

分子基礎理論第二研究部門

中 村 宏 樹 (教授)

A-1) 専門領域：化学物理理論、化学反応動力学論

A-2) 研究課題：

- a) 化学反応の量子動力学
- b) 非断熱遷移の基礎理論の構築と応用
- c) 化学動力学の制御
- d) 分子スイッチ機構の提唱
- e) 超励起分子の特性と動力学

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 超球楕円座標系とSVD (Slow/Smooth Variable Discretization) 法に基づき重 - 軽 - 重反応系における水素原子移行の動力学をポテンシャル曲線間の非断熱遷移として理解する事に成功した。例として、 $O(^3P)HCl$, $ClHCl$, $BrHCl$ 系を取り上げ化学反応動力学を振動非断熱遷移として概念化出来ることを示した。全角運動量 J が一般の場合も容易に取り扱える様に理論を拡張するとともに、電子的に非断熱な化学反応の量子動力学への挑戦をも開始した。後者に対するプログラムを完成し、 DH_2^+ 系の計算を行った。
- b) Landau-Zener-Stueckelberg型非断熱遷移の理論を完成したが、共線系反応に現われる鋭い共鳴の解析に成功する等理論の有用性を実証した。3次元化学反応への応用も進め、全反応確率を良く再現しうる事を示した。3次元反応さえ完全に解析的に取扱いそのメカニズムを明確にしうる事を示した。更に、Rosen-Zener-Demkov型をも包含した非断熱遷移の統一理論の構築を目指した研究も進めている。
- c) 我々が開発した時間依存非断熱遷移理論を旨く用いて外場による非断熱遷移の制御を有効に行う新しいアイデアを提唱した。レーザー場によって誘起されるエネルギー準位交差の所で場の強さあるいは周波数を掃引することによって、振動準位間遷移やトンネル遷移を制御しうる事を示した。光分解などの動的過程の制御の研究をも進めている。また、非断熱トンネル型遷移に現われる完全反射現象を利用し、レーザー場の周波数と分子の振動状態を旨く選ぶ事によって光分解を選択的に起しうる事をモデル計算で示した。
- d) 非断熱トンネルにおける特異な現象である完全反射を用いて周期系で分子スイッチが原理的に可能である事を以前示したが、これを2次元狭窄のモデルに拡張しやはりスイッチングが原理的に可能である事を確かめた。
- e) 超励起状態の関与する動力学を扱う時に必要となるLippmann-Schwinger型の特異積分方程式を解析的に有効に処理する手法を開発し応用した。解離性再結合過程における有効性を示した。

B-1) 学術論文

K. NOBUSADA, O. I. TOLSTIKHIN and H. NAKAMURA, "Quantum Reaction Dynamics of $Cl + HCl \rightarrow HCl + Cl$: Vibrationally Nonadiabatic Reactions," *J. Mol. Struct. (THEOCHEM)* **461-462**, 137-144 (1999).

V. I. OSHEROV and H. NAKAMURA, "Analytic Solution of Two-State Time-Independent Coupled Schrödinger Equations in an Exponential Model," *Phys. Rev. A* **59**, 2486-2489 (1999).

- G. V. MIL'NIKOV, O. I. TOLSTIKHIN, K. NOBUSADA and H. NAKAMURA**, "Quantum Reaction Dynamics of Asymmetric Exoergic Heavy-Light-Heavy Systems: $\text{Cl} + \text{HBr} \rightarrow \text{HCl} + \text{Br}$," *Phys. Chem. Chem. Phys.* **1**, 1159-1163 (1999).
- H. NAKAMURA**, "Molecular Switching in a Two-Dimensional Constriction," *J. Chem. Phys.* **110**, 10253-10261 (1999).
- Y. TERANISHI and H. NAKAMURA**, "New way of Controlling Molecular Processes by Time-Dependent External Fields," *J. Chem. Phys.* **111**, 1415-1426 (1999).
- K. NOBUSADA and H. NAKAMURA**, "On the *J*-Shift Approximation in Quantum Reaction Dynamics," *J. Phys. Chem. A* **103**, 6715-6720 (1999).

