

(近畿大・理工) ○吉川 愛里, 若林 知成

【序】窒素原子内包フラーレンN@C₆₀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に内包されているので、量子コンピューターの記憶素子や磁性半導体等への応用が期待されている[1,2]。ここでは作製した試料からN@C₆₀だけを単離することが必要とされている[3]。

N@C₆₀は、窒素分子N₂の高周波放電で生成したカチオンをC₆₀分子に衝突させることによって生成する[4,5]。本研究では、カチオン照射後の試料の大部分を占めるC₆₀分子からN@C₆₀分子を分離することを目的として、スピン数の定量と高速液体クロマトグラフィーを用いた濃縮を行ったので報告する。

【スピン数の定量】市販のフリーラジカル(2,2,6,6-tetramethylpiperidine 1-oxyl = TEMPO)のESR信号について検量線を作成し、実験で得られたN@C₆₀/C₆₀混合試料に含まれるスピン数の見積りを行った。図1に秤量と希釈で得たスピン数が既知のTEMPO試料、および、約1時間のカチオン照射で得たN@C₆₀/C₆₀混合試料約10 mgのESRスペクトルを示す。TEMPOのESR信号はN@C₆₀に比べて線幅が二桁以上広いが、変調条件を共通にして微分スペクトルを測定し、これを数値積分することによって吸収強度を比較した。調製したTEMPOには計算上 1.3×10^{14} 個のスピンが含まれることからN@C₆₀の個数としておよそ 1.5×10^{14} 個という値を得た。

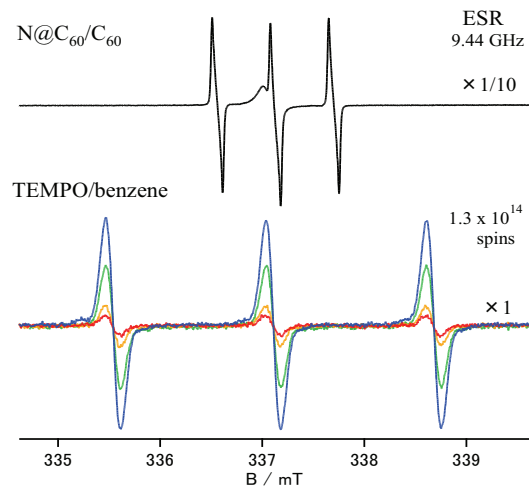


図1. N@C₆₀/C₆₀混合物およびTEMPO(ベンゼン溶液)のESRスペクトル(青は原液、緑、橙、赤は、その2, 5, 10倍希釈溶液のスペクトル)。

【リサイクルHPLCによる濃縮】N@C₆₀とC₆₀は外見上の区別がほとんどないため、分離には、試料をカラムに複数回通すリサイクリング法が有効である。図2にクロマトグラムを示す。検出には333 nmの紫外吸収を用いた。N@C₆₀分子とC₆₀分子のピークが約16時間でカラムを42回通過したことがわかる。回数を重ねるにつれてピークは拡がりテールを引くようになる。ピークが適当な幅を持つようになった時点で周回している試料を4分割して採取し、それぞれのESRスペクトルを測定した。図3は42周目のクロマトグラムの拡大図(左)、および、4分割した試料それぞれのESRスペクトル(右)である。ピークの後半にN@C₆₀が濃縮されることがわかる。

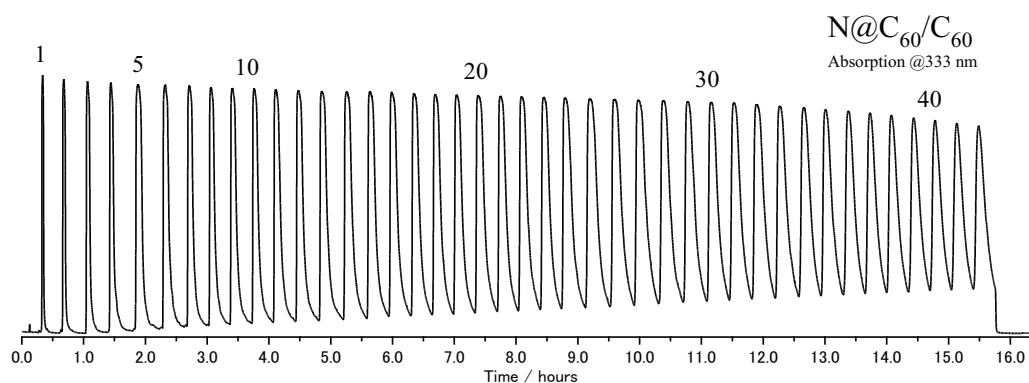


図 2. N@C₆₀/C₆₀混合物のクロマトグラム(5PBB 250 mm x φ10, Toluene 2 ml/min).

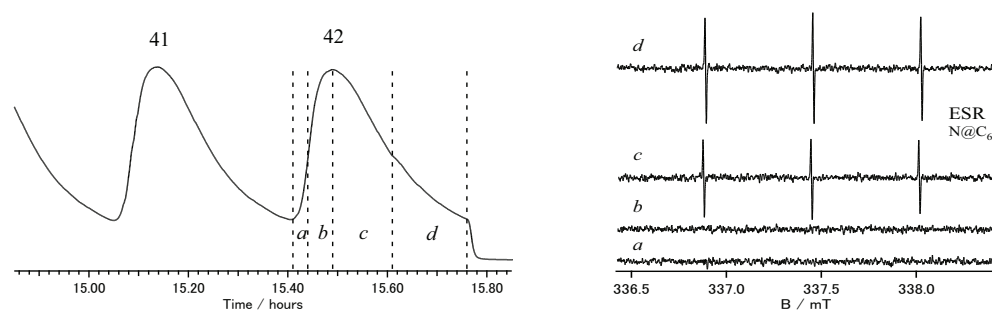


図 3. N@C₆₀/C₆₀のクロマトグラムの拡大(左) およびフラクションa-dのESRスペクトル(右).

【今後の計画】 光学吸収の測定にはN@C₆₀分子が 1×10^{15} 個程度必要である。高純度のN@C₆₀試料の作製を目指して、分離部分を改良しながら濃縮と単離を進める。

<参考文献>

- [1] W. Harneit, “Fullerene-based electron-spin quantum computer”, *Phys. Rev. A* **65**, 032322 (2002).
- [2] S. C. Benjamin, A. Ardavan, G. A. D. Briggs, D. A. Britz, D. Gunlycke, J. Jefferson, M. A. G. Jones, D. F. Leigh, B. W. Lovett, A. N. Khlobystov, S. A. Lyon, J. J. L. Morton, K. Porfyakis, M. R. Sambrook, and A. M. Tyryshkin, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, S867 (2006).
- [3] P. Jakes, K.-P. Dinse, C. Meyer, W. Harneit, and A. Weidinger, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **5**, 4080-4083 (2003).
- [4] T. Wakabayashi, “Fullerene C₆₀: A possible molecular quantum computer” in *The Kinki University Series on Quantum Computing Vol. 2*, M. Nakahara et al. Eds., World Scientific Publishing Co. Ltd. (2009).
- [5] 若林, 黒田, 「窒素原子内包フラーレンN@C₆₀の生成とESRによる検出」, 第2回分子科学討論会, 1P038 (2008).