

3A02

DFT-MD による臭素化芳香族分子のクーロン爆発

(京大院理¹、熊大院自然²) 大村訓史¹, 永谷清信¹, 下條冬樹², 八尾誠¹

DFT-MD studies of coulomb explosion of bromo-aromatic molecules

(Kyoto Univ.¹ Kumamoto Univ.²) Satoshi Ohmura¹, Kiyonobu Nagaya¹, Fuyuki Shimojo²,
Makoto Yao¹

【序】

芳香族分子に臭素を付加した臭素化芳香族分子に硬 X 線を照射すると、重元素である臭素の内殻電子が分子放出され、オージェカスケードによって臭素原子内に多数の正孔が生成される。正孔が価電子軌道に達すると、それらの正孔は分子全体へ分配され、クーロン斥力により、分子がクーロン爆発を起こす。近年、爆発後のイオンの運動量や電荷分布から、爆発直前の構造、臭素原子から分子全体への正孔分配過程を予測しようとする試みがなされており、理論的にクーロン爆発の詳細なプロセスを調べることは、それらを成功させるために必要不可欠なことである。

【計算】

上に述べた背景をもとに、硬 X 線照射後のクーロン爆発の詳細なプロセスを調べるため、我々は、臭化フェノール、臭化ナフトールのような臭素化芳香族分子に対し、分子動力学法 (MD) に基づく計算機シミュレーションを行った。分子動力学法は各ステップで電子状態を求める型の第一原理分子動力学法を用い、電子状態は一般化された密度勾配近似を用いた密度汎関数法 (DFT) に基づく Projected-augmented wave (PAW) 法で計算した。まず、通常分子動力学法を 3000step (約 1.5 ps) 行い、その後、その配置から分子全体を +6 ~ +8 に帯電させ、MD シミュレーションを行った。クーロン斥力によって小さなフラグメントに分かれていく様子を population 解析から得られる電荷分布の時間発展などと共に詳しく調べた。

【結果と考察】

臭化フェノールの計算から、分子全体を正に帯電させた後瞬時に原子一つ一つに解離するのではなく、いくつかのプロセスを経て分子が崩壊していくことが分かった。まず、第一のプロセスとして、10~20 fs で OH 基の H が解離していく。図 1 はその時のイオン配置と Mulliken 電荷の時間発展を示している。この図から、H 解離の過程において Br から OH 側へ正孔が移動しているのがわかる。

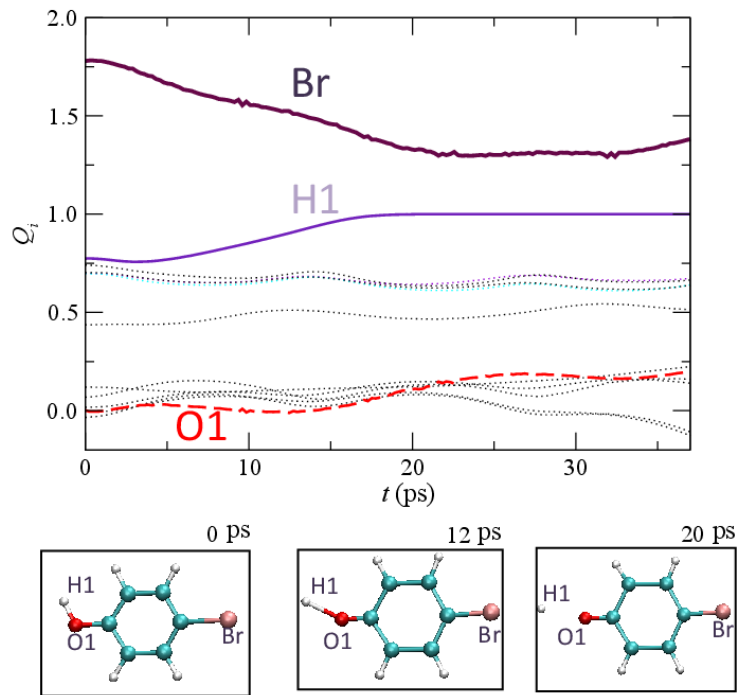


図 1、OH 基の H が解離する際のイオン配置と Gross 電荷の時間発展

さらに H が解離した後、リングが開き、フラグメントに分かれていく。その様子を図 2 に示す。

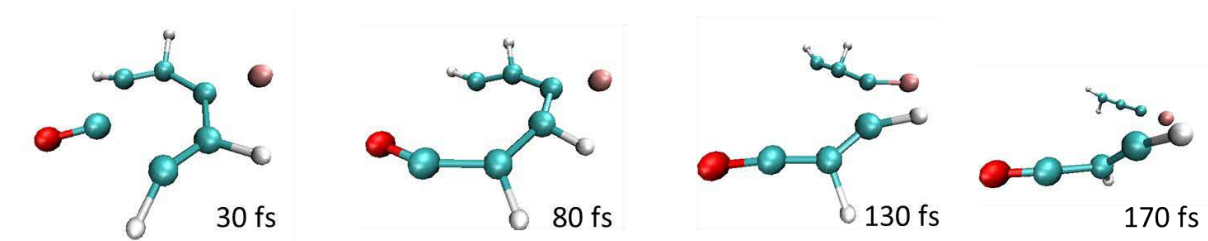


図 2、フラグメントに分かれていく分子

講演では、臭化フェノールの計算結果だけでなく、臭化ナフトールの計算結果も紹介し、この二つの分子のクーロン爆発メカニズムの違いについて議論する予定である。