

革新的光科学技術を駆使した最先端科学の創出  
2021 年度採択研究者

2021 年度 年次報告書
------------------

山崎 馨

理化学研究所 光量子工学研究センター  
研究員

階層的動力学理論によるバイオ・X 線機能性分子の超高速X線光化学

## § 1. 研究成果の概要

近年のフェムト秒X線光源の発達により、有機分子におけるフェムト秒X線光化学反応過程の実時間追跡が実現しつつある。この手法と適切な理論計算をX線有機シンチレータやがん治療用X線増感剤などのX線機能性分子のX線光化学反応機構解明に適用すれば、X線機能性分子の性能向上に繋がると期待される。X線機能性分子の骨格をなす芳香族分子(10原子以上)のX線光化学反応では、内殻イオン化とAuger緩和からなるイオン化過程で $10^2$ - $10^3$ の電子励起dication状態が生成し、非断熱遷移が関与する化学反応が速やかに起きる。そこで本研究では、有機分子のX線誘起イオン化とdicationの非断熱反応の両過程を効率よく取扱える階層的動力学理論を開発し、これを芳香族分子のフェムト秒X線誘起無輻射失活過程へと適用した。

その結果、芳香族分子のフェムト秒X線誘起無輻射失活過程をフェムト秒X線過渡吸収スペクトル(TR-XAS)で追跡できることを理論的に示すことができた。また、階層的動力学理論と高精度量子化学計算を組み合わせることで、芳香族分子のTR-XAS測定に最適な測定スキームの同定やX線パルスの波長や強度等の測定条件の最適化にも成功した。

以上のように、階層的動力学理論を活用することで、X線によって誘起されるX線機能性分子や生体分子の骨格をなす芳香族分子(10原子以上)のX線光化学反応を効率よく理論計算するとともに、高精度量子化学計算を併用することで実験的検証に必要な測定法や測定条件を提案することが可能となった。今後は、本手法を核酸塩基やアミノ酸といった生体分子に順次適用して生体分子のX線光化学反応機構解明を順次進めていく。