

4P057

2次元量子ビットモデル系、金属フタロシアニンを基盤とする 正方対称テトラニトロキシドラジカルの交換相互作用

(阪市大院・理,¹ クイーンズランド大・AIBN,² クイーンズランド大・CMR,³
 阪大院・基礎工,⁴ JST CREST⁵) ○野崎 幹人,¹ 中澤 重顕,^{1,5} 杉崎 研司,^{1,5}
 佐藤 和信,^{1,5} 塩見 大輔,^{1,5} 豊田 和男,^{1,5} Aaron S. Micallef,² Graeme R. Hanson,³
 北川 勝浩,^{4,5} 工位 武治^{1,5}

フタロシアニン化合物は分子中に広がる π 電子共役系の特性を生かし、色素として広く利用されている。またポルフィリンなどの生体関連物質との高い類似性や、中心部位の金属配位機能を活用した機能性分子としても期待され幅広い研究が行われてきた。今回、我々は金属配位フタロシアニンを骨格とするテトラニトロキシドラジカル (MPcNO₄) [1]の多電子スピン間交換相互作用に注目した。4つのニトロキシドラジカルのもつ電子スピンは量子情報処理・量子コンピュータのプロトタイプ分子スピン量子ビット系とみなすことができる[2]。本研究では各電子スピン間に生じる弱交換相互作用とパルスマイクロ波技術によるスピン制御によって生成する量子ビット間のエンタングルメントを利用した2次元量子ビットの量子情報処理(量子計算回路の組み立て)への展開を目指している。多くのスピン間相互作用が併存する多スピン系のESRスペクトルはその相互作用を一意的に帰属することは技術的に今日なお困難・不可能であることが多いが、今回着目したテトララジカル分子系では、各ラジカル部が正方対称に配置しているためにその相互作用を2種類に限定・単純化をすることができ、多量子ビット系分子量子演算のモデル分子として有望であると考えられる。(図1参照)

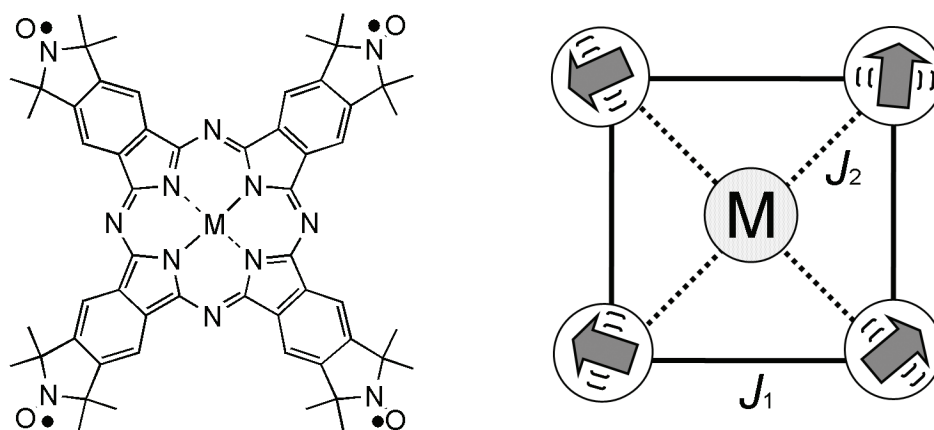


図1 .MPcNO₄の分子構造とその模式図。模式図中のMはフタロシアニン中に内包された金属イオンを表す。正方形の辺部隣接部ラジカル間の交換相互作用を J_1 とし、金属を介した正方形の対角線部ラジカル間の相互作用を J_2 とした。

