^{(x,y,z)}$ von x-, y- und z-Zentrum ist dabei in Abhängigkeit vom effektiven g -Faktor $g_{\text{eff}}^{(x,y,z)^2}$ gegeben durch:

$$\begin{aligned} B_0^{(x,y,z)} &= \frac{h\nu_S}{\mu_B g_{\text{eff}}^{(x,y,z)^2}} & (3.17) \\ &= \frac{h\nu_S}{\mu_B (\cos \vartheta_{x,y,z} (g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2) + g_{\perp}^2)} . \end{aligned}$$

Hierbei muss zwischen den orthogonal zueinander ausgerichteten x-, y- und z-Zentren unterschieden werden. Für die zugehörigen Eulerwinkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$

für x-, y- und z-Zentrum in den jeweiligen Zentrensystemen ergeben sich in Abhängigkeit der Drehachsenorientierung folgende Gleichungen:

x-Zentrum: (3.18)

$$\begin{aligned}\cos \vartheta^{(x)} &= \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \beta \sin \gamma , \\ \cos \varphi^{(x)} &= \left(\frac{(\cos \alpha \sin \beta \cos \gamma + \cos \beta \sin \gamma)^2}{(\cos \alpha \sin \beta \cos \gamma + \cos \beta \sin \gamma)^2 + \sin^2 \alpha \cos^2 \gamma} \right)^{\frac{1}{2}} ,\end{aligned}$$

y-Zentrum:

$$\begin{aligned}\cos \vartheta^{(y)} &= \cos \alpha \sin \beta \cos \gamma + \cos \beta \sin \gamma , \\ \cos \varphi^{(y)} &= \left(\frac{\sin^2 \alpha \cos^2 \gamma}{\sin^2 \alpha \cos^2 \gamma + (\cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \beta \sin \gamma)^2} \right)^{\frac{1}{2}} ,\end{aligned}$$

z-Zentrum:

$$\begin{aligned}\cos \vartheta^{(z)} &= \sin \alpha \cos \gamma , \\ \cos \varphi^{(z)} &= \left(\frac{(\cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \beta \sin \gamma)^2}{(\cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \beta \sin \gamma)^2 + (\cos \alpha \sin \beta \cos \gamma + \cos \beta \sin \gamma)^2} \right)^{\frac{1}{2}} .\end{aligned}$$

Hieraus berechnen sich die Resonanzfelder $B_{(\alpha, \beta, \gamma)}^{(x, y, z)}$ von x-, y- und z-Zentrum in Abhängigkeit von den Euler-Winkeln α , β und dem Drehwinkel γ der Goniometerdrehachse in Kristallhauptachsensystem zu:

x-Zentrum: (3.19)

$$B^{(x)}(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{h\nu_S}{\mu_B \sqrt{(g_{\perp}^2 + (g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2)(\cos \alpha \cos \beta \cos \gamma - \sin \beta \sin \gamma)^2}} ,$$

y-Zentrum:

$$B^{(y)}(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{h\nu_S}{\mu_B \sqrt{g_{\perp}^2 + (g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2)(\sin \beta \cos \alpha \cos \gamma + \cos \beta \sin \gamma)^2}} ,$$

z-Zentrum:

$$B^{(z)}(\alpha, \beta, \gamma) = \frac{h\nu_S}{\mu_B \sqrt{g_{\perp}^2 + (g_{\parallel}^2 - g_{\perp}^2) \sin^2 \alpha \cos^2 \gamma}} .$$

Eine sehr gute Übereinstimmung von Simulation und Experiment ergibt sich für die Euler-Winkel der Drehachse im Kristallachsensystem für den Azimutalwinkel $\alpha = 83,0^\circ$ und den Polarwinkel $\beta = 13,5^\circ$. Dies war jedoch nur mit einer leicht von Literaturangaben abweichenden Hauptachse g_\perp des g -Tensorellipsoids möglich:

$$\begin{aligned} g_\perp &= 1,389 \quad (\text{Lit.: } 1,396), \\ g_\parallel &= 3,038 \quad (\text{Lit.: } 3,038) \quad [72], [67]. \end{aligned}$$

Zusammenfassend bestätigt sich aus der Winkelabhängigkeit der ESR-Linienlage die Modellvorstellung eines axialsymmetrischen g -Tensors mit den genannten Hauptachsenwerten und der Ausrichtung dessen g_\parallel -Achse in Richtung der C_4 -Symmetrieachse tetragonalen Zentrums in $\text{CaF}_2\text{:Ce}$.

Für die Drehachsenorientierung der Resonanzfeldwinkelabhängigkeit wurden auch die jeweils zugehörige Winkelabhängigkeit der ENDOR-Spektren aufgenommen. Details hierzu finden sich im Kapitel über das *Qubyte+1*-System, in Zusammenhang mit der dipolaren Qubit-Qubit-Wechselwirkung in $\text{CaF}_2\text{:Ce}$.

3.4.4 Relaxation und Dekohärenz

Die Idealvorstellung eines dekohärenz- und relaxationsfreien Quantensystems lässt sich in einem realen Quantencomputer natürlich nicht verwirklichen, da stets ein Restanteil von Wechselwirkungen mit der Umgebung oder zumindest mit Vakuumfluktuationen vorhanden ist – so auch bei der Implementierung eines Festkörper-Spin-Quantencomputers, wie im vorliegenden Fall mit $\text{CaF}_2\text{:Ce}$. Bei der Durchführung von Quantenalgorithmien muss daher gewährleistet sein, dass die Transformationen der Quantenzustände innerhalb der systemspezifischen Dekohärenz- und Relaxationszeit erfolgen:

1. Die transversalen Komponenten $S_{x,y}$, bzw. $I_{x,y}$ einer Ensemble-Dichtematrix sind der Dekohärenz mit der transversalen Relaxationszeit T_2 unterworfen. Ursächlich für diese Dephasierung sind Fluktuationen von Wechselwirkungskomponenten proportional zu S_z , bzw. I_z , wie die Spingitter-Relaxation in Form von Modulationen der Larmorfrequenzen mittelbar durch eine temperaturabhängige Phononenankopplung über die Spin-Bahn-Wechselwirkungen bei Spins $> \frac{1}{2}$ oder auch durch sogenannte Flip-Flop-Prozesse, verursacht durch nichtsäkulare Anteile der Dipol-Dipol-Wechselwirkung.
2. Die S_z -, bzw. I_z -Anteile hingegen relaxieren mit der longitudinalen Relaxationszeit T_1 . Dies ist die mittlere Zeitdauer, nach der sich ein Spin wieder

im Grundzustand, bzw. sich ein Spinensemble im Boltzmann-Gleichgewicht befindet. Für die Induktion der Relaxationsübergänge sind Fluktuationen transversaler Wechselwirkungskomponenten $S_{x,y}$, bzw. $I_{x,y}$ mit entsprechender Amplitude und spektraler Dichte, z.B. im Rauschen oder in Termen höherer Ordnung der Wechselwirkungsoperatoren, verantwortlich.

Zunächst sind hier nur die S -Spinrelaxationen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aufgeführt, da die Messungen die I -Spins betreffend auf ENDOR-Verfahren basieren, die erst im nächsten Kapitel erklärt werden. Im Anschluss daran werden auch die I -Spin-Relaxationen der Qubits im S-Bus-System detailliert vorgestellt. Die durchgeführten Relaxationsmessungen sind somit als eine Bestimmung der Grenzwerte zur Durchführung von Quantenalgorithmen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ nach dem S-Bus-Konzept zu betrachten.

Die Bestimmung der T_2 -Zeit erfolgt über die Echo-Intensitätsabnahme in Abhängigkeit von den inkrementierten Evolutionszeiten τ in der Hahn-Echo-Sequenz (vgl. Abb. 3.14). Diese ist aufgrund der Phononenankopplung mittelbar über die Spin-Bahn-Kopplung stark temperaturabhängig.

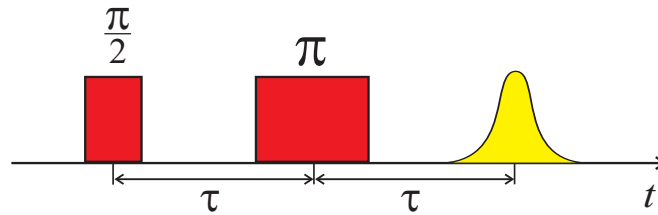


Abb. 3.14: Hahn-Echo-Sequenz mit inkrementiertem Pulsabstand τ . Während der freien Evolutionszeiten τ sind die transversalen Spin-Komponenten $S_{x,y}$ der Dekohärenz durch T_2 -Relaxation unterworfen, die sich in einer Abnahme des Echos in Abhängigkeit von der Zeitbasis 2τ zeigt.

Die Abb. 3.15 zeigt eine T_2 -Relaxationsmessung bei $T = 8$ K, aus der sich die Dekohärenzzeit der zentralen S -Spins in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ zu $T_2 = 3,72 \mu\text{s}$ ergibt.

Die T_2 -Messung mittels der Hahn-Echo-Sequenz spiegelt unter Umständen nicht die wahre Dekohärenzzeit wieder, da bei zunehmender Evolutionszeit τ sich auch die Wahrscheinlichkeit für Flip-Flop-Prozesse erhöht, die zur Dekohärenz führen. Dies ist bei der Gill-Meiboom-Sequenz nicht der Fall (Abb. 3.16). Diese besteht aus einer Echo-Sequenz, ebenfalls mit einer Abfolge freier, jedoch kürzerer Evolutionszeiten τ , an die mehrfach jeweils im Abstand 2τ π -Refokussierungspulse zur Erzeugung multipler Echos anschließen. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit der Dekohärenz durch Flip-Flop-Prozesse verringert.

Die Zeit 2τ in der Gill-Meiboom-Sequenz sollte länger als der FID, jedoch deutlich kürzer als die Dekohärenzzeit gewählt werden. Bei dieser Methode werden

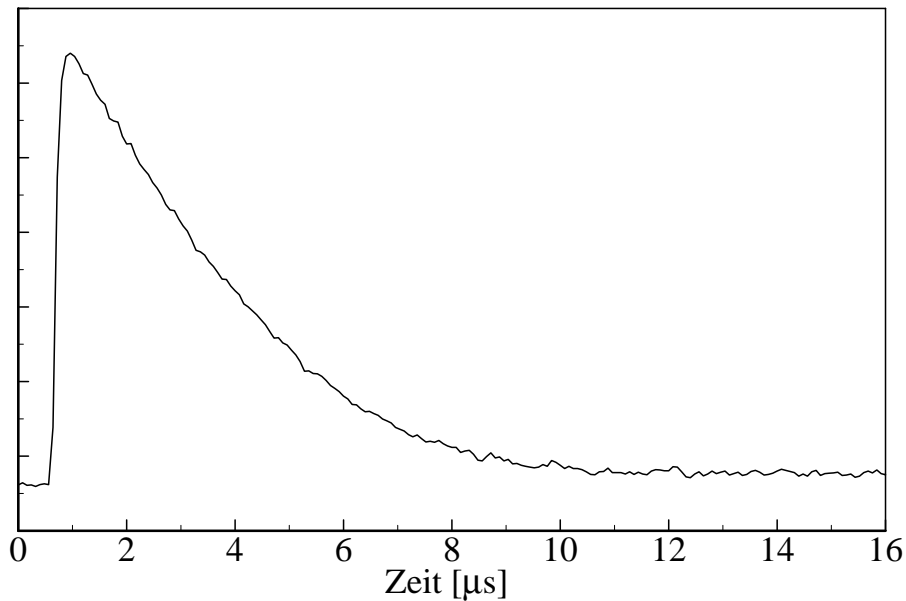


Abb. 3.15: T_2 -Relaxation der S -Spins des tetragonalen y -Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$: Aufgetragen ist die Höhe des Elektronenspin-Echos in Abhängigkeit der Zeitbasis 2τ der Hahn-Echo-Sequenz aus Abb. 3.14. Nach dieser Messung beträgt die gemessene transversale Relaxationszeit $T_2 = 3,72 \mu\text{s}$. Das Nullsignal am Kurvenanfang ist durch die Detektionstotzeit des Spektrometers bedingt. Messdaten: $\nu_S = 9,3885586 \text{ GHz}$; $B_0 = 0,4555 \text{ T}$; $\vartheta^{(y)} = 69,4^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,6^\circ$; $T = 8 \text{ K}$.

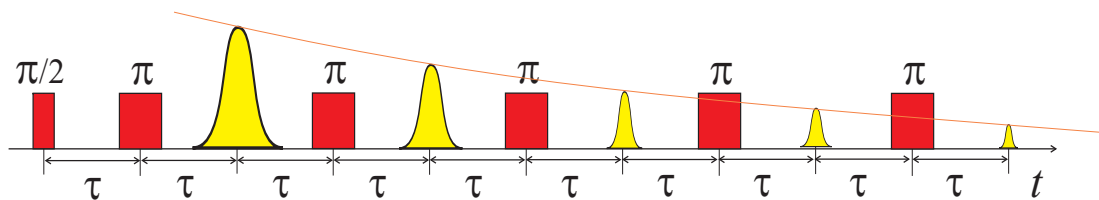


Abb. 3.16: Gill-Meiboom-Sequenz zur Bestimmung der wahren Dekohärenzzeit T_2 : Die Einhüllende der Höhen der multiplen Echos zeigt die Dekohärenz der transversalen Komponenten $S_{x,y}$.

jedoch nicht die Evolutionszeiten inkrementiert, sondern die Höhen der multiplen Echos ausgelesen. Deren Einhüllende spiegelt die wahre Dekohärenzzeit T_2 wieder, kann jedoch je nach Wechselwirkung mit anderen Spins auch Modulationen durch Quantum Beats aufweisen. Die Abb. 3.17 zeigt eine Aufnahme der Zeitspur der multiplen Spin-Echos einer Gill-Meiboom-Sequenz, aufgenommen am kubischen Zentrum von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.

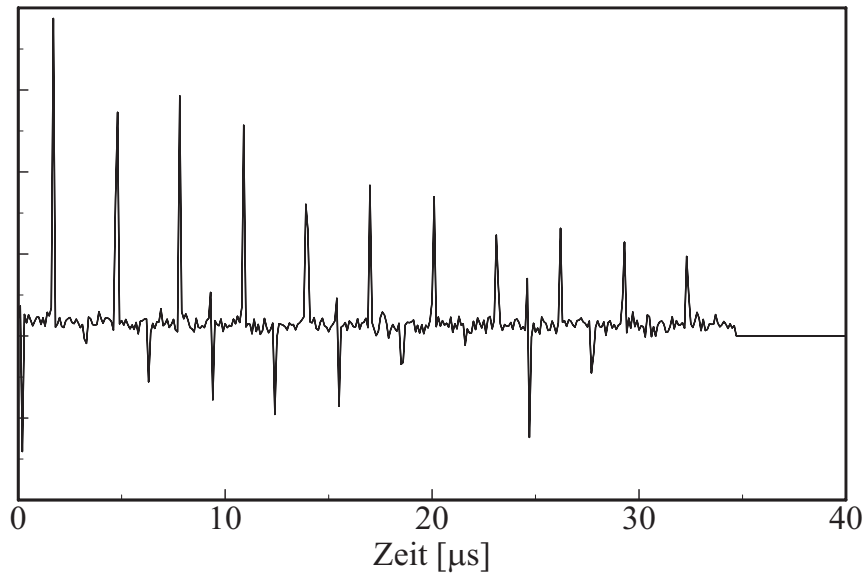


Abb. 3.17: T_2 -Relaxation kubisches Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$, gemessen mit der Gill-Meiboom-Sequenz: Aufgetragen ist die Zeitspur der S -Spinmagnetisierung mit den multiplen Echos. Es ist noch nach über $30 \mu\text{s}$ ein Elektronenspin-Echo detektierbar. Eine Echomodulation durch die Hyperfeinwechselwirkung ist sichtbar, aber bei der vorliegenden Samplingrate nicht aufgelöst. Eine Aufnahme der multiplen Echos für $t > 34 \mu\text{s}$ war apparaturbedingt nicht möglich.

Messdaten: $\nu_S = 9,68 \text{ GHz}$; $B_0 = 0,34593 \text{ T}$; $\tau = 1,516 \mu\text{s}$, $T(P(\frac{\pi}{2})) = 100 \mu\text{s}$.

Zur Messung der longitudinalen Relaxationszeit T_1 gibt es zwei grundlegende Pulssequenzen: die Inversion Recovery- (Abb. 3.18) und die stimulierte Echo-Sequenz (Abb. 3.20).

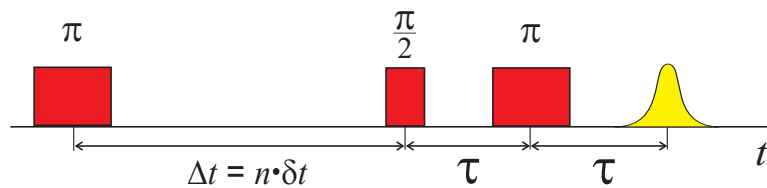


Abb. 3.18: Inversion Recovery-Sequenz zur Bestimmung der longitudinalen Relaxationszeit T_1 . Gemessen wird die Echohöhe in Abhängigkeit von der Zeit $\Delta t = n \cdot \delta t$; $n \in \mathbb{N}_0$ in n -fach wiederholten Experimenten.

Bei der Inversion Recovery-Sequenz (Inversionserholung) invertiert der erste π -Puls den Spin aus dem Boltzmann-Gleichgewicht von $|S_z\rangle$ nach $-|S_z\rangle$. Die danach einsetzende T_1 -Relaxation der S_z -Komponente kann durch die Anwen-

derung der Hahn-Echo-Sequenz in Abhängigkeit von der inkrementierten Zeit $\Delta t = n \cdot \delta t, n \in \mathbb{N}$ in wiederholten Experimenten bestimmt werden. Dabei wird jeweils nach der Zeit Δt die S_z -Komponente ausgelesen, deren Verlauf die T_1 -Relaxation widerspiegelt. Messparameter ist dabei die Echohöhe in Abhängigkeit von der Zeit Δt . Als Messergebnis erhält man einen exponentiellen Zerfall der maximalen negativen Echo-Höhe für $\Delta t = 0$ auf die Echo-Höhe, die der Eingangsdichtematrix S_z des Boltzmann-Gleichgewichts entspricht. Eine Zerfallskurve der Probenmagnetisierung $M(t)$ besitzt im monoexponentiellen Fall die Form:

$$M(t) = M_0 \left(1 - m \cdot \exp\left(-\frac{\Delta t}{T_1}\right) \right). \quad (3.20)$$

$M(t)$ entspricht dabei der S_z -Komponente, $M_0(1 - m)$ der maximalen, invertierten Spin-Echomagnetisierung und M_0 der maximalen Hahn-Echo-Spinmagnetisierung.

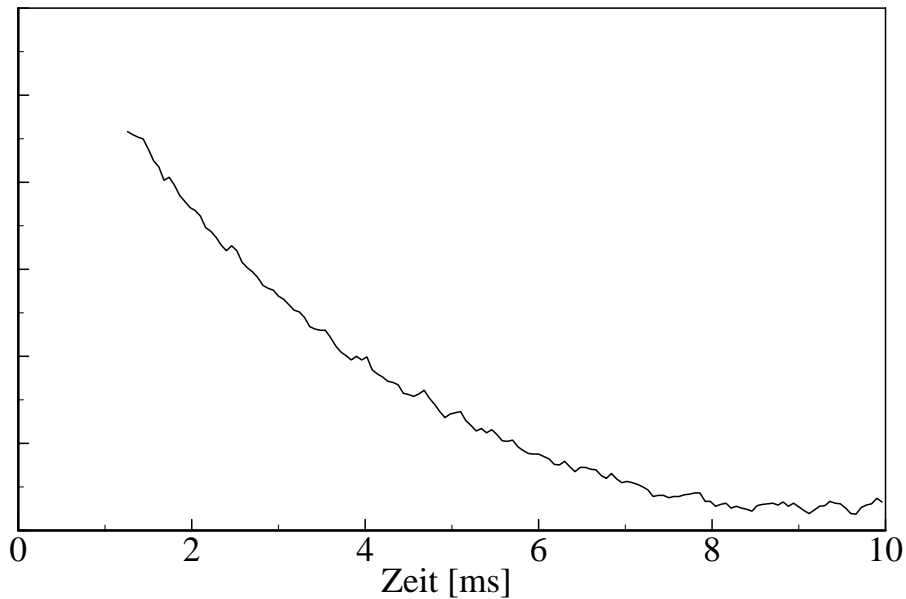


Abb. 3.19: Inversion Recovery-Messung am tetragonalen y -Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ bei $T = 8$ K: Aufgetragen ist die Echohöhe in Abhängigkeit von der Zeit $\Delta t = n \cdot \delta t; n \in \mathbb{N}_0$ mit dem Zeitinkrement $\delta t = 100 \mu\text{s}$. Die longitudinale Relaxationszeit ergibt sich daraus zu $T_1 = 3$ ms. Aus technischen Gründen beginnt die Messkurve erst bei $t = 1$ ms.

Messdaten: $\nu_S = 9,375508$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,4540$ T; $\vartheta^{(y)} = 69,4^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,6^\circ$.

Die stimulierte Echo-Sequenz (Abb. 3.20) liefert im Fall schneller Fluktuationen das gleiche Ergebnis für die longitudinale Relaxationszeit T_1 aufgrund der Relaxation der S_z -Komponente während der inkrementierten Zeit Δt . Existieren inner-

halb des Ensembles jedoch Spin-Spin-Kopplungen, hängt die Form der Zerfallskurve stark der Präparationszeit τ_S am Sequenzanfang ab. Die $\frac{\pi}{2}$ - τ_S - $\frac{\pi}{2}$ -Präparationssequenz führt zu einer Art Zwischenspeicherung der Phasenevolution aufgrund von Feldinhomogenitäten unter dem Zeitentwicklungsoperator $\exp(-i\Delta\omega S_z\tau)$ in Form eines Populationsgitters bzw. Spin-Polarisierung des Ensembles in der S_z -Komponente, die über den $\frac{\pi}{2}$ -Auslesepuls refokussiert wird und zum stimulierten Echo führt.

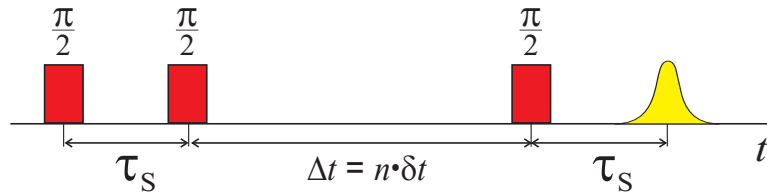


Abb. 3.20: Stimulierte Echo-Sequenz: Die Inkrementierung des Abstandes $\Delta t = n \cdot \delta t$; $n \in \mathbb{N}_0$ der $\frac{\pi}{2}$ - τ_S - $\frac{\pi}{2}$ -Präparationssequenz und dem $\frac{\pi}{2}$ -Auslesepuls spiegelt den T_1 -Zerfall der Spin-Echomagnetisierung unter Umständen nicht direkt wider. Weitere Erläuterungen im Text.

Unter Umständen erhält man dann als Messergebnis keinen einfachen exponentiellen Zerfall, sondern durch Quantum Beats modulierte Kurven, so dass die T_1 -Zeit nicht direkt ablesbar ist. Ebenso kann dies im Fall einer Modulation mit vielen dicht beieinander liegenden Frequenzen zu einer schnelleren Relaxation führen, so dass die Stimulierte Echo-Sequenz nur bedingt zur T_1 -Messung verwendbar ist.

Entscheidend bei der repetierten Durchführung von Experimenten zur Mittelung über mehrere experimentelle Messwerte eines Messpunktes ist das Sättigungsverhalten der Spins. Würden die Gesamtpulsfolgen zu schnell wiederholt, wenn das Spin-System noch nicht in das thermische Gleichgewicht relaxiert ist, also die Repetitionsrate $1/T_{\text{rep}}$ größer als die longitudinale Relaxationsrate $1/T_1$ ist, wäre der Initialzustand von Experiment zu Experiment ein anderer, der sich einem quasistationären Zustand ungleich dem Boltzmann-Gleichgewicht nähert. Die exakte Durchführung eines Quantenalgorithmus wäre damit nicht gewährleistet.

Nachfolgend sind die Relaxations- und Dekohärenzzeiten der S -Spins in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ zusammen mit der jeweiligen Messmethode tabellarisch aufgeführt:

Relaxationszeit	Messmethode
$T_1 = 480 \mu\text{s}$	stimuliertes Echo
$T_1 = 3 \text{ ms}$	Inversion Recovery
$T_2 = 3,72 \mu\text{s}$	Hahn-Echo
$T_2 = > 34 \mu\text{s}$	Gill-Meiboom

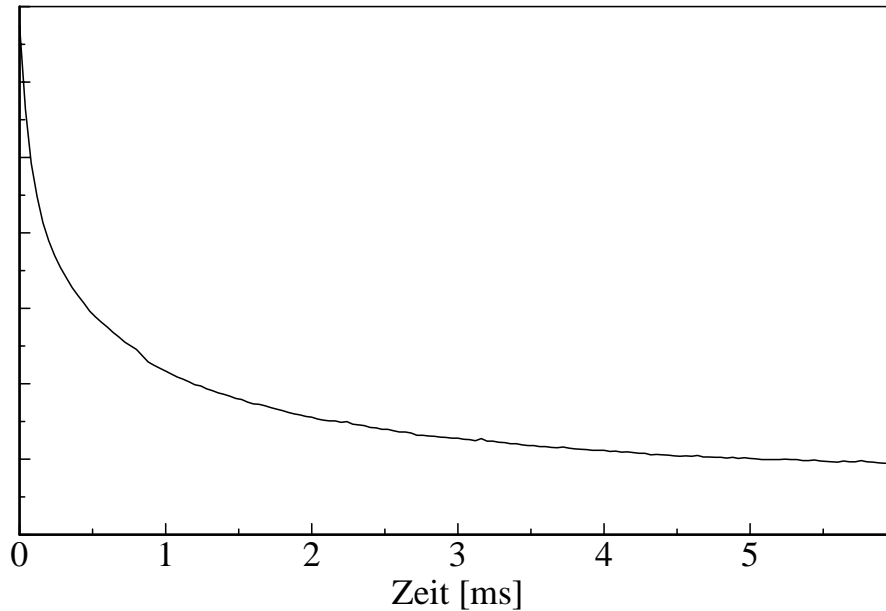


Abb. 3.21: Messung der longitudinalen Relaxationszeit T_1 des tetragonalen y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit der Stimulierten Echo-Sequenz: Aufgetragen ist die S -Spin-Echohöhe in Abhängigkeit von der Zeit $\Delta t = n \cdot \delta t$; $n \in \mathbb{N}_0$. Die longitudinale Relaxationszeit ergibt sich daraus zu $T_1 = 480 \mu\text{s}$, also deutlich abweichend von der Messung mit der Inversion Recovery-Sequenz.

Messdaten: $\nu_S = 9,397040 \text{ GHz}$; $B_0^{(y)} = 0,41139 \text{ T}$; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; $T = 8 \text{ K}$.

3.4.5 Mims-ENDOR-Messungen

Bei der Quanteninformationsverarbeitung mittels ENDOR-Verfahren nach dem S-Bus-Konzept werden die Qubits durch eine frequenzselektive RF-Einstrahlung gezielt einzeln manipuliert. ENDOR-Spektren liefern hierfür die Informationen über die spektrale Lage der Qubit-Übergänge der I_j -Spins, die an den als Monitor dienenden zentralen Elektronenspin S koppeln. Es handelt sich um eine indirekte Nachweismethode über das Elektronenspin-Echo. Man erhält aus den ENDOR-Spektren auch die Information über die Größe der Hyperfeinwechselwirkung a_j der ^{19}F -Kernspins mit dem Ce^{3+} -Elektronenspin. Aus Winkelabhängigkeitsmessungen der ENDOR-Spektren für verschiedene Kristallorientierungen kann man auf die Anteile der anisotropen Dipol-Dipol-Wechselwirkung und über deren Abstandsabhängigkeit auf die direkte Umgebung des Elektronenspins zurückschließen und beispielsweise die Größe einer Gitterverzerrung bestimmen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden vor allem auf der Mims-Sequenz basierende ENDOR-Verfahren angewandt. Die Mims-ENDOR-Sequenz (Abb. 3.22) besteht im einfachsten Fall aus einer Präparationssequenz zweier $\frac{\pi}{2}$ -Pulse im Ab-

stand τ_S und einem $\frac{\pi}{2}$ -Auslesepuls, identisch der Stimulierten Echo-Sequenz [93]. Ein RF- π -Puls variabler Frequenz ν_{RF} im Anschluss an den Präparationsteil induziert im Resonanzfall Kernspin-Übergänge, mit $|I_{z_j}\rangle \mapsto -|I_{z_j}\rangle$, die sich als ENDOR-Effekt in einer Änderung der Höhe des stimulierten Echos zeigen. Eine Auftragung der Spin-Echo-Magnetisierung in Abhängigkeit der Frequenz ν_{RF} stellt das ENDOR-Spektrum dar.

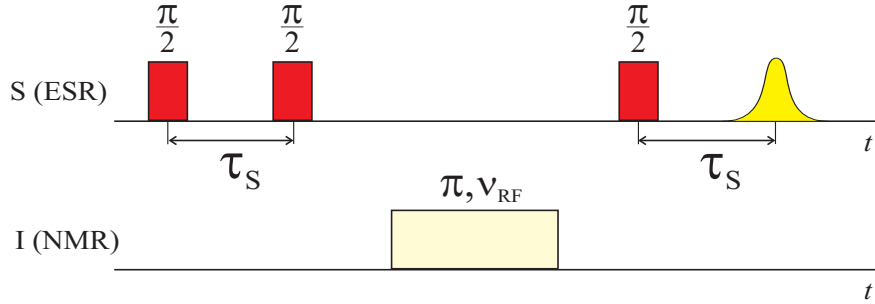


Abb. 3.22: Mims-ENDOR-Sequenz: Die Präparationssequenz aus den beiden $\frac{\pi}{2}$ -Pulse im Abstand τ_S erzeugt in einem S-Bus-System ein Populationsgitter. Der selektive RF- π -Puls führt im Resonanzfall zu einer Inversion der Kernspinzustände $|I_{z_j}\rangle \mapsto -|I_{z_j}\rangle$. Dies hat mittelbar über die Detektion des stimulierten Echos der Elektronenspins S eine Änderung der Höhe desselben zu Folge. Durch sukzessive Variation der Frequenz ν_{RF} des NMR-Pulses erhält man das ENDOR-Spektrum.

Die Anwendung der Mims-ENDOR-Sequenz auf ein S-Bus-System präpariert zunächst mit den beiden ersten $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen mit einer freien Evolutionszeit τ_S ein Populationsgitter aufgrund der Phasenevolution einerseits unter Feldinhomogenitäten, andererseits aufgrund der Hyperfeinwechselwirkungen a_j resultierend eines Zeitentwicklungsoperators der Form $\exp(-i\Delta\omega S_z \tau_S)$. Die darauf folgende RF-Einstrahlung eines selektiven π -Pulses auf dem k . ENDOR-Übergang invertiert im Resonanzfall den Spin $I_{z_k} \mapsto -I_{z_k}$. Somit erfahren alle Korrelationsterme $|S_z \dots I_{z_j} I_{z_k} \dots\rangle$ einen Vorzeichenwechsel, wodurch sich auch die Höhe des stimulierten Elektronenspin-Echos ändert.

Die Folge des Aufbaus des Populationsgitters ist, dass für bestimmte Zeiten τ_S manche ENDOR-Linien sehr klein oder zu Null werden können und somit in den Mims-ENDOR-Spektren nicht mehr auftreten. Daher müssen diese ENDOR-Messungen stets für verschiedene τ_S -Werte durchgeführt werden. Weitere Details hierzu finden sich im Kapitel über Multi-Quanten-ENDOR (MQE), in dem eine Erklärung des Populationsgitters über die Präparation von Multi-Quantenkorrelationen erfolgt.

Im Experiment war es apparativ bedingt nicht möglich unmittelbar nach einer Pulseinstrahlung zu detektieren, d.h. das verwendete Spektrometer besaß in Abhängigkeit von der Resonatorabstimmung eine sogenannte „Totzeit“. Diese ist

durch das „Nachklingeln“ des Resonators nach einer Pulseinstrahlung bedingt, da bei Öffnung des Detektionskanals während dieses Nachschwingens die empfindliche Detektionselektronik zerstört werden könnte. Bei der Mims-ENDOR-Sequenz kann es daher vorkommen, dass das stimulierte Echo für kleine τ_S -Werte in diese Totzeit fällt und nicht detektierbar ist, obwohl zur Aufnahme bestimmter Spektren eine derart kurze Evolutionszeit nötig ist. Dadurch ist die freie Wahl der Evolutionszeit τ_S nach unten hin begrenzt. Dies ist durch Anwendung der Remote-Echo-Detektion (RED) zu umgehen (Abb. 3.23).

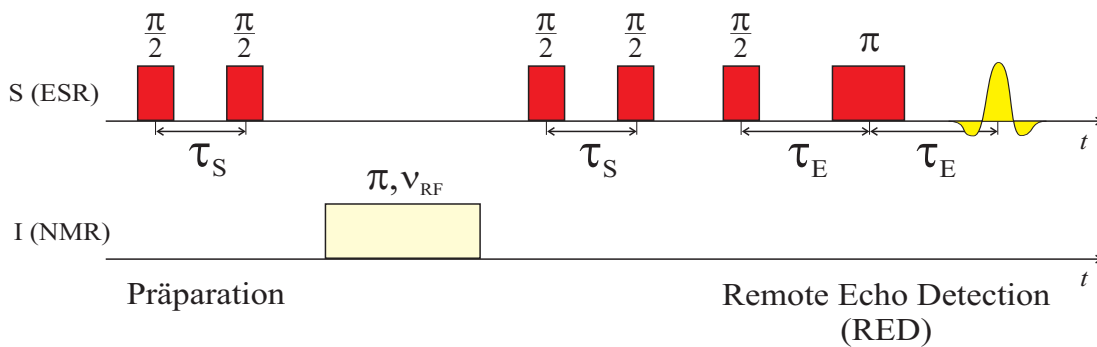


Abb. 3.23: Mims-ENDOR-Sequenz mit Remote-Echo-Detektion: Die Aufnahme eines Echo-Spektrums erfolgt identisch wie bei der herkömmlichen Mims-Sequenz, jedoch ist es mit der Remote-Echo-Detektion-Sequenz möglich die Evolutionszeiten τ_S und τ_E ($>$ „Totzeit“) frei an die experimentellen Bedingungen anzupassen, mit dem Vorteil, dass τ_S auch kleiner als die apparativ bedingte Detektionstotzeit des Spektrometers werden kann. In nachfolgenden Abbildungen wird die Remote-Echo-Detektion-Sequenz abgekürzt durch „RED(τ_E)“ dargestellt.

Der durch die Präparationssequenz und die RF-Einstrahlung generierte Quantenzustand wird über eine der Präparation identische Detektionssequenz – ebenfalls mit einer Evolutionszeit τ_S – auf eine Dichtematrix $C \cdot S_z$ transformiert, die in einem multiplikativen Faktor C die Information über die Manipulation der Qubit-Kernspins als Skalar enthält. Dieser Faktor kann dann im Anschluss über die Hahn-Echo-Sequenz als relative Spin-Echomagnetisierung in Abhängigkeit eines Kontrollparameters der Qubit-Manipulation, der in C eingeht, in repetierten Experimenten ausgelesen werden. Die Abb. 3.24 zeigt das *Qubyte+1*-ENDOR-Spektrum mit vollständiger Auflösung aller Kernspinübergänge der dem Ce^{3+} -Spin direkt benachbarten F^- -Kernspins

Eine detaillierte Auswertung der ENDOR-Spektren findet sich im Kapitel über die Charakterisierung des *Qubyte+1*. Darin sind neben den Hyperfeinwechselwirkungen a_j und den dipolaren Qubit-Qubit-Kopplungen D_{jk} auch die Zugehörigkeit der ENDOR-Übergänge zum selben elektronischen Zustand sowie anhand einer Simulation die Identifizierung der ENDOR-Linien mit den das Ce^{3+} -Ion umgebenden F^- -Ionen angegeben.

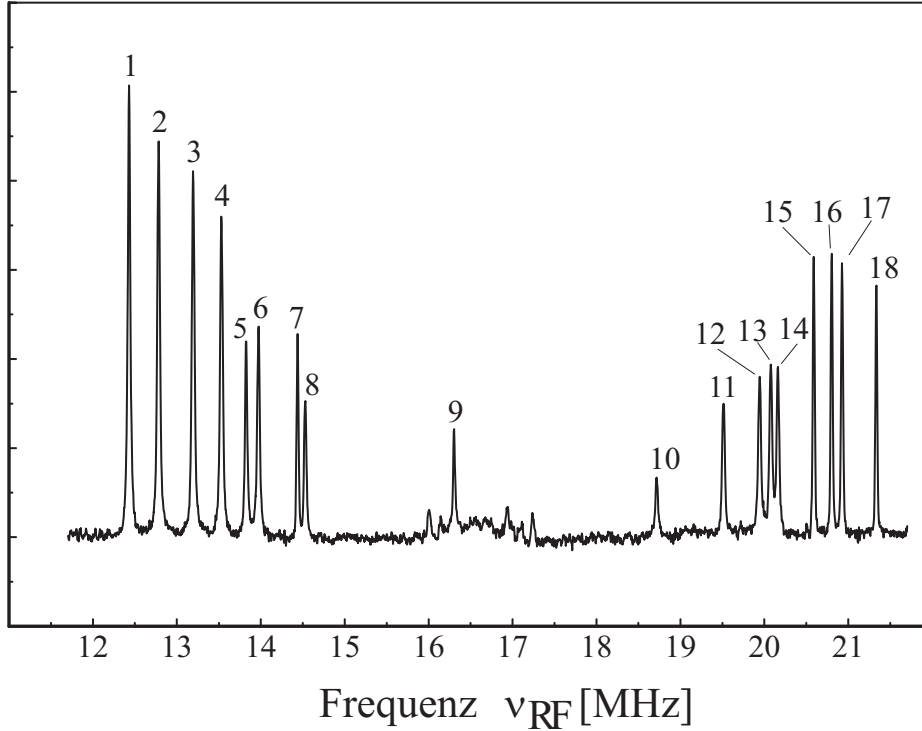


Abb. 3.24: *Qubyte+1*-ENDOR-Spektrum des tetragonalen y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$, gemessen mit Remote-Echo-Detektion (RED) aus Abb. 3.23: Aufgetragen ist die Höhe des Elektronenspin-Echos in Abhängigkeit von der variierten NMR-Frequenz ν_{RF} . Neben der Resonanzfrequenz der freien Fluorkernspins bei 16,5 MHz sind die neun Resonanzlinien der an das Ce^{3+} -Ion gekoppelten F^- -Ionen des umgebenden Fluor-Ionenwürfels und der Ladungskompensation für beide elektronische Zustände $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ vollständig aufgelöst. Durch eine entsprechende Wahl der freien Evolutionszeit τ_S ist über die Vorfaktoren der Korrelationssterme eine Beeinflussung des Anteils der Spin-Operatoren, bzw. des Korrelationsgrades am Gesamtquantenzustand des S-Bus-Zentrums möglich. Die Evolutionszeit betrug $\tau_S = 32$ ns, daher werden nahezu nur die *Qubyte+1*-Kernspins mit dem Zentralspin S korreliert, die Zentralgruppe mit kleinem a_j besitzt nur eine kleinen, vernachlässigbaren Korrelationsanteil an der Gesamtdichtematrix. Messdaten: $\nu_S = 9,381042$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,40942$ T; $\tau_S = 36$ ns; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

3.4.6 Relaxationen und Sublevel-Echo der Qubits

Kernspinrelaxationen sind in der NMR mit den gleichen Sequenzen messbar, wie sie im Kapitel über die Elektronenspin-Relaxation bereits vorgestellt wurden. Jedoch ist im Boltzmann-Gleichgewicht die Kernspin-Polarisation bei gleicher Temperatur rund drei Größenordnungen kleiner als die Elektronenspin-Polarisation,

so dass auch die Signalstärke dem entsprechend geringer ist. Hier erfolgt die Bestimmung der Kernspinrelaxation mittels ENDOR-Verfahren auf indirektem Weg über den S -Spin als Monitor. Die Funktionsweise ist analog zu der bei der Aufnahme von ENDOR-Spektren. Anstelle des RF- π -Pulses aus Abb. 3.23 treten hier beispielsweise die Hahn-Echo-Sequenz, die ein Sublevel-Echo generiert (Abb. 3.25) [94].

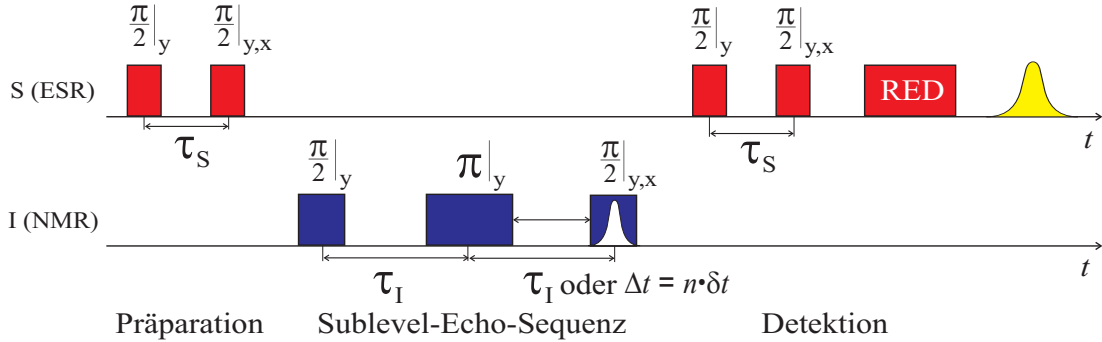


Abb. 3.25: Sublevel-Echo-Sequenz mit Remote-Echo-Detektion: Die in der Präparationsequenz mit dem Zentralspin S korrelierten Qubit-Kernspins I_j erzeugen durch die NMR-Hahn-Echo-Sequenz ein Sublevel-Echo bezüglich τ_I , dessen transiente Komponenten $I_{x,y}$ durch den $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls je nach Phasenlage wieder nach I_z transformiert werden und somit als ENDOR-Effekt über das S -Spin-Echo detektiert werden können. Durch eine sukzessive Inkrementierung des Abstandes Δt von der $\frac{\pi}{2}$ - π -Echo-Sequenz und des $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepulses über das Sublevel-Echo hinweg lässt sich dessen Form abtasten – eine Art Sampling der Kernspin-Magnetisierung für verschiedene Δt . Für konstante Werte von $\Delta t = \tau_I$ und bei Inkrementierung der Evolutionszeiten τ_I gleichermaßen erhält man die Sublevel-Echodephasierung mit der transversalen Kernspin-Relaxationszeit $T_2^{(I)}$.

Die Wirkung der Sublevel-Echo-Sequenz erklärt sich wie folgt: Die beiden $\frac{\pi}{2}$ -Pulse der Präparationssequenz generieren Korrelationszustände der Form $S_z|c_0\hat{1} + c_1I_{z_1} + c_2I_{z_2} + \dots + c_{jk}I_{z_j}I_{z_k} + \dots + c_NI_{z_1} \dots I_{z_N}$. Details hierzu werden in einem späteren Kapitel aufgeführt. Die Hahn-Echo-Sequenz auf den Qubit-Übergängen der Kernspins I_j erzeugt das sogenannte Sublevel-Echo, dessen Transversalkomponente I_{x,y_j} je nach Phasenlage und Frequenz des $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepulses zum Zeitpunkt des Sublevel-Echos auf eine I_{z_j} -Komponente transformiert und somit mittelbar über die Höhe des Elektronenspin-Echos detektiert werden kann. Dies ist auch über die Remote-Echo-Detektion möglich.

Zur Bestimmung der Form und der Linienbreite des Sublevel-Echos wird der Abstand Δt zwischen $\frac{\pi}{2}$ - π -Echo-Sequenz und $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls inkrementiert, wobei die erste Evolutionszeit τ_I der Hahn-Echo-Sequenz konstant gehalten wird. Dadurch wird der $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls quasi über das Sublevel-Echo hinweg ge-

schoben. Daraus resultiert eine Art Sampling der Größe der Transversalkomponente I_{x,y_j} durch Rücktransformation nach I_z für verschiedene Δt . Die Auftragung des Messsignals in Abhängigkeit von Δt liefert die Form des Sublevel-Echos, die im Falle mehrerer korrelierter Qubit-Kernspins auch durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Kernspins untereinander eine Modulation des Signals aufweisen kann. Abb. 3.26(ff) zeigen hierzu verschiedene Messungen an $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ bei selektiver RF-Einstrahlung auf einem Kernspin-Übergang mit unterschiedlicher Frequenz ν_{RF} .

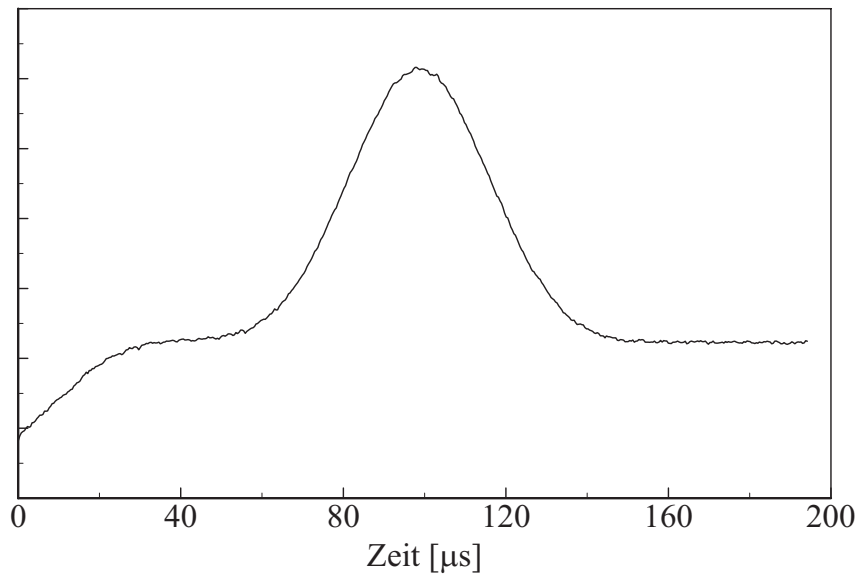


Abb. 3.26: Form des Sublevel-Echos des tetragonalen y-Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ bei selektiver Einstrahlung auf einem Qubit-ENDOR-Übergang. Aufgetragen ist die Höhe des stimulierten Elektronen-Spin-Echos unter Verwendung der Remote-Echo-Detektion in Abhängigkeit vom variierten Pulsabstand $\Delta t = n \cdot \delta t$ für eine Evolutionszeit von $\tau_I = 100 \mu\text{s}$ in der Sublevel-Hahn-Echo-Sequenz (Abb. 3.25). Die Halbwertsbreite des Sublevel-Kernspin-Echos beträgt $40 \mu\text{s}$, die Zeitdauer des FID $20 \mu\text{s}$. Für kleine Pulsabstände Δt ist am Kurvenanfang noch ein Rest-FID aufgrund imperfekter Pulse zu sehen.

Messdaten: $\nu_S = 9,3763416 \text{ GHz}$; $B_0^{(y)} = 0,4540 \text{ T}$; $\tau_S = 64 \text{ ns}$; $\tau_E = 384 \text{ ns}$; $\nu_{\text{RF}} = 21,816 \text{ MHz}$; $\tau_I = 100 \mu\text{s}$; $\delta t = 380 \text{ ns}$; $\vartheta^{(y)} = 69,4^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,6^\circ$; $T = 8 \text{ K}$.

Der Nachweis, dass es sich wirklich um ein Sublevel-Echo der Kernspins I_j handelt, erfolgt durch eine um $\Delta\nu$ nichtresonante Einstrahlung auf einem Qubit-Übergang aus Abb. 3.26. Die nichtresonante RF-Einstrahlung mit $\nu_{\text{RF}} = \nu_j + \Delta\nu$ führt für das Qubit I_j zu einer Evolution unter einer z-Rotation mit dem Phasenfaktor $\exp(-i2\pi\Delta\nu t I_{z_j})$, die als eine Oszillation des Sublevel-Echos mit einer

Periodizität von $T_{\text{mod}} = 1/\Delta\nu$ sichtbar ist. Auch hierzu wurden Messungen für verschiedene $\Delta\nu$ durchgeführt (Abb. 3.27).

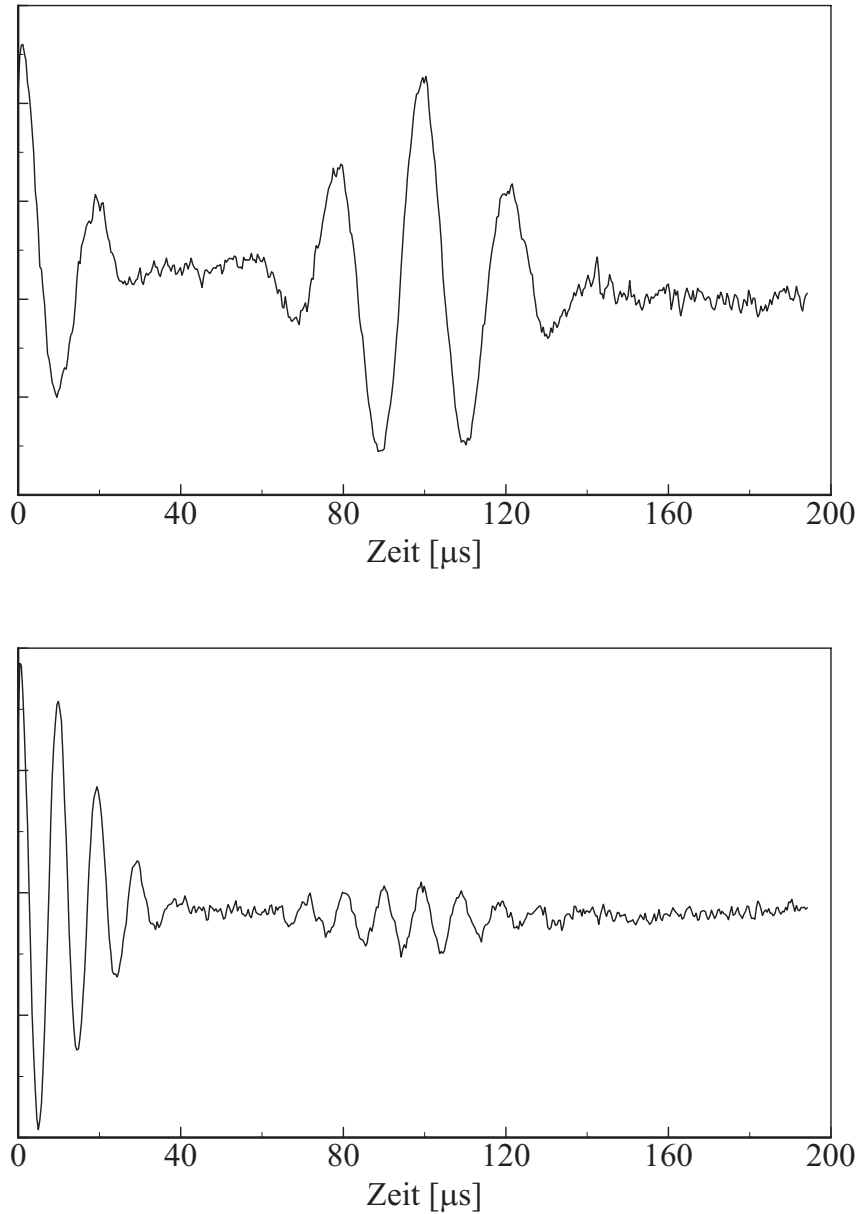


Abb. 3.27: Modulation des Sublevel-Echos des tetragonalen y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aus Messung 3.26 bei selektiver, nichtresonanter Einstrahlung auf einem Qubit-ENDOR-Übergang. Aufgetragen ist die Höhe des stimulierten Elektronen-Spin-Echos unter Verwendung der Remote-Echo-Detektion in Abhängigkeit vom Pulsabstand $\Delta t = n \cdot \delta t$ (Abb. 3.25). Die nichtresonante RF-Einstrahlung mit $\Delta\nu = 50$ kHz (oben), bzw. $\Delta\nu = 100$ kHz (unten) führt zu einer Evolution mit dem Phasenfaktor $\exp(-i2\pi\Delta\nu_{\text{RF}}t)$ des Qubits, die als eine Oszillation des Sublevel-Echos mit einer Periodizität von $20 \mu\text{s}$, bzw. $10 \mu\text{s}$ sichtbar ist.

Messdaten: $\nu_S = 9,3763416$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,4540$ T; $\tau_S = 64$ ns; $\tau_E = 384$ ns; $\nu_{\text{RF}} = 21,816 + 0,05$ MHz (oben); $\nu_{\text{RF}} = 21,816 + 0,10$ MHz (unten); $\tau_I = 100 \mu\text{s}$; $\delta t = 380$ ns; $\vartheta^{(y)} = 69,4^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,6^\circ$; T = 8 K.

Zur Bestimmung der transversalen Sublevel-Echo-Relaxation wird im Experiment $\Delta t = \tau_I$ (Abb. 3.25) gesetzt und die Abstände τ_I in der NMR-Hahn-Echo-Sequenz gleichermaßen inkrementiert. Während dieser Zeit τ_I evolvieren die Phasen der transienten Komponenten $I_{x,y}$ unter dem Hamilton-Operator, die zu einem Sublevel-FID und nach Refokussierung zu einem Sublevel-Echo führen, dessen T_2 -Relaxation durch die τ_I -Inkrementierung messbar ist. Diese Messungen geben Aufschluss über die Dekohärenz von hochkorrelierten Quantenzuständen der Form $S_z|c_0\hat{1} + c_1I_{x,y_1} + c_2I_{x,y_2} + \dots + c_{12}I_{x,y_1}I_{x,y_2} + \dots + c_N I_{x,y_1}I_{x,y_2} \dots I_{x,y_N})$ (Multi-Quantenkorrelationen), die die Basis zur Erzeugung pseudoreiner und verschränkter Zustände und damit zur Durchführung von Quantenalgorithmien nach dem S-Bus-Konzept bilden. Abb. 3.28 zeigt eine solche Dekohärenzmessung am S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.

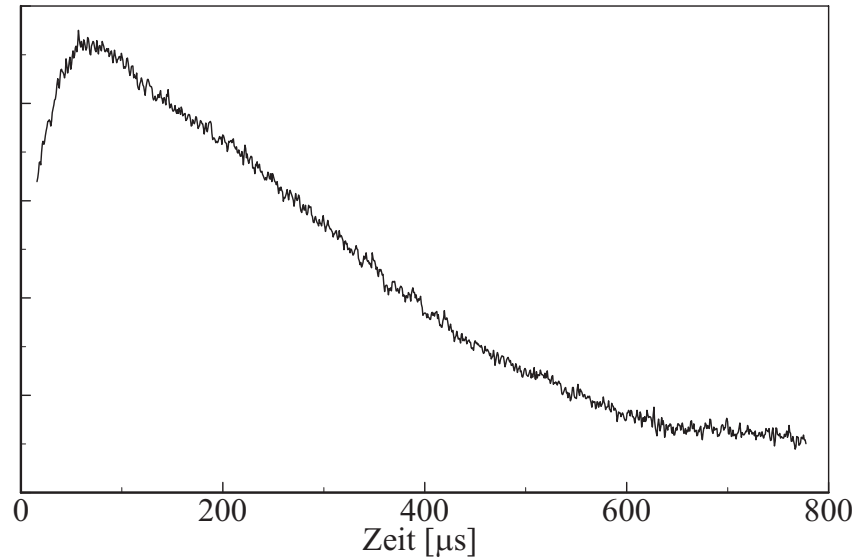


Abb. 3.28: Sublevel-Echo-Zerfall des tetragonalen y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ bei selektiver Einstrahlung auf einem Kernspin-Übergang in Abhängigkeit vom inkrementierten Pulsabstand τ_I (Abb. 3.25). Die Zerfallszeit entspricht mit rund $300 \mu\text{s}$ der Dekohärenzzeit von Multi-Quantenkorrelationen. Für $\tau_I < 50 \mu\text{s}$ zeigt die Messung noch einen Rest des Sublevel-FID. Die Kristallorientierung war bei dieser Messung eine andere als die der im Text tabellarisch aufgeführten Messungen, so dass sich durchaus abweichende Werte ergeben können.

Messdaten: $\nu_S = 9,3763416 \text{ GHz}$; $B_0^{(y)} = 0,4540 \text{ T}$; $\tau_S = 64 \text{ ns}$; $\tau_E = 384 \text{ ns}$; $\nu_{\text{RF}} = 21,816 \text{ MHz}$; $\tau_I = n \cdot \delta t$; $\delta t = 380 \text{ ns}$; $\vartheta^{(y)} = 69,4^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,6^\circ$; $T = 8 \text{ K}$.

Diese Sublevel-Echozerfälle wurden zur Bestimmung aller Qubit-Dekohärenzzeiten $T_2^{(I)}$ auch auf den anderen ENDOR-Übergängen aufgenommen und sind für beide elektronischen Zustände $|m_s\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ nachfolgend tabellarisch aufgeführt.

Die Zugehörigkeit zu den jeweiligen elektronischen Zuständen ist hier schon vorweggenommen, da diese experimentell schon hier bestimmt wurde. Erklärungen hierzu folgen in einem späteren Kapitel.

ENDOR-Übergang $ m_S\rangle = + \frac{1}{2}\rangle$	Frequenz [MHz]	$T_2^{(I_j)}$ [μs]
ν_1	12,371	530
ν_2	12,684	530
ν_5	13,684	500
ν_6	13,838	420
ν_9	16,192	—
ν_{11}	19,482	510
ν_{12}	19,923	500
ν_{13}	20,039	650
ν_{16}	20,737	500
ENDOR-Übergang $ m_S\rangle = - \frac{1}{2}\rangle$	Frequenz [MHz]	$T_2^{(I_j)}$ [μs]
ν_3	13,107	430
ν_4	12,413	420
ν_7	14,284	400
ν_8	14,381	430
ν_{10}	18,680	500
ν_{14}	20,122	610
ν_{15}	20,502	620
ν_{17}	20,845	500
ν_{18}	21,232	530

Messdaten:

$$\nu_S = 9,379132 \text{ GHz}; B_0^{(y)} = 0,40944 \text{ T}; \tau_S = 36 \text{ ns}; \delta t = 5 \mu\text{s}.$$

Die Frequenzen ν_j entsprechen denen aus Abb. 3.29, die Zugehörigkeit zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle = |\pm \frac{1}{2}\rangle$ wurde mittels Multi-Quanten-ENDOR (MQE) bestimmt.

Eine Bestimmung der longitudinalen Kernspinrelaxationszeit $T_1^{(I)}$ ist anhand von ENDOR-Verfahren nicht möglich, weil diese die longitudinale Relaxationszeit der S -Spins bei weitem übersteigt und daher keinen Einfluss in den ENDOR-Experimenten zeigt.

3.5 Das *Qubyte+1*-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$

Das tetragonale $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrum bildet nach dem S-Bus-Konzept ein Spin-System mit neun selektiv adressierbaren Qubits, die von den dem Ce^{3+} -Ion direkt benachbarten ^{19}F -Kernspins I_j dargestellt werden – nachfolgend auch *Qubyte+1*-System genannt. Diese Qubits sind an den zentralen S -Spin über die Hyperfeinwechselwirkung a_j und untereinander über ein Netzwerk aus dipolarer Qubit-Qubit-Wechselwirkung D_{jk} gekoppelt, welche unter anderem zur Präparation von Quantenkorrelationen, zur Implementierung des CNOT-Gatters sowie zur Präparation verschränkter Zustände genutzt werden. Dieses Kapitel enthält die Charakterisierung des *Qubyte+1*, die sich aufteilt in:

1. Vergleich von Messung und Simulation der *Qubyte+1-ENDOR-Spektren* des tetragonalen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrums sowie deren Winkelabhängigkeit bei Drehung des Kristalls um eine Achse.
2. Bestimmung des *Qubyte+1-Kopplungsnetzwerkes* der dipolaren Qubit-Kernspinkopplungen mittels Sublevel-Echomodulation.
3. Korrelationsanalyse des *Qubyte+1* durch Tripel-ENDOR. Dieses zeigt den Einfluss der einzelnen Korrelationsanteile an der Gesamt-Multi-Quantenkorrelation.
4. Zusammenfassende Darstellung der *Qubyte+1-ENDOR-Spektren* im Sinne der Zielsetzung der Zuordnung der ENDOR-Übergänge zu den elektronischen Zuständen $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ des Ce^{3+} -S-Spins und zu den einzelnen *Qubyte+1*-Kernspins.

3.5.1 *Qubyte+1*-ENDOR-Spektren

Experimentell konnte eine Kristallorientierung gefunden werden, in der alle Qubit-ENDOR-Übergänge des tetragonalen y -Zentrums vollständig aufgelöst sind (Abb. 3.29), d.h. alle Qubits selektiv in der Frequenz adressierbar sind. Eine Identifizierung der ENDOR-Übergänge mit den das *Qubyte+1* bildenden F^- -Ionen ist anhand einer Modellsimulation möglich. In diesem Zusammenhang konnten auch die Hyperfeinwechselwirkungen a_j zwischen S - und I_j -Spins, die im Fall von Spins $I_j = \frac{1}{2}$ dem Frequenzabstand korrespondierender ENDOR-Linien entsprechen, bestimmt werden.

Mittels einer Mims-ENDOR-Messung mit Remote-Echo-Detektion wurden die in Abb. 3.29 dargestellten ENDOR-Spektren des tetragonalen x - und y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aufgenommen. Hierbei wurde, wie in weiterführenden Experimenten, eine sehr kurze Evolutionszeit τ_S in der Präparationssequenz gewählt, um

eine dominante Korrelation der *Qubyte+1*-Kernspins zu erwirken. Die jeweiligen Übergangsfrequenzen ν_j und Hyperfeinwechselwirkungen a_j sind im Rahmen der durchgeführten Modellsimulation später tabellarisch aufgelistet.

Weiterhin wurde die Zugehörigkeit der ENDOR-Übergänge zum selben elektronischen Zustand $|m_s\rangle = |\pm \frac{1}{2}\rangle$ anhand von MQE-Messungen für je zwei Qubits bestimmt. Dieses Verfahren ist im Kapitel über die Implementierung eines Quantencomputers in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ detailliert erklärt. Die Ergebnisse sind teilweise an dieser Stelle vorweg genommen.

Aufgrund der tetragonalen Zentrumssymmetrie ist davon auszugehen, dass die große Hauptachse g_{\parallel} des g -Tensors des Elektronenspins parallel zur C_4 -Achse des tetragonalen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrums liegt. Dies beweist die Winkelabhängigkeit der ESR-Linienlagen. Bei nichtkanonischen Kristallorientierungen weichen das äußere B_0 -Feld $\vec{B}_0 = (B_x, B_y, B_z)$ und das für den Elektronenspin sichtbare, lokale Magnetfeld B_0^{loc} gemäß der g -Tensorabbildung mehr oder weniger stark voneinander ab. Die S -Spin-Quantisierungsachse ist nicht mehr parallel zum äußeren B_0 -Feld sondern zeigt in Richtung des lokalen Feldes B_0^{loc} . Aufgrund der der Larmorfrequenz der Kernspins vergleichbaren Größe der Hyperfeinwechselwirkung a_j , besitzen die Kernspin-Qubits I_j in störungstheoretischer Betrachtung ebenfalls eine von der B_0 -Richtung abweichende Quantisierungsachse, so dass im allgemeinen alle Quantisierungsachsen der Spins des $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -S-Bus-Systems unterschiedliche Richtungen aufweisen.

Im Laborsystem sind das äußere Magnetfeld B_0 und das eingestrahlte Mikrowellenfeld $B_1(t)$ orthogonal – aufgrund der großen g -Anisotropie sind deren lokale, für den S -Spin sichtbare Felder B_0^{loc} und $B_1^{\text{loc}}(t)$ in nichtkanonischen Kristallorientierungen nicht mehr senkrecht zueinander, so dass im allgemeinen in den resultierenden Dichtematrizen alle Spin-Komponenten $S_{x,y,z}$ auftreten. Durch die Einhaltung von Wartezeiten zum Abklingen des FID, bzw. Sublevel-FID in den Pulssequenzen, nach welchem nur noch die S_z - und I_{z_j} -Komponenten zum Gesamtquantenzustand beitragen, ist dieser Effekt hier vernachlässigbar.

