

ナノカーボン正四面体への単一原子封入による キュビット分子素子の理論的設計

東海大院・理
○奥村颯子, 石川滋

Theoretical Design of the Qubit Molecular Device made by Enclosing a Single Atom in a Nanocarbon Tetrahedron

○Sayako Okumura, Shigeru Ishikawa
Department of Chemistry, Tokai University, Japan

【Abstract】 We propose a tetrahedron-shaped nanocarbon for the qubit molecular device that uses a single atom having nuclear or electron spins. We use a truncated tetrahedron hydrocarbon as a host of the atom. The atoms enclosed in this molecule are ^3He with the nuclear spin $I = 1/2$, ^{21}Ne with $I = 3/2$, and ^{14}N with the electron spin $S = 3/2$ and $I = 1$. The binding energies of He, Ne, and N atoms calculated by the MP2/cc-pVTZ method are -14 , -39 , and -118 meV, respectively. The occupancy of the atom is evaluated by the Langmuir isotherm. The electronic structure of the N atom enclosed in the molecule is similar to that of the isolated atom. The unpaired electrons still remain on the N atom after enclosing. The charge and spin density of the N atom enclosed in the molecule are -0.010 and 2.97 , respectively.

【序】 量子ビットとして核スピンまたは電子スピンを利用するには、母体結晶やホスト分子内に原子 1 個を孤立させて保持する必要がある。このような素子には、シリコン結晶にリン原子などの不純物を添加した格子欠陥型の素子[1]や、窒素原子など核スピンや電子スピンをもつ原子を、 C_{60} のような空洞分子に封入したスピン包接型素子[2]などがある。格子欠陥型素子は、母体結晶の核スピンの状態を乱すという欠点がある。スピン包接型素子は、格子欠陥型素子に比べて、よりスピンを孤立させると期待できるが、実際に合成されている $\text{N}@C_{60}$ の収率は低く、不安定である。そこで、本研究では、容易かつ安定に単原子を包接できるナノカーボン分子として、切頭正四面体型炭化水素 C_{36}H_2 [3]を選び、これに、ヘリウム、ネオン、窒素原子各 1 個を包接させたときの吸着エネルギーと電子状態を検討した。これらの同位体原子はスピンを持ち、ヘリウム 3、ネオン 21 及び窒素 14 同位体の核スピン I はそれぞれ、 $1/2$, $3/2$, 1 であり、窒素原子の電子スピン S は $3/2$ であり、電子項は $^4\text{S}_{3/2}$ である。

【計算方法】 スピン包接型素子 $\text{M}@C_{36}\text{H}_2$ ($\text{M}=\text{He}, \text{Ne}, \text{N}$) の最適化構造を MP2/cc-pVTZ 理論レベルで求めた。得られた各原子の吸着エネルギーから、包接の占有率 θ を Langmuir の等温吸着式

$$\theta(p, T) = \frac{p}{p + p_0(T)}$$

より求めた。ここで、 $p_0(T)$ は占有率 0.5 を与える特性圧力である。

$$p_0(T) = \left(\frac{2\pi mkT}{h^2} \right)^{3/2} e^{-\varepsilon_0/kT}$$

ここで、 $\varepsilon_0 (> 0)$ は吸着エネルギーを表す。

【結果・考察】包接分子 $C_{36}H_{24}$ は、4 個のベンゼン環の 1, 3, 5 位を 6 個のビニレン基で架橋した切頭正四面体型の構造をもつ。この分子の中心にヘリウム、ネオン、窒素の各原子を包接させたところ、それぞれの束縛エネルギーは、 -14 , -39 , -118 meV となった。Table 1 と 2 に包接された各原子の p_0 の値を示す。

希ガス原子を $C_{36}H_{24}$ の C_3 軸に沿って分子の開口部に接近させて、原子包接過程を調べた。ネオン原子包接の過程を Fig.1 に示す。ネオン原子は、包接分子の外側に一度吸着された後、遷移状態を経て空洞内に吸着された。外側での吸着エネルギーと活性化エネルギーは、それぞれ、 -50.8 と $+796.7$ meV であった。ヘリウム原子吸着過程では、それぞれ -6.2 と $+526.8$ meV であった。

窒素原子の不対電子は、包接後も窒素原子上に残ったままであった。MP2 密度に基づいて包接された窒素原子の電荷とスピン密度を求めたところ、それぞれ、マリケンポピュレーション解析で -0.014 と $+2.96$ 、ナチュラルポピュレーション解析電子で -0.010 と $+2.97$ であった。包接前の窒素原子の電子状態がほぼ保たれていることがわかった。

Table 1. Characteristic pressure p_0 for He and Ne atoms.

T / K	p_0 / bar	
	He	Ne
20	0.1	6.0×10^{-7}
30	5.5	3.2×10^{-3}
40	41.6	0.3
50	159.4	4.8
60	424.2	34.3
70	906.0	148.4
80	1673.9	465.5

Table 2. Characteristic pressure p_0 for N atom.

T / K	p_0 / bar
100	0.2
140	18.0
180	295.7
200	822.8

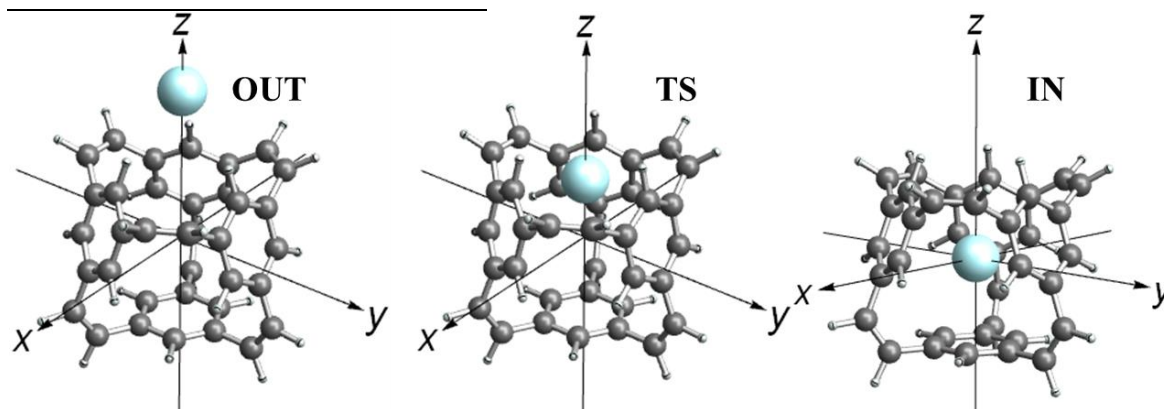


Fig.1. Equilibrium structures in the Ne adoption process: *OUT* the structure adsorbing the Ne atom outside the opening, *TS* the transition state of process, *IN* the structure adsorbing the Ne atom inside the molecule.

【参考文献】

- [1] S. C. Benjamin et al., *J. Phys. Condens. Matter* **18**, S867(2006).
- [2] M. Eckardt, R. Wiczorek, W. Harneit, *Carbon* **95**, 601(2015).
- [3] S. Ishikawa, T. Yamabe, *Appl. Phys. A* **123**, 119 (2017).