

# 多原子分子の全自由度を考慮した解離性電子付着断面積の 計算方法の開発

(埼玉大院理工) 杉岡雄仁 , 高柳敏幸

## Development of a computational method of dissociative electron attachment cross sections for polyatomic molecules in full dimensionality

(Saitama Univ.) Yuji Sugioka , Toshiyuki Takayanagi

低エネルギー電子が分子に衝突すると、一時的にラジカルアニオンが生成し、結合が解離する。この過程は解離性電子付着と呼ばれ、プラズマ化学や放射線化学等の様々な分野で極めて重要な役割を果たしている。解離性電子付着の起こりやすさは電子の衝突エネルギーに対する解離性電子付着断面積で表されるが、実験的に絶対値を決めることは極めて難しく、理論的に算出する方法が開発されてきた。しかし、核の全自由度を量子論的に扱うことは分子の大きさが増えるほど非常に困難であるため、これまでの理論は一部の自由度のみを考慮していた[1]。しかし、これでは解離による生成物のエネルギー分配は分からない。よって、核の全自由度を考慮した計算方法の開発が必要である。

本研究では経路積分分子動力学法と共鳴複素ポテンシャル理論を組み合わせた計算方法を開発した。初期構造と初期運動量を求める際には、中性分子のポテンシャルエネルギー曲面上で経路積分分子動力学法を用いて、温度と核の量子性を含めたサンプリングを行なった。次に、得られた初期構造と初期運動量をもとにアニオン分子のポテンシャルエネルギー曲面上で古典トラジェクトリー計算を行い、アニオンの寿命を積算し、解離性電子付着断面積を求めた。この方法を実験・理論ともに研究されている  $\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{H}_2\text{O} + e^- \rightarrow \text{OH} + \text{H}^-$ ) [2,3] と  $\text{CF}_3\text{Cl}$  ( $\text{CF}_3\text{Cl} + e^- \rightarrow \text{CF}_3 + \text{Cl}^-$ ) [1,4] に適用し、計算方法の妥当性を検証した。解離性電子付着断面積は温度に大きく依存する系があるため[4]、その温度依存性を再現できるかどうかについても考慮した。

Fig.1,2 はそれぞれ  $\text{H}_2\text{O}$  と  $\text{CF}_3\text{Cl}$  における解離性電子付着断面積の電子の衝突エネルギー依存性を表している。 $\text{H}_2\text{O}$  については厳密な量子動力学計算で求められた値とよく一致し、 $\text{CF}_3\text{Cl}$  については実験値を定性的に再現している。また、Fig.3,4 はそれぞれ  $\text{H}_2\text{O}$  と  $\text{CF}_3\text{Cl}$  の解離における  $\text{H}^-$ ,  $\text{CF}_3^-$  の相対運動エネルギー分布の電子の衝突エネルギー依存性を表している。核の全自由度を扱った計算をすることによって、このように解離性電子付着における詳細な情報を得ることができる。

