MeV イオン照射における核酸塩基分子の 多重電離と解離ダイナミクス

(京大院工) ○吉田慎太郎,間嶋拓也,浅井達也,松原正弥, 土田秀次,斉藤学,伊藤秋男

Multiple ionization and fragmentation dynamics of nucleobase molecules by MeV-ion irradiation

(Kyoto Univ.) OS.O.Yoshida, T. Majima, T. Asai, M. Matsubara, H. Tsuchida, M. Saito and A. Itoh

【序】 高エネルギーイオン衝突に伴う、生体分子へのエネルギー付与、およびその緩和に至る反応過程を知ることは、粒子線治療や放射線の人体影響において初期の物理化学過程を解明する上で重要である。これまで、レーザー照射[1]や電子衝撃[2]、低速多価イオン衝突[3]による孤立生体分子の解離反応が研究されてきたが、粒子線治療の特徴であるブラッグピーク領域の MeV イオンを用いた研究は皆無である。MeV イオンはクーロン相互作用により生体分子の電子系にエネルギーを付与する。その時間スケールはフェムト秒以下と非常に短いため、一時的に、多重電離かつ高励起された分子が中間状態として形成され、その後、解離反応が進行すると捉えることができる。解離直前の中間状態の価数は生体分子の解離過程を系統的に整理する上で重要なパラメータである。そこで我々は、この中間状態の価数に依存した解離ダイナミクスを検知するための多重同時測定システムを構築した[4]。本発表では、DNA 及び RNA を構成する核酸塩基の1つである気相アデニン分子を標的とした1.2 MeV C²+イオン照射の結果を報告する。

【実験】 実験は京都大学大学院工学研究科附属量子理工教育研究センターの1.7 MVコッククロフト・ウォルトン型タンデム加速器を用いて行った。170℃に加熱したるつぼから昇華した気相のアデニン分子($C_5N_5H_5$)に、 $1.2\,\mathrm{MeV}\,\mathrm{C}^{2+}$ イオンビームを入射させた。衝突により生成したイオンを静電場でビーム軸と垂直な方向に引き出し、飛行時間測定法による質量分析およびdelay-line型の二次元位置検出器を用いた3次元運動量画像分光を行なった。また、衝突により放出された二次電子をイオンと逆方向に引き出し、 $+25\,\mathrm{kV}$ に昇圧した半導体検出器 (SSD) で検出した。SSDは、検出した粒子のエネルギーに比例した高さのパルス信号を生成するので、 n_e 個の電子が放出された場合、 $25n_e\,\mathrm{keV}$ に相当する高さの信号を与える。したがって、パルス波高分析によって放出電子個数の情報が得られる。さらに、衝突後の出射イオンを価数選別し、同時測定のトリガー信号として用いることにより、荷電変換条件を限定した測定を行なった。本測定では入射イオンが標的から電子を1つ捕獲する1電子捕獲衝突 (C^{2+}

 \rightarrow C⁺)を選択した.これで全ての電子の移動の情報を押さえていることになり,解離直前の価数 (r) が次式のように一意的に求まる: $C^{2+}+C_5N_5H_5 \rightarrow C^++C_5N_5H_5'^{+*}+n_ee^ (r=n_e+1)$. これら一連の同時測定を衝突イベントごとにリストモードで保存し,中間状態($C_5N_5H_5'^{+*}$)の価数rに依存したアデニン分子の解離ダイナミクスを調べた.

【結果・考察】 図1に中間状態($C_5N_5H_5^{r+*}$)の価数 r ごとに導出した生成イオンの質量分布を示す。 $C_5N_5H_5^{+*}$ と $C_5N_5H_5^{2+}$ は解離せずに存在するものもあるが, $C_5N_5H_5^{3+}$ および $C_5N_5H_5^{4+}$ は確認されないことから,r=3,4 では直ちに解離が進行すると考えられる。r=1 において中性の CNH が 1 個あるいは複数個脱離した $C_nN_nH_n^+$ (n=1-4)イオンが生成されている。r>1 ではそれらのイオンは生成されておらず,さらに H が 1 つ少ない $C_mN_mH_{m-1}^+$ (m=1-3)が生成されている。2 個の生成イオンを検出した場合を見ると, $C_mN_mH_{m-1}^+$ (m=1-3)と CNH_2^+ が同時検出されており, $C_mN_mH_{m-1}^+$ は CNH_2^+ と CNH の脱離によって生成されていることが分かる。また,価数 r が大きくなるにしたがって,原子間結合が多く切れた軽い質量の生成イオンの収量が増え,運動エネルギーの増大を反映して $C_mN_mH_{m-1}^+$ (m=1-3)や CNH_2^+ の分布が広くなっている。発表では,個々の解離イオンの運動エネルギー分布を価数 r ごとに導出した結果を基に,rデニン分子の解離ダイナミクスについて議論する。

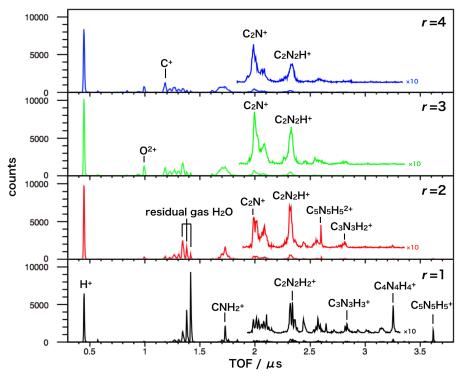


図 1 1.2 MeV C^{2+} と 気相 r デニン分子 $(C_5N_5H_5)$ の衝突における生成イオンの質量分布:解離直前の中間状態 $(C_5N_5H_5^{r+*})$ の価数 r 依存性

【参考文献】

- [1] N. R. Cheong et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 13, 291 (2011).
- [2] B. F. Minaev et al., J. Chem. Phys., **140**, 175101 (2014).
- [3] L. Chen et al., J. Chem. Phys., 135, 114309 (2011).
- [4] T. Majima et al., Phys. Rev. A, 90, 062711 (2014).