

窒素原子内包フラーレン N@C<sub>60</sub> の生成と ESR による検出

(近畿大理工) ○若林知成, 黒田孝義

【序】窒素内包フラーレン N@C<sub>60</sub> は、不対電子をもつ窒素原子がそのスピン状態を保持したままフラーレン内部に捕捉されている点で、種々の内包フラーレンの中でも特別な位置を占める [1]。エネルギー緩和時間  $T_1$  の長さもさることながら、位相緩和時間  $T_2$  が非常に長いことから、量子コンピューティングの実現に向けた量子ビットの素材として注目されている [2-6]。本研究では、N@C<sub>60</sub> の生成、および、電子スピン共鳴分光法を用いた検出を行ったので報告する。

【実験】窒素分子 N<sub>2</sub> の放電により生成したカチオンを、C<sub>60</sub> 分子に衝突させることによって、N@C<sub>60</sub> を生成した。図 1 に本研究で用いた実験装置の概略図を示す。真空槽内に窒素ガスを流し、水冷コイルに 13.56 MHz, 500 W の高周波電場を印加することにより、電離気体を発生させた。生成したカチオンを、直径 2 cm のアパーチャを通して下流に導き、入口にステンレスメッシュを張った円筒型的水冷電極に約 -80 V を印加することによって捕集した。同時に、円筒電極の下流に設置した小型電気炉内部の C<sub>60</sub> 粉末を昇華させ、円筒電極の内壁に蒸着した。C<sub>60</sub> 分子はそこでカチオンの衝撃を受ける。円筒電極に流れる電流が安定かつ最大になるように (約 11 mA) 窒素ガスの圧力と流量を調整し、C<sub>60</sub> を徐々に蒸着しながら、約 1 時間の照射を行った。円筒電極の内側に付着した薄膜状の物質を大気中で少量の二硫化炭素を用いて収集した。これを石英管に移し、JEOL JES-PX-1050 分光器を用いて、電子スピン共鳴吸収スペクトルの測定を行った。

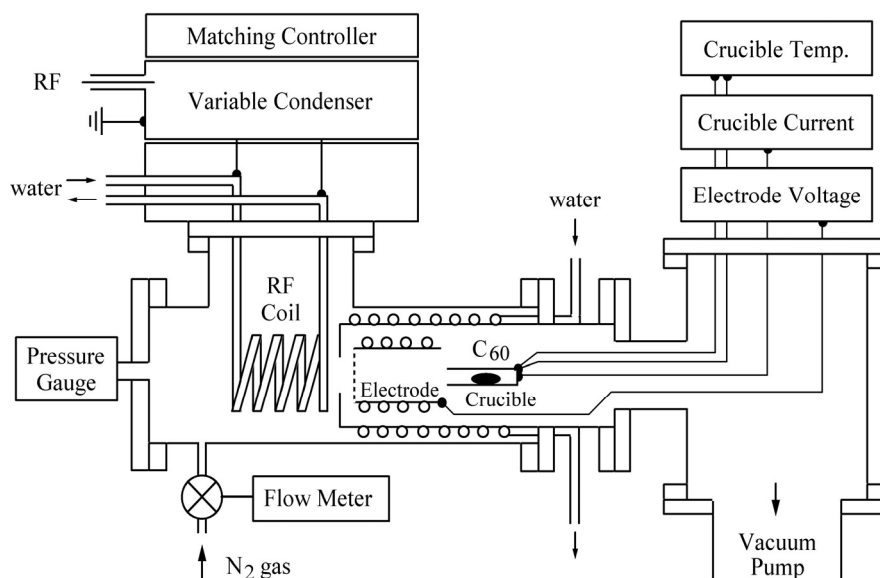


図 1. 窒素内包フラーレン N@C<sub>60</sub> の作製に用いた装置の概略図. 水冷円筒電極の内側に C<sub>60</sub> 分子を蒸着しながら、N<sub>2</sub> ガスの放電で生成したカチオンを電場で引き込んで照射する。

