

X線自由電子レーザーによって引き起こされる C₆₀多価カチオンの分子フラグメント生成動力学

¹東北大金研, ²東北大院理, ³DESY-CFEL,

⁴Univ. Hamburg, ⁵Univ. Connecticut ⁶東北大多元研

○山崎 馨¹, 落合 宏平², Zoltan Jurek³, Robin Santra^{3,4},
Nora Berrah⁵, 上田 潔⁶, 河野 裕彦²

高い強度を持つ X 線自由電子レーザー (XFEL) パルスに曝された分子は、内殻イオン化に引き続いておきるオージェ緩和などを多価イオン化され、その正電荷間の反発が引き起こすクーロン爆発により解離する。その機構の理解は、生体分子の放射線損傷機構の解明や、解離イオンの運動量が爆発直前の分子構造を反映することを応用した時間分解分子イメージング法の確立に寄与すると考えられる。そこで本研究では、近年我々が開発した Self-Consistent Charge Density Functional Based Tight-Binding (SCC-DFTB) 法[1]に基づく XFEL 誘起クーロン爆発反応動力学シミュレータ[2-4]を代表的なナノ材料分子である C₆₀ フラーレンにこのモデルを適用し、クーロン爆発によって生成する分子イオンフラグメントの生成ダイナミクスを追跡した。

SCC-DFTB 法に基づく反応動力学計算の結果、C₆₀^{Z+} 多価カチオンは、XFEL パルス照射後 10-100 fs 程度で C²⁺などの多価原子カチオンを放出し、その後、1 価の原子・分子フラグメントが生成することがわかった (Fig. 1)。そこで、1 価の原子・分子フラグメント C_n⁺ (n=1-5)がどの C₆₀^{Z+}親カチオンから生成しやすいかを調べた(Fig. 2)。具体的には Z=9-40 の各電荷におけるフラグメントの相対収率は、各電荷に対して 40-160 トラジェクトリ計算して得られたイオン収量に、XMDYN プログラムで求めた C₆₀^{Z+}の空間平均電荷分布[5]をかけあわせて求めた。その結果、C⁺は Z~ 20-30、C_n⁺ (n=2-5)は Z~ 15-25 の電荷を持つ親カチオンから生じやすいことがわかった。さらに、最終的に生成したフラグメントに対して Covariance 解析を行ったところ、C₃²⁺ → C⁺ + C₂⁺の解離が非統計的に起きていることが示唆された。

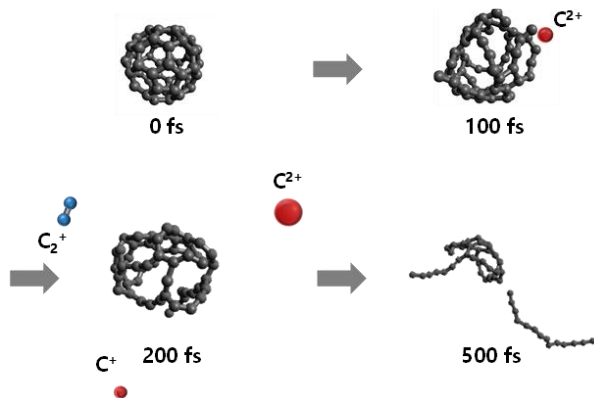


Fig. 1. Snapshots of a representative trajectory of the two-step femtosecond fragmentation of C₆₀¹²⁺ ($T_e = 0.75$ eV, $E_{in} = 5Z=60$ eV for $Z=12$)

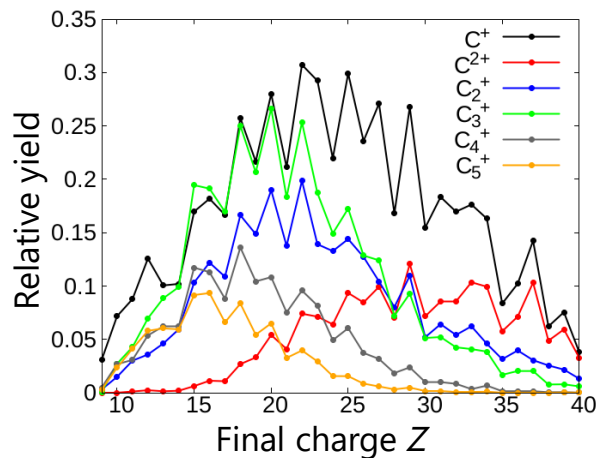


Fig. 2. Relative yields of daughter fragment ions C_n⁺ (n=1-5) for each final charge Z

参考文献：

- [1] M. Elstner *et al.*, *Phys. Rev. B* **58**, 7260 (1998)
- [2] K. Nagaya *et al.*, *Faraday Discuss.* **194**, 537 (2016)
- [3] T. Takanashi *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 19707 (2017)
- [4] 落合, 山崎 他, 第 12 回分子科学討論会, 2A11 (2018)
- [5] N. Berrah *et al.*, *Nat. Phys.* in-press (2019)