3.5.2 Bestimmung der Zugehörigkeit der ENDOR-Übergänge zu den *Qubyte+1*-Kernspins

Nachfolgend wird die Charakterisierung des *Qubyte+1* hinsichtlich der Identifizierung der ENDOR-Linien mit den dem Ce^{3+} -Elektronenspin direkt benachbarten neun Fluor-Kernspins I_j vorgestellt. Hierzu wurde eine von Baker et al. [72] hergeleitete Formel zur Berechnung der Hyperfeinwechselwirkungen a_j verwendet. Der Hamilton-Operator mit der Elektronen- und Kernspin-Zeeman-Wechselwirkung $\mathcal{H}_0^{(S)}$ bzw. $\mathcal{H}_0^{(I)}$ sowie der Hyperfeinwechselwirkung \mathcal{H}_{SI} des $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Spinsystems ist dabei gegeben durch:

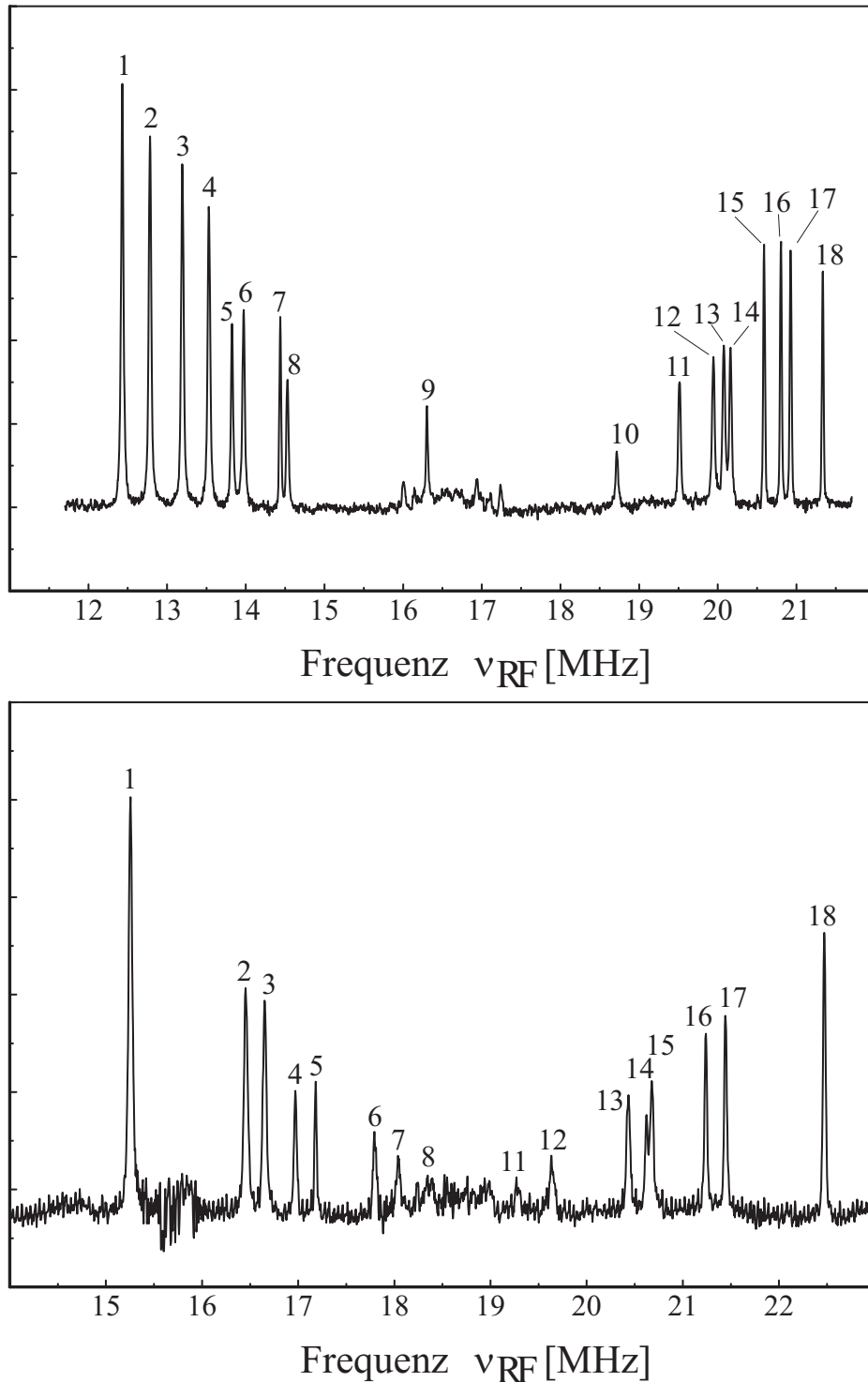


Abb. 3.29: Mims-ENDOR-Spektren des *Qubyte+1* (oben: tetragonales y-Zentrum, unten: tetragonales x-Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$), aufgenommen mit Remote-Echo-Detektion. Aufgetragen ist die Intensität des *S*-Spin-Echos in Abhängigkeit von der eingestrahlten Frequenz ν_{RF} der ENDOR-Pulse.

Messdaten: $\nu_S = 9,3925876$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41102$ T; $B_0^{(x)} = 0,4615,6$ T; $\tau_S = 32$ ns; Euler-Winkel y-Zentrum: $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; Euler-Winkel x-Zentrum: $\vartheta^{(x)} = 81,34^\circ$; $\varphi^{(x)} = 71,75^\circ$; $T = 8$ K.

$$\mathcal{H} = \underbrace{g_{\parallel}\mu_{\text{B}}B_zS_z + g_{\perp}\mu_{\text{B}}(B_xS_x + B_yS_y)}_{\mathcal{H}_0^{(S)}} - \underbrace{\sum_j g_F\mu_{\text{K}}\vec{B} \cdot \hat{I}_j}_{\mathcal{H}_0^{(I)}} + \underbrace{\sum_j \hat{S}\underline{A}\hat{I}_j}_{\mathcal{H}_{SI}}. \quad (3.21)$$

Es existiert weiterhin noch die hier aufgrund ihrer Stärke vernachlässigbare dipolare Kernspin-Kernspin-Wechselwirkung $\mathcal{H}_{II}(D_{jk})$, der noch besondere Bedeutung im Rahmen der Bestimmung dieser Konnektivitäten D_{jk} innerhalb des $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Qubit-Netzwerkes und der Realisierung des CNOT-Gatters zugemessen wird – dies erfolgt jedoch erst in einem nachfolgenden Kapitel. Daher können hier zunächst die Kernspins näherungsweise noch individuell betrachtet werden.

Die nächsten Nachbar-Ionen des Cer-Elektronenspins lassen sich in drei Klassen einteilen mit identischen Komponenten der Hyperfeinwechselwirkungstensoren, die jedoch jeder für sich eine andere Orientierung aufweisen: Klasse $k = 1$ und $k = 2$ bestehen aus den der Ladungskompensation (9) zugewandten Ebene 1 (Fluor-Ion 1 bis 4) und der abgewandten Ebene 2 (Fluor-Ion 5 bis 8). Die Klasse $k = 3$ wird durch die Ladungskompensation (9) selbst gebildet (Abb. 3.3 und 3.30).

Aufgrund der C_4 -Symmetrie des tetragonalen Zentrums besitzen die Hyperfeinwechselwirkungstensoren innerhalb einer der drei Klassen zwar gleiche Parameter, jedoch unterschiedliche Orientierungen. Nach Bakers Angaben der Hyperfeinwechselwirkungsparameter sind die zugehörigen Tensoren nicht exakt axialsymmetrisch und besitzen auch antisymmetrische Anteile. Weiterhin tragen kovalente Bindungsanteile sowie mögliche Beiträge einer Kernpolarisation durch Austausch-Wechselwirkung zur Hyperfeinwechselwirkung bei. Die Spin-Polarisation abgeschlossener Schalen ist gering, jedoch größer als die durch die Liganden verursachte, so dass auch Beiträge von s- und p-Wellenfunktionen in die Gesamtwellenfunktion in tetragonaler Umgebung mit eingehen. Dies führt dazu, dass die Hyperfeintensoren keine Axialsymmetrie in Richtung der Bindungsachsen aufweisen [72]. Zur einfachen visuellen Verdeutlichung der Modellvorstellung sind in der nicht massstäblichen Abb. 3.30 der g -Tensor der Ce^{3+} -Elektronenspins und die Hyperfeinwechselwirkungstensoren der direkt benachbarten Fluor-Ionen 1 bis 9 symbolhaft dargestellt.

Zur Berechnung der ENDOR-Frequenzen $\nu_j^{(k)}$ der *Qubyte+1* Fluor-Ionen des tetragonalen CaF_2Ce -Zentrums geben Baker et al. ausgehend von dem Hyperfeinwechselwirkungsoperator

$$\mathcal{H}_{SI} = S_z \left(\lambda_1^{(k)} I_x + \lambda_2^{(k)} I_y + \lambda_3^{(k)} I_z \right) \quad (3.22)$$

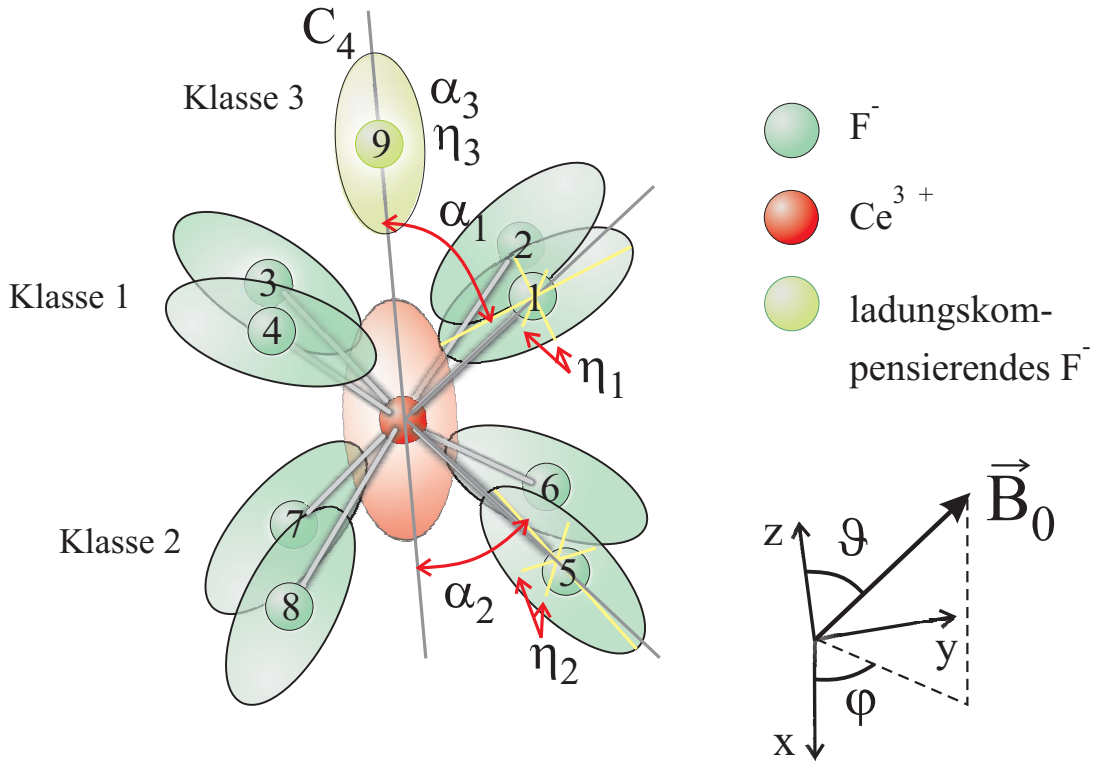


Abb. 3.30: Symbolische, nicht massstäbliche Darstellung des g -Tensors des S -Spins (große Hauptachse parallel zur C_4 -Symmetrieachse) und der Hyperfeinwechselwirkungstensen der umgebenden Fluor-Spins des tetragonalen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrums. Dabei sind die I_j -Spins in drei Klassen, mit innerhalb einer Gruppe gleicher Hyperfeinwechselwirkungsparameter einzuteilen. Klasse 1 bzw.2: Fluor-Ion 1 bis 4, bzw. 5 bis 8 auf der der Ladungskompensation zu- bzw. abgewandten Seite des Ce^{3+} -Ions, Klasse 3: das ladungskompensierende Fluor-Ion 9. Die in Bindungsrichtung nichtaxialsymmetrischen Hyperfeinwechselwirkungstensen \mathcal{A}_k , $k = 1; 2; 3$ besitzen eine unterschiedliche Orientierung α_j gegen die C_4 -Symmetrieachse. Die von Baker et al. ermittelten Tensen besitzen weiterhin einen antisymmetrischen Anteil η_j .

in Abhängigkeit von dem Hyperfeinwechselwirkungstensor

$$\mathcal{A}_k = \begin{pmatrix} a_1^{(k)} & a_2^{(k)} & a_4^{(k)} \\ a_2^{(k)} & a_1^{(k)} & a_4^{(k)} \\ a_5^{(k)} & a_5^{(k)} & a_3^{(k)} \end{pmatrix} \quad (3.23)$$

der k . Kernspinklasse ($k = 1; 2; 3$) folgende Formel für jeden F^- -Kernspin I_j an [72]:

$$\begin{aligned} \nu_j^{(k)} &= \left[\left(\nu_0^F \cos(\psi - \vartheta) - \lambda_3^{(k)} m_S \right)^2 \right. \\ &\quad \left. + \left(\nu_0^F \sin(\psi - \vartheta) + \lambda_1^{(k)} m_S \right)^2 + \left(\lambda_2^{(k)} m_S \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} ; \\ k &= 1 : j = 1 \dots 4 ; \\ k &= 2 : j = 5 \dots 8 ; \\ k &= 3 : j = 9 . \end{aligned} \quad (3.24)$$

Diese Formel bezeichnet die ENDOR-Frequenz des j . Fluor-Kernspins ($j = 1 \dots 9$) des *Qubyte+1*. Der Index k ($k = 1; 2; 3$) weist nochmals auf die Klassenzugehörigkeit hin. Die nachfolgend aufgelisteten Größen sind hierbei enthalten:

$$\begin{aligned} \lambda_1^{(k)} &= (a_1^{(k)} - a_3^{(k)}) \sin \psi \cos \psi + a_2^{(k)} \sin \psi \cos \psi \cos 2\phi'_j \\ &\quad - \sqrt{2} \sin^2 \psi \cos \phi'_j + \sqrt{2} a_5^{(k)} \cos^2 \psi \cos \phi'_j , \end{aligned} \quad (3.25)$$

$$\lambda_2^{(k)} = a_2^{(k)} \sin \psi \sin 2\phi'_j + \sqrt{2} a_5^{(k)} \cos \psi \sin \phi'_j ,$$

$$\begin{aligned} \lambda_3^{(k)} &= a_1^{(k)} \sin^2 \psi + a_3^{(k)} \cos^2 \psi + a_2^{(k)} \sin^2 \psi \cos 2\phi'_j \\ &\quad + \sqrt{2} (a_4^{(k)} + a_5^{(k)}) \sin \psi \cos \psi \cos \phi'_j , \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \phi'_1 &= \frac{\pi}{4} - \varphi , & \phi'_7 &= \phi'_1 , & \phi'_9 &= \varphi , \\ \phi'_2 &= \frac{\pi}{4} - \varphi + \frac{\pi}{2} , & \phi'_8 &= \phi'_2 , \\ \phi'_3 &= \frac{\pi}{4} - \varphi + \pi , & \phi'_5 &= \phi'_3 , \\ \phi'_4 &= \frac{\pi}{4} - \varphi + \frac{3\pi}{2} , & \phi'_6 &= \phi'_4 , \end{aligned}$$

Ebene 1:

$$k = 1; j = 1 \dots 4$$

Ebene 2:

$$k = 2; j = 5 \dots 8$$

Ebene 3:

$$k = 3; j = 9$$

$$\begin{aligned} a_1^{(1)} &= +2,04 \pm 0,01 , & a_1^{(2)} &= +0,52 \pm 0,01 , & a_1^{(3)} &= -1,20 \pm 0,01 , \\ a_2^{(1)} &= +0,95 \pm 0,01 , & a_2^{(2)} &= -0,56 \pm 0,01 , & a_2^{(3)} &= \pm 0 , \\ a_3^{(1)} &= -5,88 \pm 0,01 , & a_3^{(2)} &= +0,56 \pm 0,01 , & a_3^{(3)} &= +19,36 \pm 0,01 , \\ a_4^{(1)} &= +6,25 \pm 0,02 , & a_4^{(2)} &= -5,70 \pm 0,02 , & a_4^{(3)} &= \pm 0 , \\ a_5^{(1)} &= +10,26 \pm 0,01 , & a_5^{(2)} &= -9,89 \pm 0,01 , & a_5^{(3)} &= \pm 0 , \\ a_j^{(k)} &\text{ in MHz ,} \end{aligned}$$

ϑ, φ : Eulerwinkel des äußeren B_0 -Feldes im

Kristallachsensystem von x-, y-, z-Zentrum,

$m_S = \pm \frac{1}{2}$: S -Spin-Quantenzahl,

$\nu_0^F = g_F \mu_K B_0 / h$: Larmorfrequenz der freien Fluor-Kernspins.

Aus diesen Angaben wurden die ENDOR-Frequenzen der *Qubyte+1*-Übergänge für alle drei tetragonalen Zentren zum Vergleich mit den Messwerten und zur Identifikation von ENDOR-Übergang und F^- -Ion berechnet. Abweichend von Bakers Angaben für die Parameter $a_j^{(2)}$ wurde hier deren Vorzeichen invertiert, da aus Bakers ENDOR-Messungen nicht die Zugehörigkeit zum selben elektronischen Zustand bestimmbar war, im Rahmen dieser Arbeit dies jedoch anhand von MQE-Experimenten verifiziert werden konnte. Dieser Vorzeichenwechsel ergibt im Vergleich von Experiment und Simulation neben den passenden ENDOR-Frequenzen auch die richtige Zugehörigkeit zum elektronischen Zustand $|m_s\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$. Hierzu sind nachfolgend tabellarisch die berechneten und gemessenen Frequenzen der ENDOR-Messung der x-, y- und z-Zentren in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aus Abb. 3.29 sowie die Zuordnung der ENDOR-Linien zu den den Ce^{3+} -Spin umgebenden Fluor-Ionen $F_{1\dots 9}$ gemäß Abb. 3.3 aufgeführt. Die aus der Korrespondenz der ENDOR-Linien resultierenden Hyperfeinwechselwirkungen $\tilde{a}_j = \Delta\nu_j = \nu_{j(+)} - \nu_{j(-)}$ als entsprechende Frequenzdifferenz sind ebenfalls in den Tabellen eingetragen.

ENDOR-Frequenzen in MHz, x-Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ $\nu_S = 9,3925876$ GHz; $B^{(x)} = 0,46156$ T; $\vartheta^{(x)} = 81,34^\circ$; $\varphi^{(x)} = 71,75^\circ$				
Linien-Nr. in Abb. 3.29	gemessene Frequenz ν_j [MHz]	berechnete Frequenz ν_j [MHz]	elektron. Zustand $ m_S\rangle = \pm \frac{1}{2}\rangle$	Qubit (Fluor-Ion 1 bis 9)
1	15,253	15,076	+	1
2	16,449	16,268	+	5
3	16,646	16,464	-	7
4	16,967	16,832	+	2
5	17,178	17,011	+	6
6	17,794	17,599	-	3
7	18,040	17,873	-	8
8	18,218	18,038	-	4
9	—	18,653	-	9
10	—	18,859	+	9
11	19,289	19,505	+	8
12	19,631	19,511	+	4
13	20,431	20,288	-	6
14	20,620	20,504	-	2
15	20,673	20,505	+	3
16	21,236	21,105	+	7
17	21,442	21,306	-	5
18	22,467	22,323	-	1

Hyperfeinwechselwirkungen in MHz, x-Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$		
	Experiment	Simulation
a_1	7,214	7,246
a_2	3,653	3,671
a_3	2,879	2,906
a_4	1,413	1,473
a_5	4,993	5,037
a_6	3,253	3,277
a_7	4,590	4,641
a_8	—	1,633
a_9	—	0,206

ENDOR-Frequenzen in MHz, y-Zentrum CaF₂:Ce $\nu_S = 9,3925876$ GHz; $B^{(y)} = 0,41102$ T; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$				
Linien-Nr. in Abb. 3.29	gemessene Frequenz ν_j [MHz]	berechnete Frequenz ν_j [MHz]	elektron. Zustand $ m_S\rangle = \pm \frac{1}{2}\rangle$	Qubit (Fluor-Ion 1 bis 9)
1	12,428	12,287	+	1
2	12,780	12,613	+	5
3	13,192	13,029	-	7
4	13,527	13,342	-	3
5	13,825	13,673	+	8
6	13,972	13,856	+	4
7	14,436	14,257	-	2
8	14,525	14,382	-	6
9	16,302	16,135	+	9
10	18,715	18,621	-	9
11	19,511	19,386	+	6
12	19,941	19,844	+	2
13	20,073	19,947	-	8
14	20,161	20,007	-	4
15	20,586	20,469	+	7
16	20,801	20,704	+	3
17	20,923	20,801	-	5
18	21,333	21,193	-	1

Hyperfeinwechselwirkungen in MHz, y-Zentrum CaF₂:Ce		
	Experiment	Simulation
a_1	8,905	8,906
a_2	5,505	5,588
a_3	7,274	7,362
a_4	6,189	6,150
a_5	8,143	8,188
a_6	5,075	5,004
a_7	7,394	7,439
a_8	6,248	6,274
a_9	2,413	2,486

ENDOR-Frequenzen in MHz, z-Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ $\nu_S = 9,3925876$ GHz; $B^{(z)} = 0,22964$ T; $\vartheta^{(z)} = 17,92^\circ$; $\varphi^{(z)} = 64,36^\circ$				
Linien-Nr. in Abb. 3.29	gemessene Frequenz ν_j [MHz]	berechnete Frequenz ν_j [MHz]	elektron. Zustand $ m_S\rangle = \pm \frac{1}{2}\rangle$	Qubit (Fluor-Ion 1 bis 9)
1	—	3,033	+	9
2	—	6,841	-	3
3	—	8,791	-	4
4	—	9,032	+	5
5	—	9,529	-	7
6	—	10,543	+	6
7	—	10,540	-	2
8	—	11,018	-	8
9	—	11,990	+	8
10	—	11,992	-	1
11	—	12,049	+	1
12	—	12,428	-	6
13	—	13,212	+	7
14	—	13,328	+	2
15	—	13,596	-	5
16	—	14,579	+	4
17	—	15,637	+	3
18	—	18,536	-	9

Hyperfeinwechselwirkungen in MHz, z-Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$		
	Experiment	Simulation
a_1	—	0,057
a_2	—	2,775
a_3	—	8,796
a_4	—	5,789
a_5	—	4,565
a_6	—	1,888
a_7	—	3,683
a_8	—	0,972
a_9	—	15,503

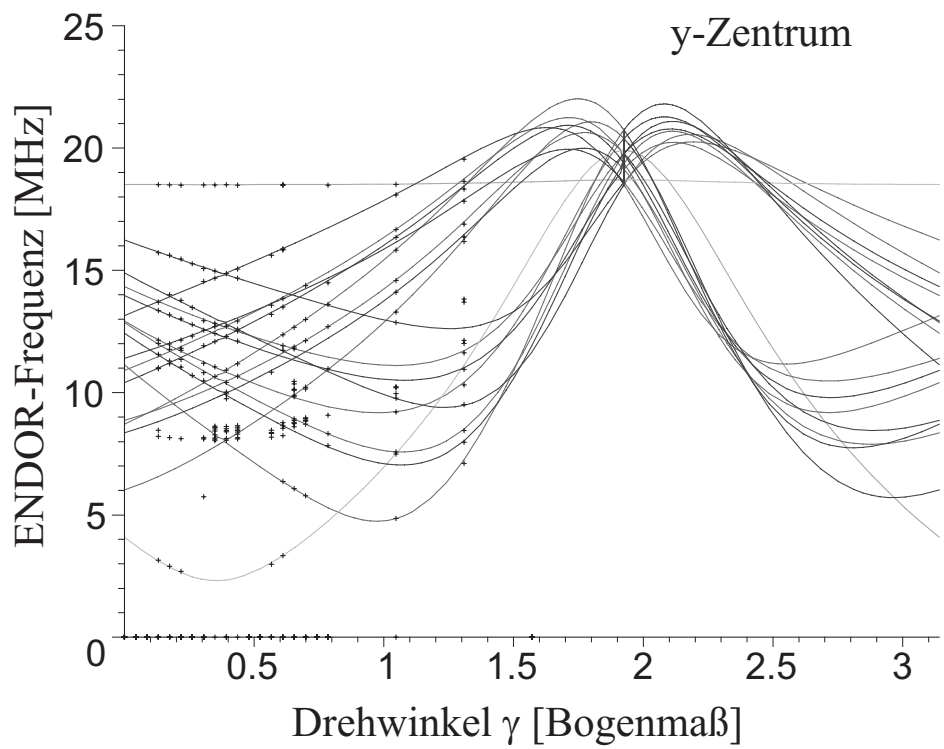
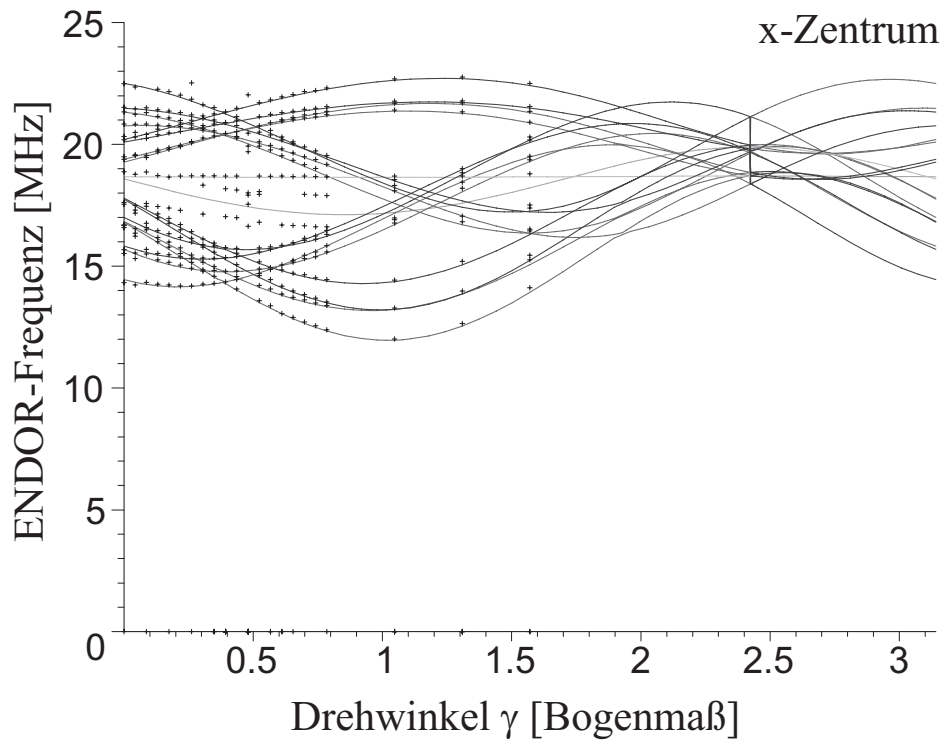
Im Falle des z-Zentrums war eine Aufnahme eines ENDOR-Spektrums wegen zu kurzer Dekohärenzzeit nicht möglich – da dieses hier experimentell nicht relevant war, sind hierfür nur die Simulationswerte angegeben.

3.5.3 Winkelabhängigkeit der *Qubyte+1*-ENDOR-Spektren bei Kristalldrehung

Wie schon bereits erwähnt, setzt sich die Hyperfeinwechselwirkung a_j zwischen Elektronen- und Kernspins aus der isotropen Fermi-Kontakt- und der anisotropen Dipol-Dipol-Wechselwirkung zusammen, die die Linienaufspaltungen in den $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ -ENDOR-Spektren ergeben. Die Winkelabhängigkeit der spektralen Lage der ENDOR-Linien mit der Kristallorientierung resultiert einerseits aus der Anisotropie der dipolaren Wechselwirkung, andererseits aus der Anisotropie des g -Tensors, die hierin mit eingeht. Somit wurden auch Winkelabhängigkeiten der ENDOR-Spektren bei Drehung des $\text{CaF}_2\text{:Ce}$ -Kristalls auf einer Goniometerachse, die senkrecht zum B_0 -Feld orientiert war, aufgenommen. Die Durchführung dieser Winkelabhängigkeitsmessungen ist sehr aufwändig, da neben einer sehr feinen Justage des Kristalls für jede Orientierung die ENDOR-Spektren der tetragonalen x-, y- und z-Zentren aufzeichnet werden müssen. Da diese Zentrenaufklärung nicht Hauptbestandteil der vorliegenden Arbeit ist, wurden diese Messungen für verschiedenen Evolutionszeiten τ_S nur in einem Winkelbereich von 0° bis 90° durchgeführt (Abb. 3.31), um diese ebenfalls mit den Simulationswerten zu vergleichen und die Modellvorstellung des tetragonalen Zentrums experimentell zu bestätigen. Die primäre Zielsetzung besteht darin anhand dieser Modellrechnungen die Möglichkeit zu besitzen auch andere Kristallorientierungen zu finden, in denen eine hinreichende Aufspaltung der *Qubyte+1*-ENDOR-Linien gegeben ist. Die Kristallorientierungen sind identisch mit den Orientierungen aus Abb. 3.13. In den Diagrammen aus Abb. 3.31 sind jeweils die Messwerte (gepunktet) und mit Bakers Formel simulierten Hyperfeinwechselwirkungen (durchgezogene Linien) eingetragen.

Die Berechnung der ENDOR-Frequenzen erfolgte mittels der von Baker angegebenen Formel nach Bestimmung der Kristalldrehachse mit den Euler-Winkeln α und β in Kristallhauptachsensystem anhand der Winkelabhängigkeitsmessung aus Abb. 3.13 und anschließender Umrechnung jener auf die Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}$ und $\varphi^{(x,y,z)}$ des Magnetfeldvektors \vec{B}_0 im jeweiligen Zentralsystem. Der Kristalldrehwinkel entspricht dabei dem dritten Euler-Winkel γ der Kristalldrehachse. Die Richtungen des Magnetfeldvektors \vec{B} im jeweiligen x-, y-, bzw. z-Zentralsystem ist bereits in Gl. 3.20 angegeben. Aus der Berechnung der Euler-Winkel $\vartheta^{(x,y,z)}(\gamma)$ und $\varphi^{(x,y,z)}(\gamma)$ der Lage des B_0 -Feldes im Kristallhauptachsensystem in Abhängigkeit vom Goniometerdrehwinkel γ wurden die jeweiligen ENDOR-Frequenzen $\nu_j(\vartheta(\gamma), \varphi(\gamma))$ für die einzelnen *Qubyte+1*-Fluor-Ionen bestimmt (Abb. 3.31).

Die sehr gute Übereinstimmung über einen Winkelbereich von $0^\circ \leq \alpha \leq 90^\circ$ für x-, y- und z-Zentrum bestätigt die von Baker angegebenen Hyperfeinwechselwirkungstensoren, so dass in weiterführenden Experimenten anhand dieser Simulation bei Vorgabe der Ausrichtung der Kristallachsen im äußeren Magnetfeld geeignete Orientierungen gefunden werden können, in denen eine vollständige und



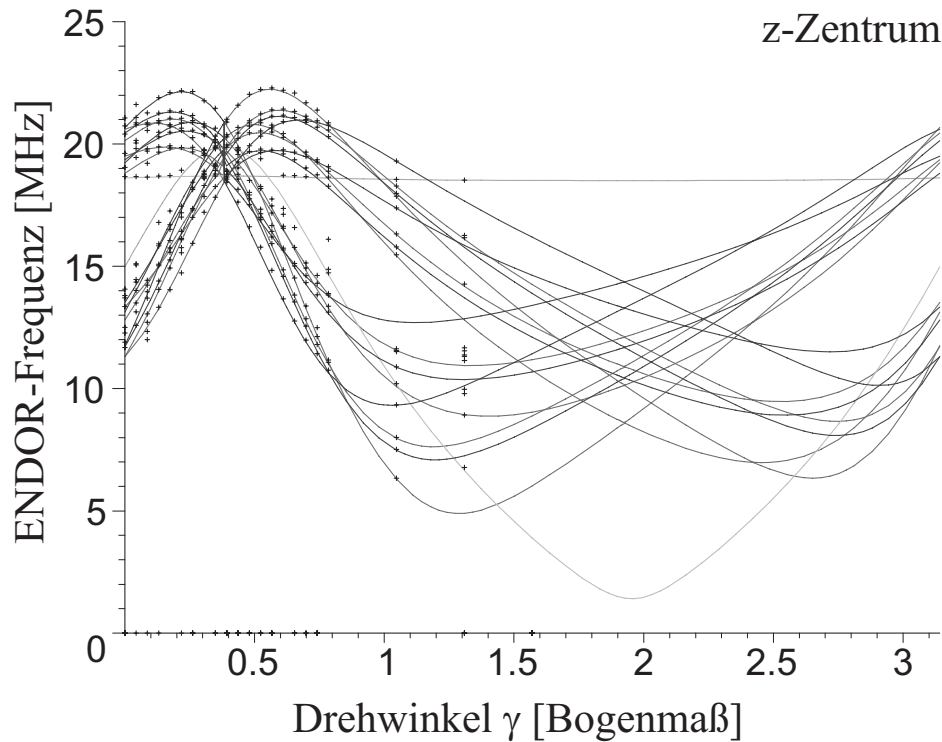


Abb. 3.31: Winkelabhängigkeit der ENDOR-Linienlage von x-, y- und z-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Aufgetragen sind die mit verschiedenen Evolutionszeiten τ_S in der Mims-ENDOR-Sequenz mit Remote-Echo-Detektion (Abb. 3.23) gemessenen ENDOR-Frequenzen (Punkte) und die aus der Simulation berechneten Werte in Abhängigkeit vom dritten Euler-Winkel γ als Drehwinkel des Kristalls auf der Goniometerdrehachse. Die Kristalldrehachse ist um die Euler-Winkel $\alpha = 83,0^\circ$, $\beta = 13,5^\circ$ gegenüber dem $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Kristallhauptachsensystem verkippt. Der Magnetfeldvektor \vec{B}_0 zeigt für $\alpha = \beta = \gamma = 0^\circ$ in x-Richtung. Die angenommenen g -Tensorhauptachsen besitzen die Werte $g_\perp = 1,389$, $g_\parallel = 3,038$. Messpunkte, die nicht auf den Linien der Simulationskurven liegen, sind der Zentralgruppe der freien Fluor-Ionen höherer Schalen in den ENDOR-Spektren zuzuordnen.

hinreichend große Aufspaltung aller ENDOR-Übergänge der *Qubyte+1*-Fluor-Ionen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ gegeben ist.

3.5.4 Das *Qubyte+1*-Kopplungsnetzwerk

Neben der Hyperfeinkopplung der Qubits I_j an den zentralen S -Spin existiert auch eine dipolare Kernspin-Kernspin-Wechselwirkung D_{jk} zwischen den Qubits, die zur Präparation verschränkter Zustände und zur Implementierung des CNOT-Gatters im Rahmen der vorliegenden Arbeit genutzt wird. Im Anschluss wird die experimentell ermittelte Stärke dieser Dipol-Dipol-Wechselwirkung wiederum mit einer Simulation nach dem Punkt-Dipol-Modell verglichen.

Die Größe der Qubit-Qubit-Kopplungen wurde anhand von Sublevel-Echo-Modulationen bestimmt. Bei diesem Verfahren handelt es sich um die Messung von Quantum Beats der kohärenten Phasenevolution der Qubit-Kernspins in Abhängigkeit einer Evolutionszeit τ_I in präparierten Multi-Quantenkorrelationen, die die Wechselwirkung D_{jk} zweier Qubit-Spins I_j und I_k widerspiegeln. Die entsprechende ENDOR-Pulssequenz ist in Abb. 3.32 dargestellt [95]. Die Detektion dieser Evolution erfolgt wiederum indirekt über das S -Spinecho.

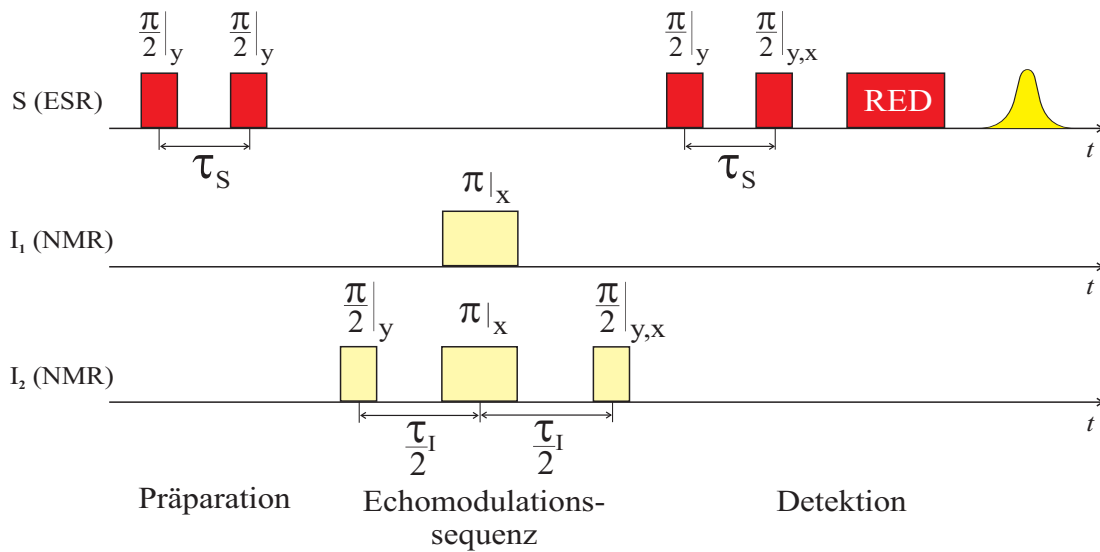


Abb. 3.32: ENDOR-Sequenz zur Aufnahme der Sublevel-Echomodulation mit Remote-Echo-Detektion: Ausgehend von einem präparierten Populationsgitter wird mittels der $\frac{\pi}{2}$ - π -RF-Sequenz (SLE) ein Kernspin-Echo erzeugt, das anhand eines $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls indirekt über die Remote-Echo-Detektion mit der S -Spin-Echohöhe detektiert wird. Die Phasenevolution während der Zeiten $\tau_I/2$ geschieht unter Wechselwirkung D_{jk} aller Qubits miteinander, jedoch bleibt durch die beiden π -Refokussierungspulse auf den Übergängen der Qubits I_1 und I_2 nur die Evolution unter der Wechselwirkung D_{12} übrig, die eine Modulation verursacht, die die Wechselwirkungsstärke zwischen diesen Spins I_1 und I_2 widerspiegelt.

Zunächst ist nachfolgend die Erzeugung eines Sublevel-Echos erklärt. Das durch die beiden $\frac{\pi}{2}$ -Pulse im Abstand τ_S präparierte Populationsgitter des S-Bus-Systems ist während einer Zeit τ_I der Phasenevolution unter allen Qubit-Qubit-Wechselwirkungen D_{jk} zwischen den Spins I_j und I_k unterworfen. Der zugehörige Zeitentwicklungsoperator $U_{jk}^D(t)$ dieser Evolution hat in erster Näherung unter Berücksichtigung des säkularen Anteils der Dipol-Dipol-Wechselwirkung die Form

$$U_{jk}^D(t) = \exp(-i \sum_{j < k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} t). \quad (3.26)$$

Hierbei wurden ebenfalls Terme höherer Ordnung vernachlässigt. Die zur Generierung eines Sublevel-Echos geeignete Sequenz ist ebenfalls durch die Abb. 3.32, jedoch ohne den π -Refokussierungspuls auf dem I_1 -Qubitkanal gegeben. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wurden hierbei wieder die Spins $I_{1,2}$ herausgegriffen. Die unitäre Transformation $U_{x,y}^{\text{SLE}}(t)$ der Sublevel-Echosequenz nur auf dem Übergang von I_2 ist somit gegeben durch:

$$\begin{aligned} U_{x,y}^{\text{SLE}}(\tau_I) &= P_{x,y_2}(\frac{\pi}{2}) U_{2k}^D(\frac{\tau_I}{2}) P_{y_2}(\pi) U_{2k}^D(\frac{\tau_I}{2}) P_{y_2}(\frac{\pi}{2}) \\ &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2} I_{x,y_2}\right) \exp\left(-i \sum_{k \neq 2}^N I_{z_2} D_{2k} I_{z_k} \frac{\tau_I}{2}\right) \exp(-i\pi I_{y_2}) \\ &\quad \cdot \exp\left(-i \sum_{k \neq 2}^N I_{z_2} D_{2k} I_{z_k} \frac{\tau_I}{2}\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2} I_{y_2}\right) \\ &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2} I_{x,y_2}\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2} I_{y_2}\right). \end{aligned} \quad (3.27)$$

Der resultierende Quantenzustand bei Anwendung dieser Transformation entspricht für $t = \tau_I$ einem durch das I_2 -Qubit-Ensemble verursachten Spin-Echo. Hierbei besitzt der $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls eine relative Phase von 0° oder 90° , um wahlweise beide transienten Komponenten des Sublevel-Echos in die I_{z_2} -Komponente transformieren zu können und eine indirekte Detektion über den ENDOR-Effekt des S -Spin-Echos zu ermöglichen. Analog zur T_2 -Messung der S -Spins ist damit auch die Dekohärenzzeit der Qubit-Spins bei τ_I -Inkrementierung durch Messung des Sublevel-Echozerfalls möglich. Aufgrund des Operatorproduktes $I_{z_2} I_{z_j}$ im Zeitentwicklungsoperator $U_{jk}^D(t)$ entwickelt sich auch ein Sublevel-Echo, wenn man den ersten $\frac{\pi}{2}$ -Puls selektiv auf I_2 und den π -Refokussierungspuls auf I_j einstrahlt.

Zur Aufnahme einer Sublevel-Echomodulation wird auf beiden ENDOR-Übergängen von I_j und I_k , deren Dipol-Dipol-Kopplung bestimmt werden soll, die Sequenz aus Abb. 3.32 eingestrahlt. Dies führt zu den Quantum Beats, die

diese Wechselwirkung D_{jk} widerspiegeln. Die zugehörige unitäre Transformation $U^{\text{QB}}(\tau_I)$ enthalten dann einen von $D_{jk}\tau_I$ abhängigen Modulationsterm. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird im nachfolgenden Beispiel $j = 1$ und $k = 2$ gesetzt:

$$\begin{aligned}
U^{\text{QB}}(\tau_I) &= P_{x,y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) U_{2k}^D\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}(\pi) P_{y_1}(\pi) U_{2k}^D\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\
&= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{x,y_2}\right) \exp\left(-i\sum_{k \neq 2}^N I_{z_2} D_{2k} I_{z_k} \frac{\tau_I}{2}\right) \exp(-i\pi I_{y_1}) \exp(-i\pi I_{y_2}) \\
&\quad \cdot \exp\left(-i\sum_{k \neq 2}^N I_{z_2} D_{2k} I_{z_k} \frac{\tau_I}{2}\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{y_2}\right) \\
&= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{x,y_2}\right) \exp(-iD_{12}I_{z_1}I_{z_2}\tau_I) \exp\left(-i\frac{3\pi}{2}I_{y_2}\right) \exp(-i\pi I_{y_1}) .
\end{aligned} \tag{3.28}$$

Diese Transformation $U^{\text{QB}}(\tau_I)$ zeigt resultierend nur eine Abhängigkeit von der I_1 - I_2 -Wechselwirkung D_{12} , alle anderen Qubit-Kopplungen werden in der Evolution durch die beiden π -Refokussierungspulse auf dem I_1 - und I_2 -Kanal im Zeitverlauf umgekehrt und sind zum Zeitpunkt des maximalen Sublevel-Echos quasi eliminiert. Auf diese Weise lassen sich gezielt Qubit-Qubit-Kopplungen D_{jk} bestimmen sowie in ihrer Wirkung selektieren und dadurch zur Durchführung von Quantenalgorithmen nach dem S-Bus-Konzept nutzen. Die resultierende Dichtematrix wurde somit nur durch die Kopplung D_{12} , die sich bei Variation von τ_I als Sublevel-Echomodulation äußert, modifiziert. Alle Operatoren I_{z_2} der mit der $\frac{\pi}{2}$ - τ_s - $\frac{\pi}{2}$ -Sequenz präparierten Dichtematrix erhalten einen Modulationsterm der Form

$$\begin{aligned}
I_{z_2} &\longrightarrow P_{x,y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) (I_{x_2} \cos(D_{12}\tau_I I_{z_1}) + I_{y_2} \sin(D_{12}\tau_I I_{z_1})) P_{x,y_2}^{-1}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\
&\stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} P_{x,y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) \left(\underbrace{I_{x_2} \cos\left(\frac{D_{12}}{2}\tau_I\right)}_{\text{Cosinus-Anteil}} + \underbrace{2I_{z_1}I_{y_2} \sin\left(\frac{D_{12}}{2}\tau_I\right)}_{\text{Sinus-Anteil}} \right) P_{x,y_2}^{-1}\left(\frac{\pi}{2}\right) .
\end{aligned} \tag{3.29}$$

Die wiederholte Durchführung dieses Experimentes unter Inkrementierung der Evolutionszeit τ_I liefert je nach Phase des $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibe-Pulses $P_{x,y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right)$ ($P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right)I_{x_2} \mapsto -I_{z_2}$, $P_{x_2}\left(\frac{\pi}{2}\right)I_{y_2} \mapsto +I_{z_2}$) nach Abklingen der transienten Komponenten in der Auftragung in Abhängigkeit von τ_I den mit der messbaren I_{z_j} -Komponente verknüpften *Cosinus-* bzw. *Sinus-Modulationsanteil* mit der Periodizität $\frac{D_{12}}{2}$ der Kopplung zwischen den Qubits I_1 und I_2 . Die Sublevel-Echomodulationssequenz $U^{\text{QB}}(\tau_I)$ erzeugt somit eine Dichtematrix $\rho_{\text{cos,sin}}^{\text{QB}}$, die in

Abhängigkeit der Phase des Rückschreibepulses $P_{x,y_2}(\frac{\pi}{2})$, nach Abklingen transi-
enter Komponenten I_{x,y_j} für $I_j = \frac{1}{2}$ gegeben ist durch:

$$\begin{aligned}
& P_{y_2}(\frac{\pi}{2})\text{-Rückschreibepuls :} & (3.30) \\
\rho_{\cos}^{\text{QB}} &= S_z |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} - c_2 I_{z_2} \cos(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) + \dots \\
& - c_{12} I_{z_1} I_{z_2} \cos(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) + \dots - c_N I_{z_1} I_{z_2} \cos(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) \dots I_{z_N} , \\
& P_{x_2}(\frac{\pi}{2})\text{-Rückschreibepuls :} \\
\rho_{\sin}^{\text{QB}} &= S_z |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} + c_2 2 I_{z_1} I_{z_2} \sin(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) + \dots \\
& + 2c_{12} I_{z_1}^2 I_{z_2} \sin(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) I_{z_2} + \dots + 2c_N I_{z_1}^2 I_{z_2} \sin(\frac{D_{12}}{2} \tau_I) I_{z_2} \dots I_{z_N} .
\end{aligned}$$

Hierbei ist zu beachten, dass im Cosinus-Anteil die 1-Quantenkorrelation I_{z_2} wieder auf eine 1-Quantenkorrelation proportional $-I_{z_2}$ transformiert wurde, jedoch im Sinus-Anteil dies mit einem Korrelationstransfer einer 1- auf eine 2-Quantenkorrelation der Form $I_{z_2} \mapsto I_{z_1} I_{z_2}$ einhergeht, also im ersten Fall der Korrelationsgrad gleich bleibt, im zweiten Fall jedoch gerade in ungerade Korrelationen gewandelt werden und umgekehrt. Da die $\frac{\pi}{2}$ - τ_S - $\frac{\pi}{2}$ -Präparationssequenz bei gleicher Phasenlage (kurz yy-Sequenz) der beiden Puls nur gerade bzw. bei 90° relativer Phasenlage (kurz yx-Sequenz) nur ungerade Multi-Quantenkorrelationen generiert, muss der Cosinus-Anteil in der Remote-Echo-Detektion mit einer yy-Sequenz, der Sinus-Anteil aufgrund des Korrelationstransfers jedoch mit einer yx-Sequenz detektiert werden, um die Evolution und Manipulation der Korrelationsterme zur indirekten Messung vollständig in einen multiplikativen Faktor der S -Spinmagnetisierung zu transformieren. Dieser Korrelationstransfer wird später auch gezielt bei der Implementierung des CNOT-Gatters genutzt.

Exemplarisch zeigt die Abb. 3.33 sechs Sublevel-Echomodulationsmessungen. Es handelt sich hierbei um die cos-Anteile der Phasenevolution je zweier Qubit-Kernspins unter deren Dipol-Dipol-Wechselwirkung.

In erster Näherung werden die experimentellen Messwerte der Qubit-Qubit-Kopplungen D_{jk} der Kernspins mit den berechneten Dipol-Dipol-Wechselwirkungen mit dem säkularen Anteil des Punkt-Dipol-Modells verglichen, das schon in einem vorangegangenen Theorie-Kapitel vorgestellt wurde:

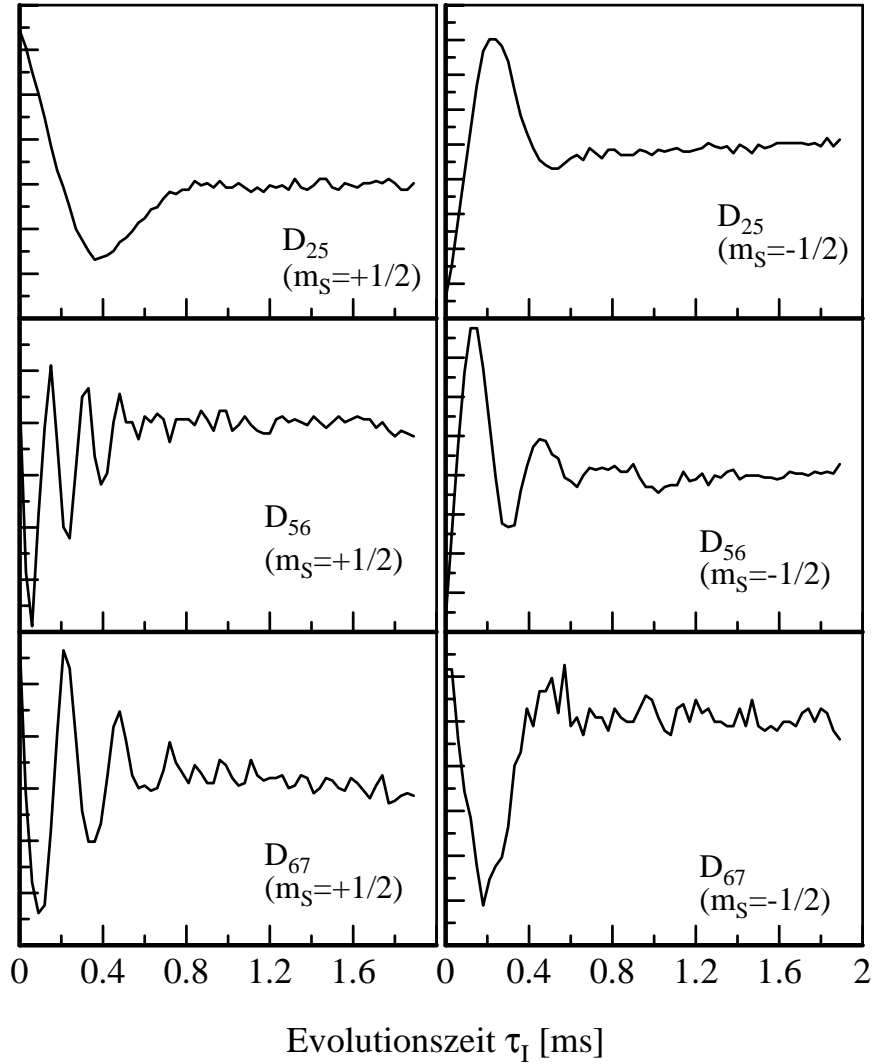


Abb. 3.33: Sublevel-Echomodulationen, gemessen am tetragonalen y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ zur Bestimmung der Qubit-Qubit-Wechselwirkung D_{jk} zwischen den Qubit-Kernspins I_j und I_k . Aufgetragen ist die S -Spin-Echo-Höhe bei Anwendung der Sequenz aus Abb. 3.32 in Abhängigkeit der inkrementierten Evolutionszeit τ_I .

Messdaten: $\nu_S = 9,392382$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41055$ T; Euler-Winkel $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; ENDOR-Frequenzen: $\nu_{I_2|+\frac{1}{2}\rangle} = 19,934$ MHz; $\nu_{I_5|+\frac{1}{2}\rangle} = 12,762$ MHz; $\nu_{I_6|+\frac{1}{2}\rangle} = 19,499$ MHz; $\nu_{I_7|+\frac{1}{2}\rangle} = 20,581$ MHz; $\nu_{I_2|-\frac{1}{2}\rangle} = 14,422$ MHz; $\nu_{I_5|-\frac{1}{2}\rangle} = 20,917$ MHz; $\nu_{I_6|-\frac{1}{2}\rangle} = 14,519$ MHz; $\nu_{I_7|-\frac{1}{2}\rangle} = 13,173$ MHz; Qubit-Qubit-Kopplungen: s. Tabelle

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{\text{DD,säkular}}^{(jk)} &= \frac{\mu_0 g_F^2 \mu_K^2}{4\pi r_{ij}^3} (1 - 3 \cos^2 \vartheta) I_{z_j} I_{z_k} & (3.31) \\
&= \hbar \widetilde{D}_{jk}(\vartheta) I_{z_j} I_{z_k} \\
&= \hbar D_{jk}(\vartheta) I_{z_j} I_{z_k} .
\end{aligned}$$

Da die Spins I_j und I_k im allgemeinen unterschiedliche Larmorfrequenzen $\nu_{j,k}$ besitzen, wird dies zusätzlich bei der Berechnung der Frequenzen der Dipol-Dipol-Wechselwirkung berücksichtigt – diese entspricht der Aufspaltung durch die Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Dadurch erhält man die resultierende Übergangsfrequenz zwischen zwei durch die Dipol-Dipol-Kopplung aufgespaltenen Energieniveaus:

$$\nu_{\text{DD}}^{(jk)} = h(\nu_j - \nu_k + \widetilde{D}_{jk}) . \quad (3.32)$$

Zum Vergleich mit den Messwerten erfolgte die Berechnung der dipolaren Kopplungen paarweise für je zwei Qubits $I_{j,k}$ nach dem Punkt-Dipol-Modell. Die Auswertung der Messungen erfolgte einerseits über die Fouriertransformation, andererseits über eine Anpassung einer Funktion $f(t)^{\cos, \sin}$ an die Periodizität der Messkurven, mit

$$\begin{aligned}
f(t)^{\cos} &= \cos\left(\widetilde{D}_{jk}(t - t_0)\right) \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_D^2}\right) , & (3.33) \\
f(t)^{\sin} &= \sin\left(\widetilde{D}_{jk}(t - t_0)\right) \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_D^2}\right) .
\end{aligned}$$

Diese Funktionen berücksichtigen neben einer Phasenverschiebung proportional zu t_0 aufgrund der Spin-Dynamik während der im Experiment endlichen Pulsdauern auch die Dekohärenz der transversalen Komponenten I_{x,y_j} . Aufgrund einer Frequenzverteilung der Wechselwirkungen kann die Signalabnahme auch durchaus schneller als mit der angenommenen Gauß-Funktion erfolgen. Weiterhin ist zu beachten, dass die Periodizität der Sublevel-Echomodulationen aufgrund der Spin-Dynamik während der Pulseinstrahlung gerade für kurze Evolutionszeiten τ_I nicht die wahre Qubit-Qubit-Kopplung widerspiegelt. Daher wurde die Anpassung der Funktionen $f(t)^{\cos, \sin}$ vornehmlich im Bereich ab der zweiten oder dritten Oszillationsperiode vorgenommen.

Nachfolgend sind die experimentellen Ergebnisse der Sublevel-Echomodulationsmessungen und die berechneten Werte tabellarisch aufgeführt. In der oberen Hälfte der Tabellen sind jeweils die experimentell

bestimmten Qubit-Qubit-Kopplungen D_{jk} für die beiden elektronischen Zustände $|m_s\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$, in der unteren Hälfte die berechneten Simulationswerte eingetragen. Im Punkt-Dipol-Modell der paarweisen Berechnung der Qubit-Qubit-Wechselwirkung unberücksichtigt ist eine indirekte Kopplung der Kernspins mittelbar über den zentralen S -Spins in dem S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Diese besteht aufgrund der Hyperfeinwechselwirkungen $a_{j,k}$ des S -Spins mit den Qubit-Spins I_j und I_k gleichzeitig. Zu bestimmen ist diese indirekte Dipol-Dipol-Wechselwirkung in erster Näherung aus der Differenz der experimentell bestimmten und den Simulationswerten. Eine dritte Tabelle enthält diese Werte.

Dipol-Dipol-Wechselwirkung in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$:

obere Hälfte $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$, untere Hälfte Simulation, alle Angaben in kHz.

Fluor-Ion	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	—	7,96	2,78	4,08	< 1,67	<2,08	1,03	2,56	<2,56
2	6,60	—	8,89	<1,33	2,08	4,17	4,76	2,56	≈ 0
3	1,10	3,77	—	4,76	<1,20	4,76	5,56	<0,83	3,33
4	3,77	0,10	6,60	—	<2,40	2,56	≈ 0	<1,45	8,33
5	3,57	0,60	0,31	1,74	—	12,00	4,65	6,67	<4,00
6	2,72	4,59	1,81	0,22	8,55	—	7,69	<2,38	<1,67
7	0,96	1,37	4,72	2,63	1,43	4,88	—	8,89	<2,00
8	1,15	0,71	0,55	3,75	4,88	0,13	8,55	—	<1,67
9	2,52	1,35	6,00	4,83	1,14	0,21	0,15	1,14	—

Dipol-Dipol-Wechselwirkung in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$:

obere Hälfte $|m_s\rangle = |-\frac{1}{2}\rangle$, untere Hälfte Simulation, alle Angaben in kHz.

Fluor-Ion	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	—	4,76	3,33	2,56	3,91	2,56	6,25	4,17	<1,15
2	6,60	—	<1,75	2,08	3,33	≈ 0	3,03	6,67	4,17
3	1,10	3,77	—	4,76	9,09	2,22	3,17	5,13	<1,23
4	3,77	0,10	6,60	—	4,44	5,13	3,33	0,96	2,78
5	3,57	0,60	0,31	1,74	—	6,38	2,22	2,77	4,55
6	2,72	4,59	1,81	0,22	8,55	—	3,33	2,56	4,17
7	0,96	1,37	4,72	2,63	1,43	4,88	—	7,14	5,13
8	1,15	0,71	0,55	3,75	4,88	0,13	8,55	—	3,70
9	2,52	1,35	6,00	4,83	1,14	0,21	0,15	1,14	—

Indirekte Dipol-Dipol-Wechselwirkung in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$:

obere Hälfte $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$, untere Hälfte $|m_s\rangle = |-\frac{1}{2}\rangle$, alle Angaben in kHz.

Fluor-Ion	1	2	3	4	5	6	7	8	9
1	—	1,36	1,68	0,31	-1,90	-0,64	0,07	1,41	0,04
2	-1,84	—	5,22	1,23	1,48	-0,42	3,39	1,85	-1,35
3	2,23	-2,02	—	-1,84	0,89	2,95	-0,47	0,28	2,78
4	-1,21	1,98	-1,84	—	0,66	2,34	2,63	-2,30	3,50
5	0,34	2,73	8,78	2,70	—	3,45	3,22	1,79	-0,83
6	-0,16	-4,59	0,41	4,91	-2,17	—	2,81	2,25	1,46
7	5,29	1,66	-1,55	0,70	0,79	-1,55	—	0,34	1,85
8	3,02	5,96	4,58	-2,79	-2,11	2,43	-1,41	—	0,53
9	-1,37	2,82	-4,77	-2,05	3,41	3,96	4,98	2,56	—

Nach dem Punkt-Dipol-Modell besitzen zwei Spins I_j und I_k die maximale Dipol-Kopplung, wenn der internukleare Vektor und das äußere Magnetfeld parallel gerichtet sind: $\vec{B}_0 \parallel \vec{r}_{jk}$. Im Fall des kleinstmöglichen $F^- - F^-$ -Abstandes von 273 pm in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ ergibt sich daraus für die größtmögliche Dipol-Dipol-Wechselwirkung $\widetilde{D}_{\text{max}} = 10,462$ kHz. Realiter kommt noch die indirekte dipolare Kopplung hinzu, so dass dieser Wert überschritten werden kann.

Aufgrund der Dekohärenz der Multi-Quantenkorrelationen während der Evolution unter den dipolaren Wechselwirkungen D_{jk} erfährt die Periodizität der Sublevel-Echomodulationen nach dem Modell des gedämpften harmonischen Oszillators eine Frequenzverschiebung, die jedoch im Fall der hier vorliegenden Frequenzen unterhalb der Messgenauigkeit liegt und somit vernachlässigbar ist.

Anhand der Messung der Sublevel-Echomodulationen konnte das gesamte Kopplungsnetzwerk der Qubit-Kernspins des tetragonalen Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ sowie die Anteile der indirekten Dipol-Dipol-Wechselwirkung bestimmt werden. Die Qubit-Qubit-Kopplung wird in weiter führenden Experimenten zur Implementierung des CNOT-Gatters und zu Präparation verschränkter Zustände genutzt.

3.5.5 Korrelationsanalyse des *Qubyte+1* durch Tripel-ENDOR

In diesem Kapitel sind die Ergebnisse der Experimente zum Nachweis der Korrelierbarkeit der *Qubyte+1*-Kernspins $I_{j=1\dots 9}$ mit dem S -Spin durch Tripel-ENDOR-Verfahren mit selektiver Einstrahlung auf den einzelnen ENDOR-Übergängen [96] aufgeführt.

Allgemein erzeugt die $\frac{\pi}{2}-\tau_S-\frac{\pi}{2}$ -Präparationssequenz eine Dichtematrix $\rho^P = S_z |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} + c_2 I_{z_2} + \dots + c_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \dots + c_N I_{z_1} I_{z_2} \dots I_{z_N}\rangle$, wobei die Koeffizienten mit der Hyperfeinwechselwirkung a_j und der Evolutionszeit τ_S skalieren, da diese Terme der Form $\cos(a_j \tau_S / 2)$ und $\sin(a_j \tau_S / 2)$, mit $j = 1 \dots N$ enthalten. Dies wird detailliert erst im nächsten Kapitel erklärt, hier jedoch schon vorweggenommen, da die Betrachtung dieser Multi-Quantenkorrelationen der *Qubyte+1*-Kernspins als 9-Qubit-Register an dieser Stelle die Charakterisierung desselben abrundet.