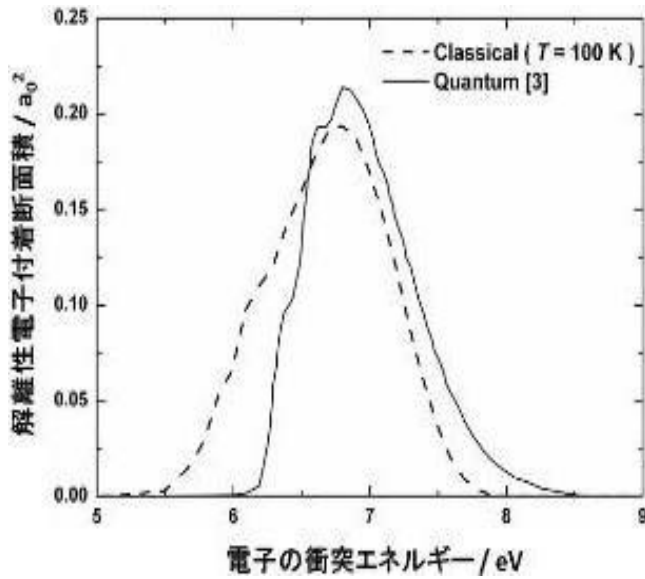


Fig.1 電子の衝突エネルギーに対する  $\text{H}_2\text{O}$  の解離性電子付着断面積

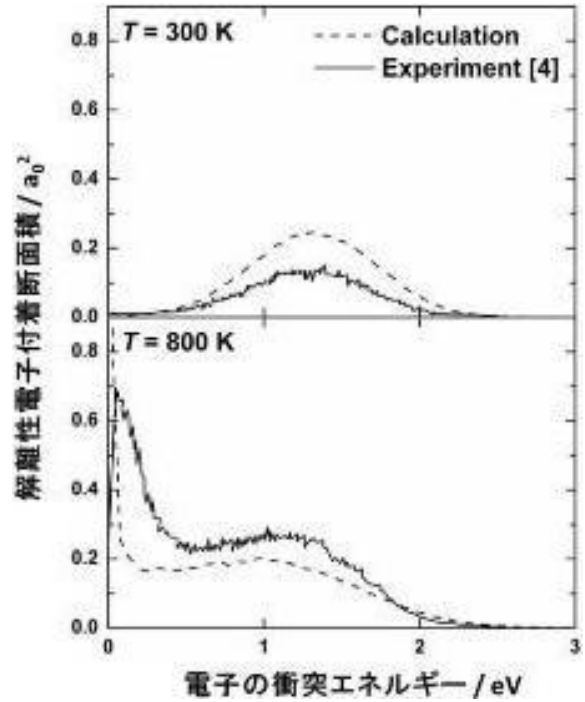


Fig.2 電子の衝突エネルギーに対する  $\text{CF}_3\text{Cl}$  の解離性電子付着断面積

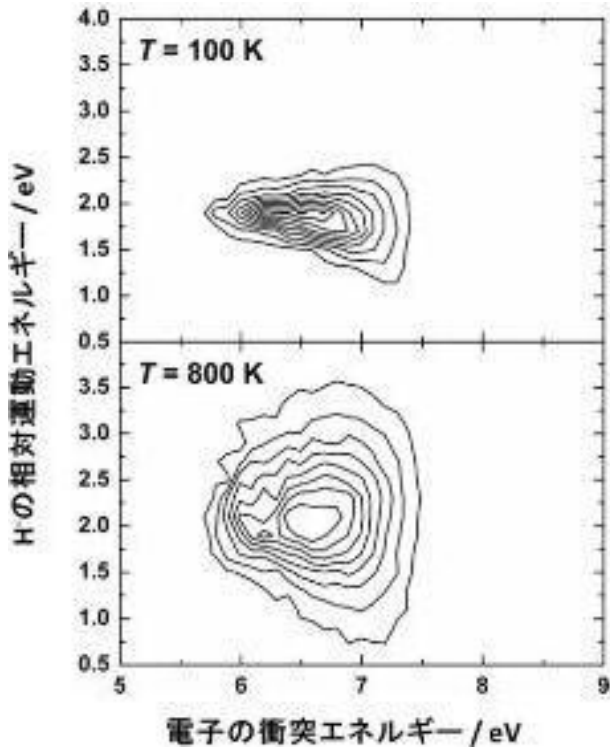


Fig.3 電子の衝突エネルギーに対する  $\text{H}$  の相対運動エネルギー分布

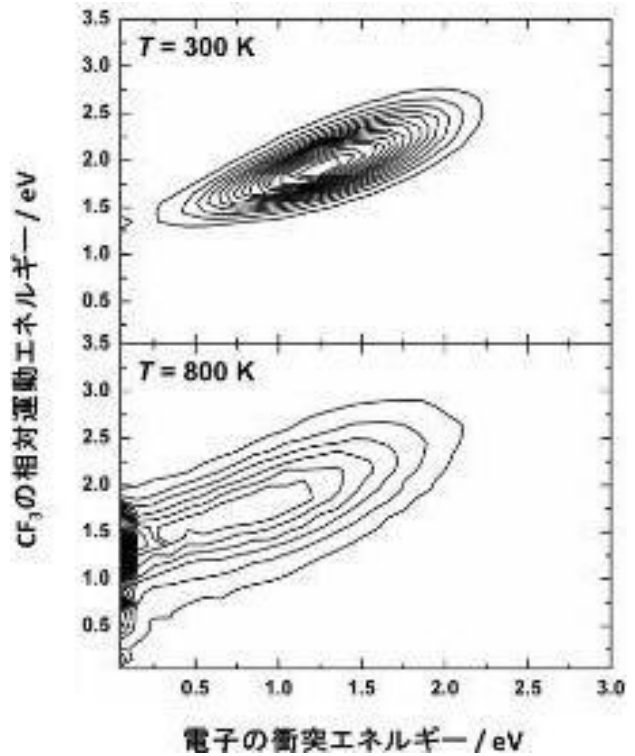


Fig.4 電子の衝突エネルギーに対する  $\text{CF}_3$  の相対運動エネルギー分布

- 
- [1] M. Tarana, K. Houfek, J. Horáček, I. I. Fabricant, Phys. Rev. A, 84 (2011) 052712.
  - [2] D. S. Belić, M. Landau, R. I. Hall, J. Phys. B 14 (1981) 175.
  - [3] D. J. Haxton, T. N. Rescigno, C. W. McCurdy, Phys. Rev. A 75 (2007) 012711.
  - [4] I. Hahndorf, E. Illenberger, L. Lehr, J. Manz, Chem. Phys. Lett. 231 (1994) 460.