

CXY分子 (X, Y=O, S) の陽電子親和力に関する理論的研究

¹横浜市大院生命ナノ, ²横浜市大DSセンター○古島弥来¹, 北幸海¹, 立川仁典^{1,2}

Theoretical study on positron affinity of CXY(X, Y=O, S) molecules

○Miku Furushima¹, Yukiumi Kita¹, Masanori Tachikawa^{1,2}¹ Graduate School of Science, Yokohama City Univ., Japan² Data Science Center, Yokohama City University, Japan

【Abstract】 Recent studies showed that some molecules can bind positron and the binding energy is called positron affinity. While it is thought that only molecules with large dipole moment can bind positron, it was reported experimentally that CS₂ and other molecules with small or no dipole moment can bind positron. Previous theoretical study considered vibration in harmonic approximation and revealed high values of PA on CXY(X, Y=O, S, Se) molecules. Another theoretical study considered anharmonicity of vibration on CS₂. Both of them suggested that origin of positron affinities in such molecules are vibration-induced dipole moment. In this study, we focused on CXY(X, Y=O, S) molecules, which has small or no dipole moment, and calculated PAs considering anharmonicity of vibration. These results suggested that both dipole moment and dipole polarizability affect positron affinity.

【序】陽電子とは電子の反粒子であり、+1の電荷と1/2のスピンを持つ素粒子である。陽電子は電子と衝突すると対消滅現象を起こしガンマ線を放出することが知られており、その特異な性質から生体内のがん細胞の検出・無機材料における原子空孔の検出などに応用されている[1,2]。しかしながらサブ nm オーダーにおける陽電子と原子・分子との相互作用は十分に解明されているとは言い難い。

近年の研究より、低速の陽電子が一部の原子・分子に照射されると一時的な陽電子束縛状態が生まれることが理論的・実験的に明らかになった[3,4]。この時の一時的な束縛状態を陽電子複合体といい、また、この時の陽電子の結合エネルギーは陽電子親和力(Positron Affinity; PA)と呼ばれている。

陽電子複合体は分子の永久双極子モーメントが大きいほど生成されやすいと考えられており、すなわち PA と永久双極子モーメントは正の相関があると考えられている[5]。しかしながら例外となる分子の存在が実験的に報告された。Surko らは CS₂ ガスに低速陽電子ビームを照射しγ線を検出することにより、CS₂ の PA として 75 meV という値を報告した[6]。CS₂ 分子の永久双極子モーメントは 0 debye であり、これまでの報告を鑑みると 75 meV という値は極めて大きいものである。

この現象について振動の効果に着目した理論的研究が報告されている。Koyanagi らは CXY(X, Y=O, S, Se)分子系に対して調和近似の下で振動励起状態における PA を [7]、Takeda らは振動の非調和性を考慮し、振動励起状態における CS₂ 分子の PA を理論的に算出している[8]。これら先行研究の結果は、分子振動に誘起された双極子モーメントによって陽電子の束縛状態が形成されることを示唆している。

本研究では CXY(X, Y=O, S)分子に対して、振動の効果を取り込んだ理論的な PA の

値に着目した。まず分子振動の非調和性を考慮した手法で PA の値を算出し、永久双極子モーメントの小さい分子における陽電子の束縛の普遍性を確認した。また、振動励起状態における PA 値と永久双極子モーメント・分極率との関係性を考察した。

【方法】陽電子の束縛エネルギーである PA は、理論的には陽電子束縛前のある分子(親分子)のある構造におけるエネルギーから、その構造における陽電子複合体のエネルギーを引いた値として定義される。本研究では、PA・双極子モーメント・双極子分極率に対して分子振動の寄与を考慮するために、振動 Self-Consistent Field (VSCF)波動関数の絶対値の二乗(存在確率)による重み付け平均(振動平均値)を解析した。

基底関数系として aug-cc-pVTZ を用いた 2 次の Møller-Plesset 摂動法により、親分子の構造・基準振動座標・ポテンシャルエネルギー曲面 (PES) を算出した。解析対象は振動基底状態、基音、2 倍音、および最低次の結合音準位である。

PA の算出に際し、親分子のエネルギー算出には Hartree-Fock(HF)法を用い、基底関数として 6-31+G(2df)を採用した。また、陽電子複合体のエネルギーの算出には多成分分子軌道(MC-MO)法を用いた。具体的には配置間相互作用法を用い、1 電子励起・1 陽電子励起・1 電子 1 陽電子同時励起配置までを考慮した。基底関数には電子に 6-31+G(2df)を、陽電子に 11s9p4d2f1g のガウス型関数を採用した。双極子モーメント・分極率は親分子と同様に HF 法を用い、6-31+G(2df)を基底関数系として採用した。

【結果・考察】

本研究で得られた CXY(X, Y=O, S)分子の PA を従属変数とし、双極子モーメント (μ) および分極率 (α) を独立変数にとった線形回帰分析の結果を Fig. 1. に示す。縦軸は振動平均 PA、横軸は回帰モデルにおける PA の予測値である。 μ のみを独立変数にした回帰モデルを μ -model、 α のみを独立変数にした回帰モデルを α -model、 μ および α を用いた重回帰モデルを α, μ -model と表している。

重決定係数 R^2 値は順に 0.36, 0.19, 0.57 となり、 α, μ -model がもっともよく PA を説明していることがわかる。この結果より PA と μ , α の相関関係の存在が示唆された。回帰モデルの詳細は当日発表する。

PA と分極率の相関の起源は、陽電子が周囲に作る電場による誘起双極子、および陽電子との間のクーロン相互作用であると考えられる。

【参考文献】

- [1] R. L. Wahl (Ed.) "Principles, Practice of positron Emission tomography" (Lippincott, Williams, Willkins, Philadelphia, 2002).
- [2] P. G. Coleman "Positron Beams and their Applications" (World Scientific, Singapore 2000).
- [3] O. H. Crawford *Proc. Phys. Soc.* **91** (1967) 279
- [4] J. Xu *et al. Phys. Rev. A.* **49**, R3151 (1994).
- [5] J. R. Danielson *et al. Phys. Rev. Lett.* **104**, 233201 (2010).
- [6] G. F. Gribakin *et al. Rev. Mod. Phys.* **82**, 2557 (2010).
- [7] K. Koyanagi *et al. Phys. Chem. Chem. Phys.* **38**, 16208 (2013).
- [8] Y Takeda *et al. Eur. Phys. J. D* **6**, 70 (2016).

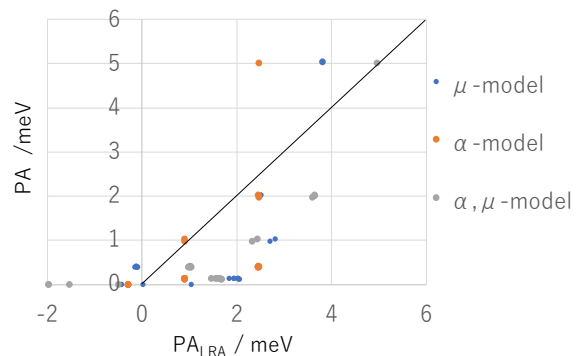


Fig. 1. Regression analysis for vibrational averaged PA's