Die *Qubyte+1*-Kernspins I_j ($j = 1 \dots 9$) weisen eine sehr viel größere Hyperfeinwechselwirkungen $a_j \approx 5$ bis 8 MHz auf, als die Kernspins I_j ($j \geq 10$) der höheren Schalen, mit $a_j < 1$ MHz. Für entsprechende Evolutionszeiten $\tau_S \approx 30$ ns liefern somit die Terme $\cos(a_j \tau_S / 2)$ und $\sin(a_j \tau_S / 2)$ für $j = 1 \dots 9$ entsprechende Beiträge, wohingegen für $j \geq 10$ dieselben als nahezu konstant betrachtet werden können: $\cos(a_j \tau_S / 2) \approx 1$ und $\sin(a_j \tau_S / 2) \approx 0$. D.h. es werden nur die *Qubyte+1*-Kernspins mit dem Zentralspin S korreliert, so dass sich die mit der $\frac{\pi}{2}-\tau_S-\frac{\pi}{2}$ -Sequenz präparierte Dichtematrix ρ_P , dargestellt mittels eines konstanten, multiplikativen Faktors $C_{(j \geq 10)}$, ausdrücken lässt:

$$\begin{aligned}
\rho_P = & S_z C_{(j \geq 10)} |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} + c_2 I_{z_2} + \dots + c_9 I_{z_9} \\
& + c_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \dots + c_{89} I_{z_8} I_{z_9} + \dots \\
& + c_{123} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} + \dots \\
& + c_{123456789} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} I_{z_4} I_{z_5} I_{z_6} I_{z_7} I_{z_8} I_{z_9} .
\end{aligned} \tag{3.34}$$

Zur experimentellen Verifikation der Korrelationen im *Qubyte+1* wurden Tripel-ENDOR-Experimente durchgeführt. Hierbei wird selektiv ein Qubit-ENDOR-Übergang I_j mit einem $\frac{\pi}{2}$ -Puls $P_{y,j}^{\text{sat}}(\frac{\pi}{2})$ gesättigt und im zeitlichen Abstand des Abklingens des Sublevel-FID das ENDOR-Spektrum, bzw. die einzelnen Linienhöhen aller Übergänge I_k wie bei der Aufnahme eines herkömmlichen ENDOR-Spektrums mit einem frequenzvariieren Puls $P_{y,k}^{\text{det}}(\beta_k)$ aufgenommen (Abb. 3.34) [96].

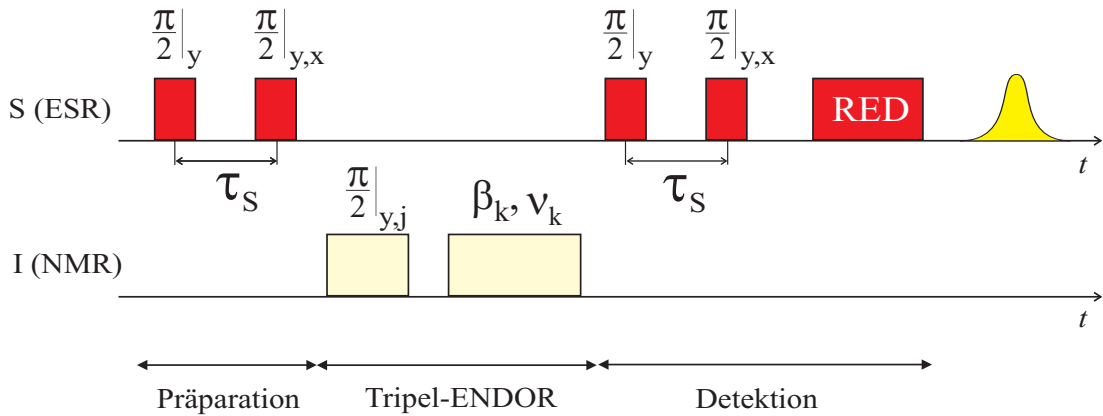


Abb. 3.34: Tripel-ENDOR-Sequenz mit Remote-Echo-Detektion: Die $\frac{\pi}{2}$ - τ_S - $\frac{\pi}{2}$ -Sequenz generiert je nach relativer Phasenlage einen geraden oder ungeraden Korrelationszustand ρ_P , in dessen Dichtematrix durch den Sättigungspuls $P_{y,j}^{\text{sat}}(\frac{\pi}{2})$ alle Multi-Quantenkorrelationen, die den Operator I_j enthalten nach dem Sublevel-FID zu null werden. Im Anschluss daran wird mit einem frequenzvariablen ENDOR-Puls $P_{y,k}^{\text{det}}(\beta_k)$ auf allen Übergängen I_k die ENDOR-Linien und einer Remote-Echo-Detektion zur Bestimmung der relativen Linienhöhen das ENDOR-Spektrum aufgenommen.

Die I_{z_j} -Operatoren der präparierten Dichtematrix ρ_P werden durch den Sättigungspuls $P_{y,j}^{\text{sat}}(\frac{\pi}{2})$ selektiv nach I_{x_j} transformiert. Dadurch werden alle Terme der Linearkombination mit Operatorkorrelationen, die I_{x_j} enthalten, bei Detektion über den ENDOR-Puls und die Remote-Echo-Detektion zu Null (Abb. 3.35):

$$\begin{aligned}
\rho_{\text{P}} &= S_z C_{(j \geq 10)} |c_0 \hat{1} + \dots + c_{\dots j k \dots} (\dots I_{z_j} I_{z_k} \dots) + \dots \\
&\quad + c_{\dots l m \dots} (\dots I_{z_l} I_{z_m} \dots)) \quad (3.35) \\
\overset{P_{y,j}^{\text{sat}}(\frac{\pi}{2})}{\longrightarrow} \rho_{\text{sat}} &= S_z C_{(j \geq 10)} |c_0 \hat{1} + \dots + \underbrace{c_{\dots j k \dots} (\dots I_{x_j} I_{z_k} \dots)}_{\rightarrow 0} + \dots \\
&\quad + c_{\dots l m \dots} (\dots I_{z_l} I_{z_m} \dots)) .
\end{aligned}$$

Analog zur Aufnahme eines ENDOR-Spektrums wird anhand des ENDOR-Effekts diese modifizierte Dichtematrix ρ_{sat} über einen frequenzvariierten ENDOR-Puls $P_{y,k}^{\text{det}}(\beta_k)$ nach Abklingen des Sublevel-FID sukzessiv über alle Übergänge der Spins I_k gemessen. Man erhält somit ein ENDOR-Spektrum, in dem die verbleibenden Linienhöhen den Korrelationsanteil des Operators I_j in der Dichtematrix ρ_{P} widerspiegeln. Die einzelnen Linienhöhen werden um dessen Korrelationsanteil durch den Sättigungspuls reduziert. Exemplarisch sind dazu in Abb. 3.35 die *Qubyte+1*-ENDOR-Spektren ohne Sättigungspuls und mit Sättigungspuls auf dem Übergang ν_{15} , der dem Übergang des Kernspins I_3 (vgl. Abb. 3.3) des elektronischen Zustandes $|m_S\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$ entspricht, dargestellt. Aufgrund der Korrelation der *Qubyte+1*-Spins ist eine kollektive Abnahme des ENDOR-Effektes auf allen Kernspin-Übergängen des selben elektronischen Zustandes zu beobachten.

In $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ besitzen die einzelnen Qubit-Kernspins I_j aufgrund einer Hyperfeinverstärkung bei identischer RF-Pulsleistung unterschiedliche Rabi-Präzessionsfrequenzen. Dies führt dazu, dass bei Einstrahlung des ENDOR-Pulses $P_{y,k}^{\text{det}}(\beta_k)$ bei konstanter Leistung und Pulsdauer die Spins I_k unterschiedliche Drehwinkel β_k erfahren. Daher wurden aus ENDOR-Messungen ohne bzw. mit Sättigungspuls $P_{y,j}^{\text{sat}}(\frac{\pi}{2})$ die einzelnen Linienhöhen $h_0(I_j)$ bzw. $h_{\text{sat}}(I_j)$ der Spektren bestimmt. Aus diesen berechnen sich die nachfolgend tabellarisch aufgeführte relative Linienhöhen $h(I_j)$, so dass diese Werte zwischen 0 und 1 annehmen können:

$$h(I_j) = \frac{h_{\text{sat}}(I_j)}{h_0(I_j)} . \quad (3.36)$$

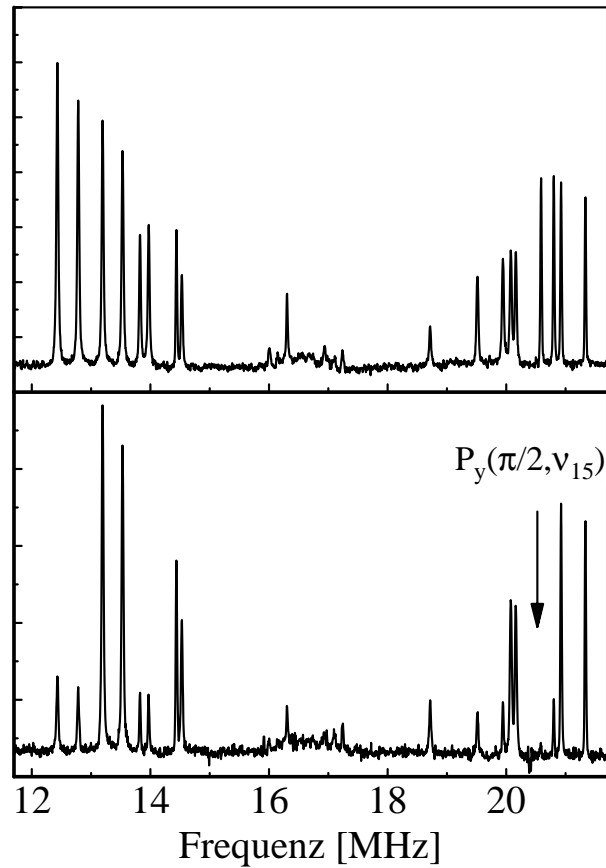


Abb. 3.35: *Qubyte+1*-ENDOR-Spektren ohne Sättigungspuls (oben) und mit Sättigungspuls auf Linie ν_{15} , der dem Übergang des Kernspins I_3 (vgl. Abb. 3.3) des elektronischen Zustandes $|m_S\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$ entspricht (unten). Die Linienhöhen der gesättigten Übergänge werden zu null, die restlichen Linienhöhen spiegeln den Korrelationsanteil des Qubits I_j an der zuvor präparierten Gesamtdichtematrix ρ_P wider.

Relative Linienhöhen $h(I_j)$ der einzelnen Qubit-ENDOR-Übergänge in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$ (obere Hälfte, Kennzeichnung $I_j^{(+)}$) und $|m_s\rangle = |-\frac{1}{2}\rangle$ (untere Hälfte, Kennzeichnung $I_j^{(-)}$) bei Einstrahlung eines $\frac{\pi}{2}$ -Sättigungspulses auf den jeweiligen ENDOR-Übergängen der Kernspins I_j des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$. Hierzu sind jeweils deren in Abb. 3.29 eingetragenen Frequenzen ν_j angegeben.

Sättigungs- puls auf	$h(I_1)$ ν_1	$h(I_2)$ ν_{12}	$h(I_3)$ ν_{16}	$h(I_4)$ ν_6	$h(I_5)$ ν_2	$h(I_6)$ ν_{11}	$h(I_7)$ ν_{15}	$h(I_8)$ ν_5	$h(I_9)$ ν_9
$I_1^{(+)} (\nu_{18})$	0	0,278	0,166	0,248	0,077	0,344	0,124	0,265	0,360
$I_2^{(+)} (\nu_7)$	0,328	0	0,327	0,388	0,314	0,417	0,319	0,436	0,362
$I_3^{(+)} (\nu_4)$	0,195	0,383	0	0,312	0,167	0,369	0,203	0,314	0,406
$I_4^{(+)} (\nu_{14})$	0,127	0,334	0,253	0	0,200	0,398	0,233	0,354	0,373
$I_5^{(+)} (\nu_{17})$	0,114	0,285	0,133	0,224	0,044	0,298	0,169	0,271	0,313
$I_6^{(+)} (\nu_8)$	0,397	0,514	0,425	0,442	0,376	0	0,407	0,439	0,458
$I_7^{(+)} (\nu_3)$	0,154	0,297	0,175	0,291	0,135	0,337	0	0,273	0,424
$I_8^{(+)} (\nu_{13})$	0,185	0,229	0,168	0,286	0,154	0,253	0,219	0	0,412
$I_9^{(+)} (\nu_{10})$	0,731	0,750	0,794	0,739	0,743	0,817	0,776	0,718	0
$I_1^{(-)} (\nu_{18})$	0,967	0,932	0,989	0,980	0,986	0,960	1,006	0,924	0,848
$I_2^{(-)} (\nu_7)$	0,949	0,918	0,958	0,929	0,939	0,999	0,951	0,970	0,960
$I_3^{(-)} (\nu_4)$	0,961	0,973	0,992	0,970	0,994	0,999	0,994	0,914	0,948
$I_4^{(-)} (\nu_{14})$	0,937	1,063	1,025	1,008	0,948	0,951	1,014	0,942	0,792
$I_5^{(-)} (\nu_{17})$	0,919	0,855	0,979	0,988	0,950	0,961	0,950	0,936	0,796
$I_6^{(-)} (\nu_8)$	1,002	0,877	0,994	0,947	1,153	1,062	0,951	0,936	0,995
$I_7^{(-)} (\nu_3)$	0,978	0,973	0,986	0,959	1,010	1,009	0,988	0,914	0,948
$I_8^{(-)} (\nu_{13})$	0,925	0,956	0,999	0,986	0,964	0,992	0,992	0,979	0,814
$I_9^{(-)} (\nu_{10})$	0,954	0,974	1,005	1,012	0,979	0,961	0,985	0,936	0,939

Relative Linienhöhen $h(I_j)$ der einzelnen Qubit-ENDOR-Übergänge in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |-\frac{1}{2}\rangle$ (obere Hälfte, Kennzeichnung $I_j^{(-)}$) und $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$ (untere Hälfte, Kennzeichnung $I_j^{(+)}$) bei Einstrahlung eines $\frac{\pi}{2}$ -Sättigungspulses auf den jeweiligen ENDOR-Übergängen der Kernspins I_j des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |-\frac{1}{2}\rangle$. Hierzu sind jeweils deren in Abb. 3.29 eingetragenen Frequenzen ν_j angegeben.

Sättigungspuls auf	$h(I_1)$ ν_{18}	$h(I_2)$ ν_7	$h(I_3)$ ν_4	$h(I_4)$ ν_{14}	$h(I_5)$ ν_{17}	$h(I_6)$ ν_8	$h(I_7)$ ν_3	$h(I_8)$ ν_{13}	$h(I_9)$ ν_{10}
$I_1^{(-)}$ (ν_{18})	0,062	0,224	0,142	0,308	0,186	0,337	0,151	0,294	0,308
$I_2^{(-)}$ (ν_7)	0,312	0,097	0,303	0,351	0,332	0,396	0,332	0,425	0,347
$I_3^{(-)}$ (ν_4)	0,169	0,225	0	0,341	0,198	0,268	0,137	0,298	0,295
$I_4^{(-)}$ (ν_{14})	0,170	0,167	0,120	0	0,158	0,285	0,135	0,249	0
$I_5^{(-)}$ (ν_{17})	0,165	0,247	0,140	0,269	0	0,317	0,135	0,263	0,227
$I_6^{(-)}$ (ν_8)	0,349	0,283	0,299	0,367	0,398	0	0,322	0,405	0,336
$I_7^{(-)}$ (ν_3)	0,134	0,201	0,076	0,240	0,152	0,277	0,047	0,257	0,325
$I_8^{(-)}$ (ν_{13})	0,204	0,145	0,155	0,251	0,164	0,278	0,112	0	0,377
$I_9^{(-)}$ (ν_{10})	0,860	0,785	0,858	0,903	0,842	0,802	0,873	0,884	0
$I_1^{(+)}$ (ν_1)	0,955	1,015	0,940	0,894	1,014	0,992	0,984	0,993	0,946
$I_2^{(+)}$ (ν_{12})	1,002	0,943	0,913	0,904	0,965	0,880	0,955	0,944	0,852
$I_3^{(+)}$ (ν_{16})	0,972	0,941	0,954	1,014	0,937	0,917	0,990	0,950	0,882
$I_4^{(+)}$ (ν_6)	0,946	0,982	0,962	0,894	1,014	0,996	0,962	1,037	0,989
$I_5^{(+)}$ (ν_2)	0,967	0,963	0,916	0,869	1,023	1,001	0,947	1,000	0,916
$I_6^{(+)}$ (ν_{11})	0,986	0,978	1,001	0,962	0,976	0,941	0,978	1,035	0,961
$I_7^{(+)}$ (ν_{15})	0,947	0,924	0,941	0,926	0,958	0,873	0,998	0,947	0,832
$I_8^{(+)}$ (ν_5)	0,920	0,894	0,920	0,873	1,048	0,973	0,940	1,034	0,957
$I_9^{(+)}$ (ν_9)	0,924	0,887	0,840	0,896	0,858	0,817	0,846	0,972	0,824

Aus den relativen Linienhöhen ist zu erkennen, dass bei Sättigung eines Überganges I_j auch alle anderen Linienhöhen der Übergänge I_k , die zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle = |\pm \frac{1}{2}\rangle$ gehören, reduziert werden, hingegen die Linienhöhen der Übergänge des anderen elektronischen Zustandes im wesentlichen unverändert bleiben. Dies beweist, dass die Dichtematrix ρ_P Korrelationen aller *Qubyte+1*-Kernspins enthält und das *Qubyte+1* durchaus als ein 9-Qubit-Register in der Quanteninformationsverarbeitung betrachtet werden kann – quasi einen 9-Bit-Quantencomputer darstellt. Bei der Implementierung eines Quantencomputers nach dem S-Bus-Konzept in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ werden – wie im nachfolgenden Kapitel aufgeführt – gezielt diese Multi-Quantenkorrelationen des *Qubyte+1* auf pseudoreine Zwei- und Drei-Qubit-Zustände transformiert, die Collins-Version des Deutsch-Algorithmus für zwei Qubits angewandt und auch ein verschränkter Zwei-Qubit-Zustand generiert.

Zuordnung der ENDOR-Übergänge zu den elektronischen Zuständen und den *Qubyte+1*-Kernspins

Zusammenfassend sind nachfolgend nochmals die ENDOR-Spektren des tetragonalen y- und x-Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aufgeführt, mit der jeweiligen Kennzeichnung der ENDOR-Linien nach deren Zugehörigkeit zu den elektronischen Zuständen $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ des Ce^{3+} -Ions und zu den *Qubyte+1*-Kernspins I_j .

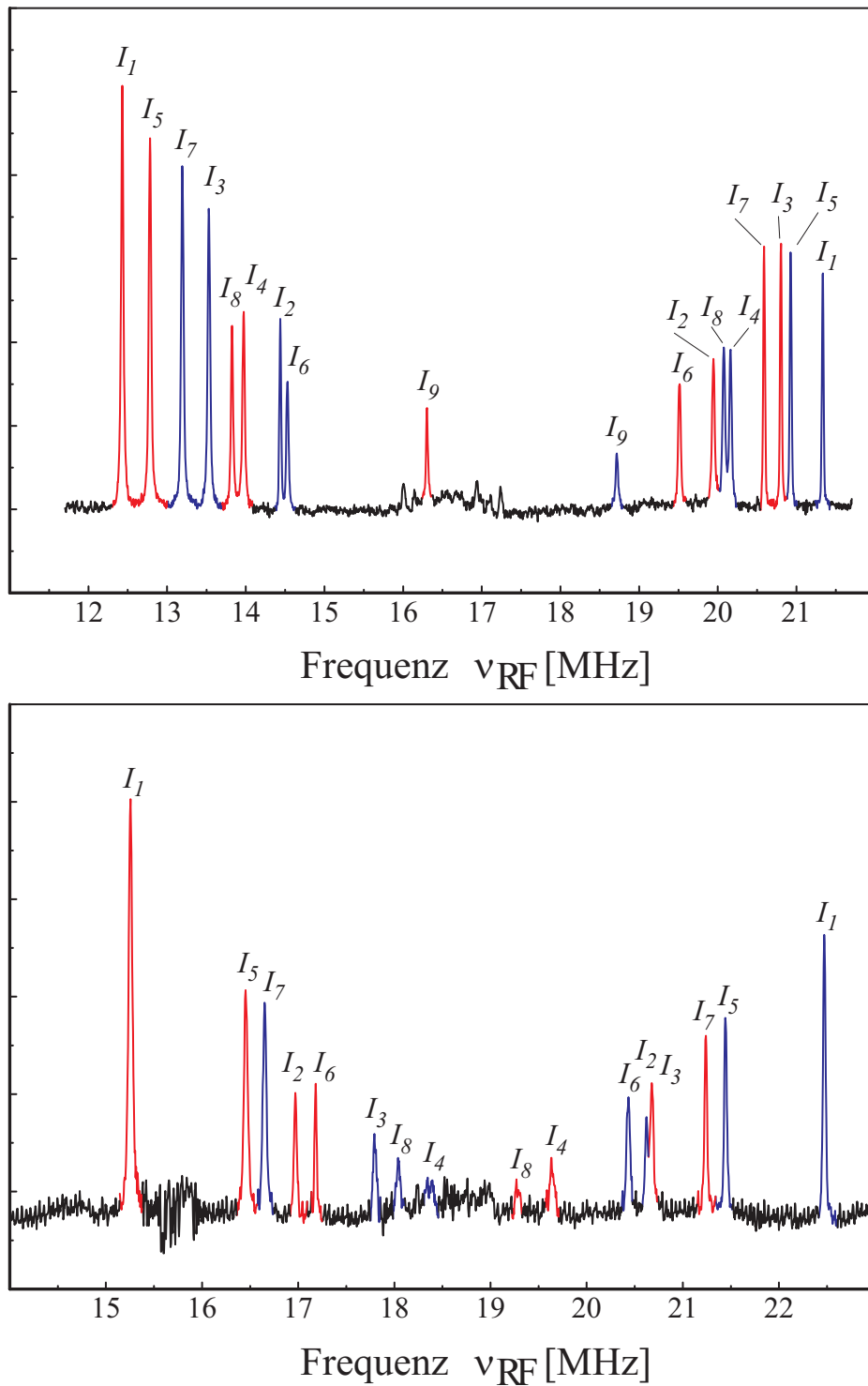


Abb. 3.36: *Qubyte+1*-ENDOR-Spektren des tetragonalen y-Zentrums (oben) und x-Zentrums (unten) in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aus Abb. 3.24 mit der jeweiligen Zugehörigkeit der ENDOR-Linien zu den elektronischen Zuständen $|m_S\rangle = +\frac{1}{2}$ (rot) und $|m_S\rangle = -\frac{1}{2}$ (blau) sowie den *Qubyte+1*-Fluor-Kernspins I_j gemäß Abb. 3.3.

Kapitel 4

Implementierung des S-Bus-Konzeptes in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die theoretischen und experimentellen Grundlagen zur Implementierung eines Quantencomputers nach dem S-Bus-Konzept in Festkörpern dargelegt. Neben dem Vergleich klassischer Computer und Quantencomputer wurden insbesondere spezielle Quantenzustände und Quantengatter sowie die Topologie des S-Bus-Konzeptes, das parallel zu der vorliegenden Arbeit von Prof. M. Mehring vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart entwickelt wurde, vorgestellt. $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Einkristalle sind ein zur Implementierung eines Spin-Quantencomputers geeignetes Spin-System, mit bis zu neun, mittels von ENDOR-Verfahren, selektiv adressierbaren Qubits [47]. Die Charakterisierung dieser Kristalle in der Magnetresonanz, vor allem hinsichtlich des Kopplungsnetzwerkes der Qubit-Spins des S-Bus-Systems, erfolgte im vorigen Kapitel. In diesem Kapitel werden die entwickelten Doppelresonanz-Methoden der grundlegenden Quanteninformationsverarbeitung in Zusammenhang mit den experimentellen Ergebnissen vorgestellt. Dabei wird auf die vorangegangenen Ausführungen der Darstellung Bezug genommen.

Zur Implementierung eines Quantencomputers, bzw. der Durchführung eines Quantenalgorithmus wurden sukzessive die einzelnen Schritte der Präparation, Manipulation und Detektion korrelierter Quantenzustände und der Bestimmung der Spin-Spin-Wechselwirkungen durchgeführt [97]. Diese gliedern sich in diesem Kapitel wie folgt:

1. Präparation und Detektion von korrelierten Quantenzuständen mittels der MQE-Dichtematrixtomographie:

Jede Dichtematrix eines S-Bus-Systems mit N Qubits ist durch Linearkombinationen von bis zu N -fachen Korrelationstermen durch Spin-Operatoren

darstellbar. Diese Multi-Quantenkorrelationen der Form $S_{x,y,z}|c_0\hat{1} + c_{x,y,z_1}I_{x,y,z_1} + c_{x,y,z_2}I_{x,y,z_2} + \dots + c_{x,y,z_{12}}I_{x,y,z_1}I_{x,y,z_2} + \dots + c_{x,y,z_N}I_{x,y,z_1} \dots I_{x,y,z_N}$) bilden die Grundlage der Implementierung eines Quantencomputers nach dem S-Bus-Konzept, hinsichtlich Präparation und Detektion beliebiger Quantenzustände. Im ersten Schritt ist daher die prinzipielle Korrelierbarkeit der Qubit-Spins zu demonstrieren und anschließend die präparierte Dichtematrix zu tomographieren. Dies erfolgt nach dem Multi-Quanten-ENDOR-Verfahren (MQE).

2. Gezielte Präparation von Multi-Quantenkorrelationen:

Zur gezielten Präparation von Quantenzuständen – beispielsweise pseudoreiner Zustände als Eingabezustand zur Durchführung von Algorithmen – müssen die einzelnen Spin-Operatoren der Multi-Quantenkorrelationen gezielt entsprechend angepasst werden können. Dies erfolgt mittels sogenannter Korrektur-Pulssequenzen, durch selektive Manipulation der einzelnen Qubits.

3. Präparation pseudoreiner Zustände:

Die exakte Durchführung von Quantenalgorithmen bedingt als Eingabezustand einen reinen Quantenzustand, bzw. einen pseudoreinen Zustand im Fall eines Ensemble-Spin-Quantencomputers. Dies konnte, sowohl für zwei als auch für drei Qubits im Rahmen der experimentellen Umsetzung des S-Bus-Konzeptes gezeigt werden. Eine Erweiterung auf eine größere Zahl von Qubits ist in Vorbereitung.

4. Implementierung des CNOT-Gatters:

Das CNOT-Gatter stellt ein zur Umsetzung von Algorithmen universelles Quantengatter dar. Unter Ausnutzung der Qubit-Qubit-Wechselwirkung konnte das CNOT-Gatter demonstriert werden, bei dessen Anwendung das Target-Qubit „kontrolliert“ invertiert wird, wenn das Kontroll-Qubit sich in einem bestimmten Quantenzustand ($|0\rangle$ oder $|1\rangle$) befindet.

5. Präparation eines verschränkten Zustandes:

Verschränkungen bilden einen zentralen Quantenzustand eines Quantencomputers. Die sukzessive Anwendung einer superpositionserzeugenden Hadamard-Transformation und eines CNOT-Gatters erzeugt einen verschränkten Quantenzustand zweier Qubits $I_{j,k}$. Hierbei wird die Kohärenz eines Superpositionszustandes der beiden Eigenzustände eines Qubits auf ein weiteres Qubit übertragen. Dies entspricht einem Transfer von Multi-quantenkorrelationen hinsichtlich deren Grades. Dies konnte unter anderem anhand der Präparation des Einstein-Podolski-Rosen-Paares (EPR-Zustand) demonstriert werden.

6. Durchführung eines Quantenalgorithmus für zwei Qubits – der Deutsch-Algorithmus:

Der Deutsch-Algorithmus ermöglicht die Einteilung von Funktionen zwei Klassen mit konstantem und ausgeglichenem Wertebereich und kann daher als universeller Unterscheidungsalgorithmus betrachtet werden. Experimentell konnte der Deutsch-Algorithmus nach Collins für zwei Qubits demonstriert werden.

4.1 Multi-Quanten-ENDOR

Jeder Quantenzustand eines S-Bus-Systems, der zur Durchführung eines Quantenalgorithmus präpariert oder durch diesen erzeugt wird, ist allgemein durch eine N -Qubit-Dichtematrix darstellbar, die ihrerseits wiederum durch die Pauli-Spin-Matrizen ausgedrückt werden kann, mit der Besonderheit, dass auch die 1-Qubit-Zustände und -Operationen stets mit dem Zentralspin S korreliert sind. Somit ist der Quantenzustand eines S-Bus-Systems mit N Qubits durch eine $(2^{N+1}) \otimes (2^{N+1})$ -Matrix ρ_N gegeben, die in Operatordarstellung die allgemeine Form

$$\begin{aligned} \rho_N = & S_{x,y,z} |c_0 \hat{1} + c_{x,y,z_1} I_{x,y,z_1} + c_{x,y,z_2} I_{x,y,z_2} + \dots \\ & + c_{x,y,z_{12}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_2} + c_{x,y,z_{13}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_3} + \dots + c_{x,y,z_N} I_{x,y,z_1} \dots I_{x,y,z_N} \end{aligned} \quad (4.1)$$

besitzt. Die Tomographie dieser Dichtematrix mit bis zu N -fachen Qubit-Korrelationen zur Bestimmung der einzelnen Matrixelemente erfolgt nach dem Multi-Quanten-ENDOR-Verfahren (MQE) [98]. Es handelt sich hierbei um eine wiederholte Durchführung einer Art „Detektionsquantenalgorithmus“, wobei die einzelnen Korrelationsterme individuelle Phasenevolutionen unter z -Rotationen als Kontrollparameter erfahren. Experimentell erfolgt dies durch eine phasenkontrollierte Multifrequenzanregung durch zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulse, von denen einer gegenüber dem anderen sukzessiv von Messpunkt zu Messpunkt um einen Winkel $\varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j$ phasenverschoben wird. Die Pulsphasen φ_j gehen als Kontrollparameter, bzw. letztendlich als multiplikativer Faktor in das Messsignal ein, so dass der zu tomographierende Quantenzustand über den S -Spin als Monitor detektiert werden kann. Vor der Realisierung eines Quantenalgorithmus im Rahmen des S-Bus-Konzeptes muß also zunächst der Nachweis der erfolgreichen Präparation eines korrelierten Zustandes erbracht werden. Daran anknüpfend können dann die Korrelationsanteile zur gezielten Präparation der gewünschten Quantenzustände für jedes Qubit selektiv angepasst werden, auf die dann ein Algorithmus anwendbar ist.

4.1.1 Präparation von Quantenkorrelationen nach dem S-Bus-Konzept

Nachfolgend wird zunächst für das einfachere Verständnis zur Präparation von Multi-Quantenkorrelationen an zwei Beispielen eines hypothetischen S-Bus-Systems, bestehend aus einem, bzw. zwei an einen Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ gekoppelten Qubit-Kernspins $I_{1,2} = \frac{1}{2}$ gezeigt, wie sich unter Ausnutzung der Hyperfeinwechselwirkung $a_{1,2}$ im S-Bus-System Korrelationen der I_j -Spins entwickeln.

Die allgemeine Darstellung mit N Qubits unter Berücksichtigung der Wechselwirkung des S-Bus-Systems mit weiteren Spins im Kristallverbund, wie dies realiter bei $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ der Fall ist, erfolgt danach im Anschluss.

Der Hamilton-Operator eines isolierten 1-Qubit-S-Bus-Systems $\{S = \frac{1}{2}; I_1 = \frac{1}{2}\}$ lautet:

$$\mathcal{H}^{(1)} = \mu_B S \underline{g}_S \vec{B}_0 + g_N \mu_K I_1 \vec{B}_0 + \hbar S \mathcal{A}_1 I_1 . \quad (4.2)$$

Hierbei bedeuten neben dem Spin-Operator S des zentralen S -Spins und I_1 des Qubit-Spins die Matrix \underline{g}_S bzw. g_N den g -Tensor bzw. g -Faktor von S - bzw. I -Spin und \mathcal{A}_1 den Hyperfeinwechselwirkungstensor. Dies entspricht noch nicht der vollständigen Beschreibung der Konnektivitäten in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Diese enthält die neben der Hyperfeinwechselwirkung des S -Spins mit N Kernspins auch eine Kopplung zwischen den F^- -Kernspins. In erster Näherung lässt sich – falls die Larmorfrequenz größer als die Hyperfeinwechselwirkung ist – der Hamilton-Operator $\mathcal{H}^{(1)}$ weiter vereinfachen zu:

$$\mathcal{H}^{(1)} \approx \underbrace{\hbar \omega_S S_z + \hbar \omega_{I_1} I_{z_1}}_{\mathcal{H}_0^{(1)}} + \underbrace{\hbar S_z a_1 I_{z_1}}_{\mathcal{H}_{SI}^{(1)}} \quad (4.3)$$

Analog gilt für den Hamilton-Operator eines Zwei-Qubit-S-Bus-Systems $\{S = \frac{1}{2}; I_1 = I_2 = \frac{1}{2}\}$:

$$\mathcal{H}^{(2)} = \underbrace{\hbar \omega_S S_z + \hbar \omega_{I_1} I_{z_1} + \hbar \omega_{I_2} I_{z_2}}_{\mathcal{H}_0^{(2)}} + \underbrace{\hbar S_z a_1 I_{z_1} + \hbar S_z a_2 I_{z_2}}_{\mathcal{H}_{SI}^{(2)}} \quad (4.4)$$

Diese Gleichungen enthalten neben den Zeeman-Termen $\mathcal{H}_0^{(N)}$ von Elektronen- und Kernspins mit den Larmorfrequenzen $\omega_S, \omega_{I_{1,2}}$ den Hyperfeinwechselwirkungsoperator $\mathcal{H}_{SI}^{(N)}$, der mit den Kopplungen a_j des zentralen S -Spins an die Qubit-Spins I_j skaliert.

Eine zur Erzeugung von Spin-Korrelationen nach dem S-Bus-Konzept unter Ausnutzung der Hyperfeinwechselwirkung a_j mögliche Präparationspulssequenz besteht aus zwei ESR- $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen $P_y^S(\frac{\pi}{2})$ und $P_{y,x}^S(\frac{\pi}{2})$ im Abstand einer freien Evolutionszeit τ_S auf dem Übergang des zentralen Elektronenspins S (Abb. 4.1). Die Indices x, y geben dabei die relative Phasenlage der Pulse an. Im weiteren Verlauf werden diese Sequenzen kurz yy- bzw. yx-Sequenz genannt. Diese yy- bzw. yx-Pulssequenz wird auf den S -Spin angewandt, an den die Qubit-Spins I_j gekoppelt sind. Daraus resultierend ergeben sich die genannten Korrelationen, ohne

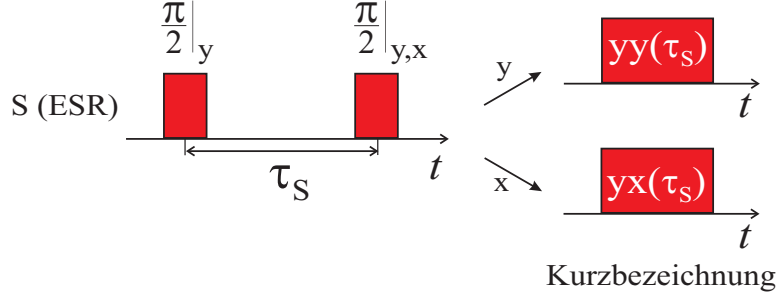


Abb. 4.1: yy- bzw. yx-Pulssequenz zur Erzeugung von Multi-Quantenkorrelationen: Diese Sequenz wird bei Anwendung auf ein S-Bus-System auf den S -Spinübergängen eingestrahlt und besteht aus zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen im Abstand einer freien Evolutionszeit τ_S , mit einer relativen Phasenlage, je nach zu präparierendem Korrelationszustand, von 0° oder 90° . Aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung a_j ($j = 1 \dots N$) zwischen Elektronen- und Kernspins entstehen während dieser Evolutionszeit Multi-Quantenkorrelationen der Form $S_z |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} + c_2 I_{z_2} + \dots + c_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \dots + c_N I_{z_1} \dots I_{z_N}$. In nachfolgenden Abbildungen wird diese Sequenz abgekürzt mit „yy(τ_S)-“, bzw. „yx(τ_S)-Block“ gekennzeichnet.

eine direkte Einstrahlung auf den Qubit-Übergängen. Die Gesamttransformation dieser Präparationssequenz zur Erzeugung von Spin-Korrelationen ist gegeben durch die unitäre Transformation $U_{yy,yx}(\tau_S)$, die die Pulse $P_{y,x}^S(\frac{\pi}{2})$ auf dem Elektronenspinübergang und den Zeitentwicklungsoperator $U(a_j; \tau_S)$ unter dem Hyperfeinwechselwirkungs-Hamilton-Operator $\mathcal{H}_{SI}(a_j, \tau_S)$ enthält. Im einfachen Fall des Beispiels des isolierten 1-Qubit-S-Bus-Systems lautet die Transformation:

$$\begin{aligned}
 U_{yy,yx}(\tau_S) &= P_{y,x}^S\left(\frac{\pi}{2}\right) U(a_j; \tau_S) P_y^S\left(\frac{\pi}{2}\right) \\
 &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}S_{y,x}\right) \exp\left(-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}_{SI}\tau_S\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}S_y\right) \\
 &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}S_{y,x}\right) \exp\left(-iS_z a_1 I_{z_1} \tau_S\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}S_y\right).
 \end{aligned} \tag{4.5}$$

Hierbei wurden Terme höherer Ordnung der Hyperfeinwechselwirkung vernachlässigt und nur die Diagonalelemente des Operators \mathcal{H}_{SI} berücksichtigt. Dies ist aufgrund der Dominanz der Elektronen-Zeemann-Wechselwirkung berechtigt.

Im Experiment ist die Anfangsdichtematrix, auf die diese unitäre Transformation angewandt wird, in der Hochtemperaturnäherung die des Boltzmann-Gleichgewichts: $\rho_{\text{in}} = \rho_{\text{B}} = S_z$. Diese enthält noch keine Spin-Korrelationen.

Die Erzeugung dieser Korrelationen ist auch für den Grenzfall, dass keine internuklearen Kopplungen zwischen den Qubit-Kernspins existieren, möglich. Die

Dichtematrix $\rho_{yy,yx}(\tau_S)$ des 1-Qubit-S-Bus-Systems hat nach Anwendung der yy- bzw. yx-Sequenz die Form

$$\begin{aligned}\rho_{yy,yx}(\tau_S) &= U_{yy,yx}(\tau_S) \rho_{\text{in}} U_{yy,yx}(\tau_S)^{-1} \\ &= \exp(-i\frac{\pi}{2}S_{y,x}) (S_x \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + S_y \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S)) \exp(+i\frac{\pi}{2}S_{y,x}).\end{aligned}\quad (4.6)$$

Für einen Spin $I_1 = \frac{1}{2}$ lässt sich dies weiter vereinfachen zu

$$\rho_{yy,yx}(\tau) = \exp(-i\frac{\pi}{2}S_{y,x}) \left(S_x \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) + 2S_y I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \right) \exp(+i\frac{\pi}{2}S_{y,x}). \quad (4.7)$$

Hierbei wurden die folgenden Relationen verwendet:

$$\begin{aligned}U(a_j; \tau_S) S_x U(a_j; \tau_S)^{-1} &= S_x \cos(a_j \tau_S I_{z_j}) + S_y \sin(a_j \tau_S I_{z_j}) \\ &\stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} S_x \cos\left(\frac{a_j}{2} \tau_S\right) + 2S_y I_{z_j} \sin\left(\frac{a_j}{2} \tau_S\right),\end{aligned}\quad (4.8)$$

$$\begin{aligned}U(a_j; \tau_S) S_y U(a_j; \tau_S)^{-1} &= S_y \cos(a_j \tau_S I_{z_j}) - S_x \sin(a_j \tau_S I_{z_j}) \\ &\stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} S_y \cos\left(\frac{a_j}{2} \tau_S\right) - 2S_x I_{z_j} \sin\left(\frac{a_j}{2} \tau_S\right),\end{aligned}$$

$$U(a_j; \tau_S) = \exp(-iS_z a_j I_{z_j} \tau_S).$$

Die Transformation des zweiten $\frac{\pi}{2}$ -Puls $P_{y,x}^S$ wurde bewusst an dieser Stelle noch nicht durchgeführt, um nachfolgend die Abhängigkeit von dessen Phasenlage zu verdeutlichen. Offensichtlich ist jedoch schon hier das Auftreten des Korrelationsstermes $S_y I_{z_1}$.

Die yy-Sequenz liefert somit letztlich die Dichtematrix

$$\begin{aligned}\rho_{yy}(\tau_S) &= -S_z \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + S_y \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \\ &= -S_z \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) + 2S_y I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right).\end{aligned}\quad (4.9)$$

Nach dem Abklingen des FID nach einer Zeit ε werden die transienten Komponenten $S_{x,y}$ zu Null:

$$\begin{aligned}\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= -S_z \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) \\ &= -S_z \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right).\end{aligned}\quad (4.10)$$

In identischer Rechnung erhält man analog bei Anwendung der yx-Sequenz:

$$\begin{aligned}
\rho_{yx}(\tau_S) &= S_x \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + S_z \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) & (4.11) \\
&= S_x \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) + 2S_z I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \\
\stackrel{\text{FID}}{\rightarrow} \rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon) &= S_z \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \\
&= 2S_z I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right).
\end{aligned}$$

Diese Quantenzustände enthalten die Korrelationen $S_z I_{z_1}$ zwischen Elektronen- und Kernspin. Durch eine gezielte Transformation aller in der Dichtematrix enthaltenen Spin-Operatoren lässt sich aus korrelierten Quantenzuständen jeder andere beliebige Quantenzustand im Sinne der Präparation einer Eingabe für einen Algorithmus generieren.

Eine weitere, im Hinblick auf die Korrelationen von N -Qubits geeignetere Umformung der Darstellung dieser Quantenkorrelationen wird nachfolgend am selben Beispiel erläutert: Die Dichtematrizen $\rho_{yy}(\tau_S)$ und $\rho_{yx}(\tau_S)$ sind auch durch reelle und imaginäre Komponenten darstellbar:

$$\rho_{yy,yx}(\tau_S) = \exp\left(-i\frac{\pi}{2} S_{y,x}\right) (S_x \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + S_y \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S)) \exp\left(+i\frac{\pi}{2} S_{y,x}\right). \quad (4.12)$$

Unter Berücksichtigung, dass der y-, bzw. x-Auslesepuls die Komponente S_x , bzw. S_y nach $-S_z$, bzw. S_z transformiert, lassen sich diese Dichtematrizen $\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon)$, bzw. $\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon)$ nach Abklingen des FID durch deren Real- bzw. Imaginärteil ausdrücken:

$$\text{yy-Sequenz:} \quad (4.13)$$

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= -S_z \text{Re}(\cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + i \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S)) \\
&= -S_z \text{Re}(\exp(+ia_1 I_{z_1} \tau_S)) ,
\end{aligned}$$

$$\text{yx-Sequenz:} \quad (4.14)$$

$$\begin{aligned}
\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon) &= +S_z \text{Im}(\cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) + i \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S)) \\
&= +S_z \text{Im}(\exp(+ia_1 I_{z_1} \tau_S)) .
\end{aligned}$$

Die Korrelationen zwischen Elektronen- und im allgemeinen N Kernspins zeigen eine direkte Abhängigkeit einerseits von der Hyperfeinwechselwirkung a_j , andererseits von der Evolutionszeit τ_S , d.h. durch geeignete Wahl dieser Evolutionszeit ist eine rudimentäre Anpassung der Korrelationsanteile möglich. Dies ist vor allem in S-Bus-Systemen mit ähnlichen Hyperfeinwechselwirkungen a_j der Qubits I_j mit dem Zentralspin S leicht zu bewerkstelligen, da die Entwicklung aller Qubit-Korrelationen der gleichen Evolutionszeit τ_S unterworfen ist, wodurch man dann ähnliche Argumente der sin- und cos-Terme in der Dichtematrix erhält,

die in ihren Produkten einen resultierenden Beitrag ergeben und sich nicht destruktiv auslöschen.

Nach der ausführlichen Darstellung der Präparation korrelierter Quantenzustände in einem isolierten 1-Qubit-S-Bus-System wird dies nun in der allgemeineren Form zunächst für $N = 2$, danach für N Qubit erläutert. Die yy- bzw. yx-Sequenzen generieren wieder ausgehend vom Boltzmanngleichgewicht $\rho_{\text{in}} = \rho_{\text{B}} = S_z$ nach Abklingen des Sublevel-FID die folgenden Dichtematrizen:

yy-Sequenz: (4.15)

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= -S_z \operatorname{Re} (\exp(+iS_z a_1 I_{z_1} \tau_S) \exp(+iS_z a_2 I_{z_2} \tau_S)) \\
&= -S_z \operatorname{Re} (\cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) \cos(a_2 I_{z_2} \tau_S) + i \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \cos(a_2 I_{z_2} \tau_S) \\
&\quad + i \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) \sin(a_2 I_{z_2} \tau_S) - \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \sin(a_2 I_{z_2} \tau_S)) \\
&\stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} -S_z \operatorname{Re} \left(\cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \hat{1} + 2i I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right. \\
&\quad \left. + 2i I_{z_2} \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) - 4I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right) \\
&= S_z \left(-\cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \hat{1} + 4I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right),
\end{aligned}$$

yx-Sequenz: (4.16)

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= S_z \operatorname{Im} (\exp(+iS_z a_1 I_{z_1} \tau_S) \exp(+iS_z a_2 I_{z_2} \tau_S)) \\
&= S_z \operatorname{Im} (\cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) \cos(a_2 I_{z_2} \tau_S) + i \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \cos(a_2 I_{z_2} \tau_S) \\
&\quad + i \cos(a_1 I_{z_1} \tau_S) \sin(a_2 I_{z_2} \tau_S) - \sin(a_1 I_{z_1} \tau_S) \sin(a_2 I_{z_2} \tau_S)) \\
&\stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} S_z \operatorname{Im} \left(\cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \hat{1} + 2i I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right. \\
&\quad \left. + 2i I_{z_2} \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) - 4I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right) \\
&= S_z \left(2I_{z_1} \sin\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \cos\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) + 2I_{z_2} \cos\left(\frac{a_1 \tau_S}{2}\right) \sin\left(\frac{a_2 \tau_S}{2}\right) \right).
\end{aligned}$$

Je nach Phasenlage des zweiten $\frac{\pi}{2}$ -Puls $P_{y,x}^S(\frac{\pi}{2})$ in der yy- bzw. yx-Sequenz werden somit entweder die geraden oder die ungeraden Qubit-Korrelationsgrade in den S-Bus-Systemen generiert:

yy – Sequenz :

$$\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) = S_z(-c_1 c_2 \hat{1} + 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2}), \quad (4.17)$$

yx – Sequenz :

$$\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon) = 2S_z(I_{z_1} s_1 c_2 + I_{z_2} c_1 s_2).$$

Die Koeffizienten c_j und s_j sind dabei gegeben durch

$$\begin{aligned} c_j &= \cos(a_j I_{z_j} \tau_S) \stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} \hat{1} \cos\left(\frac{a_j \tau_S}{2}\right), \\ s_j &= \sin(a_j I_{z_j} \tau_S) \stackrel{I_j=\frac{1}{2}}{=} 2I_{z_j} \sin\left(\frac{a_j \tau_S}{2}\right). \end{aligned}$$

Dies ist ein auf N Qubits skalierbares Verfahren zur Präparation von bis zu N -fachen Korrelationen mit dem zentralen S -Spin.

Der in dieser dargestellten Art und Weise präparierte Korrelationszustand kann mittels der MQE-Dichtematrixtomographie detektiert werden, d.h. die einzelnen Elemente der Dichtematrix sind zu bestimmen, bzw. die Anteile der Korrelationsterme in der Operator Darstellung. Dieses Verfahren wird anhand des obigen einfachen Beispiels eines Zwei-Qubit-S-Bus-Systems nachfolgend erläutert. Eine Darstellung hinsichtlich der Skalierbarkeit auf N Qubits erfolgt daraufhin im Anschluss.

Eine Begrenzung der Anpassung der freien Evolutionszeit τ_S innerhalb des Präparationsteiles aufgrund der Spektrometer-Totzeit ist wiederum anhand der Remote-Echo-Detektion zu umgehen (Abb. 4.2). Die freie Evolutionszeit τ_S ist somit vollkommen frei wählbar und unabhängig von der Detektions-Evolutionszeit τ_E der Hahn-Echo-Sequenz. Der Vorteil besteht darin, nun auch sehr kleine τ_S -Werte wählen zu können, für die die Sinus- und Cosinus-Terme s_j und c_j für große Hyperfeinwechselwirkungen entsprechende Beiträge liefern und Korrelationen der entsprechenden Qubits erfolgen, jedoch die Korrelationen mit anderen Qubit-Spins I_j mit kleiner Kopplung als konstanter, multiplikativer Faktor in der Gesamtdichtematrix betrachtet werden können.

4.1.2 Dichtematrixtomographie – die MQE-Detektion

Das Ziel der Dichtematrixtomographie besteht in der Bestimmung der Elemente einer Dichtematrix, bzw. der Koeffizienten der Korrelationsterme in der Operator Darstellung des Quantenzustandes eines S-Bus-Systems. Dies erfolgt abstrahiert betrachtet allgemein mittels einer wiederholten Durchführung eines Detektionsquantenalgorithmus, bestehend aus Präparation, unitärer Transformation

und Messung. Dabei wird bei jeder Repetition ein Kontrollparameter innerhalb der unitären Transformationen derart variiert, dass jedem Qubit eine individuelle Phasenevolution unter z-Rotationen aufgeprägt wird, die bei Messung des Ergebnis-Quantenzustandes in den Messwert eingeht. Eine sukzessive Auftragung dieses Messwertes in Abhängigkeit vom Kontrollparameter spiegelt dann die gesuchten Amplituden der einzelnen Korrelationsterme der zu tomographierenden Dichtematrix wider. Experimentell wurde dies anhand der Multi-Quanten-ENDOR-Sequenz (MQE) (Abb. 4.2) realisiert [98]. Diese bildet prinzipiell den einfachsten Quantenalgorithmus einer Identitätsoperation zwischen Präparation und Detektion eines Quantenzustandes.

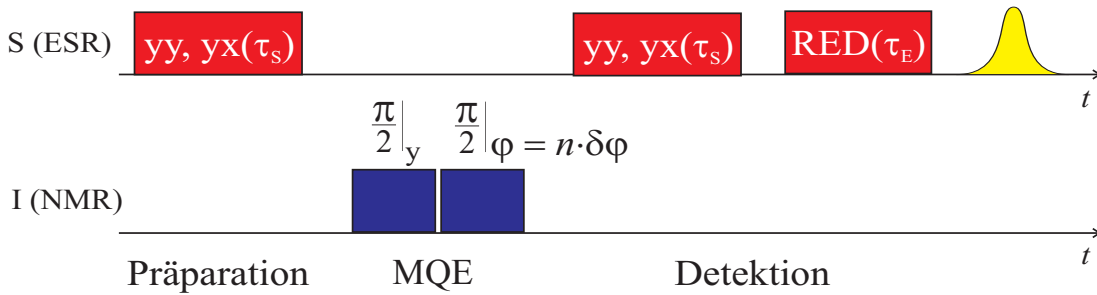


Abb. 4.2: MQE-Dichtematrixtomographie: yy- bzw. yx-Sequenz mit nachfolgender Multi-Quanten-ENDOR-Sequenz (MQE) zur Präparation und Detektion von Multi-Quantenkorrelationen mittels multifrequentieller, phasenkontrollierter Pulse auf den Qubit-Übergängen mit anschließender Remote-Echo-Detektion zur Messung des S -Spinechos. Die Phase $\varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j$ des zweiten MQE- $\frac{\pi}{2}$ -Pulses auf dem jeweiligen I_j -Übergang wird bei sukzessiver Repetition der Pulsfolge von Messpunkt zu Messpunkt individuell inkrementiert.

Anschließend an den yy- bzw. yx-Präparationsteil folgt die sogenannte MQE-Detektion mit der multifrequentiellen, phasenkontrollierten Einstrahlung auf beiden ENDOR-Übergängen der Qubits $I_{1;2}$ des Zwei-Qubit-S-Bus-Systems – allgemein dann auf N ENDOR-Übergängen der Qubits I_j . Zwischen diesen beiden Sequenz-Teilen können dann die Korrekturpulssequenzen und Algorithmen eingefügt werden.

Die MQE-Sequenz besteht aus zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen, wobei die Phase φ_j des zweiten Pulses in wiederholt durchgeführten Experimenten für jeden Messpunkt auf den einzelnen Kanälen der Qubits I_j individuell um den Phasenwinkel $\delta\varphi_j$ inkrementiert wird. Die relative Phase der MQE-Pulse ergibt sich dann im n . Experiment für das Qubit I_j zu $\varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j$. Die Detektion erfolgt mittelbar über die Höhe des stimulierten Echos des S -Spins nach dem ESR-Auslese-Puls. Die gemessenen S -Spin-Echohöhen zeigen in Abhängigkeit von der Phaseninkrementierung dann überlagerte Oszillationen der resultierenden S -Spinmagnetisierung, je nachdem welcher Anteil der I_{x,y_j} -Komponente in Abhängigkeit von der Phasenlage des

zweiten MQE-Pulses wieder in die detektierbare I_{z_j} -Komponente zurücktransformiert wurde.

Zur Verdeutlichung der sukzessiven Auftragung der Datenpunkte der Intensität des resultierenden S -Spinechos in Abhängigkeit dieser MQE-Phasenvariation wird eine Phasenfrequenz ν_{φ_j} und ein virtuelles Zeitinkrement $\delta t'$ definiert, so dass sich für das Phaseninkrement $\delta\varphi_j = \omega_{\varphi_j} \cdot \delta t' = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot \delta t'$ ergibt. Im n . Experiment beträgt die relative Phasenlage der MQE-Pulse des j . Qubit-Kanals:

$$\varphi_j(n) = n \cdot \delta\varphi_j \quad \text{mit} \quad \delta\varphi_j = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot \delta t' . \quad (4.18)$$

Das Zeitinkrement $\delta t'$ ist im Experiment für alle Qubits identisch, die Phasenfrequenzen ν_{φ_j} hingegen sind frei wählbar. Über diese findet dann die individuelle Adressierung der Qubits in den MQE-Oszillationen, bzw. MQE-Spektren statt. Somit ist auch eine Auftragung der Datenpunkte der S-Spin-Echohöhe nicht nur in Abhängigkeit von der Phase, sondern vielmehr in Abhängigkeit der virtuellen Zeit $t' = n \cdot \delta t'$ sinnvoll. Diese MQE-Zeitspur weist multiple Oszillationen auf, deren Fouriertransformierte das Phasen- oder MQE-Spektrum liefert, mit Linien bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} sowie im Falle korrelierter Zustände auch mit den Summen- und Differenzfrequenzen. Aus den Linienintensitäten lassen sich die entsprechenden Anteile der Spin-Operatoren am Gesamt-Quantenzustand extrahieren. Die MQE-Tomographie liefert darüber hinaus auch die Information, welche Linien in den ENDOR-Spektren zum selben elektronischen Zustand gehören, da sich nach dem vorgestellten Verfahren nur Korrelationen innerhalb eines S-Bus-Systems erzeugen lassen, die zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle$ gehören. Bei k -facher Entartung eines ENDOR-Überganges erhält man in den MQE-Spektren Linien bei der Phasenfrequenz $k \cdot \nu_{\varphi_j}$. dadurch ergibt sich auch im Vergleich zur herkömmlichen Spektroskopie der Vorteil einer sehr viel höheren Auflösung, wenn in ENDOR-Spektren mehrere Linien überlappen.

Bezugnehmend auf das Beispiel eines Zwei-Qubit-S-Bus-Systems ist nachfolgend die zugehörige unitäre Transformation der MQE-Tomographie für zwei Qubits angegeben:

$$\begin{aligned} U^{\text{MQE}}(\varphi_j) &= P_{\varphi_1}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{\varphi_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{y_1}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\ &= \exp(-i\varphi_1 I_{z_1}) \exp(-i\frac{\pi}{2} I_{y_1}) \exp(+i\varphi_1 I_{z_1}) \\ &\quad \cdot \exp(-i\varphi_2 I_{z_2}) \exp(-i\frac{\pi}{2} I_{y_2}) \exp(+i\varphi_2 I_{z_2}) \\ &\quad \cdot \exp(-i\frac{\pi}{2} I_{y_1}) \exp(-i\frac{\pi}{2} I_{y_2}) . \end{aligned} \quad (4.19)$$

Aufgrund der Phaseninkrementierung des zweiten MQE-Pulse werden nach dem ersten MQE-Puls in Abhängigkeit dieser Pulsphase unterschiedliche Anteile der

transversalen Komponenten I_{x,y_j} der Qubit-Spins wieder nach I_{z_j} zurücktransformiert. In der Dichtematrixdarstellung erhalten die Qubits I_j dadurch einen Phasenfaktor $\cos \varphi_j$. Somit kann jedes Qubit mit seiner eigenen Phasenfrequenz ν_{φ_j} individuell adressiert werden. Im MQE-Experiment äußert sich dies in einer Modulation des ENDOR-Effektes im Spin-Echo in Abhängigkeit von den Phasenfrequenzen ν_{φ_j} in der virtuellen Zeit t' . In dem einfachen Beispiel eines isolierten Zwei-Qubit-S-Bus-Systems mit $S = I_{1;2} = \frac{1}{2}$ erhält man nach Anwendung der MQE-Sequenz auf eine mittels yy- bzw. yx-Sequenz präparierten Zustand folgende Dichtematrizen der Qubit-Korrelationen:

yy – Sequenz : (4.20)

$$\begin{aligned} \rho_{yy}^{\text{MQE}} &= S_z \left(-c_1 c_2 \hat{1} + 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right) \\ &= S_z \left(-c_1 c_2 \hat{1} + 2s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2} (\cos(\varphi_1 + \varphi_2) + \cos(\varphi_1 - \varphi_2)) \right) , \end{aligned}$$

yx – Sequenz :

$$\rho_{yx}^{\text{MQE}} = 2S_z (s_1 c_2 I_{z_1} \cos \varphi_1 + I_{z_2} \cos \varphi_2) , \text{ mit}$$

$$\begin{aligned} c_j &= \cos\left(\frac{a_j}{2}\tau\right) , \\ s_j &= \sin\left(\frac{a_j}{2}\tau\right) , \\ \varphi_j &= \omega_{\varphi_j} \cdot t' = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot t' . \end{aligned}$$

In den zugehörigen MQE-Spektren der Dichtematrizen ρ_{yy}^{MQE} , bzw. ρ_{yx}^{MQE} dieses isolierten Zwei-Qubit-S-Bus-Systems sind somit im Fall der yx-Sequenz Linien der ungeraden Korrelationen bei den einfachen Phasenfrequenzen ν_{φ_1} und ν_{φ_2} zu erwarten, im Gegensatz zur Anwendung der yy-Sequenz, die die geraden I_j -Korrelationen generiert und daher MQE-Linien bei den Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ zu sehen sein sollten.

Die S_z -Komponente der Dichtematrix $\rho_{yy,yx}^{\text{MQE}}$ wird bei der Detektion entweder durch das stimulierte Echo oder mittels der Remote-Echo-Detektion wieder nach S_x transformiert und führt nach einer weiteren Evolutionszeit τ_S zum messbaren S -Spinechosignal $-|S_x\rangle$. Die Dichtematrix $\rho_{yy,yx}$ nach der Remote-Echo-Detektion lautet dann:

yy – Sequenz : (4.21)

$$\begin{aligned} \rho_{yy} &= -S_x \left(-c_1 c_2 \hat{1} + 2s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2} (\cos(\varphi_1 + \varphi_2) + \cos(\varphi_1 - \varphi_2)) \right) \\ &\quad \cdot \left(-c_1 c_2 \hat{1} + 2s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2} \right) , \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \text{yx - Sequenz :} & (4.22) \\
\rho_{yx} &= -2S_x (s_1 c_2 I_{z_1} \cos \varphi_1 + c_1 s_2 I_{z_2} \cos \varphi_2) \\
& \quad \cdot (s_1 c_2 I_{z_1} + c_1 s_2 I_{z_2}) .
\end{aligned}$$

Die S -Spinechöhe $A_{y,x}^S$ als Messsignal berechnet sich aus der Spurbildung des Produktes von Mess-Operator S_x und Dichtematrix $\rho_{yy,yx}$ zu:

$$\begin{aligned}
& \text{yy - Sequenz :} & (4.23) \\
A_{yy}^S &= \text{Tr}(S_x \rho_{yy}) \\
&= c_1^2 c_2^2 - s_1^2 s_2^2 \cdot (\cos(\varphi_1 + \varphi_2) + \cos(\varphi_1 - \varphi_2)) ,
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \text{yx - Sequenz :} & (4.24) \\
A_{yx}^S &= \text{Tr}(S_x \rho_{yx}) \\
&= 2 (s_1^2 c_2^2 \cos \varphi_1 + c_1^2 s_2^2 \cos \varphi_2) .
\end{aligned}$$

Somit zeigt die Auftragung der S -Spinechöhe $A_{yy,yx}^S$ über der eingeführten virtuellen Zeit $t = n \cdot \delta t$ die periodischen Abhängigkeiten $\cos \varphi_j$ der einzelnen Qubit-Bestandteile I_{z_j} der Dichtematrix aufgrund der Phaseninkrementierung der MQE-Pulse als eine Schwebung der enthaltenen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} .

Insbesondere die Amplituden der Korrelationsterme $I_{z_j} I_{z_k} \dots$, allgemein für N Qubits, enthalten durch die MQE-Detektion Produktterme der Form $\cos \varphi_j \cos \varphi_k \dots$. Im Fourierspektrum (MQE-Spektrum) dieser MQE-Zeitspur sind dann die einzelnen Multi-Quantenkorrelationsbestandteile der Dichtematrix aus den zugehörigen Linienhöhen der einzelnen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} sowie deren Summen und Differenzen $\nu_{\varphi_j} \pm \nu_{\varphi_k} \pm \dots$ im Falle nichtkommensurabler Phasenfrequenzen extrahierbar. Auf diese Weise können die Diagonalelemente I_{z_j} der Dichtematrix $\rho_{yy,yx}^{\text{MQE}}$ tomographiert werden. Die Außerdiagonalelemente mit transienten Termen I_{x,y_j} müssen vor Abfrage über die S -Spin-Echöhe mittels $\frac{\pi}{2}$ -ENDOR-Pulse entsprechender Phasenlage zur Tomographie in z -Richtung – quasi durch Austausch mit einem Diagonalelement der Dichtematrix – geschrieben werden, da auf die mittelbare Detektion über die S -Spin-Echöhe nur I_{z_j} -Komponenten einen Einfluss zeigen. Diese transienten Anteile sind dann ebenfalls zu bestimmen, so dass dadurch alle Elemente der Dichtematrix zu erhalten sind.

Experimentelle Messergebnisse zur Präparation und Detektion von Multi-Quantenkorrelationen folgen erst im nächsten Kapitel, da hier idealisierend ein vollständig isoliertes Zwei-Qubit-S-Bus-System angenommen wurde. Dies ist

natürlich realiter in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ nicht der Fall, da der Ce^{3+} -Elektronenspin letztendlich an alle Spins im Kristall gekoppelt ist, auch wenn deren Wechselwirkungen nur sehr klein sind, tragen die daraus entstehenden Korrelationen aufgrund ihrer Vielzahl zu dem Gesamtquantenzustand und damit zu den Linienintensitäten in den MQE-Spektren bei. Das MQE-Spektrum zeigt nach Anwendung einer yy -Sequenz, durchgeführt an einem isolierten S-Bus-System mit zwei Qubits $I_{1;2}$ lediglich die geraden, nach einer yx -Sequenz nur die ungeraden Korrelationen. Durch die Korrelation des S -Spins mit N daran gekoppelten Spins I_j sind im Experiment im MQE-Spektrum von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ jedoch gerade und ungerade Korrelationen gleichzeitig sichtbar. Dies ist im nachfolgenden Kapitel zur Präparation und Detektion von N -Qubit-Quantenkorrelationen in Analogie zu den hier aufgeführten Beispielen erklärt.

Anhand der MQE-Detektion lässt sich auch feststellen, welche ENDOR-Übergänge zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ gehören. Dabei erfolgte die RF-Einstrahlung bei der Aufnahme der MQE-Spektren paarweise auf allen Zweier-Kombinationen der Qubits I_j und I_k mit den Phasenfrequenzen ν_j und ν_k . Nur wenn die Übergänge mit gleichzeitiger Einstrahlung zum selben elektronischen Zustand gehören, sind die Qubits I_j und I_k miteinander korrelierbar, so dass nur in diesem Fall das MQE-Spektrum Linien der 0-, 1- und 2-Quantenkorrelationen aufweist. Bei Nichtzugehörigkeit zum selben elektronischen Zustand sind in den entsprechenden MQE-Spektren nur die 1-Quantenkorrelationen sichtbar. Als Beispiel hierfür zeigt die Abb. 4.3 zwei MQE-Spektren mit paarweiser Einstrahlung auf Übergängen die zum selben, bzw. zu verschiedenen elektronischen Zuständen gehören.

Im Falle n -fach entarteter Übergänge würde im MQE-Spektrum Linien bis zur n -fachen Phasenfrequenz $n \cdot \nu_{\varphi_j}$ auftreten. Alle ENDOR-Übergänge des y -Zentrums sind in dieser Kristallorientierung aus Abb. 3.29 nicht entartet und eindeutig einem elektronischen Zustand zuzuordnen.

