

量子効果を考慮したイオン化ヘリウムクラスターにおける 電荷輸送メカニズムの理論研究

¹埼玉大学大学院理工学研究科, ²日本原子力研究開発機構
○鈴木健人¹, 宮崎貴暉¹, 高柳敏幸¹, 志賀基之²

極低温条件下にて形成されるヘリウムクラスターは、ゼロ点振動や超流動などの特異な性質を示すことから、実験と理論両方の観点で非常に注目を集めている。しかし、イオン化ヘリウムクラスターの初期ダイナミクス、特にクラスター中での電荷輸送のメカニズムについては未だ理解されていない。そこで今回我々は、ヘリウムクラスターのイオン化ダイナミクスについての理論研究を行った。しかし、ヘリウムクラスターは量子力学的な性質が大きいため、古典力学では記述することはできない。そこで我々は、He 原子核の運動については RPMD 法を用い、イオン化ヘリウムクラスターの電子状態については時間依存の波動方程式を解いた。RPMD 法では、 P 個のビーズをバネで環状につないだリングポリマーによって1つの原子を表すことにより、原子核の量子的な広がりを再現することができる。系全体の有効ポテンシャル V_{eff} は(1)式のように表される¹⁾。

$$V_{eff} = \sum_{s=1}^P \left[\sum_{l=1}^N \left\{ \frac{M_l \omega_P^2}{2} (\mathbf{R}_{l,s} - \mathbf{R}_{l,s+1})^2 \right\} + \frac{1}{P} V(\mathbf{R}_{1,s}, \dots, \mathbf{R}_{N,s}) \right] \quad (1)$$

また、(2)式のような時間依存の波動方程式を解くことにより、イオン化ヘリウムクラスターの電子状態の非断熱的な時間変化を記述した。

$$i\hbar \frac{d\mathbf{c}(t)}{dt} = H^{DIM}(Q^c(t))\mathbf{c}(t) \quad (2)$$

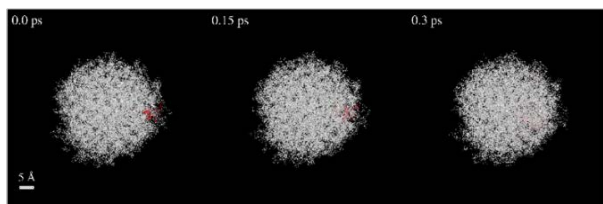


Fig. 1 He₃₀₀⁺クラスターのダイナミクスの0.3psまでのスナップショット。初期状態は243番目の励起状態とした。

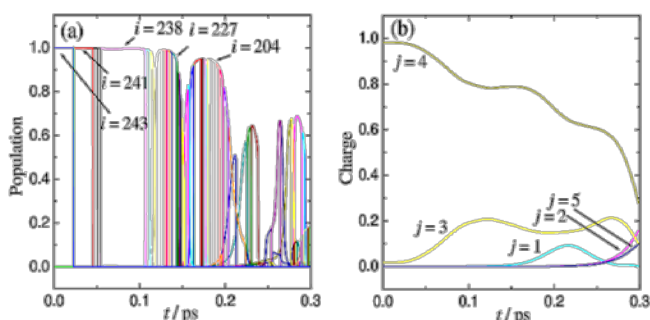


Fig. 2 (a) 断熱的な population と (b) He 原子上の正電荷の時間発展。代表的ないくつかの state と原子を抽出した。

ここで、 $\mathbf{c}(t)$ はイオン化クラスターの電子状態を表す波束であり、 $Q^c(t)$ はリングポリマーの重心の座標を表している。また、 H^{DIM} は Calvo らが開発した DIM ハミルトニアンであり、多原子系のハミルトニアンを単原子、二原子系のハミルトニアンで近似することができる²⁾。Fig. 1 には He₃₀₀⁺のイオン化ダイナミクスシミュレーションのスナップショットを示した。時間発展とともに正電荷が周囲のHe原子へ分散していくことが分かる。また、Fig. 2 (a), (b) にはそれぞれ断熱的な population と He 原子上の正電荷の時間発展を示した。この図から、クラスター中の正電荷が非断熱遷移を起こしながら他の He 原子へ広がっていくことが分かった。

参考文献

- 1) M. Shiga, A. Nakayama, *Chem. Phys. Letters.* **451**, 176 (2008).
- 2) F. Calvo, F. Y. Naumkin, D. J. Wales, *J. Chem. Phys.* **135**, 124308 (2011).