B-4) 招待講演

- 中村宏樹, 「超球座標系と化学反応動力学機構」, 物理学会年会, 原子核理論・原子核実験合同シンポジウム「少数粒子系の物理」, 広島, 1999年3月.
- H. NAKAMURA**, "Control of Nonadiabatic Processes by Time-Dependent External Fields," 日中理論化学シンポジウム, 合肥(中国), May 1999.
- H. NAKAMURA**, "Nonadiabatic Transitions and Chemical Reaction Dynamics," The Frontiers of Quantum Chemistry and Chemical Reactions Dedicated to the 65-th Birthday of Prof. Keiji Morokuma, Emory Univ., Atlanta (U. S. A.), May 1999.
- H. NAKAMURA**, "Nonadiabatic Transitions in Chemical Reactions," Workshop on "Quantum Reactive Scattering," Perugia (Italy), June 1999.
- H. NAKAMURA**, "Complete Solutions of the Landau-Zener-Stueckelberg Curve Crossing Problems and Their Generalizations and Applications," XXI-ICPEAC (Int. Conf. on Physics of Elect. and Atomic Collisions) Review Talk, Sendai (Japan), July 1999.
- H. NAKAMURA**, "Nonadiabatic Transition and Tunneling as an Origin of Mutability of this World," ICLTC(Intern. Conf. on Low Temperature Chemistry), Nagoya (Japan), July, 1999.
- H. NAKAMURA**, "Nonadiabatic Transitions: Basic Theory and Its Applications," ACS Symposium "Electronically Nonadiabatic Processes in Gaseous, Cluster, and Condensed Media," New Orleans (U. S. A.), August 1999.
- H. NAKAMURA**, "Nonadiabatic Transitions and Hydrogen Transfer Chemical Reactions," 8-th Asian Chemical Congress, Taipei (Taiwan), November 1999.
- H. NAKAMURA**, "New Way of Controlling Molecular Processes by Lasers," 日米セミナー, Hawaii (U. S. A.), December 1999.

B-6) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

原子衝突研究協会委員(1981-1994).

学会の組織委員

ICPEAC (原子衝突物理学国際会議) 第9回組織委経理担当(1979).

ICPEAC (第17回及第18回) 全体会議委員(1991, 1993).

ICPEAC (第21回) 準備委員会委員, 運営委員会委員.

文部省、学術振興会等の役割等

学術審議会専門委員(1991-1995, 1998-).

学術雑誌編集委員

Computer Physics Communication, Specialist editor (1986-).

科学研究費の研究代表者等

重点領域研究班長(1992-1995).

特定領域研究計画班代表者(1999-).

基盤研究代表者(1998-).

B-7) 他大学での講義，客員

ウォータールー大学応用数学科，客員教授，1994年7月 - .

東京大学工学部，「化学動力学の基礎」，1999年11月.

京都大学理学部，「化学動力学の基礎」，1999年11月.

北海道大学理学部，「化学動力学の基礎」，1999年12月.

C) 研究活動の課題と展望

「研究活動の概略と主な成果」の所で述べた研究を更に進めていく。化学反応の量子力学特に電子的非断熱反応に対する新手法の開発と機構解明の促進，一次元非断熱遷移の統一理論の構築と応用，時間依存外場による分子過程の制御，超励起状態の統一的理解，及び新しい分子スイッチ機構に基づく分子素子の可能性追求等を一層推進していく。特に，我々の開発したポテンシャル曲線交差による非断熱遷移の完全解が大変良く働く事が判ったので，様々な化学力学過程への応用を広範に進め多次元の具体的系に有効に応用出来る半古典力学的理論を完成していきたい。また，我々の新しい制御理論をも色々な動的過程に適用し，実験家との協力によって新しい分野を切り開いていきたい。