4.1.3 Präparation und Detektion von Multi-Quantenkorrelationen mit N Qubits

In diesem Kapitel wird die Präparation und Detektion von Multi-Qubit-Korrelationen mit N Qubits nach dem S-Bus-Konzept vorgestellt. Die experimentelle Umsetzung in Form multifrequentieller ENDOR-Pulsfolgen sowie deren Erweiterung über eine Remote-Echo-Detektion ist identisch wie im vorangegangenen Kapitel dargestellt. Hier zeigt sich jedoch die Skalierbarkeit und Übertragbarkeit des S-Bus-Konzeptes auf andere physikalische Systeme zur Quanteninformationsverarbeitung.

Die Wechselwirkung eines S-Bus-Systems mit seiner weiteren Umgebung äußert

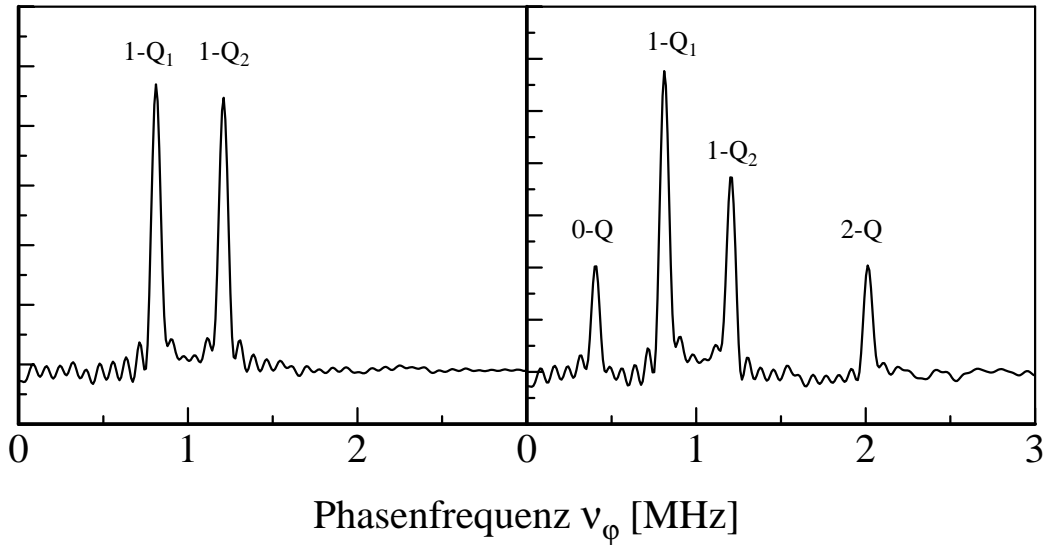


Abb. 4.3: MQE-Spektren bei paarweiser Einstrahlung auf zwei ENDOR-Übergängen des y -Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Links: MQE-Einstrahlung auf den Übergängen ν_1 und ν_3 unterschiedlicher elektronischer Zustände mit den Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz und $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz, $\delta t' = 100$ ns. Da in diesem Fall keine Korrelierbarkeit gegeben ist, zeigt das MQE-Spektrum nur die 1-Quantenkorrelationen 1-Q₁ und 1-Q₂ bei den jeweiligen Phasenfrequenzen. Rechts: Einstrahlung auf den Übergängen ν_1 und ν_{16} des selben elektronischen Zustandes mit den gleichen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} . Aufgrund der hier gegebenen Korrelierbarkeit erhält man auch MQE-Linien des Zustandes $I_{z_1}I_{z_2}$ der 0- und 2-Quantenkorrelationen (0-Q und 2-Q) bei der Summen- und Differenzfrequenz $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ der Phasenfrequenzen. Die Kristallorientierung ist identisch der aus Abb. 3.29

Messdaten: $\nu_S = 9,380883$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,40999$ T; ENDOR-Frequenzen: $\nu_1 = 12,387$ MHz; $\nu_3 = 13,141$ MHz; $\nu_{16} = 20,771$ MHz; $\vartheta(y) = 71,71^\circ$, $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$.

sich nach Anwendung der yy - bzw. yx -Präparationssequenz durch weitere Produktterme in der Operator Darstellung der Dichtematrix. Dies hat auch unmittelbare Konsequenzen für die Linienintensitäten in den MQE-Spektren. Es sind beispielsweise im Zwei-Qubit-MQE-Spektrum nun alle Korrelationen – gerade und ungerade – sichtbar, wenn mehr als zwei Qubits – wenn auch nur als multiplikativer Faktor in der Dichtematrix – miteinander korreliert werden. Die Phasenlage des ESR-Rückschreibepulses der yy - bzw. yx -Präparations- oder Detektionssequenz hat aber dann auf die jeweiligen Linienhöhen der MQE-Spektren immer noch Einfluss. Details hierzu werden im Anschluss erklärt.

Die für das Beispiel des S-Bus-Systems $\{S = \frac{1}{2}; I_1 = I_2 = \frac{1}{2}\}$ vorgestellte

Rechnung lässt sich natürlich auch ohne Beschränkung der Allgemeinheit auf solch ein N -Qubit-S-Bus-System übertragen. Der Wechselwirkungs-Hamilton-Operator enthält nun die Kopplungen des Zentralspins S an alle Qubit-Spins I_j :

$$\mathcal{H}_{SI}^{(N)} = \hbar \sum_{j=1}^N S \mathcal{A}_j I_j . \quad (4.25)$$

In erster Näherung wird zur Vereinfachung der nachfolgenden Darstellung nur der säkulare Anteil der Hyperfeinwechselwirkung betrachtet:

$$\mathcal{H}_{SI}^{(N)} \approx \hbar \sum_{j=1}^N S_z a_j I_{z_j} . \quad (4.26)$$

Wiederum ausgehend von der Boltzmann-Dichtematrix $\rho(t=0) = \rho_B = S_z$ als Anfangszustand des Ensembles von S-Bus-Systemen erhält man nach Anwendung der yy- bzw. yx-Präparationssequenz mit der freien Evolutionszeit τ_S unter dem Zeitentwicklungsoperator $U^N(a_j; \tau)$ eine Korrelation $\rho_{yy,yx}$ des zentralen S -Spins mit den Kernspins I_j in Abhängigkeit von der Größe der Hyperfeinwechselwirkung a_j :

$$\rho_{yy,yx}(\tau_S) = U_{yy,yx}(\tau_S) S_z U_{yy,yx}(\tau_S)^{-1} , \quad \text{mit} \quad (4.27)$$

$$U_{yy,yx}(\tau_S) = P_{y,x}^S\left(\frac{\pi}{2}\right) U^N(a_j; \tau_S) P_y^S\left(\frac{\pi}{2}\right) ,$$

$$\begin{aligned} U^N(a_j; \tau_S) &= \exp\left(-i \sum_{j=1}^N S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \\ &= \prod_{j=1}^N \exp\left(-i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) , \end{aligned}$$

$$P_{y,x}^S\left(\frac{\pi}{2}\right) = \exp\left(-i \frac{\pi}{2} S_{y,x}\right) .$$

Die resultierende Dichtematrix kann wiederum je nach Phasenlage der Pulse anhand des Real- oder Imaginärteils ausgedrückt werden:

yy – Sequenz :

$$\begin{aligned} \rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= -S_z \operatorname{Re} \left(\exp\left(+i \sum_{j=1}^N S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right) \\ &= -S_z \operatorname{Re} \left(\prod_{j=1}^N \exp\left(+i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right), \end{aligned} \quad (4.28)$$

yx – Sequenz :

$$\begin{aligned} \rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon) &= S_z \operatorname{Im} \left(\exp\left(+i \sum_{j=1}^N S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right) \\ &= S_z \operatorname{Im} \left(\prod_{j=1}^N \exp\left(+i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right). \end{aligned} \quad (4.29)$$

Im realen Experiment werden Quantenalgorithmen meist nicht mit allen N Qubits durchgeführt, die über die yy- oder yx-Präparationssequenz mit dem S -Spin korreliert wurden, sondern im allgemeinen an Subsystemen mit nur n Qubits. Dabei bilden die nicht zu manipulierenden Qubits einen multiplikativen Faktor in der Dichtematrix $\rho_{yy,yx}(\tau_S + \varepsilon)$, wie am nachfolgenden Beispiel für $n = 2$ gezeigt ist. Zunächst werden alle N Qubits mit dem S -Spin korreliert. Um die Analogie zum einfachen Beispiel des isolierten S-Bus-Systems eines S -Spins und zweier Qubit-Spins $I_{1;2}$ aufzuzeigen, werden unter Berücksichtigung der Kopplungen an andere Spins hier ohne Beschränkung der Allgemeinheit wieder zwei Qubit-Spins $I_{1;2}$ betrachtet. In Abhängigkeit von der y- oder x-Phasenlage des Rückschreibepulses der yy- bzw. yx-Präparation erhält man nach Abklingen der transienten Terme $I_{x,y}$ die Dichtematrizen $\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon)$ bzw. $\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon)$:

yy-Sequenz:

$$\begin{aligned} \rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= -S_z \operatorname{Re} \left(\prod_{j=1}^N \exp\left(+i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right) \\ &= -S_z \operatorname{Re} \left(\exp\left(+i S_z a_1 I_{z_1} \tau_S\right) \exp\left(+i S_z a_2 I_{z_2} \tau_S\right) \prod_{j \geq 3}^N \exp\left(+i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right) \\ &= -S_z \operatorname{Re} \left((c_1 c_2 \hat{1} + 2i(s_1 c_2 I_{z_1} + c_1 s_2 I_{z_2}) - 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2}) \right. \\ &\quad \left. \cdot \prod_{j \geq 3}^N \exp\left(+i S_z a_j I_{z_j} \tau_S\right) \right) \\ &= -S_z \operatorname{Re} \left((c_1 c_2 \hat{1} + 2i(s_1 c_2 I_{z_1} + c_1 s_2 I_{z_2}) - 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2}) \cdot C(j \geq 3) \right), \end{aligned} \quad (4.30)$$

yx-Sequenz:

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) &= S_z \operatorname{Im} \left(\prod_{j=1}^N \exp(+iS_z a_j I_{z_j} \tau_S) \right) & (4.31) \\
&= S_z \operatorname{Im} \left(\exp(+iS_z a_1 I_{z_1} \tau_S) \exp(+iS_z a_2 I_{z_2} \tau_S) \prod_{j \geq 3}^N \exp(+iS_z a_j I_{z_j} \tau_S) \right) \\
&= S_z \operatorname{Im} \left((c_1 c_2 \hat{1} + 2i(s_1 c_2 I_{z_1} + c_1 s_2 I_{z_2}) - 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2}) \right. \\
&\quad \left. \cdot \prod_{j \geq 3}^N \exp(+iS_z a_j I_{z_j} \tau_S) \right) \\
&= S_z \operatorname{Im} \left((c_1 c_2 \hat{1} + 2i(s_1 c_2 I_{z_1} + c_1 s_2 I_{z_2}) - 4s_1 s_2 I_{z_1} I_{z_2}) \cdot C(j \geq 3) \right) , \\
c_j &= \cos\left(\frac{a_j}{2} \tau\right) , \\
s_j &= \sin\left(\frac{a_j}{2} \tau\right) , \\
\varphi_j &= \omega_{\varphi_j} \cdot t' = 2\pi \nu_{\varphi_j} \cdot t' .
\end{aligned}$$

Unter Einbeziehung des multiplikativen Faktors C der Korrelationen für $j \geq 3$ in die Koeffizienten der Operatoren $I_{z_{1,2}}$ des zu betrachtenden S-Bus-Subsystems können diese Dichtematrizen vereinfacht ausgedrückt werden durch:

yy-Sequenz:

$$\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) \quad (4.32)$$

yx-Sequenz:

$$\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon) = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} q_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} q_2 I_{z_2} + q_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) .$$

Die Koeffizienten p_j und q_j enthalten dabei neben den mit der Hyperfeinwechselwirkung a_j und der Evolutionszeit τ_S skalierenden Sinus- bzw. Cosinusterme $\sin(a_j \tau_S/2)$ bzw. $\cos(a_j \tau_S/2)$ auch die Korrelationen mit den Qubit-Spins I_j für $j \geq 3$ als multiplikativen Faktor, jedoch immer unter der Prämisse, dass $\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon)$ insgesamt nur gerade und $\rho_{yx}(\tau_S + \varepsilon)$ nur ungerade Qubit-Korrelationen enthalten. Eine nachträgliche Normierung der Koeffizienten p_j bzw. q_j ist erlaubt, da dies einer Anpassung des Faktors κ in der Boltzmann-Dichtematrix ρ_B entspricht.

Die yy- und yx-Sequenzen werden im weiteren Verlauf nicht nur als Präparationssequenz zur Erzeugung von Multi-Quantenkorrelationen verwendet, sondern finden auch eine Anwendung als Detektionssequenz in der Remote-Echo-Detektion (RED) zum Transfer der Korrelationen auf einen multiplikativen Faktor des zentralen S -Spins, der die Kontrollparameter der Qubit-Manipulation enthält und diese somit indirekt über das S -Spin-Echo detektierbar sind.

Die dargestellte Rechnung zur Präparation korrelierter Zustände nach dem S-Bus-Konzept basiert auf der Annahme idealer Pulse, die so natürlich nicht experimentell realisierbar sind. Dies und die Tatsache, dass aufgrund der starken g -Anisotropie und wie hier in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in realen S-Bus-Systemen in Festkörpern gegenüber der Kernlarmorfrequenz nicht vernachlässigbaren Hyperfeinwechselwirkung a_j die Quantisierungsachsen von Elektronen- und Kernspins in nichtkanonischen Kristall-Orientierungen gegeneinander verkippt sind, ergeben sich im resultierenden Quantenzustand auch Anteile mit transienten Komponenten I_{x,y_j} . Deren Beiträge kompensieren sich jedoch nach dem Abklingen des Sublevel-FID, so dass danach nur noch I_{z_j} -Komponenten übrig bleiben. Zur Präparation eines korrelierten N -Qubit-Zustandes der Form $S_z |c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} + c_2 I_{z_2} + \dots + c_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \dots + c_N I_{z_1} \dots I_{z_N})$ muss somit nach Anwendung der yy- bzw. yx-Präparationssequenz noch eine Wartezeit der Größenordnung des Sublevel-FID – im Fall von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ rund $40 \mu\text{s}$ – vor einer weiteren Manipulation der Multi-Quantenkorrelationen eingehalten werden.

Das Verfahren der MQE-Dichtematrixtomographie entspricht für N Qubits exakt dem Beispiel für zwei Qubits, mit der Erweiterung, dass die MQE-Sequenz mit der gewählten, qubitspezifischen Phasenfrequenzen auf allen Übergängen der an der Durchführung einer Operation beteiligten Qubits angewendet werden muss. Jeder Term I_{z_j} erhält durch die MQE-Tomographie wieder einen Koeffizienten $\cos \varphi_j$ durch die Phaseninkrementierung des zweiten MQE-Pulses gemäß $\varphi_j = n \cdot \delta \varphi_j$; $\delta \varphi_j = 2\pi \nu_{\varphi_j} \cdot \delta t'$. Für die MQE-Detektion einer mit der yy-Sequenz präparierten Dichtematrix $\rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon)$ erhält man beispielsweise:

$$\begin{aligned} \rho_{yy}^{\text{MQE}} &= U^{\text{MQE}}(\varphi_j) \rho_{yy}(\tau_S + \varepsilon) U^{\text{MQE}^{-1}}(\varphi_j) \\ &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} \cos \varphi_1 + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} \cos \varphi_2 + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right). \end{aligned} \quad (4.33)$$

Im Fall der yx-Sequenz erhält man eine identische Gleichung mit den Koeffizienten q_j .

Eine anschließende yy- bzw. yx-Detektionssequenz bei der Remote-Echo-Detektion wirkt nur auf S_z , so dass aus der Dichtematrix ρ_{yy}^{MQE} nur der S_z -Operator weitere Qubit-Korrelationen mit den Koeffizienten d_j erhält, analog zur yy- bzw. yx-Präparation:

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}^D &= \rho_{yy}^{\text{MQE}} \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} d_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} d_2 I_{z_2} + d_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} \cos \varphi_1 + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} \cos \varphi_2 + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right) \\
&\quad \cdot \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} d_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} d_2 I_{z_2} + d_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) .
\end{aligned} \tag{4.34}$$

Das Messsignal A_{yy}^S erhält man wieder durch Spurbildung des Produktes von Mess-Operator und der Dichtematrix ρ^D analog zum isolierten S-Bus-System:

$$A_{yy}^S = \text{Tr}(S_z \rho_{yy}^D) = \frac{1}{4} (1 + p_1 d_1 \cos \varphi_1 + p_2 d_2 \cos \varphi_2 + p_{12} d_{12} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2) . \tag{4.35}$$

Falls Präparations und Detektionssequenz die gleiche freie Evolutionszeit τ_S und identische relative Phasenlage aufweisen – beispielsweise im Fall einer yy-Präparation und yy-Detektion vereinfachen sich die Koeffizienten noch weiter zu $d_j = p_j$, bei einer yx-Detektion zu $d_j = q_j$. Man erhält dann für das Messsignal bei yy-Präparation und yy-Detektion in Abhängigkeit von der virtuellen Zeit t' :

$$\begin{aligned}
A_{yy}^S &= \text{Tr}(S_z \rho_{yy}^D) \\
&= \frac{1}{4} \left(1 + p_1^2 \cos \varphi_1 + p_2^2 \cos \varphi_2 + p_{12}^2 \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right) \\
&= \frac{1}{4} \left(1 + p_1^2 \cos(2\pi \nu_{\varphi_1} t') + p_2^2 \cos(2\pi \nu_{\varphi_2} t') + p_{12}^2 \cos(2\pi \nu_{\varphi_1} t') \cos(2\pi \nu_{\varphi_2} t') \right) \\
&= \frac{1}{4} \left(1 + p_1^2 \cos(2\pi \nu_{\varphi_1} t') + p_2^2 \cos(2\pi \nu_{\varphi_2} t') \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} p_{12}^2 (\cos(2\pi(\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2}) t') + \cos(2\pi(\nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2}) t')) \right) .
\end{aligned} \tag{4.36}$$

Die MQE-Spektren der N -Qubit-Dichtematrizen zeigen somit Linien bei den Phasenfrequenzen ν_{φ_j} sowie den bis zu N -fachen Summen- und Differenzfrequenzen $\nu_{\varphi_j} \pm \nu_{\varphi_k}, \dots, \nu_{\varphi_j} \pm \nu_{\varphi_k} \pm \dots \pm \nu_{\varphi_N}$, aus deren Höhen die Koeffizienten p_j^2 des Messsignals A^S extrahierbar sind.

Zur prinzipiellen Demonstration der Korrelierbarkeit der Qubits in S-Bus-Systemen wurde zunächst am kubischen Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ ein MQE-Experiment mit monofrequenten, breitbandigen, nichtselektiven MQE-RF-Pulsen auf den ENDOR-Übergängen der Fluor-Kernspins mit kleiner Hyperfeinwechselwirkung durchgeführt. Die Resonanzen dieser Spins sind als eine Vielzahl von

Linien um die Larmorfrequenz der freien Fluor-Kernspins im ENDOR-Spektrum gruppiert. Alle Spins I_j dieser Übergänge erfahren daher die gleichen Transformationen durch die MQE-Sequenz, so dass bei einer j -fachen Korrelation der Form $S_z |I_{z_1} I_{z_2} \dots I_{z_j}\rangle$ im MQE-Spektrum Linien bei der bis zu j -fachen Phasenfrequenz $j \cdot \nu_\varphi$ zu erwarten sind. Da diese Kernspins der Zentralgruppe nahezu alle die gleiche Hyperfeinwechselwirkung $a_j/2\pi \leq 3$ MHz besitzen, kann auch an dieser Stelle die deutliche Abhängigkeit des Korrelationsgrades von der Evolutionszeit τ_S in der Präparationssequenz demonstriert werden. Die Abb. 4.4 zeigt die in diesem Zusammenhang aufgenommenen MQE-Spektren für verschiedenen Evolutionszeiten bei identischer Phasenfrequenz. Die Korrelationsanteile skalieren im Fall der yy-Sequenz mit $\prod_j \sin(a_j \tau/2)$, d.h. für $a_j/2\pi = a_k/2\pi \approx 0,4$ MHz ergeben sich hohe Korrelationsgrade für $\tau = \pi/a_j \approx 1,3$ μs , wie auch aus den Korrelationsdiagrammen ersichtlich ist. Eine quantitative Auswertung der MQE-Spektren erfolgt an den späteren Beispielen der Korrelationen von zwei, drei und vier Qubits.

Die gezielte Erzeugung und Detektion von Multi-Quantenkorrelationen wird bei selektiver RF-Einstrahlung mit individueller Adressierung der Qubits durchgeführt. Hierzu zeigt die Abb. 4.5 das MQE-Spektrum eines Zwei-Qubit-Korrelationszustandes des S-Bus-Systems $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit den 0-, 1- und 2-Quantenkorrelationen des Zustandes $\rho_{yy} = S_z |\frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2}p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2}\rangle$, der mit einer yy-Präparations- und Detektionssequenz mit Remote-Echo-Detektion aus Abb. 4.2 generiert und tomographiert wurde. Das MQE-Spektrum erklärt sich wie folgt: Terme der Dichtematrix ρ_{MQE} , die nur I_{z_1} - oder I_{z_2} -Ausdrücke enthalten nennt man Ein-Quantenkorrelation (1-Q_{1,2}), da in diesen der Faktor $\cos \varphi_{1,2}$ nur einmal auftritt. Die zugehörigen Koeffizienten p_1 und p_2 berechnen sich aus den Höhen p_1^2 und p_2^2 der Linien bei den Phasenfrequenzen ν_{φ_1} und ν_{φ_2} . Die Korrelation $I_{z_1} I_{z_2}$ spaltet sich in Null- und Zwei-Quantenkorrelationen (0-Q und 2-Q) auf, da das Produkt $\cos \varphi_1 \cos \varphi_2 = \frac{1}{2} (\cos(\varphi_1 + \varphi_2) + \cos(\varphi_1 - \varphi_2))$ im MQE-Spektrum zwei Linien bei den Summen- und Differenzfrequenz $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ ergibt. Das Koeffizientenquadrat p_{12}^2 entspricht daher der Summe der 0-Q- und 2-Q-Linienhöhen. Ausschlaggebend zur Bestimmung des Quantenzustandes sind jedoch nur die relativen Linienhöhen, d.h. die Koeffizientensumme aller p_j kann anschließend normiert werden.

Aufgrund von Phasenfehlern, die durch imperfekte Pulse im Experiment auftreten können, wurden die Linienhöhen der MQE-Spektren in Abb. 4.5 sowie aller anderen nachfolgend dargestellten experimentellen Ergebnisse stets aus den zugehörigen Power-Spektren mittels Quadraturdetektion bestimmt – insbesondere auch in den Spektren mit negativen Linienhöhen wurde stets die Linienhöhe gemäß der Wurzel aus der Summe der Quadrate von Real- und Imaginärteil $\sqrt{\text{Re}(f(t'))^2 + \text{Im}(f(t'))^2}$ der aufgenommenen MQE-Oszillationen $f(t')$ ermittelt, um den Einfluss von Phasenfehlern zu minimieren.

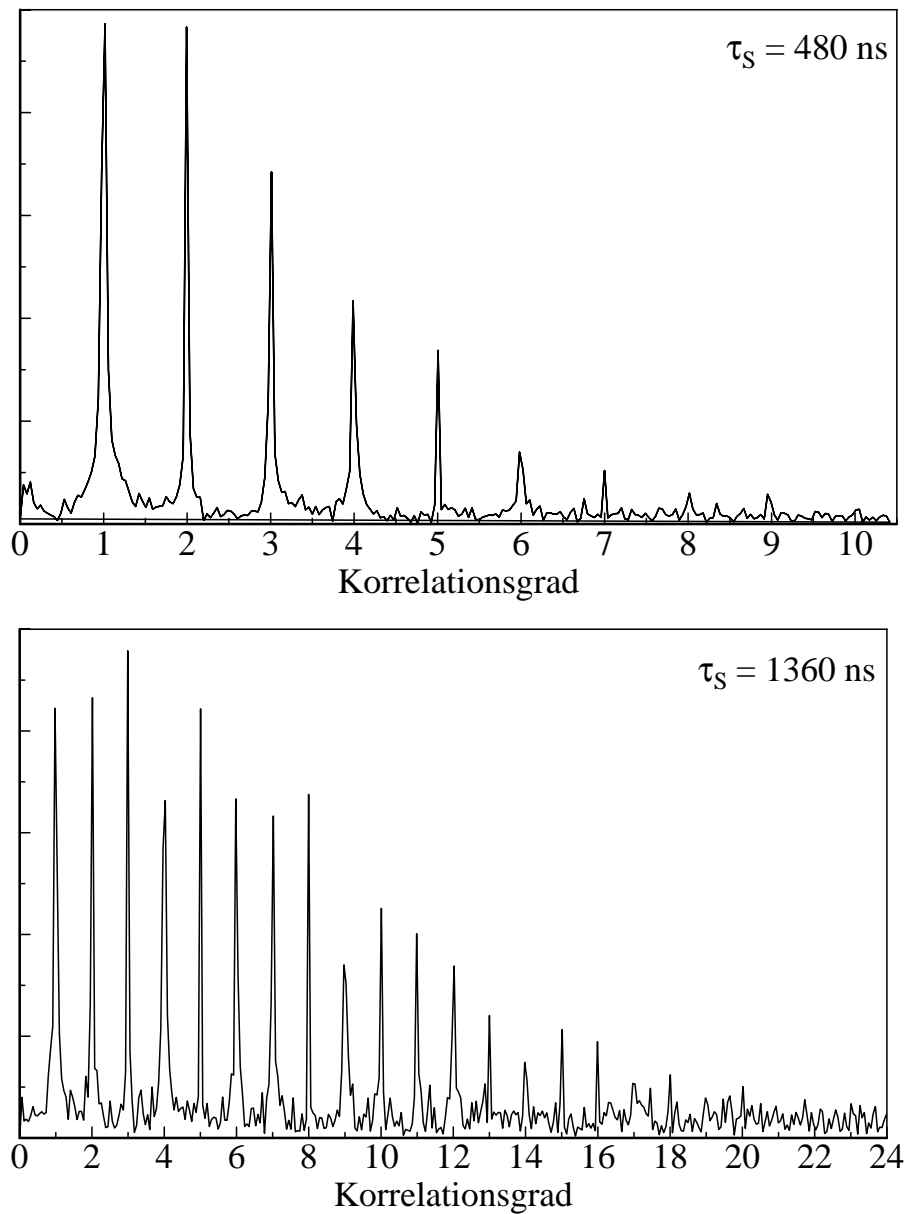


Abb. 4.4: Multi-Quanten-ENDOR-Spektrum (MQE) am kubischen Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit einem maximalen Korrelationsgrad 9 (oben), bzw. 20 (unten) bei MQE-Einstrahlung auf den Kernspins mit kleiner Hyperfeinwechselwirkung der Zentralgruppe um die Larmorfrequenz der freien Fluor-Kernspins. Die freien Evolutionszeit in der yy -Präparationssequenz betrug $\tau_S = 480$ ns (oben), bzw. $\tau_S = 1360$ ns (unten).

Messdaten: kubisches Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$; $B_0^{(\text{kub})} = 0,3461$ T; $\nu^{\text{RF}} = 13,863$ MHz; $T = 10$ K.

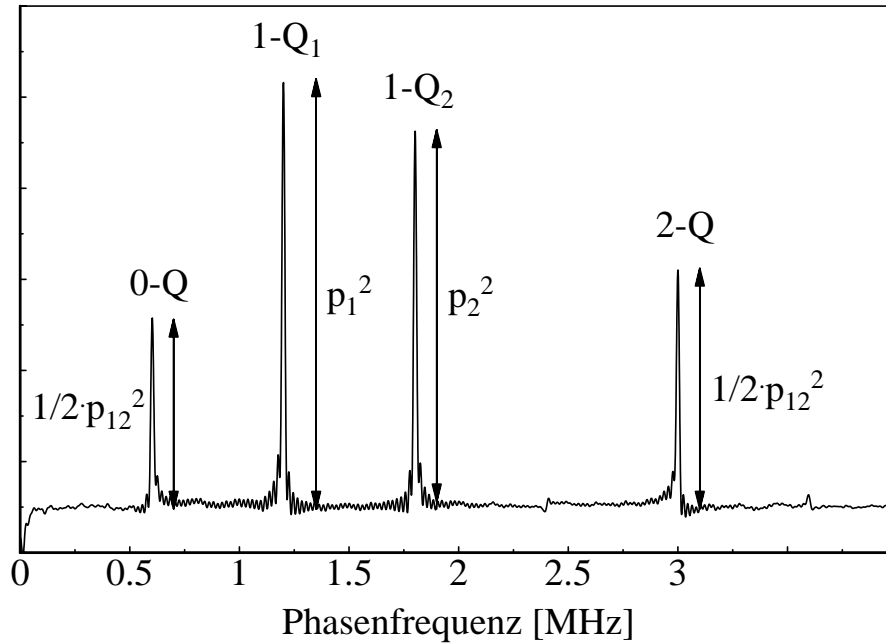


Abb. 4.5: Multi-Quanten-ENDOR-Spektrum (MQE) eines Zwei-Qubit-Korrelationszustandes mit yy -Präparation und yy -Remote-Echo-Detektion. Die 1-Quantenkorrelationen ($1\text{-}Q_j$) ergeben Linien der Höhen p_1^2 und p_2^2 , die Summe der Linienhöhen der 0- und 2-Quantenkorrelationen (0-Q und 2-Q) entspricht p_{12}^2 . Das Auftreten der 0-Q- und 2-Q-Linien beweist weiterhin die Zugehörigkeit der ENDOR-Linien der Qubits $I_{1;2}$ zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle$.

Messdaten: $\nu_S = 9,3655886$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,43933$ T; $\tau_S = 16$ ns; $\tau_E = 484$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,2747$ MHz; $\nu_2 = 14,6438$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 1,2$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,8$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; $\vartheta^{(y)} = 76,3^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; T = 8 K. Weitere Erläuterungen im Text.

Abb. 4.5 zeigt ein Zwei-Qubit-MQE-Spektrum mit den jeweiligen Linienhöhen p_j^2 anhand dessen nachfolgend exemplarisch eine Auswertung zur Bestimmung der präparierten Dichtematrix erfolgt. Man erhält aus diesem MQE-Spektrum folgende Linienhöhen p_j^2 bei den jeweils angegebenen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} in willkürlichen Einheiten:

Phasenfrequenz	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$ 1,2 MHz	I_{z1}	1-Q	24,09
$\nu_{\varphi_2} =$ 1,8 MHz	I_{z2}	1-Q	21,27
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$ 3,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	13,58
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$ 0,6 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	10,85

Daraus ergibt sich die präparierte Dichtematrix zu

$$\begin{aligned}
\rho_{yy} &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} 0,99304 I_{z_1} + \frac{1}{2} 0,93307 I_{z_2} + 1,0 I_{z_1} I_{z_2} \right) \\
&= \begin{pmatrix} 0,98153 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,01499 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,01499 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,01847 \end{pmatrix}.
\end{aligned} \tag{4.37}$$

Für N Qubits gelten diese Betrachtungen der MQE-Dichtematrixtomographie identisch, jedoch nimmt die Zahl der möglichen Multi-Quantenkorrelationen (n -Q) und damit auch die Zahl deren Linien in den MQE-Spektren mit 2^N zu. Die MQE-Tomographie ist somit eine universelle Methode zur Bestimmung der Elemente einer Dichtematrix ρ_N eines S-Bus-Systems mit N Qubits im Rahmen der Quanteninformationsverarbeitung.

Nachfolgend sind zur Korrelierbarkeit der Qubits in dem S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ experimentell ermittelte MQE-Spektren für $N = 2, 3$ und 4 Qubits in Abb. 4.6, 4.7 und 4.8 gezeigt. Diese wurden unter anderem auch für verschiedene τ_S -Werte aufgenommen, um die Abhängigkeit der Korrelationsanteile von der Evolutionszeit innerhalb der Präparationssequenz auch im Experiment darzustellen. Aus den Linienhöhen konnten jeweils die präparierten Dichtematrizen bestimmt werden, deren Auswertung tabellarisch aufgeführt ist.

4.1.3.1 MQE mit zwei Qubits

Abb. 4.6 zeigt jeweils für zwei unterschiedliche Evolutionszeiten τ_S vier MQE-Spektren, einerseits mit identischer, andererseits mit unterschiedlicher Phasenfrequenz ν_{φ_j} auf den beiden Qubit-Kanälen.

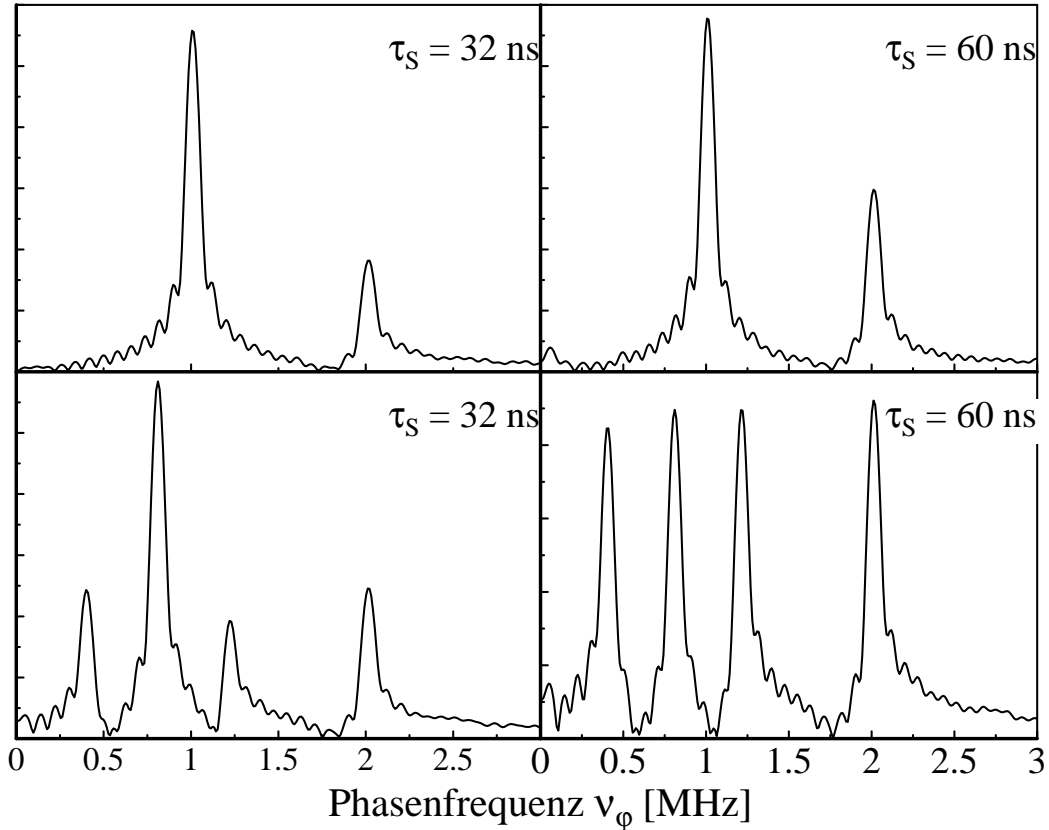


Abb. 4.6: MQE-Spektren Zwei-Qubit-Korrelationen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Oben: gleiche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = \nu_{\varphi_2} = 1$ MHz, unten: unterschiedliche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz und $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz, $\delta t' = 100$ ns, jeweils für verschiedene Evolutionszeiten $\tau_S = 32$ ns bzw. 60 ns.

Messdaten: $\nu_S = 9,395046$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41100$ T; $\tau_E = 484$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_2 = 12,7765$ MHz; $\nu_{11} = 19,5088$ MHz; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

Die MQE-Spektren mit identischer Phasenfrequenz $\nu_\varphi = 1$ MHz auf beiden Qubit-Kanälen beweisen eindeutig die Korrelierbarkeit der beiden Qubit-Spins durch Auftreten einer Linie bei der doppelten Phasenfrequenz $2\nu_\varphi = 2$ MHz. Aus den MQE-Spektren mit unterschiedlichen Phasenfrequenzen lässt sich die präparierte Dichtematrix bestimmen. In diesem Fall betragen die zu erwartenden Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz, $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz, $\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} = 0,4$ MHz und

$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} = 2,0$ MHz. Diese konnten eindeutig experimentell reproduziert werden. Die Linienhöhen p_j^2 für $\tau_S = 32$ (Abb. 4.6 unten links) sind in nachfolgender Tabelle aufgeführt:

Phasenfrequenz	$\tau_S = 32$ ns	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	15,14
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	7,03
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	9,08
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	8,90

Daraus ergibt sich für den für $\tau_S = 32$ ns präparierten Quantenzustand:

$$\begin{aligned}
 \rho_{yy}^{(2)}(32\text{ns}) &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z2} + p_{12} I_{z1} I_{z2} \right) \quad (4.38) \\
 &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} 0,917 I_{z1} + \frac{1}{2} 0,625 I_{z2} + 1,0 I_{z1} I_{z2} \right) \\
 &= \begin{pmatrix} 0,8855 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0730 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0730 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,1145 \end{pmatrix}.
 \end{aligned}$$

Die identische Auswertung erfolgte auch für das MQE-Spektrum mit $\tau_S = 60$ ns. Die entsprechenden Linienhöhen p_j^2 für $\tau_S = 60$ (Abb. 4.6 unten rechts) sind nachfolgender Tabelle zu entnehmen:

Phasenfrequenz	$\tau_S = 60$ ns	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	20,27
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	20,27
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	20,89
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	19,03

Daraus ergibt sich für den für $\tau_S = 60$ ns präparierten Quantenzustand:

$$\rho_{yy}^{(2)}(60\text{ns}) = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z2} + p_{12} I_{z1} I_{z2} \right) \quad (4.39)$$

$$\begin{aligned}
&= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} 0,711 I_{z_1} + \frac{1}{2} 0,711 I_{z_2} + 1,0 I_{z_1} I_{z_2} \right) \\
&= \begin{pmatrix} 0,8555 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,1445 \end{pmatrix}.
\end{aligned}$$

Aufgrund der in der yy-Präparationssequenz unterschiedlichen angewandten Evolutionszeiten τ_S ergeben sich auch unterschiedliche Korrelationsanteile der Qubit-Spins, wie sich auch in den Beträgen der Diagonalelemente der Dichtematrizen zeigt. Dies ermöglicht in weiterführenden Experimenten eine grobe Anpassung der Korrelationsgrade in einem N -Qubit-S-Bus-System im Falle unterschiedlicher Kopplungen a_j zwischen S - und I_j -Spins.

Analog zu den Zwei-Qubit-Korrelationen sind nachfolgend die auftretenden Phasenfrequenzen, Operatorprodukte der Quantenkorrelationen und die zugehörigen Linienhöhen p_j^2 in den MQE-Spektren für 3- und 4-Quantenkorrelationen aufgeführt.

4.1.3.2 MQE mit drei Qubits

Abb. 4.7 zeigt jeweils für zwei unterschiedliche Evolutionszeiten τ_S vier MQE-Spektren, einerseits mit identischer, andererseits mit unterschiedlicher Phasenfrequenz ν_{φ_j} auf drei Qubit-Kanälen.

Die MQE-Spektren mit identischen Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi} = 1$ MHz zeigen wiederum eindeutig die Korrelierbarkeit von bis zu drei Qubit-Spins durch Linien bei der einfachen, doppelten und dreifachen Phasenfrequenz. Dies bedeutet, dass in der präparierten Dichtematrix einfache, zweifache und dreifache Korrelationsterme enthalten sind. Aus den MQE-Spektren mit unterschiedlichen Phasenfrequenzen lässt sich die präparierte Dichtematrix bestimmen. Die einfachen Phasenfrequenzen betragen in diesem Fall $\nu_{\varphi_1} = 0,81$ MHz, $\nu_{\varphi_2} = 1,03$ MHz und $\nu_{\varphi_3} = 1,16$ MHz. Diese sowie die entsprechenden Summen- und Differenzfrequenzen konnten eindeutig experimentell reproduziert werden. Die Linienhöhen p_j^2 für $\tau_S = 32$ (Abb. 4.7 unten links) sind in nachfolgender Tabelle aufgeführt:

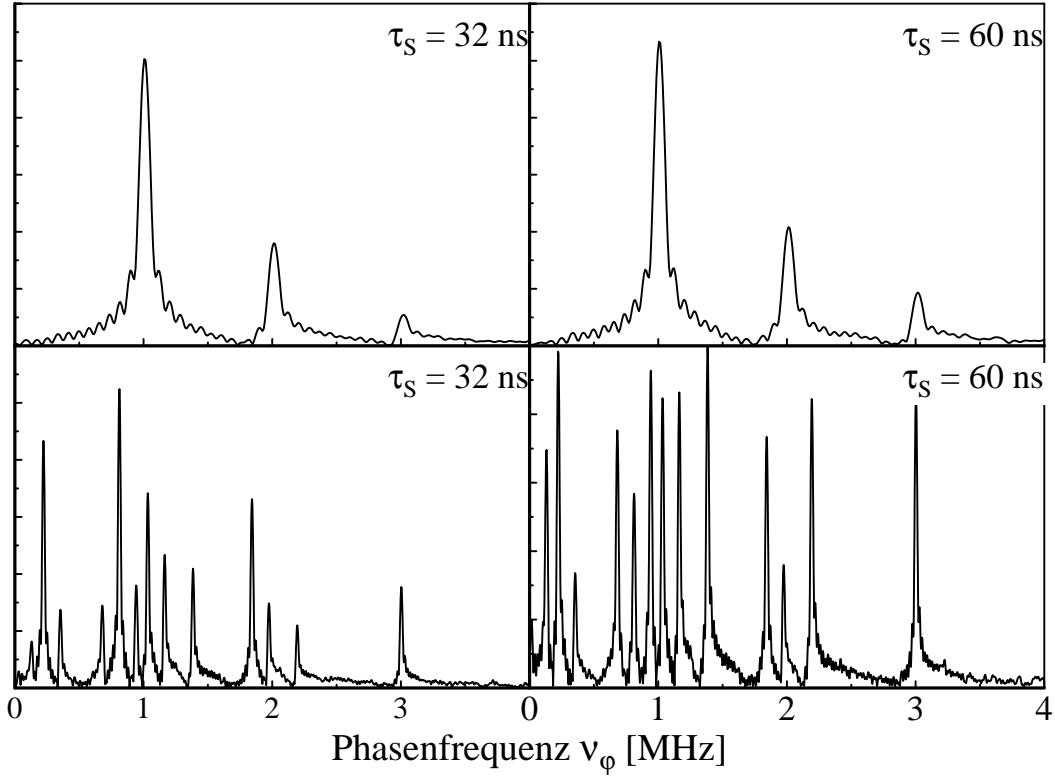


Abb. 4.7: MQE-Spektren Drei-Qubit-Korrelationen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Oben: gleiche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = \nu_{\varphi_2} = \nu_{\varphi_3} = 1$ MHz, unten: unterschiedliche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,81$ MHz, $\nu_{\varphi_2} = 1,03$ MHz und $\nu_{\varphi_3} = 1,16$ MHz, $\delta t' = 100$ ns, jeweils für verschiedene Evolutionszeiten $\tau_S = 32$ ns bzw. 60 ns.

Messdaten: $\nu_S = 9,395046$ GHz; $B_0 = 0,41100$ T; $\tau_E = 484$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_2 = 12,7765$ MHz; $\nu_5 = 13,8212$ MHz; $\nu_{11} = 19,5088$ MHz; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; $T = 8$ K.

Phasenfrequenz	$\tau_S = 32$ ns	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,81 MHz	I_{z1}	1-Q	36,69
$\nu_{\varphi_2} =$	1,03 MHz	I_{z2}	1-Q	23,91
$\nu_{\varphi_3} =$	1,16 MHz	I_{z3}	1-Q	16,36
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	1,84 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	23,19
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,22 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	30,33
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_1} =$	1,97 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	2-Q	10,39
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_1} =$	0,35 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	0-Q	9,60
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} =$	2,19 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	2-Q	7,69
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} =$	0,13 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	0-Q	5,68
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	3,00 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	3-Q	12,40
$-\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,68 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	10,10
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,94 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	12,59
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	1,38 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	14,66

Daraus ergibt sich für den für $\tau_S = 32$ ns präparierten Quantenzustand:

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}^{(3)}(32\text{ns}) &= S_z \left(\frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{4} p_2 I_{z_2} + \frac{1}{4} p_3 I_{z_3} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} p_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} p_{13} I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{2} p_{23} I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} p_{123} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} 0,686 I_{z_1} + \frac{1}{4} 0,447 I_{z_2} + \frac{1}{4} 0,306 I_{z_3} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} 1,0 I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} 0,374 I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{2} 0,250 I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} 0,930 I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \right) \\
&= \begin{pmatrix} 0,624 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,159 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,033 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,092 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -0,123 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,064 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,185 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,032 \end{pmatrix}.
\end{aligned} \tag{4.40}$$

Analog hierzu erfolgt im Anschluss die Auswertung des MQE-Spektrums für $\tau_S = 60$ ns (Abb. 4.7 unten rechts):

Phasenfrequenz	$\tau_S = 60$ ns	Spin-Operator	Korrelation	p_i^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,81 MHz	I_{z_1}	1-Q	11,36
$\nu_{\varphi_2} =$	1,03 MHz	I_{z_2}	1-Q	16,94
$\nu_{\varphi_3} =$	1,16 MHz	I_{z_3}	1-Q	17,27
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	1,84 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	2-Q	14,68
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,22 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	0-Q	19,66
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_1} =$	1,97 MHz	$I_{z_1} I_{z_3}$	2-Q	7,19
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_1} =$	0,35 MHz	$I_{z_1} I_{z_3}$	0-Q	6,73
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} =$	2,19 MHz	$I_{z_2} I_{z_3}$	2-Q	16,89
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} =$	0,13 MHz	$I_{z_2} I_{z_3}$	0-Q	13,92
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	3,00 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	3-Q	17,27
$-\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,68 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	15,07
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,94 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	18,54
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	1,38 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	19,97

Daraus ergibt sich für den für $\tau_S = 60$ ns präparierten Quantenzustand:

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}^{(3)}(60\text{ns}) &= S_z \left(\frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{4} p_2 I_{z_2} + \frac{1}{4} p_3 I_{z_3} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} p_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} p_{13} I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{2} p_{23} I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} p_{123} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} 0,160 I_{z_1} + \frac{1}{4} 0,239 I_{z_2} + \frac{1}{4} 0,244 I_{z_3} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} 0,485 I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} 0,196 I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{2} 0,435 I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} 1,0 I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \right) \\
&= \begin{pmatrix} 0,470 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,001 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,070 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,179 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0,010 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,139 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,212 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,059 \end{pmatrix}.
\end{aligned} \tag{4.41}$$

Auch in diesem Fall ergibt sich erwartungsgemäß eine signifikante Abhängigkeit der Anteile der 1-, 2- und 3-Quantenkorrelationen an dem präparierten Gesamtquantenzustand für unterschiedliche Evolutionszeiten τ_S .

4.1.3.3 MQE mit vier Qubits

Abb. 4.8 zeigt zwei MQE-Spektren, einerseits mit identischer, andererseits mit unterschiedlicher Phasenfrequenz ν_{φ_j} auf vier Qubit-Kanälen. Abweichend von den vorangegangenen Experimenten wurde hier nur eine Evolutionszeit $\tau_S = 48$ ns gewählt, da bei der Vielzahl der Linien im MQE-Spektrum mit unterschiedlichen Phasenfrequenzen bei den gegebenen Hyperfeinwechselwirkungen a_j unter Umständen sonst aufgrund der Abhängigkeit der Linienhöhen von τ_S nicht alle MQE-Linien signifikant sichtbar gewesen wären.

Die MQE-Spektren mit identischen Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi} = 1$ MHz zeigen wiederum eindeutig die Korrelierbarkeit von bis zu vier Qubit-Spins durch Linien bei der einfachen, doppelten, drei- und vierfachen Phasenfrequenz. Dies bedeutet, dass in der präparierten Dichtematrix ein-, zwei-, drei- und vierfache Korrelationsterme enthalten sind. Aus den MQE-Spektren mit unterschiedlichen Phasenfrequenzen

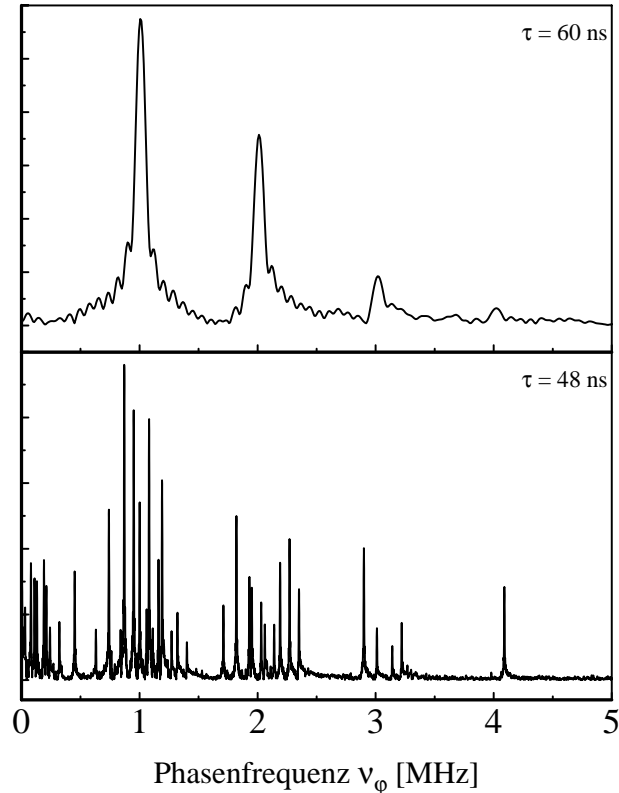


Abb. 4.8: MQE-Spektren Vier-Qubit-Korrelationen in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Oben: gleiche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = \nu_{\varphi_2} = \nu_{\varphi_3} = \nu_{\varphi_4} = 1$ MHz, unten: unterschiedliche Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,87$ MHz, $\nu_{\varphi_2} = 0,95$ MHz, $\nu_{\varphi_3} = 1,08$ MHz und $\nu_{\varphi_4} = 1,19$ MHz, $\delta t' = 100$ ns für verschiedene Evolutionszeiten $\tau_S = 60$ ns bzw. 48 ns.

Messdaten: $\nu_S = 9,395046$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41100$ T; $\tau_E = 484$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 12,4250$ MHz; $\nu_2 = 12,7765$ MHz; $\nu_5 = 13,8212$ MHz; $\nu_{11} = 19,5088$ MHz; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

lässt sich die präparierte Dichtematrix bestimmen. Die einfachen Phasenfrequenzen betragen in diesem Fall $\nu_{\varphi_1} = 0,87$ MHz, $\nu_{\varphi_2} = 0,95$ MHz, $\nu_{\varphi_3} = 1,08$ MHz und $\nu_{\varphi_4} = 1,19$ MHz. Diese sowie die entsprechenden Summen- und Differenzfrequenzen konnten wiederum eindeutig experimentell reproduziert werden. Die Linienhöhen p_j^2 für $\tau_S = 48$ (Abb. 4.8 unten) sind in nachfolgender Tabelle aufgeführt:

Phasenfrequenz	$\tau_S = 48$ ns	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,87 MHz	I_{z1}	1-Q	48,02
$\nu_{\varphi_2} =$	0,95 MHz	I_{z2}	1-Q	41,10
$\nu_{\varphi_3} =$	1,08 MHz	I_{z3}	1-Q	39,77
$\nu_{\varphi_4} =$	1,19 MHz	I_{z4}	1-Q	30,45
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	1,82 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	24,99
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,08 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	17,81
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_3} =$	1,95 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	2-Q	14,07
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_1} =$	0,21 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	0-Q	14,34
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_4} =$	2,06 MHz	$I_{z1}I_{z4}$	2-Q	8,48
$\nu_{\varphi_4} - \nu_{\varphi_1} =$	0,32 MHz	$I_{z1}I_{z4}$	0-Q	8,87
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} =$	2,03 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	2-Q	11,84
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} =$	0,13 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	0-Q	15,06
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_4} =$	2,14 MHz	$I_{z2}I_{z4}$	2-Q	8,45
$\nu_{\varphi_4} - \nu_{\varphi_2} =$	0,24 MHz	$I_{z2}I_{z4}$	0-Q	7,98
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	2,27 MHz	$I_{z3}I_{z4}$	2-Q	21,48
$\nu_{\varphi_4} - \nu_{\varphi_3} =$	0,11 MHz	$I_{z3}I_{z4}$	0-Q	15,50
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} =$	2,90 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	3-Q	20,11
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_3} =$	0,74 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	25,98
$ \nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} =$	1,00 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	27,07
$ \nu_{-\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} =$	1,16 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	18,33
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_4} =$	3,01 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z4}$	3-Q	7,91
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_4} =$	0,63 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z4}$	1-Q	7,63
$ \nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_4} =$	1,11 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z4}$	1-Q	7,89
$ \nu_{-\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_4} =$	1,27 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z4}$	1-Q	7,45
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	3,14 MHz	$I_{z1}I_{z3}I_{z4}$	3-Q	5,19
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	0,76 MHz	$I_{z1}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	4,44
$ \nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	0,98 MHz	$I_{z1}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	4,06
$ \nu_{-\varphi_1} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	1,40 MHz	$I_{z1}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	5,76
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	3,22 MHz	$I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	3-Q	8,73
$ \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	0,84 MHz	$I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	7,66
$ \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	1,06 MHz	$I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	10,78
$ \nu_{-\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	1,32 MHz	$I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	1-Q	10,25
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	4,09 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	4-Q	14,20
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	1,71 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	2-Q	11,36
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	1,93 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	2-Q	15,72
$ \nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	2,19 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	2-Q	17,88
$ \nu_{-\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_4} =$	2,35 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	2-Q	13,85
$ \nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	0,45 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	0-Q	16,56
$ \nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	0,19 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	0-Q	18,30
$ \nu_{-\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_4} =$	0,03 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}I_{z4}$	0-Q	11,06

Daraus ergibt sich für den für $\tau_S = 48$ ns präparierten Quantenzustand:

$$\begin{aligned}
\rho_{yy}^{(4)}(48\text{ns}) &= S_z \left(\frac{1}{16} \hat{1} + \frac{1}{8} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{8} p_2 I_{z_2} + \frac{1}{8} p_3 I_{z_3} + \frac{1}{8} p_4 I_{z_4} \right. \\
&\quad + \frac{1}{4} p_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{4} p_{13} I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{4} p_{14} I_{z_1} I_{z_4} + \frac{1}{4} p_{23} I_{z_2} I_{z_3} \\
&\quad + \frac{1}{4} p_{24} I_{z_2} I_{z_4} + \frac{1}{4} p_{34} I_{z_3} I_{z_4} + \frac{1}{2} p_{123} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \\
&\quad + \frac{1}{2} p_{124} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_4} + \frac{1}{2} p_{134} I_{z_1} I_{z_3} I_{z_4} + \frac{1}{2} p_{234} I_{z_2} I_{z_3} I_{z_4} \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} p_{1234} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} I_{z_4} \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{16} \hat{1} + \frac{1}{8} 0,404 I_{z_1} + \frac{1}{8} 0,346 I_{z_2} + \frac{1}{8} 0,334 I_{z_3} + \frac{1}{8} 0,256 I_{z_4} \right. \\
&\quad + \frac{1}{4} 0,360 I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{4} 0,239 I_{z_1} I_{z_3} + \frac{1}{4} 0,146 I_{z_1} I_{z_4} + \frac{1}{4} 0,226 I_{z_2} I_{z_3} \\
&\quad + \frac{1}{4} 0,138 I_{z_2} I_{z_4} + \frac{1}{4} 0,311 I_{z_3} I_{z_4} + \frac{1}{2} 0,769 I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \\
&\quad + \frac{1}{2} 0,260 I_{z_1} I_{z_2} I_{z_4} + \frac{1}{2} 0,164 I_{z_1} I_{z_3} I_{z_4} + \frac{1}{2} 0,315 I_{z_2} I_{z_3} I_{z_4} \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} 1,0 I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} I_{z_4} \right) .
\end{aligned} \tag{4.42}$$

Hiermit konnte die Präparation und MQE-Detektion korrelierter Quantenzustände einerseits mit nichtselektiver, andererseits mit selektiver RF-Einstrahlung auf den Qubit-ENDOR-Übergängen auch in Abhängigkeit der Evolutionszeit τ_S in der yy- bzw. yx-Präparationssequenz demonstriert werden. Die MQE-Dichtematrix-Tomographie diente dabei zur Bestimmung der Diagonalelemente der präparierten Dichtematrizen. Nichtdiagonalelemente lassen sich ebenfalls durch eine vorangehende Transformation transienter Operatorkomponenten $I_{x,y}$ auf I_z -Komponenten bestimmen.

Im nächsten Kapitel ist die gezielte Präparation von Quantenzuständen – insbesondere pseudoreiner Zustände – anhand der selektiven Anpassung Korrelationsanteile der Multi-Quantenkorrelationen dargestellt.

4.1.4 Dichtematrixtomographie kontrolliert präparierter Multi-Quantenkorrelationen mit N Qubits

Mittels der yy - bzw. yx -Präparationssequenz können Qubit-Spins eines S-Bus-Systems miteinander korreliert werden. Eine derart präparierte Dichtematrix $\rho_{yy,yx}(\tau_S)$ lässt sich mittels des Multi-Quanten-ENDOR-Verfahrens (MQE) tomographieren. Es geht nun in diesem Kapitel um die gezielte, selektive und kontrollierte Erzeugung von Multi-Quantenkorrelationen, zur Darstellung beliebiger Quantenzustände. Hierzu gibt es nach dem S-Bus-Konzept zwei grundlegende Vorgehensweisen:

1. Vorselektion der Korrelationsanteile durch entsprechende Wahl der freien Evolutionszeit τ_S in der yy - oder yx -Präparationssequenz.
2. Qubits selektive Einstrahlung von Korrekturpulsen.

Der Korrelationsgrad der Qubits eines S-Bus-Systems hängt von Termen der Form $\cos(a_j\tau_S/2)$ bzw. $\sin(a_j\tau_S/2)$ sowie von deren Produkten ab. Durch eine passende Wahl der freien Evolutionszeit τ_S lässt sich somit beeinflussen, ob Qubits I_j mit großer oder kleiner Hyperfeinwechselwirkung a_j bei gleichem τ_S -Wert mit dem S -Spin sowie untereinander korreliert werden. Auf diese Weise kann das *Qubyte+1*-S-Bus-System in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ des Ce^{3+} -Spins in der Korrelation weitgehend von den weiter entfernten Spins isoliert werden, da die *Qubyte+1*-Spins ($j = 1 \dots 9$) eine sehr viel größere Hyperfeinwechselwirkung a_j mit dem S -Spin besitzen als die weiter entfernten Fluor-Kernspins I_j ($j \geq 10$). Beispielsweise für τ_S -Werte mit $\tau_S \approx 1/2a_j$, $j = 1 \dots 9$ und $a_j \cdot \tau_S/2 \approx 0$, $j \geq 10$ sind somit für die *Qubyte+1*-Ionen die Faktoren $\cos(a_j \cdot \tau_S/2) \approx \sin(a_j \cdot \tau_S/2) \approx 1/\sqrt{2}$, für die weiter entfernten F^- -Ionen gilt dann bei gleichem τ_S -Wert $\sin(a_j \cdot \tau_S/2) \approx 0$ und $\cos(a_j \cdot \tau_S/2) \approx 1$. Diese bilden in der Gesamtdichtematrix dann nur einen multiplikativen, nahezu konstanten Faktor proportional $\hat{1}$, der keinen Einfluß in der Quanteninformationsverarbeitung zeigt. Dies wurde bereits im letzten Kapitel dargelegt.

Eine exakte Anpassung der verschiedenen Korrelationsanteile zur gezielten Präparation von Quantenzuständen erlaubt die Anwendung von Korrekturpulssequenzen. Die Multi-Quantenkorrelation $\rho_{yy,yx}(\tau_S)$ kann mittels dieser Korrektursequenzen $U^K(\beta_j)$ durch eine selektive Manipulation der Qubits I_j auf den gewünschten Quantenzustand ρ_P transformiert werden. Die Gesamtsequenz zur Präparation, Anpassung und MQE-Detektion mit Remote-Echo-Detektion ist in Abb. 4.9 dargestellt.

Die Korrektursequenz $U^K(\beta_j)$ reduziert zunächst für jedes Qubit, im einfachsten Fall durch einen selektiven Puls $P_{y,j}(\beta_j)$, die Komponente I_{z_j} auf den Wert

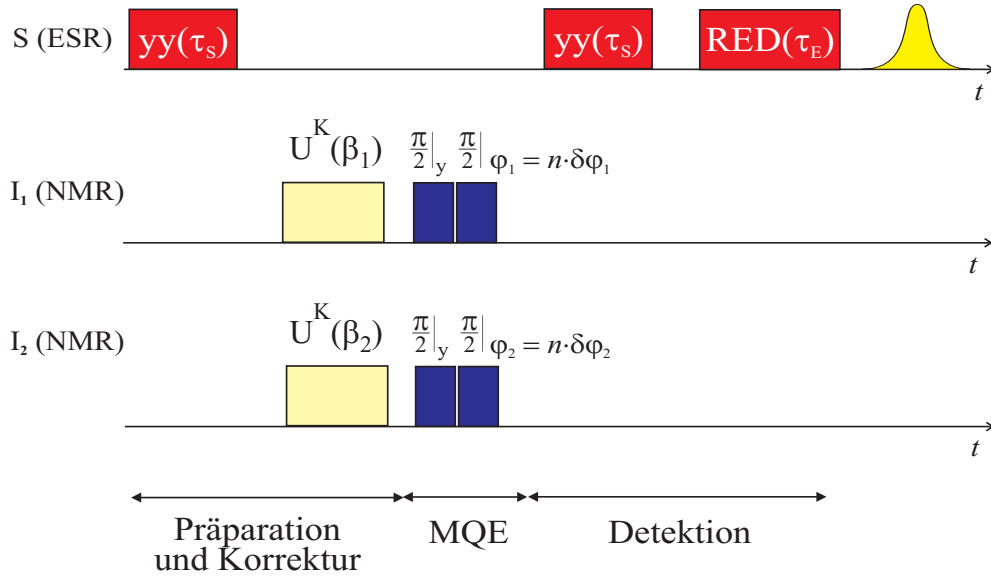


Abb. 4.9: Pulssequenz zur selektiven, kontrollierten Erzeugung von Multi-Quantenkorrelationen: Eine yy -Präparationssequenz generiert in Abhängigkeit von der freien Evolutionszeit τ_S eine Multiquantenkorrelation, die mittels selektiver Korrektursequenzen $U^K(\beta_j)$ jedes Qubit I_j gezielt manipulieren. Der damit generierte Quantenzustand ρ_P wird mittels MQE-Sequenz und Remote-Echo-Detektion tomographiert.

$I_{z_j} \cos \beta_j$. Dies führt zur gewünschten Modifikation der einzelnen Korrelationsanteile:

$$\begin{aligned} \rho_{yy,yx}(\tau_S) &= S_z \left| \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + p_{jk} \dots I_{z_j} I_{z_k} \dots + \dots \right) \quad (4.43) \\ \xrightarrow{U^K(\beta_j)} \rho_P &= U^K(\beta_j) \rho_{yy,yx}(\tau_S) U^K(\beta_j)^{-1} \\ &= S_z \left| \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + p_{jk} \dots I_{z_j} \cos \beta_j I_{z_k} \dots + \dots \right) \\ &= S_z \left| \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + \tilde{p}_{jk} \dots I_{z_j} I_{z_k} \dots + \dots \right) , \\ U^K(\beta_j) &= P_{y,j}(\beta_j) = \exp(-i\beta I_{y_j}) . \end{aligned}$$

Zur Erzeugung transienter Anteile I_{x,y_j} müssen noch entsprechende $\frac{\pi}{2}$ -Transformationen auf I_{z_j} der Form

$$\begin{aligned} I_{z_j} &\xrightarrow{P_{y,j}(\frac{\pi}{2})} I_{x_j} , \\ I_{z_j} &\xrightarrow{P_{x,j}(\frac{\pi}{2})} -I_{y_j} \end{aligned} \quad (4.44)$$

selektiv angewandt werden, so dass resultierend jeder Zustand $\rho_P = S_z | \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + p_{jk} \dots I_{x,y,z_j} \cos \beta_j I_{x,y,z_k} \dots + \dots)$ auf der Bloch-Kugel generierbar ist.