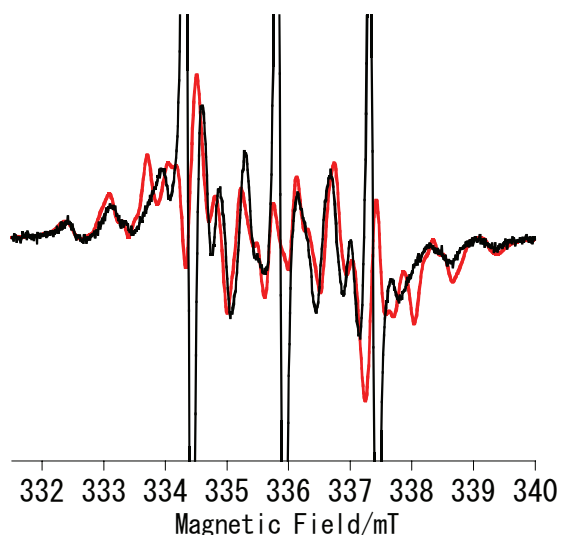


図2. 溶液 ESR スペクトル (黒線) と EasySpin によるシミュレーションスペクトル (赤線、 $J_1 = 10$ MHz、 $J_2 = 19$ MHz)。

図2に Mg^{2+} を含む $MPcNO_4$ の溶液 ESR スペクトルと EasySpin [3] によるシミュレーションスペクトルを示す。4つの等価な J_1 と2つの等価な J_2 を想定し、実測スペクトルをほぼ再現することができた ($J_1 = 10$ MHz、 $J_2 = 19$ MHz)。スペクトル解析の詳細は省くが、図2のシミュレーションでは、交換相互作用の大きさを $|J_1| > |J_2|$ としているが、 $|J_1| < |J_2|$ とした場合でも実験結果をある程度再現する結果が得られるため、スペクトルから大小関係を一意的に決定することは難しい。実験的には、窒素核を ^{15}N に標識化した $MPcNO_4$ 系に

検討している。

一方、交換相互作用の大きさに関する知見を得るため、量子化学計算を行うことにより相互作用の大きさを見積もった。構造最適化 (DFT 計算: UB3LYP/6-31G*) を施したテトララジカル分子の2箇所の N-O 部位を N-OH に置換したビラジカルについて、Broken-Symmetry[4]法による理論計算を行ったところ、 J_1 および J_2 のどちらか一方の相互作用のみが存在するビラジカルでは $|J_1| < |J_2|$ という結果が得られた。しかし得られた J の大きさは非常に小さく、DFT の計算精度と競争するため、その大きさについて定量的な議論をするのは困難であると考えられる。計算結果によると、交換相互作用はフタロシアニン骨格を通る経路よりも非磁性金属である Mg を介する Through-bond 相互作用の方が強いことを示している。これはメソ位窒素上のスピン密度が非常に小さくなる結果から定性的に説明できる。現在、分子内の電子状態とその磁気的な相互作用に関する情報を得るために ENDOR 測定を行い、スピン密度分布の解明を行っている。発表では、 $MPcNO_4$ 分子の電子構造・磁気的性質の詳細を報告するとともに、マイクロ波パルスを用いた ESR/ENDOR 技術により $MPcNO_4$ 分子の電子スピンを量子ビットとする量子情報処理への応用についても議論する。

- [1] G. M. Barrett, G. R. Hanson, A. J. P. White, D. J. Williams, A. S. Micallef, *Tetrahedron*, 2007, **63**, 5244-5250.
- [2] K. Sato, S. Nakazawa, R. Rahimi, T. Ise, S. Nishida, T. Yoshino, N. Mori, K. Toyota, D. Shiomi, Y. Yakiyama, Y. Morita, M. Kitagawa, K. Nakasuji, M. Nakahara, H. Hara, P. Carl, P. Höfer, and T. Takui, *J. Mater. Chem.*, 2009, **19**, 3739-3754.
- [3] S. Stoll, A. Schweiger, *J. Magn. Reson.*, 2006, **178**, 42-55.
- [4] K. Yamaguchi, Y. Takahara, T. Fueno, in: V.H. Smith Jr., H.F. Schaefer III, K. Morokuma (Eds.), *Applied Quantum Chemistry*, Reidel, 1986, p. 155.