

## 経路積分分子動力学法を用いたミュオニウム化アセトンの解析

○大場 優生<sup>1</sup>、河津 励<sup>1,2</sup>、立川 仁典<sup>1</sup><sup>1</sup>横浜市立大学大学院生命ナノシステム科学研究科

(〒236-0027 横浜市金沢区瀬戸 22-2)

<sup>2</sup>自然科学研究機構分子科学研究所 (〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中 38)

【序論】 正ミュオン( $\mu^+$ )の質量はプロトンの約 1/9 であり、その量子揺らぎはプロトンよりも大きい。また、ミュオニウム(Mu)は 1 個の  $\mu^+$  と 1 個の電子から成る原子様構造体[1]であり、分子と結合してミュオニウム化分子を形成することが知られている。Percival らによる測定では、Mu がアセトンに結合したミュオニウム化アセトンラジカル(Mu 化体, 図 1)の、Mu に対する電子と原子核とのカップリングを表す超微細結合定数のプロトン換算値  $A_\mu'$  は 365 K において 10.27 MHz と報告されている[2]。本研究では熱揺らぎの効果や  $\mu^+$  の軽さによる量子効果を取り入れることができる経路積分分子動力学 (PIMD) 法を用いて、 $A_\mu'$  を再現すること、そして実験では分かっているミュオニウム化アセトンの構造を決定することを目的とした。

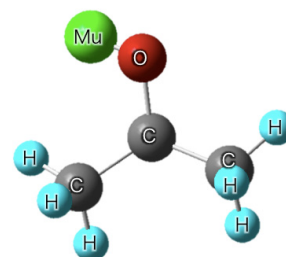


図 1: ミュオニウム化アセトンの分子構造

【計算詳細】 Mu 化体と H 化体の PIMD 計算を行った。本計算では Mu 化体および H 化体に対してビーズ数は 64 および 16 とした。粒子間ポテンシャルの計算レベルには O3LYP/6-31+G を用い、温度は 300 K とした。step 数および時間刻みは Mu 化体、H 化体でそれぞれ 95,000 steps (0.04 fs/step)、95,000 steps (0.1 fs/step) とした。

【結果】 表 1 に本研究で得られた  $A_\mu'$  の値を示した。先行の理論研究では -5.8 MHz と報告されている[3]が、この計算では熱揺らぎの効果や  $\mu^+$  の軽さによる量子効果を考慮しておらず、Mu 化体と H 化体の区別をつけていない。一方で我々の結果は Mu 化体の Mu および H 化体の H に対する  $A_\mu'$  の期待値がそれぞれ 32.1 MHz および 3.97 MHz となり、実験値の大小関係を定性的に再現することができた。これは、Mu の大きな量子効果によって Mu がアセトンの酸素原子から部分的に中性解離し、Mu まわりの電子密度が増大したためと考えられる。

表 1: 本研究および実験で得られた  $A_\mu'$  (MHz)

	Mu化体	H化体
実験値	10.27 <sup>[2]</sup>	1.51 <sup>[4]</sup>
本研究	32.1	3.97

[1] P. W. Percival, *Radiochemica Acta*, 26 1 (1979). [2] P. W. Percival, et al., *J. Am. Chem. Soc.*, 127 13715 (2005). [3] R. M. Macrae, et al., *Physica B*, 326 81 (2003). [4] H. Zeldes, et al., *J. Chem. Phys.*, 44 1245 (1966).