Die Bestimmung der Drehwinkel β_j erfolgt aus Bedingungsgleichungen der Form $p_j \cos \beta_j = \tilde{p}_j$. Zur Präparation des pseudoreinen Zustandes $\rho_{00} = S_z | \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} I_{z_1} + \frac{1}{2} I_{z_2} + I_{z_1} I_{z_2})$ beispielsweise müssen die Korrekturwinkel die Gleichung

$$p_1 \cos \beta_1 = p_2 \cos \beta_2 = p_{12} \cos \beta_1 \cos \beta_2 = 1 \quad (4.45)$$

erfüllen.

Die Tomographie der modifizierten Dichtematrix ρ_P erfolgt wieder mit der MQE-Sequenz. Hierzu wird nachfolgend zwischen den präparierten Dichtematrizen

$$\begin{aligned} \rho_P &= U^K(\beta_j = 0) \rho_{yy,yx} U^K(\beta_j = 0)^{-1} \\ &= S_z | \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + p_{jk} \dots I_{z_j} I_{z_k} \dots + \dots) \quad \text{und} \\ \tilde{\rho}_P &= U^K(\beta_j \neq 0) \rho_{yy,yx} U^K(\beta_j \neq 0)^{-1} \\ &= S_z | \frac{1}{2^N} \hat{1} + \dots + \tilde{p}_{jk} \dots I_{z_j} I_{z_k} \dots + \dots) . \end{aligned} \quad (4.46)$$

unterschieden. ρ_P entspricht der Dichtematrix nach Anwendung der Korrekturpulssequenz für $\beta_j = 0$. Im Idealfall ist diese identisch der Dichtematrix $\rho_{yy,yx}$, jedoch können im Experiment aufgrund imperfekter Pulse auch hier leichte Modifikationen auftreten. $\tilde{\rho}_P$ ist die für $\beta_j \neq 0$ durch die Korrekturpulse modifizierte Dichtematrix. Der Grund für diese Unterscheidung liegt in der nötigen sukzessiven Bestimmung der Operatorkoeffizienten p_j für $\beta_j = 0$ und \tilde{p}_j für $\beta_j \neq 0$ der Dichtematrizen ρ_P und $\tilde{\rho}_P$.

Die Bestimmung der Operatorkoeffizienten p_j , bzw. \tilde{p}_j erklärt sich in Analogie zum Beispiel der MQE-Tomographie im letzten Kapitel für $N = 2$ Qubits wie folgt: ρ_P und $\tilde{\rho}_P$ eines Zwei-Qubit-S-Bus-Systems besitzen die allgemeine die Form

$$\begin{aligned} \rho_P(p_j) &= S_z | \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2}) \quad \text{und} \\ \tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) &= S_z | \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} \tilde{p}_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} \tilde{p}_2 I_{z_2} + \tilde{p}_{12} I_{z_1} I_{z_2}) . \end{aligned} \quad (4.47)$$

Das Signal $A^S(\rho_P)$ der MQE-Tomographie mit Remote-Echo-Detektion wurde ebenfalls bereits im letzten Kapitel berechnet:

$$A^S(\rho_P) = \frac{1}{4} \left(1 + p_1^2 \cos \varphi_1 + p_2^2 \cos \varphi_2 + p_{12}^2 \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right). \quad (4.48)$$

Das zugehörige, fouriertransformierte MQE-Spektrum zeigt somit Linienhöhen p_j^2 bei den entsprechenden Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_j} = \varphi_j / (2\pi t')$.

Führt man die MQE-Tomographie der modifizierten Dichtematrix $\tilde{\rho}_P$ mit der identischen Remote-Echo-Detektion wie bei ρ_P bei gleichen Evolutionszeiten durch, so erhält man für das Signal

$$A^S(\tilde{\rho}_P) = \frac{1}{4} \left(1 + p_1 \tilde{p}_1 \cos \varphi_1 + p_2 \tilde{p}_2 \cos \varphi_2 + p_{12} \tilde{p}_{12} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right). \quad (4.49)$$

Die Linienhöhen des MQE-Spektrums der Dichtematrix $\tilde{\rho}_P$ sind somit durch $p_j \tilde{p}_j$ in $A^S(\tilde{\rho}_P)$ gegeben. Die modifizierten Operatorkoeffizienten \tilde{p}_j sind daher nur bei Kenntnis der Koeffizienten p_j aus $A^S(\rho_P)$ berechenbar. Zur Tomographie von $\tilde{\rho}_P$ für $\beta_j \neq 0$ muss also auch ρ_P für $\beta_j = 0$ bestimmt werden.

Im Experiment erfolgt die Anpassung der Korrelationsanteile $I_{z_j} \rightarrow I_{z_j} \cos \beta_j$ durch eine selektive, multifrequentielle RF-Einstrahlung auf den entsprechenden Qubit-Übergängen gleichzeitig. Die Implementierung dieser Anpassung der Korrelationsanteile erfolgt mit den in Abb. 4.10 gezeigten Pulssequenzen.

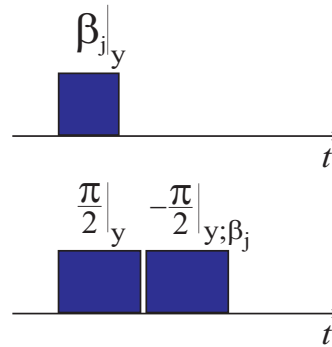


Abb. 4.10: Oben: Einfacher Korrekturpuls mit Drehwinkel β_j auf dem Übergang des Qubit I_j für die Anpassung $I_{z_j} \mapsto I_{z_j} \cos \beta_j$. Unten: Composite-Korrekturpuls mit gleicher Wirkung aus zwei aufeinanderfolgenden $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen, wobei der $-\frac{\pi}{2}$ -Puls gegenüber dem ersten um den Winkel β_j phasenverschoben ist. Die Einstrahlung dieser Sequenzen erfolgt auf den involvierten Qubit-Übergängen gleichzeitig und wird experimentell mit einem programmierbaren Multifrequenzgenerator umgesetzt.

Die Einstrahlung eines einfachen Pulses $P_{y,j}(\beta_j) = \exp(-i\beta_j I_{y_j})$ mit Drehwinkel β_j bewirkt zwar die gewünschte Anpassung der Komponente I_{z_j} , jedoch hätte

dies experimentell für unterschiedliche Korrekturwinkel β_j eines jeden Qubits entweder unterschiedliche Pulslängen bei gleicher Amplitude oder unterschiedliche Pulsleistungen bei gleicher Pulsdauer auf den I_j -Kanälen zur Folge. Dies kann bei der experimentellen Erzeugung multifrequentieller Pulse zu unerwünschten Artefakten, z.B. in Form von Phasenfehlern, in dem generierten Quantenzustand führen – um dies zu vermeiden wurde in den weiterführenden Experimenten die $P_{y,j}(\frac{\pi}{2})P_{y,j,\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$ -Pulsfolge angewandt, bestehend aus zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen, wobei der $-\frac{\pi}{2}$ -Puls relativ zum ersten um den Winkel β_j phasenverschoben ist. Alle Qubits I_j erfahren in diesem Fall die gleiche RF-Einstrahlung, wobei die Korrektur der Korrelationsanteile über die relative Phasenlage erfolgt. Die zugehörige unitäre Transformation $U^K(\beta_j)$ lautet dann:

$$\begin{aligned} U^K(\beta_j) &= P_{y,j,\beta_j}(-\frac{\pi}{2})P_{y,j}(\frac{\pi}{2}) & (4.50) \\ &= \exp(-i\beta I_{z_j})\exp(+i\frac{\pi}{2}I_{y_j})\exp(+i\beta I_{z_j})\exp(-i\frac{\pi}{2}I_{y_j}) \\ &= \exp(-i\beta I_{z_j})\exp(-i\beta I_{x_j}). \end{aligned}$$

Die Anwendung dieser Composite-Korrekturpulssequenz $U^K(\beta_j)$ erzeugt ebenfalls die Anpassung der I_{z_j} -Operatoren auf den gewünschten projektiven Anteil $I_{z_j} \cos \beta_j$. Der Operator $\exp(-i\beta I_{z_j})$ hat als redundanter Phasenfaktor keine Auswirkung auf die I_{z_j} -Operatoren im Sinne der Quanteninformationsverarbeitung.

Die vorgestellten Korrekturverfahren erlauben somit eine selektive Anpassung der Operatoranteile der Dichtematrix in den Multi-Quantenkorrelationen. Im Umkehrschluss ist somit jeder beliebige Quantenzustand $\tilde{\rho}_P$ generierbar. Problematisch hierbei sind Artefakte im Experiment durch apparativ bedingte B_2 -Feldinhomogenitäten. Diese lassen sich durch eine Erweiterung der Korrektursequenz auf Composite Pulse reduzieren. Details zu deren experimenteller Anwendung finden sich im nachfolgenden Kapitel zur Präparation pseudoreiner Zustände.

4.2 Pseudoreine Zustände mit zwei Qubits

Theoretische Betrachtungen zur Durchführung von Quantenalgorithmen beziehen sich stets auf deren Anwendung auf reine Quantenzustände. Experimentell sind diese nur im Falle der Quanteninformationsverarbeitung an einzelnen Quantensystemen oder bei Überschreitung des Quantenlimes gegeben. Ein Ensemble jedoch weist stets eine statistische Verteilung von Quantenzuständen auf, d.h. in einem Ensemble-Spin-Quantencomputer liegen im thermischen Gleichgewicht gemischte Quantenzustände vor. Wie schon im Kapitel über Ensemble-Spin-Quantencomputing dargelegt ist damit die unmittelbare Durchführung von Quantenalgorithmen nicht möglich, da aufgrund der destruktiven Interferenz aller Zustände kein eindeutiges Rechenergebnis vorliegen würde.

Pseudoreine Zustände erlauben es hingegen, einen Quantencomputer auch mit Hilfe von Spin-Ensembles zu implementieren, da sich die pseudoreinen Zustände unter unitären Transformationen exakt wie reine Quantenzustände verhalten, weil ein pseudoreiner Zustand die gleiche Operatorstruktur der Dichtematrix aufweist, wie ein reiner Zustand. Man kann das Ensemble-Quantencomputing somit als eine redundante Quanteninformationsverarbeitung betrachten, bei der ein Algorithmus an jedem Einzelsystem des Ensembles parallel durchgeführt wird.

Die Erzeugung pseudoreiner Zustände wurde hier experimentell zunächst im Zwei-Qubit-S-Bus-System mit einem Elektronen- und zwei Kernspins umgesetzt. Hierzu wurden die entsprechenden, auch auf N Qubits skalierbaren Pulssequenzen entwickelt und getestet. Die nachfolgenden Ausführungen basieren auf den in den vorangegangenen Abschnitten dargestellten Pulssequenzen der Präparations- und Detektionsverfahren.

Die Dichtematrizen und die zugehörige Operator-Darstellungen der (pseudo)reinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{ij} sind hier nochmals aufgeführt:

$$\begin{aligned}
 \rho_{00} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}I_{z1} + \frac{1}{2}I_{z2} + I_{z1}I_{z2} , \\
 \rho_{01} &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2}I_{z1} - \frac{1}{2}I_{z2} - I_{z1}I_{z2} ,
 \end{aligned}
 \tag{4.51}$$

$$\rho_{10} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2}I_{z1} + \frac{1}{2}I_{z2} - I_{z1}I_{z2} ,$$

$$\rho_{11} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2}I_{z1} - \frac{1}{2}I_{z2} + I_{z1}I_{z2} .$$

Die hier verfolgte Zielsetzung besteht darin, zunächst pseudoreine Zustände zu präparieren und zu detektieren, um im nächsten Schritt Quantenalgorithmen durchzuführen.

Die Präparation der Dichtematrix eines pseudoreinen Zustandes erfolgt ausgehend vom Boltzmann-Gleichgewicht $\rho_B = S_z$ dadurch, mittels yy - oder yx -Präparationssequenz Multi-Qubit-Korrelationen zu erzeugen und diese durch Anwendung von Korrekturpulssequenzen auf die pseudoreinen Zustände ρ_{ij} zu transformieren. Die Detektion dieser erfolgt mittels der MQE-Dichtematrix-Tomographie und der Remote-Echo-Detektion. Dies wurde in den vorangegangenen Kapiteln bereits detailliert dargelegt. Die MQE-Messsignale A^S der Dichtematrizen $\rho_P(p_j, \beta_j = 0)$ und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, \beta_j \neq 0)$ sind nachfolgend nochmals aufgeführt:

$$\begin{aligned} A^S(\rho_P) &= \frac{1}{4} \left(1 + p_1^2 \cos \varphi_1 + p_2^2 \cos \varphi_2 + p_{12}^2 \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right) , & (4.52) \\ A^S(\tilde{\rho}_P) &= \frac{1}{4} \left(1 + p_1 \tilde{p}_1 \cos \varphi_1 + p_2 \tilde{p}_2 \cos \varphi_2 + p_{12} \tilde{p}_{12} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \right) , \text{ mit} \\ \rho_P &= S_z \left| \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z2} + p_{12} I_{z1} I_{z2} \right\rangle , \\ \tilde{\rho}_P &= S_z \left| \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} \tilde{p}_1 I_{z1} + \frac{1}{2} \tilde{p}_2 I_{z2} + \tilde{p}_{12} I_{z1} I_{z2} \right\rangle . \end{aligned}$$

Die Linienhöhen in den MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j, \beta_j = 0)$, bzw. $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, \beta_j \neq 0)$ sind somit durch p_j^2 , bzw. $p_j \tilde{p}_j$ gegeben.

Der pseudoreine Zustand ρ_{00} beispielsweise wurde dann erfolgreich präpariert, wenn die MQE-Dichtematrix-Tomographie für die Koeffizienten

$$\tilde{p}_1 = \tilde{p}_2 = \tilde{p}_{12} = 1 \quad (4.53)$$

liefert, resultierend aus der Bedingungsgleichung

$$p_1 \cos \beta_1 = p_2 \cos \beta_2 = p_{12} \cos \beta_1 \cos \beta_2 = 1 . \quad (4.54)$$

Ähnliche Bedingungsgleichungen lassen sich für die restlichen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} , entsprechend den eingangs angegebenen theoretischen Dichtematrizen, bzw. für andere Quantenzustände $\tilde{\rho}_P$ aufstellen, die ebenfalls entsprechende Korrekturwinkel β_j liefern.

Die Korrelation mit dem Elektronenspin S bildet dabei nur einen multiplikativen Faktor ohne Einfluss auf die Durchführung von Quantenalgorithmien. Daher muss nur der Anteil der Kernspin-Operatoren durch Anpassung der Vorfaktoren p_j mittels einer Korrekturpulssequenz mit den individuellen Drehwinkeln β_j für jedes einzelne Qubit I_j in einen pseudoreinen Zustand überführt werden.

Zusammenfassend werden zur Präparation und Detektion pseudoreiner Zustände also zunächst für $\beta_j = 0^\circ$ ($\rightarrow \beta_0$ -Messungen) die Koeffizienten p_j aus den MQE-Spektren bestimmt und über die gegebenen Bedingungsgleichungen die geeigneten Korrekturwinkel β_j berechnet. Hierbei werden die einzelnen Linienhöhen stets aus den zugehörigen Power-Spektren bestimmt, um Fehler aufgrund eventueller Phasenverschiebungen, verursacht durch imperfekte Pulse, zu vermeiden. Die Linienhöhen $p_j \tilde{p}_j$ erhält man aus den Messungen mit den Korrekturwinkeln $\beta_j \neq 0$ und damit letztlich die modifizierte Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$, die somit dem generierten Quantenzustand entspricht und mit den theoretischen Vorgaben verglichen werden kann. Für gleiche Evolutionszeiten τ_S in yy-Präparation und yy-Detektion der Remote-Echo-Detektion besitzen dann die 0-Q- und die 2-Q-Linien zu den beiden 1-Q-Linien das Verhältnis 1:2:2:1 in den jeweiligen MQE-Spektren der pseudoreinen Zustände ρ_{00} , ρ_{01} , ρ_{10} und ρ_{11} . Deren MQE-Signaturen sind in Abb. 4.11 schematisch dargestellt.

Nachfolgend erfolgt eine ausführliche Darstellung der sukzessiven, experimentellen Umsetzung der Präparation und Detektion der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Hierbei wurden zur Verbesserung der gemessenen Resultate Erweiterungen hinsichtlich der Korrekturpulssequenzen und zur Linieninversion in den MQE-Spektren über Composite Pulse getroffen. Die Erweiterungen der Pulssequenzen gliedert sich wie folgt:

1. Anwendung einfacher Korrekturpulse $P_{y_j}(\beta_j)$ mit individuellem Drehwinkel $0^\circ \leq \beta_j \leq 180^\circ$ auf den Übergängen der Qubits I_j .
2. Anwendung von Composite-Korrekturpulsen der Form $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$ mit relativer Phase der beiden Pulse von $0^\circ \leq \beta_j \leq 180^\circ$.
3. Verwendung von Korrektur- und Inversionssequenz: Zunächst Präparation von ρ_{00} mit $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\beta_j}(\frac{\pi}{2})$ -Korrektursequenz $U^K(\beta_j)$ für $0^\circ \leq \beta_j \leq 90^\circ$, anschließende Transformation auf ρ_{00} , ρ_{01} , ρ_{10} oder ρ_{11} mit Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j} = P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\pm \frac{\pi}{2})$.

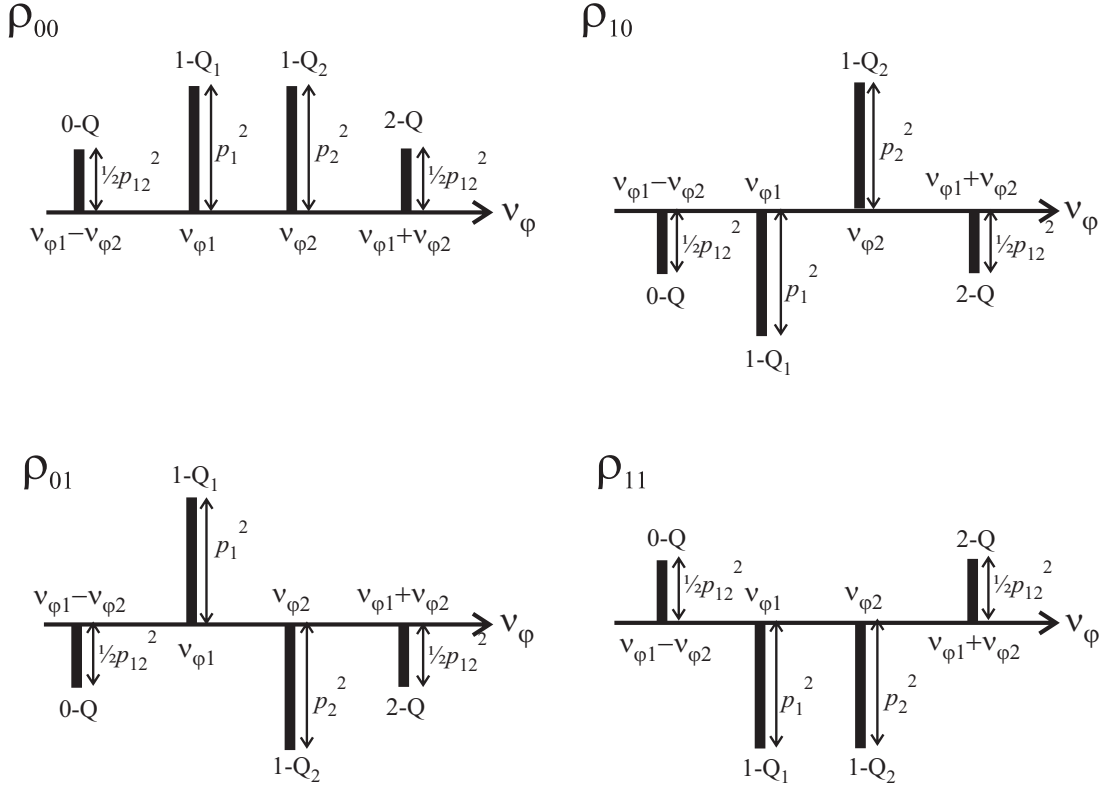


Abb. 4.11: Signaturen der theoretisch erwarteten MQE-Spektren von ρ_P : Dargestellt sind die jeweiligen Linienhöhen bei den Phasenfrequenzen ν_{φ_1} , ν_{φ_2} und $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ für identische yy-Präparations- und -Detektionssequenzen der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} . Die Linienhöhen p_j^2 spiegeln die Koeffizienten der Operator-darstellung der pseudoreinen Dichtematrizen $\rho_P = \rho_{ij}$ wider und besitzen gemäß der Bedingung $|p_1| = |p_2| = |p_{12}|$ das Höhenverhältnis 1:2:2:1.

4. Erweiterung der Inversionssequenz auf Composite-Pulse $U_{(\pm)}^{\text{inv}j} = P_{x_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\pm\frac{\pi}{2}) P_{x_j}(\pm\frac{\pi}{2})$ zur Kompensation von B_2 -Feldinhomogenitäten.

Zu den MQE-Spektren der nachfolgenden Messungen von ρ_P , bzw. $\tilde{\rho}_P$ sind jeweils diese beiden Dichtematrizen, die Korrekturwinkel β_j und die Linienhöhen p_j^2 , bzw. $p_j \tilde{p}_j$ angegeben.

4.2.1 Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} mit einfachen Pulsen in der Korrektursequenz

Zunächst erfolgte die Präparation des pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustandes ρ_{00} mit einfachen Korrekturpulsen $P_{y_j}(\beta_j)$ (Abb. 4.12).

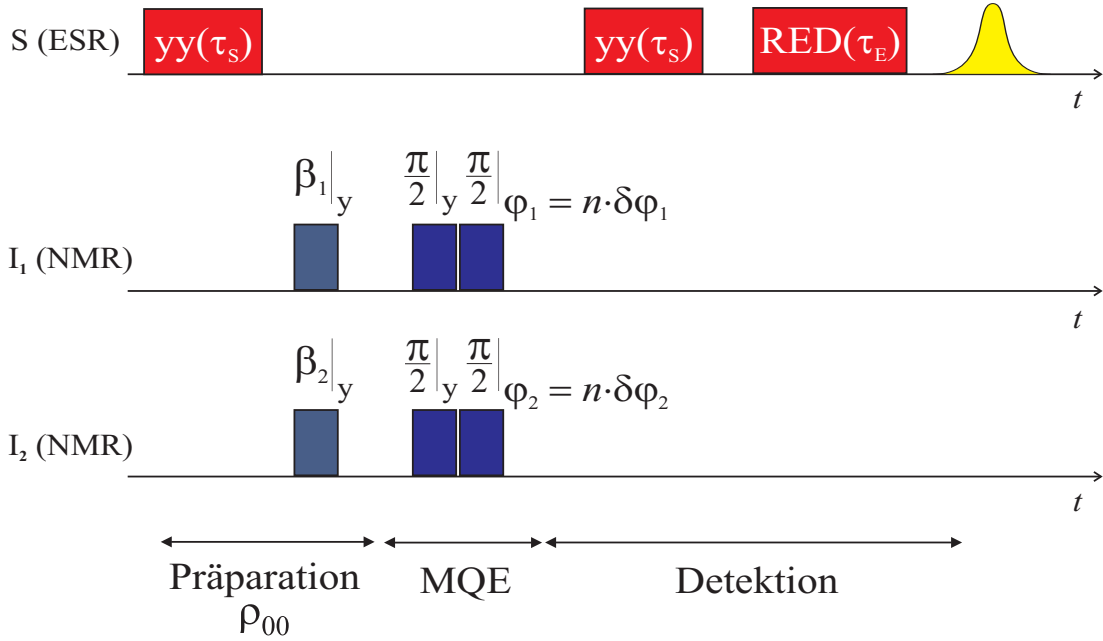


Abb. 4.12: Pulssequenz zur Präparation und Detektion der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} . Der Präparationsteil besteht aus einer yy -Präparationssequenz mit einer freien Evolutionszeit τ_S und einer Korrekturpulssequenz mit einfachen, qubitselektiven Pulsen $P_{y_j}(\beta_j)$ auf beiden Qubit-ENDOR-Übergängen. Die MQE- und Remote-Echo-Detektion dienen zur Tomographie der präparierten Dichtematrix ρ_{00} mittelbar über das Elektronenspinecho.

Die zugehörigen MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$ und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ zeigt Abb. 4.13.

Aus dem MQE-Spektrum der Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ ergeben sich für $\tau_S = 52$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linenhöhen p_j^2 bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} .

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j)$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	18,50
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	33,56
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	38,81
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	40,09

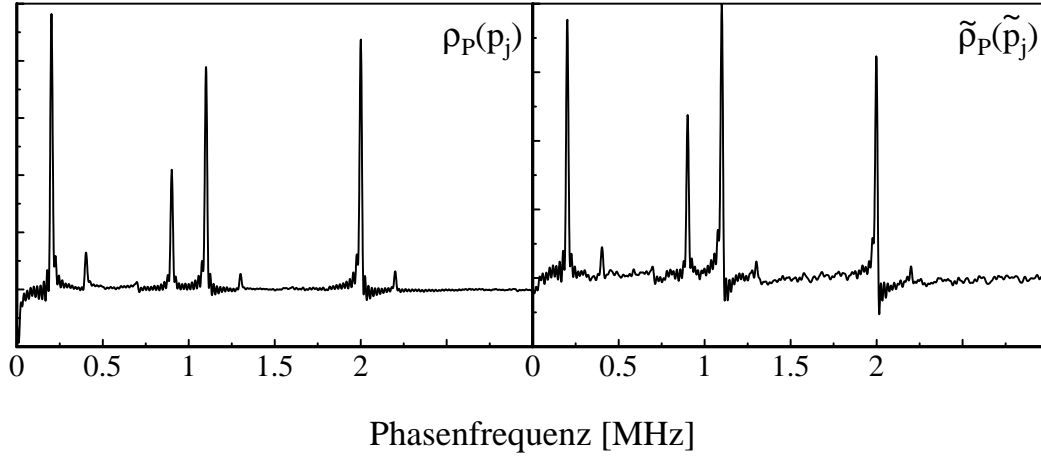


Abb. 4.13: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$ (links) und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ (rechts), tetragonales y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.
 Messdaten: $\nu_S = 9,371366$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,4431$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 52$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,464$ MHz; $\nu_2 = 14,867$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,9$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,1$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; Korrekturwinkel: $\beta_1 = 52,3^\circ$ und $\beta_2 = 59,5^\circ$.

Die normierte Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ berechnet sich daraus zu:

$$\begin{aligned} \rho_P &= \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,48423 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,65220 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \quad (4.55) \\ &= \begin{pmatrix} 0,78411 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,04199 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,04199 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,21589 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Hieraus ergeben sich die Korrekturwinkel zur Anpassung der Amplituden zu $\beta_1 = 61,7^\circ$ und $\beta_2 = 48,5^\circ$. Aus dem zugehörigen MQE-Spektrum der Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ wurden wiederum die Linienhöhen $p_j \tilde{p}_j$ bestimmt:

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j \tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	6,30
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	10,59
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	2-Q	8,93
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	0-Q	9,26

Die somit präparierte, normierte Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ lautet:

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,71526 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,89267 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.56) \\ &= \begin{pmatrix} 0,90199 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,04435 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,04435 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,09801 \end{pmatrix} \approx \rho_{00}. \end{aligned}$$

Dieses experimentelle Ergebnis kommt bereits sehr nahe an die theoretischen Werte der Dichtematrix ρ_{00} heran, zeigt jedoch noch Abweichungen von den theoretischen Vorgaben.

Die hier angewandte Korrekturpulssequenz einfacher β_j -Pulse führt wie schon eingangs erwähnt für verschiedene β_j für jedes Qubit I_j entweder zu unterschiedlichen Korrekturpuls dauern oder -amplituden. Es ist jedoch bei der apparativen Generierung der Pulssequenzen, von Vorteil, Pulse gleicher Länge mit ähnlicher Amplitude zu verwenden, damit die Spektrometerkomponenten in dem optimalen Spezifikationsbereich betrieben werden. Nachfolgend werden daher die Korrekturpulse mittelbar über die relative Phasenlage zweier $\frac{\pi}{2}$ -Pulse $P_y(\frac{\pi}{2})P_{y;\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$ implementiert, um eine identische RF-Einstrahlung auf allen Qubit-Kanälen zu erreichen.

4.2.2 Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} mittels Composite-Korrekturpulsen der Form $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$

Die Präparation des pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustandes ρ_{00} erfolgt nun mittels Composite-Korrekturpulse der Form $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$ (Abb. 4.14). Die Zielsetzung dieser Messung bestand in der Verifikation der Transformation der Composite-Korrekturpulssequenz.

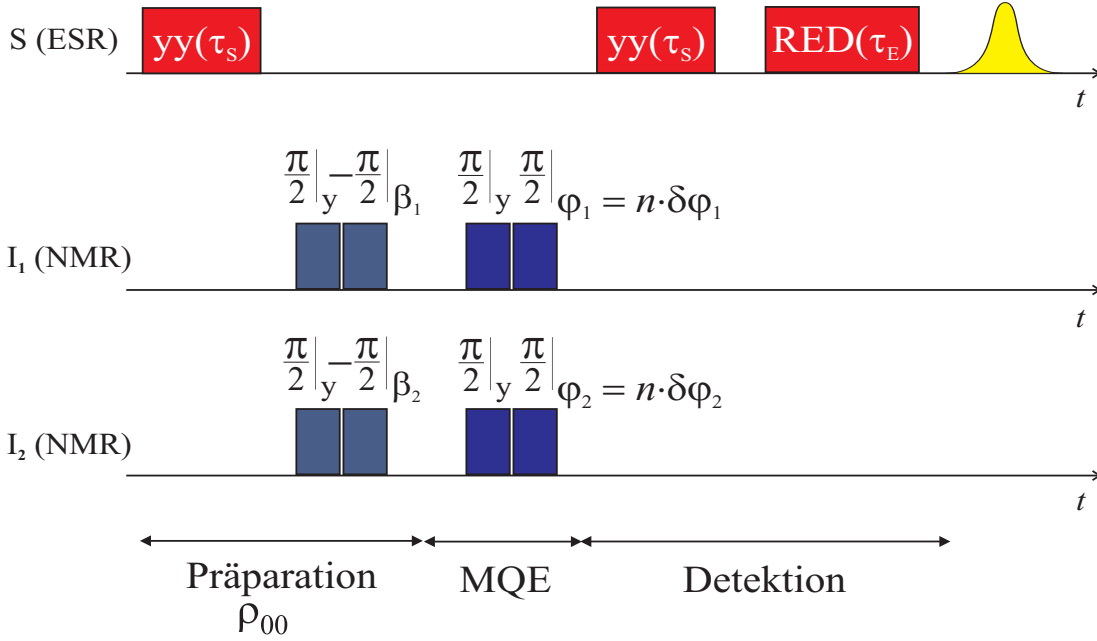


Abb. 4.14: Pulssequenz zur Präparation und Detektion der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} mit Composite-Korrektursequenz. Der Präparationsteil besteht aus einer yy-Präparationssequenz mit einer freien Evolutionszeit τ_S und einer Composite-Korrektursequenz aus zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen $P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j;\beta_j}(-\frac{\pi}{2})$, deren relative Phasenlage den Korrekturwinkeln β_j entspricht. Damit ist eine identische RF-Einstrahlung auf allen Qubit-Übergängen möglich.

Die zugehörigen MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$ und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ zeigt Abb. 4.15. Aus dem MQE-Spektrum der Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ ergeben sich für $\tau_S = 48$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linenhöhen p_j^2 bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} .

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j)$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	10,76
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	8,73
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	6,86
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	6,88

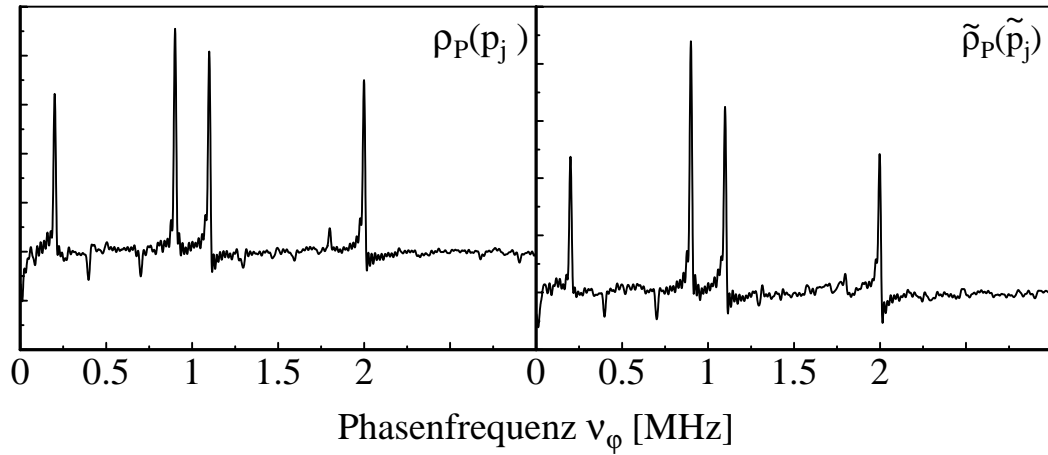


Abb. 4.15: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$ (links) und $\tilde{\rho}_P(p_j\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ (rechts) mit $\frac{\pi}{2}|y-\frac{\pi}{2}|_{y,\beta_j}$ -Korrekturpulssequenz, tetragonales y-Zentrum in CaF₂:Ce.

Messdaten: $\nu_S = 9,3688716$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,4443$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 48$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,570$ MHz; $\nu_2 = 14,906$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,9$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,1$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; $\beta_1 = 37,1^\circ$ und $\beta_2 = 27,2^\circ$.

Die normierte Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ berechnet sich daraus zu:

$$\begin{aligned} \rho_P &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,8849 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,7971 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.57) \\ &= \begin{pmatrix} 0,9205 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,02195 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,02195 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,0795 \end{pmatrix}. \end{aligned}$$

Hieraus ergeben sich die Korrekturwinkel zur Anpassung der Amplituden zu $\beta_1 = 27,7^\circ$ und $\beta_2 = 37,1^\circ$. Aus dem zugehörigen MQE-Spektrum der Präparation der Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ wurden wiederum die Linienhöhen $p_j\tilde{p}_j$ bestimmt:

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	10,43
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	7,09
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	2-Q	5,21
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	0-Q	5,31

Die somit präparierte, normierte Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ besitzt die Form:

$$\begin{aligned} \tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,7547 \cdot I_{z_2} + 0,8925 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.58) \\ &= \begin{pmatrix} 0,9118 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0882 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0345 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,0882 \end{pmatrix} \approx \rho_{00}. \end{aligned}$$

Diese zeigt deutlich die zu erwartende Signatur des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} . Im folgenden wurde bei allen Anpassungen der Korrelationsanteile die Composite-Korrekturpulssequenz verwendet.

4.2.3 Präparation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} mit Korrektur- und Inversionssequenz $U^K(\beta_j)$ und $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j}$

Die Präparation der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{ij} erfolgt hier sukzessive. An die Korrekturpulssequenz $U^K(\beta_j)$ wurde eine qubit-selektive Inversionspulssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j}$ in die bestehende Pulssequenz eingefügt (Abb. 4.16). Es wird damit zuerst der Zustand ρ_{00} präpariert und dieser direkt im Anschluss durch die Inversionssequenz auf die übrigen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} transformiert.

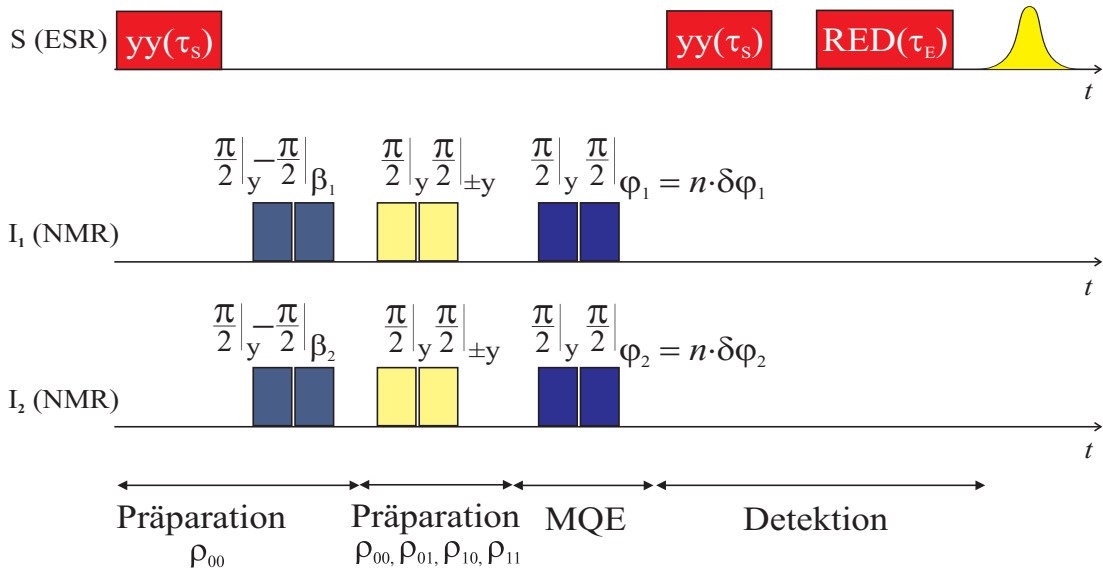


Abb. 4.16: Pulssequenz zur sukzessiven Präparation und Detektion der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} : Im Anschluss an die Composite-Korrekturpulse wurde zur Transformation des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} auf die restlichen pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{01} , ρ_{10} und ρ_{11} eine Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j} = P_{\pm y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\frac{\pi}{2})$ mit einer relativen Phasenlage von 0° oder 180° der beiden $\frac{\pi}{2}$ -Pulse eingefügt.

Der Inversionsteil besteht wie die Korrekturpulssequenz aus zwei $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j} = P_{\pm y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\frac{\pi}{2})$ – wiederum selektiv für jedes Qubit I_j – mit einer relativen Phasenlage von 0° oder 180° . Es ist daher möglich bei identischer RF-Einstrahlung mit individueller Phasenlage auf allen Qubitkanälen diese Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j}$ als Null- oder π -Pulse auszulegen:

$$\begin{aligned}
 U_{(\pm)}^{\text{inv}_j} &= P_{\pm y}^{I_j}(\frac{\pi}{2}) P_y^{I_j}(\frac{\pi}{2}) = P_y^{I_j}(\pm \frac{\pi}{2}) P_y^{I_j}(\frac{\pi}{2}) \\
 &= \exp(\mp i \frac{\pi}{2} I_{y_j}) \exp(-i \frac{\pi}{2} I_{y_j}) .
 \end{aligned} \tag{4.59}$$

Je nach Wahl der relativen Pulsphase erhält man für die beiden Inversionstransformationen $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$:

$$\begin{aligned} U_{(+)}^{\text{inv}j} &= \exp(-i\pi I_y), \\ U_{(-)}^{\text{inv}j} &= \hat{1}. \end{aligned} \quad (4.60)$$

Die nachfolgende Tabelle zeigt die Kombinationen der Inversionssequenzen $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$ in Abhängigkeit deren Auslegung als 0- oder π -Puls auf den beiden Qubit-Kanälen von I_1 und I_2 zur Präparation der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{ij} :

	$U_{(\pm)}^{\text{inv}1} \Leftrightarrow 0\text{-Puls}$	$U_{(\pm)}^{\text{inv}2} \Leftrightarrow \pi\text{-Puls}$
$U_{(\pm)}^{\text{inv}1} \Leftrightarrow 0\text{-Puls}$	$\rho_{00} \mapsto \rho_{00}$	$\rho_{00} \mapsto \rho_{10}$
$U_{(\pm)}^{\text{inv}2} \Leftrightarrow \pi\text{-Puls}$	$\rho_{00} \mapsto \rho_{01}$	$\rho_{00} \mapsto \rho_{11}$

Somit wird zunächst in der Pulssequenz aus Abb. 4.16 der Zustand ρ_{00} generiert und dieser im Anschluss durch die Inversionspulse auf die Zustände ρ_{01} , ρ_{10} und ρ_{11} transformiert.

Das zugehörige MQE-Spektrum der Dichtematrix $\rho_{\text{P}}(p_j)$ für $\beta_j = 0$ zeigt Abb. 4.17. Hieraus ergeben sich für $\tau_S = 48$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linihöhen p_j^2 der Dichtematrix $\rho_{\text{P}}(p_j)$ bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} .

Phasenfrequenz	$\rho_{\text{P}}(p_j)$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	6,92
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	7,31
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	6,45
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	5,95

Daraus ergibt sich die normierte Dichtematrix $\rho_{\text{P}}(p_j)$ zu:

$$\rho_{\text{P}} = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,74704 \cdot I_{z1} + \frac{1}{2} \cdot 0,76780 \cdot I_{z2} + 1,0 \cdot I_{z1}I_{z2} \quad (4.61)$$

$$= \begin{pmatrix} 0,8787 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,0052 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,0052 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,1213 \end{pmatrix}.$$

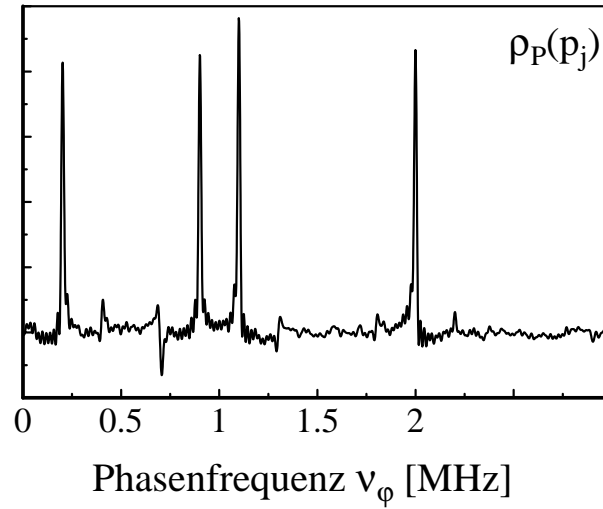


Abb. 4.17: MQE-Spektrum der Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$, tetragonales y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Korrektur- und Inversionssequenz sind jeweils als resultierender Nullpuls ausgelegt.

Messdaten: $\nu_S = 9,3681412$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,44285$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 48$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,483$ MHz; $\nu_2 = 14,833$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,9$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,1$ MHz; $\delta t = 100$ ns; $\beta_1 = 0^\circ = \beta_2 = 0^\circ$.

Die Korrekturwinkel zur Anpassung der Korrelationsanteile an $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) = \rho_{00}$ berechnen sich zu $\beta_1 = 41,7^\circ$ und $\beta_2 = 39,8^\circ$. Abb. 4.18 zeigt die in diesem Zusammenhang aufgenommenen MQE-Spektren.

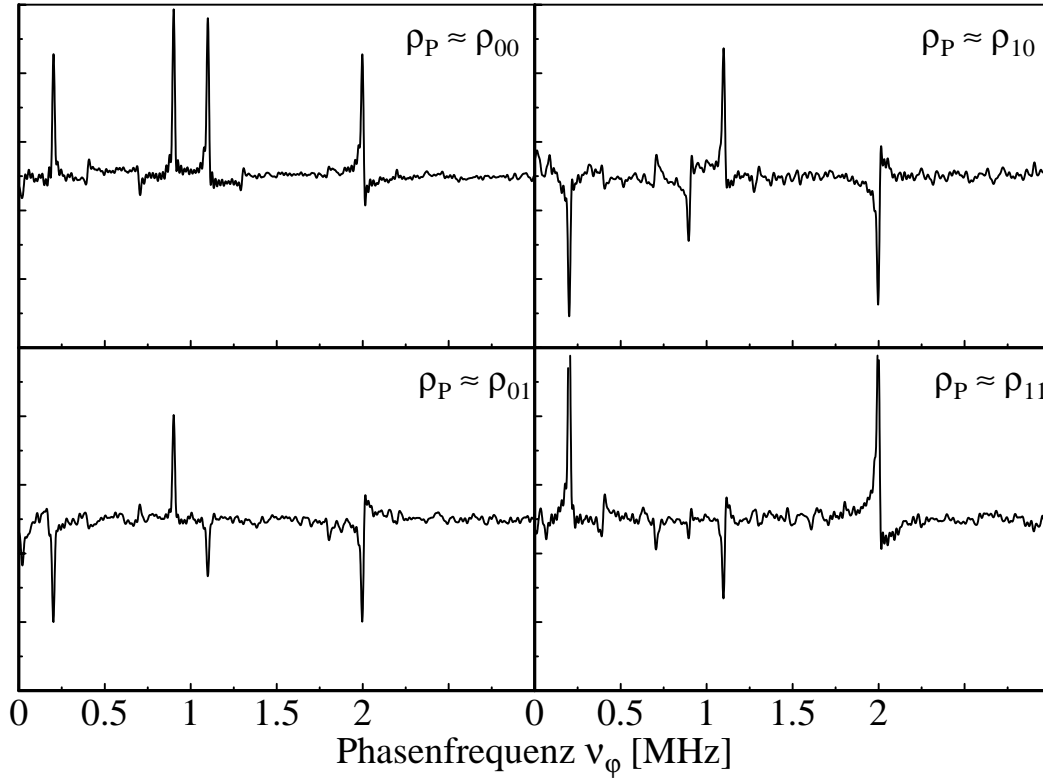


Abb. 4.18: MQE-Spektren der modifizierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ bei der sukzessiven Präparation der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{ij} über Korrektur- und Inversionssequenz, tetragonales y -Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Oben links: ρ_{00} -Präparation, unten links: ρ_{01} -Präparation, oben rechts: ρ_{10} -Präparation, unten rechts: ρ_{11} -Präparation. Verwendung der $\frac{\pi}{2}|y-\frac{\pi}{2}\rangle_{y,\beta_j}$ -Korrekturpulssequenz mit $\beta_1 = 37, 1^\circ$ und $\beta_2 = 27, 2^\circ$; ρ_{ij} -Präparation mit anschließender Inversionssequenz $\frac{\pi}{2}|y-\frac{\pi}{2}\rangle_{\pm y}$. Messdaten: $\nu_S = 9,3681412$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,44285$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 48$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,483$ MHz; $\nu_2 = 14,833$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,9$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,1$ MHz; $\delta t' = 100$ ns.

Die MQE-Spektren der modifizierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ in Abb. 4.18 liefern wiederum die Linienhöhen $p_j\tilde{p}_j$:

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) \approx \rho_{00}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	5,96
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	5,39
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	4,13
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	3,75

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) \approx \rho_{01}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	2,13
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-1,17
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-2,04
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-2,12

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) \approx \rho_{10}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-0,83
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	2,04
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-1,94
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-2,14

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) \approx \rho_{11}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-0,51
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-1,15
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	3,06
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	3,45

Die damit präparierten, normierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ lauten:

ρ_{00} -Präparation: (4.62)

$$\tilde{\rho}_P = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z1} + \frac{1}{2} \cdot 0,8799 \cdot I_{z2} + 0,9877 \cdot I_{z1}I_{z2}$$

$$= \begin{pmatrix} 0,9669 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0331 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0269 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,0269 \end{pmatrix},$$

ρ_{01} -Präparation: (4.63)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,6854 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,3663 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,0798 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,7629 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,2371 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,0798 \end{pmatrix},\end{aligned}$$

ρ_{10} -Präparation: (4.64)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,2723 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,6512 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,0947 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,2691 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,7309 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,0947 \end{pmatrix},\end{aligned}$$

ρ_{11} -Präparation: (4.65)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,1049 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot -0,2301 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,4163 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0313 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0313 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,5837 \end{pmatrix}.\end{aligned}$$

Diese Dichtematrizen zeigen, dass die mittels der Inversionstransformation der $\frac{\pi}{2}|y-\frac{\pi}{2}|_{\pm y}$ -Sequenz präparierten Zustände noch Unzulänglichkeiten aufweisen. Als problematisch stellte sich dabei die selektive Linieninversion in den MQE-Spektren heraus. Dies bedeutet, dass durch die Inversionsequenz die Operatoren I_{z_j} nicht exakt in $\pm I_{z_j}$ überführt wurden. Ursächlich hierfür ist die verhältnismässig große Linienbreite der Qubit-Kernspin-Übergänge, die in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ rund 40 kHz beträgt, so dass die Qubits mit spektraler Lage in den Linienflügeln, wie

bereits dargelegt, nicht die gewünschte Inversionstransformation erfahren. Der Hauptgrund ist jedoch sicherlich die Inhomogenität des B_2 -Feldes der ENDOR-Spule des Probenkopfes.

4.2.4 Präparation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} unter Erweiterung der Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j}$ auf Composite-Pulse

Eine deutliche Reduzierung der Artefakte durch B_2 -Feldinhomogenitäten gelang durch Verwendung von Composite Pulsen der Form $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j, \text{comp}} = P_{\pm y}(\frac{\pi}{2}) P_{\pm x}(\frac{\pi}{2}) P_x(\frac{\pi}{2}) P_y(\frac{\pi}{2})$ an Stelle der bisherigen Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}} = P_{\pm y}(\frac{\pi}{2}) P_y(\frac{\pi}{2})$, die resultierend die gleiche unitäre Transformation darstellen:

$$\begin{aligned}
 U_{(\pm)}^{\text{inv}_j, \text{comp}} &= P_{\pm y}^{I_j}(\frac{\pi}{2}) P_{\pm x}^{I_j}(\frac{\pi}{2}) P_x^{I_j}(\frac{\pi}{2}) P_y^{I_j}(\frac{\pi}{2}) \\
 &= P_y^{I_j}(\pm \frac{\pi}{2}) P_x^{I_j}(\pm \frac{\pi}{2}) P_x^{I_j}(\frac{\pi}{2}) P_y^{I_j}(\frac{\pi}{2}) \\
 &= \exp(\mp i \frac{\pi}{2} I_{y_j}) \exp(\mp i \frac{\pi}{2} I_{x_j}) \exp(-i \frac{\pi}{2} I_{x_j}) \exp(-i \frac{\pi}{2} I_{y_j}) .
 \end{aligned} \tag{4.66}$$

Abgekürzt werden diese Transformationen nachfolgend auch als $U_{(+)}^{\text{inv}_j, \text{comp}} = U_j^{(0)}$ und $U_{(-)}^{\text{inv}_j, \text{comp}} = U_j^{(\pi)}$ bezeichnet.

Die Abb. 4.19 zeigt die zugehörige Pulssequenz zur Präparation und Detektion pseudoreiner Zustände ρ_{ij} mit Composite-Korrektur- und Composite-Inversionssequenzen. Die yy-Präparations- und Composite-Korrektursequenz erzeugen den pseudoreinen Zustand ρ_{00} , der zur Minimierung von Artefakten aufgrund von B_2 -Inhomogenitäten mittels der Composite-Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j, \text{comp}}$ auf die übrigen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} transformiert wird.

In Abb. 4.20 sind die mit diesen Sequenzen gemessenen MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0$ in der Korrektursequenz und Anwendung der Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}_j, \text{comp}}$ als Null- bzw. π -Pulse dargestellt.

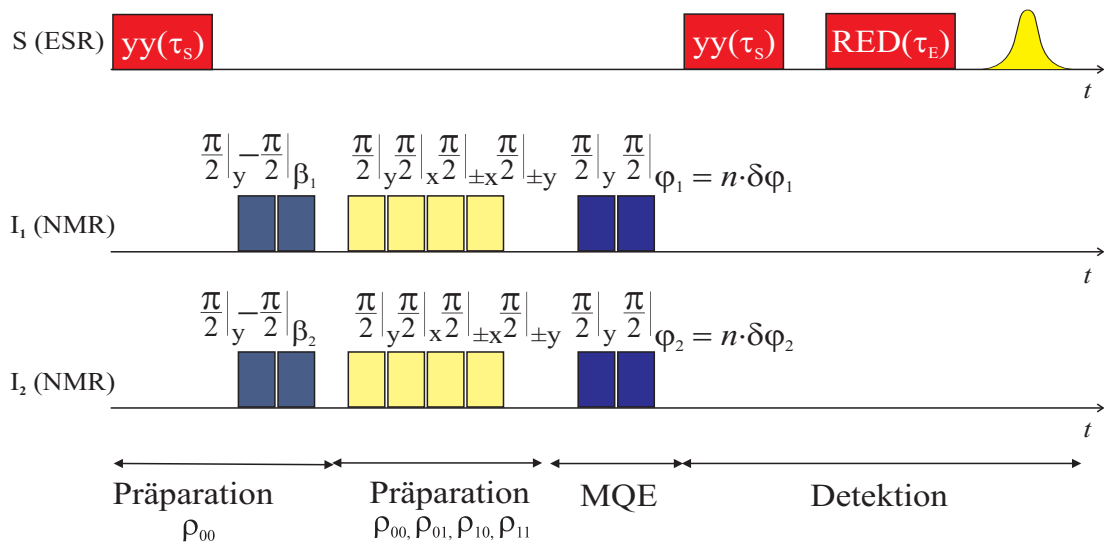


Abb. 4.19: Pulssequenz zur Präparation und Detektion pseudoreiner Zustände ρ_{ij} mit Composite-Korrektur- und Composite-Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{invj,comp}}$. Die yy -Präparationssequenz generiert zusammen mit der Composite-Korrektursequenz den pseudoreinen Zustand ρ_{00} , der zur Minimierung von Artefakten aufgrund von B_2 -Inhomogenitäten mittels der Composite-Inversionssequenz auf die übrigen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} transformiert wird. Die Detektion dieser Zustände erfolgt mit der MQE-Dichtematrixtomographie in Zusammenhang mit einer Remote-Echo-Detektion.

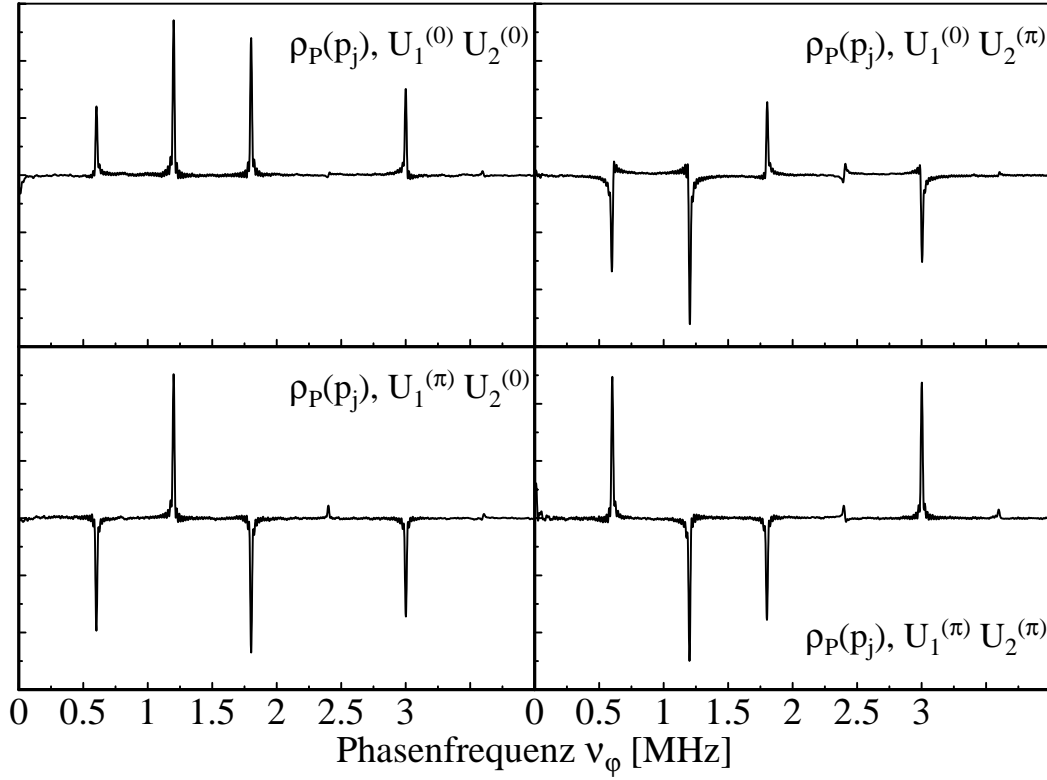


Abb. 4.20: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ mit Composite-Korrektur- und Composite-Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{inv}, \text{comp}} = U_j^{(0, \pi)}$, tetragonales y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.

Inversionssequenzen oben links $U_1^{(0)} U_2^{(0)}$, unten links $U_1^{(0)} U_2^{(\pi)}$, oben rechts $U_1^{(\pi)} U_2^{(0)}$, unten rechts $U_1^{(\pi)} U_2^{(\pi)}$.

Messdaten: $\vartheta^{(y)} = 76, 31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1, 94^\circ$; $\nu_S = 9, 3655886 \text{ GHz}$; $B_0^{(y)} = 0, 43933 \text{ T}$; $\tau_S = 16 \text{ ns}$; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14, 2747 \text{ MHz}$; $\nu_2 = 14, 6438 \text{ MHz}$; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 1, 2 \text{ MHz}$; $\nu_{\varphi_2} = 1, 8 \text{ MHz}$; $\delta t' = 100 \text{ ns}$.

Aus den MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_{\text{P}}(p_j)$ in Abb. 4.20 ergeben sich für $\tau_S = 48$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linenhöhen p_j^2 bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} :

Phasenfrequenz	$\rho_{\text{P}}(p_j), U_1^{(0)}U_2^{(0)}$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	24,09
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	21,27
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	13,58
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	10,85

Phasenfrequenz	$\rho_{\text{P}}(p_j), U_1^{(0)}U_2^{(\pi)}$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	20,20
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-18,81
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-13,77
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-15,70

Phasenfrequenz	$\rho_{\text{P}}(p_j), U_1^{(\pi)}U_2^{(0)}$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-28,23
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	13,90
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-16,71
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-18,66

Phasenfrequenz	$\rho_{\text{P}}(p_j), U_1^{(\pi)}U_2^{(\pi)}$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-22,25
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-15,83
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	21,10
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	21,93

Die daraus bestimmten normierten Dichtematrizen $\rho_{\text{P}}(p_j)$ lauten:

zur ρ_{00} -Präparation: (4.67)

$$\rho_{\text{P}} = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,99304 \cdot I_{z1} + \frac{1}{2} \cdot 0,93307 \cdot I_{z2} + 1,0 \cdot I_{z1}I_{z2}$$

$$= \begin{pmatrix} 0,98153 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,01499 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,01499 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,01847 \end{pmatrix},$$

zur ρ_{01} -Präparation: (4.68)

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}} &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,82791 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,79894 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,00724 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,90672 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,09328 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,00724 \end{pmatrix},\end{aligned}$$

zur ρ_{10} -Präparation: (4.69)

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}} &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,89335 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,62688 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} -0,06662 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,11994 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,88006 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,06662 \end{pmatrix},\end{aligned}$$

zur ρ_{11} -Präparation: (4.70)

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}} &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,71908 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_2} + 0,94234 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,16859 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,02813 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,02813 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,83141 \end{pmatrix}.\end{aligned}$$

Hieraus berechnen sich die Beträge der Durchschnittswerte \bar{p}_j der Operatorkoeffizienten p_j zu

$$|\bar{p}_1| = 23,6925; |\bar{p}_2| = 17,4525; |\bar{p}_{12}| = 33,0750$$

sowie die gemittelten Korrekturwinkel zur Anpassung der Korrelationsanteile zu $\beta_1 = 43,4^\circ$ und $\beta_2 = 32,2^\circ$. Die MQE-Messungen der mit diesen Korrekturwinkeln modifizierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}(\tilde{p}_j)$ sind in Abb. 4.21 gezeigt.

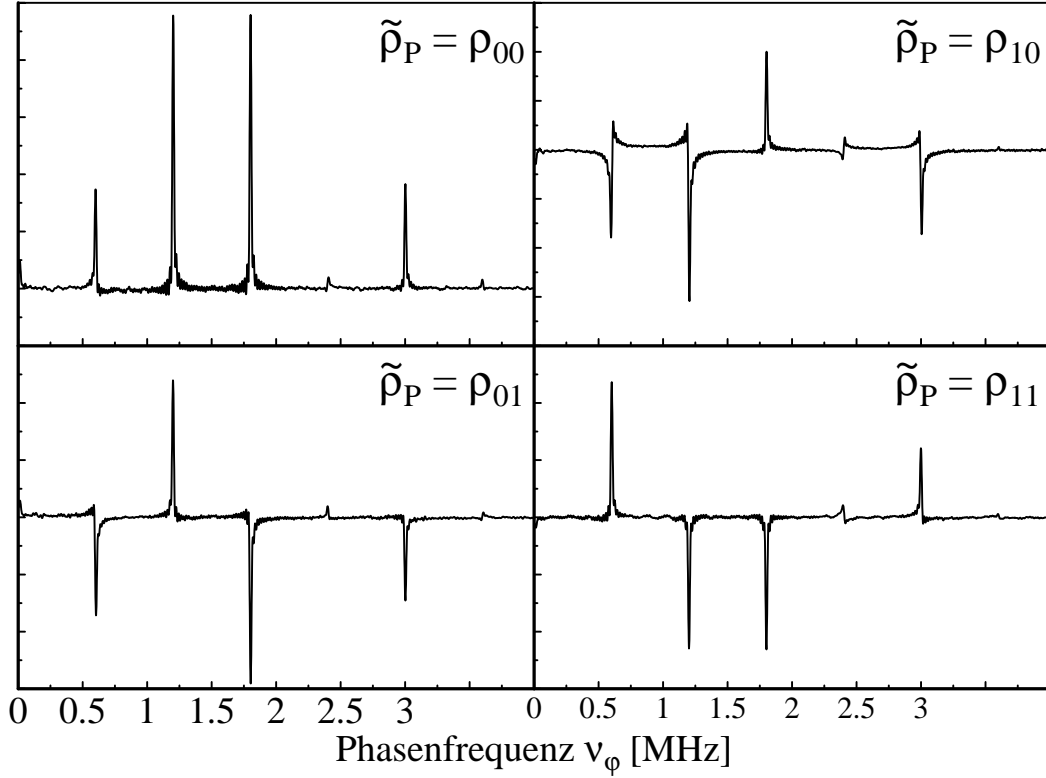


Abb. 4.21: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{\rho}_j)$ mit Composite-Korrektur- und Composite-Inversionssequenz $U_{(\pm)}^{\text{invj,comp}} = U_j^{(0,\pi)}$, tetragonales y -Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Inversionssequenzen oben links $U_1^{(0)} U_2^{(0)}$, unten links $U_1^{(0)} U_2^{(\pi)}$, oben rechts $U_1^{(\pi)} U_2^{(0)}$, unten rechts $U_1^{(\pi)} U_2^{(\pi)}$.

Messdaten: $\nu_S = 9,3655886$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,43933$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 16$ ns; $\nu_1 = 14,2747$ MHz; $\nu_2 = 14,6438$ MHz; $\nu_{\varphi_1} = 1,2$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,8$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; $\beta_1 = 43,4^\circ$, $\beta_2 = 32,2^\circ$.

Aus den zugehörigen MQE-Spektrum der Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ wurden wiederum für alle Kombinationen der Inversionssequenzen $U_j^{(0,\pi)}$ zur Präparation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} die Linienhöhen $p_j\tilde{p}_j$ bestimmt:

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) = \rho_{00}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	17,04
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	17,00
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	2-Q	6,49
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	0-Q	6,23

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) = \rho_{01}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	14,97
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	-18,28
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	2-Q	-9,09
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	0-Q	-11,03

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) = \rho_{10}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	-23,05
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	14,35
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	2-Q	-13,23
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	0-Q	-14,35

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j) = \rho_{11}$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z_1}	1-Q	-14,25
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z_2}	1-Q	-14,36
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	2-Q	7,61
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z_1}I_{z_2}$	0-Q	14,70

Die somit präparierten, normierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ lauten:

ρ_{00} -Präparation: (4.71)

$$\tilde{\rho}_P = \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,8464 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,7264 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2}$$

$$= \begin{pmatrix} 0,8510 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0792 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,1490 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,0792 \end{pmatrix} \approx \rho_{00},$$

ρ_{00} -Präparation: (4.72)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,6944 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_2} - 0,7980 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} -0,0263 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,8735 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,0263 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,1265 \end{pmatrix} \approx \rho_{01},\end{aligned}$$

ρ_{10} -Präparation: (4.73)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,9875 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,7163 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} -0,0678 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0741 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,9259 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,0678 \end{pmatrix} \approx \rho_{10},\end{aligned}$$

ρ_{11} -Präparation: (4.74)

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,7547 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,8861 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,0898 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0329 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0329 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,9102 \end{pmatrix} \approx \rho_{11}.\end{aligned}$$

Zur Berechnung dieser Matrizen wurden die Durchschnittswerte \bar{p}_j der Operatorkoeffizienten der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ verwendet.

