

2P089

経路積分セントロイド法を用いた パラ水素クラスタ中分子の量子動力学シミュレーション

(東北大院・理, JST-CREST) ○水本 義彦, 寺西 慶哲, 大槻 幸義

一般に、固体に分散捕捉された分子のスペクトルは、強い分子間相互作用のために広い線幅を持つ。しかし、パラ水素固体に捕捉された分子では、孤立分子の振動回転運動に対応するような極めて鋭いスペクトルピークが観測されている[1]。狭いスペクトル幅は長いコヒーレント時間を持つことを示している。パラ水素固体に捕捉された分子にはデコヒーレンス時間の極めて長い多数の量子状態が存在する。これを量子情報資源として利用することが注目されている。そのため基盤技術開発に向け、パラ水素固体の量子環境体としての特性を明らかにすることが求められている。

本研究では最初の段階として、パラ水素クラスタに捕捉された分子に着目する。分子動力学(MD)シミュレーションを行い、量子環境体が捕捉された分子に及ぼす影響を解析する。パラ水素クラスタの量子性を取り入れるために、経路積分セントロイド分子動力学(CMD)法[2]を用いる。経路積分CMD法は、量子Boltzmann粒子と数珠状古典粒子の分配関数が同型であることを利用し、数珠状古典粒子に対するMD計算により量子ダイナミクスをシミュレーションする手法である。異なったクラスタサイズや温度条件の下での捕捉分子の速度相関関数などを計算し、パラ水素クラスタの環境体としての性質を調べる。

予備計算としての $\text{Li}-(\text{p-H}_2)_{53}$ クラスタを用いた原子ドープのシミュレーション結果を示す。

図1に $T = 5.0\text{K}$ における、 $\text{Li}-(\text{p-H}_2)_{53}$ クラスタの動径分布関数を示す。実線がCMD法による結果、破線が古典MD法による結果を表す。古典MDから求めた分布関数にはピーク構造が現れている。これはパラ水素が比較的狭い範囲を動いていることを意味する。一方、CMD法の結果では、なだらかな構造を持った分布関数が求められ、パラ水素が広い範囲を動いている事がわかる。量子効果により、数珠状古典粒子に対する実効的な束縛ポテンシャルエネルギーが減少するためである。また、ピーク位置の変化は、ポテンシャルが非対称であるために、量子波束の中心が変化した結果と考えられる。

図2には $\text{Li}-\text{H}_2$ 間の動径分布を示す。条件等は図1と同じである(CMD法にみられる細かな構造はサンプル数が十分でないためである)。 $\text{Li}-\text{H}_2$ 間のポテンシャルは、 H_2-H_2 間よりも浅いため、Li原子は H_2 クラスタの表面を動いている。古典MDから求めた動径分布には明

らかな構造が見られる。それに対し、セントロイド法から求めた動径分布では、構造が曖昧になり幅広く分布している。パラ水素クラスタにおいてはLi原子が弱く束縛されており、比較的自由に動き回っていることを表している。以上の結果はパラ水素クラスタにおける量子効果の重要性を強く示唆している。なお、文献[3]でも同様の結論を報告している。当日は、パラ水素クラスタに捕捉された分子に対する結果を報告する。

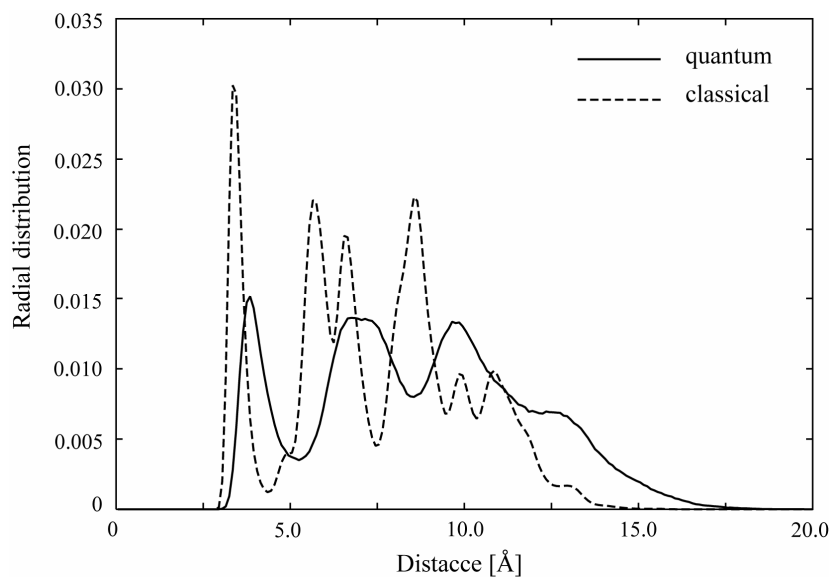


図1

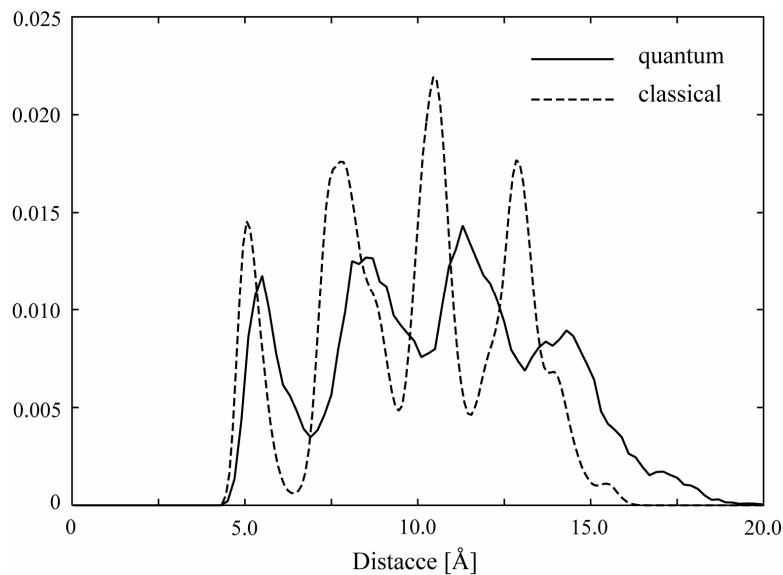


図2

参考文献

- [1] T. Momose, et al., *Vibr. Spectrosc.* **34**, 95 (2004).
- [2] G. A. Voth, *Adv. Chem. Phys.* Vol. XCIII, p. 135.
- [3] K. Kinugawa, et al., *J. Chem. Phys.* **106**, 1154 (1997)