

ベンゼン誘導体に対する陽電子吸着と 対消滅機構に関する理論的解析

¹横浜市大生命ナノ, ²横浜市大DSセンター

○小野邦彰¹, 北幸海¹, 立川仁典^{1,2}

Theoretical analysis of the mechanism of positron binding and pair annihilation to benzene derivatives

○Kuniaki Ono¹, Yukiumi Kita¹, Masanori Tachikawa^{1,2}

¹Graduate School of Nanobioscience, Yokohama City University, Japan

²Data Science Center, Yokohama City University, Japan

【Abstract】 The positron is the anti-particle of the electron and has the same mass and spin, but the opposite charge. When the positron collides against the electron, it undergoes a pair-annihilation with a gamma-ray emission. The positron spectroscopy using the gamma-ray is used in various scientific and technological areas [1]. The bound state of a positron and molecules, referred to as *positronic compounds*, are known to be temporarily formed before the pair-annihilation. Recently, Surko and coworkers have experimentally measured a positron affinity (PA), which is the binding energy of a positron, for various kinds of molecular species [2]. Based on statistical approaches, they have also predicted that halogenated benzene molecules have positive PA values. However, there are no experimental and theoretical evidences for the positron binding to this molecular species. Therefore, in this study, we analyzed the mechanism of positron binding and pair annihilation to fluorinated benzene molecules.

【序】 陽電子 e^+ は電子と質量は同じだが、電子と逆符号の電荷（正電荷）を持つ反粒子である。物質に入射された陽電子は原子・分子と一時的に複合体（陽電子複合体）を形成し、複合体中の電子と陽電子が衝突することで γ 線を放出して対消滅することが知られている。この性質を利用した陽電子消滅法は、物理学、化学、医学など様々な分野で応用されている[1]。しかしながら、陽電子吸着機構や複合体の物性といった基礎的性質は十分解明されていない。近年、Surko らは様々な分子に対する陽電子の束縛エネルギーである陽電子親和力 (positron affinity, PA) を実験的に測定することに成功した[2]。また、彼らは統計的手法に基づき、ベンゼン誘導体の PA の予測値を報告しているが、その陽電子吸着は実験的にも理論的にも未だ実証されていない。

そこで本研究では、ベンゼン誘導体に対する陽電子吸着を理論的に検証するため、第一原理計算を用いてベンゼン誘導体の一つであるフッ化ベンゼン分子の PA および対消滅率の理論的解析を行った。

【方法】 ベンゼン誘導体に対する PA を次式で定義した：

$$PA^{C_6H_{6-a}X_a} \equiv E^{C_6H_{6-a}X_a} - E^{[C_6H_{6-a}X_a; e^+]}$$

ここで、 $E^{C_6H_{6-a}X_a}$ と $E^{[C_6H_{6-a}X_a; e^]}$ はそれぞれ X に置換されたベンゼン分子とその陽電子複合体の変分エネルギーであり、正の PA は陽電子の束縛状態が存在することを意味する。本研究では、変分エネルギーの計算には Hartree-Fock レベルの多成分分子軌道法[3]を用いた（電子基底は 6-31++G**、陽電子基底は 15s15p4d2f1g のガウス型関数である）。

また陽電子の二光子対消滅率 Γ_2 を次式より算出した：

$$\Gamma_2 \equiv \pi \alpha^4 c a_0^{-1} \langle \delta_{ep} \rangle$$

ここで α は微細構造定数、 c は光速、 a_0^{-1} は Bohr 半径、 δ_{ep} は電子-陽電子衝突確率であり、空間座標 \mathbf{r} における電子と陽電子密度の積を全空間で積分することで算出した。

【結果・考察】

本研究では、考えられる全てのフッ化ベンゼン分子に対する解析を行った。Fig.1 には、正の PA 値をもつ分子の結果のみを示す。Fig.1 より、全てのフッ化ベンゼン分子の中で、1,2,3-C₆H₃F₃ 分子の PA と Γ_2 が最も大きく、1,2-C₆H₄F₂ と 1,2,3,4-C₆H₂F₄ 分子の PA と Γ_2 は相対的に小さいことがわかる。また双極子モーメントにおいても同様な傾向の結果が得られた。従って、フッ化ベンゼン分子の陽電子吸着能(PA および対消滅率)は、親分子の双極子モーメントの大きさと強く相関していることがわかった。