Diese Dichtematrizen wurden weiterhin über einen Faktor κ auf $\text{Tr}(\rho_{ij}^2) = 1$ normiert, da der Vorfaktor des Termes $\frac{1}{4}\hat{1}$ hinsichtlich der Auswertung der Messungen frei wählbar ist. Dabei werden die pseudoreinen, experimentell bestimmten Dichtematrizen ρ_{ij} neu bestimmt zu:

$$\rho_{ij}^{\text{exp}} = \frac{1}{4}\hat{1} + \kappa \left(\frac{1}{2}p_1I_{z_1} + \frac{1}{2}p_2I_{z_2} + p_{12}I_{z_1}I_{z_2} \right). \quad (4.75)$$

In diesem Zusammenhang kann auch eine Güte F angegeben werden, die den Grad widerspiegelt, wie nahe die experimentell präparierten Dichtematrix den theoretischen Vorgaben kommen. Diese Güte F wird definiert zu:

$$F = 1 - \text{Tr} \left((\rho_{ij}^{\text{exp}} - \rho_{ij}^{\text{theo}})^2 \right) . \quad (4.76)$$

Nachfolgend sind die nach der Bedingung $\text{Tr}(\rho_{ij}^{\text{exp}^2}) = 1$ ausgewerteten normierten Dichtematrizen ρ_{ij}^{exp} mit der jeweiligen Güte $F(\rho_{ij}^{\text{exp}})$ angegeben:

$$\rho_{00}^{\text{exp}} = \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 1,044 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 1,214 \cdot I_{z_2} + 0,6598 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \quad (4.77)$$

$$= \begin{pmatrix} 0,9796 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0426 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,1274 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,1496 \end{pmatrix} ,$$

$$F(\rho_{00}^{\text{exp}}) = 0,959 ,$$

$$\rho_{01}^{\text{exp}} = \frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} \cdot .8258 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot -1.1892 \cdot I_{z_2} - 0,9508 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \quad (4.78)$$

$$= \begin{pmatrix} -0,0785 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,9914 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0160 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,1032 \end{pmatrix} ,$$

$$F(\rho_{01}^{\text{exp}}) = 0,983 ,$$

$$\rho_{10}^{\text{exp}} = \frac{1}{4} \hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 1,0843 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,7865 \cdot I_{z_2} - 1,0981 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \quad (4.79)$$

$$= \begin{pmatrix} 0,0990 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0568 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,9922 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,0499 \end{pmatrix} ,$$

$$F(\rho_{10}^{\text{exp}}) = 0,984 ,$$

$$\rho_{11}^{\text{exp}} = \frac{1}{4} \hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,8518 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 1,0002 \cdot I_{z_2} + 1,1287 \cdot I_{z_1} I_{z_2} \quad (4.80)$$

$$F(\rho_{11}^{\text{exp}}) = 0,990 \cdot \begin{pmatrix} 0,0692 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,0049 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,0692 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,9952 \end{pmatrix},$$

Bezugnehmend auf die vorangegangenen Ausführungen zur Präparation pseudoreiner Zustände ρ_{ij} in einem Zwei-Qubit-S-Bus-System ist es gelungen, diese unter Verwendung der Composite-Pulsfolgen zur Vermeidung von Artefakten aufgrund der B_2 -Feldinhomogenitäten in guter Übereinstimmung mit den theoretisch vorgegebenen Dichtematrizen zu generieren. Zur Durchführung von Quantenalgorithmen kann nun in die Pulssequenz aus Abb. 4.19 vor die MQE-Detektionssequenz ein weiterer Sequenzanteil entsprechend dem Algorithmus eingefügt werden.

4.2.5 Einfluss der Frequenz- und Amplitudenjustage auf die MQE-Spektren

In Zusammenhang mit der Implementierung der MQE-Dichtematrixtomographie wurde auch die Frequenz- und Amplitudenjustage der ENDOR-Pulse untersucht, um sicher zu stellen, dass sich hierdurch keine Fehler aufgrund manuell angepasster Justage-Parameter des Spektrometers akkumulieren. Systematische Pulsfehler innerhalb der ENDOR-Verfahren, resultierend durch endliche Linienbreiten der Qubit-Übergänge, wurden so weitmöglichst minimiert. Hierzu sind nachfolgend die Abhängigkeiten der Anteile der Multi-Quantenkorrelationen von der Variation jeweils einer der beiden Qubit-Resonanzfrequenzen $\nu_{1;2}$ sowie von der Variation der Pulsamplituden, die bei allen durchgeführten Experimenten anhand einer zuvor aufgenommenen Rabi-Oszillation justiert wurden, aufgezeigt.

Die Abb. 4.22 zeigt die Abhängigkeit der 0-, 1- und 2-Quantenkorrelationsanteile proportional zu deren Koeffizienten p_j in den Zwei-Qubit-MQE-Spektren von der Variation der Frequenzen ν_j auf dem Übergang des Qubit I_j , bei konstanter Frequenz ν_k auf dem Übergang von I_k für $j, k = 1; 2$.

Bei Variation der Frequenzen ν_j auf den Qubit-Übergängen innerhalb der ENDOR-Linienbreite zeigt sich bei Verwendung „harter“ RF-Pulse keine signifikante Abhängigkeit in der MQE-Linienhöhe bei Variation der ENDOR-Frequenzen innerhalb der Linienbreite der ENDOR-Übergänge. Die MQE-Linienintensitäten zeigen bei einer Variation der ENDOR-Pulsamplitude eine deutlichere Abhängigkeit, da hiermit der Drehwinkel der ENDOR-Puls direkt skaliert. Die Pulsamplituden a_j wurden wiederum unabhängig voneinander um

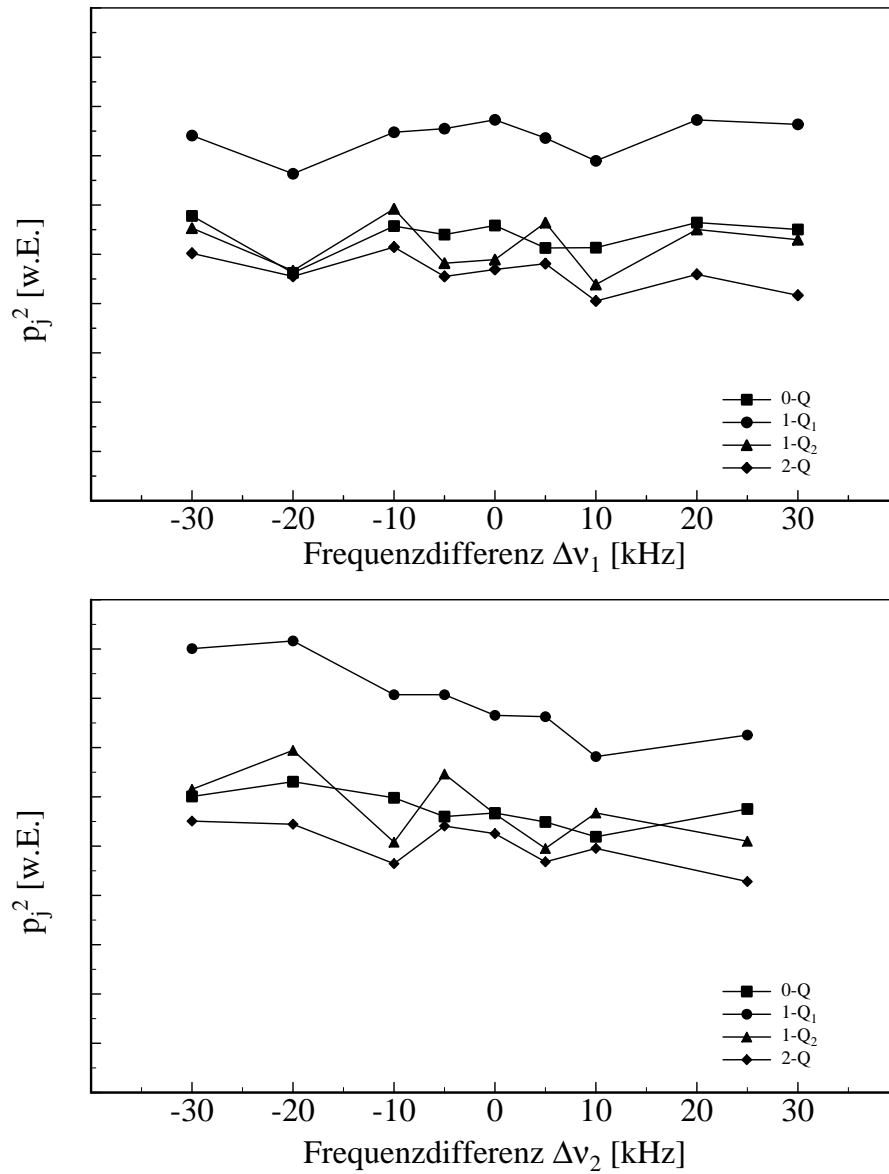


Abb. 4.22: Abhängigkeit der Operatoranteile p_j am pseudoreinen Zustand ρ_{00} im MQE-Spektrum bei Variation der ENDOR-Pulsfrequenz. Oben: $\nu_1 = 14,3652$ MHz $+\Delta\nu_1$ auf dem I_1 -Qubitkanal mit $\Delta\nu_1^{\max} = \pm 30$ kHz. Die Linienbreite des I_1 -Übergangs beträgt 41,4 kHz. Unten: $\nu_2 = 14,6996$ MHz $+\Delta\nu_2$ auf dem I_2 -Qubitkanal mit $\Delta\nu_2^{\max} = \pm 30$ kHz. Die Linienbreite des I_2 -Übergangs beträgt 43,9 kHz.

Messdaten: tetragonales y -Zentrum $\text{CaF}_2:\text{Ce}$, $\nu_S = 9,3676678$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,44060$ T; $\nu_2 = 14,6996$ MHz = const.; $T = 8$ K.

$\pm 30\%$ um den aus einer amplitudeninkrementierten Rabi-Oszillation erhöht und erniedrigt (Abb. 4.23).

Der Amplitudenwert bei $\Delta a_j = 0$ entspricht dabei der anhand einer Rabi-Oszillation mit Amplitudeninkrementierung bei konstanter Pulsdauer bestimmten Amplitude a_j . Hierbei wurde für jedes Qubit die Rabi-Oszillationperiode in Abhängigkeit der konstanten Pulsdauer einzeln auf den Pulsdrehwinkel umgerechnet. Die gemessenen Abhängigkeiten mit den Extremwerten bei der Amplitudenabweichung von rund 0% bestätigen diese Vorgehensweise.

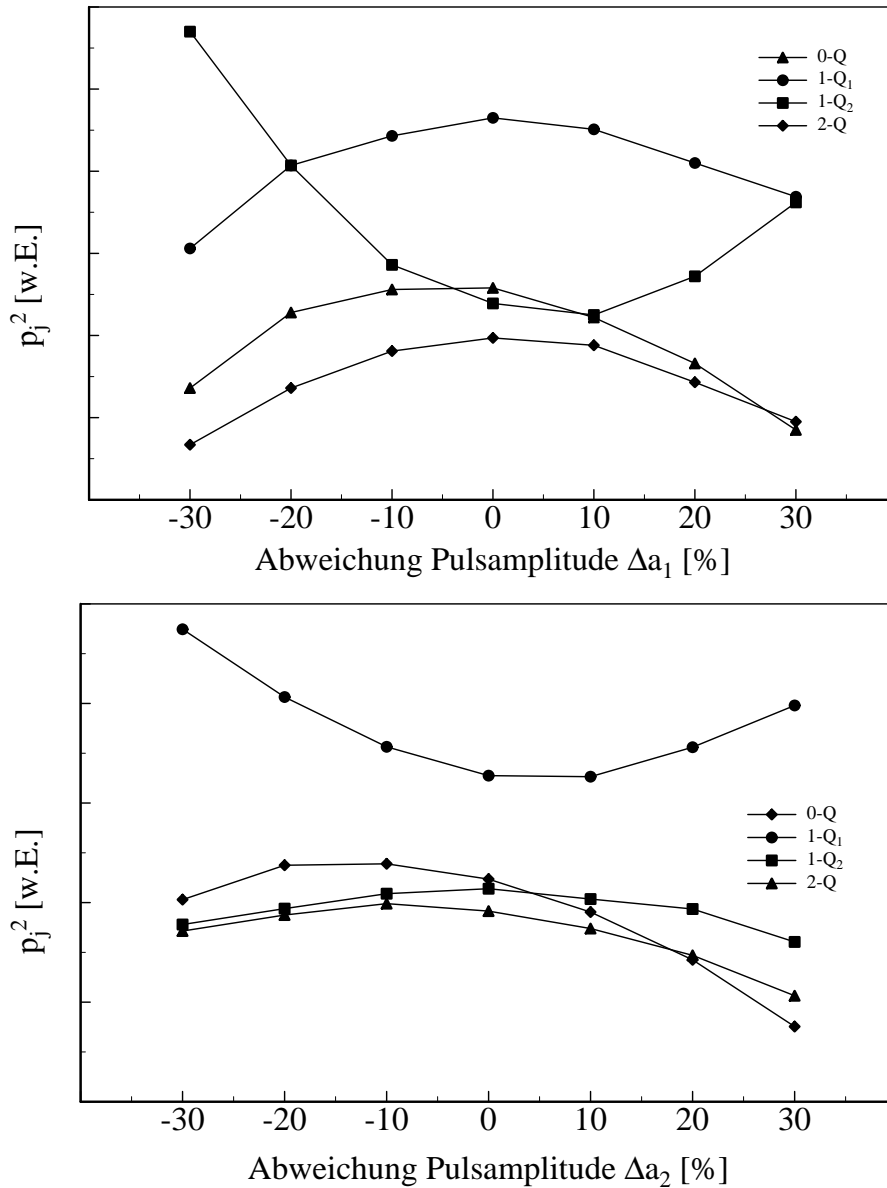


Abb. 4.23: Abhängigkeit der Operatoranteile p_j am pseudoreinen Zustand ρ_{00} im MQE-Spektrum bei Variation der ENDOR-Pulsamplitude. Oben: Variation der Pulsamplitude $a_1 + \Delta a_1$ auf dem I_1 -Qubitkanal mit $\Delta a_1^{\max} = \pm 30\%$. Unten: Variation der Pulsamplitude $a_2 + \Delta a_2$ auf dem I_1 -Qubitkanal mit $\Delta a_2^{\max} = \pm 30\%$. Die Pulsamplituden a_j wurden zuvor anhand einer amplitudeninkrementierten Rabi-Oszillation bestimmt.

Messdaten: tetragonales y-Zentrum $\text{CaF}_2\text{:Ce}$; $\nu_S = 9,367012$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,44098$ T; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,3787$ MHz; $\nu_2 = 14,7228$ MHz; $T = 8$ K.

4.3 Präparation des pseudoreinen Zustandes ρ_{000} mit drei Qubits

In Analogie zur Präparation pseudoreiner Zwei-Qubit-Zustände wird in diesem Kapitel die Erzeugung des pseudoreinen Zustandes ρ_{000} mit drei Qubits in dem S-Bus-System $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ aufgezeigt. Die Erzeugung dieses Quantenzustandes erfolgt identisch wie die der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände, mit der erweiterten RF-Einstrahlung auf drei ENDOR-Übergängen.

Zunächst sind nachfolgend die Dichtematrizen und Operatordarstellungen zur Beschreibung des pseudoreinen Zustandes ρ_{000} aufgeführt. Ein Drei-Qubit-System besitzt $2^3 = 8$ Eigenzustände $|000\rangle, |001\rangle, \dots, |111\rangle$, die die Basis der Drei-Qubit-Hilbert-Raumes bilden. Die Dichtematrix des pseudoreinen Drei-Qubit-Zustandes ρ_{000} lautet

$$\begin{aligned} \rho_{000} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} & (4.81) \\ &= \frac{1}{8}\hat{1} + \frac{1}{4}I_{z_1} + \frac{1}{4}I_{z_2} + \frac{1}{4}I_{z_3} + \frac{1}{2}I_{z_1}I_{z_2} + \frac{1}{2}I_{z_2}I_{z_3} + \frac{1}{2}I_{z_1}I_{z_3} + I_{z_1}I_{z_2}I_{z_3} , \end{aligned}$$

mit

$$\hat{1} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} ,$$

$$I_{z_1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix},$$

$$I_{z_2} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix},$$

$$I_{z_3} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix}.$$

Die Pulsfolge zur Erzeugung des pseudoreinen Zustandes ρ_{000} entspricht der aus Abb. 4.19, mit der Erweiterung um einen weiteren ENDOR-Kanal zur frequenzselektiven Einstrahlung auf allen drei Qubits $I_{1;2;3}$.

Auch hier müssen zur vollständigen MQE-Dichtematrix-Tomographie sukzessive die Operatorkoeffizienten p_j bzw. \tilde{p}_j der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ bzw. $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ bestimmt werden. Die experimentelle Vorgehensweise ist identisch der zur Präparation der pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände, die im vorigen Kapitel detailliert erläutert wurde.

Das Messsignal $A^S(\rho_P(p_j))$ für die Korrekturwinkel $\beta_j = 0$ ergibt sich analog zu den Betrachtungen für zwei Qubits für identische Evolutionszeiten τ_S in der yy-Präparations- und Detektionssequenz zu:

$$\begin{aligned}
A^S(\rho_P(p_j)) &= \frac{1}{16} \left(1 + p_1^2 \cos \beta_1 \cos \varphi_1 + p_2^2 \cos \beta_2 \cos \varphi_2 \right. \\
&\quad + p_3^2 \cos \beta_3 \cos \varphi_3 \\
&\quad + p_{12}^2 \cos \beta_1 \cos \beta_2 \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \\
&\quad + p_{23}^2 \cos \beta_2 \cos \beta_3 \cos \varphi_2 \cos \varphi_3 \\
&\quad + p_{13}^2 \cos \beta_1 \cos \beta_3 \cos \varphi_1 \cos \varphi_3 \\
&\quad \left. + p_{123}^2 \cos \beta_1 \cos \beta_2 \cos \beta_3 \cos \varphi_1 \cos \varphi_2 \cos \varphi_3 \right) . \tag{4.82}
\end{aligned}$$

Identisch wie die Berechnung der Korrekturwinkel β_j für pseudoreine Zwei-Qubit-Zustände gibt es für diese Randbedingungen zur Präparation des pseudoreinen Drei-Qubit-Zustandes ρ_{000} . Diese lauten:

$$\begin{aligned}
& p_1 \cos \beta_1 = p_2 \cos \beta_2 = p_3 \cos \beta_3 \tag{4.83} \\
& = p_{12} \cos \beta_1 \cos \beta_2 = p_{23} \cos \beta_3 \cos \beta_3 = p_{13} \cos \beta_1 \cos \beta_3 \\
& = p_{123} \cos \beta_1 \cos \beta_2 \cos \beta_3 = 1 .
\end{aligned}$$

Abb. 4.24 zeigt die MQE-Spektren der Drei-Qubit-Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ zur ρ_{000} -Präparation.

Aus dem MQE-Spektrum der Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ in Abb. 4.24 ergeben sich die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linienhöhen p_j^2 :

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j)$	Spin-Operator	Quantenkorrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,81 MHz	I_{z1}	1-Q	34,16
$\nu_{\varphi_2} =$	1,03 MHz	I_{z2}	1-Q	24,74
$\nu_{\varphi_3} =$	1,16 MHz	I_{z3}	1-Q	18,97
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	1,84 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	14,88
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,22 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	14,24
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_1} =$	1,97 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	2-Q	11,22
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_1} =$	0,35 MHz	$I_{z1}I_{z3}$	0-Q	9,66
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} =$	2,19 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	2-Q	10,16
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} =$	0,13 MHz	$I_{z2}I_{z3}$	0-Q	7,36
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	3,00 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	3-Q	11,60
$-\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,68 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	10,74
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,94 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	10,17
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	1,38 MHz	$I_{z1}I_{z2}I_{z3}$	1-Q	11,25

Die normierte Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ berechnet sich daraus zu

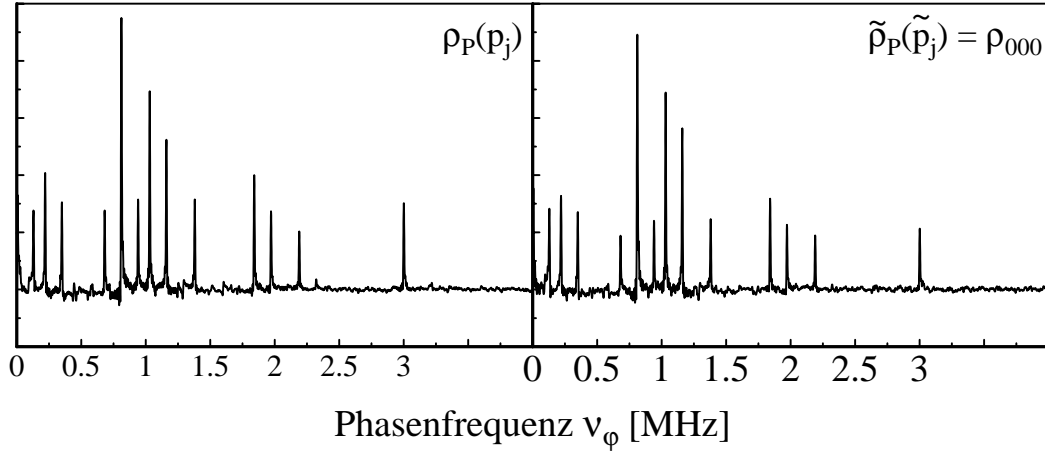


Abb. 4.24: MQE-Spektrum der Drei-Qubit-Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ für $\beta_j = 0^\circ$ (links) und $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ zur ρ_{000} -Präparation (rechts), tetragonales y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$.

Messdaten: $\nu_S = 9,3790398$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,43637$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 36$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,1243$ MHz; $\nu_2 = 14,4482$ MHz; $\nu_3 = 14,8098$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,81$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,03$ MHz; $\nu_{\varphi_3} = 1,16$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; $\beta_1 = 30,4^\circ$; $\beta_2 = 15,4^\circ$; $\beta_3 = 11,8^\circ$.

$$\begin{aligned}
 \rho_P &= \frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} \cdot 0,88218 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{4} \cdot 0,75076 \cdot I_{z_2} + \frac{1}{4} \cdot 0,65861 \cdot I_{z_3} \\
 &+ \frac{1}{2} \cdot 0,81571 \cdot I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} \cdot 0,69033 \cdot I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} \cdot 0,63293 \cdot I_{z_1} I_{z_3} \\
 &+ 1,0 \cdot I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \\
 &= \begin{pmatrix} 0,804 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,058 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -0,010 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,089 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -0,029 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,042 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,065 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -0,019 \end{pmatrix}.
 \end{aligned} \tag{4.84}$$

Die Bestimmung der Korrekturwinkel wies eine große Streuung derselben auf. Die gemittelten Korrekturwinkel ergaben sich zu $\beta_1 = 30,4^\circ$, $\beta_2 = 15,4^\circ$ und $\beta_3 = 11,8^\circ$.

Aus dem MQE-Spektrum der Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ in Abb. 4.24 wurden wiederum die Linienhöhen $p_j \tilde{p}_j$ der einzelnen Korrelationsanteile bestimmt:

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$	Spin-Operator	Quantenkorrelation	$p_j \tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,81 MHz	I_{z_1}	1-Q	14,21
$\nu_{\varphi_2} =$	1,03 MHz	I_{z_2}	1-Q	10,93
$\nu_{\varphi_3} =$	1,16 MHz	I_{z_3}	1-Q	9,03
$\nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	1,84 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	2-Q	4,92
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,22 MHz	$I_{z_1} I_{z_2}$	0-Q	5,29
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_1} =$	1,97 MHz	$I_{z_1} I_{z_3}$	2-Q	3,47
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_1} =$	0,35 MHz	$I_{z_1} I_{z_3}$	0-Q	4,14
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} =$	2,19 MHz	$I_{z_2} I_{z_3}$	2-Q	3,14
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} =$	0,13 MHz	$I_{z_2} I_{z_3}$	0-Q	4,82
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	3,00 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	3-Q	3,41
$-\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,68 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	3,29
$\nu_{\varphi_3} - \nu_{\varphi_2} + \nu_{\varphi_1} =$	0,94 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	3,73
$\nu_{\varphi_3} + \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	1,38 MHz	$I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3}$	1-Q	4,29

Die damit präparierte Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ lautet:

$$\begin{aligned}
\tilde{\rho}_P &= \frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} \cdot 1,0 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{4} \cdot 0,90 \cdot I_{z_2} + \frac{1}{4} \cdot 0,86 \cdot I_{z_3} \\
&+ \frac{1}{2} \cdot 0,79 \cdot I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} \cdot 0,72 \cdot I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} \cdot 0,76 \cdot I_{z_1} I_{z_3} + 0,89 \cdot I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \\
&= \begin{pmatrix} 0,865 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,058 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,040 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,038 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0,005 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,023 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,020 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -0,048 \end{pmatrix} \approx \rho_{000}.
\end{aligned} \tag{4.85}$$

Die experimentell präparierte Dichtematrix $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ zeigt deutlich die Signatur des zu erwartenden pseudoreinen Drei-Qubit-Zustandes ρ_{000} .

Analog zur Normierung der pseudoreinen Zwei-Qubit-Dichtematrizen kann auch die Matrix ρ_{000} über die Bedingung $\text{Tr}(\rho_{000}^{\text{exp}2}) = 1$ mittels eines Faktors κ umgerechnet und eine diesbezügliche Güte F angegeben werden:

$$\begin{aligned}
\rho_{000}^{\text{exp}} &= \frac{1}{8} \hat{1} + \kappa \left(\frac{1}{4} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{4} p_2 I_{z_2} + \frac{1}{4} p_3 I_{z_3} \right. \\
&+ \left. \frac{1}{2} p_{12} I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} p_{23} I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} p_{13} I_{z_1} I_{z_3} + p_{123} I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \right),
\end{aligned} \tag{4.86}$$

$$F(\rho_{000}^{\text{exp}}) = 1 - \text{Tr} \left((\rho_{000}^{\text{exp}} - \rho_{000}^{\text{theo}})^2 \right) .$$

Die damit normierte Dichtematrix ρ_{000}^{exp} und Güte $F(\rho_{000}^{\text{exp}})$ berechnet sich zu

$$\begin{aligned} \rho_{000}^{\text{exp}} &= \frac{1}{8} \hat{1} + \frac{1}{4} \cdot 1,176 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{4} \cdot 1,058 \cdot I_{z_2} + \frac{1}{4} \cdot 1,011 \cdot I_{z_3} \\ &+ \frac{1}{2} \cdot 0,929 \cdot I_{z_1} I_{z_2} + \frac{1}{2} \cdot 0,847 \cdot I_{z_2} I_{z_3} + \frac{1}{2} \cdot 0,894 \cdot I_{z_1} I_{z_3} + 1,047 \cdot I_{z_1} I_{z_2} I_{z_3} \\ &= \begin{pmatrix} 0,865 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,058 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,040 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,038 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0,005 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,023 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0,020 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -0,048 \end{pmatrix} , \end{aligned} \quad (4.87)$$

$$F(\rho_{000}^{\text{exp}}) = 0,958 .$$

Durch eine entsprechende Wahl der freien Evolutionszeiten und der Anpassung der Korrelationsamplituden anhand von Korrektursequenzen konnte experimentell die pseudoreine Drei-Qubit-Dichtematrix ρ_{000} in guter Übereinstimmung mit den theoretischen Vorgaben präpariert werden.

4.4 Collins-Version des Deutsch-Algorithmus für zwei Qubits

Der Deutsch-Algorithmus ist ein Quantenalgorithmus, der eine Unterscheidung von Klassen binärer Funktionen f_{ij} in Abhängigkeit von deren Wertebereich treffen kann und ist damit ein universeller Baustein der Quanteninformationsverarbeitung. Der Deutsch-Jozsa-Algorithmus stellt die Erweiterung des Deutsch-Algorithmus auf N Qubits dar. Collins stellte eine modifizierte Version des Deutsch-Jozsa-Algorithmus vor, die für $N = 2$ Qubits auch ohne Verschränkung zwischen Schalt- und Ancilla-Bit auskommt. Details hierzu wurden bereits in den Theoriekapiteln dargelegt. In diesem Kapitel wird die experimentelle Implementierung des Deutsch-Algorithmus nach Collins für zwei Qubits vorgestellt. Die zugehörige unitäre Transformation U_f ist nachfolgend nochmals aufgeführt:

$$U_f = \begin{pmatrix} (-1)^{f_{ijkl}(00)} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & (-1)^{f_{ijkl}(01)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & (-1)^{f_{ijkl}(10)} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & (-1)^{f_{ijkl}(11)} \end{pmatrix}. \quad (4.88)$$

Die Gesamttransformation U_f^{DC} der Collins-Version des Deutsch-Algorithmus ist damit in Zusammenhang mit den Hadamard-Transformationen H_j gegeben durch:

$$U_f^{\text{DC}} = H_1 H_2 U_f H_2 H_1. \quad (4.89)$$

Zur Demonstration des Deutsch-Algorithmus genügt es die den Funktionen f_{0000} , f_{0101} , f_{0011} und f_{0110} entsprechenden Gesamt-Transformationen U_f^{DC} zu implementieren. Diese bilden den Eingabezustand ρ_{00} wie nachfolgend aufgeführt auf die restlichen pseudoreinen Zwei-Qubit-Zustände ρ_{ij} ab:

$$\begin{aligned} U_f^{\text{DC}}(f_{0000}) &: \rho_{00} \longrightarrow \rho_{00}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0101}) &: \rho_{00} \longrightarrow \rho_{01}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0011}) &: \rho_{00} \longrightarrow \rho_{10}, \\ U_f^{\text{DC}}(f_{0110}) &: \rho_{00} \longrightarrow \rho_{11}. \end{aligned} \quad (4.90)$$

Die Transformationen U_f^{DC} lauten in diesem Fall:

$$\begin{aligned}
 U_f^{\text{DC}}(f_{0000}) &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, & U_f^{\text{DC}}(f_{0101}) &= \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}, & (4.91) \\
 U_f^{\text{DC}}(f_{0011}) &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}, & U_f^{\text{DC}}(f_{0110}) &= \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}.
 \end{aligned}$$

Die zugehörige Pulssequenz zur Umsetzung diese Transformationen ist in Abb. 4.25 dargestellt.

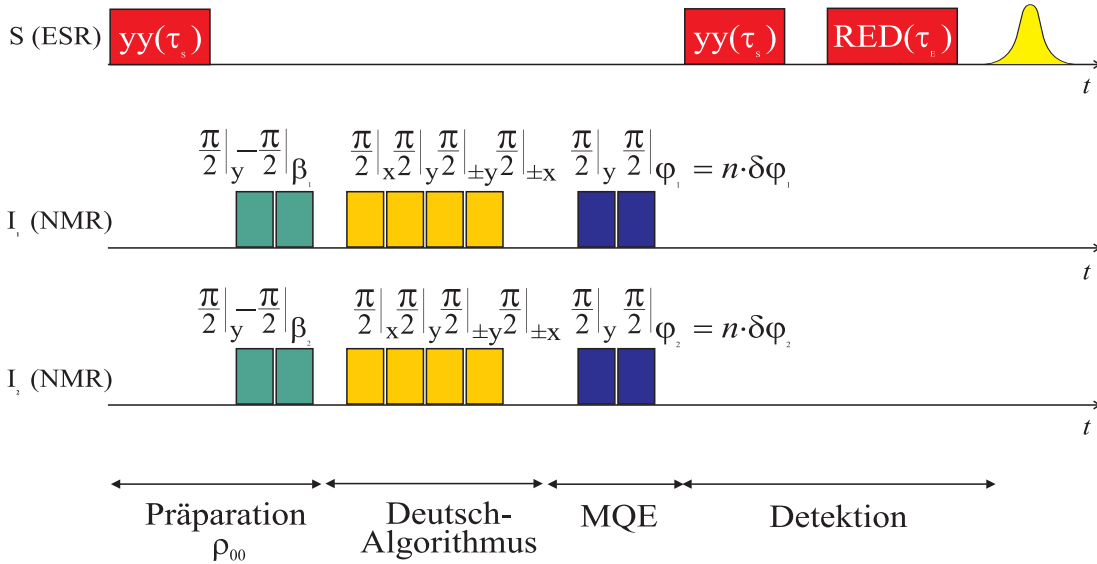


Abb. 4.25: Pulssequenz zur Implementierung des Deutsch-Algorithmus nach Collins mit zwei Qubits.

Der Eingabezustand ρ_{00} wird mit einer yy-Präparations- und einer Composite-Korrektursequenz generiert. Die Transformationen U_f^{DC} des Deutsch-Algorithmus bestehen aus einem Composite-Puls, jeweils auf $I_{1;2}$. Dieser Composite-Puls besteht aus vier $\frac{\pi}{2}$ -Pulsen $P_{x_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\frac{\pi}{2}) P_{y_j}(\pm\frac{\pi}{2}) P_{x_j}(\pm\frac{\pi}{2})$, die resultierend, je nach Phasenlage, gesamt als Null- oder als π -Puls wirken.

Im Rahmen der experimentellen Umsetzung wurde hier zur Minimierung von Artefakten in den MQE-Spektren eine Anpassung der ENDOR-Pulsdauern und -amplituden getroffen, so dass bei Einstrahlung eines $\frac{\pi}{2}$ -Pulses auf Qubit I_j der Spin des Qubit I_k eine 2π -Rotation erfährt und umgekehrt. Hierdurch wurde der Effekt des Übersprechens bei RF-Pulseinstrahlung auf zwei Qubits stark reduziert.

Analog zur Dichtematrixtomographie pseudoreiner Zustände wurden auch hier zur Bestimmung der Operatorkoeffizienten p_j und \tilde{p}_j bei Durchführung des Deutsch-Algorithmus die MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_{\text{P}}(p_j)$ für die Korrekturwinkel $\beta_j = 0$ und $\tilde{\rho}_{\text{P}}(\tilde{p}_j)$ für $\beta_j \neq 0$ aufgenommen (Abb. 4.26 und 4.27).

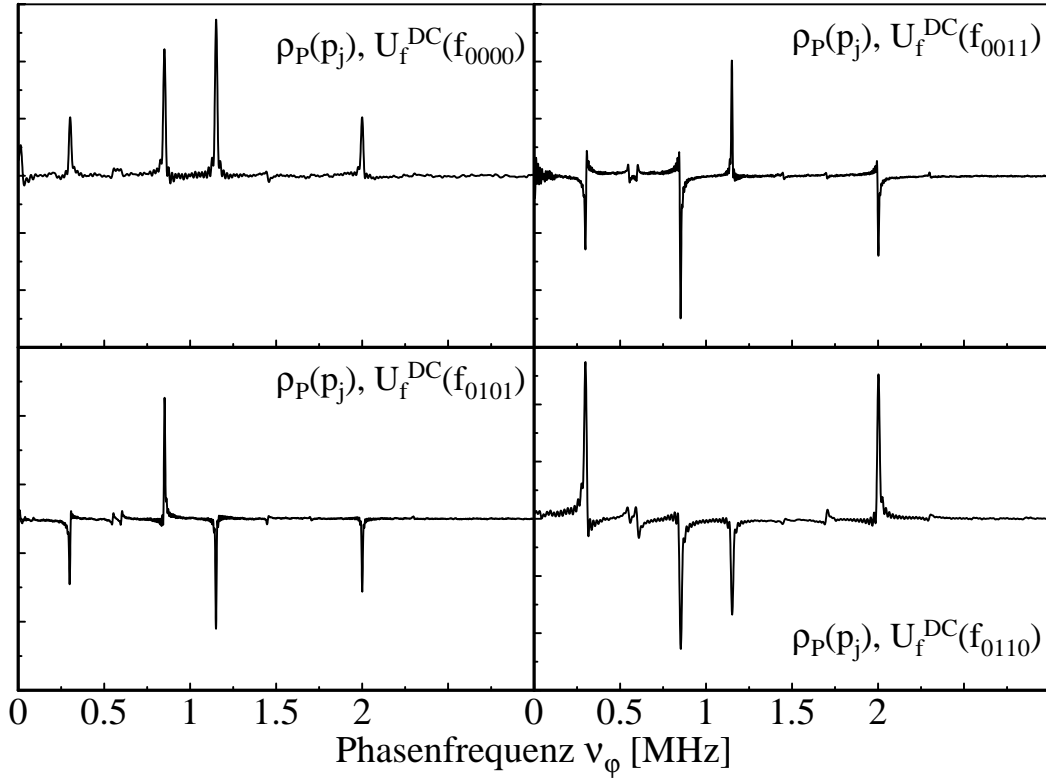


Abb. 4.26: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_{\text{P}}(p_j)$ zum Deutsch-Algorithmus nach Collins, präpariert mit yy- und Composite-Korrektursequenz für $\beta_j = 0$, mit Transformation U_f^{DC} des Deutsch-Algorithmus und MQE- und Remote-Echo-Detektion am tetragonalen y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Algorithmustransformationen oben links $U_f^{\text{DC}}(f_{0000})$, unten links $U_f^{\text{DC}}(f_{0101})$, oben rechts $U_f^{\text{DC}}(f_{0011})$, unten rechts $U_f^{\text{DC}}(f_{0110})$.

Messdaten: $\nu_S = 9,389882$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,43694$ T; $\vartheta^{(y)} = 76,31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1,94^\circ$; $\tau_S = 16$ ns; ENDOR-Frequenzen $\nu_1 = 14,1476$ MHz; $\nu_2 = 14,4718$ MHz; Phasenfrequenzen $\nu_{\varphi_1} = 0,85$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,15$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; $\beta_j = 0^\circ$.

Aus den MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P(p_j)$ in Abb. 4.26 ergeben sich für $\tau_S = 16$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linenhöhen p_j^2 bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} :

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0000})$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	16,69
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	20,58
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	7,94
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	7,82

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0101})$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	16,06
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-14,39
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-9,63
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-9,26

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0011})$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-19,33
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	15,00
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-11,28
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-10,78

Phasenfrequenz	$\rho_P(p_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0110})$	Spin-Operator	Korrelation	p_j^2 [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-17,64
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-12,69
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	19,24
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	21,75

Die somit präparierten, normierten Dichtematrizen $\rho_{\text{P}}(p_j, f_{ijkl})$ lauten:

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}}(p_j, f_{0000}) &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,90054 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_2} + 0,87510 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,94392 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,00636 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,05608 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,00636 \end{pmatrix}, \quad (4.92)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}}(p_j, f_{0101}) &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,92205 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,0087279 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,01232 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,94872 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,05128 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,01232 \end{pmatrix}, \quad (4.93)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}}(p_j, f_{0011}) &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,93610 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,82462 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} -0,00667 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,00667 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,98469 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,01531 \end{pmatrix}, \quad (4.94)\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\rho_{\text{P}}(p_j, f_{0110}) &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,65601 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,55641 \cdot I_{z_2} + 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \\ &= \begin{pmatrix} 0,19688 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,02490 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,02490 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,80312 \end{pmatrix}. \quad (4.95)\end{aligned}$$

Für die Durchführung des Deutsch-Algorithmus berechnen sich daraus die zur Präparation pseudoreiner Eingabe-Zustände gemittelten Korrekturwinkel zu $\beta_1 = 36,8^\circ$ und $\beta_2 = 32,4^\circ$. Die Abb. 4.27 zeigt die mit diesen Korrekturwinkeln

aufgenommenen MQE-Spektren der Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$. Diese entsprechen der Abbildung des Eingabe-Zustandes ρ_{00} auf die übrigen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} gemäß der Abbildungsvorschrift des Deutsch-Algorithmus nach Collins für zwei

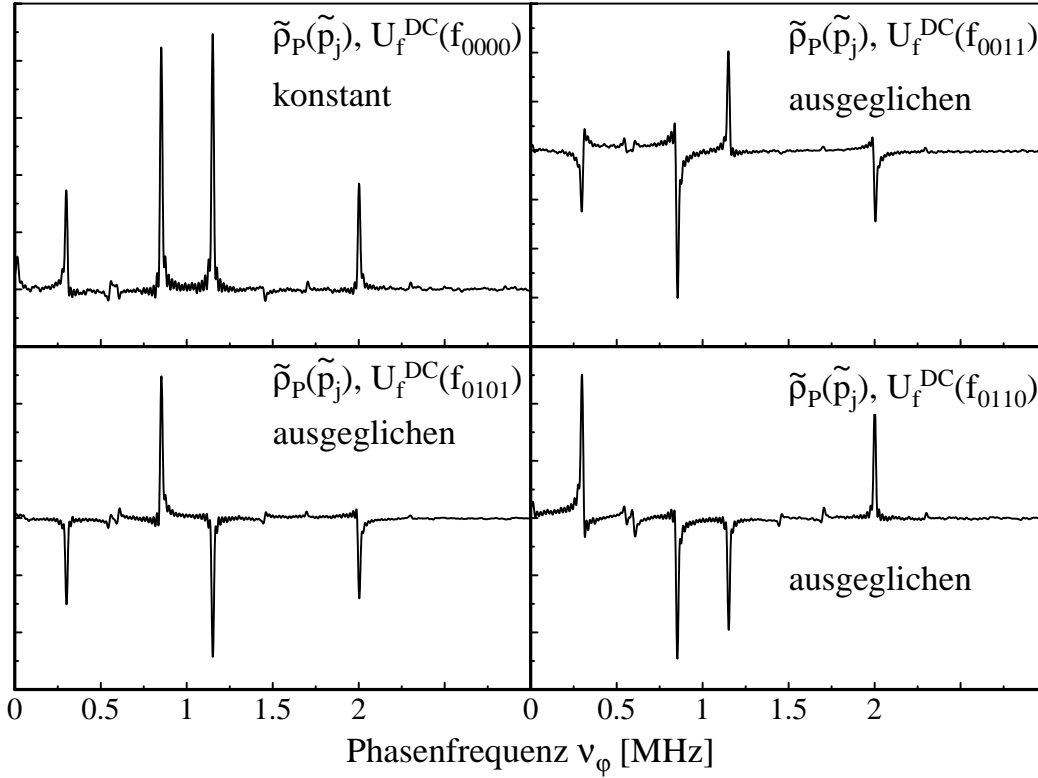


Abb. 4.27: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ zum Deutsch-Algorithmus nach Collins, präpariert mit yy- und Composite-Korrektursequenz für $\beta_1 = 36, 8^\circ$ und $\beta_2 = 32, 4^\circ$, mit Transformation U_f^{DC} des Deutsch-Algorithmus und MQE- und Remote-Echo-Detektion am tetragonalen y-Zentrum in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. Algorithmustransformationen oben links $U_f^{\text{DC}}(f_{0000})$, unten links $U_f^{\text{DC}}(f_{0101})$, oben rechts $U_f^{\text{DC}}(f_{0011})$, unten rechts $U_f^{\text{DC}}(f_{0110})$.

Messdaten: $\nu_S = 9, 389882$ GHz; $B_0^{(y)} = 0, 43694$ T; $\vartheta^{(y)} = 76, 31^\circ$; $\varphi^{(y)} = 1, 94^\circ$; $\tau_S = 16$ ns; $\nu_1 = 14, 1476$ MHz; $\nu_2 = 14, 4718$ MHz; $\nu_{\varphi_1} = 0, 85$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1, 15$ MHz; $\delta t' = 100$ ns.

Aus den MQE-Spektren der Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j)$ in Abb. 4.27 ergeben sich für $\tau_S = 16$ ns die nachfolgend tabellarisch aufgeführten Linenhöhen $p_j\tilde{p}_j$ bei den jeweiligen Phasenfrequenzen ν_{φ_j} :

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0000})$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	15,88
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	16,54
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	6,98
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	6,52

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0101})$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	15,09
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-14,65
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-8,64
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-9,16

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0011})$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-22,77
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	14,65
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	-11,08
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	-10,22

Phasenfrequenz	$\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j), U_f^{\text{DC}}(f_{0110})$	Spin-Operator	Korrelation	$p_j\tilde{p}_j$ [w.E.]
$\nu_{\varphi_1} =$	0,8 MHz	I_{z1}	1-Q	-15,25
$\nu_{\varphi_2} =$	1,2 MHz	I_{z2}	1-Q	-11,84
$\nu_{\varphi_1} + \nu_{\varphi_2} =$	2,0 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	2-Q	11,87
$\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} =$	0,4 MHz	$I_{z1}I_{z2}$	0-Q	16,06

Die somit präparierten, normierten Dichtematrizen $\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, f_{ijkl})$ lauten:

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, f_{0000}) &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,93797 \cdot I_{z_2} + 0,87484 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.96) \\ &= \begin{pmatrix} 0,98321 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,04679 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,01579 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -0,01579 \end{pmatrix} \stackrel{!}{=} \rho_{00},\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, f_{0101}) &= \frac{1}{4}\hat{1} + \frac{1}{2} \cdot 0,91942 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,94301 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.97) \\ &= \begin{pmatrix} -0,00590 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,96562 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,03438 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,00590 \end{pmatrix} \stackrel{!}{=} \rho_{01},\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, f_{0011}) &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 1,0 \cdot I_{z_1} + \frac{1}{2} \cdot 0,73037 \cdot I_{z_2} - 0,87567 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.98) \\ &= \begin{pmatrix} -0,03632 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0,03632 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,90152 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,09848 \end{pmatrix} \stackrel{!}{=} \rho_{11},\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_P(\tilde{p}_j, f_{0110}) &= \frac{1}{4}\hat{1} - \frac{1}{2} \cdot 0,83232 \cdot I_{z_1} - \frac{1}{2} \cdot 0,76188 \cdot I_{z_2} - 1,0 \cdot I_{z_1}I_{z_2} \quad (4.99) \\ &= \begin{pmatrix} 0,10145 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -0,01761 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0,01761 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0,89855 \end{pmatrix} \stackrel{!}{=} \rho_{10}.\end{aligned}$$

Die Signaturen der gemessenen MQE-Spektren zeigen die erfolgreiche Implementierung der Transformationen $U_f^{\text{DC}}(f_{ijkl})$ des Deutsch-Algorithmus nach Collins für zwei Qubits durch Abbildung des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} auf die übrigen pseudoreinen Zustände ρ_{ij} .

4.5 Das CNOT-Gatter im N -Qubit-System

In diesem Kapitel wird die Umsetzung des CNOT-Gatters im Rahmen des S-Bus-Konzeptes unter Ausnutzung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} zwischen zwei Qubits I_j und I_k beschrieben. Die nachfolgenden Ausführungen gliedern sich wie folgt:

1. Rechnerische Darstellung der Implementierung der CNOT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System in Zusammenhang mit den zu erwartenden MQE-Spektren des zu detektierenden Ergebnis-Quantenzustandes.
2. Rechnerische Darstellung der Implementierung der INEPT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System als Vorstufe zur Umsetzung des CNOT-Gatters in Zusammenhang mit den zu erwartenden MQE-Spektren des zu detektierenden Ergebnis-Quantenzustandes.
3. Bestimmung der optimalen Evolutionszeiten τ_I unter der Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} zweier Qubits I_j und I_k in der INEPT- und CNOT-Sequenz.
4. Aufnahme der MQE-Spektren zur Dichtematrixtomographie bei Anwendung der INEPT- bzw. der CNOT-Sequenz auf pseudoreine Eingabezustände bzw. Zustände, die diesen ähnlich sind.

4.5.1 Rechnerische Darstellung der Implementierung der CNOT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System

Im Kapitel über die allgemeinen Grundlagen eines Quantencomputers wurde das CNOT-Gatter als reversible Erweiterung des NAND-Gatters für die Quanteninformationsverarbeitung mit zwei Qubits bereits vorgestellt. Ein Schalt-Bit y wird in Abhängigkeit eines Kontrollbits x durch das CNOT-Gatter nur dann „kontrolliert“ invertiert, wenn dieses einen bestimmten Wert besitzt. Im allgemeinen ist dies bei Anwendung auf einen Eingabezustand $|xy\rangle$ für einen $x = 1$ der Fall, wie auch im weiteren Verlauf dargestellt. Die unitäre Transformation U_{CNOT} besitzt dann die Matrix-Darstellung:

$$U_{\text{CNOT}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix}. \quad (4.100)$$

Eine einfache Realisierung des CNOT-Gatters mittels eines übergangsselektiven π -Pulses innerhalb eines Vier-Niveau-Systems zweier Qubits ist Rahmen der Umsetzung des S-Bus-Konzeptes hier in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ nicht umsetzbar, da nur eine qubits-elektive, also frequenzselektive, aber keine übergangsselektive Manipulation der Qubits möglich ist. Hier erfolgt die Umsetzung vielmehr unter Ausnutzung der Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{jk} zwischen zwei Qubits I_j und I_k innerhalb eines N -Qubit-S-Bus-Systems.

Abb. 4.28 zeigt eine zur Implementierung des CNOT-Gatters in einem N -Qubit-S-Bus-System geeignete ENDOR-Sequenz, die der Transformation U_{CNOT} entspricht.

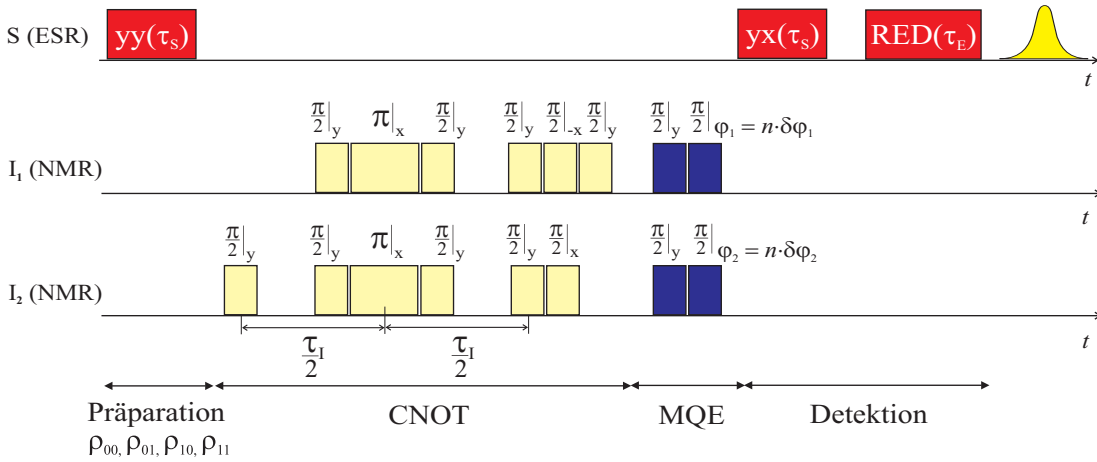


Abb. 4.28: ENDOR-Sequenz zur Implementierung des CNOT-Gatters in einem N -Qubit-S-Bus-System.

Ein mittels yy -Sequenz präparierter pseudoreiner Zustand ρ_{ij} wird durch U_{CNOT} gemäß der CNOT-Abbildungsvorschrift auf einen pseudoreinen Zustand ρ_{kl} transformiert, dessen Dichtematrix mittels yx -Sequenz und Remote-Echo-Detektion tomographiert wird. Details hierzu wurden bereits im Rahmen der MQE-Dichtematrixtomographie pseudoreiner Zustände in einem früheren Kapitel detailliert erklärt. Innerhalb der CNOT-Sequenz findet während der Zeit τ_I eine Evolution unter den Dipol-Dipol-Wechselwirkungen D_{jk} aller Qubits unter dem Zeitentwicklungsoperator $U_{jk}^D(\tau_I) = \exp(-i \sum_{j < k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} \tau_I)$ statt, die nach τ_I als Wechselwirkung nur zweier ausgewählter Qubits resultiert. Details hierzu sind der nachfolgend skizzierten Rechnung zu entnehmen. Die Auslegung der π -Refokussierungspulse als Composite-Pulse dient der Kompensation von B_2 -Inhomogenitäten der RF-Spule.

Die unitäre Transformation U_{CNOT} ist bei Anwendung beispielsweise auf die Qubits I_1 und I_2 gegeben durch:

$$\begin{aligned}
U_{\text{CNOT}} &= P_{y_1}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{x_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{x_1}\left(-\frac{\pi}{2}\right) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{y_1}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\
&\quad \cdot U_{jk}^D\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}^{\text{comp}}(\pi) P_{y_1}^{\text{comp}}(\pi) U_{jk}^D\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right), \text{ mit} \\
P_{x,y_j}\left(\frac{\pi}{2}\right) &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{x,y_j}\right), \\
P_{y_j}^{\text{comp}}(\pi) &= P_{y_j}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{x_j}(\pi) P_{y_j}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\
&= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{y_j}\right) \exp(-i\pi I_{x_j}) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{y_j}\right), \\
U_{jk}^D(t) &= \exp\left(-i\sum_{j<k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} t\right).
\end{aligned} \tag{4.101}$$

Daraus vereinfacht sich die Transformation U_{CNOT} zu:

$$\begin{aligned}
U_{\text{CNOT}} &= \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{z_1}\right) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{z_2}\right) \\
&\quad \cdot \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{x_2}\right) \exp(-iD_{12}I_{z_1}I_{z_2}\tau_I) \exp\left(-i\frac{\pi}{2}I_{y_2}\right).
\end{aligned}$$

Dies entspricht in einem hypothetischen 2-Qubit-System der Evolution der transienten Komponenten $I_{x,y_{1,2}}$ der beiden Qubits unter deren Dipol-Dipol-Wechselwirkung D_{12} während der Zeit τ_I . Die beiden ersten Phasenfaktoren, entsprechend einer z-Rotation von I_1 und I_2 jeweils um $\pi/2$, sind im Sinne der Quanteninformationsverarbeitung irrelevant.

Nachfolgend sind die einzelnen Dichtematrix-Transformationen der CNOT-Pulssequenz aus Abb. 4.28 aufgeführt: Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird die Anwendung des CNOT-Gatters auf die Qubits I_1 und I_2 betrachtet.

Die yy- bzw. yx-Sequenz generiert in einem N -Qubit-S-Bus-System in Abhängigkeit der S - I_j -Hyperfeinkopplung und der Evolutionszeit τ_S die Dichtematrix ρ_{yy} bzw. ρ_{yx} :

$$\begin{aligned}
\rho_{yy} &= U_{yy}(\tau_S) S_z U_{yy}(\tau_S)^{-1} \\
&= -S_z \text{Re} \left(\prod_{j=1}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) \\
&= -S_z \text{Re} \left(\left(c_1 c_2 \hat{1} + 2iI_{z_1} s_1 c_2 + 2iI_{z_2} c_1 s_2 - 4I_{z_1} I_{z_2} s_1 s_2 \right) \prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right)
\end{aligned} \tag{4.102}$$

$$\begin{aligned}
&= -S_z \left(\operatorname{Re} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) (c_1 c_2 \hat{1} - 4I_{z_1} I_{z_2} s_1 s_2) \right. \\
&\quad \left. + \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) (2I_{z_1} s_1 c_2 + 2I_{z_2} c_1 s_2) \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) ,
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\rho_{yx} &= U_{yx}(\tau_S) S_z U_{yx}(\tau_S)^{-1} \\
&= S_z \operatorname{Im} \left(\prod_{j=1}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) \\
&= -S_z \operatorname{Im} \left((c_1 c_2 \hat{1} + 2iI_{z_1} s_1 c_2 + 2iI_{z_2} c_1 s_2 - 4I_{z_1} I_{z_2} s_1 s_2) \prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) \\
&= -S_z \left(\operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) (c_1 c_2 \hat{1} - 4I_{z_1} I_{z_2} s_1 s_2) \right. \\
&\quad \left. + \operatorname{Re} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) (2I_{z_1} s_1 c_2 + 2I_{z_2} c_1 s_2) \right) \\
&= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} q_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} q_2 I_{z_2} + q_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right) ,
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
U_{yy} &= P_y^S \left(\frac{\pi}{2} \right) U_{SI}(\tau_S) P_y^S \left(\frac{\pi}{2} \right) \\
&= \exp(-i\frac{\pi}{2} S_y) \exp(-i \sum_j S_z a_j I_{z_j} \tau_S) \exp(-i\frac{\pi}{2} S_y)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
U_{yx} &= P_x^S \left(\frac{\pi}{2} \right) U_{SI}(\tau_S) P_y^S \left(\frac{\pi}{2} \right) \\
&= \exp(-i\frac{\pi}{2} S_x) \exp(-i \sum_j S_z a_j I_{z_j} \tau_S) \exp(-i\frac{\pi}{2} S_y)
\end{aligned}$$

$$c_j = \cos\left(\frac{a_j \tau_S}{2}\right), \quad s_j = \sin\left(\frac{a_j \tau_S}{2}\right),$$

$$p_1 = 2s_1 c_2 \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right), \quad q_1 = 2s_1 c_2 \operatorname{Re} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right)$$

$$p_2 = 2c_1 s_2 \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right), \quad q_2 = 2c_1 s_2 \operatorname{Re} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right)$$

$$p_{12} = 4s_1s_2 \operatorname{Re} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right), \quad q_{12} = -4s_1s_2 \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right).$$

Die rechnerische Bestimmung der Vorzeichen der Koeffizienten q_j geschieht wie folgt: Bei bekannter Größe der S - I_j -Wechselwirkung a_j kann die Evolutionszeit τ_S so gewählt werden, dass die Koeffizienten c_j und s_j alle größer Null sind. Trotzdem können die Terme $\operatorname{Re}, \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N e^{+ia_j I_{z_j} \tau_S} \right)$ positiv oder negativ sein. Wenn weiterhin experimentell aus den MQE-Spektren bestätigt wurde, dass in der Dichtematrix ρ_{yy} auch die Werte von p_j gleiches Vorzeichen besitzen, gilt:

$$\operatorname{Re}, \operatorname{Im} \left(\prod_{j=3}^N \exp(+ia_j I_{z_j} \tau_S) \right) > 0, \text{ wenn} \quad (4.103)$$

$$s_j > 0, \quad c_j > 0, \quad p_j > 0.$$

Hieraus folgt dann, dass für die Operatorkoeffizienten der Dichtematrix ρ_{yx} gilt:

$$q_1 > 0, \quad q_2 > 0, \quad q_{12} < 0. \quad (4.104)$$

Anschließend an die yy -Sequenz werden gegebenenfalls mit einer Korrektursequenz die Dichtematrix ρ_{yy} auf pseudoreine Zustände $\rho_P(p_j) = \rho_{ij}$ transformiert. Das CNOT-Gatter bildet diese auf ρ_{CNOT} ab:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{CNOT}} &= U_{\text{CNOT}} \rho_P(p_j) U_{\text{CNOT}}^{-1} \\ &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_{12} I_{z_2} \sin\left(\frac{D_{12} \tau_I}{2}\right) + \frac{1}{2} p_2 I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{D_{12} \tau_I}{2}\right) \right). \end{aligned} \quad (4.105)$$

Charakteristisch ist hierbei der Korrelationstransfer $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ durch die CNOT-Transformation in Abhängigkeit von $\sin(D_{12} \tau_I / 2)$. Für $\tau_I = \pi / D_{12}$ erhält man somit:

$$\rho_{\text{CNOT}} = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_{12} I_{z_2} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_1} I_{z_2} \right). \quad (4.106)$$

Dies entspricht für $p_j = 1$ der Transformation der pseudoreinen Zustände ρ_{ij} gemäß der Abbildungsvorschrift des CNOT-Gatters auf einen Ergebniszustand ρ_{CNOT} :

$$\begin{aligned}
U_{\text{CNOT}} \rho_{00} U_{\text{CNOT}}^{-1} &= \rho_{00} , \\
U_{\text{CNOT}} \rho_{01} U_{\text{CNOT}}^{-1} &= \rho_{00} , \\
U_{\text{CNOT}} \rho_{10} U_{\text{CNOT}}^{-1} &= \rho_{11} , \\
U_{\text{CNOT}} \rho_{11} U_{\text{CNOT}}^{-1} &= \rho_{10} .
\end{aligned} \tag{4.107}$$

Das CNOT-Gatter wandelt somit den geraden Korrelationsgrad eines mittels yy -Sequenz präparierten Zustandes in einen ungeraden Korrelationsgrad um, bzw. auch umgekehrt. Daher muss in der Dichtematrixtomographie des Zustandes ρ_{CNOT} die an die MQE-Sequenz anschließende Remote-Echo-Detektion (RED) eine yx -Detektionssequenz angewandt werden. Dies begründet sich darin, dass nur Produkte gleicher Korrelationen bei der Spurbildung $\text{Tr}(S_z \rho_{\text{out}})$ des Messprozesses nicht Null ergeben. Analog zur Dichtematrixtomographie pseudoreiner Zustände erhält man schließlich als Messsignal nach MQE- und RED-Sequenz in Abhängigkeit der MQE-Phasenwinkel $\varphi_{1;2}$:

$$A_{\text{CNOT}}^S = \frac{1}{4} (1 + p_1 q_1 \cos \varphi_1 + p_{12} q_2 \cos \varphi_2 + p_2 q_{12} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2) . \tag{4.108}$$

Die Linienhöhen bei den Phasenfrequenzen ν_{φ_1} , ν_{φ_2} und $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ des zugehörigen MQE-Spektrums entsprechen damit dem Koeffizienten $p_j q_k$. Zur Bestimmung derselben muss wie bei der Dichtematrixtomographie pseudoreiner Zustände eine Messung ohne und mit Anwendung der CNOT-Transformation durchgeführt werden. Erstere liefert die MQE-Spektren einer Dichtematrix $\rho_P(p_j)$ und somit die Koeffizienten p_j , letztere die Spektren von $\rho_{\text{CNOT}}(p_j q_k)$, vergleichbar der Bestimmung von $\tilde{\rho}(\tilde{p}_j)$. Details zur Dichtematrixtomographie finden sich in dem zugehörigen Kapitel 4.1.4.

Die in Abb. 4.29 dargestellten, theoretisch erwarteten MQE-Spektren zeigen die Signaturen der Dichtematrixtomographie bei Anwendung des CNOT-Gatters auf die pseudoreinen Zustände ρ_{ij} , jeweils für $\sin(D_{12}\tau_I/2) = \pm 1$.