【結果と考察】図2にCS<sub>2</sub>に分散したN@C<sub>60</sub>/C<sub>60</sub>混合物のcw-ESRスペクトルを示す。室温条件下、共鳴周波数9.4 GHz (X-band)において飽和を避けるために出力52 μWで測定した。等間隔に並ぶ線幅の狭い3本の吸収線を確認した。これらの信号は、C<sub>60</sub>試料にもみられる幅広い吸収帯に重なって観測されることから、イオン衝撃によってC<sub>60</sub>試料中に新たに生成した常磁性中心に起因すると考えられる。窒素原子が電子スピン $S = 3/2$ をもち、<sup>14</sup>N原子核が核スピン $I = 1$ をもち、この3本線は超微細相互作用によって分裂した原子状<sup>14</sup>Nの電子スピン遷移に帰属が可能である。

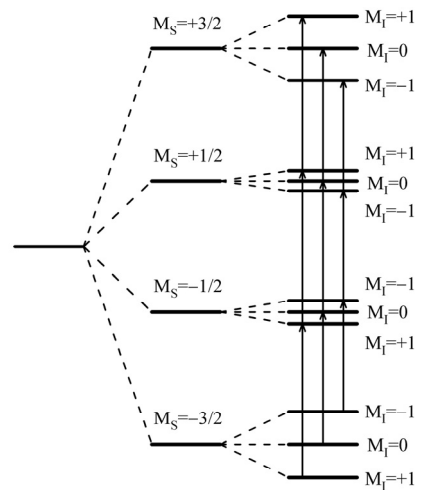
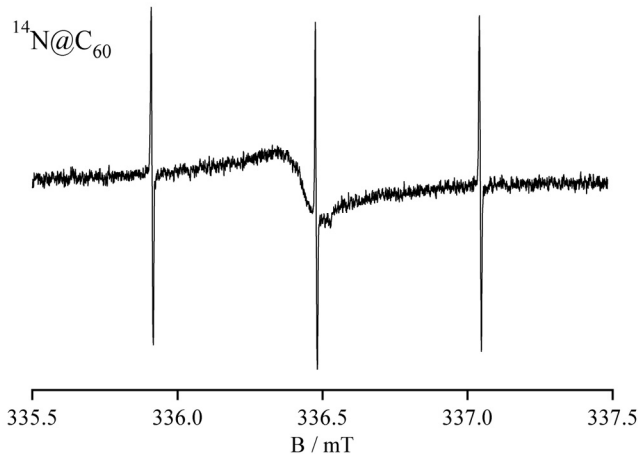


図2. <sup>14</sup>N@C<sub>60</sub>/C<sub>60</sub>混合物のESRスペクトル (溶媒CS<sub>2</sub>, 室温). 図3. <sup>14</sup>N@C<sub>60</sub>の準位図.

図3に、C<sub>60</sub>に内包された<sup>14</sup>N原子 (<sup>4</sup>S<sub>3/2</sub>)における $S = 3/2$ および $I = 1$ から派生する12個のスピンの準位の模式図を示す。ESR遷移は $\Delta M_S = +1$ ,  $\Delta M_I = 0$ であり、矢印で示した9個の遷移が可能である。これらの遷移は核スピン成分 $M_I$ の違いに応じて $M_I = +1, 0, -1$ の3つに分類できる。等方的な超微細結合 $AS \cdot I$ による準位の分裂を考慮すると、図1に観測された3つの吸収線は、低磁場側から順に $M_I = +1, 0, -1$ の遷移に帰属できる。このことは、観測された1つの吸収線が $M_S$ の異なる3つの遷移の重なりで構成されていることを意味する。今回の測定では変調周波数0.5 μTにおいてもその分裂は観測されなかった。一方、Mortonらは、高純度に精製した試料を用いて外側の2本の信号 ( $M_I = +1, -1$ ) にさらなる分裂 (~26 kHz) を観測している [7]。

今後は、試料の高純度化[8,9]に取り組み、パルスESR実験による緩和時間等の測定を検討する。

<参考文献>

- 1) T. Almeida-Murphy et al. Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 1075.
- 2) W. Harneit, Phys. Rev. A 65 (2002) 032322.
- 3) D. Suter and K. Lim, Phys. Rev. A 65 (2002) 052309.
- 4) J. Twamley, Phys. Rev. A 67 (2003) 052318.
- 5) M. Mehling et al. Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 206603.
- 6) J. J. L. Morton, Nature Physics 2 (2006) 40.
- 7) J. J. L. Morton, J. Chem. Phys. 122 (2005) 174504.
- 8) T. Suetsuna et al. Chem. Eur. J. 8 (2002) 5080.
- 9) P. Jakes et al. PCCP 5 (2003) 4080.