Figure 2 に 1,2-C₆H₄F₂ 分子におけるフッ素原子の 1s、2s、2p と炭素原子の 1s、2p 由来の分子軌道に対する対消滅率を示す。Fig.2 を見ると、炭素原子よりもフッ素原子由来の分子軌道における対消滅率が大きくなっていることがわかる。炭素原子よりフッ素原子の方が電気陰性度が大きいため、フッ素原子に電荷が偏り、電子と陽電子密度の重なりが大きくなるため、対消滅率が大きくなったと考えられる。また、フッ素原子由来の分子軌道において、1s、2s、2p の順に対消滅率が大きく得られており、陽電子は内殻電子よりも価電子と対消滅し易いことがわかった。また 2p 軌道に対して、分子平面と垂直な軌道が対消滅率に最も大きく寄与することがわかった。これは、陽電子密度が分子平面に対して垂直方向に高く分布することが要因であると考えられる。1,2,3-C₆H₃F₃ と 1,2,3,4-C₆H₂F₄ 分子に対しても解析を行った結果、1,2-C₆H₄F₂ 分子と同様な傾向が見られている。詳しい議論については当日発表する。

【参考文献】

- [1] P.G. Coleman, *Positron Beams and Their Applications* (World Scientific, Singapore, 2000).
- [2] G.F. Gribakin, J.A. Young, C.M. Surko, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2557 (2010).
- [3] M. Tachikawa, *Chem. Phys. Lett.* **360**, 494 (2002).

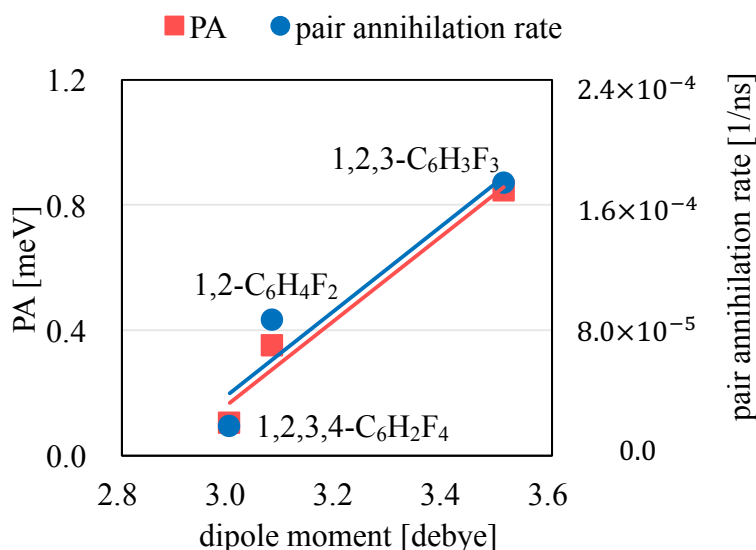


Fig.1 フッ化ベンゼン分子の双極子モーメント μ 、陽電子親和力 PA、対消滅率 Γ_2

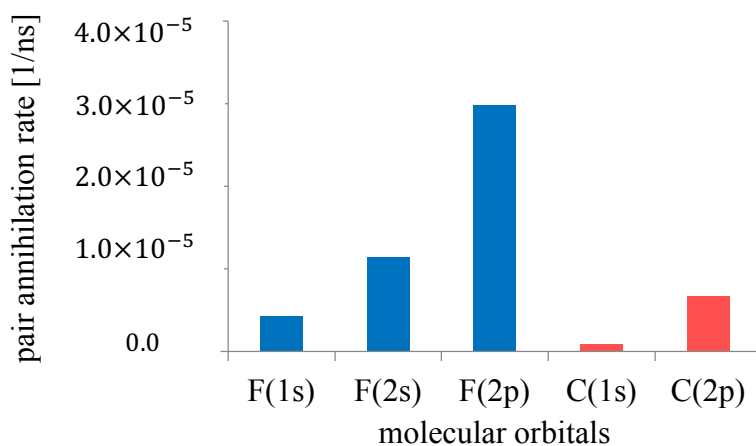


Fig.2 1,2-C₆H₄F₂ 分子におけるフッ素原子の 1s、2s、2p と炭素原子の 1s、2p 由来の分子軌道に対する対消滅率