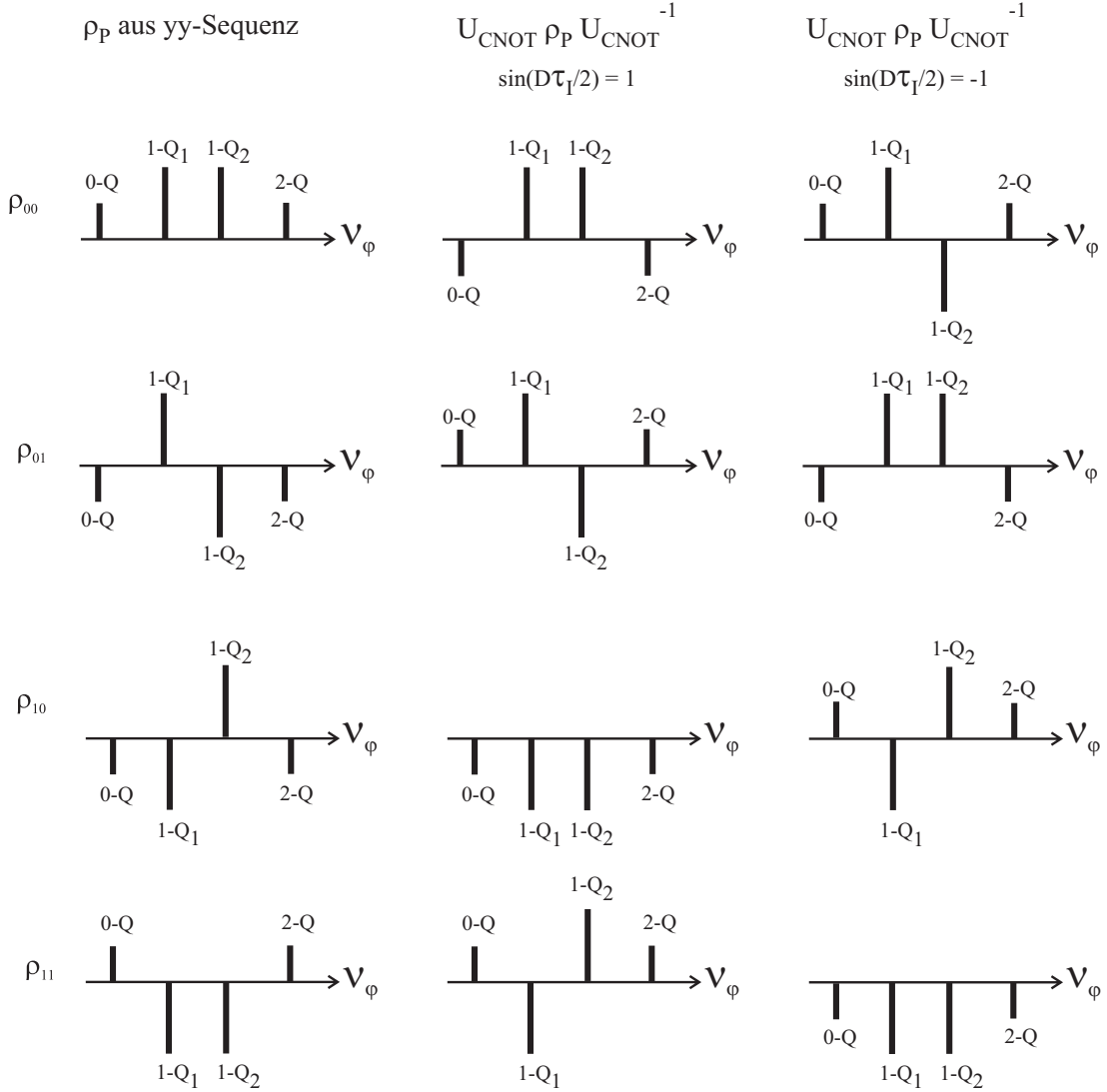


Abb. 4.29: Signaturen der theoretischen MQE-Spektren der pseudoreinen Eingabezustände ρ_{ij} (links) und der Ergebnis-Zustände ρ_{CNOT} bei Anwendung der CNOT-Transformation. Die MQE-Signaturen der Dichtematrixtomographie, bestehend aus MQE-, yx- und Remote-Echo-Detektion, sind für $\tau_I = \pi/D_{12}$ mit $\sin(D_{12}\tau_I/2) = 1$ (Mitte) und für $\tau_I = 3\pi/D_{12}$ mit $\sin(D_{12}\tau_I/2) = -1$ (rechts) dargestellt. Aufgetragen sind jeweils die Linien der 0-, 1- und 2-Quantenkorrelationen über der Phasenfrequenz ν_φ .

4.5.2 Rechnerische Darstellung der Implementierung der INEPT-Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System als Vorstufe zur Umsetzung des CNOT-Gatters

Zur Demonstration des Korrelationstranfers $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ des CNOT-Gatters nach dem S-Bus-Konzept ist auch eine Anwendung der INEPT-Sequenz [99] (Abb. 4.30) möglich, deren unitäre Transformation zwar nicht exakt dem CNOT-Gatter entspricht, jedoch die Implementierbarkeit desselben beweist. Aus Gründen der möglichen Akkumulation von Pulsfehlern aufgrund imperfekter Pulse in komplizierteren Sequenzen wurde zunächst die INEPT-Sequenz als Vorstufe zur Implementierung des CNOT-Gatters experimentell umgesetzt.

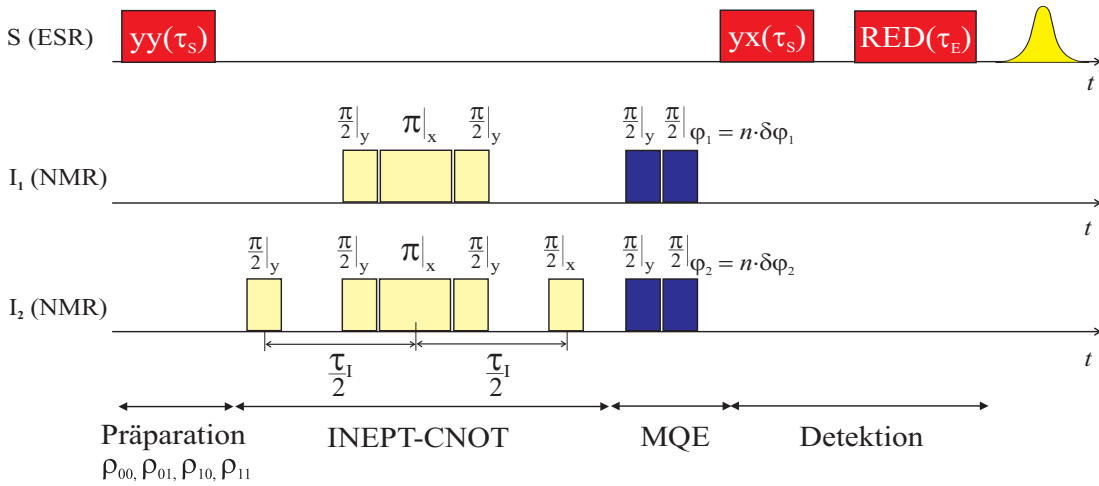


Abb. 4.30: INEPT-Sequenz zur Demonstration der Implementierbarkeit der CNOT-Operation. Die INEPT-Sequenz führt zu einer ähnlichen Transformation in einem N -Qubit-S-Bus-System zur Verifikation des Korrelationstranfers $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$. Resultierend findet in einem N -Qubit-S-Bus-System wieder eine Phasenevolution nur unter der Wechselwirkung D_{12} zweier ausgewählter Spins $I_{1,2}$ statt.

Die zugehörige unitäre Transformation $U_{\text{INEPT}}(D_{jk}, \tau_I)$ erzeugt bei Anwendung auf einen gegebenenfalls pseudoreinen Zustand $\rho_{yy} = \rho_P(p_j) = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right)$ ebenfalls wie die CNOT-Operation einen Korrelationstransfer. Die Dichtematrix ρ_{INEPT} , die man unter Anpassung der Evolutionszeit $\tau_I = \pi / D_{12}$ vor MQE-, yx -Detektion und Remote-Echo-Detektion erhält, lautet:

$$\begin{aligned}\rho_{\text{INEPT}} &= U_{\text{INEPT}}(D_{jk}, \tau_I) \rho_{\text{P}}(p_j) U_{\text{INEPT}}(D_{jk}, \tau_I)^{-1} \quad (4.109) \\ &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} - \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} - \frac{1}{2} p_{12} I_{z_2} + p_2 I_{z_1} I_{z_2} \right), \text{ mit}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}U_{\text{INEPT}}(D_{jk}, \tau_I) &= P_{x_2} \left(\frac{\pi}{2} \right) U_{jk}^D \left(\frac{\tau_I}{2} \right) P_{y_1}^{\text{comp}}(\pi) P_{y_2}^{\text{comp}}(\pi) U_{jk}^D \left(\frac{\tau_I}{2} \right) P_{y_2} \left(\frac{\pi}{2} \right) \\ P_{x,y_j} \left(\frac{\pi}{2} \right) &= \exp \left(-i \frac{\pi}{2} I_{x,y_j} \right), \\ P_{y_j}^{\text{comp}}(\pi) &= P_{y_j} \left(\frac{\pi}{2} \right) P_{x_j}(\pi) P_{y_j} \left(\frac{\pi}{2} \right) \\ &= \exp \left(-i \frac{\pi}{2} I_{y_j} \right) \exp \left(-i \pi I_{x_j} \right) \exp \left(-i \frac{\pi}{2} I_{y_j} \right), \\ U_{jk}^D(t) &= \exp \left(-i \sum_{j < k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} t \right).\end{aligned}$$

Die Dichtematrix ρ_{INEPT} unterscheidet sich von ρ_{CNOT} in den Vorzeichen von p_2 und p_{12} . Die MQE-Sequenz, die yx- und Remote-Echo-Detektion transformiert ρ_{INEPT} auf die Ausgabe-Dichtematrix ρ_{out} . Letztlich erhält man somit als Messsignal $A_{\text{INEPT}}^{\text{S}}$:

$$\begin{aligned}A_{\text{INEPT}}^{\text{S}} &= \text{Tr}(S_z \rho_{\text{out}}) \quad (4.110) \\ &= \frac{1}{4} (1 - p_1 q_1 \cos \varphi_1 - p_{12} q_2 \cos \varphi_2 + p_2 q_{12} \cos \varphi_1 \cos \varphi_2).\end{aligned}$$

Die Linienhöhen bei den Phasenfrequenzen ν_{φ_1} , ν_{φ_2} und $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ des zugehörigen MQE-Spektrums entsprechen damit, wie im vorangegangenen Kapitel dargestellt, den Koeffizienten $p_j q_k$. Zur Bestimmung derselben muss auch hier bei der Dichtematrixtomographie eine Messung ohne und mit Anwendung der INEPT-Transformation durchgeführt werden. Erstere liefert die MQE-Spektren einer Dichtematrix $\rho_{\text{P}}(p_j)$ und somit die Koeffizienten p_j , letztere die Spektren von $\rho_{\text{INEPT}}(p_j q_k)$.

Die in Abb. 4.31 dargestellten MQE-Spektren zeigen die Ergebnisse der Dichtematrixtomographie bei Anwendung der INEPT-Transformation auf die pseudoreinen Zustände ρ_{ij} , jeweils für $\sin(D_{12}\tau_I/2) = \pm 1$. Hierbei wurde wieder vorausgesetzt, dass

$$\begin{aligned}p_1 > 0, \quad p_2 > 0, \quad p_{12} > 0, \quad \text{und} \quad (4.111) \\ q_1 > 0, \quad q_2 > 0, \quad q_{12} < 0.\end{aligned}$$

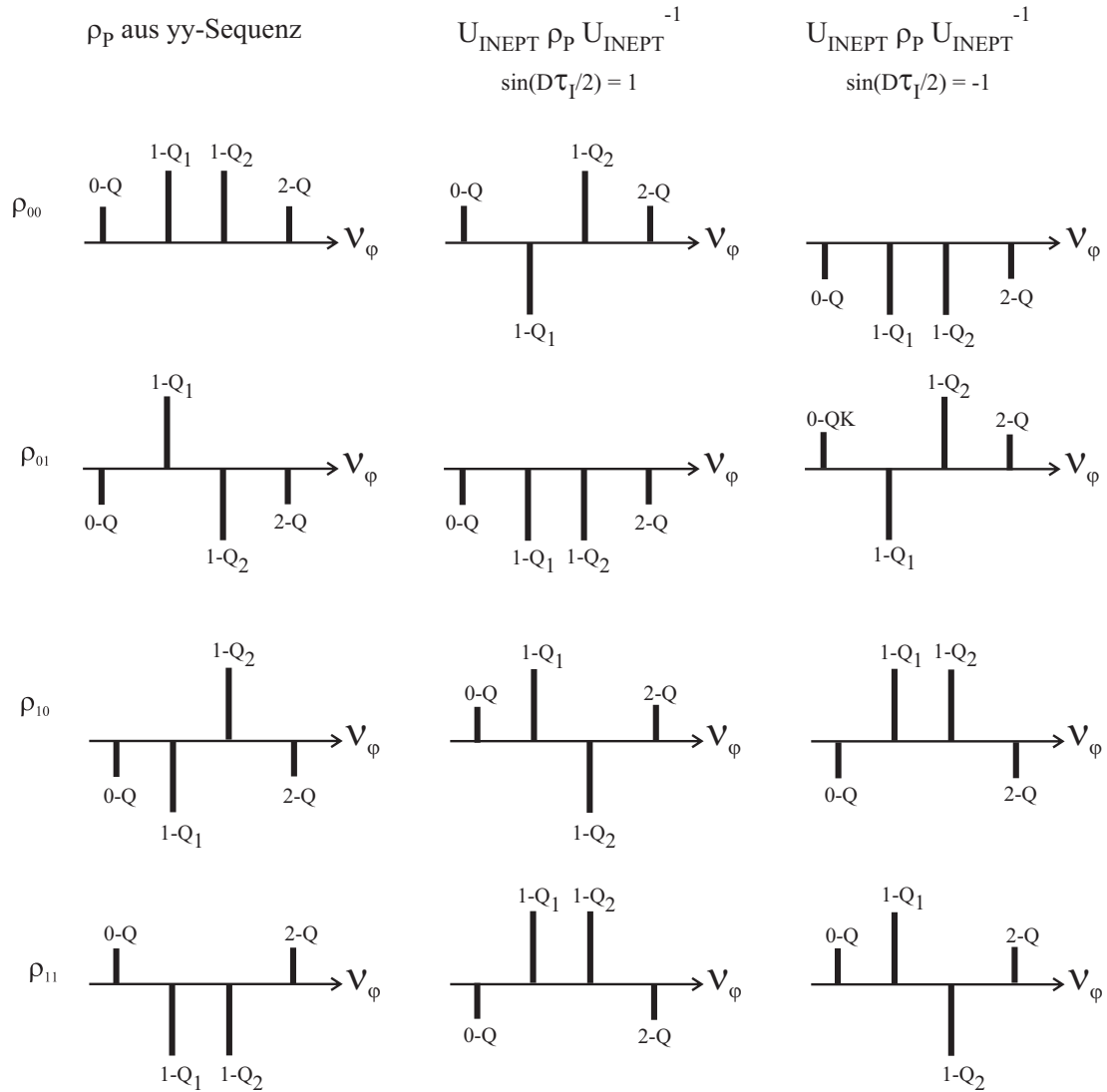


Abb. 4.31: Signaturen der theoretischen MQE-Spektren der pseudoreinen Eingabezustände ρ_{ij} (links) und der Ergebnis-Zustände ρ_{INEPT} bei Anwendung der INEPT-Transformation. Die MQE-Spektren der Dichtematrixtomographie, bestehend aus MQE-, yx- und Remote-Echo-Detektion, sind für $\tau_I = \pi/D_{12}$ mit $\sin(D_{12}\tau_I/2) = 1$ (Mitte) und $\tau_I = 3\pi/D_{12}$ mit $\sin(D_{12}\tau_I/2) = -1$ (rechts) dargestellt. Aufgetragen sind jeweils die Linien der 0-, 1- und 2-Quantenkorrelationen über der Phasenfrequenz ν_φ .

4.5.3 Bestimmung der optimalen Evolutionszeiten τ_I in der INEPT- und CNOT-Sequenz

Die rechnerische Bestimmung der geeigneten Evolutionszeit τ_I in der CNOT-Sequenz für einen optimalen Korrelationstransfer $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ ist in einem derart komplexen Spin-System wie CaF₂:Ce extrem aufwändig, da die Evolution des gesamten S-Bus-Systems unter allen möglichen Spin-Spin-Wechselwirkungen sowohl während der freien Evolutionszeit τ_I als auch während der endlichen Pulsdauern mit berücksichtigt werden müsste. Daher wurden die τ_I -Werte experimentell anhand der INEPT- und CNOT-Sequenz (Abb. 3.32) mittels Sublevel-Echomodulationen durch Inkrementierung von τ_I bestimmt. Der Vorteil besteht dabei darin, dass in den resultierenden Oszillationen die vollständige Dynamik aller Spins des S-Bus-Systems bereits enthalten ist. Ein Vergleich der Berechnung von τ_I mit den experimentellen Werten erfolgt in Zusammenhang mit der Auswertung dieser Messungen.

Die τ_I -Inkrementierung in der INEPT- und in der CNOT-Sequenz erzeugt, wie bereits im Kapitel der Charakterisierung von CaF₂:Ce dargelegt, jeweils eine Sublevel-Echomodulation. Zunächst zur INEPT-Sequenz: Je nach Phasenlage des Rückschreibepulses $P_{x,y_2}(\frac{\pi}{2})$ (Abb. 4.32 oben) wird aus der zuvor präparierten Dichtematrix $\rho_P(p_j) = S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} + \frac{1}{2} p_1 I_{z_1} + \frac{1}{2} p_2 I_{z_2} + p_{12} I_{z_1} I_{z_2} \right)$ ein *Sinus-* oder *Cosinus-Anteil* generiert. Der Zustand ρ_P wird dabei im nachfolgenden Beispiel der RF-Einstrahlung auf $I_{1,2}$ auf die Dichtematrizen $\rho_{\text{QB}}^{\text{cos,sin}}$ transformiert. Diese besitzen in Abhängigkeit der Phase des Rückschreibepulses, der Qubit-Qubit-Wechselwirkung D_{12} und der Evolutionszeit τ_I folgende Form:

$$P_{y_2}(\frac{\pi}{2})\text{-Rückschreibepuls :} \quad (4.112)$$

$$\begin{aligned} \rho_{\text{QB}}^{\text{cos}}(\tau_I) &= U_{\text{INEPT}}^{\text{cos}} \rho_P(p_j) U_{\text{INEPT}}^{\text{cos}^{-1}} \\ &= S_z \left[c_0 \hat{1} + c_1 I_{z_1} \cos\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) + c_2 I_{z_2} + \dots \right. \\ &\quad \left. + c_{12} I_{z_1} \cos\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) I_{z_2} + \dots + c_N I_{z_1} \cos\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) I_{z_2} \dots I_{z_N} \right], \text{ mit} \end{aligned}$$

$$U_{\text{INEPT}}^{\text{cos}} = P_{y_2}(\frac{\pi}{2}) U_{12}^{\text{D}}(\frac{\tau_I}{2}) P_{y_2}^{\text{comp}}(\pi) P_{y_1}^{\text{comp}}(\pi) U_{12}^{\text{D}}(\frac{\tau_I}{2}) P_{y_2}(\frac{\pi}{2}),$$

$$P_{x_2}(\frac{\pi}{2})\text{-Rückschreibepuls :}$$

$$\rho_{\text{QB}}^{\text{sin}}(\tau_I) = U_{\text{INEPT}}^{\text{sin}} \rho_P(p_j) U_{\text{INEPT}}^{\text{sin}^{-1}}$$

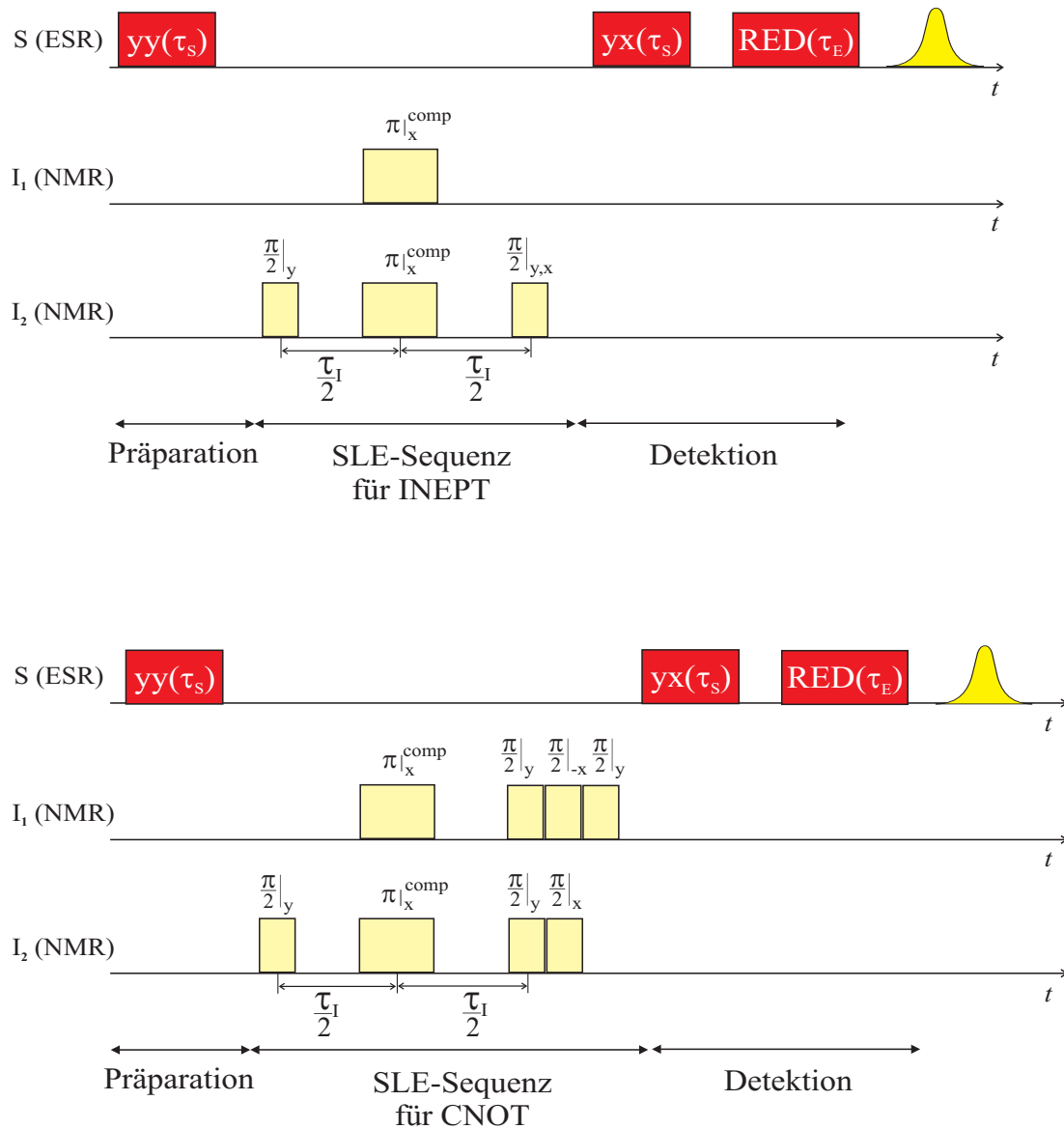


Abb. 4.32: ENDOR-Sequenzen zur Aufnahme der Sublevel-Echomodulation zur Bestimmung der optimalen Evolutionszeit τ_I in der INEPT- (oben) und CNOT-Transformation (unten): Ausgehend von einem präparierten, gegebenenfalls pseudoreinen Multi-Quantenkorrelationszustand ρ_P wird mittels der $\frac{\pi}{2}$ - π^{comp} -RF-Sequenz ein Kernspin-Sublevel-Echo erzeugt, das in der oberen Sequenz anhand eines $\frac{\pi}{2}$ -Rückschreibepuls $P_{x,y_2}(\frac{\pi}{2})$ – mit relativer Phasenlage von 0° bzw. 90° – indirekt über die S -Spin-Echohöhe detektiert wird. Diese spiegelt bei τ_I -Inkrementierung den Cosinus-, bzw. Sinus-Anteil der Sublevel-Echomodulation bezüglich der INEPT-Sequenz wider. Die untere, τ_I -inkrementierte CNOT-Sequenz erzeugt generell den Sinus-Anteil. Die π -Refokussierungspulse sind dabei jeweils als Composite- π -Pulse ausgelegt.

$$= S_z |c_0 \hat{1} + c_1 2I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) + c_2 I_{z_2} + \dots \\ + c_{12} 2I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) I_{z_2} + \dots + c_N 2I_{z_1} I_{z_2} \sin\left(\frac{D_{12}}{2} \tau_I\right) I_{z_2} \dots I_{z_N} \rangle, \text{ mit}$$

$$U_{\text{INEPT}}^{\text{sin}} = P_{x_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) U_{12}^{\text{D}}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}(\pi) P_{y_1}(\pi) U_{12}^{\text{D}}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right).$$

Die Modulationen der S -Spin-Echohöhe bei τ_I -Inkrementierung spiegeln mit der Periodizität $D_{12}/2$ die Kopplung zwischen den Qubits I_1 und I_2 in Abhängigkeit von τ_I wider. Die Extrema der Sinus-Oszillation liefert somit die zur Implementierung des CNOT-Gatters geeigneten Evolutionszeiten τ_I . Für diese findet der nötige Korrelationstransfer $I_{z_2} \Leftrightarrow I_{z_1} I_{z_2}$ statt. Daher wurde zunächst der Nachweis des Korrelationstransfers als Messung dieser Sinus-Oszillation anhand der INEPT-Sequenz aus Abb. 4.30 mit yy-Präparation und yx-Detektion erbracht. Nachfolgend sind hierzu die experimentellen Ergebnisse aufgeführt.

Abb. 4.33 zeigt die mit der in Abb. 4.32 dargestellten Pulssequenzen gemessenen Sublevel-Echomodulationen bei Einstrahlung auf den Qubit-Übergängen mit den Frequenzen ν_2 und ν_{11} , korrespondierend mit den Fluor-Kernspins $F_5^{(+)}$ und $F_6^{(+)}$ des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$ des tetragonalen y-Zentrums in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ (Abb. 3.3). In der nachfolgenden Tabelle sind die aus Abb. 4.33 den Extrema der Cosinus- und Sinusoszillationen entsprechenden Evolutionszeiten entnommenen Werte von τ_I aufgeführt. Die in Klammern angegebenen Werte entsprechen den berechneten Extrema reiner Cosinus- und Sinus-Terme.

Sequenz	1. Extremum	2. Extremum	3. Extremum
yy-INEPT (cos)	— (0 μs)	68 μs (84 μs)	152 μs (168 μs)
yx-INEPT (sin)	28 μs (42 μs)	112 μs (126 μs)	196 μs (210 μs)
yx-CNOT (sin)	18 μs (42 μs)	96 μs (126 μs)	180 μs (210 μs)

Aus den Abweichungen berechneter und gemessener τ_I -Werte der Extrema von Cosinus- und Sinus-Oszillationen zeigt sich der erhebliche Einfluss der Spindynamik während der Einstrahlung der RF-Pulse, die zu einer deutlichen Phasenverschiebung der Modulationen in den Experimenten führt. Die Detektion einer Sinus-Oszillation zeigt somit den erfolgreichen Korrelationstransfer $I_{z_2} \Leftrightarrow I_{z_1} I_{z_2}$, der die Implementierbarkeit des CNOT-Gatters nach dem S-Bus-Konzept beweist.

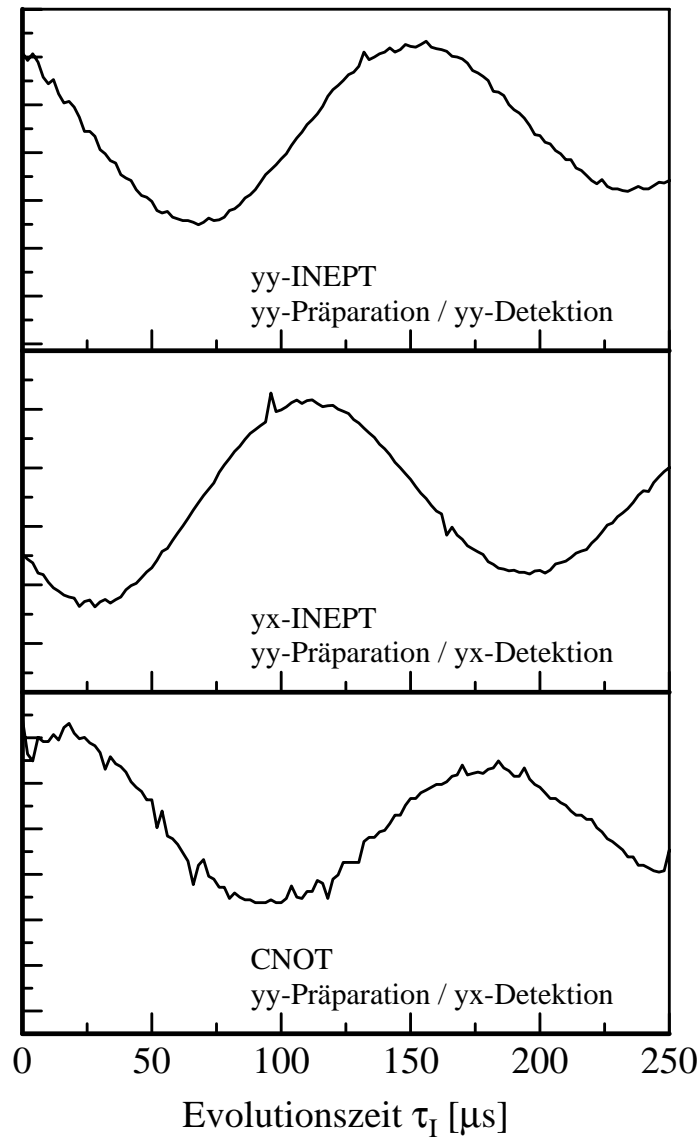


Abb. 4.33: Sublevel-Echomodulationen bei Anwendung der INEPT- und CNOT-Sequenzen aus Abb. 4.32. Aufgetragen ist die S -Spin-Echohöhe in Abhängigkeit der inkrementierten Evolutionszeit τ_I .

Oben: Cosinus-Oszillation bei Anwendung der INEPT-Sequenz mit $P_y(\frac{\pi}{2})$ -Rückschreibepuls;

Mitte: Sinus-Oszillation bei Anwendung der INEPT-Sequenz mit $P_x(\frac{\pi}{2})$ -Rückschreibepuls;

unten: Sinus-Oszillation bei Anwendung der CNOT-Sequenz.

Messdaten: $\nu_S = 9,380124$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41062$ T; $\tau_S = 60$ ns; ENDOR-Frequenzen: $\nu_2 = 12,7587$ MHz; $\nu_{11} = 19,4930$ MHz; $\tau_I = 2n \cdot \delta t$; $\delta t = 1$ μ s; $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

4.5.4 Dichtematrixtomographie bei Anwendung der INEPT- bzw. der CNOT-Sequenz

Die für einen bestmöglichen Korrelationstransfer $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ optimale Evolutionszeit wurde im vorangegangenen Kapitel bei Anwendung der INEPT-Sequenz zu $\tau_I = 28 \mu\text{s}$, bzw. $\tau_I = 18 \mu\text{s}$ für die CNOT-Sequenz bestimmt; jeweils bei RF-Einstrahlung auf den ENDOR-Übergängen der Fluor-Kernspins $F_5^{(+)}$ und $F_6^{(+)}$ des elektronischen Zustandes $|m_s\rangle = |+\frac{1}{2}\rangle$, korrespondierend mit den ENDOR-Frequenzen ν_2 und ν_{11} in Abb. 3.29.

In diesem Kapitel sind die MQE-Spektren der Dichtematrixtomographie bei Anwendung der INEPT- und der CNOT-Sequenz für die optimalen τ_I -Werte aufgeführt. Auf eine quantitative Auswertung wurde an dieser Stelle verzichtet, so dass als Eingabe-Zustände ρ_P Dichtematrizen präpariert wurden, die den pseudoreinen Zuständen ähnlich sind. Diese besitzen dieselbe Operatorstruktur und auch die gleichen Vorzeichen der Operatorkoeffizienten p_j , jedoch weichen letztere leicht von deren Sollwert ab. Hier soll also lediglich auf die typischen Signaturen in den jeweiligen MQE-Spektren hingewiesen werden. Hierzu sind in den gemessenen MQE-Spektren die Signaturen der theoretisch zu erwartenden Spektren eingezeichnet.

Abb. 4.34 zeigt die MQE-Spektren der mittels yy-Sequenz und Inversionstransformation $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$ präparierten Dichtematrix ρ_P . Diese weisen die gleiche Signatur wie die pseudoreinen Zustände ρ_{ij} auf, jedoch aufgrund der nicht angewandten Korrektursequenz nicht das Linienhöhenverhältnis 1:2:2:1. Daher werden die vier den pseudoreinen Zuständen ähnlichen Dichtematrizen hier mit $\tilde{\rho}_{00}$, $\tilde{\rho}_{01}$, $\tilde{\rho}_{10}$ und $\tilde{\rho}_{11}$ bezeichnet.

Diese Messung zeigen, dass gemäß der vorangegangenen Ausführungen bei Anwendung von yy- und yx-Sequenz in Präparation und Detektion davon ausgegangen werden kann, dass für $\tau_S = 32 \text{ ns}$

$$\begin{aligned} p_1 > 0 ; p_2 > 0 ; p_{12} > 0 \quad \text{und} & \quad (4.113) \\ q_1 > 0 ; q_2 > 0 ; q_{12} < 0 \end{aligned}$$

vorausgesetzt werden darf.

Diese Zustände $\rho_P = \tilde{\rho}_{ij}$ dienen nachfolgend als Eingabe-Zustände zur Anwendung der INEPT- und der CNOT-Transformation. Deren zugehörige MQE-Spektren sind in Abb. 4.35 und 4.36 dargestellt.

Die aufgeführten MQE-Spektren zeigen die erwarteten Signaturen und beweisen daher die Implementierung des CNOT-Gatters sowie dessen Vorstufe der INEPT-Sequenz.

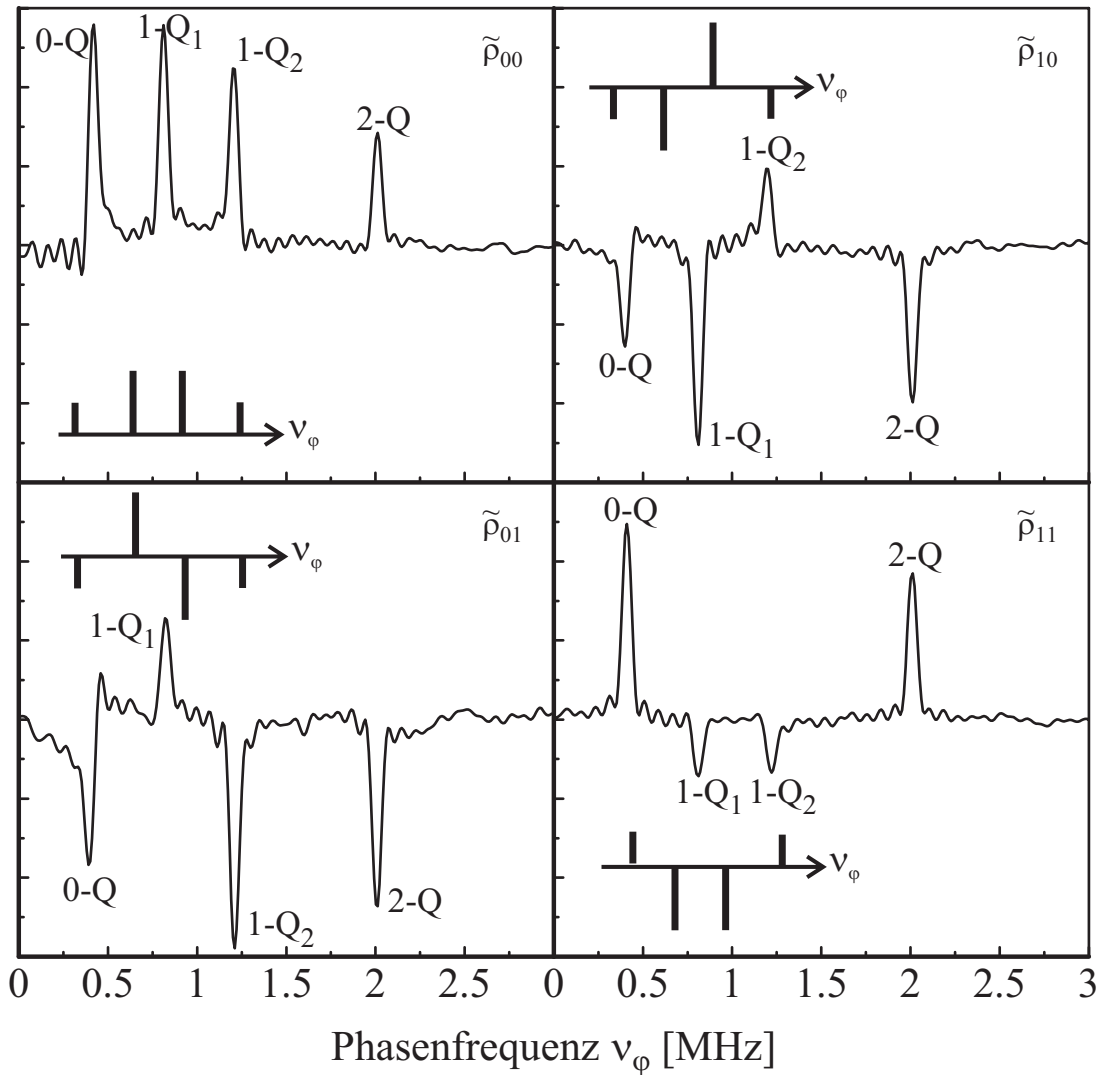


Abb. 4.34: MQE-Spektren der Dichtematrizen $\rho_P = \tilde{\rho}_{ij}$, präpariert mit yy - Sequenz und Inversionstransformation $U_{(\pm)}^{\text{inv}j}$. Diese zeigen für $\tau_S = 32$ ns prinzipiell die gleiche Signatur wie die pseudoreinen Zustände ρ_{ij} und besitzen daher eine identische Operatorstruktur mit ähnlichen Operatorkoeffizienten $p_j \approx 1$. Die theoretisch erwarteten Signaturen sind schematisch in die Diagramme eingezeichnet.

Messdaten: $\nu_S = 9,392566$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41090$ T; $\tau_S = 32$ ns; ENDOR-Frequenzen: $F_7^{(+)}$: $\nu_{15} = 20,5770$ MHz; $F_3^{(+)}$: $\nu_{16} = 20,7912$ MHz; $D_{37} = 5,56$ kHz; $\tau_I = 60$ μ s; Phasenfrequenzen: $\nu_{\phi_1} = 0,8$ MHz; $\nu_{\phi_2} = 1,2$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; Euler-Winkel: $\vartheta = 71,71^\circ$; $\varphi = 8,99^\circ$; T = 8 K.

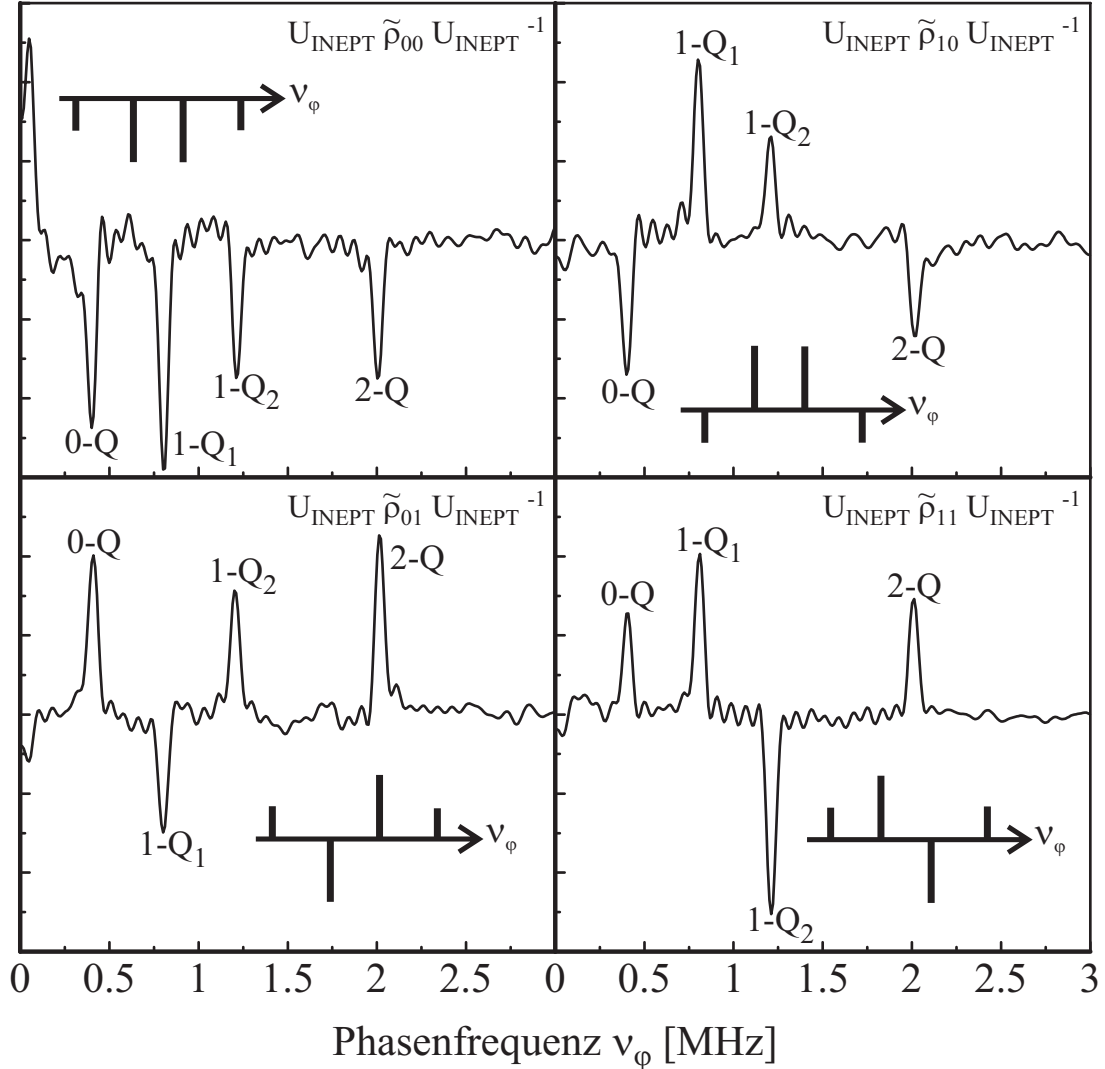


Abb. 4.35: MQE-Spektren der Dichtematrizen ρ_{INEPT} bei Anwendung der INEPT-Sequenz aus Abb. 4.30 mit $\sin \frac{D_{12}\tau_I}{2} = -1$ auf die Zustände ρ_P aus Abb. 4.34. Die theoretisch erwarteten Signaturen sind schematisch in die Diagramme eingezeichnet.

Messdaten: $\nu_S = 9,392566$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41090$ T; $\tau_S = 32$ ns; ENDOR-Frequenzen: $F_7^{(+)}$: $\nu_{15} = 20,5770$ MHz; $F_3^{(+)}$: $\nu_{16} = 20,7912$ MHz; $D_{37} = 5,56$ kHz; $\tau_I = 60$ μ s; Phasenfrequenzen: $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; Euler-Winkel: $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

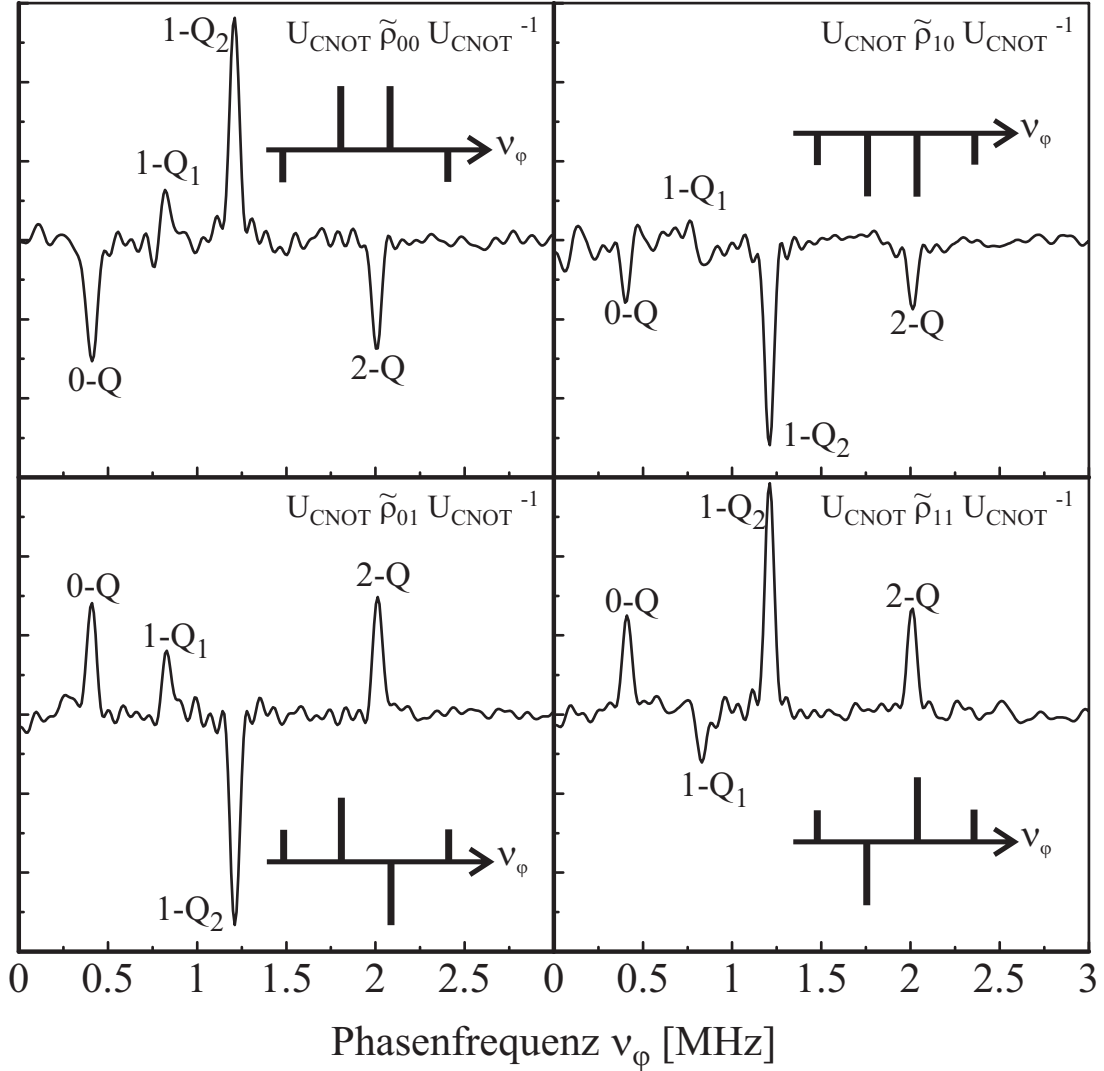


Abb. 4.36: MQE-Spektren der Dichtematrizen ρ_{CNOT} bei Anwendung der CNOT-Sequenz aus Abb. 4.28 mit $\sin \frac{D_{12}\tau_I}{2} = 1$ auf die Zustände ρ_P aus Abb. 4.34. Die theoretisch erwarteten Signaturen sind schematisch in die Diagramme eingezeichnet.

Messdaten: $\nu_S = 9,392566$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41090$ T; $\tau_S = 32$ ns; ENDOR-Frequenzen: $F_7^{(+)}$: $\nu_{15} = 20,5770$ MHz; $F_3^{(+)}$: $\nu_{16} = 20,7912$ MHz; $D_{37} = 5,56$ kHz; $\tau_I = 18$ μ s; Phasenfrequenzen: $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz; $\delta t' = 100$ ns; Euler-Winkel: $\vartheta = 71,71^\circ$; $\varphi = 8,99^\circ$; T = 8 K.

4.6 Einstein-Podolski-Rosen-Zustand $|\Psi^-\rangle$

Die Präparation verschränkter Zustände bildet den Kern eines Quantencomputers. Nachdem im Rahmen dieser Arbeit die Präparation von Superpositionen der Qubit-Quantenzustände und die Umsetzung des CNOT-Gatters nach dem S-Bus-Konzept erfolgreich demonstriert werden konnten, wird in diesem Kapitel die Präparation und Detektion des verschränkten Zustandes $|\Psi^-\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|01\rangle - |10\rangle)$ gezeigt.

In Abb. 4.37 ist das allgemeine Blockschaltbild zur Erzeugung des verschränkten EPR-Zustandes dargestellt. Ausgehend vom pseudoreinen Zustand $|11\rangle$ wird durch Anwendung einer superpositionserzeugenden Hadamard-Transformation und der nachfolgenden Anwendung eines CNOT-Gatters der EPR-Zustand $|\Psi^-\rangle$ generiert.

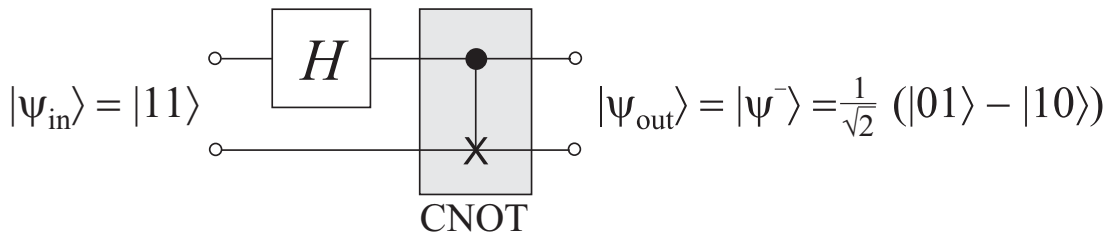


Abb. 4.37: Blockschaltbild zur Präparation des EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$, bestehend aus einer Hadamard-Transformation H und einem CNOT-Gatter.

Die drei weiteren verschränkten Zwei-Qubit-Zustände $|\Phi^\pm\rangle$ und $|\Psi^+\rangle$ erhält man durch Eingabe eines anderen pseudoreinen Zustandes, bzw. durch entsprechende Vertauschung der Anwendung der Hadamard-Transformation auf den Qubits I_1 oder I_2 .

Hier wird die experimentelle Präparation eines verschränkten Zustandes in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ am Beispiel des EPR-Paares $|\Psi^-\rangle$ demonstriert. Die Umsetzung erfolgt mit der in Abb. 4.38 dargestellten Pulssequenz, wobei in diesem Fall der pseudoreine Zustand ρ_{00} der Eingabezustand ist. Diese Sequenz besteht aus einer Multiquantenkorrelation generierenden yy -Sequenz, verbunden mit Korrekturpulsen zur Erzeugung des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} , der anschließend durch die RF-Verschränkungssequenzen auf den Zustand $|\Psi^-\rangle$ transformiert wird. Die Tomographie der Verschränkung erfolgt durch eine zur Präparation nahezu inverse Transformation, deren Phase wie bei der MQE-Dichtematrix-Tomographie individuell auf jedem Qubit-Kanal I_j sukzessive um einen Phasenwinkel $\varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j$, $\delta\varphi_j = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot \delta t'$ mit einer Phasenfrequenz ν_{φ_j} in Abhängigkeit der virtuellen Zeit t' inkrementiert wird. Letztlich wird wieder mit einer yx -Sequenz und Remote-Echo-Detektion das S-Spin-Echo in Abhängigkeit der

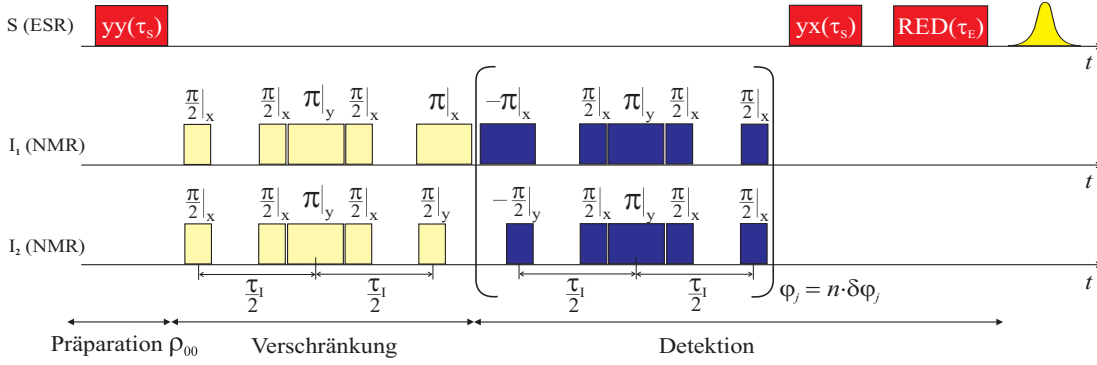


Abb. 4.38: Präparations- und Detektionssequenz des verschränkten EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$. Eine yy -Sequenz generiert in Verbindung mit Korrekturpulsen den Eingabezustand $|00\rangle$, der über die RF-Sequenz auf den EPR-Zustand $|\Psi^-\rangle$ transformiert wird. Dabei sind die π -Refokussierungspulse wiederum als Composite-Pulse ausgelegt. Die Detektion erfolgt über eine nahezu inverse Rücktransformation, deren Phase φ_j wie beim MQE-Experiment individuell für jeden Qubit-Kanal von Messpunkt zu Messpunkt inkrementiert wird. Die resultierende Dichtematrix wird über eine yx -Detektion und eine Remote-Echo-Detektion indirekt über das S -Spin-Echo tomographiert.

Phasen φ_j als Kontrollparameter aufgenommen. Nachfolgend sind hierzu die entsprechenden Transformationen aufgeführt.

Ausgehend vom pseudoreinen Zustand ρ_{00} wird dieser mittels der Transformation $U^{(\Psi^-)}$ entsprechend Abb. 4.38 für die angepasste Evolutionszeit $\tau_I = \pi/D_{12}$ in Abhängigkeit der dipolaren Qubit-Qubit-Kopplung D_{12} in den EPR-Zustand überführt:

$$\begin{aligned} \rho(\Psi^-) &= U^{(\Psi^-)} \rho_{00} U^{(\Psi^-)^{-1}} \\ &= S_z \left(\frac{1}{4} \hat{1} - I_{x_1} I_{x_2} - I_{y_1} I_{y_2} - I_{z_1} I_{z_2} \right), \end{aligned} \quad (4.114)$$

$$U^{(\Psi^-)} = P_{x_1}(\pi) P_{y_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) U^{II}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{x_2}^{\text{comp}}(\pi) P_{x_1}^{\text{comp}}(\pi) U^{II}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{x_2}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{x_1}\left(\frac{\pi}{2}\right),$$

$$\begin{aligned} P_{x,y_j}(\beta) &= \exp(-i\beta I_{x,y_j}), \\ P_{x_j}^{\text{comp}}(\pi) &= P_{x_j}\left(\frac{\pi}{2}\right) P_{y_j}(\pi) P_{x_j}\left(\frac{\pi}{2}\right) \\ U^{II}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) &= \exp(-iD_{12} I_{z_1} I_{z_2} \frac{\tau_I}{2}). \end{aligned} \quad (4.115)$$

Die Detektion des EPR-Zustandes erfolgt durch eine weitgehend inverse Transformation $D^{(\Psi^-)}$ mit Phaseninkrementierung φ_j :

$$\rho^D(\Psi^-) = D(\Psi^-) \rho^{(\Psi^-)} D(\Psi^-)^{-1}, \quad (4.116)$$

$$D(\Psi^-) = P_{x_1}\left(\frac{\pi}{2}; \varphi_1\right) P_{x_2}\left(\frac{\pi}{2}; \varphi_2\right) U^{II}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{x_2}^{\text{comp}}(\pi; \varphi_2) P_{x_1}^{\text{comp}}(\pi; \varphi_1) \\ U^{II}\left(\frac{\tau_I}{2}\right) P_{x_1}(-\pi; \varphi_1) P_{x_2}\left(-\frac{\pi}{2}; \varphi_2\right),$$

$$P_{x,y_j}(\beta_j, \varphi_j) = T_j(\varphi_j) \exp(-i\beta_j I_{x,y_j}) T_j^{-1}(\varphi_j), \quad j = 1; 2,$$

$$T_1(\varphi_1) = \exp(-i\varphi_1 I_{z_1}),$$

$$T_2(\varphi_2) = \exp(-i\varphi_2 I_{z_2}).$$

Das resultierende Messsignal $A^S(\Psi^-)$ ist unter Verwendung der yx- und Remote-Echo-Detektionssequenz wiederum durch die Spurbildung mit ρ_{00} gegeben:

$$A^S(\Psi^-) = \text{Tr}(\rho_{00} \rho^D(\Psi^-)) \quad (4.117) \\ = \frac{1}{2} (1 + \cos(\varphi_1 - \varphi_2)), \\ \varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j, \quad \delta\varphi_j = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot \delta t'.$$

Die Auftragung des S-Spin-Echosignals in Abhängigkeit der virtuellen Zeit t' zeigt im Fall der erfolgreichen Präparation des EPR-Zustandes eine Oszillation mit der Differenz der beiden Phasenfrequenzen ν_{φ_j} . Als Signatur in der Fouriertransformierten erhält man daraus eine einzelne Linie bei $\nu_{\varphi_1} - \nu_{\varphi_2}$. Zur Erfüllung der Bedingung $\tau_I = \pi/D_{jk}$ für einen optimalen Korrelationstransfer wurde wiederum die Evolutionszeit τ_I aus den Extrema der resultierenden Oszillation bei Inkrementierung von τ_I in der EPR-Sequenz aus Abb. 4.38 für die Phase $\varphi_1 = \varphi_2 = 0$ zu $62 \mu\text{s}$ bestimmt.

Abb. 4.39 zeigt hierzu die Fouriertransformierten der experimentell aufgenommenen Oszillationen der S-Spin-Echohöhe sowohl des pseudoreinen Eingabe-Zustandes ρ_{00} als auch der präparierten Verschränkung $|\Psi^-\rangle$. Diese weist eindeutig eine dominante Linie bei der Phasendifferenzfrequenz $\nu_{\varphi} = \nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} = 0,4 \text{ MHz}$ auf, die die Signatur des EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$ zeigt. Aufgrund von Pulsfehlern treten noch schwache Artefakte in Form von Linien bei den übrigen Phasenfrequenzen auf.

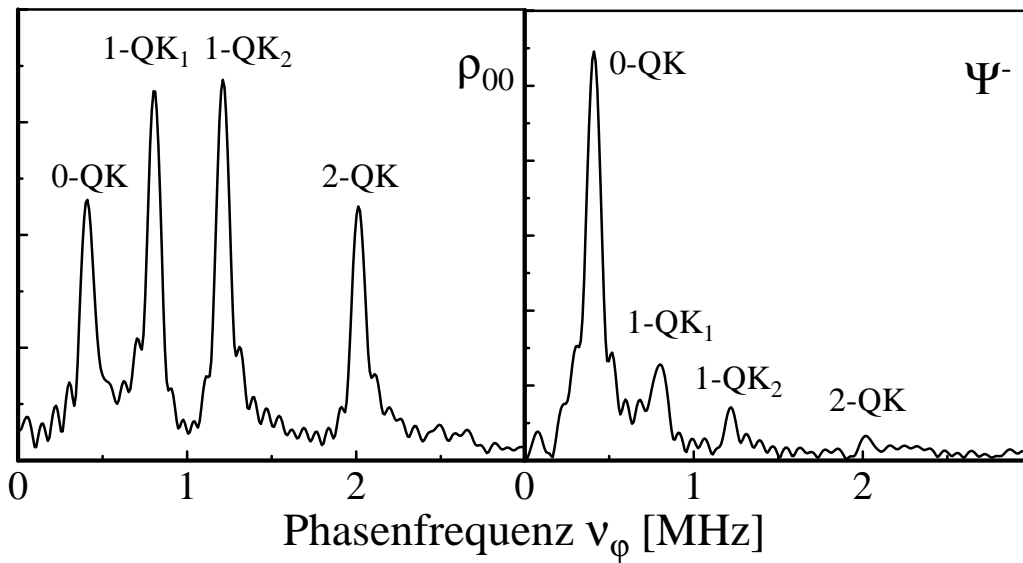


Abb. 4.39: MQE-Spektren des pseudoreinen Zustandes ρ_{00} (links) und des EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$ (rechts). Das rechte MQE-Spektrum zeigt eindeutig die Signatur des verschränkten Zustandes $|\Psi^-\rangle$ mit einer dominanten Linie bei der Differenz $\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} = 0,4$ MHz der Phasenfrequenzen.

Messdaten: $\nu_S = 9,394722$ GHz; $B_0^{(y)} = 0,41113$ T; $\tau_S = 32$ ns; ENDOR-Frequenzen: $F_7^{(+)}$: $\nu_{15} = 20,5821$ MHz; $F_3^{(+)}$: $\nu_{16} = 20,7940$ MHz; $D_{37} = 5,56$ kHz; $\tau_I = 60$ μ s; Phasenfrequenzen: $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz; $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz; $\delta t = 100$ ns; Euler-Winkel: $\vartheta^{(y)} = 71,71^\circ$; $\varphi^{(y)} = 8,99^\circ$; T = 8 K.

Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt die grundlegenden Schritte zur Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers in Festkörpern mit Methoden der Magnetischen Doppelresonanz (ENDOR) nach dem S-Bus-Konzept. Dieses wurde von Prof. M. Mehring vom 2. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart parallel zur Anfertigung dieser Arbeit entwickelt. Die Zielrichtung bestand nach der Findung geeigneter Spin-Systeme, die eine Umsetzung des S-Bus-Konzeptes ermöglichen, in der gezielten Präparation von Quantenzuständen, wie pseudoreiner oder verschränkter Zustände sowie der Implementierung eines Quantenalgorithmus.

Das S-Bus-Konzept

Die Topologie des S-Bus-Konzeptes besteht aus einem Zentralspin S , quasi als „Wechselwirkungsbus“, an den die Qubit-Spins I_j über im allgemeinen verschiedene große Wechselwirkungen a_j gekoppelt sind. Diese Kopplungen dienen zur Präparation von Multi-Quantenkorrelationen. Zur Durchführung eines Quantenalgorithmus in einem solchen N -Qubit-Zustand werden die I_j -Spins selektiv manipuliert. Die Detektion der Qubit-Zustände erfolgt indirekt mittels der Dichtematrixtomographie, die die resultierende Ausgabe-Dichtematrix des Algorithmus auf einen zu S_z multiplikativen Faktor transformieren, der als Kontrollparameter in das S -Spinecho eingeht. Der S -Spin kann somit als eine Art Monitor betrachtet werden. Er ist damit vergleichbar dem Schreib- und Lesekopf einer Turing-Taschine, bei der Information über diesen Server auf ein Datenträger geschrieben und ausgelesen werden und nur der durch den Algorithmus resultierende Endzustand des Servers das Ergebnis widerspiegelt. Weiterhin existiert auch ein Kopplungsnetzwerk D_{jk} zwischen den einzelnen Qubit-Spins $I_{j,k}$, das zur Umsetzung von Quantengattern sowie zur Präparation verschränkter Zustände nutzbar ist.

Die Zielsetzung der Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers in Festkörpern nach dem S-Bus-Konzept mittels ENDOR-Verfahren wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit mit Übergangsmetallen bzw. Seltenen Erden dotierten Fluorid-Einkristallen verfolgt. Das Dotierungselement bildet dabei den zentralen

Elektronenspin S eines S-Bus-Systems, an den über die Hyperfeinwechselwirkung a_j die umgebenden Fluor-Kernspins $I_j = \frac{1}{2}$ als Qubits gekoppelt sind, die aufgrund ihres großen gyromagnetischen Verhältnisses γ und ihrer Isotopenreinheit sehr gut hierfür geeignet sind. Das Ensemble von S-Bus-Systemen kann dabei als eine Gesamtheit einzelner, unabhängiger Quantenprozessoren im Sinne der Durchführung von Quantenalgorithmen betrachtet werden, die parallel die identischen unitären Transformationen der Qubit-Manipulationen erfahren. Dies ergibt eine massive Redundanz bezüglich der Messbarkeit von Quantenzuständen. Die Implementierung von Quantenalgorithmen wäre somit prinzipiell auch an einem einzelnen S-Bus-System möglich.

CaF₂:Ce als Quantenprozessor

Bei der experimentellen Umsetzung des S-Bus-Konzeptes in Form eines Festkörper-Spin-Quantencomputers mittels ENDOR-Verfahren mussten zunächst geeignete Ionen mit einem resultierenden Elektronenspin $S = \frac{1}{2}$ für die Dotierung der Fluoride in Zusammenhang mit den dazu passenden Wirtskristallen ausgewählt werden. Dabei müssen die einzelnen Qubits in ihrer Resonanzfrequenz selektiv adressierbar sein, um die individuelle Präparation, Manipulation und Detektion von Quantenzuständen der Qubits zu ermöglichen. Dies ist der Fall, wenn die den S -Spin umgebenden I_j -Spins – je nach Kristallorientierung im B_0 -Feld – magnetisch nicht äquivalent sind. Voraussetzung hierfür ist eine erniedrigte Symmetrie des S-Bus-Zentrums. Dabei erwies sich von den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kristallsystemen das tetragonale Zentrum in CaF₂:Ce mit lokaler Ladungskompensation in Richtung der C_4 -Symmetrieachse als das geeignetste System zur Implementierung eines Ensemble-Spin-Quantencomputers und zur Demonstration grundlegender Experimente. Das tetragonale CaF₂:Ce-Zentrum weist neun selektiv adressierbare Qubits der direkt dem Ce³⁺-Ion benachbarten F⁻-Kernspins auf, die das sogenannte *Qubyte+1* bilden. Die Kopplung an die F⁻-Kernspins höherer Schalen wurde hier nicht betrachtet. Anzumerken ist, dass die den Cer-Spin umgebenden Fluor-Ionen in drei Klassen eingeteilt werden können, die identische Hyperfeinwechselwirkungsparameter, aber unterschiedliche Orientierungen der Hyperfeinwechselwirkungstensoren besitzen: Ebene 1 mit vier F⁻-Kernspins auf der dem ladungskompensierenden F⁻-Ion zugewandenen Seite des Ce³⁺-Elektronenspins, Ebene 2 mit vier F⁻-Kernspins auf der der Ladungskompensation gegenüberliegenden, abgewandenen Seite des Ce³⁺-Ions sowie Klasse 3, die durch die Ladungskompensation selbst gebildet wird. Aufgrund des anisotropen Anteils der Hyperfeinwechselwirkung werden die *Qubyte+1*-Kernspins für spezielle Kristallorientierungen im B_0 -Feld magnetisch nichtäquivalent, wodurch eine frequenzselektive Adressierbarkeit gegeben ist.

Charakterisierung von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in der Magnetresonanz – das *Qubyte+1*

Neben der Aufnahme von Magnetfeld- und ENDOR-Spektren sowie deren jeweiligen Winkelabhängigkeiten bei Kristalldrehung um eine zum B_0 -Feld senkrechte Drehachse wurden im Rahmen der Charakterisierung von $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in der Magnetresonanz hierzu auch Simulationen der ESR- und ENDOR-Spektren gemäß der Modellvorstellung des tetragonalen $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ -Zentrums durchgeführt, die diesen Sachverhalt hinsichtlich g -Anisotropie und Hyperfeinwechselwirkung sehr gut bestätigten. Die Messung der Resonanzfelder von mindestens zwei der drei tetragonalen Zentrenklassen ermöglicht die Bestimmung der Kristallorientierung im äußeren Magnetfeld B_0 .

Zur Bestimmung der Dekohärenz von Quantenzuständen des S-Bus-Systems in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ wurden Messungen der longitudinalen und transversalen Relaxationszeiten $T_1^{(S)}$ bzw. $T_2^{(S)}$ der S -Spins sowie der transversalen Relaxationszeit $T_2^{(I)}$ der Qubit- I -Spins durchgeführt. Bei $T = 8$ K ergibt sich die $T_1^{(S)}$ -Zeit der Elektronenspins zu 3 ms, die $T_2^{(S)}$ -Zeit bei Messung über die Hahn-Echo-Sequenz zu knapp 4 μs , bzw. aus der Gill-Meiboom-Messung zu über 34 μs . Die $T_2^{(I)}$ -Zeit der Qubit-Spins I_j beträgt bei gleicher Temperatur im Schnitt rund 500 μs .

Im weiteren Verlauf wurden die Resonanzfrequenzen in Abhängigkeit von der Kristallorientierung und die Wechselwirkungen der Qubit-Kernspins in Zusammenhang mit Modellrechnungen zur Charakterisierung des *Qubyte+1*-Systems untersucht. Experimentell konnte eine Kristallorientierung gefunden werden, in der alle Qubit-ENDOR-Übergänge des tetragonalen y -Zentrums vollständig aufgelöst sind, d.h. alle Qubits selektiv in der Frequenz adressierbar sind.

Anhand von auch aus der Literatur bekannten Berechnungen der Hyperfeinwechselwirkung a_j gelang weiterhin eine Identifikation der einzelnen ENDOR-Linien mit den das Ce^{3+} -Ion umgebenden F^- -Kernspins. Dadurch konnten die Hyperfeinwechselwirkungen a_j bestimmt werden. Diese betragen bei der verwendeten Kristallorientierung rund 5 bis 8 MHz. Hierbei konnte durch MQE-Messungen auch die Zugehörigkeit der ENDOR-Übergänge zum selben elektronischen Zustand $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ geklärt werden. In diesem Zusammenhang wurde die Remote-Echo-Detektion eingeführt, die auch kurze, angepaßte Evolutionszeiten erlaubt und dadurch eine selektive Korrelation des zentralen S -Spins mit den *Qubyte+1*-Kernspins ermöglicht.

Die *Qubyte+1*-Kernspins bilden wiederum untereinander ein Netzwerk dipolarer Qubit-Qubit-Wechselwirkungen D_{jk} , welches im Rahmen des S-Bus-Konzeptes zur Implementierung des CNOT-Gatters und von Quantenalgorithmen sowie zur Präparation verschränkter Zustände genutzt wurde. Die Größe der direkten und indirekten dipolaren Qubit-Qubit-Kopplungen wurde anhand von Sublevel-Echo-

Modulationen vermessen und mit der berechneten Dipol-Dipol-Wechselwirkung nach dem Punkt-Dipol-Modell verglichen.

Die Korrelierbarkeit der *Qubyte+1*-Kernspins $I_{j=1\dots 9}$ mit dem *S*-Spin konnte durch Tripel-ENDOR-Verfahren mit selektiver Einstrahlung auf den einzelnen ENDOR-Übergängen gezeigt werden. Hierdurch konnte bewiesen werden, tatsächlich selektiv bis zu neun F^- -Kernspins korreliert zu haben. Ein in diesem System gegebener Quantenzustand ist daher einem 9-Bit-Register der Informationsverarbeitung vergleichbar und stellt quasi einen 9-Bit-Quantencomputer dar. Die Korrelierbarkeit von über 20 Kernspins wurde bei nichtselektiver Einstrahlung auf der Zentralgruppe der ENDOR-Übergänge der schwach an den Ce^{3+} -Spin gekoppelten F^- -Ionen am kubischen Zentrum demonstriert.

Implementierung S-Bus-Konzeptes

Zur Implementierung eines Quantencomputers, bzw. der Durchführung eines Quantenalgorithmus nach dem S-Bus-Konzept wurden sukzessive die einzelnen Schritte der Präparation, Manipulation und Detektion korrelierter Quantenzustände durchgeführt. Diese gliedern sich wie folgt:

1. Präparation und Detektion von korrelierten Quantenzuständen mittels der MQE-Dichtematrixtomographie.
2. Gezielte Präparation von Multi-Quantenkorrelationen unter Anwendung von Korrekturpulssequenzen.
3. Präparation pseudoreiner Zustände für zwei und drei Qubits als Eingabezustand für Algorithmen in Ensemble-Spin-Quantencomputern.
4. Durchführung eines Quantenalgorithmus für zwei Qubits – die Collins-Version des Deutsch-Algorithmus.
5. Implementierung des CNOT-Gatters.
6. Präparation des verschränkten EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$.

Multi-Quantenkorrelationen und MQE-Dichtematrixtomographie mit *N* Qubits

Jeder Quantenzustand eines S-Bus-Systems, der zur Durchführung eines Quantenalgorithmus präpariert oder durch diesen erzeugt wird, ist allgemein durch eine *N*-Qubit-Dichtematrix darstellbar, mit der Besonderheit, dass die Qubits eines S-Bus-Systems auch bei 1-Qubit-Zuständen und -Operationen stets mit dem

Zentralspin S korreliert sind. Somit ist der Quantenzustand eines S-Bus-Systems mit N Qubits durch eine $(2^{N+1}) \otimes (2^{N+1})$ -Matrix ρ_N gegeben, die in Operator-darstellung die allgemeine Form

$$\begin{aligned} \rho_N = & S_{x,y,z} |c_0 \hat{1} + c_{x,y,z_1} I_{x,y,z_1} + c_{x,y,z_2} I_{x,y,z_2} + \dots \\ & + c_{x,y,z_{12}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_2} + c_{x,y,z_{13}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_3} + \dots + c_{x,y,z_N} I_{x,y,z_1} \dots I_{x,y,z_N} \end{aligned}$$

besitzt.

Die Erzeugung von Multi-Quanten-Korrelationen aus dem Boltzmann-Gleichgewicht erfolgt durch eine Präparationssequenz, auch kurz yy- bzw. yx-Sequenz genannt. Nach Abklingen des FID nach einer Zeit ε nach dem zweiten Puls ist die Dichtematrix der Multi-Quantenkorrelation gegeben durch:

$$\rho^{yy,yx}(\tau_S + \varepsilon) = \mp S_z \text{Re, Im} \left(\prod_{j=1}^N \exp(ia_j I_{z_j} \tau_S) \right). \quad (4.118)$$

Die Tomographie dieser Dichtematrix mit bis zu N -fachen Qubit-Korrelationen zur Bestimmung der einzelnen Matrixelemente erfolgt nach dem Multi-Quanten-ENDOR-Verfahren (MQE). Es handelt sich hierbei um eine wiederholte Durchführung einer Art „Detektionsalgorithmus“, wobei die einzelnen Korrelationssterme individuelle Phasenevolutionen unter z -Rotationen erfahren. Diese Phasenevolution der Qubit-Spins werden dabei zu einem Kontrollparameter in den Koeffizienten der einzelnen Spin-Operatoren, so dass in der Dichtematrix ρ_N jede Korrelation bei nichtkommensurabler Wahl der Phaseninkremente $\delta\varphi_j$ durch eine individuelle Phasenevolution als Kontrollparameter gekennzeichnet ist. Diese gehen letztendlich als multiplikativer Faktor in das Messsignal des S -Spin-Echos ein, so dass der präparierte Quantenzustand über den S -Spin als Monitor eindeutig tomographiert werden kann. Mittels selektiver Einstrahlung auf bis zu vier Qubit-Übergängen gelang es die einzelnen Korrelationsanteile zu bestimmen sowie den Einfluss der freien Evolutionszeit τ_S in der Präparationssequenz zu demonstrieren.

Pseudoreine Zustände mit zwei und drei Qubits

Theoretische Betrachtungen zur Durchführung von Quantenalgorithmien beziehen sich stets auf deren Anwendung auf reine Quantenzustände. Experimentell liegen diese nur im Falle der Quanteninformationsverarbeitung an einzelnen Quantensystemen vor. Ein Ensemble hingegen befindet sich im thermischen Gleichgewicht in einem gemischten Quantenzustand. Pseudoreine Zustände erlauben es,

einen Quantencomputer auch mit Hilfe von Spin-Ensembles in der Magnetischen Resonanz zu implementieren, da sich die pseudoreinen Zustände unter unitären Transformationen exakt wie reine Quantenzustände verhalten, weil ein pseudoreiner Zustand die gleiche Operatorstruktur der Dichtematrix aufweist, wie ein reiner Zustand. Man kann das Ensemble-Quantencomputing somit als eine redundante Quanteninformationsverarbeitung betrachten, bei der ein Algorithmus an jedem Einzelsystem des Ensembles parallel durchgeführt wird.

Anknüpfend an die Erzeugung von Multi-Quantenkorrelationen wurden die Korrelationsanteile zur Präparation der gewünschten pseudoreinen Eingabe-Quantenzustände für jedes Qubit selektiv angepasst, auf die dann ein Algorithmus anwendbar ist. Die Präparationssequenzen liefern in Abhängigkeit von der freien Evolutionszeit τ_S zunächst Korrelation aller Qubits I_j mit ähnlicher Wechselwirkungsstärke a_j mit dem zentralen S -Spin. Im Anschluss daran kann mittels Korrekturpulssequenzen durch eine selektive Manipulation der Qubits I_j der gewünschte Quantenzustand generiert werden.

Die Erzeugung pseudoreiner Zustände wurde experimentell im Zwei- und Drei-Qubit-S-Bus-System (ein Elektronenspin und zwei bzw. drei Kernspins) umgesetzt. Hierzu wurden die entsprechenden, auch auf N Qubits skalierbaren Pulssequenzen entwickelt und angewandt. Die pseudoreinen Zwei- und Drei-Qubit-Zustände ρ_{00} , ρ_{01} , ρ_{10} und ρ_{11} sowie ρ_{000} konnten erfolgreich präpariert und tomographiert werden. Hierbei wurden auch weitere zahlreiche Erfahrungen hinsichtlich der Minimierung von Artefakten durch Anwendung von Composite Pulsen und der Berücksichtigung des Einflusses nichtresonanter Einstrahlung auf benachbarten ENDOR-Übergängen bei der Qubit-Manipulation gesammelt.

Deutsch-Algorithmus nach Collins

Der Deutsch-Algorithmus ist ein 1-Qubit-Quantenalgorithmus, der eine Unterscheidung von Klassen binärer Funktionen f_{ij} in Abhängigkeit von deren Wertebereich in „ausgeglichene“ und „konstante“ Funktionen in weniger Rechenschritten treffen kann, als dies klassisch möglich ist. Der Deutsch-Algorithmus stellt damit einen universellen Baustein der Quanteninformationsverarbeitung dar. Die verwendeten unitären Transformationen repräsentieren dabei die binären Funktionen f_{ij} . Die Implementierung der entsprechenden Pulssequenzen dieser Transformationsvorschriften des Deutsch-Algorithmus nach Collins konnte erfolgreich anhand der Signaturen der jeweiligen MQE-Spektren demonstriert werden.

Das CNOT-Gatter im N -Qubit-System

Eine einfache Realisierung des CNOT-Gatters als universelles Quantengatter mittels eines übergangsselektiven π -Pulses innerhalb eines Vier-Niveau-Systems zwei-

er Qubits ist Rahmen des S-Bus-Konzeptes hier nicht umsetzbar, da bei dessen Implementierung in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ mit ENDOR-Verfahren nur eine qubitselektive, also frequenzselektive, aber keine übergangselektive RF-Einstrahlung möglich ist. Die Realisierung des CNOT-Gatters erfolgt hier vielmehr unter Ausnutzung der Qubit-Qubit-Wechselwirkung D_{jk} , die zu einer Evolution während einer Zeit τ_I führt, die letztlich der unitären Transformation des CNOT-Gatters entspricht. In diesem Zusammenhang wurde der Korrelationstransfer $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ anhand einer INEPT-Sequenz gezeigt, die als Vorstufe der Implementierung der CNOT-Transformation diente. Die Signaturen der MQE-Spektren zeigen eine erfolgreiche Umsetzung der INEPT- und der CNOT-Transformationen. Hierbei wurde aus Gründen der Komplexität der ENDOR-Pulsfolgen auf die Präparation pseudoreiner Eingabezustände teilweise verzichtet und das CNOT-Gatter auf diesen ähnliche Quantenzustände angewandt, um zunächst rein qualitative Aussagen zu treffen.

Einstein-Podolski-Rosen-Zustand $|\Psi^-\rangle$

Die Präparation verschränkter Zustände bildet den Kern eines Quantencomputers. Hier konnte die typische Signatur des verschränkten EPR-Zustandes $|\Psi^-\rangle$ in der Dichtematrixtomographie gezeigt werden. Die entsprechende Pulssequenz erzeugt zunächst den pseudoreinen Zustand ρ_{00} , der anschließend durch die RF-Präparationssequenzen auf den EPR-Zustand $|\Psi^-\rangle$ transformiert wird. Die Tomographie der Verschränkung erfolgt durch eine zur Präparation nahezu inverse Transformation, deren Phase φ_j wie bei der MQE-Dichtematrix-Tomographie individuell auf jedem Qubit-Kanal I_j inkrementiert wird und letztlich zur Detektion über das S -Spin-Echo auf einen zu S_z multiplikativen Faktor in Abhängigkeit dieser Kontrollparameter transformiert wird. Der EPR-Zustand $|\Psi^-\rangle$ zeigt dabei als Signatur im MQE-Spektrum eine einzelne Linie bei der Phasendifferenzfrequenz $\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1}$, die eindeutig nachgewiesen werden konnte.

Ausblick

Das im Rahmen dieser Arbeit in Festkörpern umgesetzte S-Bus-Konzept bietet weitreichende Vorteile auch bezüglich der Übertragbarkeit als universelles und skalierbares Konzept auf andere Realisierungsmöglichkeiten von Quantencomputern. Das S-Bus-Konzept wurde hier experimentell mittels Methoden der Electron Nuclear Double Resonance (ENDOR) mit selektiver, multifrequentieller Einstrahlung auf Spin-Übergängen dotierter Fluoridkristalle umgesetzt. Bei erfolgreicher Anwendung dieses Konzepts kann sich eine Verwertung für andere Quantencomputing-Vorschläge ergeben. Dies bezieht sich nicht nur auf die allgemeine Übertragung, sondern insbesondere auch die Anwendung von Mikrowellentechniken, spezieller Pulssequenzen und Quantenalgorithmen in anderen

Bereichen, wie z.B. in Ionenfallen, Josephson-Junctions oder Quantendots. Auch wenn zu einem späteren Zeitpunkt skalierbare Quantencomputer auf Halbleiterbasis entwickelt werden, könnten die beim S-Bus gemachten Erfahrungen in modifizierter Form verwendet werden.

Abstract

The present work describes primary steps of an ensemble-spin-quantum-computer implementation in solids with methods of electron nuclear double resonance (ENDOR) according to the S-bus concept developed parallel to this work by Prof. M. Mehring of the 2. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart. The first purpose was to find a proper spin system fit for the realization of the S-bus concept. The second and main purpose was the controlled preparation of pseudopure and entangled quantum states as well as the implementation of a quantum algorithm.

The S-Bus Concept

The topology of the S-bus concept is given by a central spin S , which can be considered as an interaction bus, coupled to the qubit spins I_j via the spin-spin-interactions a_j , which in most cases are different in their magnitude (Fig. 4.40). These couplings can be used for the preparation of multi-quantum-correlations,

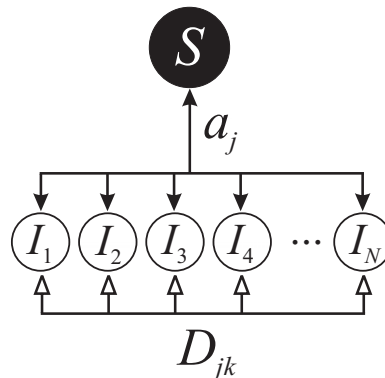


Fig. 4.40: Topology of a S-bus spin system with a central spin S coupled to the qubit spins I_j via the spin-spin interactions a_j . The qubit-qubit-interactions D_{jk} are sketched only between adjacent qubits I_j symbolically.

which in general represent the multi-qubit-quantum states of an S-bus system. In

such an N -qubit state the I_j -spins were selectively manipulated by the quantum algorithms. The qubit states were detected in an indirect way via the S -spin as a monitor. There is also a network of couplings D_{jk} among all the qubit spins $I_{j,k}$, which can be used for the implementation of quantum gates and for the preparation of entangled states. In this topology the S -spin is comparable to the read- and writing head of a Turing machine, where information is written on and read out from a tape by this server head. The final state of the server head after application of an algorithm represents the result of the calculation.

The general sequence for quantum information processing according to the S-bus concept is shown in fig. 4.41. It consists of a preparation part P_S for correlating S and I_j spins and sequences P_j for the controlled adjustment of the correlated state to a pseudopure state individually for every qubit to which the algorithm A_j is applied. The detection sequences D_j and D_S contain the so called density matrix tomography, which transfers the resulting density matrix of the algorithm to a multiplicative factor of S_z , which is related to the intensity of the S -spin echo as a controlling parameter.

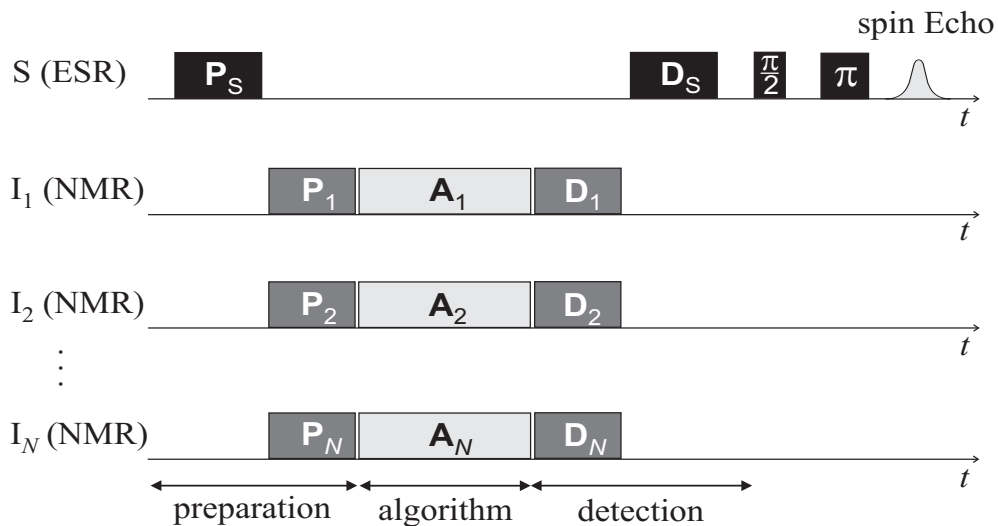


Fig. 4.41: Universal multi resonance sequence for the implementation of a quantum algorithm with N qubits corresponding to the S-bus concept with quantum state preparation P_j , quantum algorithm A_j and detection sequence D_j applied to S - and I_j -spins.

In this work the aim of the implementation of an ensemble-spin-quantum computer in solids corresponding to the S-bus concept with ENDOR methods was achieved by using transition metal or rare earth doped fluoride single crystals. The doping ion represents the central electron spin S of the S-bus system to which the surrounding fluorine nuclear spins $I_j = \frac{1}{2}$ are coupled via the hyperfine interaction a_j . Due to their large gyromagnetic ratio and because there is

only one isotope of fluorine nucleus, these nuclear spins are well suited as qubits. The ensemble of the S-bus systems can therefore be considered as a manifold of individual independent quantum processors in the sense of the application of quantum algorithms, which are manipulated by unitary transformations in parallel. This results in a large redundancy concerning the measurement of quantum states. The implementation of quantum algorithms would also be possible in a single S-bus system.

CaF₂:Ce as a quantum processor

Before any experimental implementation of the S-bus concept as a solid state spin quantum computer with ENDOR methods it was necessary to select a dedicated ion with an electron spin $S = \frac{1}{2}$ as a doping ion in fluoride host crystals. Every qubit must selectively be addressable in resonance frequency to allow an individual preparation and detection of the qubit quantum states. This is the case, if the I_j -spins surrounding the S spin become magnetically inequivalent and differ in their hyperfine interaction, which is the sum of isotropic Fermi contact interaction and anisotropic dipole dipole interaction, according to the orientation of the single crystal in the magnetic field B_0 as well. A lower symmetry of the S-bus center is a condition for this.

Among all crystal systems examined in this work the tetragonal center in CaF₂:Ce with local charge compensation in the direction of the C_4 symmetry axis (Fig. 4.42) was found to be the best one for the realization of an ensemble spin quantum computer and for the demonstration of basic experiments of quantum information processing. The local charge compensation can be built in x-, y- or z-direction in the CaF₂:Ce single crystal. Because there are always three classes of tetragonal centers, which differ in their orthogonal orientation of their C_4 symmetry axis and in the orientation of their g -tensors of the Ce³⁺ electron spin respectively, there are three resonance fields, one of every center. The ground state of the Ce³⁺ doping ion constitutes an effective spin $S_{\text{eff}} = \frac{1}{2}$ as the central spin of the S-bus system. The ground state wavefunction $|\pm \psi_{2F_{5/2}}\rangle$ in tetragonal crystal field is given dependent on the quantum number m_j by:

$$|\pm \psi_{2F_{5/2}}\rangle = \pm \left(\cos \theta \left| \frac{5}{2} \right\rangle + \sin \theta \left| -\frac{3}{2} \right\rangle \right), \quad \cos \theta = 0,91.$$

The tetragonal center in CaF₂:Ce includes nine selectively addressable qubits given by the F⁻ nuclear spins adjacent to the Ce³⁺ ion. Those represent the so called *qubyte+1*. The couplings to further F⁻ nuclear spins are not considered here. The fluor ions surrounding the cerium spin can be divided into three classes of spins

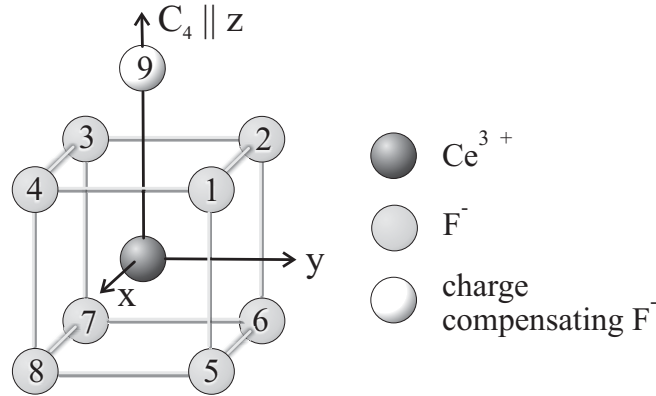


Fig. 4.42: Crystal structure of the tetragonal z -center in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$. For charge compensation of the Ce^{3+} ion in a Ca^{2+} lattice site a further interstitial F^- ion is built in. This leads to a deformation of the lattice structure ($\varepsilon = 0,09 \cdot a/4$ and $\delta = 0,12 \cdot a/4$, lattice constant $a = 546,3$ pm). The charge compensating F^- ion (9) and the eight next adjacent F^- ions (1 to 8) of the Ce^{3+} ion can be considered corresponding to the S-bus concept as nine qubits: the *qubyte+1*.

with identical hyperfine interaction parameters but different orientations of their hyperfine tensors: layer 1 with four F^- nuclear spins on the same side of the cerium spin as the charge compensation (F^- ion 1 to 4 in fig. 4.42), layer 2 on the opposite side (F^- ion 5 to 8) and layer 3, which is built by the charge compensation itself (F^- ion 9). Due to the anisotropic part of the hyperfine interaction the *qubyte+1* nuclear spins become magnetically inequivalent in special orientations of the crystal in the magnetic field. This causes the selective adressability in ENDOR frequency.

Characterization of $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ in magnetic resonance – the *qubyte+1*

Besides the recordings of magnetic field spectra and ENDOR spectra with their particular angular dependence rotating the crystal around an axis perpendicular to B_0 , simulations of ESR and ENDOR spectra according to the model of the tetragonal site in $\text{CaF}_2:\text{Ce}$ were also made. Measurements and simulations confirmed the model of tetragonal sites concerning g -anisotropy and hyperfine interactions a_j . The knowledge of at least two of the three resonance fields of x -, y - or z -center allows to calculate the Euler angles of the crystal relative to the magnetic field.

To specify the decoherence time of quantum states of the S-bus system $\text{CaF}_2:\text{Ce}$, measurements of the longitudinal and transversal relaxation times $T_1^{(S)}$ and $T_2^{(S:I)}$ of the S -spins and of the qubit spins I_j respectively were made. At a temperature

of $T = 8$ K the $T_1^{(S)}$ time of electron spins is 3 ms, the $T_2^{(S)}$ time measured by Hahn echo sequence is about $4 \mu\text{s}$ and more than $34 \mu\text{s}$ measured by Gill-Meiboom sequence. The $T_2^{(I)}$ time of the qubit spins I_j is on the average $500 \mu\text{s}$.

Then the dependency of the resonance frequencies and the interactions between the qubit spins on the orientation of the crystal in the magnetic field were examined in connection with calculations characterize the *qubyte+1* system. Experimentally a crystal orientation with complete resolved ENDOR spectra of all qubit transitions of the tetragonal site was found (Fig. 4.43). This leads to a selective addressability of all qubits in frequency.

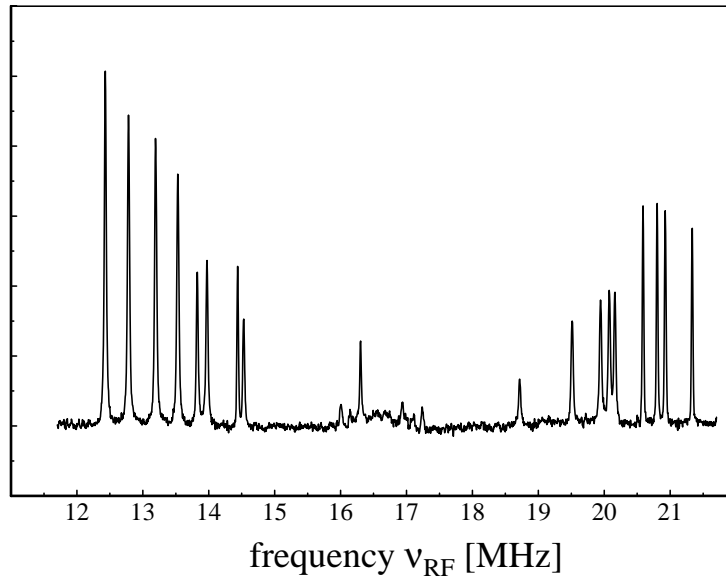


Fig. 4.43: ENDOR spektrum of the *qubyte+1* recorded with Remote-Echo-Detektion in a crystal orientation with the Euler angles $\vartheta = 71, 71^\circ$; $\varphi = 8, 99^\circ$; $T = 8$ K.

On the basis of formulas for the calculation of the hyperfine interaction a_j known from literature the identification of every ENDOR transition with the F^- nuclear spins surrounding the Ce^{3+} ion was achieved. The hyperfine interactions a_j could also be specified. These amount to about 5 to 8 MHz in the most commonly used crystal orientation. Thereby the ENDOR transitions which belong to the same electronic state $|m_S\rangle = \pm|\frac{1}{2}\rangle$ also could be identified. In this connection the Remote-Echo-Detektion was introduced, which allows the usage of short, adapted evolution times and therefore a selective correlation of the central spin S with the *qubyte+1* nuclear spins.

The *qubyte+1* nuclear spins itself also build a network of dipolar qubit-qubit interactions D_{jk} , which in the context of the S-bus concept is used for the implementation of the CNOT gate, application of quantum algorithms and for the

preparation of entangled states. The magnitude of the direct and indirect dipolar qubit-qubit couplings was measured by sublevel echo modulations and compared to calculated values according to the point dipole model. This kind of measurement is based on the recording of quantum beats due to a coherent phase evolution reflecting the coupling D_{jk} between two qubits I_j and I_k . The couplings amount up to 12 kHz.

The correlation of the *qubyte+1* nuclear spins $I_{j=1\dots 9}$ with the S spin could be proved by triple ENDOR measurements with selective RF irradiation on every ENDOR transition. The results definitely showed an influence of the selective manipulation of the qubits. This proves unambiguously that up to nine F^- nuclear spins were correlated. A quantum state in such a correlated spin system is comparable to a 9 bit register in information processing and could be considered as a 9 bit quantum computer. The correlation of up to 20 qubits was achieved in the cubic center by nonselective irradiation on the ENDOR-transitions of nuclear spins weakly coupled to the S spin.

Implementation of the S-bus concept

To implement a quantum computer respectively a quantum algorithm according to the S-bus concept the following steps of preparation, manipulation and detection of correlated states were performed:

1. Preparation and detection of correlated quantum states by MQE density matrix tomography.
2. Controlled preparation of multi quantum correlations.
3. Preparation of pseudopure states with two and three qubits as an initial state aiming the application of algorithms in ensemble spin quantum computers.
4. Implementation of a quantum algorithm with two qubits – the Deutsch algorithm by Collins.
5. Implementation of the CNOT gate.
6. Preparation of the entangled EPR-state $|\Psi^-\rangle$.

Multi quantum correlations and MQE density matrix tomography with N qubits

Every quantum state of an S-bus system, which is prepared for application of a quantum algorithm or generated by those can be described by an N -qubit density

matrix, which itself can be expressed by the Pauli spin matrices. This is also the case in the context of the S-bus concept with the speciality that there is always a correlation with the central S spin, even in 1-qubit states and transformations. A quantum state of an S-bus system is given by a $(2^{N+1}) \otimes (2^{N+1})$ density matrix ρ_N , which has the general operator structure

$$\begin{aligned} \rho_N = & S_{x,y,z} |c_0 \hat{1} + c_{x,y,z_1} I_{x,y,z_1} + c_{x,y,z_2} I_{x,y,z_2} + \dots \\ & + c_{x,y,z_{12}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_2} + c_{x,y,z_{13}} I_{x,y,z_1} I_{x,y,z_3} + \dots + c_{x,y,z_N} I_{x,y,z_1} \dots I_{x,y,z_N} . \end{aligned}$$

Starting from the Boltzmann equilibrium multi quantum correlations can be prepared by a $\frac{\pi}{2}$ - τ_S - $\frac{\pi}{2}$ sequence consisting of two $\frac{\pi}{2}$ -pulses with a relative phase shift (in most cases 0° or 90°). This leads to an evolution under the hyperfine interaction a_j generating the spin correlations. Therefore this preparation sequence is also called yy- respectively yx-sequence. After a time ε at the end of the FID following the second pulse the density matrix of the multi quantum correlation is given by:

$$\rho^{\text{yy,yx}}(\tau_S + \varepsilon) = \mp S_z \text{Re, Im} \left(\prod_{j=1}^N \exp(i a_j I_{z_j} \tau_S) \right) . \quad (4.119)$$

It should be mentioned that the yy-sequence only generates even, the yx-sequence only odd degrees of correlations of the operator products.

The tomography of such a density matrix with up to N -fold correlations for specifying the matrix elements takes place by the multi quantum ENDOR measurement (MQE). It is a kind of detection algorithm, which is repeated subsequently in dependence on individual phase evolutions under z-rotations of every spin operator I_j . This is achieved by a qubit selective multi frequency irradiation within two $\frac{\pi}{2}$ -pulses, whereas the phase of one of them relative to the phase of the other pulse is varied by an angular increment $\delta\varphi_j$. The resulting relative phase difference $\varphi_j = n \cdot \delta\varphi_j$ between the two pulses is used as a controlling parameter of every spin operator. Therefore every operator I_{z_j} gets a phase factor $\cos \varphi_j$, so that in the density matrix ρ_N every correlation is characterized by an individual phase evolution as a controlling parameter, if noncommensurable phase increments $\delta\varphi_j$ are chosen. These parameters contribute at least to a factor to the signal of the S -spin echo, so that the quantum state can be specified via the S -spin as a kind of monitor. The result of the MQE measurement is the so called MQE interferogram. For analysis of this interferogram a virtual time t is defined, according to $\varphi_j = 2\pi\nu_{\varphi_j} \cdot t$. Thereby ν_{φ_j} can be considered as a phase frequency. The line intensities respectively the line heights in the Fourier transform of the MQE interferogram – the so called MQE spectrum – scale with the fraction of

the operators I_j or operator products $\dots I_j I_k \dots$ in the density matrix (Fig. 4.44). Applying selective irradiation to up to four qubit transitions it was achieved to

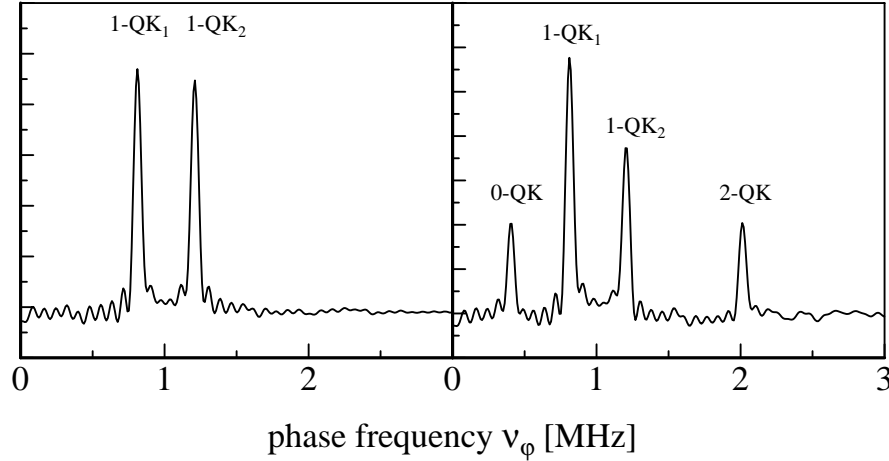


Fig. 4.44: MQE spectra of pairwise irradiation on two ENDOR transitions of an S-bus system. Left: irradiation on two transitions of different electronic states; right: irradiation on transitions of the same electronic state. The phase frequencies were $\nu_{\varphi_1} = 0,8$ MHz and $\nu_{\varphi_2} = 1,2$ MHz, $\delta t = 100$ ns. Because in the first case the qubits could not be correlated the MQE spectrum shows only the 1-quantum correlation lines 1-Q₁ and 1-Q₂, in contrast to the second case, where also the MQE lines of the 0- and 2-quantum correlations $I_{z_1} I_{z_2}$ at the sum and difference phase frequencies $\nu_{\varphi_1} \pm \nu_{\varphi_2}$ become visible.

specify the correlation factors and to demonstrate the influence of the evolution time τ_S in the preparation sequence to the factors of correlations.

Pseudopure quantum states with two and three qubits

Theoretical considerations of the implementation of quantum algorithms always refer to their application on pure quantum states. In a real experiment this is only the case in single quantum systems. An ensemble of quantum systems always shows a statistical spreading of quantum states, so that the whole system is in a so called mixed state. Whereas pseudopure states allow to implement a quantum computer with an ensemble of spin systems just like in magnetic resonance, because the pseudopure states correspond in their behaviour exactly to pure states applying unitary transformations due to their identical operator structure. An ensemble quantum computer can be considered as a redundant quantum information processing in which an algorithm is applied on every single system in parallel.

After the generation of multi quantum states the correlation factors were selectively adjusted for the preparation of pseudopure initial states of quantum algorithms. At first the preparation sequence generates a correlation of all qubits I_j with similar hyperfine couplings a_j in dependence of the evolution time τ_S . This state is to be transformed to pseudopure states applying an adjusting sequence with selective manipulations of every qubit by a variation of I_{z_j} to the desired value $I_{z_j} \cos \beta_j$.

The preparation of pseudopure states was demonstrated experimentally in two- and three-qubit S-bus systems (one electron spin and two respectively three nuclear spins). The pulse sequences in these experiments could be expanded up to N qubits. The pseudopure states ρ_{00} , ρ_{01} , ρ_{10} and ρ_{11} respectively ρ_{000} could successfully be generated and detected by MQE.

The Deutsch algorithm by Collins

The Deutsch algorithm is a 1-bit quantum algorithm to decide between constant and balanced classes of binary functions f_{ij} dependent on their outputs in fewer steps as classical algorithms could do this. Therefore the Deutsch algorithm is a universal building block in quantum information processing. The applied unitary transformations represent the binary functions f_{ij} . Here the Deutsch algorithm by Collins with two qubits was successfully demonstrated recording the patterns in the MQE spectra applying the corresponding puls sequences. Every eigenstate $|xy\rangle$ of a two qubit system is transformed to $(-1)^{f_{ijkl}(xy)}|xy\rangle$.

The CNOT gate in an N -qubit system

A simple realization of the CNOT gate as a universal quantum gate with a transitionselective π -pulse within a four level system of two coupled qubits is not possible within the S-bus concept, because in this context ENDOR pulses are only qubit selective, respectively frequency selective RF irradiation can be applied. Here the implementation of the CNOT gate is realized by usage of the qubit-qubit interaction D_{jk} , which leads to an evolution $U_{jk}^D(t) = \exp(-i \sum_{j < k} I_{z_j} D_{jk} I_{z_k} \tau_I)$ during τ_I corresponding finally to the unitary CNOT transformation.

In this context the correlation transfer $I_{z_2} \rightleftharpoons I_{z_1} I_{z_2}$ could be demonstrated via a so called INEPT sequence, which correspond to a pre step of the CNOT transformation. The patterns of the MQE spectra of the states transformed by the INEPT- and the CNOT sequences also prove their successful implementation. Because of simplicity and only qualitative considerations no pseudopure states were prepared as initial states but states similar to them.

Einstein-Podolski-Rosen quantum state $|\Psi^-\rangle$

The preparation of entangled states is at the heart of quantum computing. The typical signature of the EPR state $|\Psi^-\rangle$ could be shown by density matrix tomography. The corresponding pulse sequence generates first the pseudopure state ρ_{00} as initial state, which is transformed to the EPR-state $|\Psi^-\rangle$. The tomography of entanglement takes place by a nearly inverse transformation with pulse phases, just like in MQE tomography, shifted with a phase frequency ν_{φ_j} individually for every qubit I_j . The MQE spectrum of the EPR state shows a single line at the difference phase frequency $\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1}$, which is the signature of $|\Psi^-\rangle$ (Fig. 4.45).

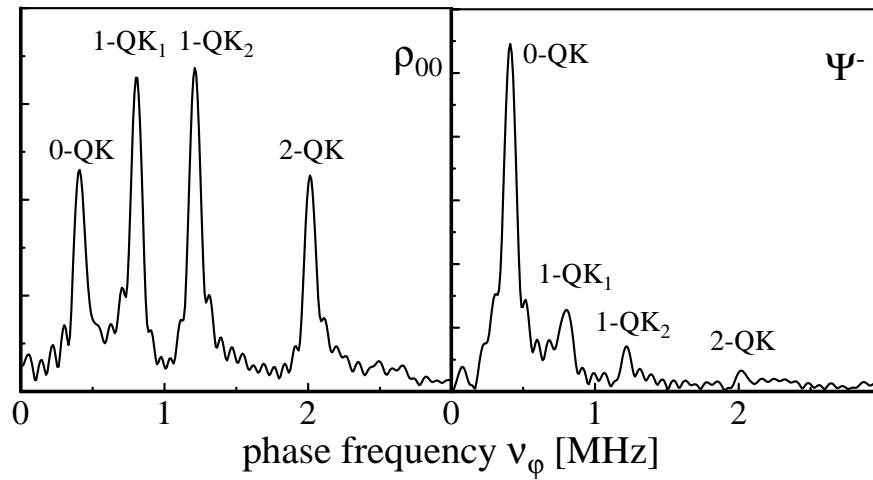


Fig. 4.45: MQE spectra showing the signatures of the pseudopure state ρ_{00} (left) and of the EPR state $|\Psi^-\rangle$ (right). The right one shows unambiguously the typical signature of the EPR state $|\Psi^-\rangle$ with a dominant line at the difference $\nu_{\varphi_2} - \nu_{\varphi_1} = 0,4$ MHz of the phase frequencies.

Conclusions

The S-bus concept implemented in the present work offers many advantages concerning the application as a general concept realizing quantum computers. Here this concept was applied with magnetic double resonance methods (ENDOR) with selective irradiation on qubit transitions with individual frequencies. In case of successful application of this concept there might be a possibility of transfer on other realizations of quantum information processing, besides the general transfer especially the implementation of special microwave techniques, pulse sequences and quantum algorithms, i.e. in ion traps, Josephson junctions or quantum dots. Even if sometimes in the future scalable quantum computers based on semicon-

ductors would be available the experiences made in the context of the S-bus concept could be applied in modified versions.

Literaturverzeichnis

- [1] R. P. Feynman. Simulating physics with computers. *Int. J. Theor. Phys.*, 21:467, 1982.
- [2] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Josza, A. Peres, and W. K. Wootters. Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolski-Rosen channels. *Phys. Rev. Lett.*, 70:1895, 1993.
- [3] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, and A. Zeilinger. Experimental quantum teleportation. *Nature (London)*, 390:575–579, 1997.
- [4] D. Deutsch. Quantum theory, the Church-Turing principle and the universal quantum computer. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 400:97–117, 1985.
- [5] D. Deutsch. Quantum computational networks. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 425:73–90, 1989.
- [6] D. Deutsch and R. Jozsa. Rapid solutions of problems by quantum computation. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 439:553–558, 1992.
- [7] C. H. Bennett. Quantum information and computation. *Phys. Today*, 48:24, 1995.
- [8] J. A. Jones and M. Mosca. Implementation of a quantum algorithm on a nuclear magnetic resonance quantum computer. *J. Chem. Phys.*, 109:1648–53, 1998.
- [9] I. L. Chuang, L. M. K. Vandersypen, X. Zhou, D. W. Leung, and S. Lloyd. Experimental realization of a quantum algorithm. *Nature*, 393:143–6, 1998.
- [10] P. W. Shor. Polynomial-time algorithms for prime factorisation and discrete logarithms on a quantum computer. In *Proc. 35th annual symposium on foundations of computer science*. IEEE Computer Society Press, Los Alamitos, 1994.

- [11] P. W. Shor. Algorithms for quantum computation: Discrete logarithms and factoring. In *Proc. 35th Ann. Symp. On Fundamentals of Computer Science*, page 124, Los Alamitos, 1994. CA: IEEE Press.
- [12] P. W. Shor. Polynomial-time algorithms for prime factorization and discrete logarithms on a quantum computer. *S.IM ALLGEMEINENM. Journal on Computing*, 26:1484, 1997.
- [13] L. K. Grover. Quantum mechanics helps in searching for a needle in a haystack. *Phys. Rev. Lett.*, 79:325, 1997.
- [14] L. K. Grover. Quantum computer can search arbitrarily large databases by a single query. *Phys. Rev. Lett.*, 79:4709, 1997.
- [15] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang. Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *Nature*, 414:883, 2001.
- [16] Y. S. Weinstein, S. Lloyd, and D. G. Cory. Implementation of the quantum Fourier transform. *Phys. Rev. Lett.*, 86:1889–91, 2001.
- [17] B. E. Kane. A silicon-based nuclear spin quantum computer. *Nature*, 393:133, 1998.
- [18] H. Ohno, D. Chiba, F. Matsukura, T. Omiya, E. Abe, T. Dietl, Y. Ohno, and K. Ohtani. Electric-field control of ferromagnetism. *Nature*, 408:944, 2000.
- [19] D. P. DiVincenzo. Quantum computation. *Science*, 270:255, 1995.
- [20] H.-J. Briegel, I. Cirac, and P. Zoller. Quantencomputer. *Phys. Blätter*, 55:37, 1999.
- [21] A. Einstein, B. Podolski, and N. Rosen. Can quantum-mechanical description of physical reality be considered complete? *Phys. Rev.*, 47:777, 1935.
- [22] R. Laflamme, D. G. Cory, C. Neggrvergne, and L. Viola. NMR quantum information processing and entanglement. *e-print quant-ph/0110029*, 2001.
- [23] D. G. Cory, M. D. Price, W. Maas, E. Knill, R. Laflamme, W. H. Zurek, T. F. Havel, and S. S. Somaroo. Experimental quantum error correction. *Phys. Rev. Lett.*, 81:2152–2155, 1998.
- [24] M. Mehring, W. Scherer, and A. Weidinger. Spin entanglement in $^{15}\text{N}@C60$. *in preparation*, 2004.
- [25] D. P. DiVincenzo. Two-bit gates are universal for quantum computation. *Phys. Rev. A*, 51:1015, 1995.

- [26] A. Barenco, C. H. Bennett, R. Cleve, D. P. DiVincenzo, N. Margolus, P. Shor, T. Sleator, John A. Smolin, and H. Weinfurter. Elementary gates for quantum computation. *Phys. Rev. A*, 52:3457, 1995.
- [27] J. A. Jones, R. H. Hansen, and M. Mosca. Quantum logic gates and nuclear magnetic resonance pulse sequences. *J. Magn. Resonance*, 135:353–360, 1998.
- [28] D. P. DiVincenzo. Quantum gates and circuits. *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*, 1996.
- [29] N. A. Gershenfeld and I. L. Chuang. Bulk spin-resonance quantum computation. *Science*, 275:350–356, 1997.
- [30] N. A. Gershenfeld and W. S. Warren. The usefulness of NMR quantum computing. *Science*, 277:1688, 1997.
- [31] E. Knill, I. L. Chuang, and R. Laflamme. Effective pure states for bulk quantum computation. *Phys. Rev. A*, 57:3348, 1998.
- [32] D. G. Cory, A. F. Fahmy, and T. F. Havel. Ensemble quantum computing by NMR spectroscopy. *Proc. Natl. Acad. Sci., USA*, 94:1634, 1997.
- [33] D. G. Cory, M. D. Price, and T. F. Havel. Nuclear magnetic resonance spectroscopy: An experimentally accessible paradigm for quantum computing. *Physica D*, 120:82, 1998.
- [34] J. Köhler, J. A. J. M. Disselhorst, M. C. J. M. Donckers, E. J. J. Groenen, J. Schmidt, and W. E. Moerner. Magnetic resonance of a single molecular spin. *Nature*, 363:242–4, 1993.
- [35] J. Wrachtrup, C. V. Borczyskowski, J. Bernard, M. Orrit, and R. Brown. Optical detection of magnetic resonance in a single molecule. *Nature*, 363:244, 1993.
- [36] J. S. Bell. *Physics*, 1:195, 1964.
- [37] G. Alber and M. Freyberger. Quantenkorrelationen und die Bellschen Ungleichungen. *Physikalische Blätter*, 55:23, 1999.
- [38] D. Dehlinger and M. W. Mitchell. Entangled photons, nonlocality and Bell inequalities in the undergraduate laboratory. *A. J. Phys.*, 70:903, 2002.
- [39] M. Mehring, J. Mende, and W. Scherer. Entanglement between an electron and a nuclear spin $\frac{1}{2}$. *Phys. Rev. Lett.*, 90:153001, 2003.
- [40] M. A. Nielsen, E. Knill, and R. Laflamme. Complete quantum teleportation by nuclear magnetic resonance. *Nature*, 396:52, 1998.

- [41] Dagmar Bruss. Characterizing entanglement. quant-ph/0110078.
- [42] D. Collins, K. W. Kim, and W. C. Holton. Deutsch-Jozsa algorithm as a test of quantum computation. *Phys. Rev. A*, 58:R1633–6, 1998.
- [43] J. A. Jones and M. Mosca. Implementation of a quantum algorithm on a nuclear magnetic resonance quantum computer. *J. Chem. Phys.*, 109:1648–1653, 1998.
- [44] J. A. Jones. NMR quantum computation. *Prog. NMR Spectrosc.*, 38:325, 2001.
- [45] D. G. Cory, R. Laflamme, E. Knill, L. Viola, T. F. Havel, N. Boulant, G. Boutis, E. Fortunato, S. Lloyd, R. Martinez, C. Negrevergne, M. Pravia, Y. Sharf, G. Teklemariam, Y. S. Weinstein, and W. H. Zurek. Nmr based quantum information processing: Achievements and prospects. *Fortschr. Phys.*, 48:875, 2000.
- [46] M. Mehring. The S-Bus-Concept. 2001.
- [47] M. Mehring and J. Mende. The S-Bus concept of spin quantum computing. *in preparation*, 2004.
- [48] F. Bloch and A. Siegert. *Phys. Rev.*, 57:522, 1940.
- [49] E. Zavoiski. *J. Phys.(Moscow)*, 9:245, 1945.
- [50] A. Abragam. *The Principles of Nuclear Magnetism*. Oxford, 1961.
- [51] A. Carrington and A. D. McLachlan. *Introduction To Magnetic Resonance*. Harper & Row, New York, 1969.
- [52] A. Abragam and B. Bleaney. *Electron Paramagnetic Resonance of Transition Ions*. Clarendon Press, Oxford, 1970.
- [53] C. P. Slichter. *Principles of Magnetic Resonance*. Springer-Verlag, 1978.
- [54] M. Mehring. *Principles of High Resolution NMR in Solids*. Springer, Berlin, 2nd edn., 1983.
- [55] M. Mehring and V. A. Weberruß. *Object-Oriented Magnetic Resonance*. Academic Press, 2001.
- [56] M. Mehring. *Appl. Mag. Res.*, 17:141, 1999.
- [57] A. F. Kip, C. Kittel, R. A. Levy, and A. M. Portis. Electronic structure of F centers: Hyperfine interactions in electron spin resonance. *Phys. Rev.*, 91:1066, 1953.

- [58] Landolt-Börnstein. *Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaft und Technik*, volume 7. 1980.
- [59] J.-M. Späth. ESR, ENDOR and ODMR of color centers and other defects in ionic crystals. *Cryst. Latt. Def. and Amorph. Mat.*, 12:381, 1985.
- [60] J. L. Hall and R. T. Schumacher. Electron spin resonance of hydrogen atoms in CaF_2 . *Phys. Rev.*, 127:1892, 1962.
- [61] W. C. Holton and H. Blum. Paramagnetic resonance of F centers in alkali halides. *Phys. Rev.*, 125:89, 1961.
- [62] H. Pick. *Struktur von Störstellen in Alkalihalogenidkristallen*, volume 38. 1965.
- [63] P. G. Baranov, R. A. Zhitnikov, and N. I. Melnikov. Paramagnetic resonance of silver atoms stabilized in alkali-halide crystals. *Phys. Stat. Sol.*, 30:851, 1968.
- [64] P. G. Baranov, R. A. Zhitnikov, and V. A. Khramtsov. Gold atoms in alkali halide crystals. *Sov. Phys. Solid State*, 19:1184, 1977.
- [65] G. E. Holmberg, W. P. Unruh, and R. J. Friauf. An ESR and ENDOR study of the Ag^0 center in KCl and NaCl. *Phys. Rev. B*, 13:983, 1976.
- [66] E. Bimont and J. E. Hansen. Energy levels and transition probabilities in 3d and 3d⁹ configurations. *Physica Scripta*, 39:308, 1989.
- [67] M. J. Weber and R. W. Bierig. Paramagnetic resonance and relaxation of trivalent rare-earth ions in calcium fluoride. I. resonance spectra and crystal fields. *Phys. Rev.*, 134:A1492, 1964.
- [68] R. W. Bierig, M. J. Weber, and S. I. Warshaw. Paramagnetic resonance and relaxation of trivalent rare-earth ions in calcium fluoride. II. spin-lattice relaxation. *Phys. Rev.*, 134:A1504, 1964.
- [69] J. M. Baker, B. Bleaney, and W. Hayes. Paramagnetic resonance of S-state ions in calcium fluoride. 1958.
- [70] J. M. Baker, W. Hayes, and M. C. M. O'Brien. Satellite lines in the paramagnetic resonance spectra of impurities in calcium fluoride. *Proc. Roy. Soc. A*, 308:403, 1968.
- [71] J. M. Baker and F. I. B. Williams. Electron nuclear double resonance of the divalent europium ion. 1962.

- [72] J. M. Baker, E. R. Davies, and J. P. Hurrell. Electron nuclear double resonance in calcium fluoride containing Yb^{3+} and Ce^{3+} in tetragonal sites. *Proc. Roy. Soc. A*, 308:403, 1968.
- [73] J. R. Herrington, L. A. Boatner, T. J. Aton, and T. L. Estle. Electron paramagnetic resonance investigation of the dynamic Jahn-Teller effect for Sc^{2+} in BaF_2 , SrF_2 and CaF_2 . *Phys. Rev. B*, 10:833, 1974.
- [74] C. L. Marquardt, J. F. Pinto and R. E. Allen, L. Esterowitz, A. Y. Der-gachev, S. Ke, and S. B. Mirov. Method for producing large, stable concentrations of Sc^{2+} in optically clear CaF_2 crystals. *J. Mater. Res.*, 13:257, 1998.
- [75] U. T. Höchli and T. L. Estle. Paramagnetic resonance study of the dynamic Jahn-Teller effect in $\text{CaF}_2 : \text{Sc}^{2+}$ and $\text{SrF}_2 : \text{Sc}^{2+}$. *Phys. Rev. Lett.*, 18:128, 1967.
- [76] J. H. Kim and B. H. Lee. Electron paramagnetic resonance of Ti in CaF_2 . *Journal of the Korean Physical Society*, 7:42, 1974.
- [77] W. Hayes and J. W. Twidell. Paramagnetic resonance of X-irradiated $\text{CaF}_2 : \text{Tm}$ and of $\text{CaF}_2 : \text{Yb}$. *Phys. Rev. Letters to the editor.*, page 1521, 1961.
- [78] E. S. Sabisky and C. H. Anderson. Paramagnetic-resonance absorption in the optically populated state ${}^2F_{5/2}$, $E_{5/2}$ of Tm^{2+} in CaF_2 . *Phys. Stat. Sol.*, 5:293, 1971.
- [79] H. Bill, G. Magne, C. Balestra, and D. Lovy. A trigonally charge-compensated Y^{2+} in CaF_2 : a Jahn-Teller system. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 19:L19, 1985.
- [80] U. Ranon and J. S. Hyde. Electron-nuclear-double-resonance and electron-paramagnetic-resonance analysis of the ytterbium-fluorine superhyperfine interaction in $\text{CaF}_2 : \text{Yb}^{3+}$. *Phys. Rev.*, 141:259, 1966.
- [81] I. R. Ibragimov, I. I. Fazlizhanov, M. L. Falin, and V. A. Ulanov. Electron spin resonance of Ce^{3+} ions in KMgF_3 crystal. *Sov. Phys. Solid State*, 34:1745, 1992.
- [82] W. B. Paul, S.-E. Wang, and L. G. Rowan. Ligand hyperfine spectra of Cu^{2+} in AgCl . *Phys. Rev. B*, 33:585, 1986.
- [83] R. A. Zhitnikov, V. B. Koltsov, and N. I. Melnikov. Paramagnetic resonance of copper atoms stabilized in alkali-halide crystals. *Phys. Stat. Sol.*, 26:371, 1968.

- [84] G. D. Soota and S. K. Agarwal. Transition metal impurities in alkali halides. *Phys. Stat. Sol.*, 5:293, 1971.
- [85] K. H. Hellwege, E. Orlich, and G. Schaak. Absorptionsspektrum des Ce^{3+} -Ions und Kristallfeld in $\text{La}(\text{Ce})\text{Cl}_3$. *Phys. Rev. Letters to the editor.*, page 1521, 1961.
- [86] J. J. Davies. EPR and ENDOR of titanium-doped lithium fluoride. *J. Phys. C: Solid state Phys.*, 7:599, 1974.
- [87] M. Yamaga, D. Lee, B. Henderson, T. P. J. Han, H. G. Gallagher, and T. Yosida. The magnetic and optical properties of Ce^{3+} in LiCaAlF_6 . *J. Phys.: Condens. Matter*, 10:3223, 1997.
- [88] H. Paus. *Abschlussbericht BMBF Forschungsbericht LAKRIMAT – Neue laseraktive kristalline Materialien*. 2. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, 1999.
- [89] Poulin. *J. Solid State Chem.*, 8:132, 1973.
- [90] Priv.-Doz. Dr. Jürgen Köhler. persönliche Mitteilung. *Max-Planck-Institut FKF Stuttgart*.
- [91] A. A. Kaminskii. *Laser Crystals*. Springer-Verlag, Springer Series in Optical Sciences, Vol. 14.
- [92] D. N. Chambers. EPR of trigonal centers in $\text{CaF}_2 : \text{Ce}^{3+}$. *Phys. Lett.*, 37A:77, 1971.
- [93] W. B. Mims. Pulsed endor experiments. *Proc. R. Soc. London*, 283:452, 1965.
- [94] P. Höfer, A. Grupp, and M. Mehring. High-resolution time-domain electron-nuclear-sublevel spectroscopy by pulsed coherence transfer. *Phys. Rev. A*, 33:3519, 1986.
- [95] H. Thomann and M. Bernardo. *J. Am. Chem. Soc.*, 118:5806, 1996.
- [96] M. Mehring, P. Höfer, and A. Grupp. Pulsed electron nuclear double and triple resonance schemes. *Ber. Bunsenges. Phys. Chem.*, 91:1132, 1987.
- [97] J. Mende and M. Mehring. Density matrix tomography and quantum algorithms in the S-bus. *in preparation*, 2004.
- [98] M. Mehring, P. Höfer, H. Käss, and A. Grupp. Multiple quantum ENDOR spectroscopy of protons in transpolyacetylen. *Europhys. Lett.*, 6:463, 1988.
- [99] G. A. Morris and R. Freeman. *J. Am. Chem. Soc.*, 101:760, 1979.

Publikationen

- The S-Bus Concept of Spin Quantum Computing
Michael Mehring, Jens Mende
Phys. Rev. A (in Vorbereitung)
- The Qubyte+1 Nuclear Spin Network in CaF₂:Ce
Jens Mende, Michael Mehring
Phys. Rev. A (in Vorbereitung)
- Entanglement between an electron and a nuclear spin 1/2
Michael Mehring, Jens Mende, Werner Scherer
Phys. Rev. Lett., Vol. 90, 153001-1, 2003
- En Route to Solid State Quantum Computing
Michael Mehring, Jens Mende, Werner Scherer
Lecture Notes in Physics, Springer-Verlag

Danke...

Ohne die ganz besondere Zusammenarbeit mit all den Kollegen, Mitarbeitern und Freunden wäre die Anfertigung dieser Dissertation sicherlich so nicht möglich gewesen. Nach Vollendung gilt es daher Danke zu sagen – für die vielen Anregungen, Diskussionen und besonders für die Hilfsbereitschaft aller – verbunden mit der Hoffnung, dass auch in Zukunft der widerfahrene ehrliche Idealismus, das gemeinsame Streben und der Wunsch nach Erkenntnis seinen Platz in den Köpfen der Wissenschaftler finden wird.

Besonderer Dank sei hier somit gesagt an ...

Herrn Prof. Dr. M. Mehring, der diese Arbeit betreut und – man könnte schon fast sagen, in einer Zusammenarbeit, geprägt von unbändigem Enthusiasmus – in langen gemeinsamen Diskussionen und Experimenten die Faszination für das Themengebiet weitergegeben und viele Impulse gegeben hat.

Herrn Prof. Dr. D. Schweitzer und Herrn Prof. Dr. G. Mahler, die freundlicherweise den Mitbericht und den Prüfungsvorsitz übernommen haben.

Herrn Prof. Dr. H. Paus, der mir schon während meiner Diplomarbeit seine unübertroffene wissenschaftliche Exaktheit nahe gebracht und gelehrt hat und in dessen Kristalllabor die Wiege des *Qubyte+1*-Kristalls stand.

Es gibt so viele – auch ehemalige – Labor- und Institutsmitglieder, die ich während meiner Doktoranden-Tätigkeit kennengelernt habe und für deren vielfältige Hilfe und Zusammenarbeit mit ihnen ich allen hier danken möchte – aufgrund der Vielzahl wähle ich wohl am besten die alphabetische Reihenfolge: Kai Baldenhofer, Wolfgang Bronner, Gerd Denninger, Heinz Erhardt, Sonja Fick, Arthur Grupp, Martin Hecht, Andreas Heidebrecht, Stefan Knorr, Steffen Krämer, Hans-Jürgen-Kümmerer, Jochen Leypold, Oliver Mangold, Bernd Nebendahl, Hermann Neumann, Dragos Peligrad, Jürgen Rahmer, René Reichle, Werner Scherer, Michael Schmidt, Ulrich Schneider, Markus Schulte, Jens Stock, Robert Schumann, Verica Spisic, Elmar Thews, Günther Warzecha, Sven Zühlsdorff – ich hoffe, dass ich niemanden vergessen habe...

Ein besonderer Dank gilt natürlich Ulli Offenbeck, die im Sekretariat, der guten

Seele des Institutes gleich, nicht nur administrative Anlaufstelle war, sondern bei der man auch immer ein offenes Ohr fand.

Danke besonders auch an all die Mitarbeiter in den verschiedenen Werkstätten unseres Institutes – den Herren Konrad Bähr und Uwe Rau im Kristalllabor; der Tieftemperaturabteilung mit Herrn Maurer, Herrn Schobel und Herrn Tietz, zu deren vielkonsumierenden Helium-Kunden ich mich wohl zählen darf; der Elektronikwerkstatt mit Herrn Möhrle, den Herren Hennig und Braun sowie Herrn Steinlen, die nicht selten mit Rat und Tat manch schwächelndes Bauteil des Spektrometers im Handumdrehen wieder zum Leben erwecken konnten; Dank an die Herren Günter Dietrich, Jochen Brenner und Markus Neuwirth aus der Mechanischen Werkstatt, mit deren Eigenbau-Probenkopf wir die Spins tanzen ließen. Danke auch an die Glasbläserei mit Herrn Quack, Herrn August und Herrn Rinaldo.

Sicherlich der größte Dank gilt meinen Eltern, die mir im familiären Zusammenhalt alle nur erdenklichen Hilfen und Unterstützungen mit auf den Weg geben haben...

Lebenslauf

Name: Jens Mende
Geburtsdatum: 29. 9. 1970
Geburtsort: Stuttgart
Eltern: Thomas Mende und Marta Siglinde Mende, geb. Raff
Familienstand: ledig

Schulbildung: 1977–1981 Grundschule Süd in Leinfelden
1981–1990 Philipp-Mathäus-Hahn-Gymnasium
in Leinfelden-Echterdingen
Mai 1990 Abitur

Zivildienst: 1991–1992 WFB Sindelfingen

Wiss. Ausbildung: 1992–1997 Physikstudium an der Universität Stuttgart
Oktober 1994 Vordiplom („gut“)
Juli 1997 Hauptdiplom („sehr gut“), Diplomarbeit:
Scheibenlaser mit Fluoridkristallen
von September 1998 wiss. Mitarbeiter am BMBF-Projekt
bis Juni 1999 *Neue laseraktive kristalline Materialien*
von Juli 1999 wiss. Mitarbeiter am 2. Physikal. Institut
bis Juli 2004 der Universität Stuttgart